

JNC TN8400 2000-032

高濃度溶解時におけるUO₂の溶解挙動評価試験

(研究報告)

2000年12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・転写する場合は、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

高濃度溶解時における UO_2 の溶解挙動評価試験

佐野雄一*、新井健太郎**、桜井孝二***

柴田淳広*、野村和則*、青嶋厚*

(研究報告)

要旨

再処理プロセスへの晶析工程の導入時に必要となる高濃度 U 溶液の調製、さらにはその際の有効な手法の一つである粉体化燃料を対称とした溶解に関連し、U 濃度が最大 800g/Lまでの領域における UO_2 粉末の溶解挙動を明らかとすることを目的として、溶解挙動に及ぼす最終 U 濃度、溶解温度、初期硝酸濃度、粉末粒径及び燃料形態の影響について評価を行った。また、得られた結果をもとに高濃度溶解時における照射済 MOX 燃料の溶解挙動について評価を行い、晶析工程への高 HM 濃度溶液供給の可能性について検討を行った。

試験の結果、最終 U 濃度、粉末粒径の増大及び溶解温度、初期硝酸濃度の減少に伴う溶解性の低下が認められた。さらに、 UO_2 粉末及び UO_2 ペレットの高濃度溶解時においても、最終 U 濃度が溶解度に対して十分低い (U 濃度 / 溶解度 < 約 0.8) 溶解条件下では、fragmentation モデルに基づいた既報の評価式によりその溶解挙動の予測が可能であることを確認した。

晶析工程への高 HM 濃度溶液 (500g/L~) 供給の可能性については、従来の燃料剪断片を用いた溶解では、高 HM 濃度の溶液を得ることが困難（溶解時間が大幅に増加する）であるが、燃料を粉体化することにより速やかに高 HM 濃度溶液を得ることができるとの見通しを得た。

粉体化した燃料の溶解時に懸念される溶解初期のオフガスの急激な発生は溶解条件を考慮することによりある程度回避できるものと考えられ、今後オスガス処理工程の最大処理能力を踏まえた上で溶解条件の最適化を進めることが重要となる。

*環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進再処理技術開発 Gr.

**検査開発（株）

***瑞豊産業（株）

Study on dissolution of UO₂ to obtain the high U solution

Yuichi SANO*, Kentaro Arai**, Koji SAKURAI***
Atsuhiro SHIBATA*, Kazunori NOMURA*, Atsushi AOSHIMA*

Abstract

Concerning the preparation of high U solution for the crystallization process and the application of UO₂ powder dissolution to that, the effects of final U concentration, dissolution temperature, nitric acid concentration and powder size on the dissolution of UO₂ powder in the nitric acid where the final U concentration was ~800g/L were investigated.

The experimental results showed that the solubility of UO₂ decreased with the increase of final UO₂ concentration and powder size, and with the decrease of dissolution temperature and nitric acid concentration. It was also confirmed that in the condition where the final U concentration was sufficiently lower than the solubility of U, UO₂ dissolution behavior in the high U solution could be estimated with the equation based on the fragmentation model which we had already reported.

Based on these experimental results, the dissolution behavior of irradiated MOX fuel in high U solution was estimated and the possibility of supplying high U solution to the crystallization process was discussed.

In the preparation of high U solution for the crystallization process, it was estimated that the present dissolution process (dissolution for fuel pieces of about 3cm long) needed a lot of time to obtain a high dissolution yield, but it was shorted drastically by the pulverization of fuel pieces. The burst of off-gas at the early in the dissolution of fuel powder seems to be avoidable with setting the appropriate dissolution condition, and it is important to optimize the dissolution condition with considering the capacity of off-gas treatment process.

* Recycle Process Technology Group, Advanced Fuel Recycle Technology Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center

** Inspection Development Company Ltd.

*** Zuiho Sangyo Co.

目次

1. はじめに	1
2. 試験	2
2.1 試験目的	2
2.2 使用試薬	2
2.3 試験装置	2
2.4 試験内容	3
2.4.1 最終 U 濃度の違いによる UO_2 溶解挙動の変化	3
2.4.2 溶解温度の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化	3
2.4.3 初期硝酸濃度の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化	4
2.4.4 粒径の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化	4
2.4.5 燃料形態の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化	5
2.5 試験手順	5
2.6 分析	6
3. 解析	7
3.1 fragmentation モデルによる溶解挙動の評価	8
4. 結果及び考察	9
4.1 最終 U 濃度の違いによる UO_2 溶解挙動の変化 (50°Cにおける溶解試験)	9
4.2 最終 U 濃度の違いによる UO_2 溶解挙動の変化 (80°Cにおける溶解試験)	10
4.3 溶解温度の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化	10
4.4 初期硝酸濃度の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化	10
4.5 粒径の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化	11
4.6 燃料形態の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化	12
5. 高濃度溶解時における照射済 MOX 燃料燃料の溶解挙動 (燃料形態の影響)	13
5.1 前提条件	13
5.2 最終 HM 濃度の違いによる照射済 MOX 燃料剪断片及び粉末の溶解挙動の変化	14
6. まとめ	16
7. 今後の課題	18
参考文献	19

表リスト

表 2-1 最終 U 濃度の違いによる UO_2 溶解挙動への影響評価試験	20
表 2-2 最終 U 濃度及び溶解温度の違いによる UO_2 溶解挙動への影響評価試験	
表 2-3 最終 U 濃度及び初期硝酸濃度の違いによる UO_2 溶解挙動への影響評価試験	21
表 2-4 粒径の違いによる UO_2 溶解挙動への影響評価試験	21
表 2-5 最終 U 濃度及び燃料形態の違いによる UO_2 溶解挙動への影響評価試験 (UO_2 ペレット使用)	22
表 4-1(1) 酸濃度、U 濃度、溶解率、発生ガス量の変化	23
表 4-1(2) 酸濃度、U 濃度、溶解率、発生ガス量の変化	24
表 4-2(1) 酸濃度、U 濃度、溶解率、発生ガス量の変化	25
表 4-2(2) 酸濃度、U 濃度、溶解率、発生ガス量の変化	26
表 4-2(3) 酸濃度、U 濃度、溶解率、発生ガス量の変化	27
表 4-3(1) 酸濃度、U 濃度、溶解率、発生ガス量の変化	28
表 4-3(2) 酸濃度、U 濃度、溶解率、発生ガス量の変化	29
表 4-4 酸濃度、U 濃度、溶解率、発生ガス量の変化	30
表 4-5(1) 酸濃度、U 濃度、溶解率、発生ガス量の変化	31
表 4-5(2) 酸濃度、U 濃度、溶解率、発生ガス量の変化	32

図リスト

図 2-1 高濃度溶解時における UO ₂ 溶解挙動評価試験装置の概略図	33
図 3-1 f 値の変化による溶解挙動の変化（粉末溶解）	34
図 4-1(1a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN1-1)	35
図 4-1(1b) 溶解温度の変化 (RUN1-1)	36
図 4-1(2a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN1-2)	37
図 4-1(2b) 溶解温度の変化 (RUN1-2)	38
図 4-1(3a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN1-3)	39
図 4-1(3b) 溶解温度の変化 (RUN1-3)	40
図 4-1(4a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN1-4)	41
図 4-1(4b) 溶解温度の変化 (RUN1-4)	42
図 4-2(1a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN2-1)	43
図 4-2(1b) 溶解温度の変化 (RUN2-1)	44
図 4-2(2a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN2-2)	45
図 4-2(2b) 溶解温度の変化 (RUN2-2)	46
図 4-2(3a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN2-3)	47
図 4-2(3b) 溶解温度の変化 (RUN2-3)	48
図 4-2(4a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN2-4)	49
図 4-2(4b) 溶解温度の変化 (RUN2-4)	50
図 4-2(5a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN2-5)	51
図 4-2(5b) 溶解温度の変化 (RUN2-5)	52
図 4-2(6a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN2-6)	53
図 4-2(6b) 溶解温度の変化 (RUN2-6)	54
図 4-2(7a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN2-7)	55
図 4-2(7b) 溶解温度の変化 (RUN2-7)	56
図 4-3(1a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN3-1)	57
図 4-3(1b) 溶解温度の変化 (RUN3-1)	58
図 4-3(2a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN3-2)	59
図 4-3(2b) 溶解温度の変化 (RUN3-2)	60
図 4-3(3a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN3-3)	61
図 4-3(3b) 溶解温度の変化 (RUN3-3)	62

図 4-3(4a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN3-4)	63
図 4-3(4b) 溶解温度の変化 (RUN3-4)	64
図 4-4(1a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN4-1)	65
図 4-4(1b) 溶解温度の変化 (RUN4-1)	66
図 4-4(2a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN4-2)	67
図 4-4(2b) 溶解温度の変化 (RUN4-2)	68
図 4-4(3a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN4-3)	69
図 4-4(3b) 溶解温度の変化 (RUN4-3)	70
図 4-5(1a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN5-1)	71
図 4-5(1b) 溶解温度の変化 (RUN5-1)	72
図 4-5(2a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN5-2)	73
図 4-5(2b) 溶解温度の変化 (RUN5-2)	74
図 4-5(3a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN5-3)	75
図 4-5(3b) 溶解温度の変化 (RUN5-3)	76
図 4-5(4a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN5-4)	77
図 4-5(4b) 溶解温度の変化 (RUN5-4)	78
図 4-5(5a) U, 酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化 (RUN5-5)	79
図 4-5(5b) 溶解温度の変化 (RUN5-5)	80
図 4-6 最終 U 濃度と f 値との関係 (粉末溶解)	81
図 4-7 最終 U 濃度と f 値との関係 (粉末溶解)	82
図 4-8 溶解温度と f 値との関係 (粉末溶解)	83
図 4-9 初期硝酸濃度と f 値との関係 (粉末溶解)	84
図 4-10 溶解度に対する最終 U 濃度の割合と f 値 (a 値) との関係	85
図 4-11 粒径と f 値との関係 (粉末溶解)	86
図 4-12 粒径と f 値との関係 (粉末溶解 (照射済 MOX 燃料))	87
図 4-13 最終 U 濃度と f 値との関係 (ペレット溶解)	88
図 5-1 照射済高速炉燃料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	89
図 5-2 照射済 MOX 燃料の溶解挙動に及ぼす燃料形態及び最終 HM 濃度の影響 · · · · ·	90
図 5-3(1) NOX 発生挙動に及ぼす燃料形態の影響	91
図 5-3(2) NOX 発生挙動に及ぼす燃料形態の影響(1)	91
図 5-3(3) NOX 発生挙動に及ぼす燃料形態の影響(2)	92

1. はじめに

再処理プロセスの簡素化及び廃液発生量低減化の観点から、燃料溶解液（清澄液）からの U 回収を目的とした晶析工程のプロセスへの導入が検討されている。現在、U 回収率、冷却温度等の観点から、晶析工程へ供給される溶液中の U 濃度は、現状の溶解液（～400g/L）より高い 500～600g/L に設定され、評価がなされている。このような高濃度の U 溶液を調製する方法としては、以下に示す 2 つの方法が考えられる。

①現状組成の溶解液を用いて濃縮操作を行う濃縮工程の追加

②高 U 濃度溶液を得るような溶解工程の見直し

①については、溶液の組成を任意に調製しやすい等の利点があるものの、新たに工程を設けなければならず、また廃棄物発生量の増大も懸念される。したがって、②に示した溶解工程の見直しにより U の高濃度化を図るほうがより好ましいと考えられる。

UO_2 をはじめとする各種酸化物燃料の硝酸への溶解挙動についてこれまでにも数多く試験が行われているが、それらはいずれも最終 U 濃度が 400g/L 以下のものであり、500g/L 以上の高 U 濃度における溶解挙動に関する報告は見あたらない。一方、CPFにおいてこれまでに実施された照射済燃料溶解試験の結果から、溶解槽中における固液比（硝酸／燃料体積比）の減少に伴う燃料の溶解性の低下が認められている。このことは、高濃度溶解時（溶解槽中における固液比が小さい）に燃料の溶解性が低下する可能性があることを示唆している¹⁾。

以上の観点から、本試験では、U 濃度が最大 800g/L までの領域における UO_2 の溶解挙動を明らかとすることを目的として、溶解挙動に及ぼす最終 U 濃度、溶解温度、初期硝酸濃度、粉末粒径及び燃料形態の影響について評価を行った。また、得られた結果をもとに高濃度溶解時における照射済 MOX 燃料の溶解挙動について評価を行い、晶析工程への高 HM 濃度溶液（500g/L～）供給の可能性について検討を行った。

2. 試験

2.1 試験目的

本試験では、U 濃度が最大 800g/l までの領域における UO_2 の溶解挙動を明らかとすることを目的として、以下の点に着目して試験を実施した。

- ①最終 U 濃度の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化
- ②溶解温度の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化
- ③初期硝酸濃度の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化
- ④粒径の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化
- ⑤燃料形態の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化

2.2 使用試薬

本試験で使用した試薬を以下に示す。

(1) UO_2 粉末 675.4 g

A 棟に貯蔵中の天然 UO_2 スクラップ（バッチ NO.CB069 33202-6101）を小型粉碎器により粉碎し、以下の粒径毎にふるい分けしたものを使用した。

- ・ < 100 μm : 552.7 g
- ・ 100 ~ 500 μm : 40.9 g
- ・ 500 ~ 1000 μm : 40.9 g
- ・ > 1000 μm : 40.9 g

(2) UO_2 ペレット 239.9 g

A 棟に貯蔵中の天然 UO_2 ペレット（Φ5.4×10、バッチ NO.EDLN0002）を使用した。

(3) 硝酸

関東化学（株）製の特級試薬（13.3M HNO_3 ）を、以下に示す各濃度に調製した後、使用した。

- ・ 5.5M HNO_3 水溶液 : 80ml
- ・ 7.3 M HNO_3 水溶液 : 80ml
- ・ 9.9 M HNO_3 水溶液 : 1520ml
- ・ 10.9 M HNO_3 水溶液 : 160ml

2.3 試験装置

本試験で使用した試験装置の概略図を図 2-1 に示す。

2.4 試験内容

試験は、2.1 節に示した 5 項目について全 23RUN 実施した（表 2-1～2-5 参照）。各試験の詳細な条件を以下に記す。なお、表 2-1～2-5 に示す予想される溶解液の組成は投入した UO₂ 全量が溶解した時の値であり、3.1 節に示す fragmentation モデルを用いて計算されたものである。

2.4.1 最終 U 濃度の違いによる UO₂ 溶解挙動の変化

最終 U 濃度の違い（溶解度に対する溶解量の違い）が、UO₂ の溶解挙動に及ぼす影響を明らかにすることを目的として溶解試験を実施した。

試験は最終 U 濃度（UO₂ 投入量）を変化させ、計 4RUN 実施した。溶解条件は以下に示すとおりである。

使用燃料：UO₂ 粉末 合計 118.2 g（粒径<100μm）

（各 RUN の使用量は表 2-1 参照）

初期硝酸量：各 80ml

初期硝酸濃度：9.9M

溶解温度：50°C（突沸の恐れがあるため、加熱前の硝酸に U 粉末を添加した後、徐々に 50°Cまで加熱）

各 RUN の溶解条件及び予想される溶解液の組成を表 2-1 に示す。

各 RUN 毎に、表 2-1 に示す時間に溶解液のサンプリング及び湿式ガスマーティーによる発生ガス量の測定を行った。サンプル中のウラン濃度及び酸濃度については、同時滴定法により分析を行った。

得られたデータは、3 章に示す解析方法にしたがって、整理、評価を行った。

2.4.2 溶解温度の違いによる UO₂ の溶解挙動の変化

溶解温度及び溶解度に対する溶解量の違いが、UO₂ の溶解挙動に及ぼす影響を明らかにすることを目的として溶解試験を実施した。

試験は最終 U 濃度（UO₂ 投入量）及び溶解温度を変化させ、計 7RUN を実施した（2-3～2-7RUN は燃料形態の違いによる影響を評価するための比較試験ともなる）。溶解条件は以下に示すとおりである。

使用燃料：UO₂ 粉末 合計 296.3g（粒径<100μm）

（各 RUN の使用量は表 2-2 参照）

初期硝酸量：各 80ml

初期硝酸濃度：9.9M

溶解温度：45 及び 80°C（突沸の恐れがあるため、加熱前の硝酸に U 粉末を添加した後、徐々に設定温度まで加熱）

各 RUN の溶解条件及び予想される溶解液の組成を表 2-2 に示す。

各 RUN 毎に、表 2-2 に示す時間に溶解液のサンプリング及び湿式ガスマーティによる発生ガス量の測定を行った。サンプル中のウラン濃度及び酸濃度については、同時滴定法により分析を行った。

得られたデータは、3 章に示す解析方法にしたがって、整理、評価を行った。

2.4.3 初期硝酸濃度の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化

初期硝酸濃度及び溶解度に対する溶解量の違いが、 UO_2 の溶解挙動に及ぼす影響を明らかにすることを目的として溶解試験を実施した。

試験は最終 U 濃度 (UO_2 投入量) 及び初期硝酸濃度を変化させ、計 4RUN を実施した。溶解条件は以下に示すとおりである。

使用燃料： UO_2 粉末 合計 138.2g (粒径 < 100 μm)

(各 RUN の使用量は表 2-3 参照)

初期硝酸量：各 80ml

初期硝酸濃度：5.5, 7.3 及び 10.9M

溶解温度：50°C（突沸の恐れがあるため、加熱前の硝酸に U 粉末を添加した後、徐々に 50°C まで加熱）

各 RUN の溶解条件及び予想される溶解液の組成を表 2-3 に示す。

各 RUN 毎に、表 2-3 に示す時間に溶解液のサンプリング及び湿式ガスマーティによる発生ガス量の測定を行った。サンプル中のウラン濃度及び酸濃度については、同時滴定法により分析を行った。

得られたデータは、3 章に示す解析方法にしたがって、整理、評価を行った。

2.4.4 粒径の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化

UO_2 粉末の粒径の違いが、 UO_2 の溶解挙動に及ぼす影響を明らかにすることを目的として溶解試験を実施した。

試験は UO_2 粉末の粒径を変化させ、計 3RUN を実施した。溶解条件は以下に示すとおりである。

使用燃料： UO_2 粉末 40.9g (各 RUN) (3RUN 合計 122.7g)

(粒径は表 2-4 参照)

初期硝酸量：各 80ml

初期硝酸濃度：9.9 M

溶解温度：50°C（突沸の恐れがあるため、加熱前の硝酸に U 粉末を添加した後、徐々に設定温度まで加熱）

各 RUN の溶解条件及び予想される溶解液の組成を表 2-4 に示す。

各 RUN 毎に、表 2-4 に示す時間に溶解液のサンプリング及び湿式ガスマーティによる発生ガス量の測定を行った。サンプル中のウラン濃度及び酸濃度については、同時滴定法により分析を行った。

