

CPFにおける照射済高速炉燃料溶解試験
データの評価
(研究報告)

2000年3月

核燃料サイクル開発機構
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、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4-49
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)
2000

CPFにおける照射済高速炉燃料溶解試験データの評価

(研 究 報 告)

佐野雄一、小山智造、船坂英之

要 旨

CPFにおいてこれまでに実施された照射済高速炉燃料の各種溶解試験結果を対象に、U、Puの溶解挙動に影響を及ぼす各種因子について、fragmentationモデルに基づいた評価を行った。

製造履歴に関わる因子 (Pu含有率 ($Pu/(U+Pu)$))、照射履歴に関わる因子 (燃焼度)、及び溶解条件に関わる因子 (硝酸濃度、溶液温度及びHM (U+Pu)濃度) について、これらの影響を定量的に評価することにより燃料溶解速度の推定式を導出した。また、fragmentationモデル中に含まれるf値 (硝酸の拡散及び燃料への浸透のしやすさを表すパラメータ) について、固液比、燃焼度及び燃料の粉化率との相関を検討、評価した。

導出された推定式を用いることにより、表面積モデルに基づいた既存の推定式に比べ、これまでCPFにおいて実施された照射済高速炉燃料溶解試験より得られている燃料の溶解挙動を精度良く再現できることを確認した。さらに、照射済高速炉燃料以外 (未照射Uペレット、高Pu富化MOX燃料の溶解) を対象とした溶解においても本推定式の有効性が認められた。

導出された推定式を用いた高濃度溶解試験時の溶解挙動評価からは、高濃度溶解時における燃料の溶解性低下が示された。燃料の溶解性は、酸濃度及び溶液温度を上昇させることによりある程度改善されるが、溶解槽等の機器材料への影響を考慮すると、f値を増加させる (剪断条件、攪拌条件等を最適化する) ことにより溶解性の向上を図ることが望ましいと考えられる。

Study about the dissolution behavior of the irradiated fast reactor fuels in CPF

Yuichi SANO, Tomozo KOYAMA, Hideyuki FUNASAKA

Abstract

We investigated the factors which affected the dissolution of U and Pu to the nitric acid solution with the fragmentation model, which was based on the results of dissolution experiments for the irradiated fast reactor fuels in the Chemical Processing Facility (CPF).

The equation that gave the fuel dissolution rate was estimated with the condition of fabrication (Pu ratio ($\text{Pu}/(\text{U}+\text{Pu}))$), irradiation (burn-up) and dissolution (nitric acid concentration, solution temperature and U+Pu concentration) by evaluating these effects quantitatively. We also investigated the effects of fuel volume ratio to the solution in the dissolver, burn-up and flouing ratio of the fuel on the f -value (the parameter which shows the diffusion and osmosis of nitric acid to the fuel) in the fragmentation model.

It was confirmed that the fuel dissolution rate calculated with this equation had better agreement with the results of dissolution experiments for the irradiated fast reactor fuels in the CPF than that estimated with the surface area model. In addition, the efficiency of this equation was recognized for the dissolution of unirradiated U pellet and high Pu enriched MOX fuel.

It was shown that the dissolution rate of the fuel slowed down at the condition of the high U-Pu concentration dissolution by the calculation of the dissolution behavior with this equation. The dissolution of the fuel can be improved by increasing the nitric acid concentration and temperature, but from the viewpoint of lowering the corrosion of the dissolver materials, it is desirable that the f -value is increased by optimizing the condition of shearing and stirring for the improvement of dissolution.

目 次

1. はじめに	1
2. 評価項目	2
3. 各因子の評価	3
3.1 燃料溶解のモデル化 (Hodgson による fragmentation モデル)	3
3.2 Fragmentation モデルの改良	4
3.3 剪断片に対する f 値の決定	5
3.4 剪断片を対象とした溶解試験における λ 値の算出	5
3.5 硝酸濃度、溶解温度及び燃焼度の影響評価	6
3.6 初期 HM 濃度の影響評価	6
3.7 ベンチスケール溶解における f 値の決定	7
3.8 Pu 含有率の影響評価	8
3.9 得られた溶解挙動推定式	9
4. 導出された評価式の適用性検討	11
4.1 照射済高速炉燃料を対象とした溶解試験 (ベンチスケール溶解)	11
4.2 照射済高速炉燃料を対象とした溶解試験 (ビーカースケール溶解)	12
4.3 照射済高速炉燃料を対象とした模擬連続溶解試験	12
4.4 未照射 U ペレットを対象とした溶解試験 (ビーカースケール溶解)	12
4.5 高 Pu 富化 MOX 燃料粉末を対象とした溶解試験 (ビーカースケール溶解)	13
5. f 値の定量的な評価	14
5.1 固液比	14
5.2 燃焼度	14
5.3 粉化率	15
6. 高濃度溶解時における燃料溶解挙動の推定 (各パラメータの感度解析)	16
6.1 前提条件	16
6.2 槽内液量の違いによる溶解挙動の変化	16
6.3 硝酸濃度の違いによる溶解挙動の変化	17
6.4 溶液温度の違いによる溶解挙動の変化	17
6.5 初期 HM 濃度の違いによる溶解挙動の変化	17
6.6 燃焼度の違いによる溶解挙動の変化	17
6.7 f 値の違いによる溶解挙動の変化	18
7. まとめ	19
8. 今後の課題	21

参考文献	23
別添 1 ベンチスケール溶解試験 (RUN14) における燃料溶解率の算出 (f 値の決定)	55
別添 2 ベンチスケール溶解試験における燃料溶解率の算出 (Pu 含有率の影響評価)	57
別添 3 ベンチスケール溶解試験 (RUN7) における燃料溶解率の算出	60
別添 4 ビーカースケール溶解試験 (RUN21-1) における燃料溶解率の算出	62
別添 5 模擬連続溶解試験 (RUN19) における燃料溶解率の算出	65
別添 6 未照射 U ペレット溶解試験 (ビーカースケール試験) における 燃料溶解率の算出	66
別添 7 高 Pu 富化 MOX 燃料粉末溶解試験 (ビーカースケール試験) における 燃料溶解率の算出	69
別添 8 溶解槽中における固液比及び f 値の最適化	72
別添 9 剪断片を対象とした溶解試験における f 値に及ぼす燃焼度の影響評価	74

表 リ ス ト

表 2-1	高速炉 MOX 燃料の溶解に影響を及ぼす因子	24
表 3-1	粉末燃料及び剪断片を対象とした溶解試験条件と λ 値及び f 値	25
表 3-2	剪断片を対象とした溶解試験条件と λ 値及び最適化された f 値	26
表 3-3	重回帰分析による硝酸濃度、温度及び燃焼度の影響評価	27
表 3-4	重回帰分析による硝酸濃度、温度及び燃焼度の影響評価 (各変数を標準化)	27
表 3-5	最小自乗法による HM 濃度の影響算出	28
表 3-6	照射済燃料溶解試験において使用された燃料の溶解条件 (複数の剪断片に対する溶解試験)	29
表 4-1	高 Pu 富化 MOX 粉末燃料を対象とした溶解試験における溶解開始 6 時間後の燃料溶解率、硝酸濃度及び液量の実測値と評価式による計算値	30
表 8-1	CPF での照射済燃料溶解試験において評価を行うべき項目	30
別表 2-1	ベンチスケール溶解試験での溶解率計算における初期条件	59
別表 9-1	重回帰分析による硝酸濃度及び温度の影響評価	76
別表 9-2	最小自乗法による HM 濃度の影響算出	76
別表 9-3	剪断片を対象とした溶解試験条件と λ 値及び最適化された f 値	77
別表 9-4	回帰分析による燃焼度の影響評価	78

図 リ ス ト

図 3-1(1) Fragmentation モデル中におけるパラメータ λ 及び f の算出フロー	31
図 3-1(2) 本検討における fragmentation モデル中におけるパラメータ λ 及び f の算出フロー	32
図 3-2 常陽 MK-II C 型特殊燃料（粉末及び剪断片）を対象とした 溶解試験結果	33
図 3-3 Phenix 燃料（剪断片）を対象とした溶解試験結果	34
図 3-4 常陽 MK-II 炉心燃料を対象としたベンチスケール溶解試験の 結果と f 値の算出	35
図 3-5(1) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果	36
図 3-5(2) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果	37
図 3-5(3) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果	38
図 3-5(4) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果	39
図 3-5(5) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果	40
図 3-5(6) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果	41
図 3-5(7) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果	42
図 4-1 常陽 MK-II 炉心燃料を対象としたベンチスケール溶解試験結果 及び推定式による燃料溶解率の推定値	43
図 4-2 常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象としたビーカースケール溶解試験結果 及び推定式による燃料溶解率の推定値	43
図 4-3 常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした模擬連続溶解試験結果 及び推定式による燃料溶解率の推定値	44
図 4-4 未照射 U ペレットを対象としたビーカースケール溶解試験結果 及び推定式による燃料溶解率の推定値	44
図 4-5 未照射 U ペレットを対象としたビーカースケール溶解試験結果 （初期 HM 濃度依存性）及び推定式による燃料溶解率の推定値	45
図 4-6 高 Pu 富化 MOX 燃料を対象としたビーカースケール溶解試験結果 及び推定式による燃料溶解率の推定値	45
図 5-1 剪断片を対象とした回分式溶解試験における固液比と f 値との関係	46
図 5-2 剪断片 1 片を対象とした溶解試験における燃焼度と f 値との関係	46
図 5-3 ベンチスケール溶解試験における粉化率と f 値との関係	47

図 6-1	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の槽内液量依存性(1)	48
図 6-1	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の槽内液量依存性(2)	48
図 6-1	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の槽内液量依存性(3)	49
図 6-2	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の硝酸濃度依存性(1)	50
図 6-2	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の硝酸濃度依存性(2)	50
図 6-3	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の溶液温度依存性(1)	51
図 6-3	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の溶液温度依存性(2)	51
図 6-4	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の初期 HM 濃度依存性(1)	52
図 6-4	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の初期 HM 濃度依存性(2)	52
図 6-5	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の燃焼度濃度依存性(1)	53
図 6-5	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の燃焼度濃度依存性(2)	53
図 6-6	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の f 値依存性(1)	54
図 6-6	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における 燃料溶解率の f 値依存性(2)	54
別図 4-1	常陽 MK-II C 型特殊燃料を対象としたピーカースケール溶解試験結果 及び推定式による燃料溶解率の推定値	64
別図 6-1	未照射 U ペレットを対象としたピーカースケール溶解試験結果 及び推定式による燃料溶解率の推定値	68
別図 7-1	高 Pu 富化 MOX 燃料粉末の粒度分布	71

1. はじめに

照射済高速炉燃料溶解技術開発の一環として、高レベル放射性物質研究施設（CPF）ではこれまでに燃料ピン単位でのベンチスケール溶解試験及び剪断片単位でのピーカースケール溶解試験がそれぞれ数多く実施されてきた。これらの試験結果から、適切な溶解条件を設定することにより燃料の 99 %以上の溶解が可能であることが確認されている。しかしながら、今後溶解条件の最適化を進めていく上で必要となる、溶解試験結果を系統的に整理し溶解挙動に影響を及ぼす種々の因子を評価する作業は十分には行われていない。

本報告書では CPF においてこれまでに実施された溶解試験の結果をもとに、照射済高速炉燃料中の U, Pu の溶解挙動に影響を及ぼす各種の因子について評価を行った。また、その結果得られた燃料溶解挙動の予測式を用いて、CPF 改造後に実施予定である U, Pu の高濃度溶解時における燃料溶解挙動について、推定及び検討を進めた。

なお、各溶解試験の条件、結果等の詳細については別途報告書にまとめている¹⁾。

2. 評価項目

照射済高速炉燃料の溶解挙動には、燃料の製造履歴、照射履歴及び溶解条件に関わる多数の因子が影響を及ぼす（表 2-1 参照）^{2), 3)}。本評価では、これまでの報告等から燃料中の U 及び Pu の溶解挙動に及ぼす影響が大きいと考えられ、さらに CPF における溶解試験においてパラメータとして検討できる程度にその値が変化している以下の因子について評価を行った。

製造履歴に関わる因子

- ・ Pu 富化度（燃料物質中における Pu 含有率 $(Pu/(U+Pu))$ ）（以下、Pu 含有率）

照射履歴に関わる因子

- ・ 燃焼度

溶解条件に関わる因子

- ・ 硝酸濃度
- ・ 温度
- ・ HM 濃度

（・ 固液比、粉化率（燃料表面積））

固液比、粉化率については、後述のように、各々ではなくこれらを統合したパラメータとして評価した。

3. 各因子の評価

上述のような複数の因子について各々の影響を検討する場合、検討する因子以外の値を一定としてその因子の影響を解析するのが簡易で正確な検討方法である。しかしながら、これまでの CPF における溶解試験では各試験毎にこれらの因子の値がそれぞれ異なっており、そのような解析を行うのが困難である。

本評価では、燃料の溶解モデルとして Hodgson による fragmentation モデル⁴⁾を想定し、このモデル中のパラメータを各因子の関数で表した後、重回帰計算を行うことにより各因子の影響を評価した。

3.1 燃料溶解のモデル化 (Hodgson による fragmentation モデル)

溶解挙動の評価にあたり、本検討では燃料の溶解モデルとして Hodgson による fragmentation モデルを適用した。

fragmentation モデルにおいて、燃料の溶解率は以下の式で与えられる。

$$\frac{dW_d}{dt} = \frac{W_e}{\lambda} \quad (1)$$

ここで、 W_d は時間 t までに溶解した燃料重量、 W_e は時間 t において溶液（硝酸）に浸っている部分の燃料重量、 λ は硝酸に浸った燃料部分が溶解する際の時定数である。

溶解反応は、未浸部の燃料に対し硝酸が浸出することにより進行する。この過程は以下の式により表される。

$$\frac{dW_u}{dt} = -f \cdot \frac{W_e}{\lambda} \cdot \frac{W_u}{W_e} = -f \cdot \frac{W_u}{\lambda} \quad (2)$$

ここで、 W_u は時間 t において硝酸に未浸部分の燃料重量、 f は燃料への硝酸の浸透のしやすさを表すパラメータであり、硝酸溶液中に燃料粉が均一に分布している時に $f=1$ となる。

硝酸に浸った燃料部分は(1)式により減少すると同時に(2)式により新たに増加する。このマスバランスは以下の式により表すことができる。

$$\frac{dW_e}{dt} = f \cdot \frac{W_u}{\lambda} - \frac{W_e}{\lambda} \quad (3)$$

(1)～(3)式より、ある λ 及び f の値に対する燃料の溶解曲線が導出される。 λ 及び f の値が溶解反応中一定であるとすると、(1)～(3)式は微分方程式として以下のように t の関数として解くことができる⁵⁾。

$f \neq 1$ の時

$$\frac{W_e}{W_0} = 1 + \left\{ \frac{1}{1-f} \right\} (1-C) \left\{ \exp\left(-\frac{t}{\lambda}\right) - \left(\frac{1}{f}\right) \exp\left(-\frac{ft}{\lambda}\right) \right\} - C \exp\left(-\frac{t}{\lambda}\right) \quad (4)$$

$f=1$ の時

$$\frac{W_e}{W_0} = 1 - \left(\frac{t}{\lambda} + 1 \right) \cdot \exp\left(-\frac{t}{\lambda}\right) - C \exp\left(-\frac{t}{\lambda}\right) \quad (5)$$

ここで、 W_0 は燃料の初期重量、 C は溶解開始時に硝酸に浸っている燃料部分の割合である。

3.2 Fragmentation モデルの改良

前節で述べたように fragmentation モデル中の f 及び λ の値は、それぞれ燃料への硝酸の浸透のしやすさ及び硝酸に浸った燃料部分が溶解する際の時定数を表している。このことから、 f の値は硝酸の拡散及び浸透に影響を及ぼす因子の関数として、また λ の値は燃料中に浸透した硝酸による UO_2 - PuO_2 の溶解反応に影響を及ぼす因子の関数として与えられると仮定できる。

本検討では、 λ を表す関数として Taylor⁶⁾、Uriarte⁷⁾等により検討されている燃料の溶解速度に及ぼす硝酸、HM 濃度 (U 濃度) 及び温度の影響に加え、燃焼度及び Pu 含有率の影響を考慮した以下の式を仮定した。

$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot \exp(b \cdot B) \cdot ([HNO_3] + a[HM])^n \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (6)$$

ここで、 B は燃焼度 (MWd/t)、 $[HNO_3]$ 及び $[HM]$ は溶液中の硝酸及び $U+Pu$ 濃度 (M)、 T は絶対温度 (K)、 R は気体定数 (J/K \cdot mol)、 a 及び b は定数を表している。また、 A 、 n 及び E の値は燃料の Pu 含有率 m の違いにより以下の式で与えられるものと仮定している。

$$A = A_0 \exp(\alpha \cdot m) \quad (A_0 : UO_2 \text{ 燃料 (Pu 含有率 } m = 0) \text{ に対する値)}$$

$$n = n_0 \exp(\beta \cdot m) \quad (n_0 : UO_2 \text{ 燃料 (Pu 含有率 } m = 0) \text{ に対する値)}$$

$$E = E_0 \exp(\gamma \cdot m) \quad (E_0 : UO_2 \text{ 燃料 (Pu 含有率 } m = 0) \text{ に対する値)}$$

一方、 f については、現状では攪拌条件、燃料比表面積等の影響を定式化するのが困難である (これらの因子は溶解試験装置、剪断試験装置等の装置そのものに依るところが大きいと考えられる) ことから、本検討では定性的なパラメータとして取り扱った。

本モデルに従い各因子の評価を進めていくフローとしては、図 3-1(1)に示すように f の値をほぼ 1 と見なすことができる粉末を対象としたピーカースケール試験によりすべての因子の評価 (λ 値を与える式の導出) をした後、ペレット、剪断片等に対して溶解試験を実施し、 f の値 (及び f の値に影響を及ぼす因子) を評価していく方法が一般的であると

考えられる。しかしながら、これまでに実施された CPF での溶解試験においては、各因子について評価を行うために必要となる粉末燃料を対象とした溶解試験が十分に行われておらず、さらには剪断片を対象とした溶解試験結果を用いても十分な評価を行うことができない。したがって、本検討では図 3-1(2)に示すフローに従い、評価を進めた。

3.3 剪断片に対する f 値の決定

前述のように、fragmentation モデル中の f の値については各因子の影響を定式化するのが困難であると考えられる。本検討では同一燃料、同一溶解条件下における粉末燃料 ($f=1$ と想定される) 及び剪断片の溶解試験 (ピーカスケール) 結果を比較することにより、剪断片 1 片の溶解に対する f の値を相対的に算出した。

図 3-2 に常陽 MK-IIIC 型特殊燃料の燃料粉末を対象にして実施された溶解試験の結果を示す。本溶解試験の溶解条件は初期硝酸濃度 5N、溶解温度 100°C である。図において ^{85}Kr の放出率 ($=^{85}\text{Kr}$ の放出量/ ^{85}Kr の最終積算放出量) を燃料溶解率としてプロットしている。

CPF におけるこれまでの溶解試験からは U 及び Pu の溶解反応がほぼ同時に進行することが確認されている。したがって、本検討では U+Pu の合計値に対する溶解率を燃料の溶解率として取り扱い、以下の解析を進めている。

図中には(5)式中の λ の値をパラメータとして実施した非線形最小自乗法より計算された溶解曲線も併せて記している。この最小自乗法より求められた λ の値を(4)式に代入し、同一燃料、同一溶解条件下における剪断片の溶解試験結果に対して、 f の値をパラメータとして非線形最小自乗法により溶解曲線を求めた。結果を図 3-2 に示す。同様の手順により求められた他の剪断片に対する f の値について、 λ の値の算出に用いた燃料粉末ごとに整理したものを表 3-1 に記す。これより燃料粉末の f の値を 1 と仮定した場合、同一燃料の剪断片に対する f の値はほぼ 0.05~0.2 で与えられることが確認できる。 f の値がこのような幅を持つ原因としては、粉末燃料の f の値をすべて 1 と仮定していること (実際は粒径の違いにより f の値が異なる)、及び剪断片により燃料比表面積 (粉化率)、攪拌条件等の硝酸の浸透に影響を及ぼす因子が同一でないことが考えられる。

以下、本検討では剪断片に対する f の値として今回得られた値の平均値である 0.1 を用いて評価を進めた。

3.4 剪断片を対象とした溶解試験における λ 値の算出

剪断片 1 片を対象として実施された溶解試験の中で、今回の検討において評価を行う硝酸濃度、溶解温度、初期 HM 濃度及び燃焼度の値がすべて明らかな試験 (全 57 試験) に

ついて fragmentation モデルに基づいた評価を行い、各試験毎に λ の値を算出した。

図 3-3 に Phenix 燃料の剪断片 1 片を対象に実施された溶解試験における燃料溶解率の実測値、さらに(4)式中の λ の値をパラメータ (f の値を 0.1 と設定) として実施した非線形最小自乗法より計算された溶解曲線及び λ の値を示す。また、同様な手順により算出された各試験における λ の値を表 3-2 に記す。なお、これら λ 値の算出は、溶解反応中において溶解条件 (硝酸濃度、溶解温度、HM 濃度) が変化しない (λ 値が変化しない) という仮定の下で行っている。

3.5 硝酸濃度、溶解温度及び燃焼度の影響評価

前項において λ の値を算出した 57 試験の中で、初期 HM 濃度 (=U+Pu 濃度) が 0 の条件下で行われた試験 (全 45 試験) より得られた λ の値から、重回帰分析により硝酸濃度、溶解温度及び燃焼度の影響を算出した。重回帰式としては(6)式に基づき以下の式を仮定した。

$$\ln\left(\frac{1}{\lambda}\right) = \ln(A) + n \cdot \ln[\text{HNO}_3] + b \cdot B - \frac{E}{RT} \quad (7)$$

表 3-3 に、重回帰分析の結果を示す。また、表 3-4 に(7)式中の各変数 ($\ln[\text{HNO}_3]$, B 及び $1/T$) を標準化したデータに基づいて算出された標準化偏回帰係数を示す。これらの分析結果から、今回想定した重回帰式(7)式により、 λ の値を予測できる割合は 0.6406 (=自由度調整済み重相関係数の 2 乗) であり、今回取り上げたいずれの変数も 99 %以上の有意確率で λ の値に及ぼす影響が 0 ではない (各偏回帰係数が 0 でない) ことがわかる (P 値より)。各偏回帰係数の値から、燃料溶解に対して硝酸濃度及び溶解温度の増大は正の効果を、燃焼度の増大は負の効果を及ぼすことが認められる。また、標準化偏回帰係数の絶対値から、燃料溶解挙動に対して、硝酸濃度が一番大きな影響を持つ因子であることが確認できる。

燃焼度の増加に伴い生ずる事象の中で燃料の溶解性に影響を及ぼすものとして、溶解性向上の観点からは、(i) UO_2 - PuO_2 の固溶度上昇、また溶解性低下の観点からは、(ii) 結晶粒の成長、(iii) Pu の局部濃縮、(iv) 不溶解白金族析出物の成長と移行等があげられる⁸⁾。今回の検討結果 (CPF における過去の溶解試験の結果) は、これらの中で溶解性の低下に影響を及ぼす事象の効果がより大きいことを示唆している。

3.6 初期 HM 濃度の影響評価

3.4 項において λ の値を算出した 57 試験の中で、初期 HM 濃度 (=U+Pu 濃度) が 0 以外の条件下で行われた試験 (全 12 試験) より得られた λ の値から、最小自乗法により初期 HM 濃度の影響を算出した。 λ の値を与える式としては(6)式及び前項の重回帰分析より求められた各変数に対する偏回帰係数の値より得られる以下の式を用いた。

$$\frac{1}{\lambda} = \exp(11.17) \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] + a[\text{HM}])^{1.24} \cdot \exp\left(-\frac{5482}{T}\right) \quad (8)$$

表 3-5 に、(8)式中の a の値をパラメータとして実施した最小自乗法の結果を示す。これまでの研究から UO_2 の溶解に対して溶液中の UO_2^{2+} イオンが触媒効果を持つことが報告されている⁹⁾が、本検討では UO_2^{2+} イオンを含む HM 濃度の影響を表す係数 a として負の値が得られている。すなわち、これまでの CPF での照射済高速炉燃料 (MOX 燃料) の剪断片を対象とした溶解試験においては、そのような触媒効果は認められず、むしろ HM 濃度の上昇が燃料溶解に対して負の効果を及ぼすことを示している。

溶液中の UO_2^{2+} イオン等が MOX 燃料中の U, Pu の溶解反応過程に及ぼす影響及びそのメカニズムは明らかではなく、より基礎的な系での試験 (未照射 MOX 燃料の溶解試験等) において、評価を進めていく必要があるものと考えられる。

3.7 ベンチスケール溶解における f 値の決定

前項までの剪断片を対象とした溶解試験に対する検討結果から得られた以下に示す λ 値の算出式及び(4)式を用いて、最小自乗法によりベンチスケール溶解における f の値を決定した。

$$\frac{1}{\lambda} = \exp(11.17) \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.32[\text{HM}])^{1.24} \cdot \exp\left(-\frac{5482}{T}\right) \quad (9)$$

(9)式の導出に使用したデータはすべて Pu 富化度が 30 %の燃料を対象に実施された溶解試験から得られたものであり、Pu 含有率の違いによる影響は反映されていない。したがって(9)式を用いてベンチスケール溶解における f の値を算出する際には、Pu 富化度 30 %の燃料を対象に実施されたベンチスケール溶解試験の結果が必要となる。CPF におけるベンチスケールでの溶解試験は過去 18 回 (使用した燃料の製造及び照射履歴の違いでは 14 回) 実施されているが、いずれの試験もブランケット燃料との混合等によりトータルとしての Pu 混合率 (Pu の U に対する固溶度が高い場合には Pu 含有率と見なせるものと考えられる) は 30 %を下回っている (表 3-6 参照)。本検討では、ベンチスケール試験において Pu 混合率が一番高い RUN14 (Pu 混合率 28.5%) より得られた結果をもとに f の値を算出した。

図 3-4 に常陽 MK-II 炉心燃料 (平均燃焼度 54,700Mwd/t) を対象に実施された溶解試験 (RUN14) における燃料溶解率の実測値を示す。本試験の溶解条件は初期硝酸濃度 3.3N、溶解温度 97°C (定常時)、初期液量 2.9L である。燃料溶解率の実測値は、以下の式により求められる U+Pu の溶解率を示している¹⁰⁾。

$$\text{溶解率} = \frac{(\text{プロダクト濃度}) \times (\text{溶解液量}) + \Sigma (\text{サンプル量} \times \text{プロダクト濃度})}{\text{初期プロダクト量}} \times 100 \quad (10)$$

プロダクト濃度：U 分析値+Pu 分析値（吸光度分析）

溶解液量：監視計器表示値を密度測定値で補正した量

サンプル量：分析のためのサンプル量

初期プロダクト量：燃料装荷量（U+Pu）

図中には(1)～(3)式中の f の値をパラメータとして実施した非線形最小自乗法より計算された溶解曲線も併せて記している。溶解曲線の算出にあたっては、溶解反応に伴う硝酸濃度、U、Pu 濃度及び液量の変化を考慮し、(9)式により λ の値を随時更新した。また計算には差分法を用いた（別添 1 参照）。

本計算の結果、図中に示すように f の値として 0.037 が得られた。本値は RUN14 に対して求められた f の値であり、剪断状態（比表面積）、固液比等、硝酸の攪拌・浸透に影響を及ぼす因子が完全に同一ではない他のベンチスケール試験においては、その値が異なるものと考えられる。しかしながら、CPF におけるベンチスケールでの溶解試験では、一部の試験を除き、同一の剪断機を用いて約 3cm に剪断された剪断片を対象としていること、また溶解槽内における固液比にも大幅な違いが見られないこと等を踏まえて、本検討ではすべてのベンチスケール溶解試験において、 $f=0.037$ として、以下の検討を進めた。また、溶解反応中において燃料の形状が極端に変化するような場合（燃料の破碎等）には、反応過程で f の値が変化することが考えられるが、以下の検討ではそのような大きな形状変化がないものと仮定し、溶解反応中 f の値が 0.037 で一定であるとした。

3.8 Pu 含有率の影響評価

CPF においてこれまでに実施された剪断片を対象とした溶解試験は、すべて Pu 富化度 30% の燃料を対象に実施されており、これらの試験結果から燃料の溶解挙動に及ぼす Pu 含有率の影響を評価することはできない。一方、CPF におけるベンチスケールでの溶解試験は過去 14 回実施されているが、前述のように、ブランケット燃料との混合等によりトータルとしての Pu 混合率は各試験毎に変化している。Pu の U に対する固溶度が高い場合にはこれらの Pu 混合率は Pu 含有率と見なせるものと考えられることから、本検討では各ベンチスケール溶解試験における Pu 混合率を Pu 含有率として扱い、この値が燃料の溶解挙動に及ぼす影響について評価を行った。評価にあたっては、(1)～(3)式 ($f=0.037$ と設定)、さらに(6)式、(9)式より導出される以下の式を用いた。