得られたデータは、3 章に示す解析方法にしたがって、整理、評価を行った。

2.4.5 燃料形態の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化

使用する燃料形態（粉末及びペレット）の違いが、 UO_2 の溶解挙動に及ぼす影響を明らかにすることを目的として、 UO_2 ペレットを用いた溶解試験を実施した。

試験は最終 U 濃度（ UO_2 投入量）を変化させ、計 5RUN 実施した。溶解条件は以下に示すとおりである。

使用燃料： UO_2 ペレット 合計 239.9 g（ペレット形状 $\phi 5.4 \times 10$ ）

（各 RUN の使用量は表 2-5 参照）

初期硝酸量：各 80ml

初期硝酸濃度：9.9M

溶解温度：80°C（突沸の恐れがあるため、加熱前の硝酸に U 粉末を添加した後、徐々に 80°C まで加熱）

各 RUN の溶解条件及び予想される溶解液の組成を表 2-5 に示す。

各 RUN 毎に、表 2-5 に示す時間に溶解液のサンプリング及び湿式ガスマーティによる発生ガス量の測定を行った。サンプル中のウラン濃度及び酸濃度については、同時滴定法により分析を行った。

得られたデータは、3 章に示す解析方法にしたがって、整理、評価を行った。

2.5 試験手順

以下に、各溶解試験に共通の作業手順（概略）を示す。

- ①溶解槽に所定の UO_2 粉末あるいはペレットを投入する。
- ②セパラブルカバー投入口より所定濃度の硝酸を送液ポンプにより約 60ml/min で添加する。
- ③所定量の硝酸を添加した後、スターラーによる攪拌（300rpm）を行いながら、ホットスターラーにより設定温度まで加熱する。

- ④サンプリング時間には、送液ポンプにより液相のサンプリングを行う。同時に、湿式ガスマーテーによりオフガスの積算発生量を読み取り、記録する。
- ⑤溶解終了後の含 U 硝酸溶液に対して、メスシリンダーにより液量を測定する。

2.6 分析

サンプリングした溶液は、デカンテーションにより未溶解 UO_2 粉末を除去した後、U 濃度及び酸濃度の分析を行った。分析は、硫酸アンモニウム-過酸化水素添加による U 及び酸の同時滴定法により行った。

U の溶解率の算出には次式を用いた。

$$\text{溶解率} = \frac{(\text{プロダクト濃度}) \times (\text{溶解液量}) + \sum (\text{サンプル量} \times \text{プロダクト濃度})}{\text{初期プロダクト量}} \times 100 \quad (2-1)$$

プロダクト濃度 : U 濃度分析値

溶解液量 : 初期液量 - \sum (サンプル量)

サンプル量 : サンプリングした液量

初期プロダクト量 : UO_2 装荷量 (U メタル換算量)

3. 解析

3.1 fragmentation モデルによる溶解挙動の評価

本試験より得られた U 濃度及び U 溶解率の変化は、原則としてすべて以下に示す fragmentation モデルに基づいた溶解モデル¹⁾を用い評価を進めた。

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

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

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

ここで、

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

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)

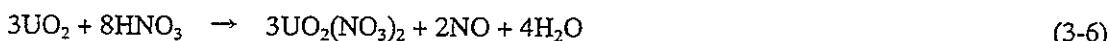
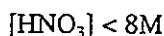
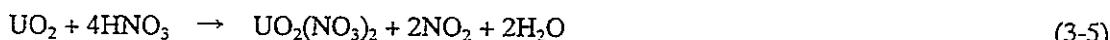
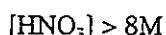
W_u : 硝酸に浸っていない部分の燃料重量 (g)

$[\text{HNO}_3]$: 硝酸濃度 (M)

T : 溶液温度 (K)

R : 気体定数 (8.315 J/K·mol)

UO_2 の溶解反応に伴う物質収支の算出には、以下の反応式を用いる。但し、現段階で UO_2 の溶解に伴う液量（体積）増加の評価ができないため、液量の変化は本解析では考慮していない。



(3-4)式中の n 及び E の値は、文献値⁴⁾に基づき、それぞれ n=2 及び E=15 (kcal)とした。

また、A の値は、RUN2-3 より得られた実測値と(3-1)～(3-4)式より計算される計算値との fitting より、 $A=4.87 \times 10^8$ と設定した (f 値の設定については後述)。

本解析では、(3-2), (3-3)式中の f 値（硝酸の拡散及び燃料への浸透を表す定数）をパラメータとして、各試験より得られる実測値（溶解率）と(3-1)～(3-4)式より計算される計算値との fitting を行い、その結果得られる f 値をもとに検討を行った。なお、本解析では、f 値を与える関数として以下の式を仮定し、式中の a 及び b をパラメータとして fitting を行った。

$$f = a \cdot \exp(b \cdot d) \quad (0 < a \leq 1, b \leq 0) \quad d; \text{溶解率} \quad (3-7)$$

(3-7)式は、溶解の進行に伴って硝酸の拡散及び燃料への浸透が初期値 a より指数関数的に減少することを意味している。これは、本試験で用いた UO_2 粉末の粒径が分布を有しており、溶解の進行に伴い、燃料への硝酸の浸透のしやすさが変化する（溶解初期には粒径の小さなものが多く（すなわち比表面積が大きく）速やかに硝酸の浸透が進むが、溶解中期以降は粒径の大きな粒子が残存するため（すなわち比表面積が減少するため）、硝酸の浸透が低下する）ことを踏まえている。なお、照射済燃料のような性状そのものが多孔質で比表面積が見かけ上の表面積にあまり依存せずほぼ一定と考えることができるものや本試験で用いた UO_2 ペレットのような個々の形状が同一であるものに関しては、溶解反応中を通して f 値をほぼ一定 ($b=0$) と見なすことができる¹⁾。

本解析では、類似の粒度分布を持つと考えられる $100\mu\text{m}$ 以下の UO_2 粉末を対象とした試験 (RUN1~3)、及び $100\mu\text{m}$ 以上の UO_2 粉末を対象とした試験 (RUN4) それについて、共通の b 値を仮定し、 a 値についてのみパラメータとして取り扱った。なお、 b 値は、RUN2-3 及び RUN4-1 より得られた実測値と(3-1)~(3-4)式より計算される計算値との fitting より以下のように設定した。

RUN1~3 (UO_2 粉末粒径 $100\mu\text{m}$ 以下) ; $b=-1.55$

RUN4 (UO_2 粉末粒径 $100\mu\text{m}$ 以上) : $b=-2.55$

また、 UO_2 ペレットを対象とした溶解試験 (RUN6) については、 $b=0$ とした。

図 3-1 は、(3-1)~(3-7)式より計算される UO_2 溶解挙動に、 a 値の変化が及ぼす影響をまとめたものである。計算にあたり b 値は-1.55 で固定している。この図より、 a 値が 0.6 程度までは溶解挙動に大きな変化が見られないが、0.4 程度から溶解速度に大きな低下が認められることを確認できる。

4.結果及び考察

表 4-1～4-5 に各 RUN 毎の酸濃度、U 濃度、溶解率及び発生ガス量の変化値を、図 4-1～4-5 にこれらをグラフ化したものをそれぞれ示す。図中には 3 章で示した fragmentation モデルとの fitting より得られた計算値を併せて記している。fitting にあたっては、図 4-1～4-5 に示した各 RUN の温度履歴をもとに溶解反応中の温度変化を考慮した。

図 4-1～4-5 に示すように最終 U 濃度が高い領域において硝酸濃度の実測値と計算値との間に差が認められるが、これは低硝酸濃度における UO_2 の溶解反応を正しく評価できていないことに起因するものと考えられる。したがって、低硝酸濃度における UO_2 の溶解挙動をより正確に評価するためには、反応式の見直しを行う必要がある。

また、NOX 発生量についてはすべての RUN において実測値と計算値との間に大きな差が認められている。特に、NOX の発生が穏やかな条件下（初期 UO_2 投入量、硝酸濃度及び溶解温度が低い条件下等）ではその差がより大きくなっていることから、発生した NOX の溶液への再溶解（湿式ガスマータ内の水への溶解を含む）により、見かけ上の NOX 発生量が減少していることが示唆される。

以下、2 節で述べた各試験目的毎に試験結果の詳細及び考察を記す。

4.1 最終 U 濃度の違いによる UO_2 溶解挙動の変化（50°Cにおける溶解試験）

表 4-1 及び図 4-1 に、RUN1-1～1-4 において得られた酸濃度、U 濃度、溶解率及び発生ガス量の変化を示す。図 4-6 には fitting より得られた f 値 (a 値) と最終 U 濃度との関係を示した。なお、最終 U 濃度は投入した UO_2 粉末全量が溶解し、かつ液量に変化がないとして計算した値を用いている。

図 4-1 及び図 4-6 より、最終 U 濃度の増加に伴い、溶解性が低下する（溶解速度が低下する）様子が認められており、かつ最終 U 濃度が高い領域（RUN1-4）において f 値 (a 値) が急激に 4 減少する結果が得られている。3 章で述べたように、f 値 (a 値) は本来硝酸の拡散及び燃料への浸透の影響のみを表す定数であるが、本検討では(3-4)式中で考慮されていない（あるいは正しい評価が行われていない）溶解挙動に影響を及ぼす化学的な要因（亜硝酸濃度の影響、（溶解度近傍での）U 濃度の影響等）の効果も含まれた評価値となっている。溶解温度である 50°Cにおける U の溶解度に対する最終 U 濃度の割合が RUN1-4 では大きいこと（表 2-1 参照）、さらには後述の 80°Cにおける溶解試験結果との比較から、本試験条件下で見られた f 値 (a 値) の変化に伴う UO_2 の溶解性低下は、固液比の変化等に起因する硝酸の拡散及び燃料への浸透の低下によるものでなく、溶解度に対する U 濃度の割合の増加によりもたらされたものと推測される。

4.2 最終 U 濃度の違いによる UO_2 溶解挙動の変化（80°Cにおける溶解試験）

表 4-2 及び図 4-2 に、RUN2-1～2-7 において得られた酸濃度、U 濃度、溶解率及び発生ガス量の変化を示す。また、図 4-7 には fitting より得られた f 値 (a 値) と最終 U 濃度との関係を示す。

図 4-2 及び図 4-7 より、最終 U 濃度の増加に伴い溶解性が低下する（溶解速度が低下する）様子が見られるが、50°Cにおける結果とは異なり、最終 U 濃度が高い領域における f 値 (a 値) の急激な低下は認められない。これらの試験が溶解度に対する最終 U 濃度の割合が低い条件下（最大 60%程度）で実施されていること（表 2-2 参照）、及び最終 U 濃度が同じ（すなわち固液比が同じ）条件下において得られている f 値 (a 値) が 80°Cに比べ 50°Cの方が小さいことを考慮すると、50°Cにおいて観測された f 値 (a 値) の急激な低下が、固液比等の硝酸の拡散及び燃料への浸透に影響を及ぼす因子の変化によるものではなく、溶解度に対する U 濃度の割合の増加によりもたらされたものであると考えられる。また、 f 値 (a 値) の減少が、3 章で示した溶解挙動に大きな変化を及ぼさない範囲 ($a=1\sim0.6$) で生じていることから、本試験で見られる溶解性の低下は、 f 値 (a 値) の減少に起因したものではなく、(3-4)式中で考えられている要因（硝酸濃度及び U 濃度）の変化により主にもたらされたものであると推測される。すなわち、 UO_2 高濃度溶解条件下においても、対象が粉末（粒径 100 μm 以下）であり、かつ最終 U 濃度が溶解度に対して低い領域においては、(3-1)～(3-7)式を用いて、 UO_2 の溶解挙動を評価することが可能である。

4.3 溶解温度の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化

図 4-8 に RUN1 及び 2 の試験結果に対する fitting より得られた f 値 (a 値) と溶解温度との関係を示す。

最終 U 濃度が低い場合 (246g/l) 及び高い場合 (451g/l) ともに、溶解温度の減少に伴い溶解性が低下する様子が見られるが、 f 値 (a 値) に注目した場合、最終 U 濃度が低い条件下では大きな変化が見られない（溶解挙動に大きな変化を及ぼさない範囲での減少）のに対し、最終 U 濃度が高い条件下では溶解温度の低下に伴う急激な減少が認められている。このことは前述のように溶解度に対する最終 U 濃度の割合の増加（溶解温度の低下に伴う溶解度の減少）に起因しているものと考えられる（表 2-1 及び 2-2 参照）。また、4.1 節及び本結果より、最終 U 濃度が溶解度に近づくにつれ、 f 値 (a 値) が指数関数的に減少することが示唆される。

4.4 初期硝酸濃度の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化

表 4-3 及び図 4-3 に、RUN3-1～3-4 において得られた酸濃度、U 濃度、溶解率及び発生

ガス量の変化を示す。また、図 4-9 には fitting より得られた f 値 (a 値) と初期硝酸濃度との関係を示す。

最終 U 濃度が低い場合 (246g/l) 及び高い場合 (515g/l) ともに、初期硝酸濃度の減少に伴い溶解性が低下する様子が見られるが、 f 値 (a 値) に注目した場合、最終 U 濃度が低い条件下では大きな変化が見られない（溶解挙動に大きな変化を及ぼさない範囲での減少）のに対し、最終 U 濃度が高い条件下では初期硝酸濃度の増加に伴う減少傾向が認められている。これは溶解度に対する最終 U 濃度の割合が、最終 U 濃度が低い試験条件下においては 0.37～0.41 と大きな変化がないのに対し、最終 U 濃度が高い条件下においては初期硝酸濃度の増加に伴い、0.72 から 0.81、さらに 0.84 へと増加することに起因しているものと考えられる（表 2-3 参照）。

以上、4.1 節から 4.4 節において述べたように、本試験条件下 (UO_2 粉末を対象とした高濃度 (U 濃度～700g/l) 溶解) 及び 3 章に示した解析条件下において、 f 値 (a 値) は溶解度に対する最終 U 濃度の割合に大きく影響を受けることが予想される。今回実施した 100 μm 以下の粒径をもつ UO_2 粉末を対象とした溶解試験 (RUN1～RUN3) 結果に対して得られた f 値 (a 値) と溶解度に対する最終 U 濃度の割合との関係をプロットしたものを図 4-10 に示す。

これより、データにはらつきはあるものの、 f 値 (a 値) は、溶解度に対する最終 U 濃度の割合の上昇に伴いその割合が 0.8 程度までの領域では緩やかに減少するのに対し、それ以上の領域では急激な低下を示す傾向にあることが伺える。このことから、最終 U 濃度の溶解度に対する割合が低い領域 (~0.8) においては、(3-1)～(3-7)式を用いて、 UO_2 の溶解挙動を評価することが（近似的に）可能であるが、溶解度近傍付近 (0.8～) では評価にあたり何らかの補正が必要となる。簡易的には、図 4-10 を用いた f 値 (a 値) の補正により対応可能であるが、より一般的には(3-7)式中に含まれる U 濃度の影響を考慮した項の見直しが望まれる (f 値は本来硝酸の拡散及び燃料への浸透の影響のみを表す定数であり、U 濃度に依存しないと考えられるため)。

4.5 粒径の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化

表 4-4 及び図 4-4 に、RUN4-1～3-3 において得られた酸濃度、U 濃度、溶解率及び発生ガス量の変化を示す。また、図 4-11 には fitting より得られた f 値 (a 値) と粒径との関係を示す。

図 4-4 及び図 4-11 より、粉末の粒径の増大に伴い溶解性が低下する様子が見られ、かつ f 値 (a 値) も大きく減少する傾向が認められる。これは、粒径の増加に伴い、比表面積が減少し、硝酸の攪拌及び燃料への浸透が低下したことに起因するものと考えられる。これ

に対し、図 4-12 に示すように粒径が $1000\mu\text{m}$ 以下の照射済燃料粉末（MOX 燃焼）を対象とした溶解では粒径の違いによる溶解挙動及び f 値（ a 値）の大きな変化が観測されていない。このような燃料の照射に伴う溶解挙動の変化は、照射による燃料性状の変化（比表面積の増大）により、ある粒径以下の燃料粉末では粒径の違いに依らず比表面積がほぼ一定の値をとるためと推測される（このことは照射済燃料の溶解にあたっては対象となる燃料をより細かい粉体とすることが溶解速度的に必ずしも有利とは言えないことを意味している）。

以上のことから、(3-1)～(3-7)式を用いて粉末燃料の溶解挙動を評価する場合、未照射燃料を対象とした評価では対象となる燃料粉末の粒径により f 値（ a 値）の補正が必要となるが、照射済燃料を対象とした場合は粒径に依らず（但し、現状では粒径が $1000\mu\text{m}$ 以下の粉末に対してのみ） f 値（ a 値）を 1 とすることが可能となる。

照射済燃料粉末の溶解に関しては、現状では粒径が $1000\mu\text{m}$ 以下の粉末に対するデータのみしか得られていないため、今後、種々の粒径を持つ照射済粉末燃料を対象とした溶解試験を実施し、溶解性（ f 値（ a 値））の低下が生ずる粒径を明らかにしていく必要がある。

4.6 燃料形態の違いによる UO_2 の溶解挙動の変化

表 4-5 及び図 4-5 に RUN6-1～6-5 において得られた酸濃度、U 濃度、溶解率及び発生ガス量の変化を示す。また、図 4-13 には fitting より得られた f 値（ a 値）と最終 U 濃度との関係を示す。

UO_2 粉末を対象とした試験結果（RUN2-3～2-7（図 4-2 及び図 4-7））との比較から、粉末に比べ UO_2 の溶解性が大きく低下しており、これが主に f 値（ a 値）の低下（ UO_2 粉末より得られた値に対し 2 枝以上低下）によるものであることを確認できる。

一方、最終 U 濃度が溶解挙動に及ぼす影響に関しては、最終 U 濃度の増加に伴い溶解性が若干低下する（溶解速度が低下する）様子が見られるものの f 値（ a 値）については大きな変化が認められない。このことは、 UO_2 粉末を対象とした溶解と同様にペレットを対象とした溶解においても、最終 U 濃度が溶解度に対して低い領域においては (3-1)～(3-7) 式を用いて（ f 値（ a 値）を補正せずに） UO_2 の溶解挙動を評価することが可能であることを意味している。

今回の試験条件下においては、使用済燃料剪断片の溶解時に観察されたような固液比（最終 HM 濃度）の増加に伴う f 値（ a 値）の低下¹⁾は観測されなかった。これは、ペレット溶解時における f 値（ a 値）が非常に小さいことからも推測されるように、 f 値（ a 値）が主にペレットへの硝酸の浸透速度により決定されており、固液比の低下に伴う硝酸の拡散効果の変化があまり影響を及ぼさないことによるものと思われる。

5. 高濃度溶解時における照射済 MOX 燃料燃料の溶解挙動（燃料形態の影響）

前章で記した UO_2 粉末を用いた各種溶解試験の結果から、固液比が小さくなる高濃度溶解時においても、最終 U 濃度が溶解度に対して十分低い領域においては硝酸の拡散及び燃料への浸透を表す定数である f 値の大きな減少は見られず、fragmentation モデルに基づく評価式により (f 値の補正を行わずに) UO_2 の溶解挙動を予測することが可能であることが示された。

一方、これまで CPF で実施された使用済 MOX 燃料剪断片を用いた溶解試験の結果からは、最終 U 濃度が溶解度に対して十分低い領域においても固液比の低下に伴う f 値の減少が観測されており¹⁾、より固液比が小さくなる高濃度溶解時において溶解性が低下することが予想される。

このような高濃度溶解時における燃料の溶解挙動に燃料形態の違いが及ぼす影響を定量的に評価することを目的として、本章では既報の fragmentation モデルに基づく評価式を用いて使用済高速炉燃料の剪断片及び粉末の溶解挙動について推定を行い、両者の比較・検討を進めた。なお、本章の評価及び検討は、CPF におけるこれまでの溶解試験結果から得られているデータをもとに導出された照射済 MOX 燃料溶解挙動推定式¹⁾を、これまでに試験が実施されていない高 HM (U+Pu) 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。

5.1 前提条件

本評価で対象とした燃料は、Pu 富化度 28.8%、燃焼度 100,000MWd/t の常陽 MK-IIIC 型特殊燃料（相当）である。剪断片及び粉末の条件としては以下の通りである。

剪断片

- ・形状— $6.5\phi \times 30$
- ・処理量—21 片 (U+Pu 量 110g)

粉末

- ・粒径— $1000\mu\text{m}$ 以下 (CPF での試験において、粒径の変化による溶解性の変化 (f 値の変化) が観測されない粒径範囲)
- ・処理量—U+Pu 量 110g

各燃料の溶解挙動評価にあたっては、fragmentation モデルに基づいた既報の照射済 MOX 燃料溶解挙動推定式及び U, Pu の溶解反応式を用いた。低 HM 濃度領域におけるこれらの評価式を用いた溶解率の計算値と CPF における実測データとの誤差は、最大 10%程度であることを確認している。また、溶解条件は溶解度に対する最終 HM 濃度の割合が十分低くなるように設定した（溶解度近傍において必要となる評価式の補正を避けるため）。

剪断片に対する f 値は、これまで CPF において実施された試験より得られている溶解時の固液比と f 値との関係（図 5-1）を用いて、溶解時の条件毎に算出した。また、粉末に対する f 値は $f=1$ とした（実際には粉末が粒度分布をもつため、 f 値は前章で示したように溶解率の増加に伴い減少するものと考えられる（すなわち、本設定 ($f=1$) は溶解速度を過大に評価する傾向にある）。

5.2 最終 HM 濃度の違いによる照射済 MOX 燃料剪断片及び粉末の溶解挙動の変化

図 5-2 に最終 HM 濃度が 275g/L（低 HM 濃度）及び 611g/L（高 HM 濃度）となる溶解条件下において計算された照射済 MOX 燃料剪断片及び粉末の溶解挙動を示す。溶解条件は以下の通りである。

溶解温度：100°C

初期硝酸濃度：10M

液量：0.4L（最終 HM 濃度 275g/L）、0.18L（最終 HM 濃度 611g/L）

なお、計算にあたり反応に伴う液量の変化は考慮していない。図中には、各条件下において溶解率 99%を得るまでに必要な溶解時間を併せて記している。

本図より、低 HM 濃度条件下では、溶解率 99%を得るまでに必要な時間が、剪断片では 784 分、粉末では 27 分と計算され、燃料の粉体化に伴い約 1/30 に短縮することが認められる。さらに、高 HM 濃度条件下では、同時間が、剪断片では 6570 分、粉末では 94 分と計算され、約 1/70 まで減少することを確認できる。このような高 HM 濃度条件下における燃料剪断片及び粉末間の溶解挙動の差異の拡大は、剪断片を対象とした溶解時における固液比の低下による f 値の減少が要因となっている。

以上のように、燃料の粉体化による溶解速度の向上は高 HM 濃度溶解条件下においてより顕著になるものと考えられ、晶析工程への高 HM 濃度溶液供給を考えた場合、粉体化した燃料を用いた溶解はプロセスの効率化上極めて有効となる。

一方で、粉体化した燃料の溶解においては溶解初期におけるオフガスの急激な発生が懸念される。図 5-3(1)に最終 HM 濃度 400g/L となる条件下において計算された照射済 MOX 燃料粉末溶解時の NOX 発生挙動を示す。溶解条件は以下の通りである。

溶解温度：100°C

初期硝酸濃度：8M

液量：0.28L

本計算では溶解反応により発生した NOX のすべてが気相中へ移行するとしている（実際は前章で述べたように溶解液への再溶解等が存在するため、その発生量は数分の 1 程度になるものと考えられる）。また、図中には比較として剪断片溶解時における NOX 発生挙

動の計算値を併せて記している。

本図より、粉末燃料の溶解時には溶解開始から約 20 分の間に全 NOX 発生量の約 8 割にあたる量が発生し、剪断片溶解時に比べて、1 分間当たりの NOX 発生速度が最大で約 16 倍程度になることが確認される。このような NOX 発生速度の急激な上昇はオフガス処理系への負担を大きくすることから、トータルの溶解時間を可能な限り短く保ったまま、ピーク時の NOX 発生速度を低下させる（トータルとしての NOX 発生量は一定のため、結果的に NOX 発生速度を平坦化させることになる）ことが望ましい。

図 5-3(2)及び 5-3(3)は、このような要求を満たすべく溶解条件を設定した粉末溶解系において計算された NOX 発生挙動の一例を示したものである。図 5-3(2)に示した系では溶解温度を、図 5-3(3)に示した系では硝酸濃度をそれぞれ連続的に変化させ、NOX 発生速度（すなわち溶解速度）の平坦化を図っている。各系の溶解条件は以下の通りである。

図 5-3(2) (照射済 MOX 燃料粉末溶解、最終 HM 濃度 400g/L)

溶解温度：65°C（溶解開始 15 分間）→105°Cへ上昇

初期硝酸濃度：1M

液量：0.28L

図 5-3(3) (照射済 MOX 燃料粉末溶解、最終 HM 濃度 398g/L)

溶解温度：100°C

初期硝酸濃度：1M

供給硝酸濃度：13.3M

硝酸供給及び抜出手速：190ml/hr

溶解槽液量：0.08L

何れの系においても、U+Pu 量 110g に対して溶解率 99%を得るまでに必要な時間を大きく変化させることなく、ピーク時の NOX 発生速度が、図 5-3(1)に示した溶解条件下におけるそれと比較して、約 1/3（剪断片溶解時の約 5 倍）に低減されており、溶解反応中（0～約 90 分）における NOX 発生速度の平坦化が達成されている。

以上のように、粉体化した燃料溶解時の溶解初期におけるオフガスの急激な発生は、溶解条件の最適化により、ある程度改善する（オフガス発生速度を平坦化する）ことが可能と考えられる。しかしながら、剪断片溶解時と比較した場合、溶解速度の高速化に伴うオフガス発生速度の上昇は避けられないため、溶解条件の最適化だけでは対応が不十分（オフガス処理系への負担を軽減しきれない）となる可能性がある。この場合は、別途オフガス処理工程の見直しやオフガス低減化を狙った溶解方法（オフガスのリフラックス、無ヒューム溶解等）の導入を図る必要がある。

6.まとめ

本試験では、U濃度が最大800g/Lまでの領域における UO_2 の溶解挙動を明らかとすることを目的として、 UO_2 の溶解挙動に及ぼす最終U濃度、溶解温度、初期硝酸濃度、粉末粒径及び燃料形態の影響について評価を行った。得られた結果は以下の通りである。

最終U濃度の影響

最終U濃度の増加に伴い溶解性が低下する傾向が認められた。Fragmentationモデルを用いた解析から、この低下が既報の評価式において考慮されている因子の変化（溶解に伴う硝酸濃度の減少及びU濃度の増加）のみにより（固液比の低下による補正を行うことなく）説明可能であることを確認した（ただし、最終U濃度が溶解度に近い（U濃度／溶解度>約0.8）溶解条件下においては、既報の評価式では考慮されていない影響（溶解度近傍でのU濃度の影響等）について新たに評価を行う必要性が示された）。

溶解温度の影響

溶解温度の低下に伴い溶解性が低下する傾向が認められた。Fragmentationモデルを用いた解析から、この低下が既報の評価式において考慮されている因子の変化（溶解温度の低下）のみにより説明可能であることを確認した（ただし、最終U濃度が溶解度に近い（U濃度／溶解度>約0.8）溶解条件下においては、既報の評価式では考慮されていない影響（溶解度近傍でのU濃度の影響等）について新たに評価を行う必要性が示された）。

初期硝酸濃度の影響

硝酸濃度の低下に伴い溶解性が低下する傾向が認められた。Fragmentationモデルを用いた解析から、この低下が既報の評価式において考慮されている因子の変化（初期硝酸濃度の低下）のみにより説明可能であることを確認した（ただし、最終U濃度が溶解度に近い（U濃度／溶解度>約0.8）溶解条件下においては、既報の評価式では考慮されていない影響（溶解度近傍でのU濃度の影響等）について新たに評価を行う必要性が示された）。

粉末粒径の影響

粉末粒径の増大に伴い溶解性が低下する傾向が認められた。Fragmentationモデルを用いた解析から、この低下が比表面積の減少に伴う硝酸の攪拌及び燃料への浸透の低下によるものであることが示唆された。

燃料形態の影響

UO_2 粉末及びペレットを用いた溶解試験の結果から、ペレット溶解時における溶解速度の大幅な低下が観測された。Fragmentationモデルを用いた解析から、この低下が比表面積の減少に伴う硝酸の攪拌及び燃料への浸透の低下によるものであることが示唆された。また、 UO_2 ペレットの溶解挙動についても、最終U濃度が溶解度に対して十分低い（U濃度／溶解度<約0.8）溶解条件下においては、既報の評価式により（固液比の低下による補

正を行うことなく) 説明可能であることを確認した。

以上の結果は、 UO_2 粉末及び UO_2 ベレットの高濃度溶解時においても、最終 U 濃度が溶解度に対して十分低い (U 濃度／溶解度 < 約 0.8) 溶解条件下では、fragmentation モデルに基づいた既報の評価式によりその溶解挙動の予測が可能であることを示している。

本結果及び CPF においてこれまでに実施された使用済 MOX 燃料溶解試験より得られている結果を踏まえて、高濃度溶解時における照射済 MOX 燃料の溶解挙動について評価を行い、晶析工程への高 HM 濃度 (500g/L～) 溶液供給の可能性について検討を行った。

その結果、従来の燃料剪断片を用いた溶解では、固液比の低下に伴う溶解速度の減少により、高 HM 濃度の溶液を得るのが困難 (溶解時間が大幅に増加する) であるのに対し、粉体化した燃料を用いた溶解では速やかに (剪断片溶解時に比べ 1/数十の時間で) 高 HM 濃度溶液を得ることができるとの見通しを得た。また、粉体化した燃料の溶解時に懸念される溶解初期のオフガスの急激な発生は、溶解条件の最適化によりある程度回避できることを明らかとした。

7.今後の課題

本試験では、溶解対象として UO_2 粉末及びペレットを用い、高濃度溶解時における溶解挙動の評価を行った。したがって、5 章に述べた評価は、本試験で得られた結果が MOX 燃料に対しても当てはまるという仮定の下で実施しており、今後、MOX 燃料（粉末及び剪断片）を対象とした同様の試験を実施し、その溶解挙動の評価を進める必要がある。

本解析で使用した fragmentation モデルに基づいた評価式に関しては、本文中でも述べたように、最終 U 濃度が溶解度に近い (U 濃度／溶解度 > 約 0.8) 溶解条件下においては、U 濃度の影響を新たに考慮しなければならず、このような溶解条件下における溶解挙動を評価する際にはさらにデータを蓄積し、評価式の補正を行う必要がある。また、NOX 発生ガス量の評価については、現状では生成した NOX がすべて気相に移行するとして計算しており、より正確な評価を行う際には、NOX の水溶液への再溶解等反応式の見直しを含めた改良を行わなければならない。

本検討の結果、その有効性が認められた照射済 MOX 燃料の高濃度溶解時における燃料の粉体化については、現段階では粉末の粒径が溶解挙動に及ぼす影響が完全には明らかになっていない (CPF における溶解試験では粒径が $1000\mu\text{m}$ 以下の粉末に対する溶解挙動しか得られていない) ことから、今後種々の粒径を持つ粉末燃料を対象に溶解試験を実施し、粒径が溶解挙動に及ぼす影響についてデータを収集していかなければならない、その後、粉化方法及び粉末のハンドリングから望まれる粒径範囲を踏まえて、プロセス上最適な粒径を決定していく必要がある。また、粉末の溶解に伴うオフガス発生速度の増加に対しては、オスガス処理工程の最大処理能力を踏まえた上で、溶解条件の最適化を進めることが重要となるが、溶解条件の最適化だけでは対応が不十分な（オフガス処理系への負担を軽減しきれない）場合は、別途オフガス処理工程の見直しやオフガス低減化を狙った溶解方法（オフガスのリフラックス、無ヒューム溶解等）の導入を図ることが必要となる。

参考文献

- 1) 佐野雄一、小山智造、船坂英之、「CPF における照射済高速炉燃料溶解試験データの評価」、JNC TN8400 2000-014
- 2) "Nuclear Fuel Recovery and Recycling Center PSAR", Exxon Nuclear Co. Ritchland Wash. (USA), Docket 50564 (1976)
- 3) "Purex Technical Manual", Rockwell International, RHO-MA-116 (1980)
- 4) H. OHSAKI, S. FUJINE, M. MAEDA, T. ADACHI, T. SAKURAI and H. KUDO, Proc. RECOD'91, Vol.-II (1991)

表 2-1 最終 U 濃度の違いによる UO₂ 溶解挙動への影響評価試験

	RUN1-1	RUN1-2	RUN1-3	RUN1-4
初期 UO ₂ 重量 (g)	8.2	22.3	40.9	46.8
初期液量 (ml)	80	80	80	80
初期硝酸濃度 (M)	9.9	9.9	9.9	9.9
溶解温度 (°C)	50	50	50	50
液相サンプリング時間 (min)	5, 10, 15, 20, 25, 30, 45, 60.	5, 10, 15, 20, 25, 30, 45, 60.	5, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 90.	5, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 90.
予想される最終 U 濃度 (g/L)	90	246	451	516
予想される最終硝酸濃度 (M)	8.4	7.7	4.2	3.5
溶解度 (50°C) に対する割合 ^{2), 3)} (-)	0.15	0.42	0.73	0.81

表 2-2 最終 U 濃度及び溶解温度の違いによる UO₂ 溶解挙動への影響評価試験

	RUN2-1	RUN2-2	RUN2-3	RUN2-4	RUN2-5	RUN2-6	RUN2-7
初期 UO ₂ 重量 (g)	22.3	40.9	22.3	40.8	46.7	58.7	64.6
初期液量 (ml)	80	80	80	80	80	80	80
初期硝酸濃度 (M)	9.9	9.9	9.9	9.9	9.9	9.9	9.9
溶解温度 (°C)	45	45	80	80	80	80	80
液相サンプリング時間 (min)	5, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 90.	5, 10, 20, 30, 45, 60, 90, 120.	4, 8, 12, 16, 20, 30, 45, 60.	5, 10, 20, 30, 60, 90, 120, 180.			
予想される最終 U 濃度 (g/L)	246	450	246	450	514	602	712
予想される最終硝酸濃度 (M)	6.5	4.2	6.5	4.2	3.4	2.5	1.3
溶解度に対する割合 ^{2), 3)} (-)	0.47	0.82	0.26	0.43	0.47	0.53	0.61

表 2-3 最終 U 濃度及び初期硝酸濃度の違いによる UO_2 溶解挙動への影響評価試験

	RUN3-1	RUN3-2	RUN3-3	RUN3-4
初期 UO_2 重量 (g)	22.3	22.3	46.8	46.8
初期液量 (ml)	80	80	80	80
初期硝酸濃度 (M)	5.5	10.9	7.3	10.9
溶解温度 ($^{\circ}\text{C}$)	50	50	50	50
液相サンプリング時間 (min)	5, 10, 20, 40, 60, 120, 180, 240.	4, 8, 12, 16, 20, 30, 45, 60.	5, 10, 20, 40, 60, 120, 180, 300.	5, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 90.
予想される最終 U 濃度 (g/L)	246	246	515	515
予想される最終硝酸濃度 (M)	2.7	7.2	1.5	4.1
溶解度 (50°C) に対する割合 ^{2), 3)} (-)	0.37	0.42	0.72	0.84

表 2-4 粒径の違いによる UO_2 溶解挙動への影響評価試験

	RUN4-1	RUN4-2	RUN4-3
初期 UO_2 重量 (g)	40.9	40.9	40.9
粒径 (μm)	100~500	500~1000	>1000
初期液量 (ml)	80	80	80
初期硝酸濃度 (M)	9.9	9.9	9.9
溶解温度 ($^{\circ}\text{C}$)	50	50	50
液相サンプリング時間 (min)	5, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 90.	5, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 90.	5, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 90.
予想される最終 U 濃度 (g/L)	451	451	451
予想される最終硝酸濃度 (M)	4.2	4.2	4.2
溶解度 (50°C) に対する割合 ^{2), 3)} (-)	0.73	0.73	0.73

表 2-5 最終 U 濃度及び燃料形態の違いによる UO₂溶解挙動への影響評価試験 (UO₂ペレット使用)

	RUN5-1	RUN5-2	RUN5-3	RUN5-4	RUN5-5
初期 UO ₂ 重量 (g)	22	41.6	49	61.2	60.7
初期液量 (ml)	80	80	80	80	80
初期硝酸濃度 (M)	9.7	9.7	9.7	9.7	9.7
溶解温度 (°C)	80	80	80	80	80
液相サンプリング時間 (min)	10, 20, 30, 40, 50, 60, 90, 120.	5, 10, 20, 30, 60, 90, 120, 180.			
予想される最終 U 濃度 (g/L)	242	458	540	674	0.65
予想される最終硝酸濃度 (M)	6.5	4.1	3.2	1.7	1.0
溶解度 (80°C) に対する割合 ^{2), 3)} (-)	0.25	0.43	0.48	0.58	0.65

表4-1(1) 酸濃度、U濃度、溶解率、発生ガス量の変化

RUN1-1

初期UO₂重量:8.2g 粒径:<100μm 溶解温度:50°C

初期液量:80ml 最終液量:72ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (-)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	—
5	7.98	55.39	0.61	—
10	8.58	79.99	0.88	—
15	7.90	71.66	0.79	—
20	8.54	91.55	1.01	—
25	8.52	92.64	1.02	—
30	8.57	99.93	1.10	—
45	8.52	96.44	1.06	—
60	8.52	98.21	1.08	—