$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.32[\text{HM}])^n \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (11)$$

ここで、

$$A = A_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{A_{0.3}}{A_0}\right) = A_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{7.10 \times 10^4}{A_0}\right) \quad (12)$$

$$n = n_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{n_{0.3}}{n_0}\right) = n_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{1.24}{n_0}\right) \quad (13)$$

$$E = E_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{E_{0.3}}{E_0}\right) = E_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{45.6 \times 10^3}{E_0}\right) \quad (14)$$

m : Pu 含有率

添字 0 は UO_2 燃料 (Pu 含有率 $m=0$) に対する値を意味する。

図 3-5 に本評価で使用したベンチスケールでの溶解試験における燃料溶解率の実測値を示す。本評価では、計算の簡略上、これまでに CPF において実施されたベンチスケールでの溶解試験から、試験中に硝酸添加、濃縮操作等の溶解条件の変更を行っていない計 13 回の試験を対象に、検討を行った。図中には、(12)~(14)式中の A_0 , E_0 をパラメータとして実施した非線形最小自乗法より計算された溶解曲線を併せて記している。溶解曲線の算出にあたって、 n_0 は文献値⁷⁾を参考に $n_0=2$ に固定した。また、溶解反応に伴う硝酸濃度、U, Pu 濃度及び液量の変化を考慮し、(11)式により λ の値を随時更新した。計算には差分法を用いた (別添 2 参照)。

本計算の結果、 A_0 , E_0 の値としてそれぞれ $A_0 = 3.46 \times 10^{12}$, $E_0 = 95.8 \times 10^3$ (kJ/mol) が得られた。ベンチスケールでの溶解試験において得られた燃料溶解率の実測値と上式によって計算される燃料の溶解曲線との誤差は最大で約 20 %程度であるが、実測値に分析、液量の計量等に起因する 5~10%程度の誤差が含まれることを考慮すると、今回評価に用いた評価式(1)~(3)式、(11)式及び式中の各パラメータにより燃料の溶解挙動を予測することが可能であるものと考えられる。

3.9 得られた溶解挙動推定式

本章では照射済高速炉燃料の溶解挙動に影響を及ぼすと考えられる各因子 (Pu 含有率、燃焼度、硝酸濃度、溶液温度、HM 濃度) について、fragmentation モデルに基づいた評価式によりその影響を評価し、またこれらの因子から燃料の溶解挙動を予測する式を導出した。得られた式は以下の通りである。

$$\frac{dW_d}{dt} = \frac{W_e}{\lambda} \quad (\text{g/min}) \quad (15)$$

$$\frac{dW_u}{dt} = -f \cdot \frac{W_e}{\lambda} \cdot \frac{W_u}{W_e} = -f \cdot \frac{W_u}{\lambda} \quad (\text{g/min}) \quad (16)$$

$$\frac{dW_e}{dt} = f \cdot \frac{W_u}{\lambda} - \frac{W_e}{\lambda} \quad (\text{g/min}) \quad (17)$$

ここで、

$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.32[\text{HM}])^n \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (18)$$

$$A = 3.46 \times 10^{12} \cdot \exp(-58.8m) \quad (19)$$

$$n = 2 \cdot \exp(-1.59m) \quad (20)$$

$$E = 95.8 \times 10^3 \cdot \exp(-2.47m) \quad (21)$$

W_d : 溶解した燃料量 (g)

W_e : 硝酸に浸った部分の燃料重量 (g)

W_u : 硝酸に浸っていない部分の燃料重量 (g)

$[\text{HNO}_3]$: 硝酸濃度 (M)

$[\text{HM}]$: 溶液中の金属 (U+Pu) 濃度 (M)

B : 燃焼度 (MWd/t)

T : 溶液温度 (K)

R : 気体定数 (8.315 J/K·mol)

m : Pu 含有率

なお、燃料への硝酸の浸透のしやすさを表す f の値については、 $f=1$ とした粉末燃料に対する溶解試験との比較により、剪断片 (1 片) に対しては $f=0.1$ 、ベンチスケール溶解槽における複数の剪断片に対しては $f=0.037$ が得られた。これら f の値に影響を与えるものと予想される因子については、5 章において検討を行う。

4 導出された評価式の適用性検討

本章では、前章において導出した燃料溶解挙動の推測式を用いて過去に実施されているいくつかの溶解試験について燃料溶解挙動の評価を行い、実測値との比較を行った。また、CPF での溶解試験結果を表面積モデルに基づいて評価することにより得られた既存の式⁹⁾ ((22)式) との比較も併せて実施した。

$$r = k \cdot S \cdot [\text{HNO}_3]^{1.74} \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (22)$$

ここで、

$$S = S_0 \cdot R_S$$

$$R_S = 1.0 - 0.6\chi + 2.7\chi^2 - 3.1\chi^3$$

$$R_S' = 1.0 - 0.4\chi - 2.2\chi^2 + 0.9\chi^3$$

r : 溶解反応速度 (mg/min)

k : 反応速度定数 (9.62×10^6 mg/min/mol/l \cdot cm²)

[HNO₃] : 硝酸濃度 (M)

S : ある溶解率 χ における燃料反応表面積 (cm²)

S_0 : 初期の燃料反応表面積 (cm²)

R_S : 剪断片の反応表面積比

R_S' : 燃料粉末の反応表面積比

E : 活性化エネルギー (46kJ/mol)

R : 気体定数 (8.315 J/K \cdot mol)

T : 絶対温度 (K)

χ : 溶解率 (-)

4.1~4.3 節では CPF において実施された照射済高速炉燃料を対象とした溶解試験について、4.4 節では過去旧再処理技術開発部機器材料開発室 (CMS) において実施された未照射 U ペレットを対象とした溶解試験について、4.5 節では現在先進リサイクル研究開発部 Pu 燃料開発 Gr.で実施されている高 Pu 富化 MOX 燃料 (未照射) を対象とした溶解試験について、それぞれ評価を行っている。

4.1 照射済高速炉燃料を対象とした溶解試験 (ベンチスケール溶解)

図 4-1 に常陽 MK-II 型炉心燃料 (平均燃焼度 13,800MWd/t) を対象に実施されたベンチスケール溶解試験 (RUN7) における燃料溶解率の実測値を示す¹⁾。本試験の溶解条件は初期硝酸濃度 3.5M、溶解温度 90℃ (定常時)、初期液量 2.7L である (詳細は別添 3 参照)。図中には前章において算出した溶解挙動推定式 ((15)~(21)式) 及び表面積モデルに基づく

既存の推定式 ((22)式) より計算された燃料溶解率を併せて示している。これらの計算はそれぞれ別添 3 に示す条件下において実施した。

この図より、既存の推定式では燃料の溶解速度を小さく見積もる傾向があるのに対し、前章で導出した推定式は実測値とほぼ同等の溶解速度を与えていることを確認できる。

4.2 照射済高速炉燃料を対象とした溶解試験（ビーカースケール試験）

図 4-2 に、常陽 MK-IIC 型特殊燃料（燃焼度 97,230MWd/t）を対象に実施されたビーカースケール（剪断片 21 片）溶解試験（RUN21-1）における燃料溶解率の実測値を示す。本試験の溶解条件は初期硝酸濃度 5.37M、溶解温度 100℃（定常時）、初期液量 0.5L である（詳細は別添 4 参照）。図中には前章において算出した溶解挙動推定式 ((15)~(21)式) 及び表面積モデルに基づく既存の推定式 ((22)式) より計算された燃料溶解率を併せて示している。これらの計算はそれぞれ別添 4 に示す条件下において実施した。

既存の推定式では燃料の溶解速度を大きく見積もる傾向があるのに対し、前章で導出した推定式は、実測値に近い溶解速度を与えていることを確認できる。前節のベンチスケール溶解における評価と同様、既存の評価式においてこのような誤差が生ずるのは、反応表面積を単純な幾何学形状として計算していること、槽内における硝酸の拡散効果が評価式内で考慮されていないこと等に起因するものと考えられる。

4.3 照射済高速炉燃料を対象とした模擬連続溶解試験

図 4-3 に、常陽 MK-IIC 型特殊燃料（燃焼度 100,130MWd/t）を対象に実施された模擬連続溶解試験（剪断片 42 片）（RUN19）における燃料溶解率の実測値を示す。本試験の溶解条件は（供給）硝酸濃度 5.4~8.0M、硝酸供給量及び拔出量 0.42L/h、溶解温度 100℃（定常時）、初期液量 0.15L である（詳細は別添 5 参照）。図中には前章において算出した溶解挙動推定式 ((15)~(21)式) 及び表面積モデルに基づく既存の推定式 ((22)式) より計算された燃料溶解率を併せて示している。これらの計算はそれぞれ別添 5 に示す条件下において実施した。

前節に示した回分式溶解試験における推測誤差に比べ誤差は大きくなっているものの、模擬連続試験においても前章で導出した推定式が溶解挙動の予測に有効であることが確認できる。

4.4 未照射 U ペレットを対象とした溶解試験（ビーカースケール試験）

図 4-4 に、未照射 U ペレットを対象に実施されたビーカースケール溶解試験（RUN16U

とする)における燃料(U)溶解率の実測値を示す¹⁰⁾。本試験は旧 CMS において、14.5φ×20の天然ウランペレットを対象に行われたものである。溶解条件は、初期硝酸濃度 6M、溶解温度 95°C (定常時)、初期液量 0.5L である(詳細は別添 6 参照)。図中には前章において算出した溶解挙動推定式((15)~(21)式)より計算された燃料溶解率を併せて示している。計算はそれぞれ別添 6 に示す条件下において実施した。なお、表面積モデルに基づく既存の推定式((22)式)は、Pu 富化度 30%の MOX 燃料を対象に導出されたものであり Pu 富化度が大きく異なる燃料への適用は考慮されていないため、本検討では(22)式を用いた計算を行っていない。

この図より、前章で導出した推定式が、照射済高速炉燃料(粉末及び剪断片)の溶解挙動だけでなく、U 燃料(ペレット)の溶解挙動の予測に対しても有効であることが確認できる。しかしながら、図 4-5 に示すように、溶液中の初期 U 濃度が大きい条件下では、実測値と予測値との誤差が大きくなる傾向が観測されており、実測値で観測されている溶液中の U による溶解の加速効果を、MOX 燃料を対象に導出された前章の推定式では評価できていない(3.6 節参照)ことが認められる。

4.5 高 Pu 富化 MOX 燃料粉末を対象とした溶解試験(ビーカースケール試験)

表 4-1 に、高 Pu 富化 MOX 燃料粉末(Pu 富化度 30, 40, 45, 50%)を対象に実施されたビーカースケール溶解試験における燃料(U+Pu)溶解率、硝酸濃度及び液量の溶解開始 6 時間後の実測値を示す。本データは、先進リサイクル研究開発部 Pu 燃料開発 Gr.において現在実施中の試験から一部その結果を提供していただいたものである。溶解条件は、初期硝酸濃度 7.2M、溶解温度沸点(定常時)、初期液量 0.1L である(詳細は別添 7 参照)。表には前章において算出した溶解挙動推定式((15)~(21)式)より計算された燃料溶解率、及び別添 7 に示す計算により算出された硝酸濃度、液量を併せて記している。また、図 4-6 には計算された燃料溶解率の経時変化を示している。

これらの結果から、6 時間後の溶解率において実測値と予測値との間に最大で 20%程度の誤差が生じているもの、前章で導出された推定式により Pu 富化度(Pu 含有率)の増大に伴う燃料溶解挙動の変化をある程度予測することが可能かと思われる。なお、実測値と予測値の間の誤差は、推定式中の Pu 含有率に関する評価式((19)~(21)式)が Pu 富化度が 30%までの燃料を対象とした溶解データに基づいて導出されたものであること等に起因すると考えられ、より正確な評価を行うためには 30%以上の Pu 富化度をもつ燃料の溶解試験結果も踏まえた上でその影響について再評価を行う必要があるものと思われる。

5 f 値の定量的な評価

前章までの検討では、溶解挙動の推測式 ((16), (17)式) 中に現れる f の値を、硝酸の拡散及び燃料への浸透に影響を及ぼすと考えられる因子が目的とする系と極力一致した溶解試験 (同一燃料形態、同一溶解装置の使用等) の結果を用いて、算出した。しかしながら、この方法では、未知の溶解系における燃料の溶解挙動を評価するために、それと類似の系における溶解試験の結果が必要となり効率的ではない。

本章では、硝酸の拡散及び燃料への浸透に影響を及ぼすと考えられる因子の中で、CPF におけるこれまで試験結果から評価可能な固液比、燃焼度及び粉化率を取り上げ、これらの因子が f の値に及ぼす影響を定量的に評価することにより、 f の値を予測することを試みた。

5.1 固液比

溶解槽中における固液比は、槽内における燃料剪断片の体積に対する溶液の体積比を表した値であり、槽内における硝酸の拡散に影響を及ぼす因子の一つと考えられる。図 5-1 に、CPF での溶解試験 (ベンチスケール及びピーカースケール) における固液比と f 値との関係を示す。なお、固液比及び f の値は別添 8 に示す方法より算出した。

全体的にばらつきが大きいものの、固液比の減少に伴い、硝酸の拡散の低下に起因するものと考えられる f 値の減少が認められる。ほぼ同一の固液比に対して f の値にばらつきが見られるのは、 f の値に影響を及ぼすと考えられる他の因子 (剪断条件等に起因する燃料比表面積の違い、槽内の攪拌条件の違い等) によるものと予想され、特に剪断片単位の溶解についてばらつきが大きくなっている (燃料ピン単位の溶解では複数の剪断片間でその影響が平均化されるものと考えられる)。

5.2 燃焼度

燃焼度の増加に伴い進行する事象として、溶解性向上の点からは(i) $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ の固溶化促進、溶解性低下の点からは(ii)燃料中心温度の上昇に伴う結晶粒の成長、(iii)Pu 再分布に伴う Pu の局部濃縮、(iv)温度勾配に伴う不溶解白金族析出物の成長と移行等があげられる⁹⁾。本検討では、これらの事象を、 λ の値、すなわち燃料中に浸透した硝酸による $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ の溶解反応に影響を与える因子の一つとして取り扱ってきた ((6)式参照)。一方で、これらの事象は、 f の値、すなわち硝酸の燃料中への浸透に影響を与える因子としても考えることができる。本節では、 λ の値を与える式として、(6)式から燃焼度の影響を評価した項を除いた次式 ((23) 式) を用い、別添 9 に示す方法により算出された f の値に対する燃焼度の影響を評価した。

$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot ([\text{HNO}_3] + a[\text{HM}])^n \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (23)$$

ここで、A、a、n 及び E の値はそれぞれ $A = 7.96 \times 10^3$, $a = 0$, $n = 1.22$ 及び $E = 40.1$ (kJ/mol) である (別添 9 参照)。

図 5-2 に、燃焼度と剪断片毎に算出された f 値との関係を示す。全体的にばらつきが大きいものの、燃焼度の増加に伴い f 値が指数関数的に減少する傾向が認められる。このことから、燃焼度と f 値との相関式は近似的に次式で与えられるものと考えられる。

$$f = A \cdot \exp(b \cdot B) \quad (B: \text{燃焼度}) \quad (24)$$

別添 9 に示すように、本相関式を適用した場合の相関係数の 2 乗値 (R^2) は 0.15938 となり、燃焼度の値から(24)式を用いて f の値を予測するのは困難である (誤差が大きい) ことがわかる。これは、f の値が、他の因子 (剪断条件等に起因する燃料比表面積の違い、槽内の攪拌条件の違い等) の影響を強く受けていることを意味している。

5.3 粉化率

燃料の粉化率は、溶解する燃料総重量に対する粉末燃料の重量比を表した値であり、硝酸の燃料への浸透に影響を及ぼす因子の一つと考えられる。また、この値は、f の値に大きな影響を及ぼすと考えられる、剪断条件等に起因する燃料比表面積の違いを反映しているものと考えられる。図 5-3 に CPF での溶解試験 (ベンチスケール) における粉化率と f 値との関係を示す。f の値は 5.1 節と同様、別添 8 に示す方法により算出した。なお、CPF におけるこれまでの溶解試験では、ベンチスケール溶解においてのみ粉末燃料の発生重量が測定されている¹⁾ (表 3-6 参照)。

粉化率の上昇とともに、硝酸の燃料への浸透が進行しやすくなるため (燃料の比表面積が増加するため)、f の値が増加することが予想されるが、本評価の範囲内 (ベンチスケール溶解、粉化率 10%以下) においては、粉化率の違いによる f の値への明確な影響は認められていない。今後、より広範囲にわたる条件 (剪断片単位での溶解等) 下での粉化率の影響について検討を行う必要があるものと考えられる。

6. 高濃度溶解時における燃料溶解挙動の推定（各パラメータの感度解析）

本章では、CPF に新設予定の新型溶解槽を用いた高濃度溶解試験における燃料の溶解挙動について、3 章において導出された燃料の溶解挙動推定式(15)～(21)式を用いて検討を行い、溶解挙動に影響を及ぼす各パラメータについて評価を行う。なお、本章の検討及び評価は、CPF におけるこれまでの溶解試験から得られているデータをもとに導出された溶解挙動推定式(15)～(21)式を、これまで試験が実施されていない高 HM 濃度、低固液比側に外挿して実施したものであり、今後これらの領域における実測データを蓄積し、比較・再評価を行う必要がある。

6.1 前提条件

検討を行う系としては、CPF に新設予定の新型溶解槽を対象とする。CPF に新設する溶解槽では、高濃度溶解を目的として、常陽 MK-II C 型特殊燃料 3 ピン分（剪断片（6.5φ×30）63 片：U+Pu 重量約 340g）を約 500cc の硝酸溶液中で、また燃料 1 ピン分（剪断片 21 片：U+Pu 重量約 110g）を約 100cc の硝酸溶液中で、処理することが可能となっている。本章では、常陽 MK-II C 型特殊燃料 1 ピン（Pu 含有率 30%、剪断片数 21 片、U+Pu 重量 110g）を溶解するケースについて、以下に示す因子をパラメータとして取り上げ、各因子が燃料の溶解挙動に及ぼす影響について評価を行った。

燃料照射条件

- ・ 燃焼度

溶解条件

- ・ 槽内液量
- ・ 硝酸濃度
- ・ 溶液温度
- ・ 初期 HM 濃度
- ・ f 値

なお、以下に示す溶解率、U 濃度及び酸濃度の算出は、すべて別添 3 に示す fragmentation モデルに基づいた差分計算により行った。

6.2 槽内液量の違いによる溶解挙動の変化

図 6-1 に初期硝酸溶液量をパラメータとした際の燃料の溶解挙動の変化を示す。図には U 濃度及び酸濃度の変化も併せて記している。対象とした燃料の燃焼度は 100,000MWd/t、溶解条件は、初期硝酸濃度 5M、溶液温度 100℃、初期 HM 濃度 0g/L である。また、f の値は、槽内の固液比から図 5-1 を用いてそれぞれの条件について算出した。

これらの結果から、槽内の初期硝酸溶液量の低下に伴い、溶解反応の進行が遅くなる傾向が認められる。特に、高濃度溶解（最終 U 濃度 500g/L 以上）を目的とした条件下（初期硝酸溶液量 0.2L 以下）では溶解性の低下が著しい。

以下、図 6-1(3)に示した溶解条件を基準条件として比較・評価を進める。

6.3 硝酸濃度の違いによる溶解挙動の変化

図 6-2 に初期硝酸濃度をパラメータとした際の燃料の溶解挙動の変化を示す。図には U 濃度及び酸濃度の変化も併せて記している。対象とした燃料の燃焼度は 100,000MWd/t、溶解条件は、初期硝酸溶液量 0.2L、溶液温度 100℃、初期 HM 濃度 0g/L である。また、f の値は、槽内の固液比及び図 5-1 から $f=0.015$ とした。

初期硝酸濃度の増加に伴い溶解反応が加速されるが、高濃度の硝酸を用いた場合でも、本溶解条件下では燃料の溶解に長時間を要することが認められる。

6.4 溶液温度の違いによる溶解挙動の変化

図 6-3 に溶液温度をパラメータとした際の燃料の溶解挙動の変化を示す。図には U 濃度及び酸濃度の変化も併せて記している。対象とした燃料の燃焼度は 100,000MWd/t、溶解条件は、初期硝酸濃度 8M、初期硝酸溶液量 0.2L、初期 HM 濃度 0g/L である。また、f の値は、槽内の固液比及び図 5-1 から $f=0.015$ とした。

溶液温度の上昇に伴う溶解反応の加速が認められるが、沸点近傍においても本溶解条件下では燃料の溶解には長時間を要する。

6.5 初期 HM 濃度の違いによる溶解挙動の変化

図 6-4 に初期 HM 濃度をパラメータとした際の燃料の溶解挙動の変化を示す。図には U 濃度及び酸濃度の変化も併せて記している。対象とした燃料の燃焼度は 100,000MWd/t、溶解条件は、初期硝酸濃度 8M、溶液温度 100℃、初期硝酸溶液量 0.2L である。また、f の値は、槽内の固液比及び図 5-1 から $f=0.015$ とした。初期 HM 濃度の上昇により溶解反応の進行が多少抑制されるが、その影響は僅かである。

6.6 燃焼度の違いによる溶解挙動の変化

図 6-5 に溶解対象燃料の燃焼度をパラメータとした際の燃料の溶解挙動の変化を示す。図には U 濃度及び酸濃度の変化も併せて記している。溶解条件は、初期硝酸濃度 8M、溶液温度 100℃、初期硝酸溶液量 0.2 L、初期 HM 濃度 0g/L である。また、f の値は、槽内の固液比及び図 5-1 から $f=0.015$ とした。

燃焼度の増加に伴い、燃料の溶解性が低下することが示されている。

6.7 f 値の違いによる溶解挙動の変化

前節までの検討では、溶解槽内における燃料剪断片と硝酸溶液との固液比から図 5-1 を用いて f の値を導出した。しかしながら、前章で述べたように、f の値は固液比のみから決定されるわけではなく、燃料の剪断条件、槽内の攪拌条件等の他の因子によっても大きく変化することが予想される。

図 6-6 に f 値をパラメータとした際の燃料の溶解挙動の変化を示す。図には U 濃度及び酸濃度の変化も併せて記している。対象とした燃料の燃焼度は 100,000MWd/t、溶解条件は、初期硝酸濃度 8M、溶液温度 100℃、初期硝酸溶液量 0.2 L、初期 HM 濃度 0g/L である。

f 値の増加により、高濃度溶解条件下においても、燃料の溶解が促進される様子が認められる。このことから、f 値に影響を及ぼす因子である燃料の剪断条件、槽内の攪拌条件等の最適化により、高濃度溶解条件下における燃料の溶解性が向上することが期待される。

7. まとめ

本検討では、CPF においてこれまでに実施された照射済高速炉燃料の各種溶解試験結果から、U, Pu の溶解挙動に及ぼす各種因子の影響について、fragmentation モデルに基づいた評価を行った。その結果、製造履歴に関わる因子 (Pu 含有率 (Pu/(U+Pu))), 照射履歴に関わる因子 (燃焼度)、及び溶解条件に関わる因子 (硝酸濃度、溶液温度及び HM (U+Pu) 濃度) について、その影響がそれぞれ以下のように明らかとなった。

製造履歴に関わる因子

- ・ Pu 含有率 (Pu/(U+Pu)) - 高いほど溶解性が低下

照射履歴に関わる因子

- ・ 燃焼度 - 大きいほど溶解性が低下

溶解条件に関わる因子

- ・ 硝酸濃度 - 高いほど溶解性が向上
- ・ 溶液温度 - 高いほど溶解性が向上
- ・ HM (U+Pu) 濃度 - 高いほど溶解性が低下

また、これらの影響を定量的に考慮することにより以下に示す燃料溶解速度の推定式を導出した。

$$\frac{dW_d}{dt} = \frac{W_e}{\lambda} \quad (\text{g/min}) \quad (25)$$

$$\frac{dW_u}{dt} = -f \cdot \frac{W_e}{\lambda} \cdot \frac{W_u}{W_e} = -f \cdot \frac{W_u}{\lambda} \quad (\text{g/min}) \quad (26)$$

$$\frac{dW_e}{dt} = f \cdot \frac{W_u}{\lambda} - \frac{W_e}{\lambda} \quad (\text{g/min}) \quad (27)$$

ここで、

$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.32[\text{HM}])^n \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (28)$$

$$A = 3.46 \times 10^{12} \cdot \exp(-58.8m) \quad (29)$$

$$n = 2 \cdot \exp(-1.59m) \quad (30)$$

$$E = 95.8 \times 10^3 \cdot \exp(-2.47m) \quad (31)$$

W_d : 溶解した燃料量 (g)

W_e : 硝酸に浸った部分の燃料重量 (g)

W_u : 硝酸に浸っていない部分の燃料重量 (g)

$[\text{HNO}_3]$: 硝酸濃度 (M)

- [HM] : 溶液中の金属 (U+Pu) 濃度 (M)
B : 燃焼度 (MWd/t)
T : 溶液温度 (K)
R : 気体定数 (8.315 J/K·mol)
m : Pu 含有率 (Pu/(U+Pu))

(25)~(31)式中の f 値 (硝酸の拡散及び燃料への浸透のしやすさを表すパラメータ) については、硝酸の拡散及び燃料への浸透へ影響を及ぼすと考えられる固液比、燃焼度及び燃料の粉化率について、これらの値と f 値との相関を検討した。固液比の増大及び燃焼度の減少とともに f 値が増加する傾向、すなわち硝酸の拡散及び燃料への浸透が促進される傾向が観測されたが、粉化率については明確な相関が認められなかった。

本推定式を用いることにより、表面積モデルに基づいた既存の推定式に比べ、これまで CPF において実施された照射済高速炉燃料溶解試験より得られている燃料の溶解挙動を精度良く再現できることを確認した。さらに、評価を行った溶解系以外の系 (未照射 U ペレット、高 Pu 富化 MOX 燃料の溶解) においても本推定式の有効性が認められた。

本推定式を用いた高濃度溶解試験時の溶解挙動評価からは、高濃度溶解時における燃料の溶解性低下が示された。燃料の溶解性は、酸濃度及び溶液温度を上昇させることによりある程度改善されるが、溶解槽等の機器材料への影響を考慮すると、 f 値を増加させる (剪断条件、攪拌条件等を最適化する) ことにより溶解性の向上を図ることが望ましいと考えられる。

8. 今後の課題

本報告書では CPF においてこれまでに実施された溶解試験の結果をもとに照射済燃料中の U, Pu の溶解挙動に影響を及ぼす各種の因子について評価を行った。したがって、今回の検討により得られた評価結果は、基本的には CPF において実施された試験の条件内のみを対象としたものであり、より一般的な評価を行うためには、より広範囲に及ぶ条件下において実施された試験をもとに、本検討で導出された評価結果を拡張あるいは修正していく必要がある。

また、溶解反応に及ぼす複数の因子についてその影響を検討する場合、検討する因子以外の値を一定としてその因子の影響を評価、解析するのが正確な評価方法であると考えられる（図 3-1(1)参照）が、CPF におけるこれまでの溶解試験ではこのような評価を進めるために十分なデータが取られておらず、本検討では変則的な検討方法により各因子の影響を評価せざるを得なかった（図 3-1(2)参照）。このような検討手法より導出された評価結果では、評価過程で設定した仮定等に起因して大きな誤差を生ずる可能性があり、より正確な評価を行うためには、図 3-1(1)に示すフロー等に従い検討を進める必要があるかと思われる。

これらのことを踏まえて、今後の課題としてあげられる試験をまとめると以下のようなになる。

- ・ 粉末燃料を対象とした溶解データの取得

これまでデータが取られていない、もしくは不足している HM 濃度、Pu 富化度（Pu 含有率）、燃焼度（線出力、炉内温度）、亜硝酸濃度等の影響について評価を重点的に行うとともに硝酸濃度、溶液温度についても再評価を進め、溶解反応に関する評価式（ λ 値）の修正・最適化を行う。

- ・ 剪断片を対象とした溶解データの取得

剪断片長さ、粉化率（表面積）、固液比、槽形状、攪拌条件等の影響について評価を行い、硝酸の拡散及び燃料への浸透に及ぼす影響（ f 値）について定量化を進める。

- ・ 複数の剪断片を対象とした溶解データの取得

剪断片数（固液比）、粉化率（表面積）、槽形状、攪拌条件等の影響について評価を進め、剪断片を対象に導出された硝酸の拡散及び燃料への浸透に関する評価式（ f 値）の修正を行う。

これらの項目は、未照射の燃料を使用し実施することも可能であるが、 f 値に及ぼす燃焼度の影響も示唆される（5.2 節参照）ことから、評価の際には注意を要するものと思われる。なお、表 8-1 には今後 CPF において照射済燃料溶解試験を実施していく際に評価を行う必要がある項目を整理している。表中の◎は表中左欄に記載してある燃料形態を対象

とした溶解試験において特に重点的に評価を行う必要があると思われる項目を意味している。

また、これらの評価と同時に、化学的に意味のある溶解反応評価式を構築していく上で、燃料の溶解反応、さらにそれに及ぼす Pu 富化度（固溶度）、HM 濃度、亜硝酸濃度、燃焼度等の影響を、反応メカニズムの観点から明らかにしていくことも重要であると考えられる。

参考文献

- 1) 佐野雄一、小山智造、船坂英之、「CPF における照射済燃料溶解試験データの整理」、登録手続中
- 2) 鹿倉栄、田中康正、五十嵐幸、武田誠一郎、大橋和夫、小山智造、宮原幸子、「再処理技術開発の歴史と成果」、JNC ZN8440 98-001 (1998)
- 3) 「PuO₂・UO₂混合酸化物燃料の溶解性の調査」、N842-82-01 (1982)
- 4) T. D. Hodgson, "A Model for Fuel Dissolution via Fragmentation", RECOD'87 591 (1987)
- 5) H. Ohsaki, S. Fujine, M. Maeda, T. Adachi, T. Sakurai a, H. Kudo, "Simulation of Spent Fuel Dissolution in Reprocessing", RECOD'91, Vol. II, 682 (1991)
- 6) R. F. Taylor, E. W. Sharratt, L. E. M. de Chazal and D. H. Logsdail, "Dissolution Rates of Uranium Dioxide Sintered Pellets in Nitric Acid Systems", J. Appl. Chem., 13, 32 (1963)
- 7) A. L. Uriarte, R. H. Rainey, "Dissolution of High-Density UO₂ PuO₂ and UO₂-PuO₂ Pellets in Inorganic Acids", ORNL-3695 (1965)
- 8) 山本隆一、豊田修、山田雅人、菊池憲治、仁科博、算用子裕孝、佐藤学、岩崎伊佐央、田村一、松島和美、栗林正和、「高レベル放射性物質研究施設における FBR 再処理試験 (その1) -せん断・溶解・清澄試験-」、PNC ZN8410 90-035 (1989)
- 9) 根本慎一、柴田淳広、塩浦隆夫、岡本文敏、田中康正、「高速炉燃料の溶解に関する研究」、動燃技報, No.95 (1995)
- 10) 後藤稔、蔵光泰、「UO₂ペレット溶解試験報告書」、D-88-5-032、CMS 内部報告書

表 2-1 高速炉 MOX 燃料の溶解に影響を及ぼす因子^{2),3)}

<u>製造履歴に関わる因子</u> ・ 製造手法 ・ Pu 富化度 ・ 焼結温度及び時間 ・ ペレット密度	UO ₂ と PuO ₂ の均一性が高い試料を得られる製造手法によって製造された燃料ほど溶解性が高い ゾルーゲル法、共沈法 > 機械混合法 大きいほど溶解性が低下 大きいほど溶解性が向上 UO ₂ 及び PuO ₂ ペレットでは、密度の上昇とともに溶解性が向上
<u>照射履歴に関わる因子</u> ・ 燃焼度 ・ 線出力 ・ 燃料温度	大きいほど溶解性が向上 大きいほど溶解性が向上 高いほど溶解性が向上
<u>溶解条件に関わる因子</u> ・ 硝酸濃度 ・ 溶液温度 ・ 比表面積 ・ HM (U+Pu) 濃度 ・ 亜硝酸濃度 ・ 酸化剤 (Ag(II), Ce(IV)) 還元剤 (U(IV)) ・ 錯化剤 (HF)	高いほど溶解性が向上 高いほど溶解性が向上 大きいほど溶解性が向上 高いほど溶解性が向上するが、ある濃度以上では溶解性が低下 UO ₂ 燃料では、濃度の増加とともに溶解性が向上 PuO ₂ では、いずれも溶解性が向上 溶解性が向上

表3-1 粉末燃料及び剪断片を対象とした溶解試験条件とλ値及びβf値

試験 RUN NO.	燃料種類*	剪断片数 (片)	燃焼度 (MWD)	燃料装荷量 (g)	硝酸濃度 (M)		液量 (L)		溶解温度 (℃)	HM濃度 (wt)		λ値	βf値
					初期	終期	初期	終期		初期	終期		
17-3-18追	J2C	粉末 (粉末粒径<46μm)	54000	1.8	5	-	0.5	-	100	0	2.83	3.942	1.000
13-12	J2C		63200	6.017	5	-	0.5	-	100	0	-	3.942	0.049
15-13	J2C		62200~63200	6.021	5	4.54	0.1	0.097	100	0	48	3.942	0.058
15-14	J2C		63600~63500	6.087	5	4.2	0.1	0.1	100	0	47.9	3.942	0.060
15-17	J2C		38700~43000	5.539	5	4.3	0.1	0.1	100	0	45.2	3.942	0.065
17-3-17追	J2C	粉末 (粉末粒径86~100μm)	54000	2.5	5	-	0.5	-	100	0	4.1	3.942	1.000
13-12	J2C		63200	6.017	5	-	0.5	-	100	0	-	3.942	0.049
15-13	J2C		62200~63200	6.021	5	4.54	0.1	0.097	100	0	48	3.942	0.058
15-14	J2C		63600~63500	6.087	5	4.2	0.1	0.1	100	0	47.9	3.942	0.060
15-17	J2C		38700~43000	5.539	5	4.3	0.1	0.1	100	0	45.2	3.942	0.065
17-3-硝酸2	J2C	粉末 (粉末粒径<297μm)		3~4	5	-	0.5	-	100	0	7.8	5.295	1.000
13-12	J2C		63200	6.017	5	-	0.5	-	100	0	-	5.295	0.068
15-13	J2C		62200~63200	6.021	5	4.54	0.1	0.097	100	0	48	5.295	0.080
15-14	J2C		63600~63500	6.087	5	4.2	0.1	0.1	100	0	47.9	5.295	0.083
15-17	J2C		38700~43000	5.539	5	4.3	0.1	0.1	100	0	45.2	5.295	0.090
17-3-19追	J2C	粉末 (粉末粒径100~150μm)		1.4	8	-	0.5	-	100	0	2.54	2.926	1.000
17-2-08	J2C		61500	6.15	8	-	0.5	-	100	0	-	2.926	0.087
17-2-17	J2C		53000	6.11	8	-	0.5	-	100	0	-	2.926	0.095
17-2-19	J2C		47000	6	8	-	0.5	-	100	0	-	2.926	0.134
17-3-粉末2	J2C	粉末 (粉末粒径>500μm)		4.1	8	-	0.5	-	100	0	6.6	4.680	1.000
17-2-08	J2C		61500	6.15	8	-	0.5	-	100	0	-	4.680	0.148
17-2-17	J2C		53000	6.11	8	-	0.5	-	100	0	-	4.680	0.164
17-2-19	J2C		47000	6	8	-	0.5	-	100	0	-	4.680	0.237
17-3-粉末3	J2C	粉末 (粉末粒径>500μm)		6.1	8	-	0.5	-	100	0	10	4.240	1.000
17-2-08	J2C		61500	6.15	8	-	0.5	-	100	0	-	4.240	0.132
17-2-17	J2C		53000	6.11	8	-	0.5	-	100	0	-	4.240	0.146
17-2-19	J2C		47000	6	8	-	0.5	-	100	0	-	4.240	0.209
17-3-表面積1	J2C	粉末 (粉末粒径<297μm)		3~4	8	-	0.5	-	100	0	5.3	4.394	1.000
17-2-08	J2C		61500	6.15	8	-	0.5	-	100	0	-	4.394	0.137
17-2-17	J2C		53000	6.11	8	-	0.5	-	100	0	-	4.394	0.152
17-2-19	J2C		47000	6	8	-	0.5	-	100	0	-	4.394	0.218
17-3-表面積2	J2C	粉末 (粉末粒径>297μm)		3~4	8	-	0.5	-	100	0	6.2	3.086	1.000
17-2-08	J2C		61500	6.15	8	-	0.5	-	100	0	-	3.086	0.092
17-2-17	J2C		53000	6.11	8	-	0.5	-	100	0	-	3.086	0.101
17-2-19	J2C		47000	6	8	-	0.5	-	100	0	-	3.086	0.143
17-3-表面積4	J2C	粉末 (粉末粒径>840μm)		3~4	8	-	0.5	-	100	0	6.6	3.973	1.000
17-2-08	J2C		61500	6.15	8	-	0.5	-	100	0	-	3.973	0.122
17-2-17	J2C		53000	6.11	8	-	0.5	-	100	0	-	3.973	0.135
17-2-19	J2C		47000	6	8	-	0.5	-	100	0	-	3.973	0.193
17-3-表面積5	J2C	粉末 (粉末粒径>1000μm)			8	-	0.5	-	100	0	7.8	5.406	1.000
17-2-08	J2C		61500	6.15	8	-	0.5	-	100	0	-	5.406	0.175
17-2-17	J2C		53000	6.11	8	-	0.5	-	100	0	-	5.406	0.195
17-2-19	J2C		47000	6	8	-	0.5	-	100	0	-	5.406	0.285
17-3-18	J2C	粉末 (粉末粒径300-800μm)		2	8	8.05	0.5	-	100	0	3.8	4.494	1.000
17-2-08	J2C		61500	6.15	8	-	0.5	-	100	0	-	4.494	0.141
17-2-17	J2C		53000	6.11	8	-	0.5	-	100	0	-	4.494	0.156
17-2-19	J2C		47000	6	8	-	0.5	-	100	0	-	4.494	0.225
17-3-19	J2C	粉末 (粉末粒径300-800μm)		1	8	7.75	0.5	-	100	0	1.49	3.641	1.000
17-2-08	J2C		61500	6.15	8	-	0.5	-	100	0	-	3.641	0.111
17-2-17	J2C		53000	6.11	8	-	0.5	-	100	0	-	3.641	0.122
17-2-19	J2C		47000	6	8	-	0.5	-	100	0	-	3.641	0.174

*J2C：常陽MKII-C型特殊燃料

表3-3 重回帰分析による硝酸濃度、温度及び燃焼度の影響評価

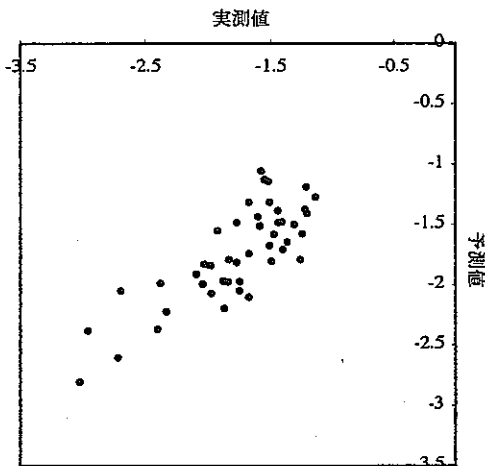
概要

回帰統計	
重相関 R	0.815546177
重決定 R2	0.665115567
補正 R2	0.640611827
標準誤差	0.289871438
観測数	45

分散分析表

	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	3	6.842217243	2.280739081	27.14343169	7.81531E-10
残差	41	3.445043479	0.084025451		
合計	44	10.28726072			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限 95%	上限 95%	下限 95.0%	上限 95.0%
ln (A)	11.17089145	4.854049677	2.301354992	0.026527909	1.367933872	20.97384904	1.367933872	20.97384904
b (燃焼度依存性)	-7.02504E-06	2.42837E-06	-2.892896642	0.006085572	-1.19292E-05	-2.12083E-06	-1.19292E-05	-2.12083E-06
n (硝酸濃度依存性)	1.242065906	0.140123801	8.86406089	4.46325E-11	0.959079993	1.525051819	0.959079993	1.525051819
E (温度依存性)	-5482.39309	1790.180971	-3.062479815	0.003866815	-9097.738893	-1867.047287	-9097.738893	-1867.047287



$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot \exp(b \cdot B) \cdot [\text{HNO}_3]^n \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right)$$

表3-4 重回帰分析による硝酸濃度、温度及び燃焼度の影響評価 (各変数を標準化)

概要

回帰統計	
重相関 R	0.815546177
重決定 R2	0.665115567
補正 R2	0.640611827
標準誤差	0.289871438
観測数	45

分散分析表

	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	3	29.93020049	9.976733498	27.14343169	7.81531E-10
残差	41	15.06979951	0.367556086		
合計	44	45			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限 95%	上限 95%	下限 95.0%	上限 95.0%
ln (A)	-5.54274E-15	0.090376507	-6.13295E-14	1	-0.182519159	0.182519159	-0.182519159	0.182519159
b (燃焼度依存性)	-0.298883353	0.103316291	-2.892896642	0.006085572	-0.507534951	-0.090231754	-0.507534951	-0.090231754
n (硝酸濃度依存性)	0.819192024	0.092417238	8.86406089	4.46325E-11	0.632551523	1.005832525	0.632551523	1.005832525
E (温度依存性)	-0.315351992	0.102972758	-3.062479815	0.003866815	-0.523309809	-0.107394175	-0.523309809	-0.107394175

表3-5 最小自乗法によるHM濃度の影響算出

試験 RUN NO.	λ値 (min)	f値	1/λ	燃焼度 (MWd/t)	硝酸濃度 [M]	溶解温度 (℃)	初期HM濃度 (M)	予測される 1/λ	残差の自乗
12-1	5.667640931	0.1	0.176440253	80000	5	108	0.50	0.16	2.19E-04
12-2	9.149712317	0.1	0.109293054	94000	5	108	0.50	0.15	1.38E-03
12-3	7.236114447	0.1	0.138195714	108000	5	108	0.50	0.13	2.94E-05
12-31	6.401402272	0.1	0.156215772	94000	5	104	0.54	0.13	9.49E-04
12-32	9.958039289	0.1	0.100421375	108000	4.85	106	1.12	0.11	1.37E-04
12-33	9.958039257	0.1	0.100421376	94000	4.85	95	0.53	0.08	2.52E-04
12-34	12.04255787	0.1	0.083038837	80000	4.91	93	0.52	0.09	1.93E-05
13-5	22.75812943	0.1	0.043940342	63200	5	85.4	0.55	0.07	8.52E-04
13-6	9.77185124	0.1	0.102334755	63200	5	100.3	0.50	0.14	1.08E-03
13-7	12.36137119	0.1	0.080897174	63200	3	100.1	1.01	0.06	2.76E-04
13-8	9.040968733	0.1	0.110607616	63200	5	100.1	1.34	0.12	2.04E-04
13-11	6.620546652	0.1	0.151044929	63200	4.8	105	0.00	0.16	9.25E-05

a (HM濃度依存性) = -0.32
 残差の自乗和 = 5.49E-03

$$\frac{1}{\lambda} = \exp(11.17) \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] + a[\text{HM}])^{1.24} \cdot \exp\left(-\frac{5482}{T}\right)$$

表3-6 照射済燃料溶解試験において使用された燃料の溶解条件（複数の剪断片に対する溶解試験）

試験 RUN NO.	燃料種類 ¹⁾	燃料ピン数 (本)	平均燃焼度 (MWD/t)	燃料装荷量 (g)		Pu(U+Pu) (%)	硝酸濃度 (M)		液量 (L)		溶解温度 (°C)		HM濃度 (g/L)		燃料総重量 (g)	粉末燃料重量 (g)	粉化率 (%)
				U	Pu		初期	終期	初期	終期	初期	終期	初期	終期			
1	J1	2	4400	535.2	44.7	7.71E-02	3.6	1.9	3.2	2.2	98	0	260.2	660.6	58.2	8.10E-02	
2	J1	2	32000	530.4	44.8	7.79E-02	3.5	1.6	3.0	2.9	96	0	186.8	661.8	24.3	3.54E-02	
3	J1	4	40100	1054.4	87.9	7.70E-02	3.6	2.9	3.8	2.7	101	0	414.5	1321.5	47.9	3.50E-02	
4-1	J1	1	40100	263.1	21.9	7.68E-02	3.4	2.0	2.0	1.6	90	0	165.4	328.8	25.1	7.09E-02	
4-2	J1	1	40100	263.1	21.9	7.68E-02	3.1	1.6	2.0	1.6	80	0	165.3	328.5	17.3	5.00E-02	
4-3	J1	1	40100	262.1	21.8	7.68E-02	3.4	2.0	2.0	1.6	70	0	166.3	327.1	21.1	6.06E-02	
4-4	J1	1	40100	264.2	22	7.69E-02	2.4	1.7	4.1	3.6	90	0	79.0	329.3	21.2	6.05E-02	
5-1	J1	コア部 ブランケット部 (全3本)	40100	395.3	84.3	1.76E-01	3.3	1.8	3.7	2.7	90	0	152.5	576.1	14.7	2.49E-02	
5-2	J1			660.5	3.8	5.72E-03	3.3	1.8	4.6	4.2	90	0	151.5	789.2	40.3	4.86E-02	
6	J2	3	13800	190.4	70.9	2.71E-01	3.5	2.7	2.8	2.3	97	0	103.3	274.6	15.1	5.21E-02	
7	J2	3	13800	190.4	70.9	2.71E-01	3.5	2.6	2.7	2.3	90	0	99.4	297	16.8	5.35E-02	
8	J2	3	31700	173.8	64.3	2.70E-01	3.4	2.7	2.5	1.9	97	0	100.4	277.3	9.2	3.21E-02	
9	D	2本相当	52600	129.99	30.48	1.90E-01	3.3	2.9	2.5	2.0	98	0	73.0	199.7	13.3	6.34E-02	
10	J2	3	31700	154	57	2.70E-01	3.4	3.1	3.5	3.1	97	0	56.8	325.7	14.9	4.37E-02	
11	P	3本相当	87847	242	90.8	2.73E-01	2.9	2.0	2.5	1.8	96	0	146.0	352.8	13.3	3.63E-02	
12	P	3	94000	390.8	69.2	1.50E-01	4.7	5.0	3.1	1.5	107	0	265.0	543.1	41.8	7.15E-02	
13	J2C	4	54100	242.6	94.2	2.80E-01	4.4	2.5	2.0	1.5	104	0	199.0	404.4	14.9	3.55E-02	
14	J2	3	54700	152.24	60.59	2.85E-01	3.3	3.2	2.9	2.6	97	0	82.6				
18-1	P	剪断片10片	94000	40.4	17.3	3.00E-01	8	6.64	0.5	0.458	113	0	111				
18-2	P	剪断片10片	94000	39.8	17.1	3.01E-01	8	7.1	0.5	0.43	90	0	96				
19	J2C	2	100130	142.44	51.78	2.67E-01	5.4	5.4	0.15	0.15	100	0	95 (最大値)				
20	J2C	2	99585	142.44	51.78	2.67E-01	8.5	8.5	0.15	0.15	100	0	95 (最大値)				
21-1	J2C	1	97230	71.22	25.89	2.67E-01	5.37	-	0.5	-	100	0	-				
21-2	J2C	1	102000	71.22	25.89	2.67E-01	8.5	-	0.5	-	100	0	-				

試験 RUN NO.	燃料種類 ¹⁾	剪断片外径 (mm)	剪断片内径 (mm)	剪断片個数	剪断片長さ (mm)	剪断片占有体積 (cm ³) ²⁾	固液比 (-) ³⁾	f値 ¹⁾	備考
1	J1	6.3	5.6	93	30	86.97	36.79	3.89E-02	
2	J1	6.3	5.6	93	30	86.97	34.49		*U、Pu分析値の記載なし
3	J1	6.3	5.6	186	30	173.94	21.62		*硝酸を随時添加しながら蒸発溶解
4-1	J1	6.3	5.6	46	30	43.02	47.19	3.87E-02	
4-2	J1	6.3	5.6	46	30	43.02	46.49	3.75E-02	
4-3	J1	6.3	5.6	46	30	43.02	47.19	4.39E-02	
4-4	J1	6.3	5.6	46	30	43.02	95.08	2.42E-02	
5-1	J1	6.3	5.6	80	30	74.81	49.46	3.61E-02	
5-2	J1	6.3	5.6	106	30	99.13	46.40	3.91E-02	
6	J2	5.5	4.8	57	30	40.63	68.67	4.38E-02	
7	J2	5.5	4.8	57	30	40.63	66.95	4.47E-02	
8	J2	5.5	4.8	53	30	37.78	65.39	2.56E-02	
9	D	6.3	5.6	26	30	24.31	102.82	3.83E-02	
10	J2	5.5	4.8	50	30	35.64	99.05		*小型溶解試験後の剪断片(17片)及び溶解液を含む。途中で操作条件を変更
11	P	6.5	5.6	73	26.26	63.60	38.68		*剪断片の長さが不均一。途中で13.4M硝酸(10ml)追加
12	P	6.5	5.6	86	30	85.61	36.68		*溶解槽運転モード変更（連続モード→還元モード）
13	J2C	6.5	5.56	63	30	62.72	31.25	7.03E-02	
14	J2	5.5	4.8	60	30	42.76	66.88	3.69E-02	
18-1	P	6.5	5.6	10	30	9.95	50.23	1.01E-01	*溶解槽として丸底フラスコを使用
18-2	P	6.5	5.6	10	30	9.95	50.23	9.56E-02	*溶解槽として丸底フラスコを使用
19	J2C	6.5	5.56	42	30	41.81	3.59		*模擬連続溶解試験（硝酸の連続添加・連続放出）
20	J2C	6.5	5.56	42	30	41.81	3.59		*模擬連続溶解試験（硝酸の連続添加・連続放出）
21-1	J2C	6.5	5.56	21	30	20.91	23.92	1.84E-02	*19及び20RUNと同じ溶解槽を用いた同分式溶解試験
21-2	J2C	6.5	5.56	21	30	20.91	23.92	2.33E-02	*19及び20RUNと同じ溶解槽を用いた同分式溶解試験

*1 燃料の種類 (J1:「常陽」MK-Iドライバー燃料、J2:「常陽」MK-IIドライバー燃料、J2C:「常陽」MK-IIIC型特殊燃料、P: Phenix燃料、D: DFR燃料)

*2 剪断片占有体積及び固液比は以下の式により算出

$$\text{剪断片占有体積} = \left[\frac{\text{剪断片の外径}^2}{2} \right] \times \pi \times \text{剪断片長さ} \times \text{剪断片枚数}$$

$$\text{固液比} = \frac{\text{溶解槽中の溶剂量}}{\text{溶解槽中の剪断片体積}}$$

*3 f値の算出は別添8を参照

表4-1 高Pu富化MOX粉末燃料を対象とした溶解試験における溶解開始6時間後の燃料溶解率、硝酸濃度及び液量の実測値と評価式による計算値

RUN NO.	Pu富化度 (wt%)	硝酸濃度 (M)	U+Pu溶解率		硝酸濃度 (M)		液量 (L)	
			実測値	計算値	実測値	計算値	実測値	計算値
RUN14Pu	30	7.2	1.09	1.00	4.9	4.54	0.092	0.086
RUN11Pu	40	7.2	0.81	0.96	5.4	4.57	0.095	0.086
RUN8Pu	45	7.2	0.40	0.30	6.43	6.43	0.095	0.096
RUN5Pu	50	7.2	0.20	0.03	6.2	7.12	0.095	0.100

表8-1 CPFでの照射済燃料溶解において評価を行うべき項目

対象燃料形態	λ値				
	燃焼度 (線出力等)	硝酸濃度	溶解温度	HM濃度	亜硝酸濃度
粉末燃料	◎	◎	◎	◎	◎
剪断片1片	○	○	○	○	○
複数の剪断片	○	○	○	○	○

対象燃料形態	f値					
	粒度分布	固液比 (剪断片個数)	剪断片長さ	粉化率	槽形状	攪拌効果
粉末燃料	○	○	—	—	—	—
剪断片1片	—	◎	◎	◎	○	○
複数の剪断片	—	○	○	○	◎	◎