*ガスマータ不調のため発生ガス量は測定できず

RUN1-2

初期UO₂重量:22.3g 粒径:<100μm 溶解温度:50°C

初期液量:80ml 最終液量:75ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (-)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
5	6.89	199.38	0.81	0.31
10	6.71	231.45	0.94	0.50
15	6.63	223.76	0.91	0.53
20	6.53	253.73	1.03	0.54
25	6.47	253.47	1.03	0.56
30	6.47	243.61	0.99	0.56
45	6.34	256.07	1.04	0.56
60	6.37	253.47	1.03	0.57

RUN1-3

初期UO₂重量:40.9g 粒径:<100μm 溶解温度:50°C

初期液量:80ml 最終液量:77ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (-)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
5	4.50	343.29	0.76	1.22
10	4.37	403.62	0.89	1.44
20	3.77	445.44	0.98	1.63
30	3.81	449.95	0.99	1.69
40	3.98	438.04	0.97	1.70
50	3.84	439.24	0.97	1.71
60	3.93	452.01	1.00	1.72
90	3.84	466.64	1.03	1.73

表4-1(2) 酸濃度、U濃度、溶解率、発生ガス量の変化

RUN1-4

初期 UO_2 重量:46.8g 粒径:<100 μm 溶解温度:50°C

初期液量:80ml 最終液量:76ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (-)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
5	3.40	421.10	0.82	1.42
10	3.16	403.57	0.78	1.67
20	2.63	434.78	0.84	1.85
30	2.55	461.61	0.89	1.89
40	2.43	453.96	0.88	1.91
50	2.74	487.87	0.94	1.91
60	2.51	464.36	0.90	1.91
90	2.72	507.91	0.98	1.91

表4-2(1) 酸濃度、U濃度、溶解率、発生ガス量の変化

RUN2-1

初期 UO_2 重量:22.3g 粒径:<100μm 溶解温度:45°C

初期液量:80ml 最終液量:75ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
5	6.89	225.06	0.92	0.28
10	6.54	221.23	0.90	0.48
20	6.39	258.84	1.05	0.56
30	6.31	250.38	1.02	0.57
40	6.36	265.23	1.07	0.59
50	6.31	233.44	0.95	0.59
60	6.32	258.69	1.05	0.60
90	6.26	256.46	1.04	0.60

RUN2-2

初期 UO_2 重量:40.9g 粒径:<100μm 溶解温度:45°C

初期液量:80ml 最終液量:75ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
5	4.64	305.26	0.68	0.39
10	4.07	376.24	0.83	0.39
20	3.42	422.28	0.93	0.39
30	3.69	445.64	0.98	0.39
45	3.58	441.56	0.97	0.39
60	3.59	447.91	0.99	0.39
90	3.59	430.90	0.95	0.39
120	3.55	457.66	1.01	0.39

*ガスマータ不調のため発生ガス量は正確でない

RUN2-3

初期 UO_2 重量:22.3g 粒径:<100μm 溶解温度:80°C

初期液量:80ml 最終液量:75ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
4	6.92	152.81	0.62	0.10
8	6.49	233.13	0.94	0.52
12	6.42	237.07	0.96	0.68
16	6.23	230.22	0.93	0.75
20	6.19	247.64	1.00	0.82
30	6.16	250.90	1.01	0.86
45	6.15	253.25	1.02	0.88
60	6.15	255.35	1.03	0.88

表4-2(2) 酸濃度、U濃度、溶解率、発生ガス量の変化

RUN2-4

初期UO₂重量:40.8g 粒径:<100μm 溶解温度:80°C

初期液量:80ml 最終液量:76ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
4	5.64	305.10	0.68	1.12
8	4.21	427.34	0.95	1.43
12	3.95	469.00	1.04	1.68
16	3.69	445.54	0.99	1.72
20	3.70	461.27	1.02	1.73
30	3.62	458.77	1.02	1.74
45	3.67	462.51	1.02	1.74
60	3.71	461.02	1.02	1.74

RUN2-5

初期UO₂重量:46.7g 粒径:<100μm 溶解温度:80°C

初期液量:80ml 最終液量:76ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
4	4.23	356.74	0.69	1.12
8	3.27	447.00	0.87	1.43
12	2.79	497.35	0.96	1.68
16	2.65	512.09	0.99	1.72
20	2.62	508.01	0.98	1.73
30	2.62	518.44	1.00	1.74
45	2.66	508.91	0.98	1.74
60	2.64	510.73	0.99	1.74

RUN2-6

初期UO₂重量:58.7g 粒径:<100μm 溶解温度:80°C

初期液量:80ml 最終液量:76ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	
4	3.69	349.71	0.58	
8	2.68	476.71	0.79	
12	2.28	585.57	0.97	
17	2.06	593.73	0.98	
20	2.12	598.72	0.99	
30	2.01	598.27	0.99	
45	2.04	624.58	1.03	
60	2.07	615.05	1.01	

*ガスマーテ不調のため発生ガス量は測定できず

表4-2(3) 酸濃度、U濃度、溶解率、発生ガス量の変化

RUN2-7

初期UO₂重量:64.6g 粒径:100μm 溶解温度:80°C

初期液量:80ml 最終液量:79.5ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
5	3.26	457.08	0.64	0.84
10	2.01	576.10	0.81	0.89
20	1.10	638.06	0.89	0.89
30	1.32	702.45	0.98	0.89
60	0.91	692.20	0.97	0.89
90	0.89	690.74	0.96	0.89
120	1.01	687.34	0.96	0.89
180	0.82	715.08	1.00	0.89

*ガスマーテ不調のため発生ガス量は正確でない

表4-3(1) 酸濃度、U濃度、溶解率、発生ガス量の変化

RUN3-1

初期UO₂重量:22.3g 粒径:<100μm 溶解温度:50°C
初期液量:80ml 最終液量:74.5ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	5.50	0	0	0
5	4.41	59.99	0.24	0.84
10	3.40	154.22	0.62	0.89
20	2.73	204.34	0.82	0.89
40	2.38	228.94	0.92	0.89
60	2.33	246.52	0.99	0.89
120	2.34	251.51	1.01	0.89
180	2.34	252.64	1.01	0.89
240	2.34	252.19	1.01	0.89

*ガスマーテ不調のため発生ガス量は正確でない

RUN3-2

初期UO₂重量:22.3g 粒径:<100μm 溶解温度:50°C
初期液量:80ml 最終液量:75ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	10.90	0	0	0
4	7.79	181.88	0.74	0.84
8	7.42	209.33	0.85	0.89
12	7.24	240.40	0.97	0.89
16	7.23	236.99	0.96	0.89
20	7.27	242.66	0.98	0.89
30	7.06	229.51	0.93	0.89
45	7.13	246.07	1.00	0.89
60	7.20	253.10	1.02	0.89

RUN3-3

初期UO₂重量:46.8g 粒径:<100μm 溶解温度:50°C
初期液量:80ml 最終液量:77.5ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	7.30	0	0	0
5	3.89	220.52	0.43	0.51
10	2.91	307.71	0.60	0.91
20	2.07	406.57	0.78	1.35
40	1.37	439.52	0.85	1.35
60	1.05	475.00	0.91	1.36
120	0.82	511.50	0.98	1.36
180	0.81	499.34	0.96	1.37
300	0.66	519.61	0.99	1.37

表4-3(2) 酸濃度、U濃度、溶解率、発生ガス量の変化

RUN3-4

初期 UO_2 重量:46.8g 粒径:<100 μm 溶解温度:50°C

初期液量:80ml 最終液量:78ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	10.90	0	0	0
5	4.22	414.55	0.80	1.52
10	4.12	445.93	0.86	1.69
20	3.70	456.63	0.88	1.80
30	3.43	482.42	0.93	1.83
40	3.69	506.91	0.98	1.83
50	3.75	486.17	0.94	1.84
60	3.85	484.36	0.94	1.84
90	3.49	510.37	0.98	1.84

表4-4 酸濃度、U濃度、溶解率、発生ガス量の変化

RUN4-1

初期UO₂重量:40.9g 粒径:100~500μm 溶解温度:50°C

初期液量:80ml 最終液量:76ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
5	6.21	225.20	0.50	0.44
10	5.54	270.11	0.60	0.63
20	4.78	349.71	0.77	1.02
30	4.06	386.45	0.85	1.21
40	3.97	409.13	0.90	1.33
50	3.79	422.73	0.93	1.39
60	3.77	437.25	0.96	1.43
90	3.57	459.47	1.00	1.48

RUN4-2

初期UO₂重量:40.9g 粒径:500~1000μm 溶解温度:50°C

初期液量:80ml 最終液量:75ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
5	6.17	203.43	0.45	0.40
10	5.58	257.86	0.57	0.59
20	5.15	328.39	0.72	0.88
30	4.40	351.75	0.77	1.07
40	4.32	382.37	0.84	1.18
50	3.96	395.29	0.87	1.25
60	3.78	398.47	0.87	1.30
90	3.58	420.47	0.92	1.36

RUN4-3

初期UO₂重量:40.9g 粒径:>1000μm 溶解温度:50°C

初期液量:80ml 最終液量:76ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
5	8.49	78.02	0.17	0.10
10	7.00	177.80	0.39	0.33
20	6.38	242.21	0.53	0.49
30	5.87	274.19	0.60	0.55
40	5.52	303.90	0.66	0.63
50	5.27	330.20	0.72	0.72
60	5.03	354.02	0.77	0.80
90	4.54	388.04	0.84	0.95

表4-5(1) 酸濃度、U濃度、溶解率、発生ガス量の変化

RUN6-1

初期UO₂重量:22.0g(ペレット) 溶解温度:80°C

初期液量:80ml 最終液量:74.5ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
10	9.09	34.59	0.14	0.18
20	8.79	68.04	0.28	0.20
30	8.02	123.26	0.50	0.37
40	7.42	165.10	0.67	0.55
50	6.98	196.56	0.79	0.63
60	6.67	214.77	0.87	0.66
90	6.27	237.67	0.95	0.74
120	6.29	244.48	0.98	0.76

RUN6-2

初期UO₂重量:41.6g(ペレット) 溶解温度:80°C

初期液量:80ml 最終液量:77ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
10	9.17	19.28	0.04	0.15
20	7.88	110.45	0.24	0.29
30	6.74	206.15	0.44	0.62
40	5.37	247.20	0.53	0.91
50	5.07	316.60	0.68	1.16
60	4.57	350.84	0.75	1.32
90	3.76	416.16	0.88	1.61
120	3.51	436.12	0.92	1.69

RUN6-3

初期UO₂重量:49.0g(ペレット) 溶解温度:80°C

初期液量:80ml 最終液量:76.5ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
10	9.04	28.58	0.05	0.11
20	8.07	100.69	0.19	0.33
30	6.31	236.09	0.43	0.68
40	5.22	311.61	0.57	1.01
50	4.42	373.97	0.68	1.24
60	3.84	415.02	0.75	1.39
90	2.95	488.50	0.88	1.64
120	2.59	534.77	0.96	1.71

表4-5(2) 酸濃度、U濃度、溶解率、発生ガス量の変化

RUN6-4

初期UO₂重量:61.2g(ペレット) 溶解温度:80°C

初期液量:80ml 最終液量:71ml

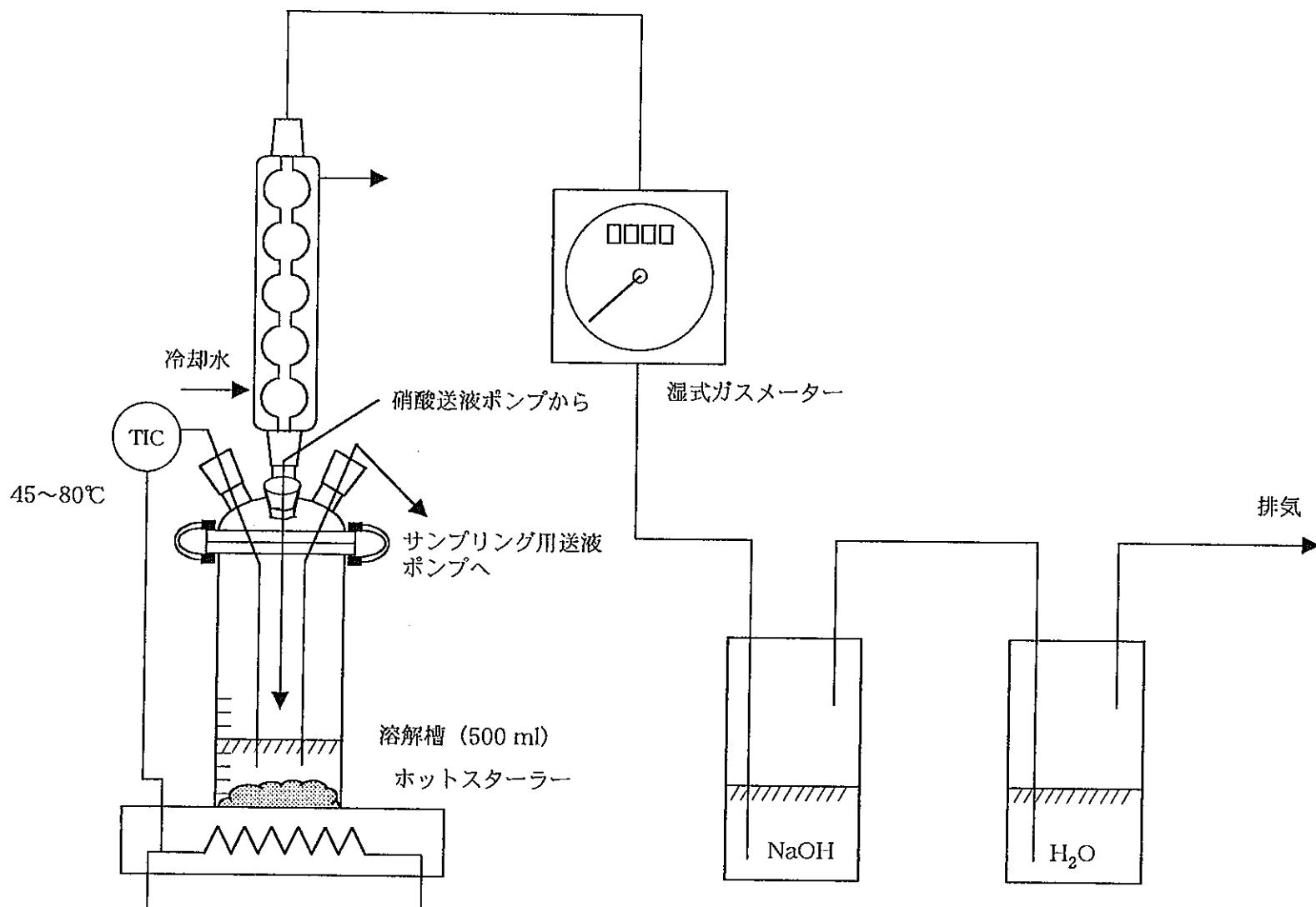
測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
10	8.88	43.77	0.06	0.12
20	7.12	178.26	0.26	0.51
30	5.41	303.44	0.44	0.93
40	4.03	390.53	0.57	1.27
50	3.15	456.30	0.66	1.53
60	2.69	481.25	0.70	1.71
90	2.01	610.52	0.88	2.02
133	1.42	642.72	0.92	2.14

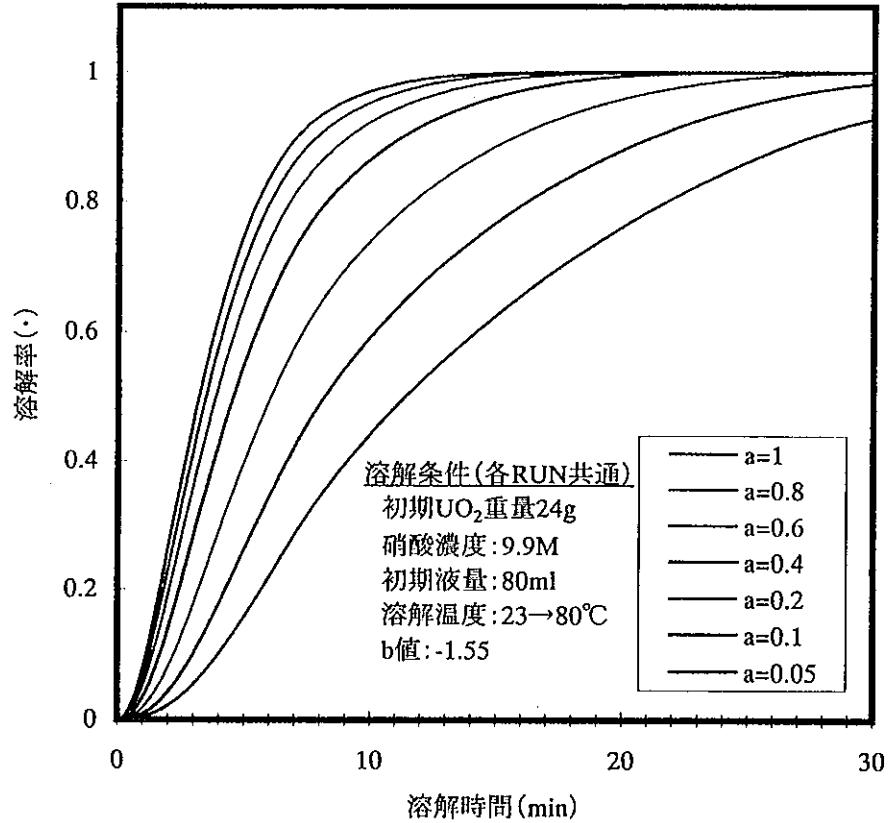
RUN6-5

初期UO₂重量:66.1g(ペレット) 溶解温度:80°C

初期液量:80ml 最終液量:75.5ml

測定時間 (min)	H濃度 (M)	U濃度 (g/l)	溶解率 (%)	発生ガス量 (L)
0	9.90	0	0	0
10	8.72	42.18	0.06	0.13
20	7.03	178.03	0.23	0.55
30	5.26	303.90	0.39	1.03
40	3.98	399.60	0.51	1.40
60	2.33	501.20	0.64	1.98
90	1.49	575.14	0.73	2.23
120	1.10	616.41	0.78	2.39
180	0.76	703.50	0.89	2.47

図2-1 高濃度溶解時における UO_2 溶解挙動評価試験装置の概略図



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

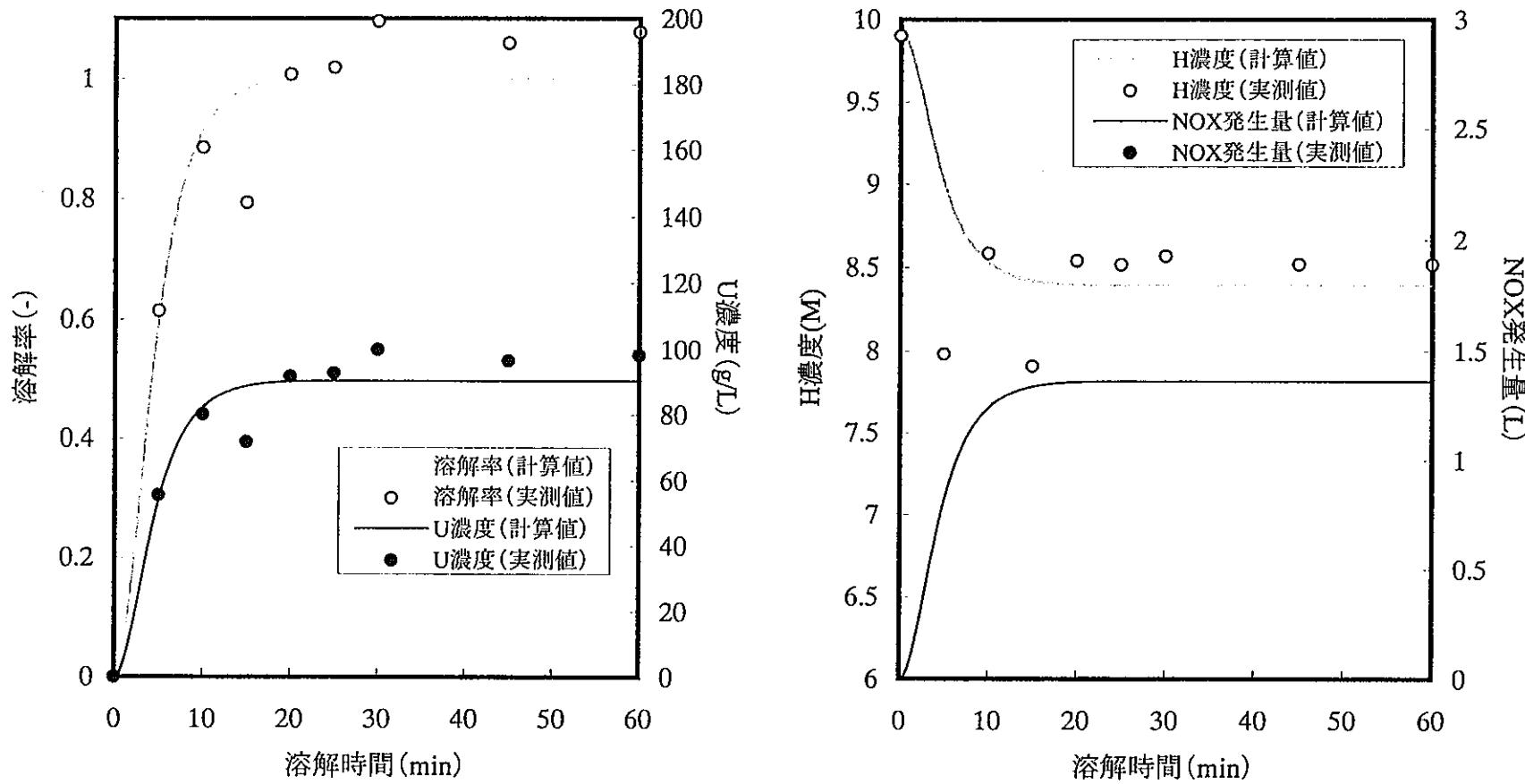
$$\frac{dW_u}{dt} = -f \cdot \frac{W_e}{\lambda} \cdot \frac{W_u}{W_e} = -f \cdot \frac{W_u}{\lambda}$$

$$\frac{dW_e}{dt} = f \cdot \frac{W_u}{\lambda} - \frac{W_e}{\lambda}$$

$$\frac{1}{\lambda} = 4.87 \times 10^8 \cdot ([HNO_3] - 0.32[U])^2 \cdot \exp\left(-\frac{62.8 \times 10^3}{RT}\right)$$

$$f = a \cdot \exp(b \cdot d) \quad d: \text{溶解率}$$

図3-1 f値の変化による溶解挙動の変化(粉末溶解)



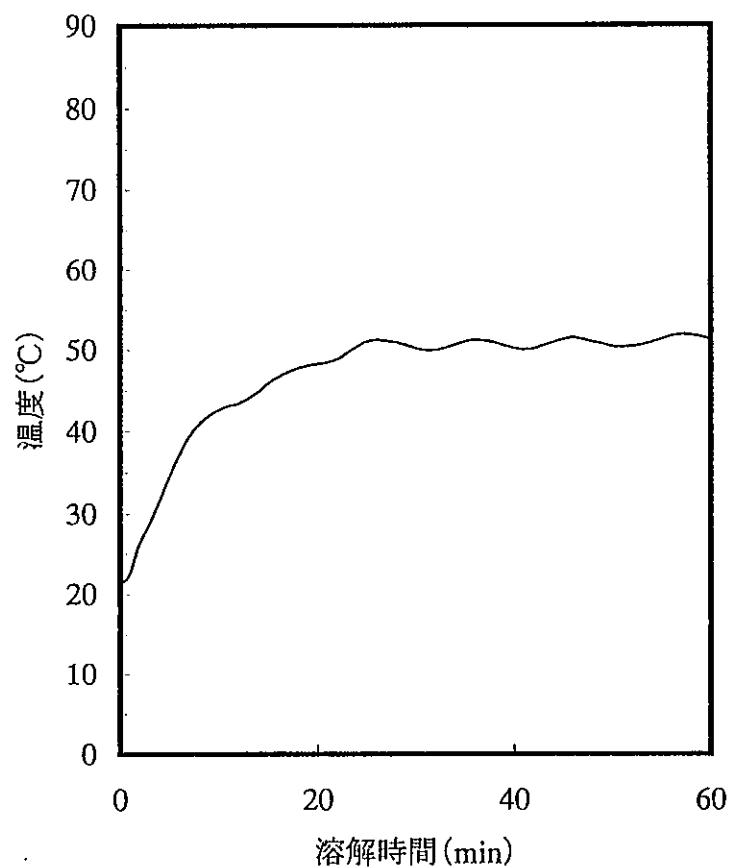
*ガスマーテ不調のため、ガス発生量の測定できず

計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 8.2g 粒径: <100 μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 50°C 初期硝酸濃度: 9.9M

$$f=0.91 \exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-1(1a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN1-1)

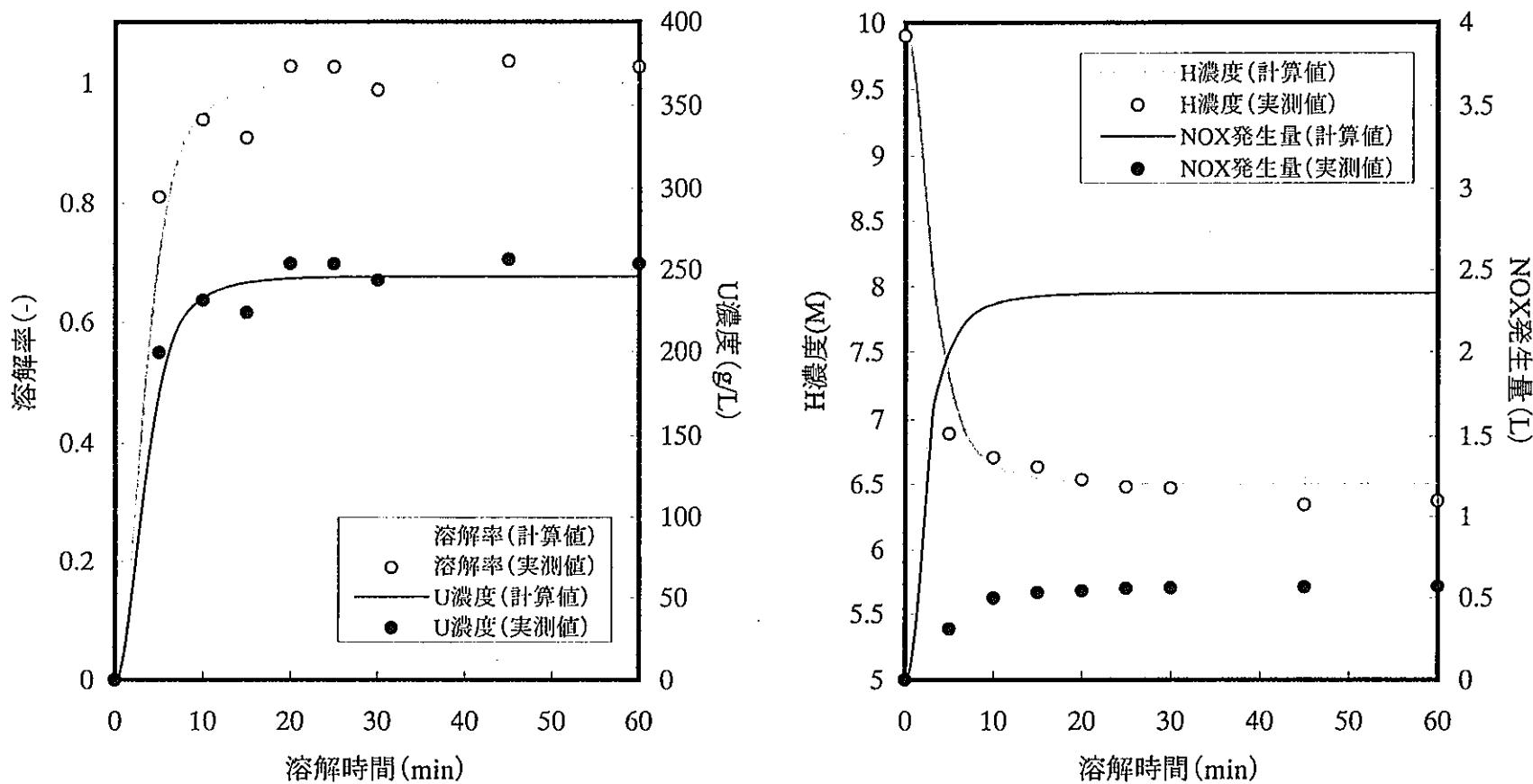


計算及び試験条件

初期UO₂重量:8.2g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9M

$$f=0.91\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

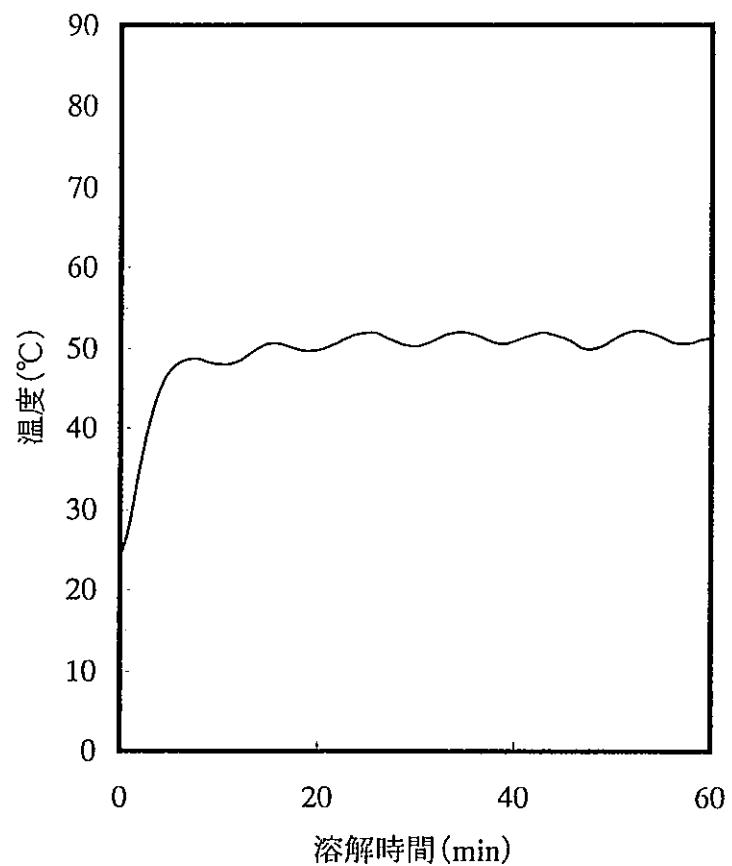
図4-1(1b) 溶解温度の変化(RUN1-1)



計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 22.3g 粒径: <100 μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 50°C 初期硝酸濃度: 9.9M
 $f=0.82\exp(-1.55d)$ d: 溶解率

図4-1(2a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN1-2)

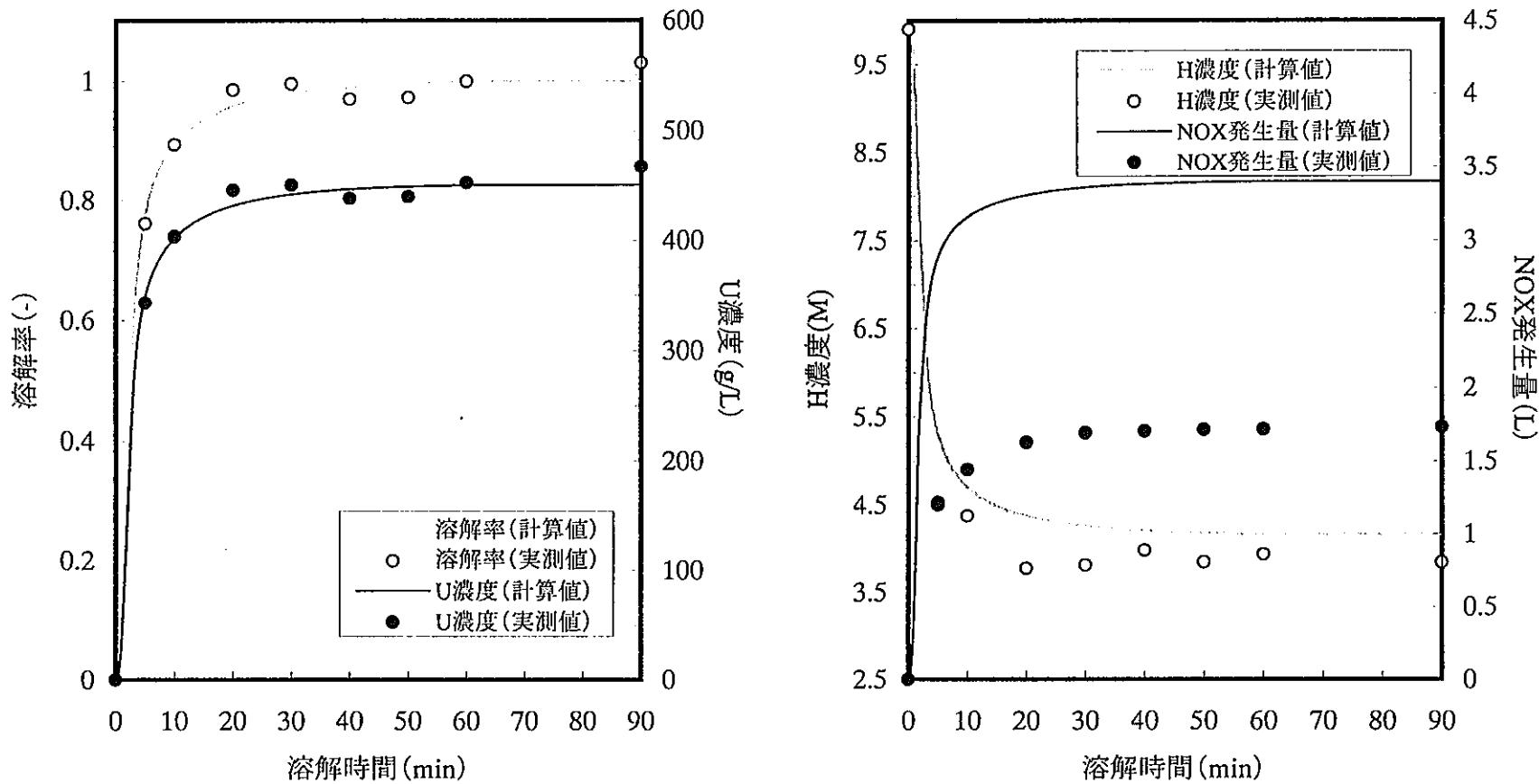


計算及び試験条件

初期UO₂重量:22.3g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9M

$$f=0.82\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-1(2b) 溶解温度の変化(RUN1-2)

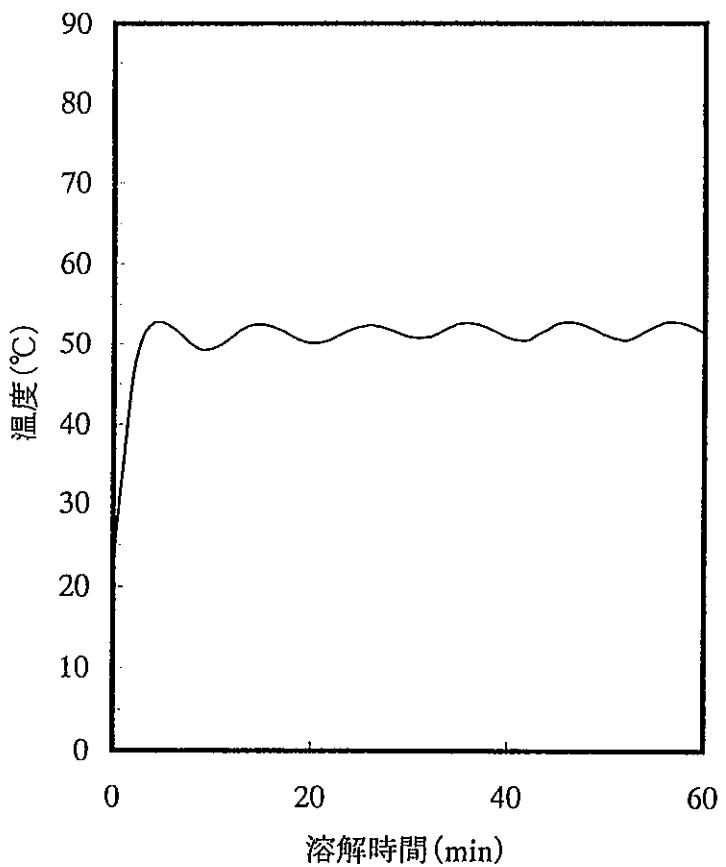


計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 40.9g 粒径: <100 μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 50°C 初期硝酸濃度: 9.9M

$$f = 0.70 \exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-1(3a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN1-3)