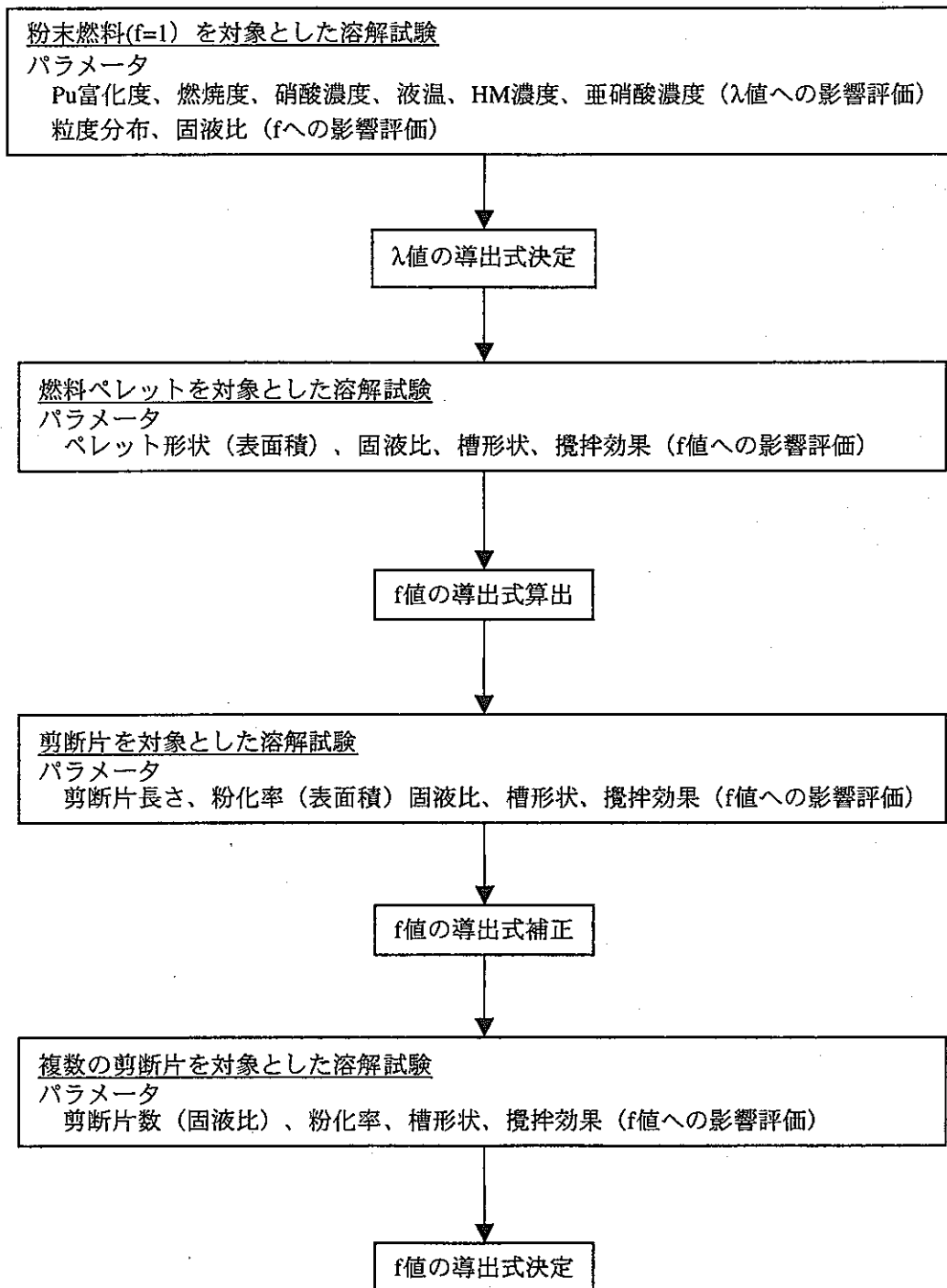


図3-1(1) Fragmentationモデル中におけるパラメータλ及びfの算出フロー

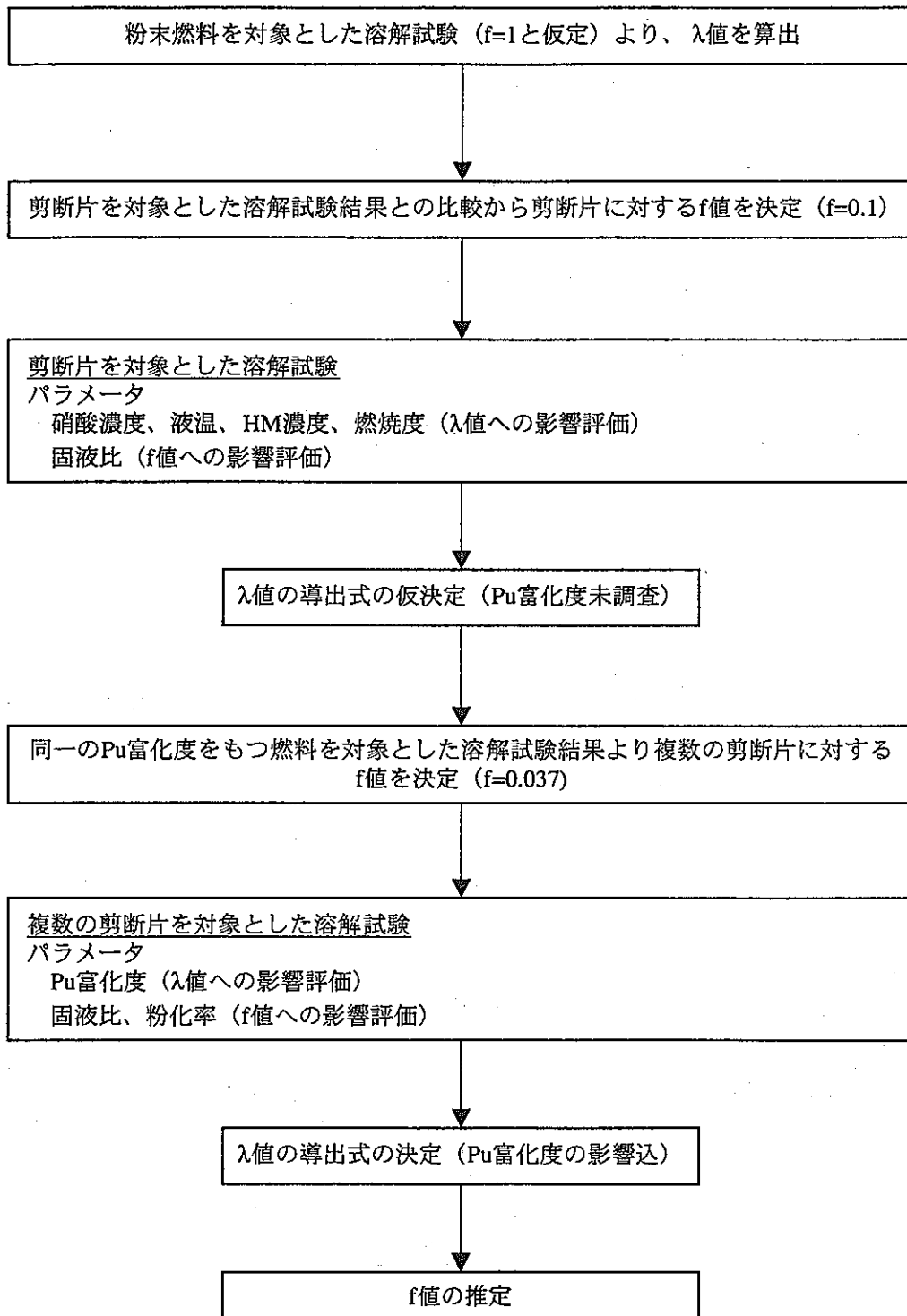
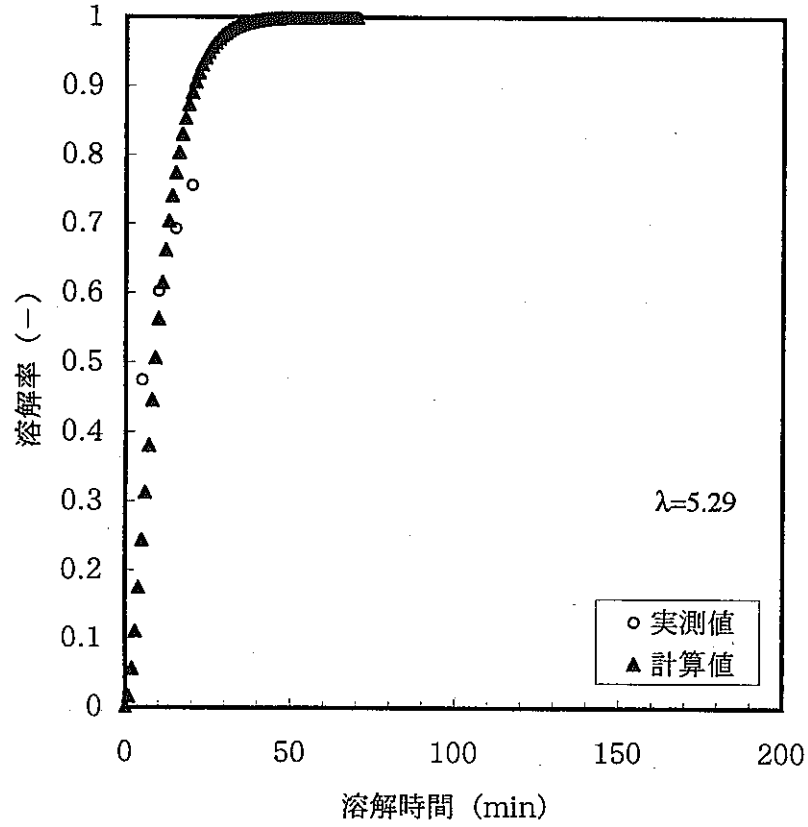


図3-1(2) 本検討におけるfragmentationモデル中のパラメータλ及びfの算出フロー

RUN17-3 (硝酸2)

燃料：常陽MK-IIC特殊燃料（粉末）
 硝酸濃度：5M
 温度：100℃
 f=1.0



RUN15-13

燃料：常陽MK-IIC特殊燃料（剪断片）
 硝酸濃度：5M
 温度：100℃
 $\lambda=5.29$

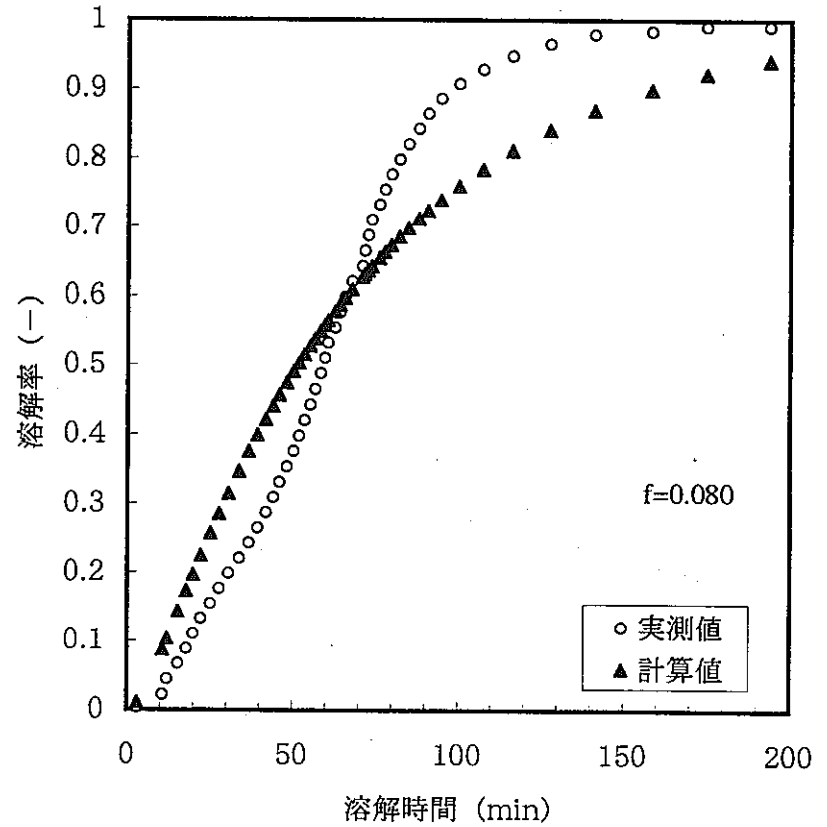
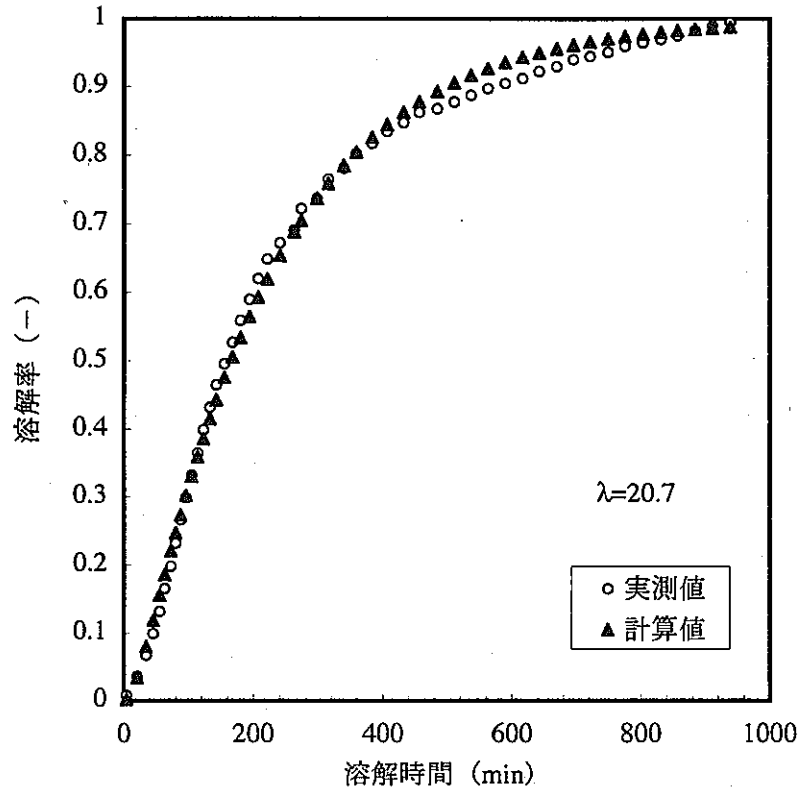


図3-2 常陽MK-IIC型特殊燃料（粉末及び剪断片）を対象とした溶解試験結果

RUN12-24

燃料：Phenix燃料
 Pu富化度：30%
 燃焼度：108,000MWd/t
 硝酸濃度：3M
 温度：103℃

f=0.1として計算



RUN17-13

燃料：Phenix燃料
 Pu富化度：30%
 燃焼度：97,000MWd/t
 硝酸濃度：7M
 温度：100℃

f=0.1として計算

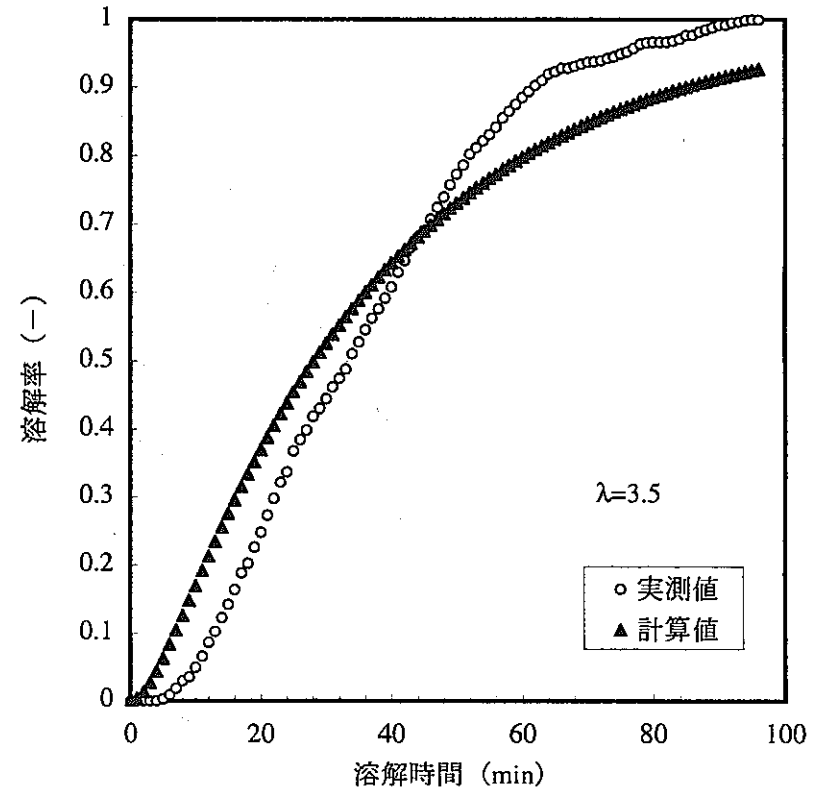
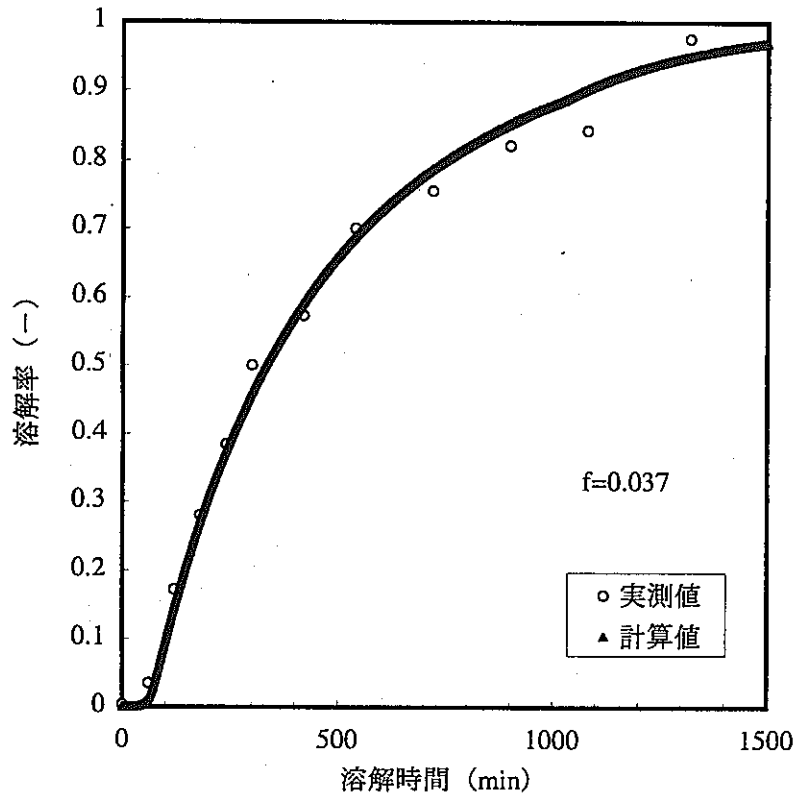


図3-3 Phenix燃料（剪断片）を対象とした溶解試験結果



RUN14

燃料：常陽MK-II炉心燃料
 Pu含有率(混合率)：28.5%^{*1}
 燃烧度：54,700MWd/t
 初期硝酸濃度：3.3M
 温度：25→97℃
 初期液量：2.9L

- *1 計算では30%と仮定
- *2 反応による硝酸濃度及び金属濃度の
変化を考慮
- *3 差分法によりλの値を随時(1分毎)更新

図3-4 常陽MK-II炉心燃料を対象としたベンチスケール溶解試験の結果とf値の算出

RUN1

燃料：常陽MK-I炉心燃料

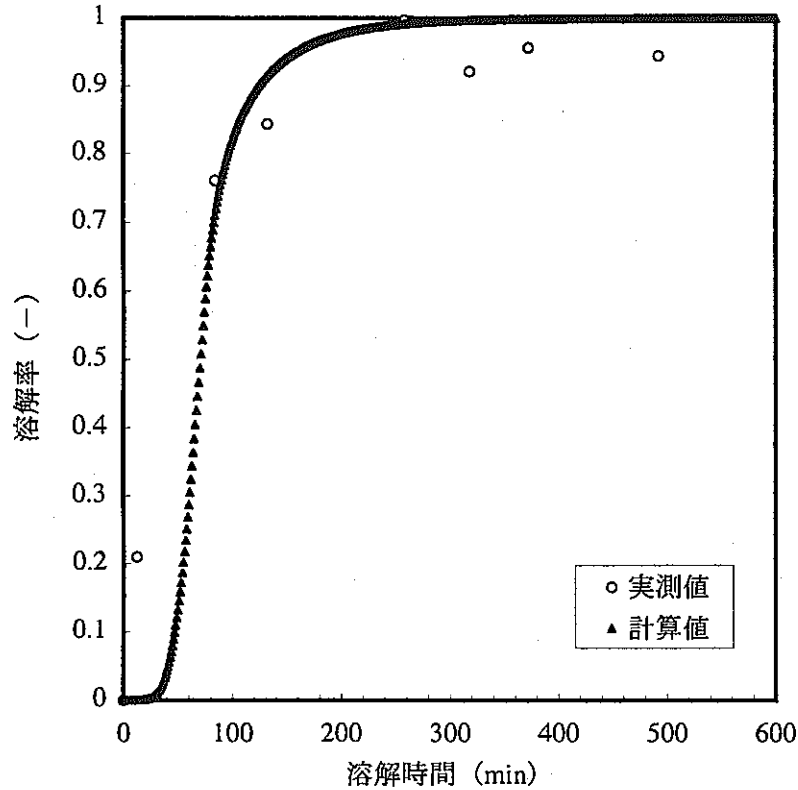
Pu含有率（混合率）：30%

燃焼度：4,400MWd/t

初期硝酸濃度：3.6M

温度：25→98℃

初期液量：3.2L



$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.32[\text{HM}])^n \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right)$$

$$A = A_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{A_{0.3}}{A_0}\right) = A_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{7.10 \times 10^4}{A_0}\right)$$

$$n = n_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{n_{0.3}}{n_0}\right) = n_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{1.24}{n_0}\right)$$

$$E = E_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{E_{0.3}}{E_0}\right) = E_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{45.6 \times 10^3}{E_0}\right)$$

$$A_0 = 3.46 \times 10^{12}$$

$$n_0 = 2$$

$$E_0 = 95.8 \times 10^3$$

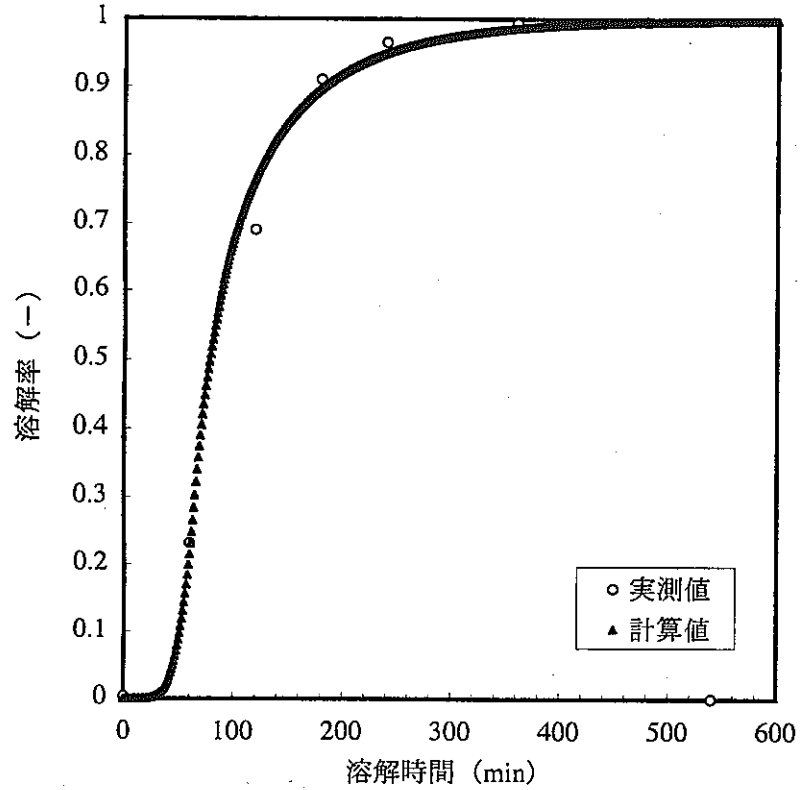
*1 反応による硝酸濃度及び金属濃度の変化を考慮

*2 差分法によりλの値を随時（1分毎）更新

図3-5(1) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果

RUN4-1

燃料：常陽MK-I炉心燃料
 Pu含有率（混合率）：7.7%
 燃烧度：40,100MWd/t
 初期硝酸濃度：3.4M
 温度：25→90℃
 初期液量：2.0L



RUN4-2

燃料：常陽MK-I炉心燃料
 Pu含有率（混合率）：7.7%
 燃烧度：40,100MWd/t
 初期硝酸濃度：3.1M
 温度：25→80℃
 初期液量：2.0L

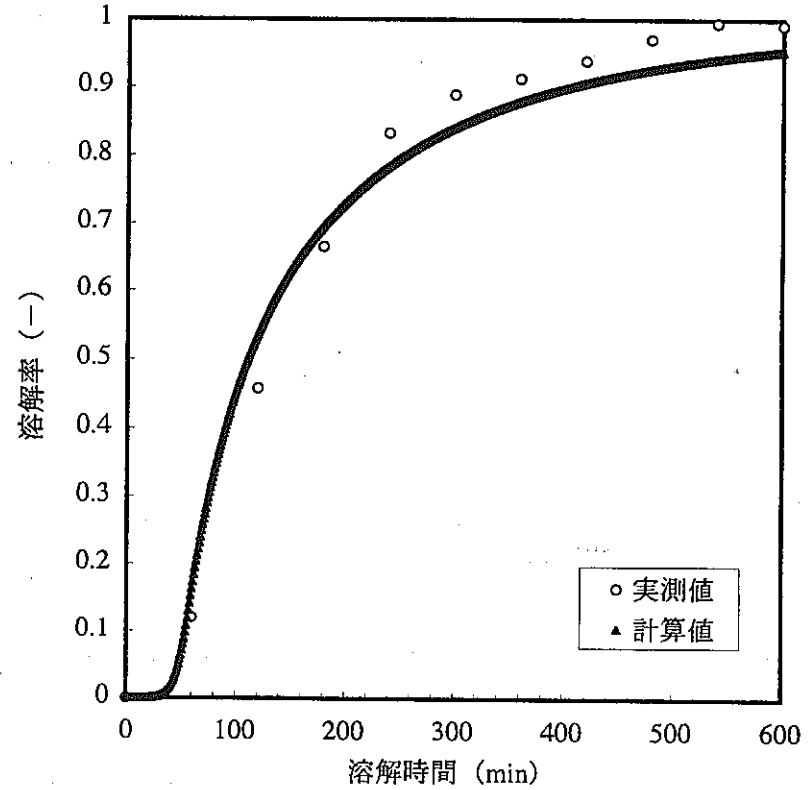
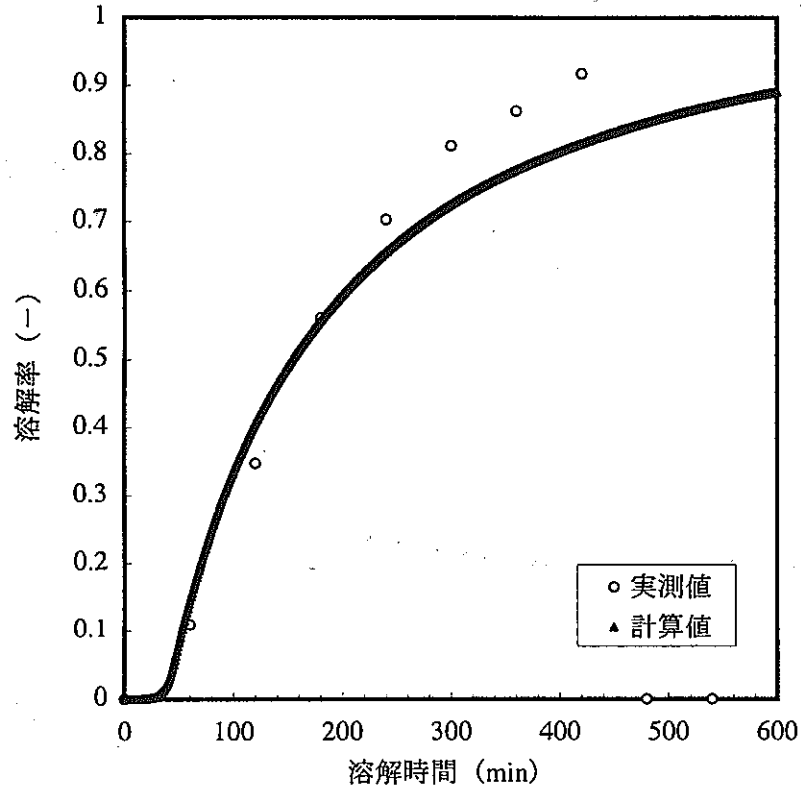


図3-5(2) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果

RUN4-3

燃料：常陽MK-I炉心燃料
 Pu含有率（混合率）：7.7%
 燃焼度：40,100MWd/t
 初期硝酸濃度：3.4M
 温度：25→70℃
 初期液量：2.0L



RUN4-4

燃料：常陽MK-I炉心燃料
 Pu含有率（混合率）：7.7%
 燃焼度：40,100MWd/t
 初期硝酸濃度：2.4M
 温度：25→90℃
 初期液量：4.1L

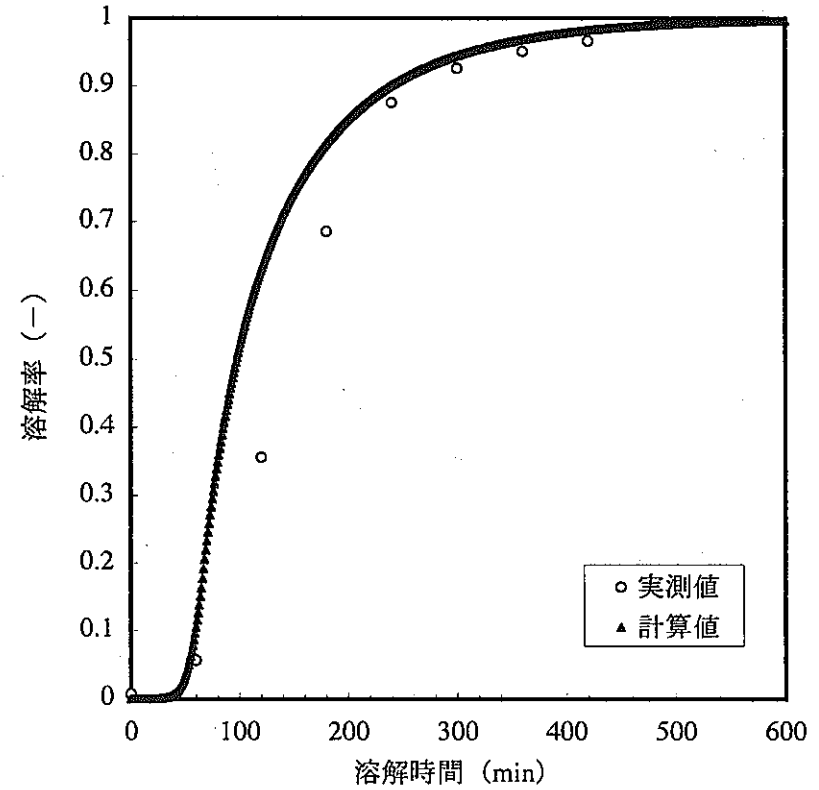


図3-5(3) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果

RUN5-1

燃料：常陽MK-I炉心燃料
Pu含有率（混合率）：17.6%
燃焼度：40,100MWd/t
初期硝酸濃度：3.3M
温度：25→70℃
初期液量：3.7L

RUN5-2

燃料：常陽MK-Iブランケット燃料
Pu含有率（混合率）：0.57%
燃焼度：40,100MWd/t
初期硝酸濃度：2.3M
温度：25→90℃
初期液量：4.6L