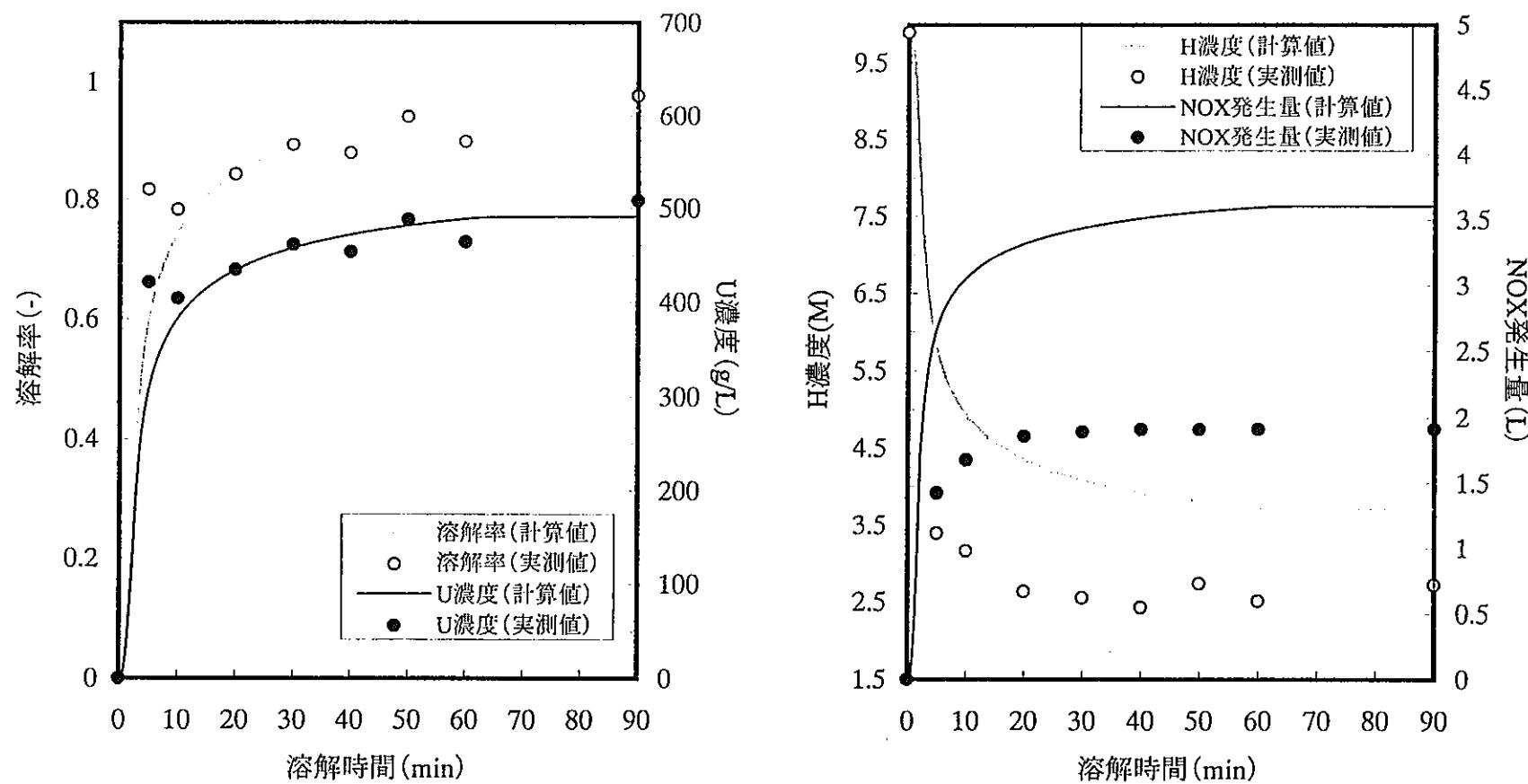


計算及び試験条件

初期 UO_2 重量:40.9g 粒径:<100 μm 初期液量:80ml 溶解温度:50 $^{\circ}\text{C}$ 初期硝酸濃度:9.9M

$f=0.70\exp(-1.55d)$ d:溶解率

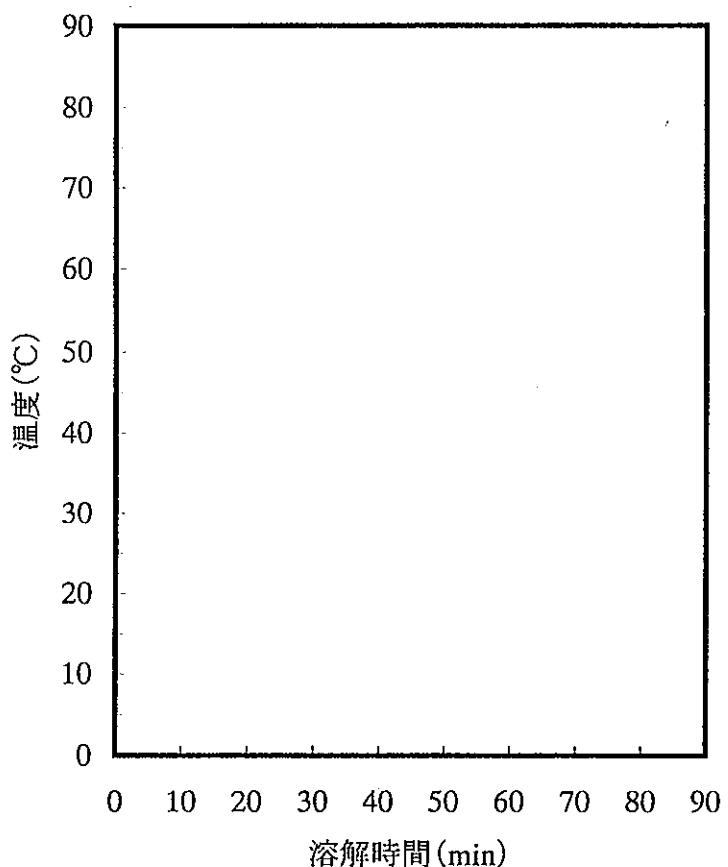
図4-1(3b) 溶解温度の変化(RUN1-3)



計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 46.8g 粒径: <100 μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 50°C 初期硝酸濃度: 9.9M
 $f=0.29\exp(-1.55d)$ d: 溶解率

図4-1(4a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN1-4)



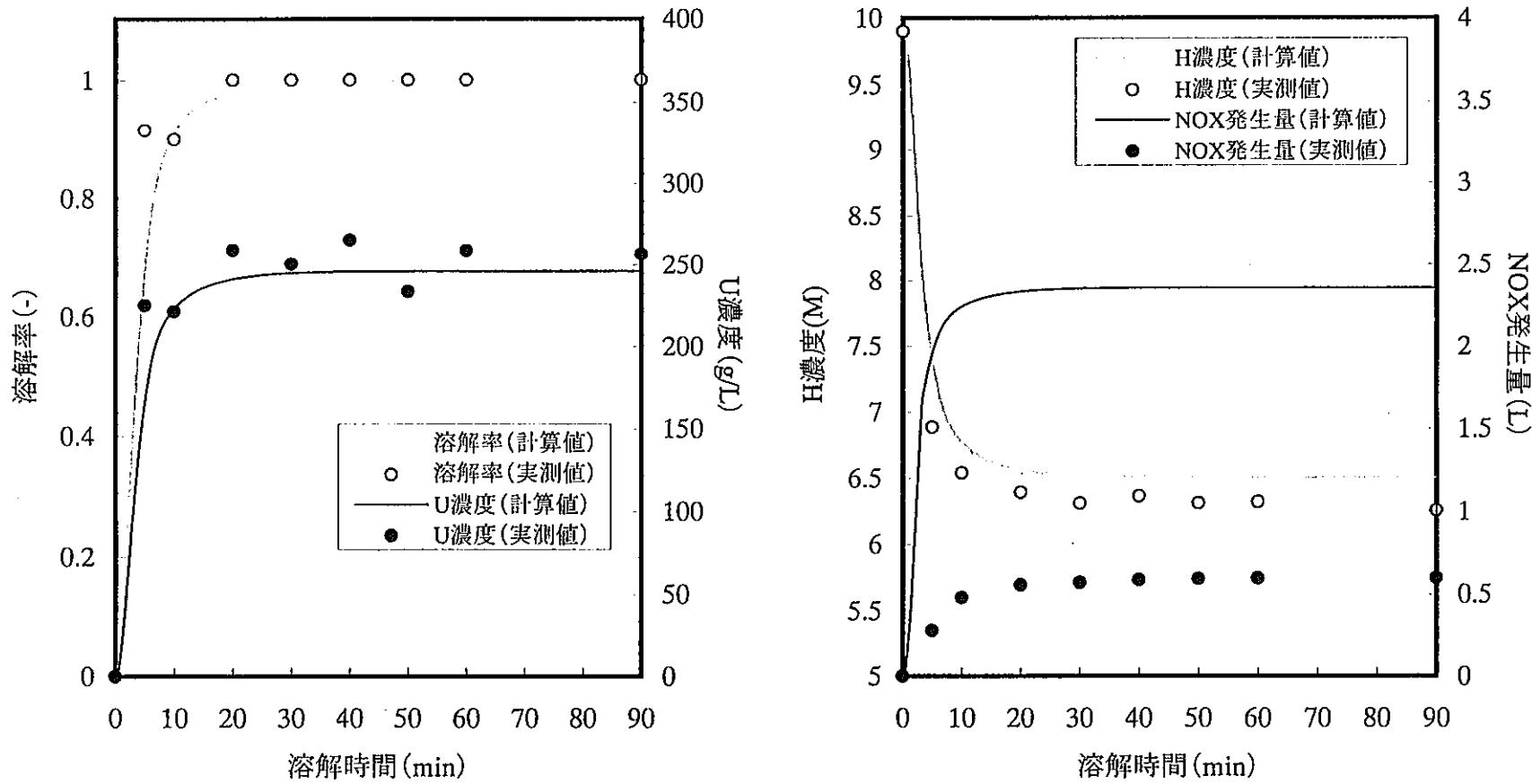
*温度計不調のため、温度変化の測定できず

計算及び試験条件

初期UO₂重量:46.8g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9M

$$f=0.29\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

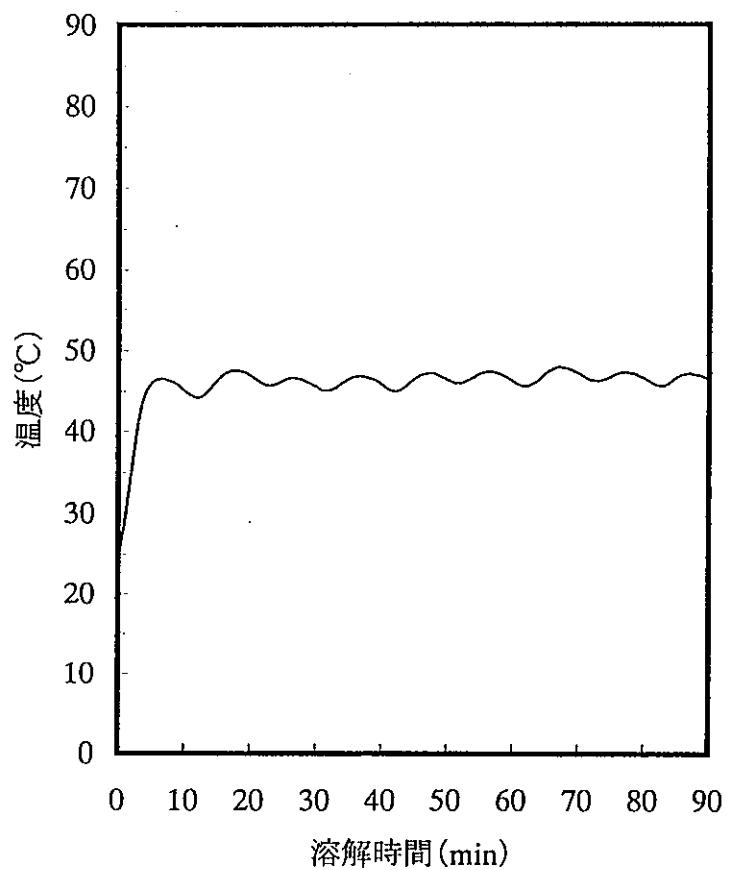
図4-1(4b) 溶解温度の変化(RUN1-4)



計算及び試験条件

初期UO₂重量: 22.3g 粒径: <100μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 45°C 初期硝酸濃度: 9.9M
 $f=0.72\exp(-1.55d)$ d: 溶解率

図4-2(1a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN2-1)

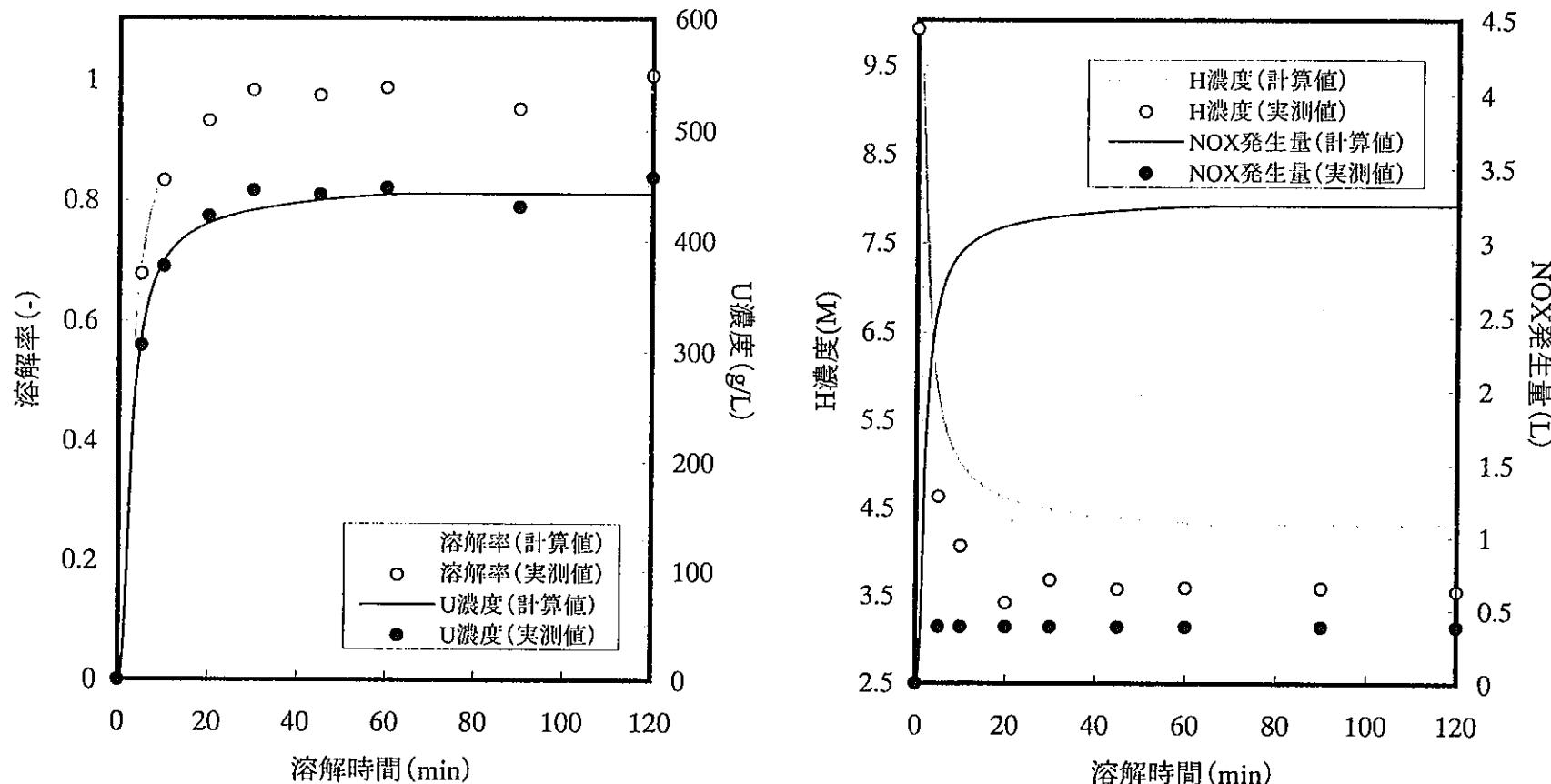


計算及び試験条件

初期UO₂重量:22.3g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:45°C 初期硝酸濃度:9.9M

$$f=0.72\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-2(1b) 溶解温度の変化(RUN2-1)



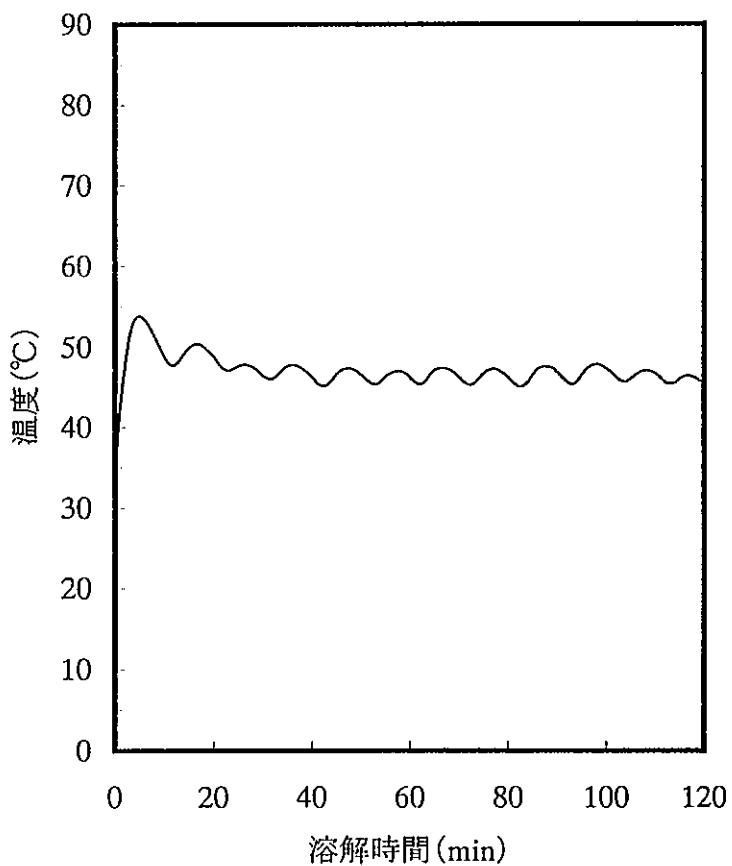
*ガスマーテ不調のため、ガス発生量は正確ではない

計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 40.9g 粒径: <100 μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 45°C 初期硝酸濃度: 9.9M

$$f = 0.41 \exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

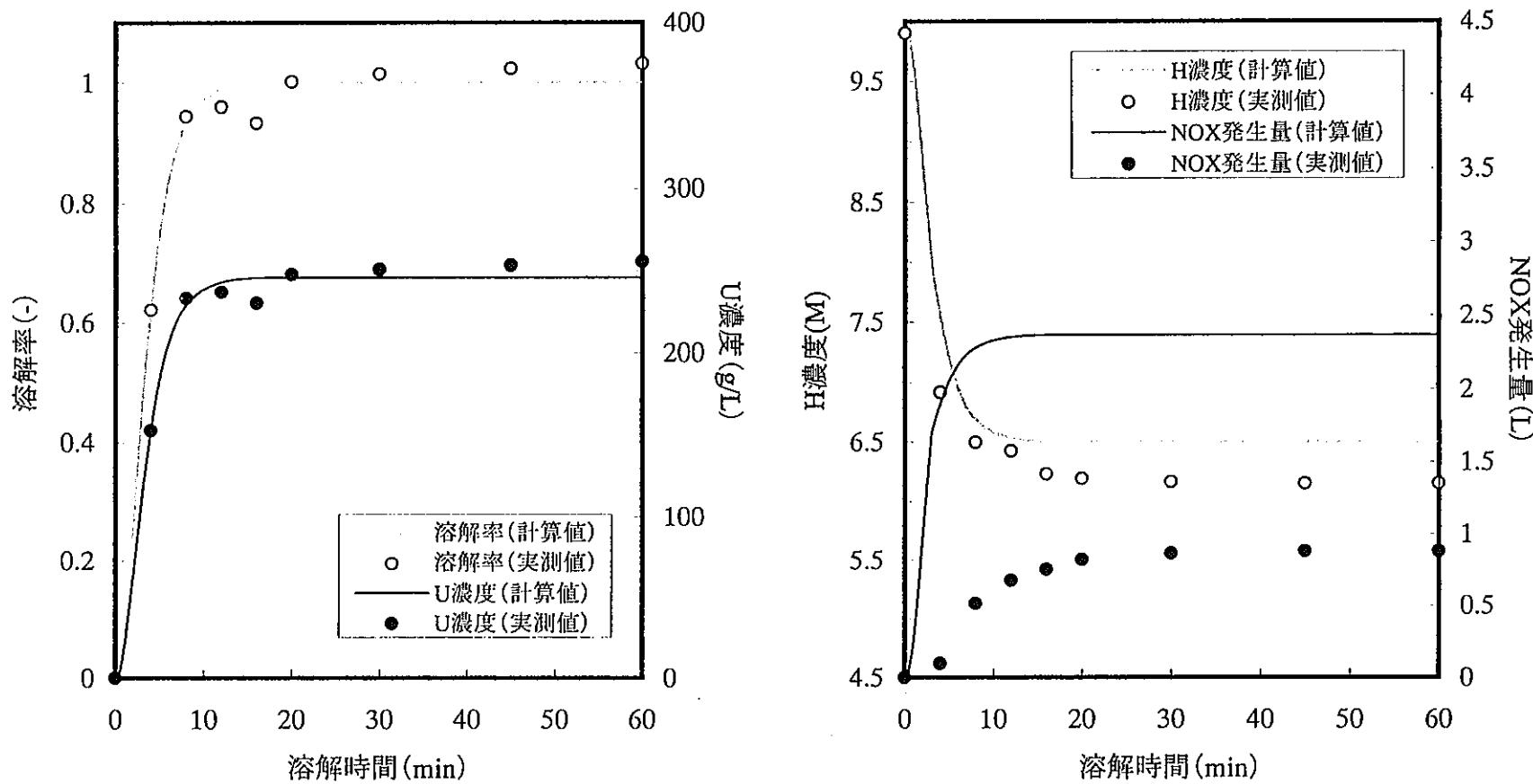
図4-2(2a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN2-2)

計算及び試験条件

初期UO₂重量: 40.9g 粒径: <100μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 45°C 初期硝酸濃度: 9.9M

$$f=0.41\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-2(2b) 溶解温度の変化(RUN2-2)

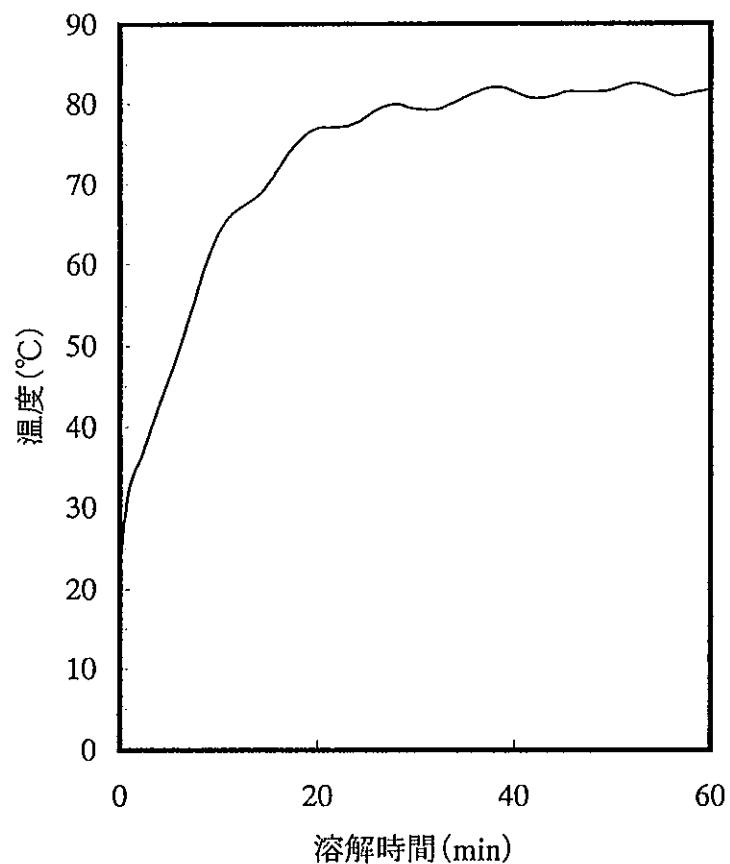


計算及び試験条件

初期UO₂重量: 22.3g 粒径: <100μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 80°C 初期硝酸濃度: 9.9M

$$f = \exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-2(3a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN2-3)

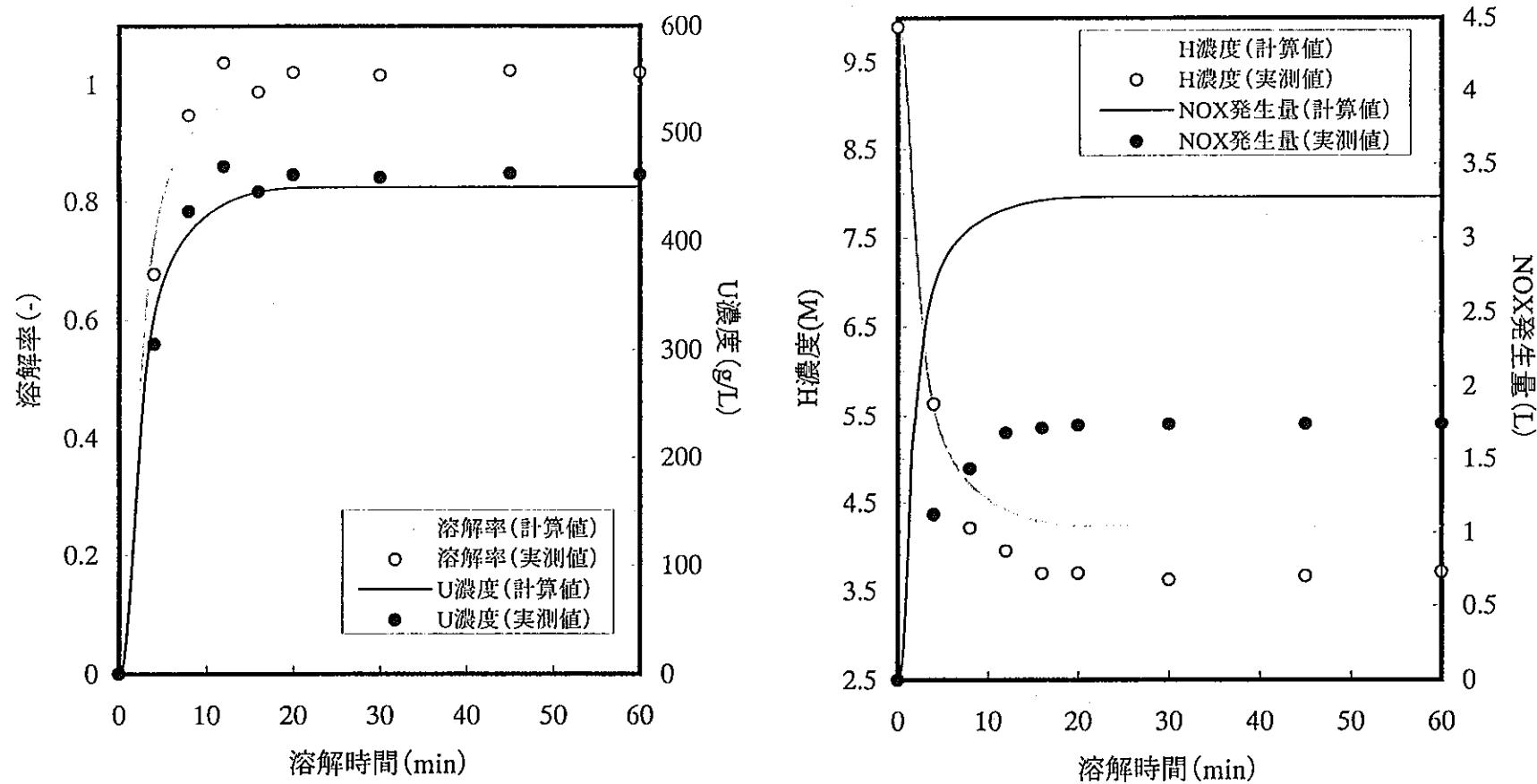


計算及び試験条件

初期UO₂重量:22.3g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:80°C 初期硝酸濃度:9.9M

$$f = \exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-2(3b) 溶解温度の変化(RUN2-3)

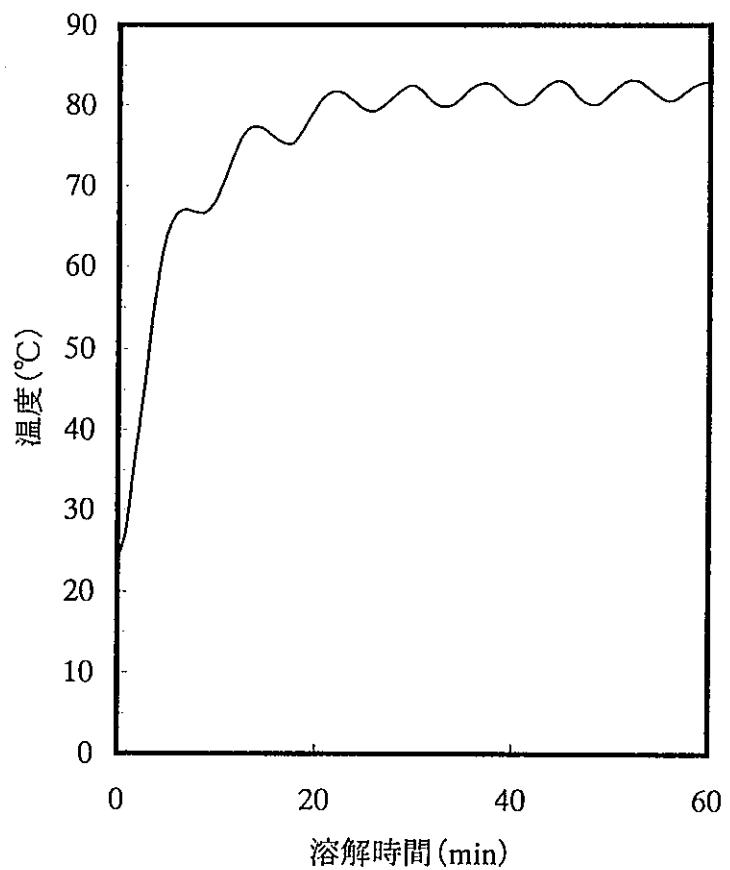


計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 40.8g 粒径: <100μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 80°C 初期硝酸濃度: 9.9M

$$f = 0.76 \exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-2(4a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN2-4)

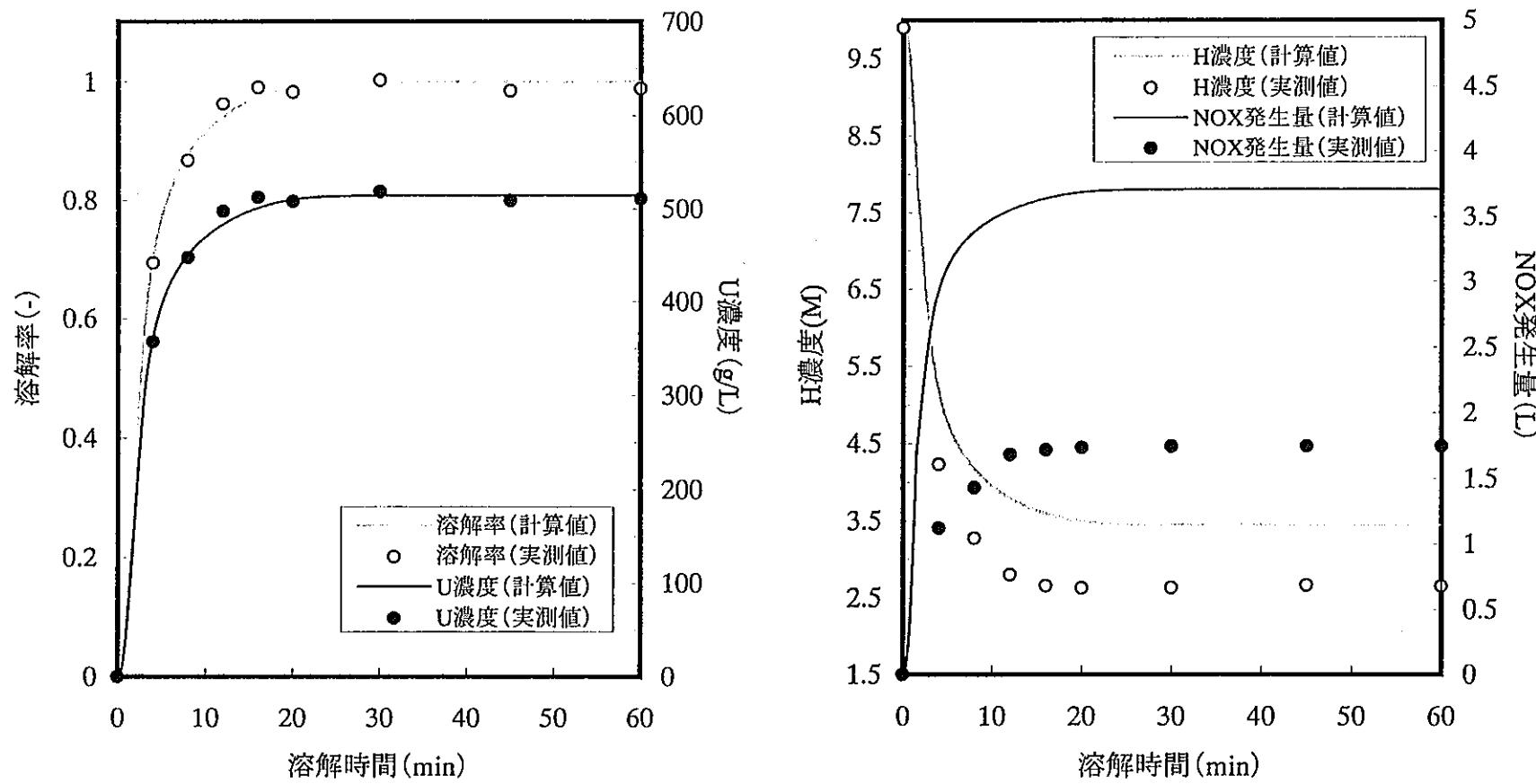


計算及び試験条件

初期UO₂重量:40.8g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:80°C 初期硝酸濃度:9.9M

$$f=0.76\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

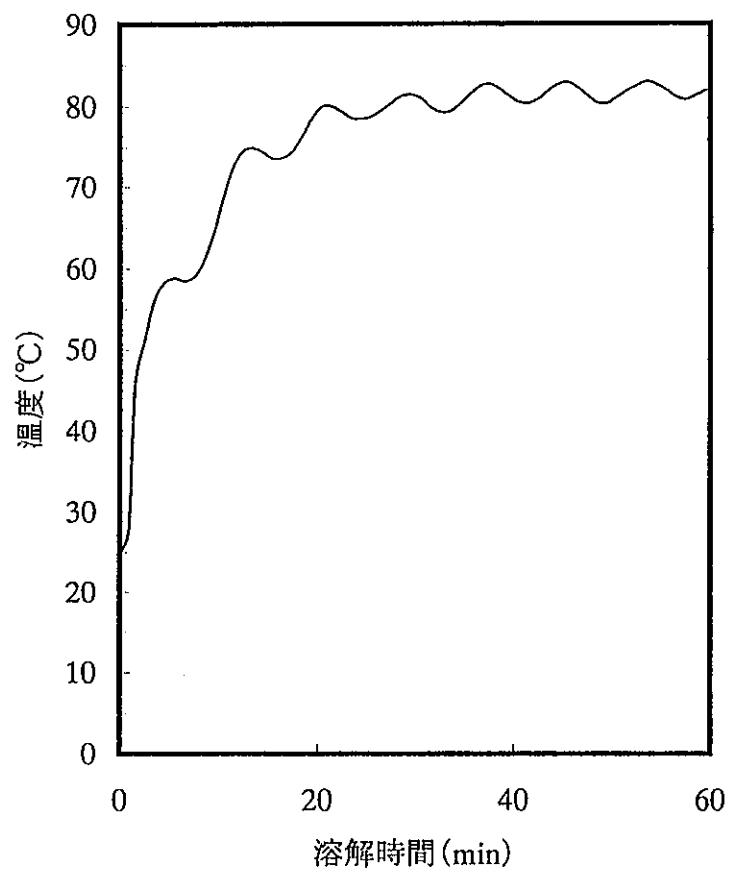
図4-2(4b) 溶解温度の変化(RUN2-4)



計算及び試験条件

初期 UO_2 重量:46.7g 粒径:<100 μm 初期液量:80ml 溶解温度:80°C 初期硝酸濃度:9.9M
 $f=0.76\exp(-1.55d)$ d:溶解率

図4-2(5a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN2-5)