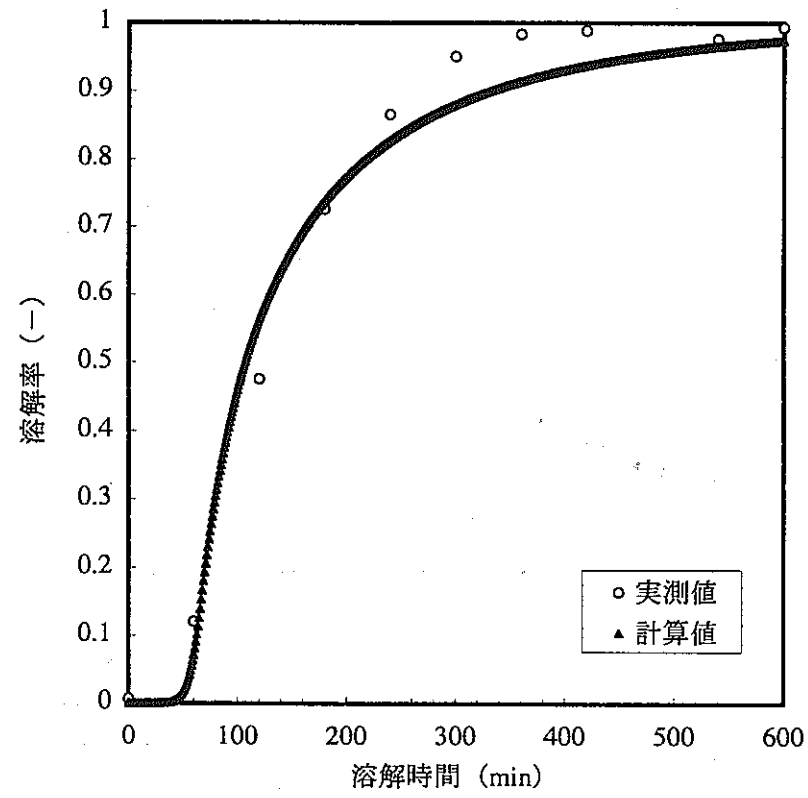
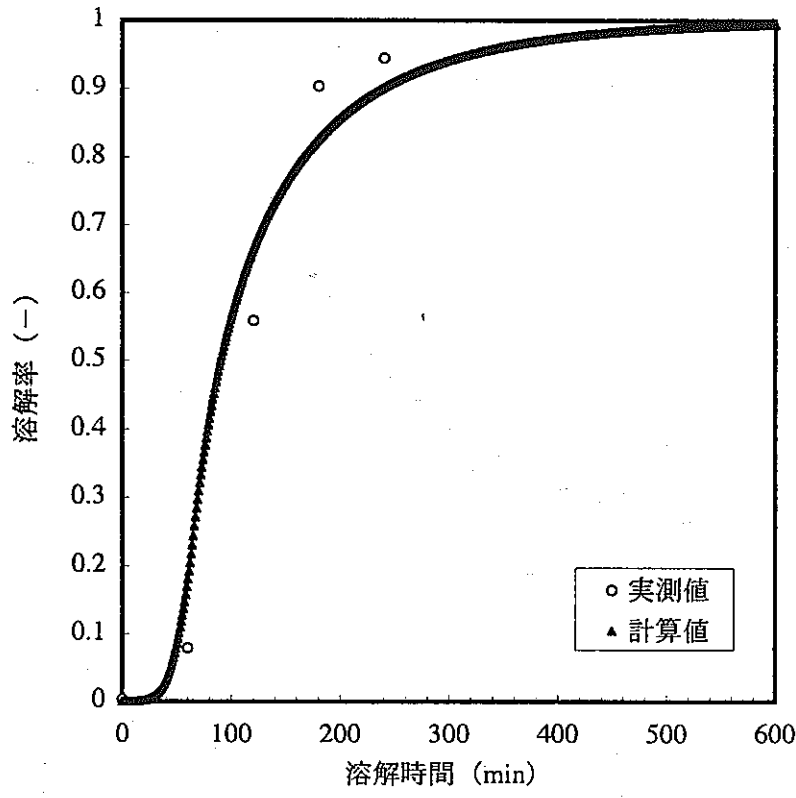
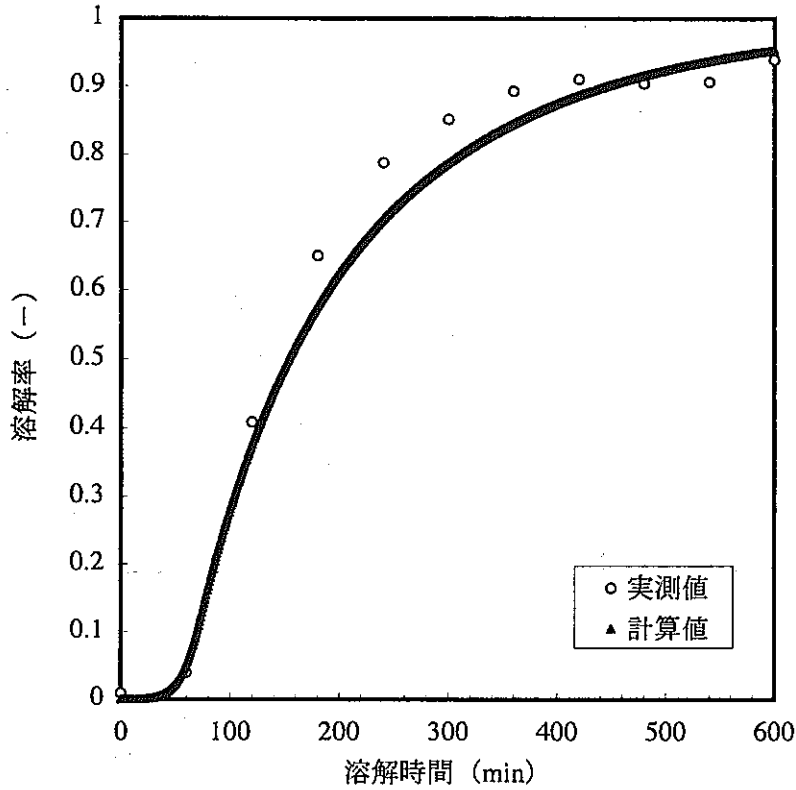


図3-5(4) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果

RUN6

燃料：常陽MK-II炉心燃料
 Pu含有率（混合率）：27.1%
 燃烧度：13,800MWd/t
 初期硝酸濃度：3.5M
 温度：25→97℃
 初期液量：2.8L



RUN7

燃料：常陽MK-II炉心燃料
 Pu含有率（混合率）：27.1%
 燃烧度：13,800MWd/t
 初期硝酸濃度：3.5M
 温度：25→90℃
 初期液量：2.7L

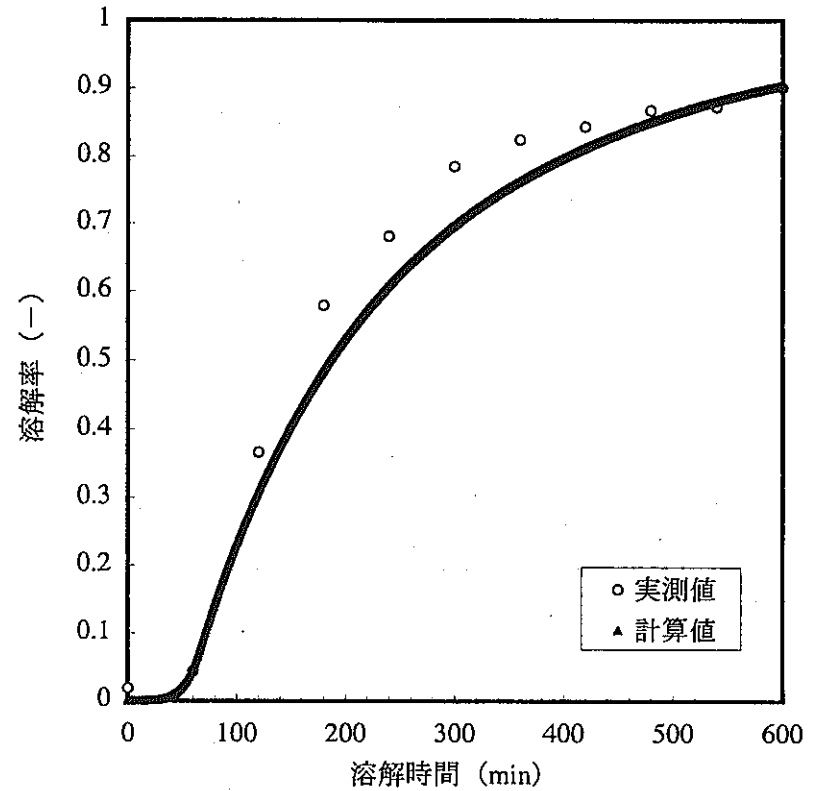
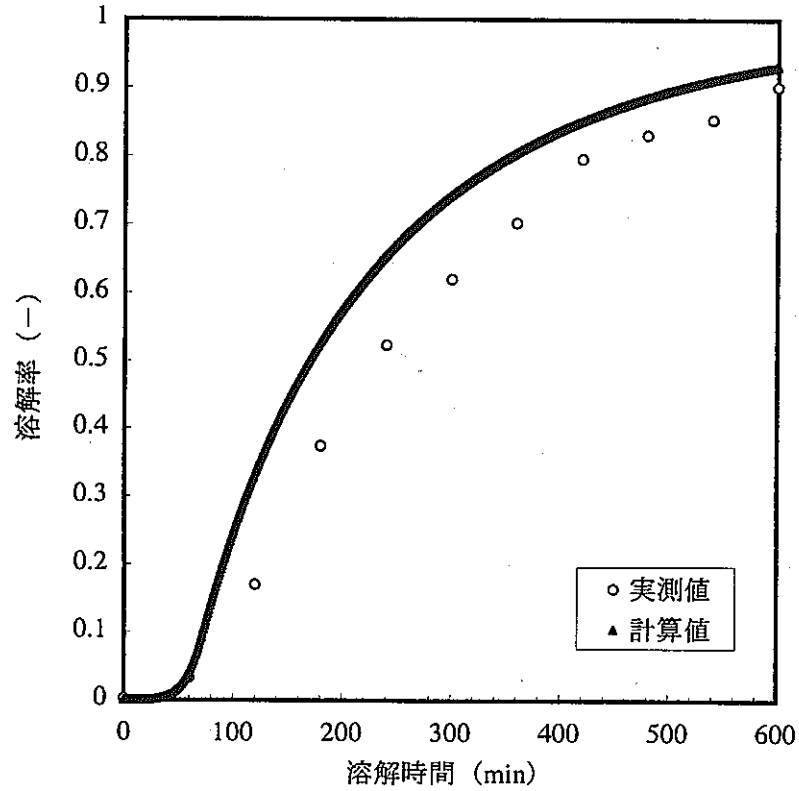


図3-5(5) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果

RUN8

燃料：常陽MK-II炉心燃料
 Pu含有率（混合率）：27.0%
 燃焼度：31,700MWd/t
 初期硝酸濃度：3.4M
 温度：25→97℃
 初期液量：2.5L



RUN9

燃料：DFR燃料
 Pu含有率（混合率）：19.0%
 燃焼度：52,600MWd/t
 初期硝酸濃度：3.3M
 温度：25→98℃
 初期液量：2.5L

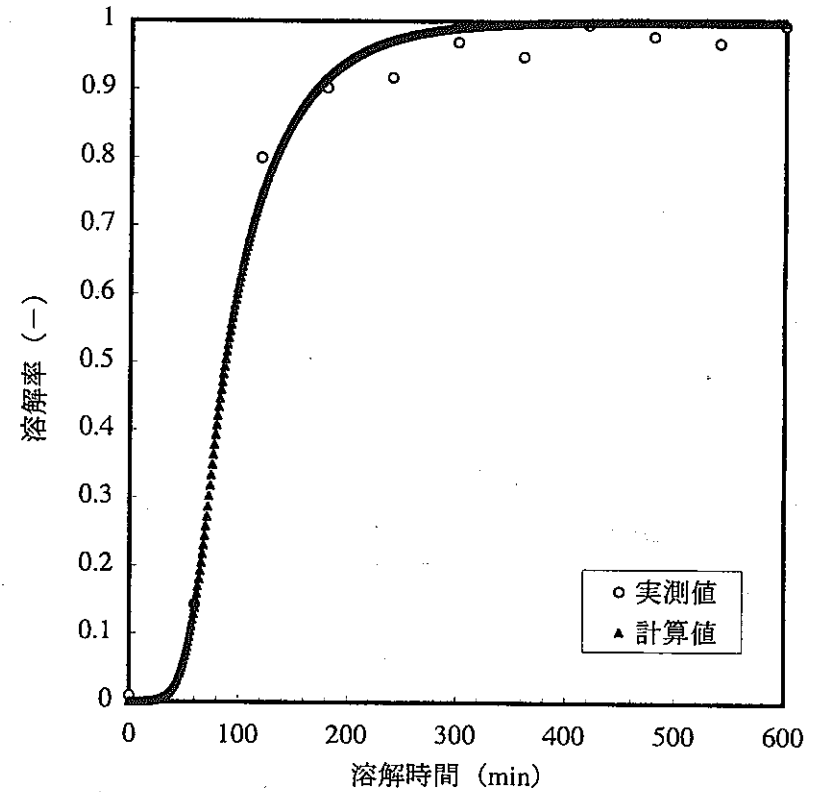
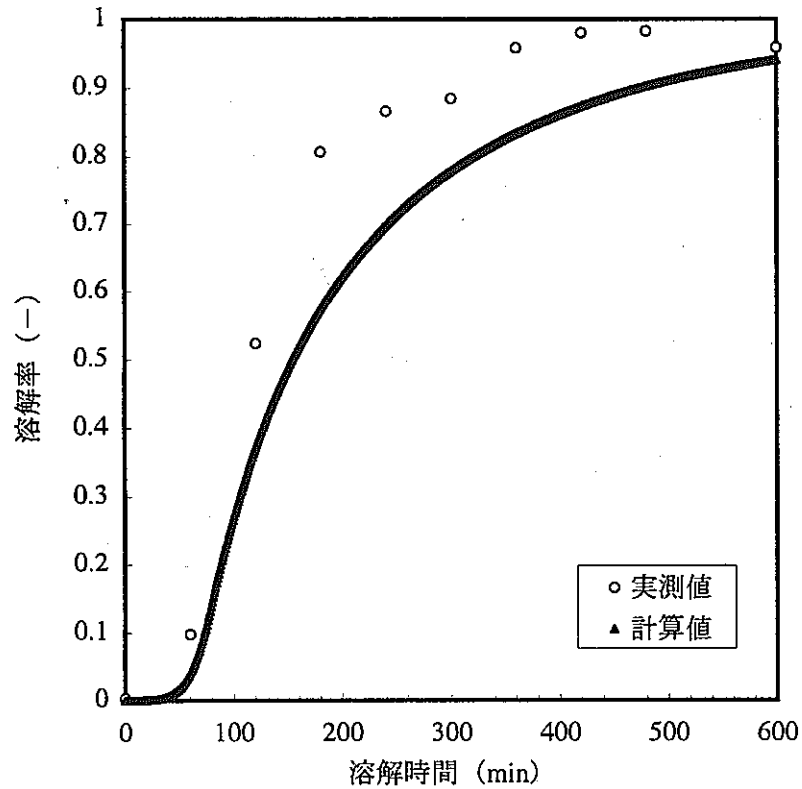


図3-5(6) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果

RUN13

燃料：常陽MK-II C型特殊燃料
 Pu含有率（混合率）：28.0%
 燃焼度：54,100MWd/t
 初期硝酸濃度：4.4M
 温度：25→104℃
 初期液量：2.0L

RUN14

燃料：常陽MK-II炉心燃料
 Pu含有率（混合率）：28.5%
 燃焼度：54,700MWd/t
 初期硝酸濃度：3.3M
 温度：25→97℃
 初期液量：2.9L

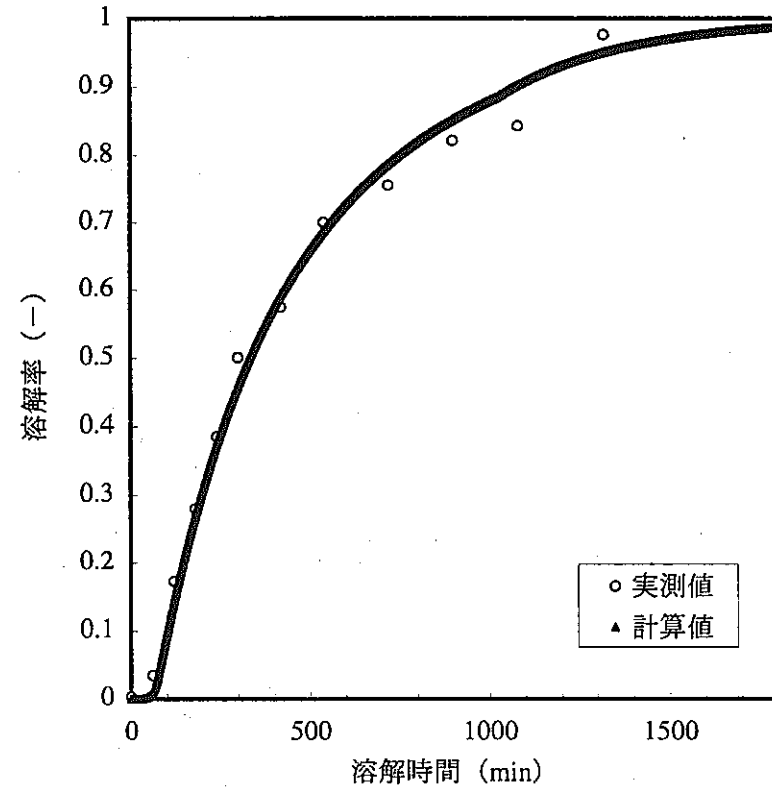


図3-5(7) 複数の剪断片を対象としたベンチスケール溶解試験結果

RUN7

燃料：常陽MK-II炉心燃料
 Pu含有率（混合率）：27.1%
 燃焼度：13,800MWd/t
 初期硝酸濃度：3.5M
 温度：25→90℃
 初期液量：2.7L

燃料初期表面積：20.6cm²
 f=0.037

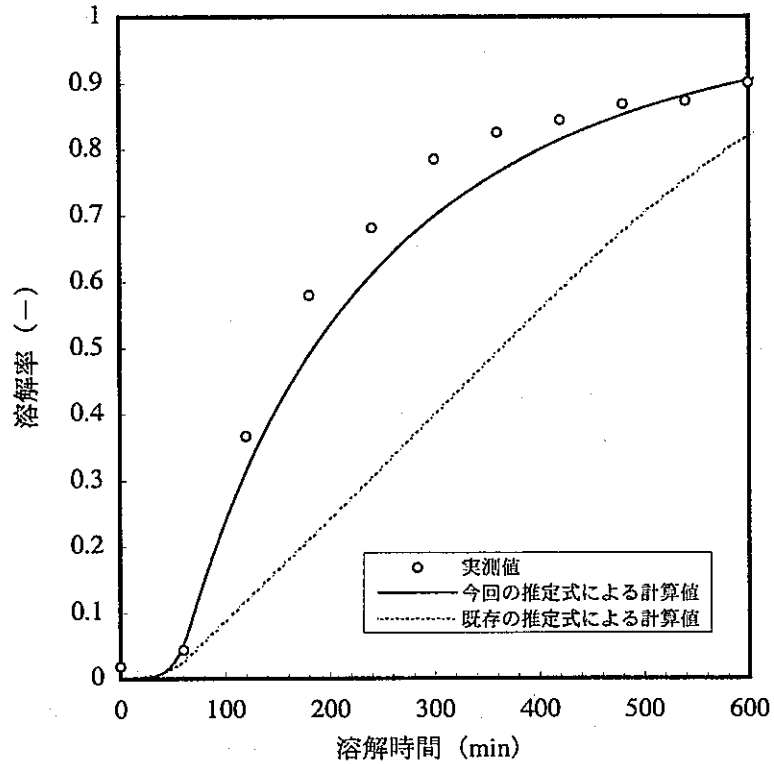


図4-1 常陽MK-II炉心燃料を対象としたベンチスケール溶解試験結果及び推定式による燃料溶解率の推定値

RUN21-1

燃料：常陽MK-IIIC型特殊燃料
 Pu含有率（混合率）：26.7%
 燃焼度：102,000MWd/t
 初期硝酸濃度：5.37M
 温度：100℃
 初期液量：0.5L

燃料初期表面積：20.6cm²
 f=0.023

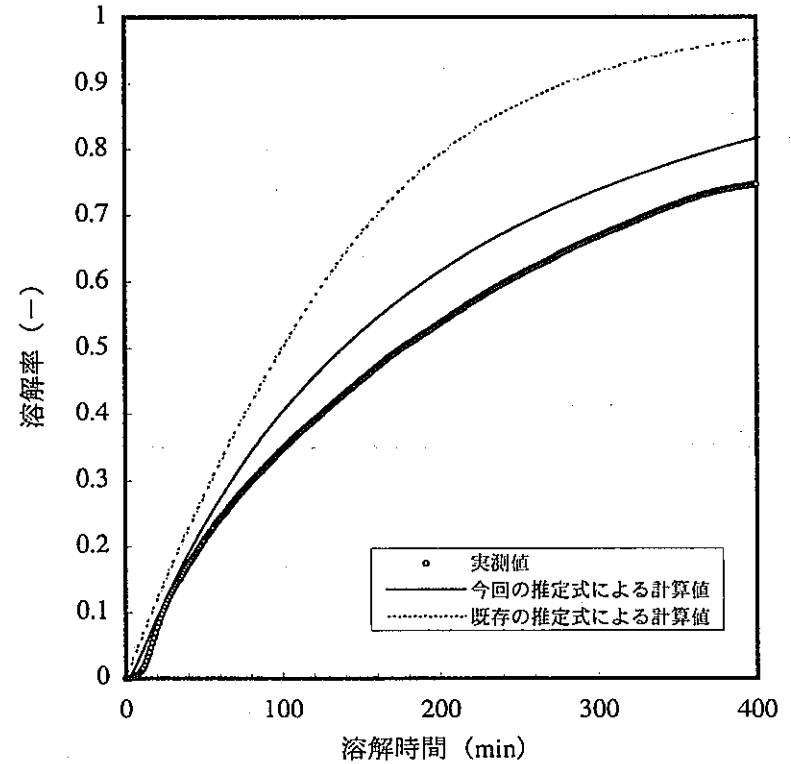


図4-2 常陽MK-IIIC型特殊燃料を対象としたピーカースケール溶解試験結果及び推定式による燃料溶解率の推定値

RUN19

燃料：常陽MK-IIIC型特殊燃料
 Pu含有率（混合率）：26.7%
 燃焼度：100,130MWd/t
 硝酸濃度：5.4M (0~6.0h), 8.0M (6.0~7.5h), 7.8M (7.5~8.5h)
 硝酸供給及び抜出速度：0.42L/h
 温度：100℃
 初期液量：0.15L
 燃料初期表面積：19.44cm²
 f=0.023

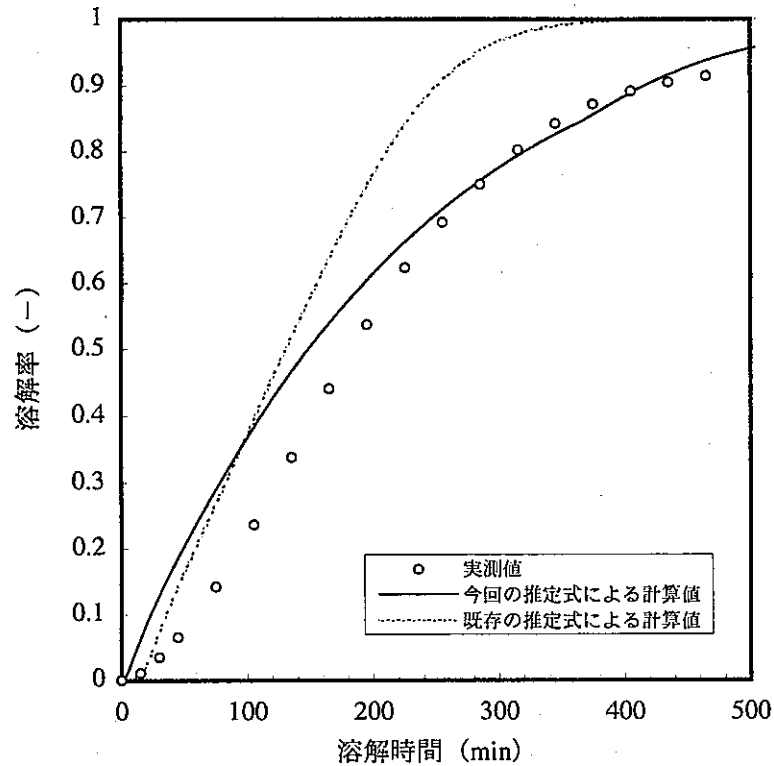


図4-3 常陽MK-IIIC型特殊燃料を対象とした模擬連続溶解試験結果及び推定式による燃料溶解率の推定値

RUN16U

燃料：未照射Uペレット (14.5φ×20)
 Pu含有率（混合率）：—
 燃焼度：—
 初期硝酸濃度：6.06M
 温度：95℃
 初期液量：0.5L

$f=3.40 \times 10^{-3}$

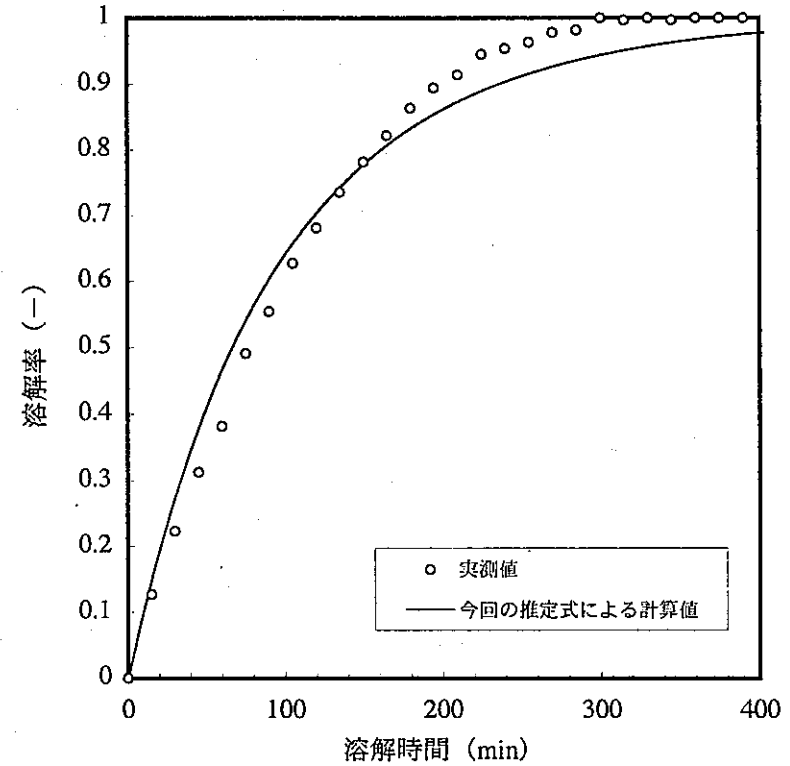


図4-4 未照射Uペレットを対象としたピーカースケール溶解試験結果及び推定式による燃料溶解率の推定値

RUN19U

燃料：未照射Uペレット (14.5φ×20)

Pu含有率 (混合率)：-

燃焼度：-

初期硝酸濃度：6.01M

温度：95℃

初期液量：0.5L

初期HM濃度：131.4g/L

$$f=3.40 \times 10^{-3}$$

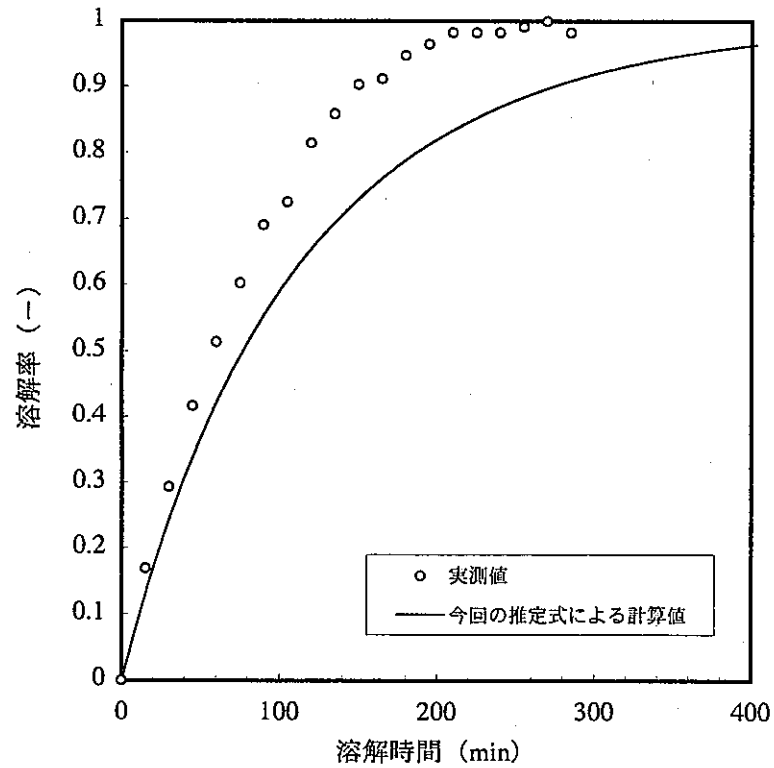


図4-5 未照射Uペレットを対象としたピーカースケール溶解試験結果 (初期HM濃度依存性) 及び推定式による燃料溶解率の推定値

RUN8Pu

燃料：MOX粉末

Pu含有率 (混合率)：44.9%

燃焼度：-

初期硝酸濃度：7.2M

温度：70℃ (0~0.5h) → 107℃ (沸点)

初期液量：0.1L

$$f=1$$

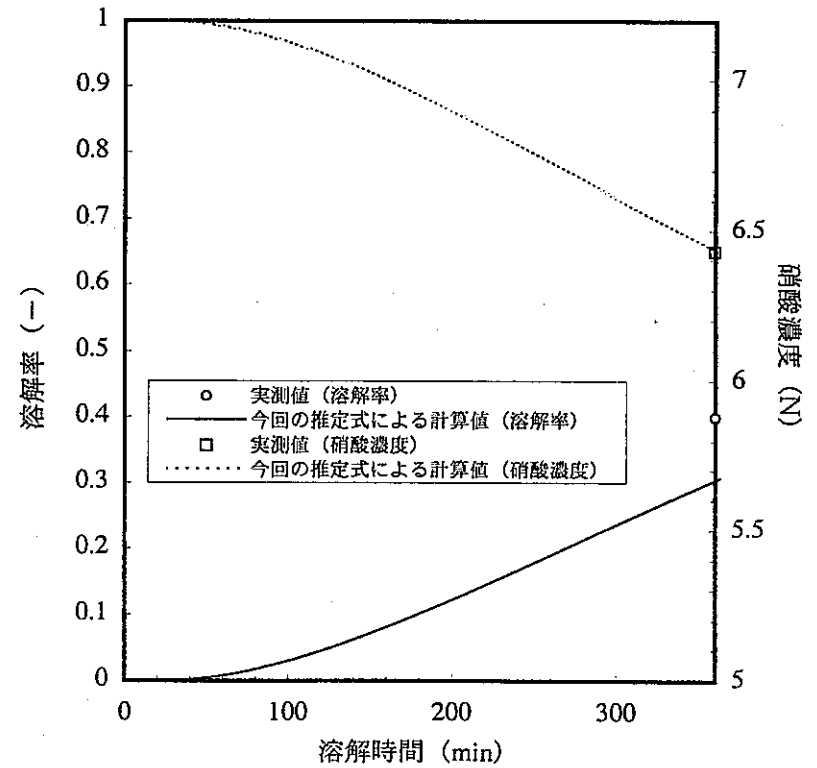
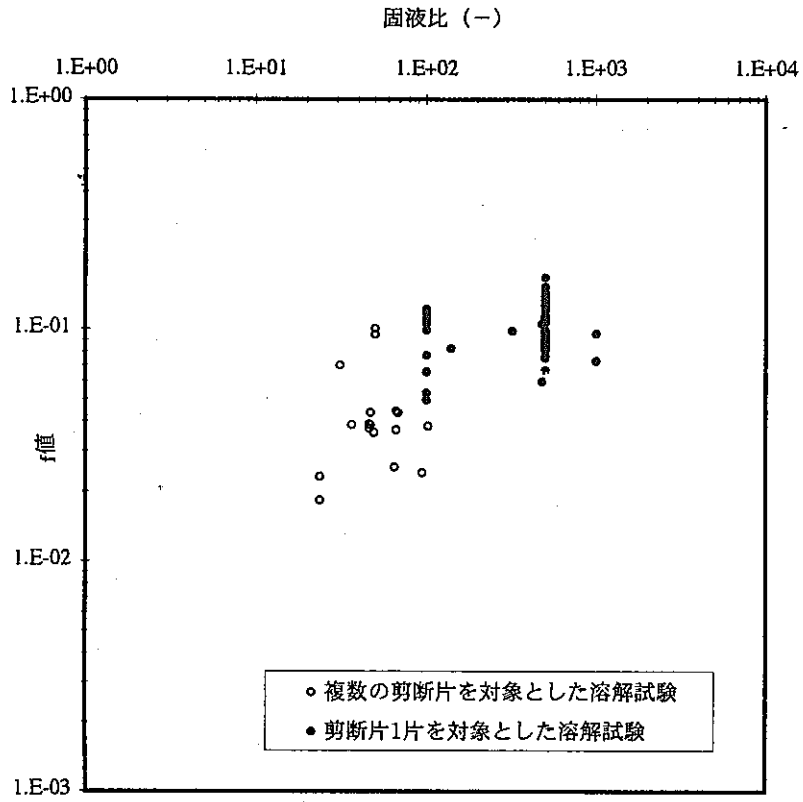
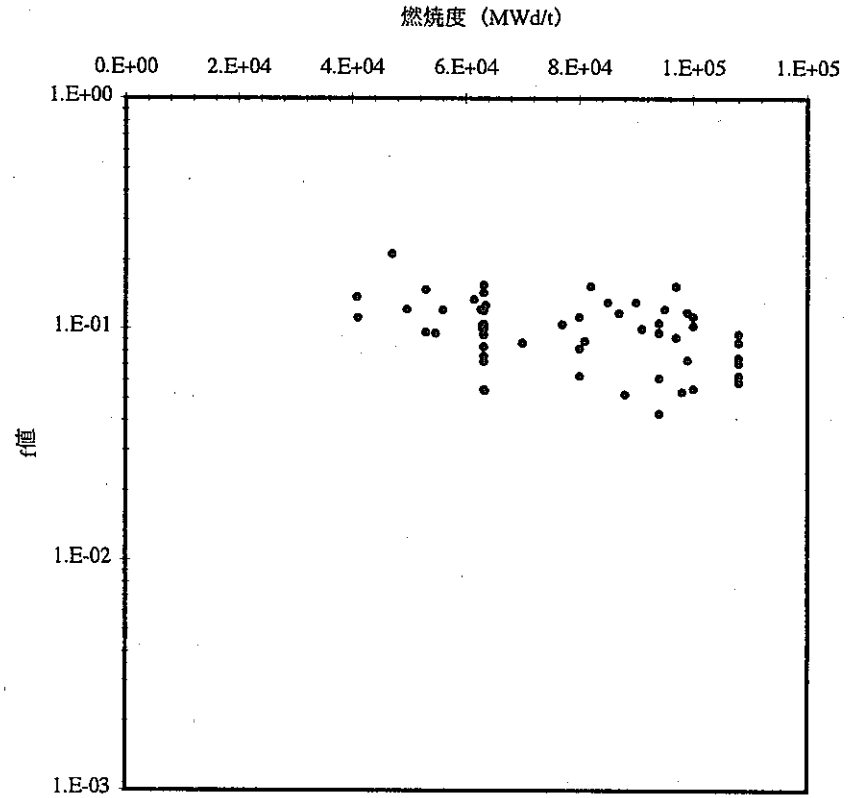


図4-6 高Pu富化MOX粉末を対象としたピーカースケール溶解試験結果 及び推定式による燃料溶解率の推定値



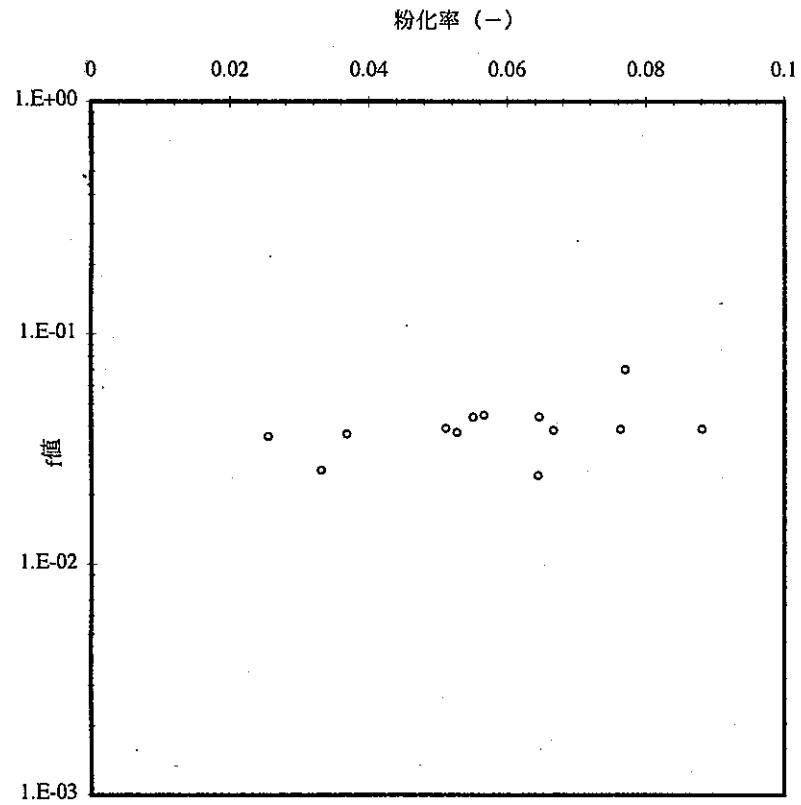
* 固液比及びf値の算出は別添8参照

図5-1 剪断片を対象とした回分式溶解試験における固液比とf値との関係



* f値の算出は別添9参照

図5-2 剪断片1片を対象とした溶解試験における燃焼度とf値との関係



* f値の算出は別添8参照

図5-3 ベンチスケール溶解試験における粉化率とf値との関係

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料
 Pu含有率：30%
 燃焼度：100,000MWd/t
 初期硝酸濃度：5M
 温度：100℃
 初期HM濃度：0g/L
 初期槽内液量：2L
 f=0.06

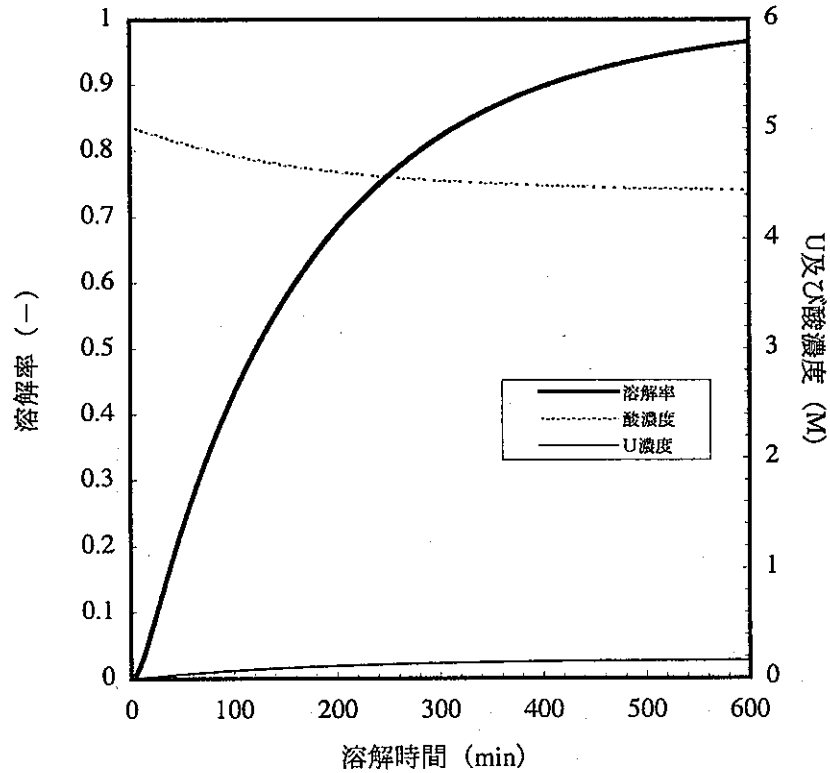


図6-1 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の槽内液量依存性(1)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料
 Pu含有率：30%
 燃焼度：100,000MWd/t
 初期硝酸濃度：5M
 温度：100℃
 初期HM濃度：0g/L
 初期槽内液量：1L
 f=0.03

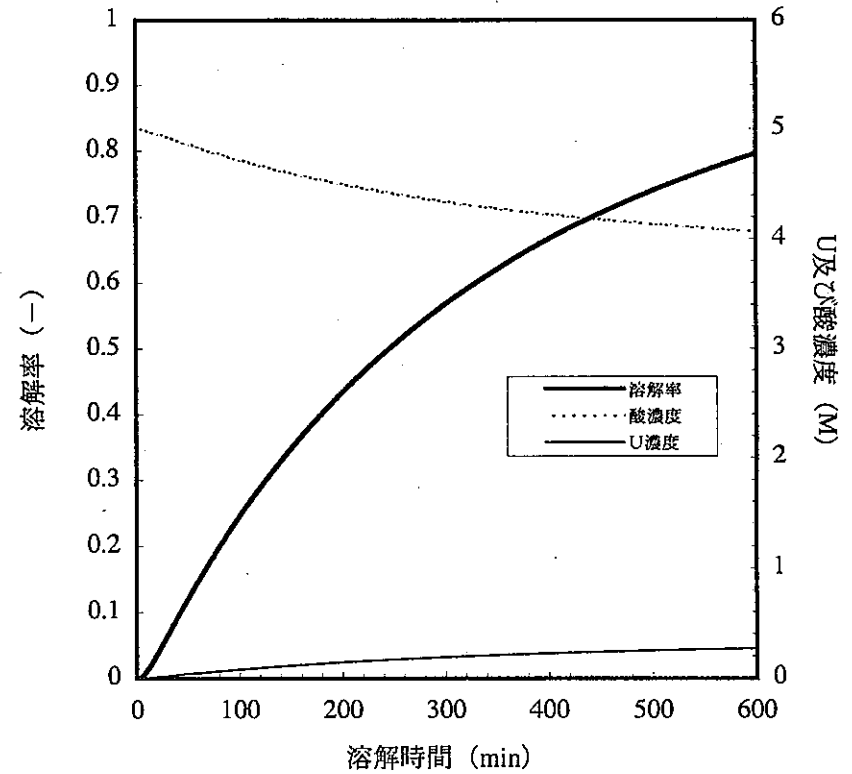


図6-1 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の槽内液量依存性(2)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料

Pu含有率：30%

燃焼度：100,000MWd/t

初期硝酸濃度：5M

温度：100℃

初期HM濃度：0g/L

初期槽内液量：0.2L

$f=0.015$

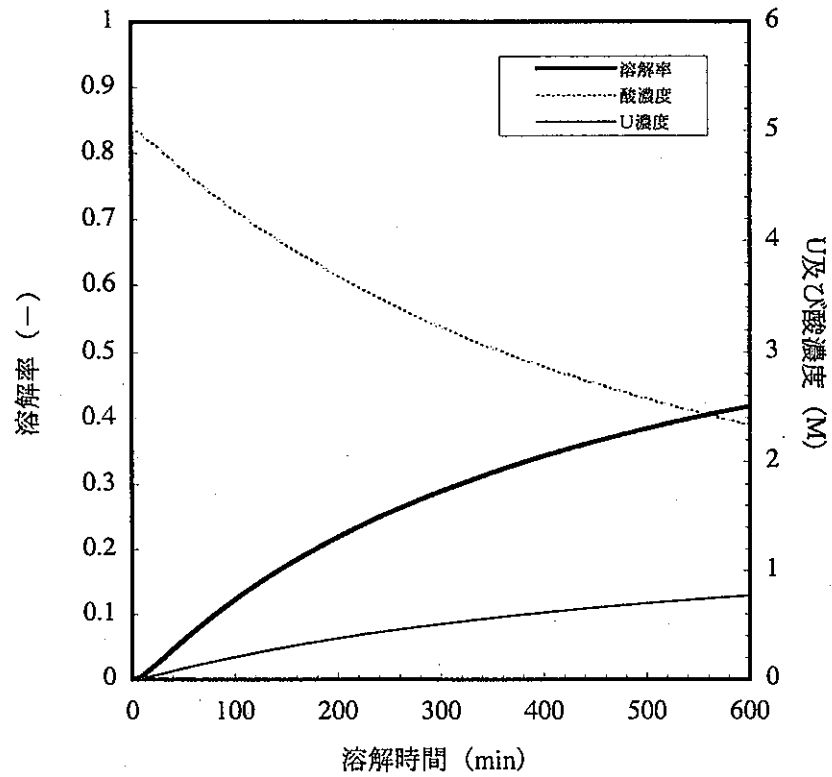


図6-1 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の槽内液量依存性(3)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料
 Pu含有率：30%
 燃焼度：100,000MWd/t
 初期硝酸濃度：8M
 温度：100℃
 初期HM濃度：0g/L
 初期槽内液量：0.2L
 $f=0.015$

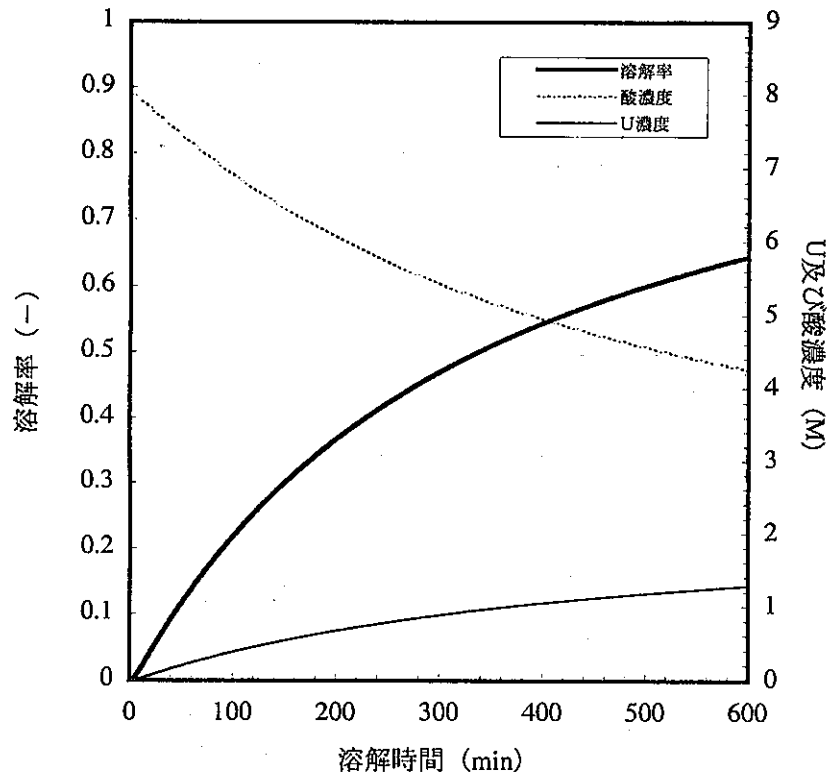


図6-2 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の硝酸濃度依存性(1)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料
 Pu含有率：30%
 燃焼度：100,000MWd/t
 初期硝酸濃度：13M
 温度：100℃
 初期HM濃度：0g/L
 初期槽内液量：0.2L
 $f=0.015$

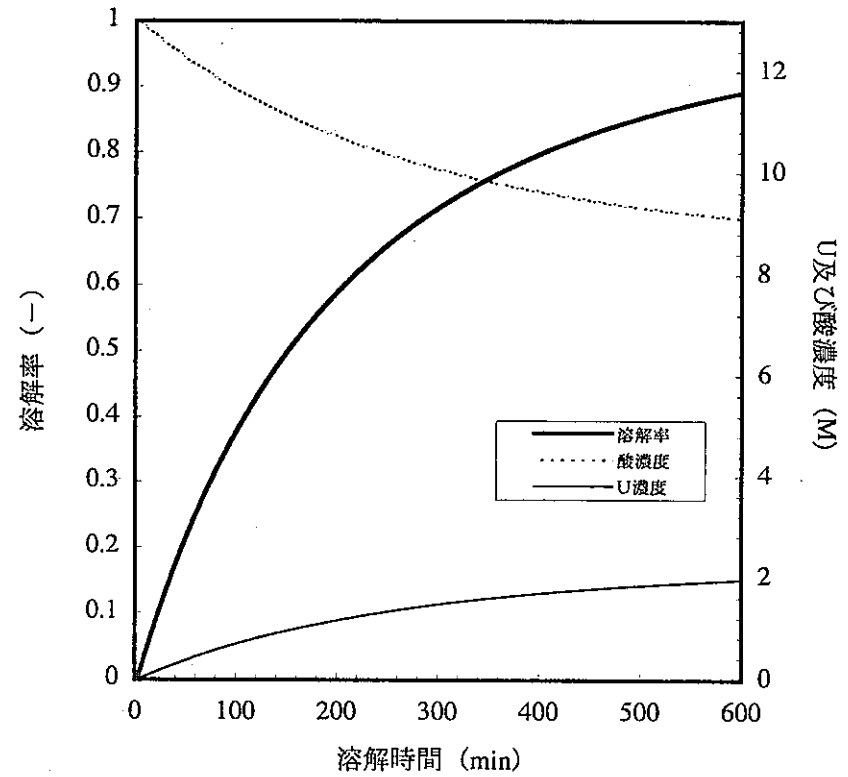


図6-2 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の硝酸濃度依存性(2)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料

Pu含有率：30%

燃焼度：100,000Mwd/t

初期硝酸濃度：8M

温度：90℃

初期HM濃度：0g/L

初期槽内液量：0.2L

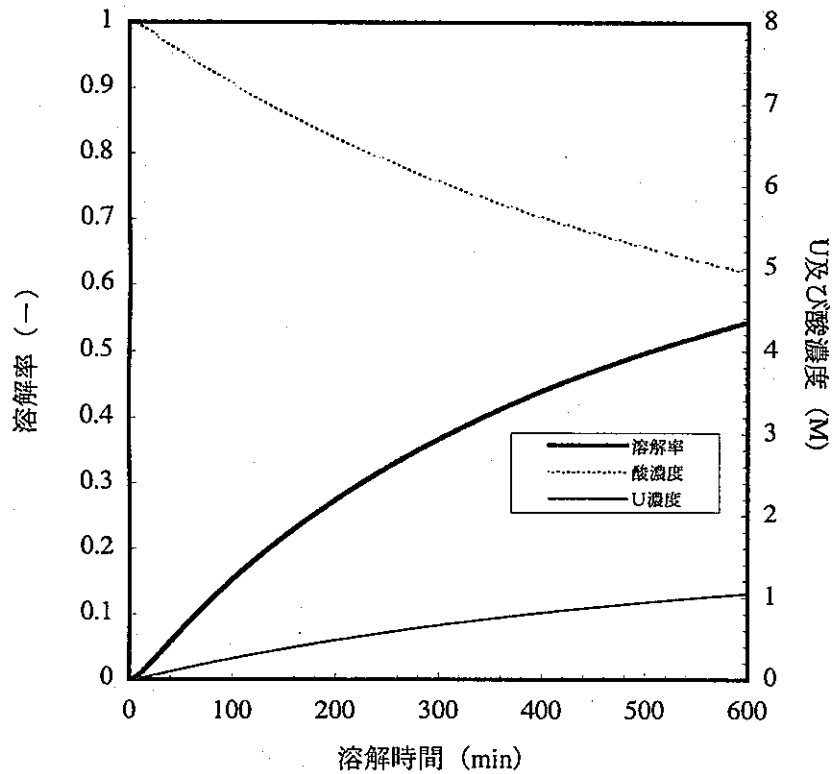
 $f=0.015$ 

図6-3 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の溶液温度依存性(1)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料

Pu含有率：30%

燃焼度：100,000Mwd/t

初期硝酸濃度：8M

温度：110℃

初期HM濃度：0g/L

初期槽内液量：0.2L

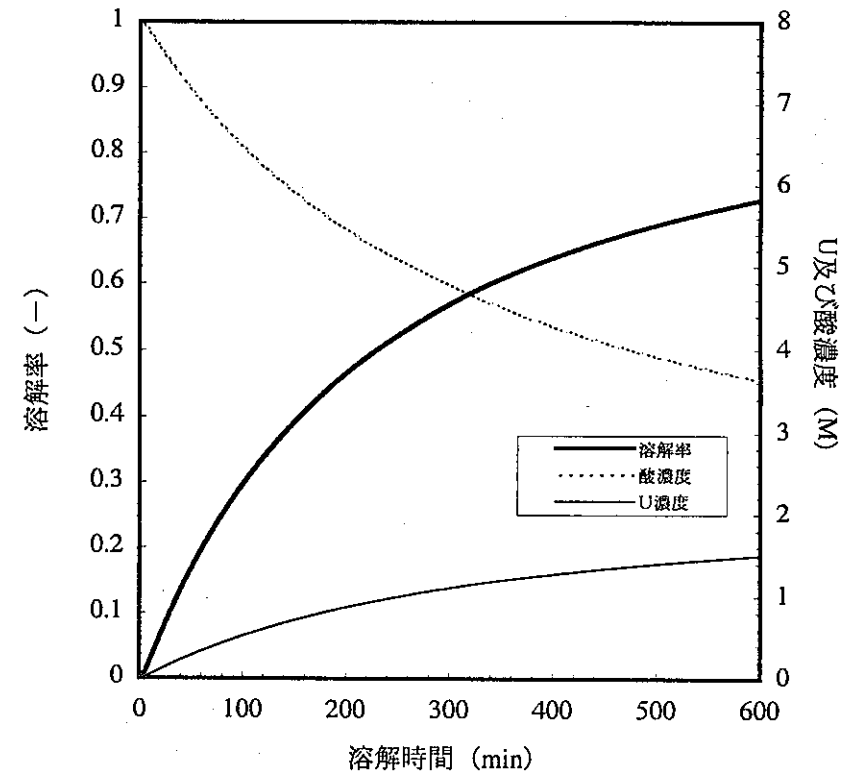
 $f=0.015$ 

図6-3 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の溶液温度依存性(2)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料
Pu含有率：30%
燃焼度：100,000MWd/t
初期硝酸濃度：8M
温度：100℃
初期HM濃度：100g/L
初期槽内液量：0.2L
f=0.015

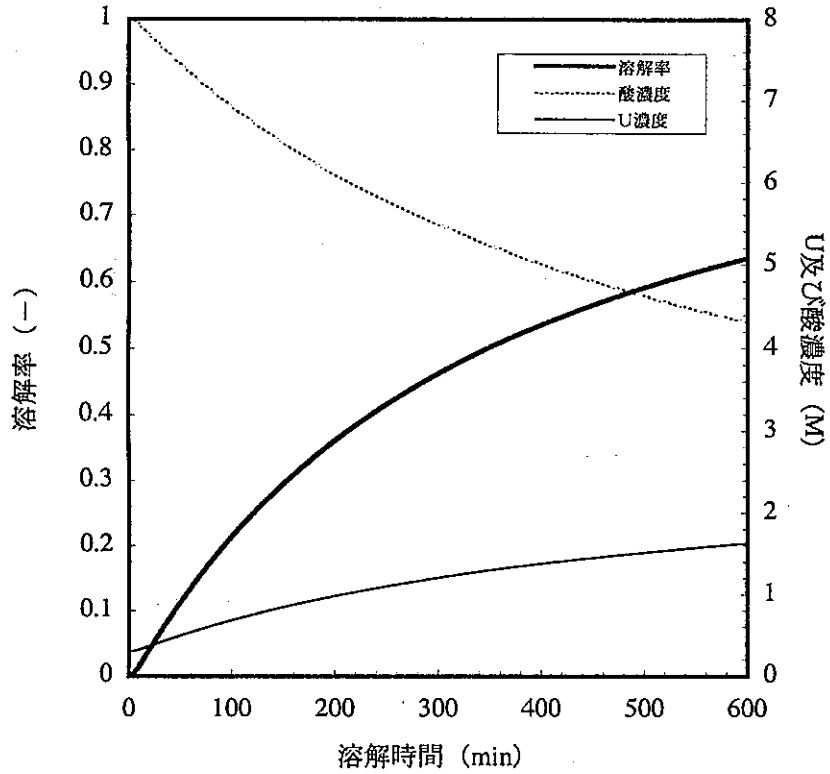


図6-4 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の初期HM濃度依存性(1)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料
Pu含有率：30%
燃焼度：100,000MWd/t
初期硝酸濃度：8M
温度：100℃
初期HM濃度：300g/L
初期槽内液量：0.2L
f=0.015

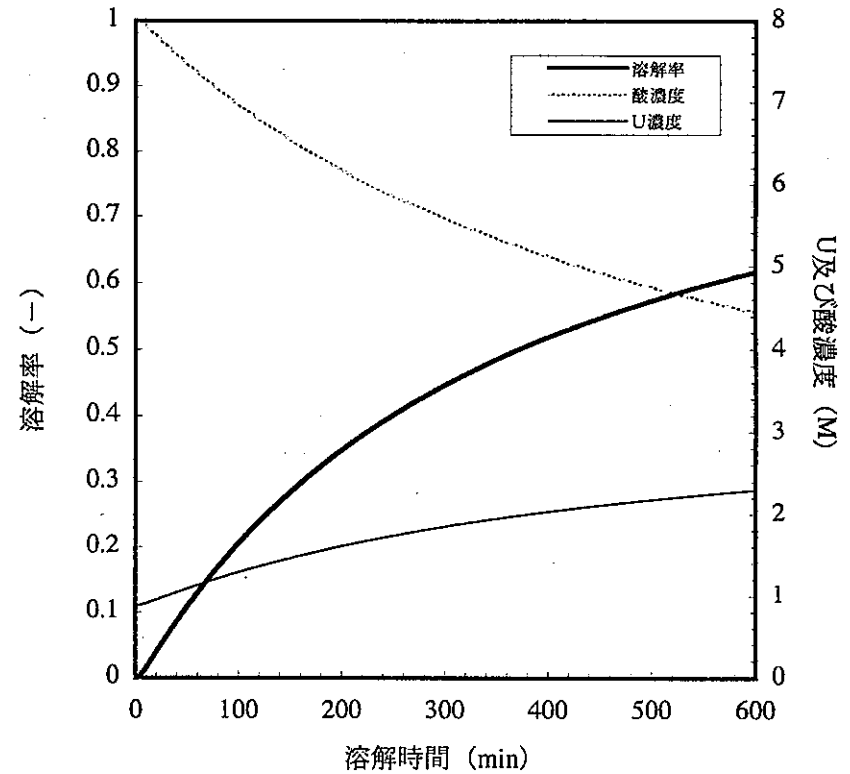


図6-4 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の初期HM濃度依存性(2)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料
 Pu含有率：30%
 燃焼度：60,000Mwd/t
 初期硝酸濃度：8M
 温度：100℃
 初期HM濃度：0g/L
 初期槽内液量：0.2L
 $f=0.015$

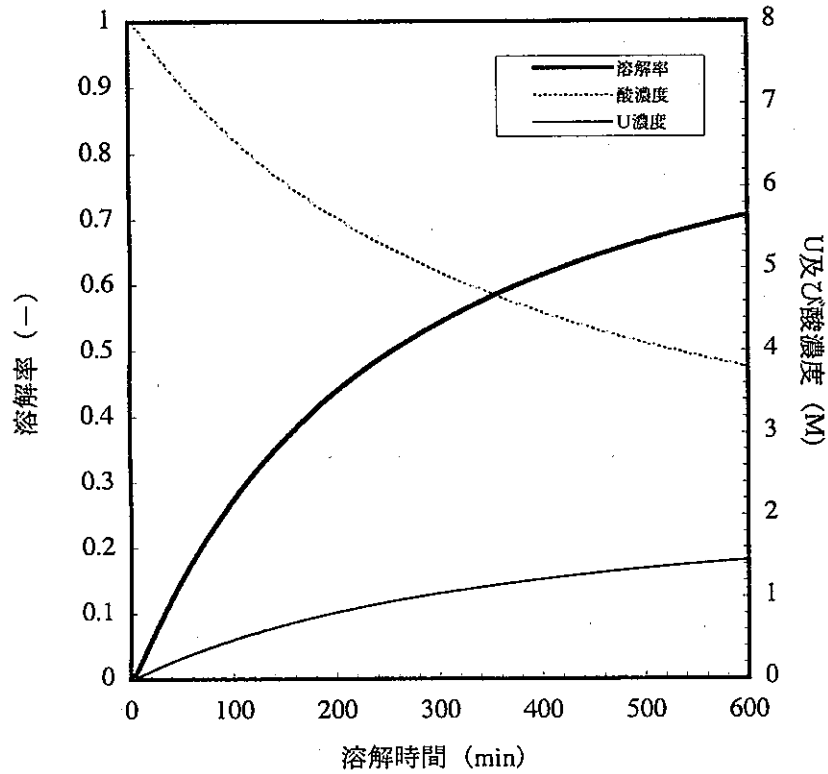


図6-5 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の燃焼度依存性(1)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料
 Pu含有率：30%
 燃焼度：150,000Mwd/t
 初期硝酸濃度：8M
 温度：100℃
 初期HM濃度：0g/L
 初期槽内液量：0.2L
 $f=0.015$

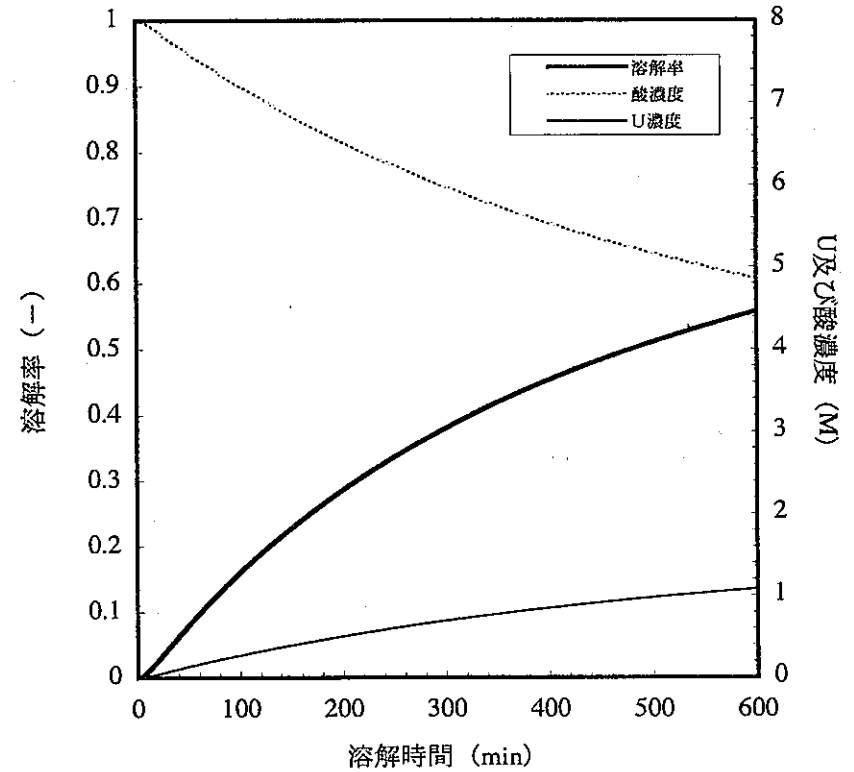


図6-5 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率の燃焼度依存性(2)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料
 Pu含有率：30%
 燃焼度：60,000MWd/t
 初期硝酸濃度：8M
 温度：100℃
 初期HM濃度：0g/L
 初期槽内液量：0.2L
 $f=0.04$

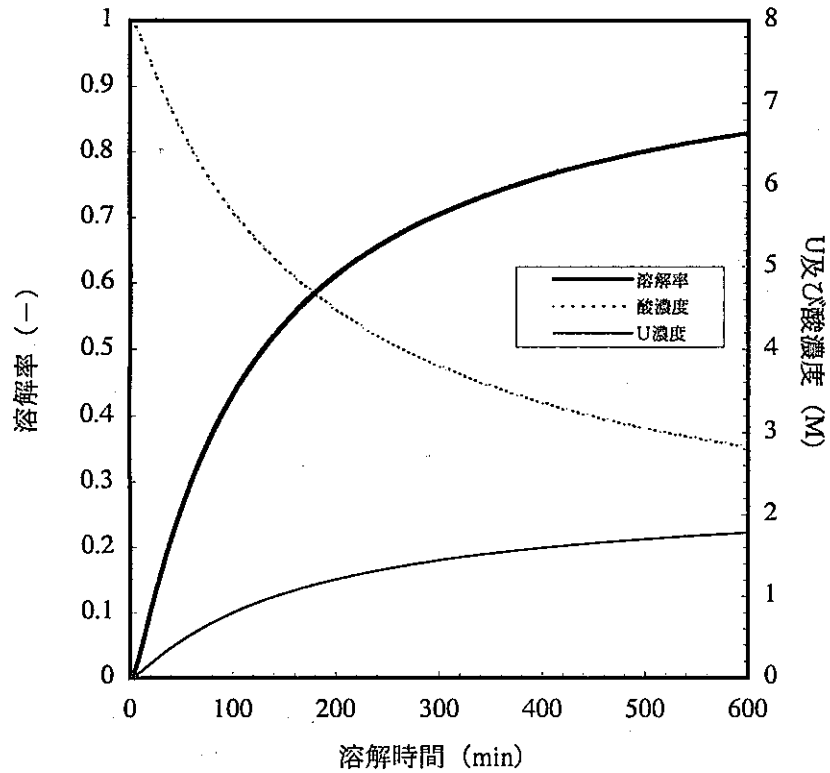


図6-6 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率のf値依存性(1)

高濃度溶解試験

燃料：常陽MK-IIC型特殊燃料
 Pu含有率：30%
 燃焼度：150,000MWd/t
 初期硝酸濃度：8M
 温度：100℃
 初期HM濃度：0g/L
 初期槽内液量：0.2L
 $f=0.08$

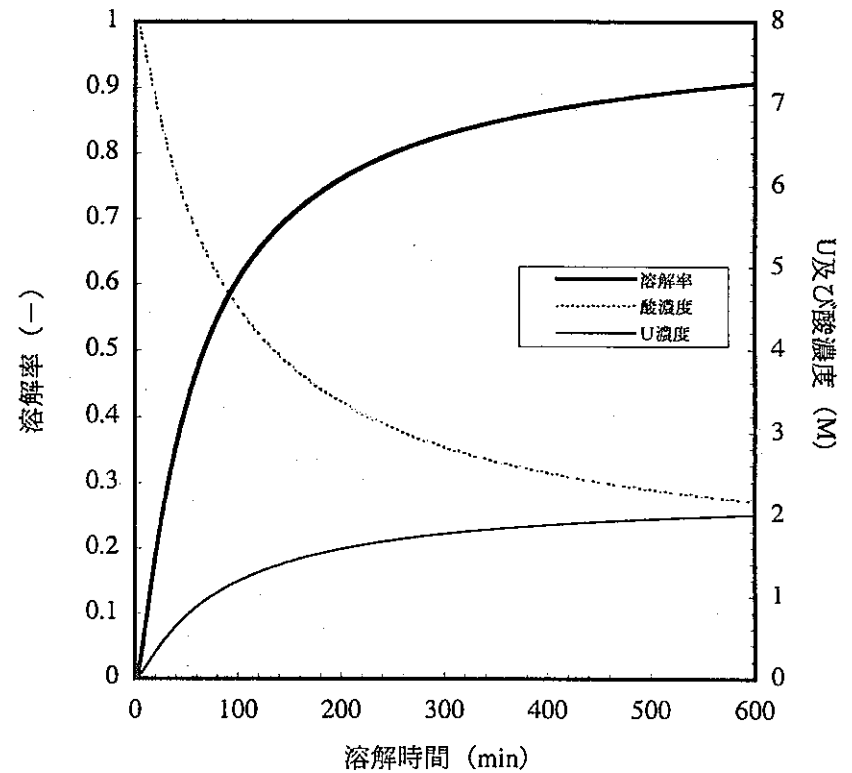


図6-6 常陽MK-IIC型特殊燃料を対象とした高濃度溶解試験における燃料溶解率のf値依存性(2)

ベンチスケール溶解試験 (RUN14) における燃料溶解率の算出 (f 値の決定)

fragmentation モデルにおいて、燃料の溶解率は以下の式で与えられる。

$$\frac{dW_d}{dt} = \frac{W_e}{\lambda} \quad (1-1)$$

$$\frac{dW_u}{dt} = -f \cdot \frac{W_e}{\lambda} \cdot \frac{W_u}{W_e} = -f \cdot \frac{W_u}{\lambda} \quad (1-2)$$

$$\frac{dW_e}{dt} = f \cdot \frac{W_u}{\lambda} - \frac{W_e}{\lambda} \quad (1-3)$$

ここで、

W_d : 溶解した燃料量

W_e : 硝酸に浸った部分の燃料重量

W_u : 硝酸に浸っていない部分の燃料重量

である。また、Pu 富化度 30% の燃料に対する λ の値は以下の式により与えられる。

$$\frac{1}{\lambda} = \exp(11.17) \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.32[\text{HM}])^{1.24} \cdot \exp\left(-\frac{5482}{T}\right) \quad (1-4)$$

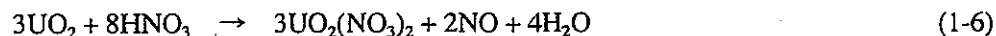
RUN14 における溶解対象燃料 (常陽 MK-II 炉心燃料) の照射履歴 (平均燃焼度 54,700Mwd/) から、(1-4)式は以下のように書き直せる。

$$\frac{1}{\lambda} = 48.3 \times 10^3 \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.32[\text{HM}])^{1.24} \cdot \exp\left(-\frac{5482}{T}\right) \quad (1-5)$$

溶液中の初期硝酸濃度、初期 HM (U+Pu) 濃度及び溶液温度から (1-5)式を用いて λ の値を算出し、これを(1-1)~(1-3)式へ代入することにより一定時間経過後の燃料の溶解量が算出される。

一方、燃料の溶解反応として、以下の反応式が同時に進行すると仮定する。

UO_2



PuO_2



(1-6)~(1-7)式より、燃料の溶解に伴う硝酸の消費量及び液量の変化を算出し、これより新たに得られる一定時間経過後の硝酸濃度及び HM 濃度を(1-5)式へ代入し、再度 λ の値の算出及び(1-1)~(1-3)式を用いた単位時間あたりの燃料溶解量の計算を行う。

計算にあたっては、RUN14 の試験条件に基づき、以下のような初期条件もしくは変動条件を設定した。

初期条件 (RUN14) (t=0)

W_d : 0

W_c : 0

W_u : 212.83 g

初期硝酸濃度 : 3.3 M

初期液量 : 2.9 L

溶液温度 : 25°C (1 分ごとに 1°C 温度上昇し、97°C に達した時点で一定とする)

f: パラメータ

硝酸の消費に伴う液量の変化については、25°C における硝酸の密度 1.502 g/cm³ (=2.38 × 10⁻² mol/cm³) を用いて算出した。

計算は、時間刻みを 1 分として MS-Excel を使用して実施した。

f 値については、実測された溶解率 d_{obs} と上述の計算より算出された溶解率 d_{cal} との差の自乗和 $\Sigma(d_{\text{obs}} - d_{\text{cal}})^2$ を最小とするよう、その値を決定した。

ベンチスケール溶解試験における燃料溶解率の算出 (Pu 含有率の影響評価)

fragmentation モデルにおいて、燃料の溶解率は以下の式で与えられる。

$$\frac{dW_d}{dt} = \frac{W_e}{\lambda} \quad (2-1)$$

$$\frac{dW_u}{dt} = -f \cdot \frac{W_e}{\lambda} \cdot \frac{W_u}{W_e} = -f \cdot \frac{W_u}{\lambda} \quad (2-2)$$

$$\frac{dW_e}{dt} = f \cdot \frac{W_u}{\lambda} - \frac{W_e}{\lambda} \quad (2-3)$$

ここで、

W_d : 溶解した燃料量

W_e : 硝酸に浸った部分の燃料重量

W_u : 硝酸に浸っていない部分の燃料重量

である。また、式中の λ の値は以下の式により与えられる。

$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.32[\text{HM}])^n \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (2-4)$$

ここで、

$$A = A_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{A_{0.3}}{A_0}\right) = A_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{7.10 \times 10^4}{A_0}\right) \quad (2-5)$$

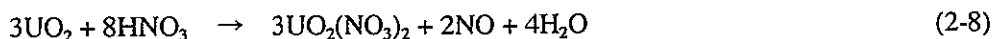
$$n = n_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{n_{0.3}}{n_0}\right) = n_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{1.24}{n_0}\right) \quad (2-6)$$

$$E = E_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{E_{0.3}}{E_0}\right) = E_0 \cdot \exp\left(\frac{m}{0.3} \cdot \ln \frac{45.6 \times 10^3}{E_0}\right) \quad (2-7)$$

溶解対象燃料の Pu 含有率 (Pu 混合率) m 、燃焼度 B 、溶液中の初期硝酸濃度、初期 HM (U+Pu) 濃度及び溶液温度から (2-4)~(2-7)式を用いて λ の値を算出し、これを(2-1)~(2-3)式へ代入することにより一定時間経過後の燃料の溶解量が算出される。

一方、燃料の溶解反応として、以下の反応式が同時に進行すると仮定する。

UO_2



PuO_2



(2-8)~(2-9)式より、燃料の溶解に伴う硝酸の消費量及び液量の変化を算出し、これより

新たに得られる一定時間経過後の硝酸濃度及び HM 濃度を(1-5)式へ代入し、再度 λ の値の算出及び(2-1)～(2-3)式を用いた単位時間あたりの燃料溶解量の計算を行う。

計算にあたっては、別表 2-1 に示すような初期条件もしくは変動条件を設定した。硝酸の消費に伴う液量の変化については、25℃における硝酸の密度 1.502 g/cm³ (=2.38×10⁻² mol/cm³) を用いて算出した。計算は、時間刻みを 1 分として MS-Excel を使用して実施した。

パラメータとした A_0 , E_0 値については、実測された溶解率 d_{obs} と上述の計算より算出された溶解率 d_{cal} との差の自乗和 $\Sigma(d_{obs} - d_{cal})^2$ を最小とするよう、その値を決定した。

別表2-1 ベンチスケール溶解試験での溶解率計算における初期条件

RUN NO.	W _d (g)	W _e (g)	W _o (g)	燃焼度 (MWd/t)	Pu含有率 (-)
1	0	0	579.9	4400	7.71E-02
4-1	0	0	285	40100	7.68E-02
4-2	0	0	285	40100	7.68E-02
4-3	0	0	283.9	40100	7.68E-02
4-4	0	0	286.2	40100	7.69E-02
5-1	0	0	479.6	40100	1.76E-01
5-2	0	0	664.3	40100	5.72E-03
6	0	0	261.3	13800	2.71E-01
7	0	0	261.3	13800	2.71E-01
8	0	0	238.1	31700	2.70E-01
9	0	0	160.41	52600	1.90E-01
13	0	0	336.8	54100	2.80E-01
14	0	0	212.83	54700	2.85E-01

RUN NO.	初期硝酸濃度 (M)	初期液量 (L)	溶液温度* (°C)
1	3.6	3.2	98
4-1	3.4	2.0	90
4-2	3.1	2.0	80
4-3	3.4	2.0	70
4-4	2.4	4.1	90
5-1	3.3	3.7	90
5-2	3.3	4.6	90
6	3.5	2.8	97
7	3.5	2.7	90
8	3.4	2.5	97
9	3.3	2.5	98
13	4.4	2.0	104
14	3.3	2.9	97

*25℃から1分ごとに1℃ずつ温度上昇し、設定温度に達した時点で一定とする。

ベンチスケール溶解試験 (RUN7) における燃料溶解率の算出

fragmentation モデルにおいて、燃料の溶解率は以下の式で与えられる。

$$\frac{dW_d}{dt} = \frac{W_e}{\lambda} \quad (3-1)$$

$$\frac{dW_u}{dt} = -f \cdot \frac{W_e}{\lambda} \cdot \frac{W_u}{W_e} = -f \cdot \frac{W_u}{\lambda} \quad (3-2)$$

$$\frac{dW_e}{dt} = f \cdot \frac{W_u}{\lambda} - \frac{W_e}{\lambda} \quad (3-3)$$

ここで、

W_d : 溶解した燃料量

W_e : 硝酸に浸った部分の燃料重量

W_u : 硝酸に浸っていない部分の燃料重量

である。また、式中の λ の値は以下の式により与えられる。

$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.32[\text{HM}])^n \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (3-4)$$

ここで、

$$A = 3.46 \times 10^{12} \cdot \exp(-58.8m) \quad (3-5)$$

$$n = 2 \cdot \exp(-1.59m) \quad (3-6)$$

$$E = 95.8 \times 10^3 \cdot \exp(-2.47m) \quad (3-7)$$

溶解対象燃料の Pu 含有率 m (Pu 混合率)、燃焼度 B 、溶液中の初期硝酸濃度、初期 HM (U+Pu) 濃度及び溶液温度から (3-4)~(3-7)式を用いて λ の値を算出し、これを(3-1)~(3-3)式へ代入することにより一定時間経過後の燃料の溶解量が算出される。

一方、表面積モデルに基づいた評価では、燃料の溶解率は以下の式で与えられる。

$$r = k \cdot S \cdot [\text{HNO}_3]^{1.74} \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (3-8)$$

ここで、

k : 反応速度定数 ($9.62 \times 10^6 \text{ mg/min/mol/l} \cdot \text{cm}^2$)

$$S = S_0 \cdot R_s \quad (3-9)$$

$$R_s = 1.0 - 0.6\chi + 2.7\chi^2 - 3.1\chi^3 \quad (\text{剪断片の反応表面積比}) \quad (3-10)$$

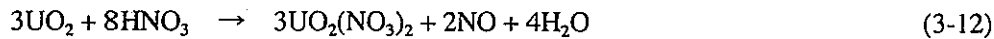
$$R_s' = 1.0 - 0.4\chi - 2.2\chi^2 + 0.9\chi^3 \quad (\text{燃料粉末の反応表面積比}) \quad (3-11)$$

溶解対象燃料の初期表面積 S_0 、溶液中の初期硝酸濃度、初期 HM (U+Pu) 濃度及び溶液

温度から(3-8)～(3-11)式を用いることにより一定時間経過後の燃料溶解量及び溶解率 χ が計算される。

燃料の溶解反応としては、以下の反応式が同時に進行すると仮定する。

UO₂



PuO₂



(3-12)～(3-13)式より、燃料の溶解に伴う硝酸の消費量及び液量の変化を算出し、fragmentation モデルにおいては、これより新たに得られる一定時間経過後の硝酸濃度及びHM濃度を(3-4)へ代入し、再度 λ の値の算出及び(3-1)～(3-3)式を用いた単位時間あたりの燃料溶解量の計算を行う。また、表面積モデルにおいては、得られた硝酸濃度及び溶解率 χ と(3-9)～(3-11)式から計算されるSの値を(3-8)式へ代入し、再度単位時間あたりの燃料溶解量及び溶解率 χ の計算を行う。

これらの計算にあたっては、以下のような初期条件もしくは変動条件を設定した。

初期条件 (RUN7) (t=0)

W_d: 0 ($\chi = 0$)

W_e: 0

W_u: 261.3 g

Pu 富化度 (Pu 混合率) : 0.27

燃焼度 : 13800 MWd/t

初期硝酸濃度 : 3.5 M (溶解開始後 4 時間後、13.4MHNO₃ を 100ml 追加)

初期液量 : 2.7 L

溶液温度 : 25°C (1 分ごとに 1°C 温度上昇し、90°C に達した時点で一定とする)

初期表面積 : 20.6 cm² (剪断片の開口部を $\phi 4.8$ とし、全剪断片数 57 片×2 (剪断片両端) について算出)。粉末燃料は無視し、すべて剪断片として取り扱う。

f 値 : 0.037

硝酸の消費に伴う液量の変化については、25°C における硝酸の密度 1.502 g/cm³ (=2.38×10⁻² mol/cm³) を用いて算出した。計算は、時間刻みを 1 分として MS-Excel を使用して実施した。

ビーカースケール溶解試験 (RUN21-1) における燃料溶解率の算出

fragmentation モデル及び表面積モデルによる計算は、別添 3 に示す内容と同様な手順により進めた。計算にあたっては、以下のような初期条件もしくは変動条件を設定した。

初期条件 (RUN21-1) (t=0)

$W_d : 0$ ($\chi = 0$)

$W_e : 0$

$W_u : 97.11$ g

Pu 含有率 : 0.267

燃焼度 : 102000 MWd/t

初期硝酸濃度 : 5.37 M

初期液量 : 0.5 L

溶液温度 : 100°C

初期表面積 : 9.72 cm² (剪断片の開口部を $\phi 5.56$ とし、剪断片数 21 片 \times 2 (剪断片両端) 及び剪断片数 2 片 (剪断片片端は反射体により閉塞) について算出)。

f 値 : 0.023 (下記参照)

硝酸の消費に伴う液量の変化については、25°Cにおける硝酸の密度 1.502 g/cm³ (=2.38 \times 10⁻² mol/cm³) を用いて算出した。計算は、時間刻みを 1 分として MS-Excel を使用して実施した。

f 値は、同じ溶解槽を使用し、ほぼ硝酸の攪拌及び燃料への浸透条件が同程度と考えられる溶解試験結果 (RUN21-2) に対して、本文中の(16)~(20)式における f の値をパラメータとした非線形最小自乗計算を行うことにより算出した。RUN21-2 における試験条件 (計算初期条件) は以下のとおりである。

初期条件 (RUN21-2) (t=0)

$W_d : 0$ ($\chi = 0$)

$W_e : 0$

$W_u : 97.11$ g

Pu 含有率 : 0.267

燃焼度 : 97230 MWd/t

初期硝酸濃度 : 8.5 M

初期液量 : 0.5 L

溶液温度 : 100°C

初期表面積：9.72 cm²（剪断片の開口部をφ5.56 とし、剪断片数 21 片×2（剪断片両端）及び剪断片数 2 片（剪断片片端は反射体により閉塞）について算出）。

別図 4-1 に RUN21-2 における燃料溶解率の実測値及び本文中(15)～(21)式中の f の値をパラメータとして実施した非線形最小自乗法より計算された溶解曲線を示す。計算は前述（RUN21-1）の内容と同様の手順により行った。

本計算の結果、図中に示すように、実測された溶解率 d_{obs} と計算より算出された溶解率 d_{cal} との差の自乗和 $\Sigma(d_{\text{obs}} - d_{\text{cal}})^2$ を最小とする f の値として 0.023 が得られた。

RUN21-2

燃料：常陽MK-II C型特殊燃料

Pu含有率（混合率）：26.7%

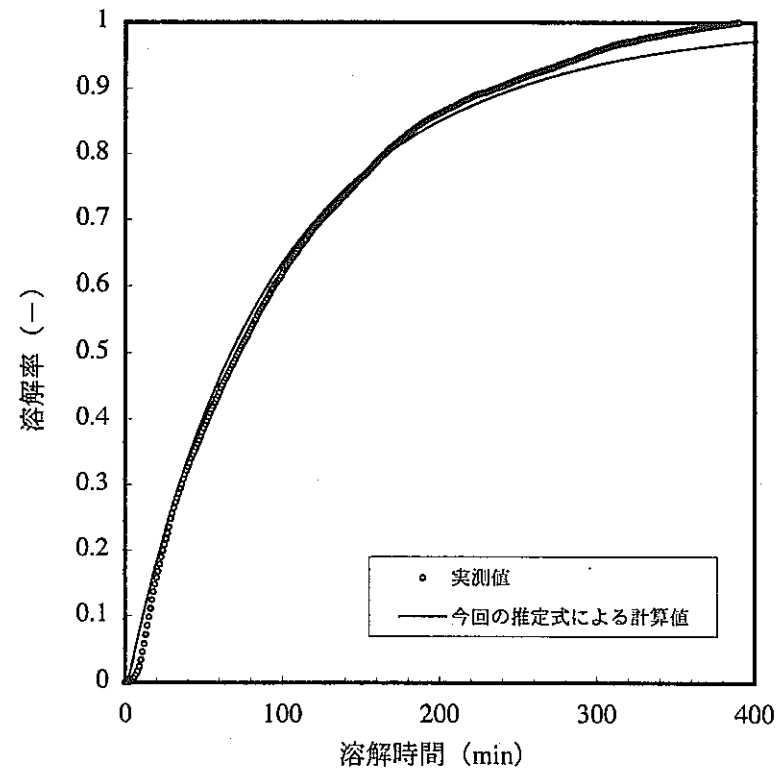
燃焼度：97,230MWd/t

初期硝酸濃度：8.5M

温度：100℃

初期液量：0.5L

$f=0.023$



別図4-1 常陽MK-II C型特殊燃料を対象としたピーカースケール溶解試験結果及び推定式による燃料溶解率の推定値

模擬連続溶解試験 (RUN19) における燃料溶解率の算出

fragmentation モデル及び表面積モデルによる計算は、別添 3 に示す内容と同様な手順により進めた。計算にあたっては、以下のような初期条件もしくは変動条件を設定した。

初期条件 (RUN19) (t=0)

$W_d : 0$ ($\chi = 0$)

$W_e : 0$

$W_u : 194.22$ g

Pu 含有率 : 0.27

燃焼度 : 100,130 MWd/t

供給硝酸濃度 : 5.4 M (0~6.0h)、8.0 M (6.0~7.5h)、7.8 M (7.5~8.5h)

硝酸供給及び抜出速度 : 420 ml/h

槽内液量 : 0.15 L

溶液温度 : 100°C

初期表面積 : 19.44 cm² (剪断片の開口部をφ5.56 とし、剪断片数 38 片×2 (剪断片両端) 及び剪断片数 4 片 (剪断片片端は反射体により閉塞) について算出)。

f 値 : 0.023 (同じ溶解槽を用いて実施された回分式溶解試験 (RUN21) より得られた f の値を使用) (別添 4 参照)

硝酸の消費に伴う液量の変化については、25°Cにおける硝酸の密度 1.502 g/cm³ (=2.38×10⁻² mol/cm³) を用いて算出した。計算は、時間刻みを 1 分として MS-Excel を使用して実施した。

未照射 U ペレット溶解試験（ビーカースケール試験）における燃料溶解率の算出

fragmentation モデルによる計算は、別添 3 に示す内容と同様な手順により進めた。計算にあたっては、以下のような初期条件もしくは変動条件を設定した。

初期条件 (RUN16U) (t=0)

W_d : 0

W_e : 0

W_u : 29.09 g (14.5φ×20 天然 U ペレット)

Pu 含有率: -

燃焼度: -

初期硝酸濃度: 6.06 M

槽内液量: 0.5 L

溶液温度: 95°C

f 値: 3.67×10^{-3} (下記参照)

硝酸の消費に伴う液量の変化については、25°Cにおける硝酸の密度 $1.502 \text{ g/cm}^3 (=2.38 \times 10^{-2} \text{ mol/cm}^3)$ を用いて算出した。計算は、時間刻みを 0.2 分として MS-Excel を使用して実施した。

f 値は、同じ溶解槽を使用し、ほぼ硝酸の攪拌及び燃料への浸透条件が同程度と考えられる溶解試験結果 (RUN6U とする) に対して、本文中の(16)~(20)式における f の値をパラメータとした非線形最小自乗計算を行うことにより算出した。本溶解試験における試験条件 (計算初期条件) は以下のとおりである。

初期条件 (RUN6U) (t=0)

W_d : 0

W_e : 0

W_u : 29.27 g (14.5φ×20 天然 U ペレット)

Pu 含有率: -

燃焼度: -

初期硝酸濃度: 5.02 M

初期液量: 0.5 L

溶液温度: 95°C

別図 6-1 に RUN6U における燃料溶解率の実測値及び本文中(16)~(20)式中の f の値をパラメータとして実施した非線形最小自乗法より計算された溶解曲線を示す。計算は前述の

内容と同様の手順により行った。

本計算の結果、図中に示すように f の値として 3.40×10^3 が得られた。

RUN6U

燃料：未照射Uペレット (14.5φ×20)

Pu含有率(混合率)：-

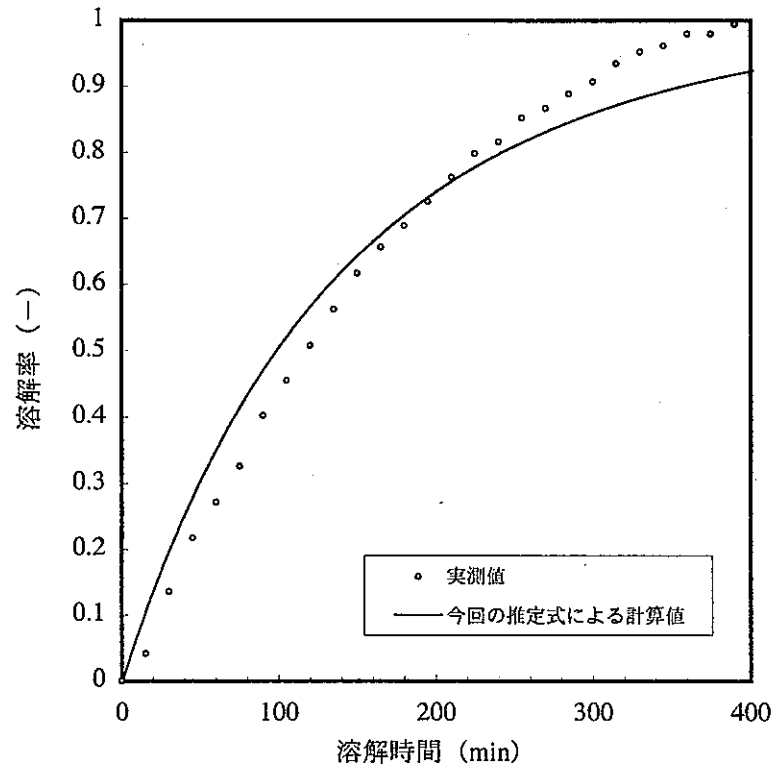
燃焼度：-

初期硝酸濃度：5.02M

温度：95℃

初期液量：0.5L

$$f=3.40 \times 10^{-3}$$



別図6-1 未照射Uペレットを対象としたピーカースケール溶解試験結果及び推定式による燃料溶解率の推定値

高 Pu 富化 MOX 燃料粉末溶解試験（ピーカースケール試験）における燃料溶解率の算出

fragmentation モデルによる計算は、別添 3 に示す内容と同様な手順により進めた。計算にあたっては、以下のような初期条件もしくは変動条件を設定した。

Pu 富化度 30 %燃料粉末に対する初期条件 (RUN14Pu) (t=0)

W_d : 0

W_e : 0

W_u : 25.56g

Pu 含有率 : 0.297

燃焼度 : -

初期硝酸濃度 : 7.2 M

槽内液量 : 0.1L

溶液温度 : 70°C (30 分間 70°C に保持した後、5°C/min で 107°C (沸点) まで加温。

その後 107°C (沸点) で保持)

f 値 : 1 (粉末燃料に対する値)

Pu 富化度 40 %燃料粉末に対する初期条件 (RUN11Pu) (t=0)

W_d : 0

W_e : 0

W_u : 25.33 g

Pu 含有率 : 0.399

燃焼度 : -

初期硝酸濃度 : 7.2 M

槽内液量 : 0.1L

溶液温度 : 70°C (30 分間 70°C に保持した後、5°C/min で 107°C (沸点) まで加温。

その後 107°C (沸点) で保持)

f 値 : 1 (粉末燃料に対する値)

Pu 富化度 45 %燃料粉末に対する初期条件 (RUN8Pu) (t=0)

W_d : 0

W_e : 0

W_u : 25.27 g

Pu 含有率 : 0.449

燃焼度 : -

初期硝酸濃度 : 7.2 M

槽内液量 : 0.1L

溶液温度 : 70°C (30 分間 70°Cに保持した後、5°C/min で 107°C (沸点) まで加温。

その後 107°C (沸点) で保持)

f 値 : 1 (粉末燃料に対する値)

Pu 富化度 50 %燃料粉末に対する初期条件 (RUN5Pu) (t=0)

W_d : 0

W_e : 0

W_u : 25.27 g

Pu 含有率 : 0.486

燃焼度 : -

初期硝酸濃度 : 7.2 M

槽内液量 : 0.1L

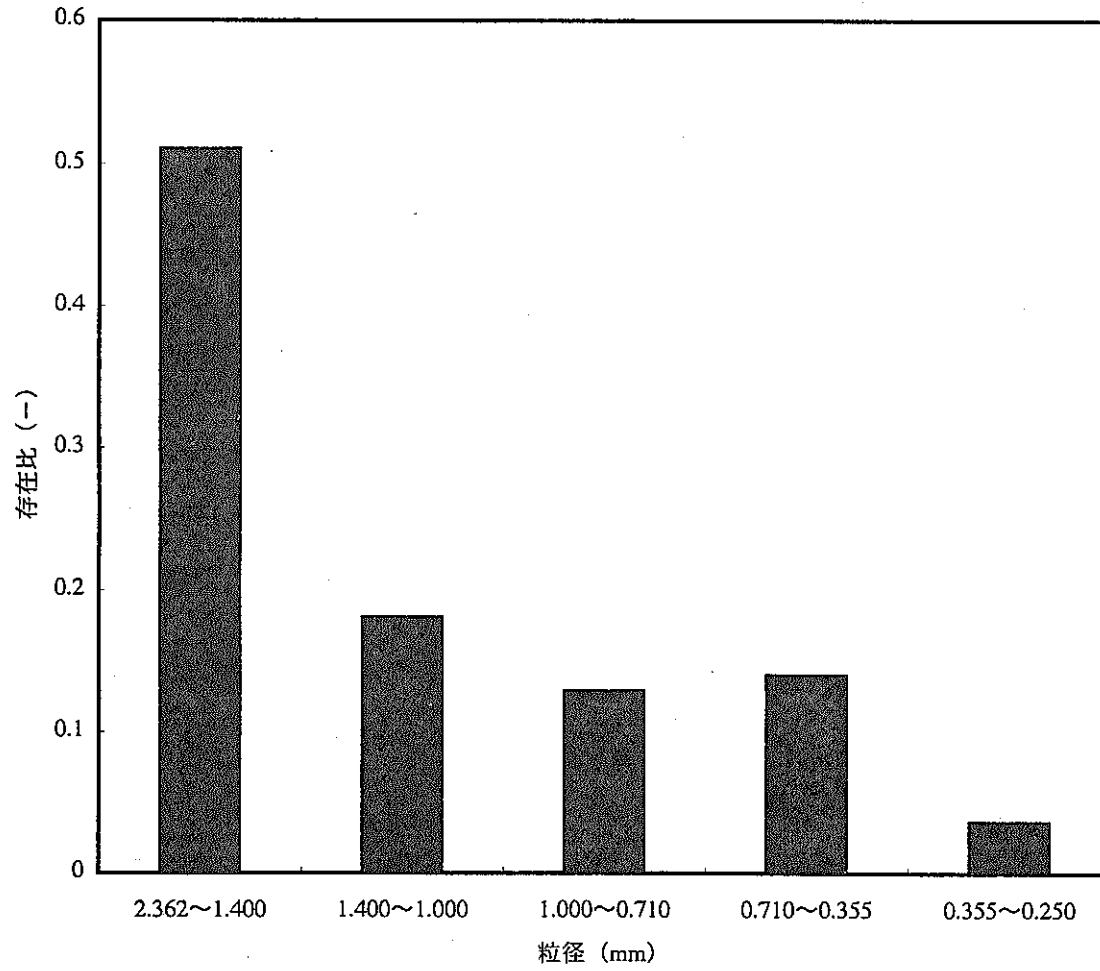
溶液温度 : 70°C (30 分間 70°Cに保持した後、5°C/min で 107°C (沸点) まで加温。

その後 107°C (沸点) で保持)

f 値 : 1 (粉末燃料に対する値)

硝酸の消費に伴う液量の変化については、25°Cにおける硝酸の密度 $1.502 \text{ g/cm}^3 (=2.38 \times 10^{-2} \text{ mol/cm}^3)$ を用いて算出した。計算は、時間刻みを 0.2 分として MS-Excel を使用して実施した。

なお、本試験で使用している燃料粉末の粒度分布は別図 7-1 に示すようになっている。



別図7-1 高Pu富化MOX燃料粉末の粒度分布

溶解槽中における固液比の算出及び f 値の最適化

溶解槽中における固液比は以下の式により算出した。

$$\text{固液比} = \frac{\text{溶解槽中の溶液量}}{\text{溶解槽中の剪断片体積}}$$

$$= \frac{\text{溶解槽中の溶液量}}{\left(\frac{\text{剪断片の外径}}{2}\right)^2 \times \pi \times \text{剪断片長さ} \times \text{剪断片個数}}$$

表 3-2 及び 3-6 に各溶解試験で使用した剪断片の外径、個数及び剪断片体積を示す。なお、剪断片の長さはすべての試験において 3cm としている。

f 値については、前章までにおいて決定された剪断片 1 片及び複数の剪断片を対象とした溶解に対する f 値について、それぞれ以下に示す手順により最適化を図った。

剪断片 1 片を対象とした溶解試験

剪断片 1 片を対象とした溶解試験では、溶解反応中の硝酸濃度、溶液温度及び HM 濃度の変化を無視した際に fragmentation モデルより得られる以下の式を用い、実測値に対して、f 値をパラメータとした非線形最小自乗計算を行うことにより f 値を最適化した。

$$\frac{W_c}{W_0} = 1 + \left\{ \frac{1}{1-f} \right\} (1-C) \left\{ \exp\left(-\frac{t}{\lambda}\right) - \left(\frac{1}{f}\right) \exp\left(-\frac{ft}{\lambda}\right) \right\} - C \exp\left(-\frac{t}{\lambda}\right) \quad (8-1)$$

但し、

$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot \exp(-7.03 \times 10^{-6} \cdot B) \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.32[\text{HM}])^n \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (8-2)$$

$$A = 3.46 \times 10^{12} \cdot \exp(-58.8m) \quad (8-3)$$

$$n = 2 \cdot \exp(-1.59m) \quad (8-4)$$

$$E = 95.8 \times 10^3 \cdot \exp(-2.47m) \quad (8-5)$$

各記号の意味は本文 3.9 を参照。

C の値（溶解開始時に硝酸に浸っている燃料部分の割合）は 0 として計算を行った。

上式より計算された溶解率 d_{cal} と実測された溶解率 d_{obs} との差の自乗和 $\Sigma(d_{\text{obs}} - d_{\text{cal}})^2$ を最小とするよう、f 値を決定した。各試験について得られた f の値を表 3-2 に記す。

複数の剪断片を対象とした溶解試験

複数の剪断片を対象とした溶解試験では、溶解反応中の硝酸濃度、溶液温度及び HM 濃度の変化を考慮し、基本的に別添 3 に示す fragmentation モデルに基づいた計算手順に従い燃料溶解率を算出した。溶解率の計算は f 値をパラメータとして実施し、計算された溶解率

d_{cal} と実測された溶解率 d_{obs} との差の自乗和 $\Sigma(d_{\text{obs}} - d_{\text{cal}})^2$ を最小とするよう、 f 値を決定した。
各試験について得られた f の値を表 3-6 に記す。

剪断片を対象とした溶解試験における f 値に及ぼす燃焼度の影響評価

剪断片を対象に実施された溶解試験の中で、硝酸濃度、溶解温度、初期 HM 濃度及び燃焼度の値がすべて明らかであり、かつ初期 HM 濃度が 0 の条件下で行われた試験（全 45 試験）より得られた λ の値（本文 3.4 及び 3.5 参照）から、重回帰分析により硝酸濃度、溶解温度の影響を算出した。重回帰式としては(22)式に基づき以下の式を仮定した。

$$\ln\left(\frac{1}{\lambda}\right) = \ln(A) + n \cdot \ln[\text{HNO}_3] - \frac{E}{RT} \quad (9-1)$$

別表 9-1 に重回帰分析の結果を示す。この結果から、 λ の値を与える式として以下の式が得られる。

$$\frac{1}{\lambda} = 7.96 \times 10^3 \cdot ([\text{HNO}_3] + a[\text{HM}])^{1.22} \cdot \exp\left(-\frac{9.6 \times 10^3}{RT}\right) \quad (9-2)$$

本式を用いて、初期 HM 濃度が 0 以外の条件下で行われた試験（全 12 試験）より得られた λ の値（本文 3.6 参照）から、最小自乗法により初期 HM 濃度の影響を算出した。別表 9-2 に (9-2) 式中の a の値をパラメータとして実施した最小自乗法の結果を示す。この結果から、 λ の値を与える式として最終的に以下の式が得られる。

$$\frac{1}{\lambda} = 7.96 \times 10^3 \cdot ([\text{HNO}_3] - 0.55[\text{HM}])^{1.22} \cdot \exp\left(-\frac{9.6 \times 10^3}{RT}\right) \quad (9-3)$$

(9-3)式及び溶解反応中の硝酸濃度、溶液温度及び HM 濃度の変化を無視した際に fragmentation モデルより得られる以下の式を用い、剪断片を対象に実施された溶解試験において得られた実測値に対して、f 値をパラメータとした非線形最小自乗計算を行うことにより f 値を最適化した。

$$\frac{W_e}{W_0} = 1 + \left\{ \frac{1}{1-f} \right\} (1-C) \left\{ \exp\left(-\frac{t}{\lambda}\right) - \left(\frac{1}{f}\right) \exp\left(-\frac{ft}{\lambda}\right) \right\} - C \exp\left(-\frac{t}{\lambda}\right) \quad (9-4)$$

W_e は時間 t までに溶解した燃料重量、 W_0 は燃料の初期重量である。なお、C の値（溶解開始時に硝酸に浸っている燃料部分の割合）は 0 として計算を行った。

(9-3)及び(9-4)式より計算された溶解率 d_{cal} と実測された溶解率 d_{obs} との差の自乗和 $\Sigma(d_{\text{obs}} - d_{\text{cal}})^2$ を最小とするよう、f 値を決定した。各試験について得られた f の値を別表 9-3 に記す。

得られた f 値と燃焼度 B との関係は図 5-2 に示すように以下の近似式で与えられるものと考えられる。

$$f = A \cdot \exp(b \cdot B) \quad (9-5)$$

本式は以下のように書き換えられる。

$$\ln(f) = \ln(A) + b \cdot B \quad (9-6)$$

本式を用いて、回帰計算により A 及び b の値を算出した。結果を別表 9-4 に示す。

別表9-1 重回帰分析による硝酸濃度及び温度の影響評価

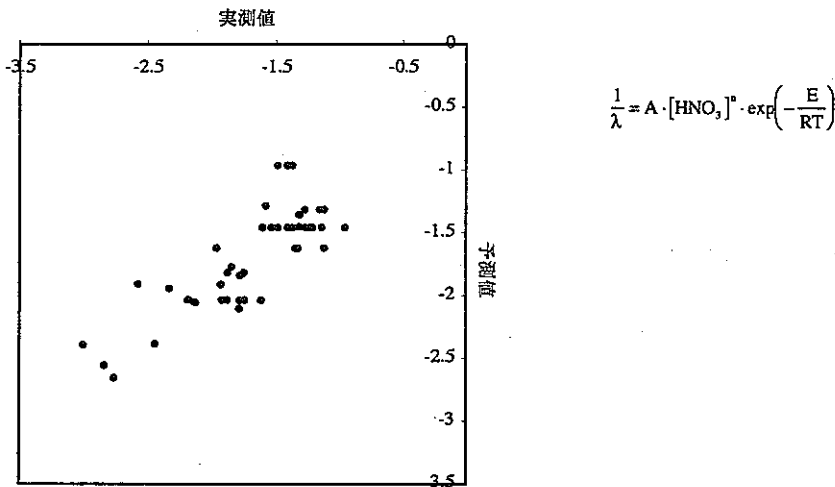
概要

回帰統計	
重相関 R	0.817481374
重決定 R2	0.668275798
補正 R2	0.652479407
標準誤差	0.28864992
観測数	45

分散分析表

	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	2	7.049701792	3.524850896	42.30560099	8.63615E-11
残差	42	3.499388596	0.083318776		
合計	44	10.54909039			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限 95%	上限 95%	下限 95.0%	上限 95.0%
ln(A)	8.981584746	4.198062675	2.139459422	0.038254777	0.509548594	17.4536209	0.509548594	17.4536209
n (硝酸濃度依存性)	1.222138928	0.13705368	8.917228091	3.05919E-11	0.945553316	1.49872454	0.945553316	1.49872454
E (温度依存性)	-4842.742018	1571.470996	-3.081661723	0.003626447	-8014.099886	-1671.38415	-8014.099886	-1671.38415



別表9-2 最小自乗法によるHM濃度の影響算出

試験 RUN NO.	λ値 (min)	t値	1/λ	硝酸濃度 [M]	溶解温度 (°C)	初期HM濃度 (M)	予測される 1/λ	残差の自乗
12-1	5.667640931	0.1	0.176440253	5	108	0.50	0.16	5.99E-04
12-2	9.149712317	0.1	0.109293054	5	108	0.50	0.16	1.38E-03
12-3	7.236114447	0.1	0.138195714	5	108	0.50	0.16	5.21E-05
12-31	6.401402272	0.1	0.156215772	5	104	0.54	0.14	1.33E-03
12-32	9.958039289	0.1	0.100421375	4.85	106	1.12	0.13	8.70E-05
12-33	9.958039257	0.1	0.100421376	4.85	95	0.53	0.10	2.30E-04
12-34	12.04255787	0.1	0.083038837	4.91	93	0.52	0.09	3.31E-05
13-5	22.75812943	0.1	0.043940342	5	85.4	0.55	0.07	8.53E-04
13-6	9.77185124	0.1	0.102334755	5	100.3	0.50	0.12	6.23E-04
13-7	12.36137119	0.1	0.080897174	3	100.1	1.01	0.05	5.25E-04
13-8	9.040968733	0.1	0.110607616	5	100.1	1.34	0.11	2.87E-06
13-11	6.620546652	0.1	0.151044929	4.8	105	0.00	0.15	6.98E-06

a (HM濃度依存性) = -0.55
残差の自乗和 = 2.27E-03

$$\frac{1}{\lambda} = \exp(8.98) \cdot ([HNO_3] + a[HM])^{1.22} \cdot \exp\left(-\frac{4843}{T}\right)$$

別表9-3 剪断片を対象とした溶解試験条件とλ値及び最適化されたf値

試験 RUN NO.	燃料種類*	剪断片数 (片)	燃焼度 (MWd/t)	燃料装荷量 (g)	Pu/(U+Pu) (-)	硝酸濃度 (M)		液量 (L)		溶解温度 (°C)	HM濃度 (g/l)		λ値	f値**
						初期	終期	初期	終期		初期	終期		
12-1	P	1	80000	6.3	0.295	5	4.73	0.5	0.5	108	120	127	5.67	1.12E-01
12-2	P	1	94000	6.2	0.295	5	4.78	0.5	0.49	108	120	128	9.15	6.14E-02
12-3	P	1	108000	5.7	0.295	5	4.78	0.5	0.48	108	120	124	7.24	7.11E-02
12-5	P	1	108000	5.3	0.295	7	6.98	1	1	110	0	4.1	5.88	5.89E-02
12-6	P	1	108000	5.9	0.295	5.09	4.93	1	1	107	0	4.4	7.69	7.52E-02
12-21	P	1	80000	6.4	0.295	5.09	4.37	0.1	0.1	102	0	53	10.77	6.26E-02
12-22	P	1	94000	6.3	0.295	5.09	4.58	0.1	0.1	103	0	51	14.83	4.30E-02
12-24	P	1	108000	6.2	0.295	3	3	0.1	0.1	103	0	0	20.67	5.91E-02
12-25	P	1	108000	5.5	0.295	7	7.24	0.1	0.09	105	0	51	4.53	9.50E-02
12-28	P	1	108000	6	0.295	5.09	5.48	0.5	0.44	105	0	9.9	7.20	8.73E-02
12-31	P	1	94000	6.4	0.295	5	5.24	0.5	0.47	104	127.8	138	6.40	1.06E-01
12-32	P	1	108000	6	0.295	4.85	5.07	0.5	0.45	106	267.8	288	9.96	6.28E-02
12-33	P	1	94000	6.1	0.295	4.85	4.96	0.5	0.495	95	126.6	143	9.96	9.61E-02
12-34	P	1	80000	6.1	0.295	4.91	4.91	0.5	0.47	93	124.2	152	12.04	8.22E-02
13-01	J2C	1	63200	6.024	0.288	3	2.86	0.5	0.5	100.1	0	9.33	15.19	9.44E-02
13-02	J2C	1	63200	5.909	0.288	5	8.35	0.5	0.5	98	0	9.2	5.74	1.56E-01
13-04	J2C	1	63200	5.878	0.288	5	4.79	0.5	0.53	90.2	0	11.05	11.04	9.99E-02
13-05	J2C	1	63200	5.994	0.288	5	4.7	0.48	0.5	85.4	131	138.7	22.76	5.46E-02
13-06	J2C	1	63200	6.056	0.288	5	4.81	0.5	0.5	100.3	120	122.4	9.77	7.62E-02
13-07	J2C	1	63200	6.044	0.288	3	3.82	0.5	0.5	100.1	240	217.1	12.36	1.20E-01
13-08	J2C	1	63200	5.565	0.288	5	4.37	0.32	0.32	100.1	320	332.6	9.04	8.38E-02
13-09	J2C	1	63200	6.164	0.288	5	4.72	0.5	0.518	99.9	0	9.16	5.73	1.44E-01
13-10	J2C	1	41000	4.504	0.288	5	4.88	0.5	0.525	99.4	0	7.61	7.23	1.12E-01
13-11	J2C	1	63200	6.062	0.288	4.8	4.63	0.48	0.46	105	150	163.1	6.62	1.05E-01
13-12	J2C	1	63200	6.017	0.288	5	5	0.5	0.5	100	0	0	7.60	1.03E-01
13-13	J2C	1	63200	6.075	0.288	7	7	0.5	0.5	100	0	0	6.84	7.23E-02
14-1	J2	1	平均54700	4.881	0.286	5	4.64	0.1	0.097	100	0	41.3	8.07	9.56E-02
15-13	J2C	1	62200~63200	6.021	0.282	5	4.54	0.1	0.097	100	0	48	6.55	1.21E-01
15-14	J2C	1	63600~63500	6.087	0.282	5	4.2	0.1	0.1	100	0	47.9	6.30	1.27E-01
15-15	J2C	1	63200~63600	6.025	0.282	5	4.09	0.1	0.1	90	0	46	19.35	5.42E-02
15-17	J2C	1	38700~43000	5.539	0.282	5	4.3	0.1	0.1	100	0	45.2	5.88	1.38E-01
15-18	J2C	1	51500~47800	6.071	0.282	8.7	7.68	0.1	0.1	100	0	50.3	3.35	1.21E-01
17-1-01	P	1	82000		0.298	5	—	0.5	—	100	0	—	5.33	1.54E-01
17-1-02	P	1	87000		0.298	9	—	0.5	—	100	0	—	3.34	1.17E-01
17-1-03	P	1	90000		0.298	8	—	0.5	—	100	0	—	3.47	1.31E-01
17-1-06	P	1	97000		0.298	9	—	0.5	—	100	0	—	4.10	9.21E-02
17-1-07	P	1	98000		0.298	12	—	0.5	—	100	0	—	4.72	5.35E-02
17-1-08	P	1	99000	5.8	0.298	5	—	0.5	—	100	0	—	10.27	7.35E-02
17-1-09	P	1	100000		0.298	12	—	0.5	—	100	0	—	4.58	5.51E-02
17-1-10	P	1	100000	5.7	0.298	8	—	0.5	—	100	0	—	3.92	1.13E-01
17-1-11	P	1	100000	5.7	0.298	9	—	0.5	—	100	0	—	3.70	1.03E-01
17-1-12	P	1	99000	5.8	0.298	7	—	0.5	—	100	0	—	4.46	1.18E-01
17-1-13	P	1	97000		0.298	7	—	0.5	—	100	0	—	3.52	1.55E-01
17-1-14	P	1	95000		0.298	5	—	0.5	—	100	0	—	6.50	1.22E-01
17-1-16	P	1	91000	6	0.298	8	—	0.5	—	100	0	—	4.37	9.99E-02
17-1-17	P	1	88000		0.298	12	—	0.5	—	100	0	—	4.84	5.21E-02
17-1-18	P	1	85000		0.298	7	—	0.5	—	100	0	—	4.07	1.30E-01
17-1-19	P	1	81000	6	0.298	8	—	0.5	—	100	0	—	4.89	8.85E-02
17-1-20	P	1	77000	5.9	0.298	8	—	0.5	—	100	0	—	4.22	1.04E-01
17-1-21	P	1	70000	6.1	0.298	8	—	0.5	—	100	0	—	4.96	8.69E-02
17-1-22	P	1	63000	6.1	0.298	8	—	0.5	—	100	0	—	4.24	1.04E-01
17-1-23	P	1	53000	6.1	0.298	8	—	0.5	—	100	0	—	4.53	9.64E-02
17-2-08	J2C	1	61500	6.15	0.288	8	—	0.5	—	100	0	—	3.39	1.34E-01
17-2-12	J2C	1	63000	6.02	0.288	8	—	0.5	—	90	0	—	6.26	1.01E-01
17-2-14	J2C	1	60500		0.288	8	—	0.5	—	115(BP)	0	—	5.32	4.71E-02
17-2-16	J2C	1	56000	5.98	0.288	8	—	0.5	—	90	0	—	5.33	1.21E-01
17-2-17	J2C	1	53000	6.11	0.288	8	—	0.5	—	100	0	—	3.12	1.49E-01
17-2-19	J2C	1	47000	6	0.288	8	—	0.5	—	100	0	—	2.30	2.13E-01

*1 P: Phenix燃料, J2: 常陽MK-II型炉心燃料, J2C: 常陽MKII-C型特殊燃料

*2 f値の算出は別添9を参照

別表9-4 回帰分析による燃焼度の影響評価

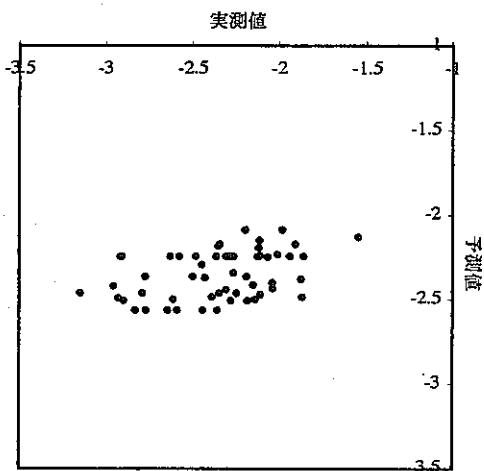
概要

回帰統計	
重相関 R	0.417599912
重決定 R2	0.174389687
補正 R2	0.15937859
標準誤差	0.310465562
観測数	57

分散分析表

	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	1	1.119786549	1.119786549	11.61738488	0.001229197
残差	55	5.301387602	0.096388865		
合計	56	6.42117415			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限 95%	上限 95%	下限 95.0%	上限 95.0%
ln (A)	-1.79765181	0.168416086	-10.67387242	5.12436E-15	-2.135165104	-1.460138515	-2.135165104	-1.460138515
b (燃焼度依存性)	-7.08962E-06	2.08003E-06	-3.408428506	0.001229197	-1.12581E-05	-2.92116E-06	-1.12581E-05	-2.92116E-06



$$\frac{1}{\lambda} = A \cdot \exp(b \cdot B)$$