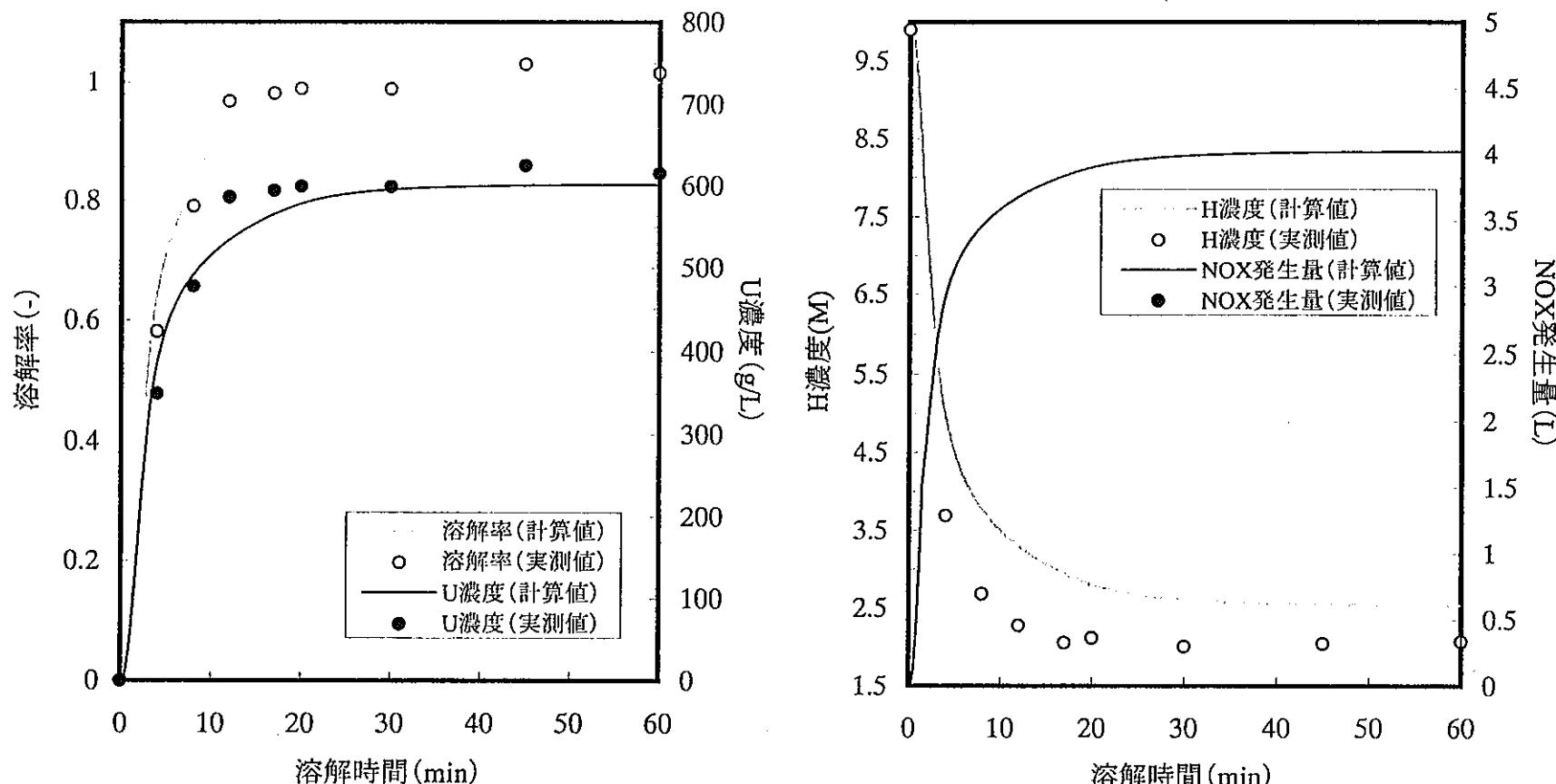


計算及び試験条件

初期UO₂重量:46.7g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:80°C 初期硝酸濃度:9.9M

$$f=0.76\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-2(5b) 溶解温度の変化(RUN2-5)

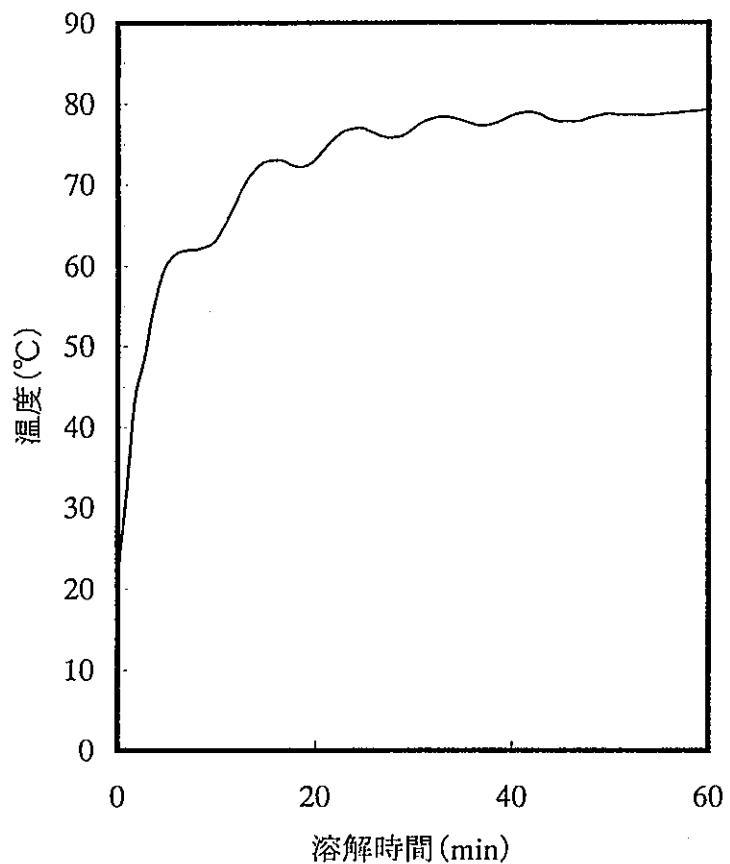


*ガスマータ不調のため、ガス発生量の測定できず

計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 58.7g 粒径: <100 μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 80°C 初期硝酸濃度: 9.9M
 $f = 0.64 \exp(-1.55d)$ d: 溶解率

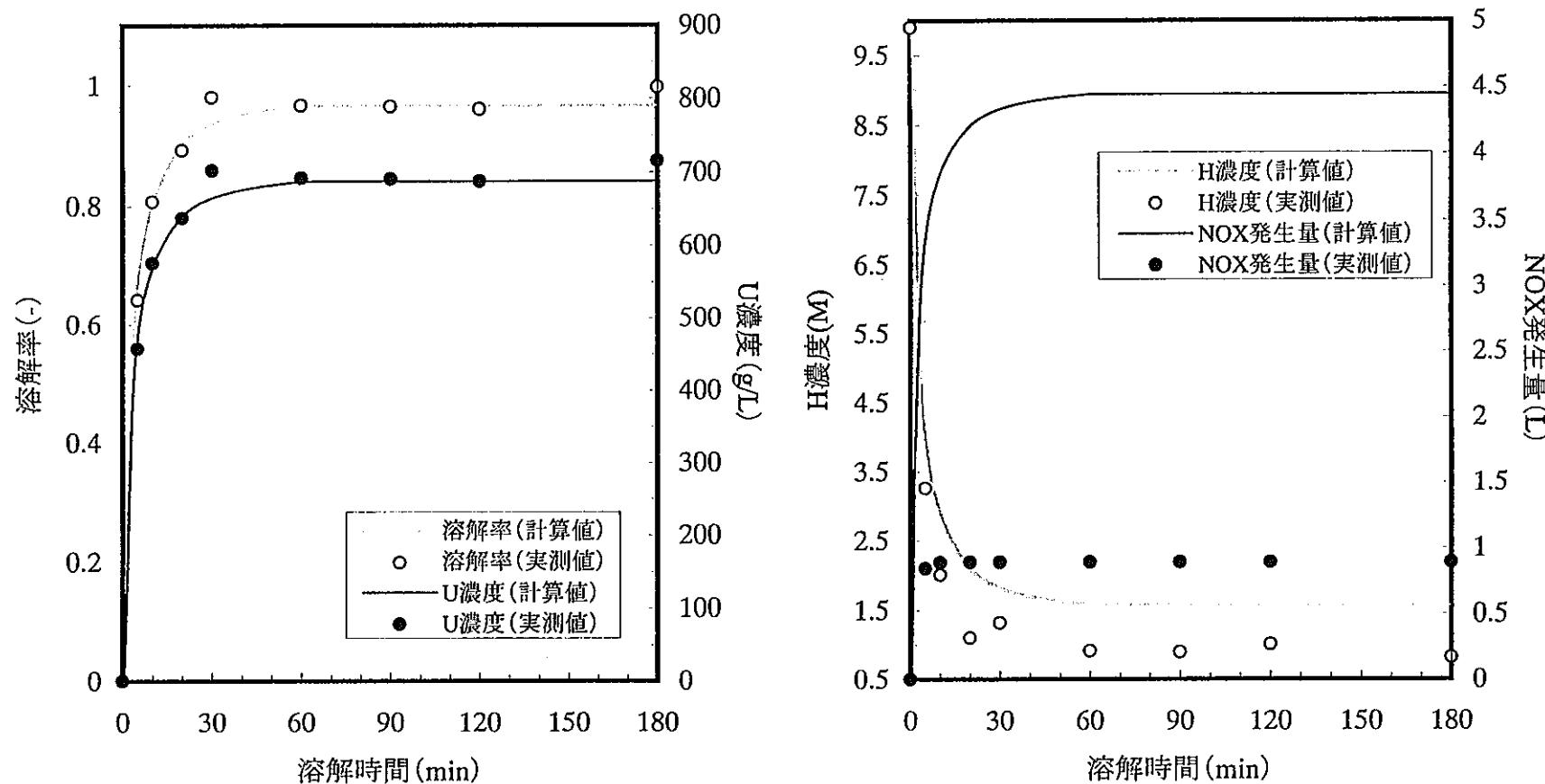
図4-2(6a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN2-6)



計算及び試験条件

初期 UO_2 重量:58.7g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:80°C 初期硝酸濃度:9.9M
 $f=0.64\exp(-1.55d)$ d:溶解率

図4-2(6b) 溶解温度の変化(RUN2-6)

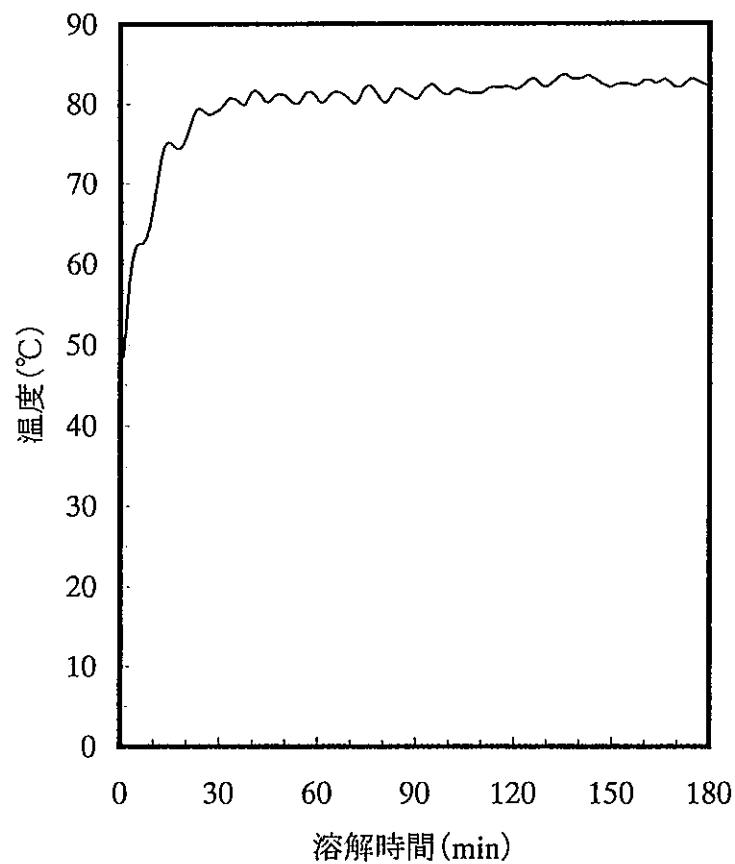


*ガスマーテ不調のため、ガス発生量の値は正確でない

計算及び試験条件

初期 UO_2 重量:64.6g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:80°C 初期硝酸濃度:9.9N
 $f=0.62\exp(-1.55d)$ d:溶解率

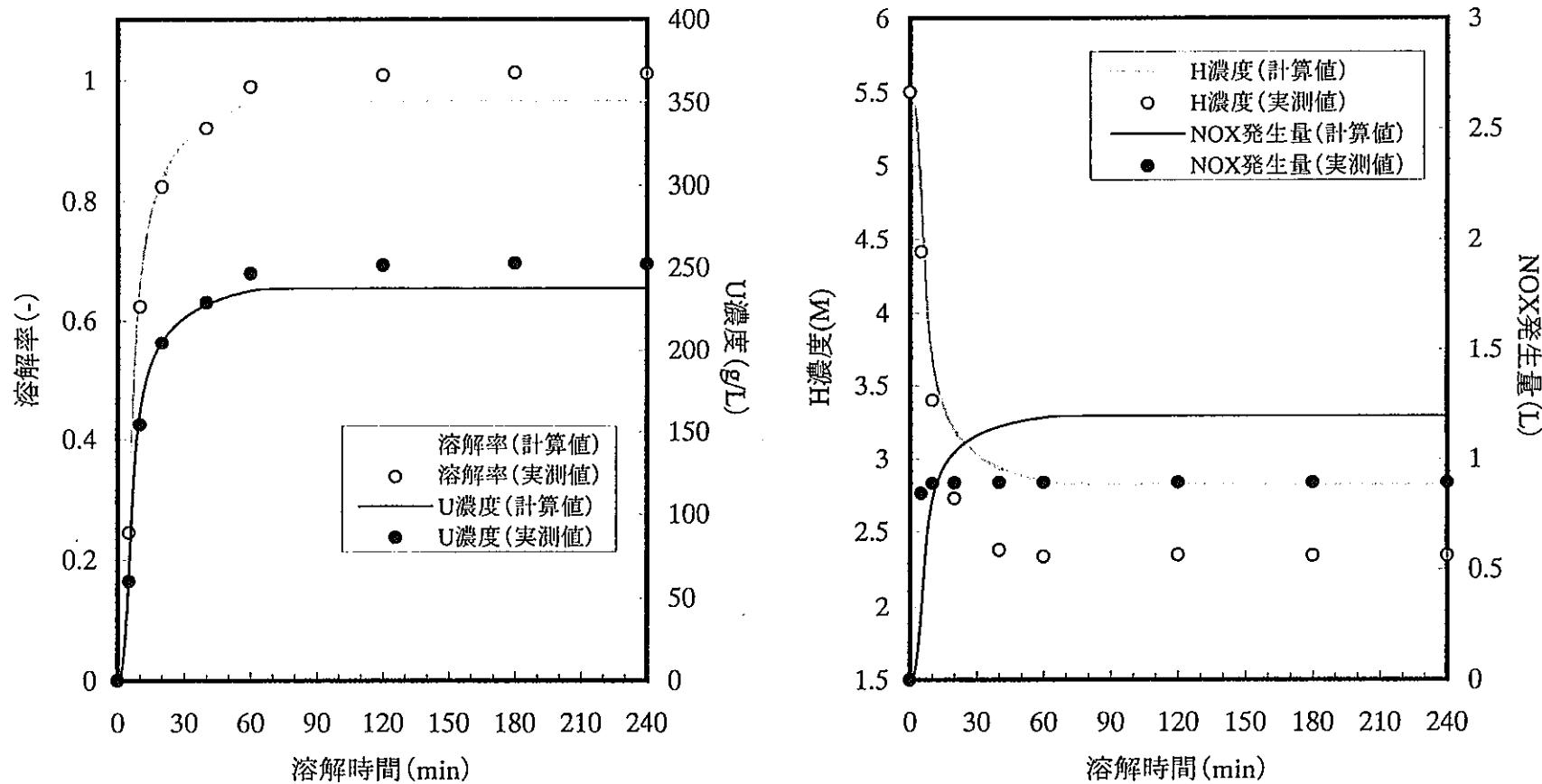
図4-2(7a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN2-7)



計算及び試験条件

初期UO₂重量:64.6g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:80°C 初期硝酸濃度:9.9N
 $f=0.62\exp(-1.55d)$ d:溶解率

図4-2(7b) 溶解温度の変化(RUN2-7)



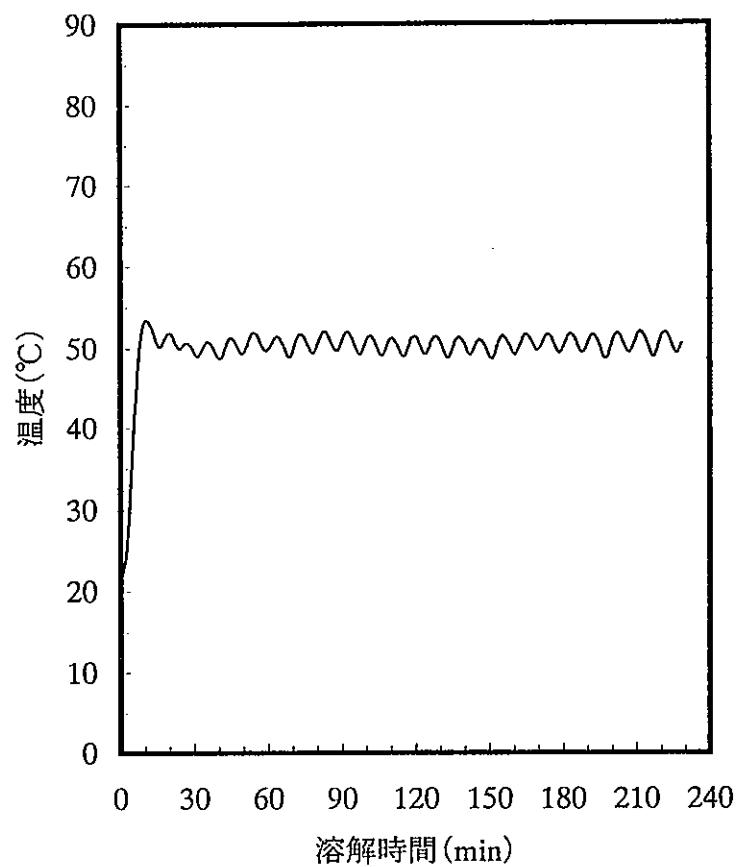
*ガスマーテ不調のため、ガス発生量の値は正確でない

計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 22.3g 粒径: <100 μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 50°C 初期硝酸濃度: 5.5N

$$f = 0.59 \exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-3(1a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN3-1)



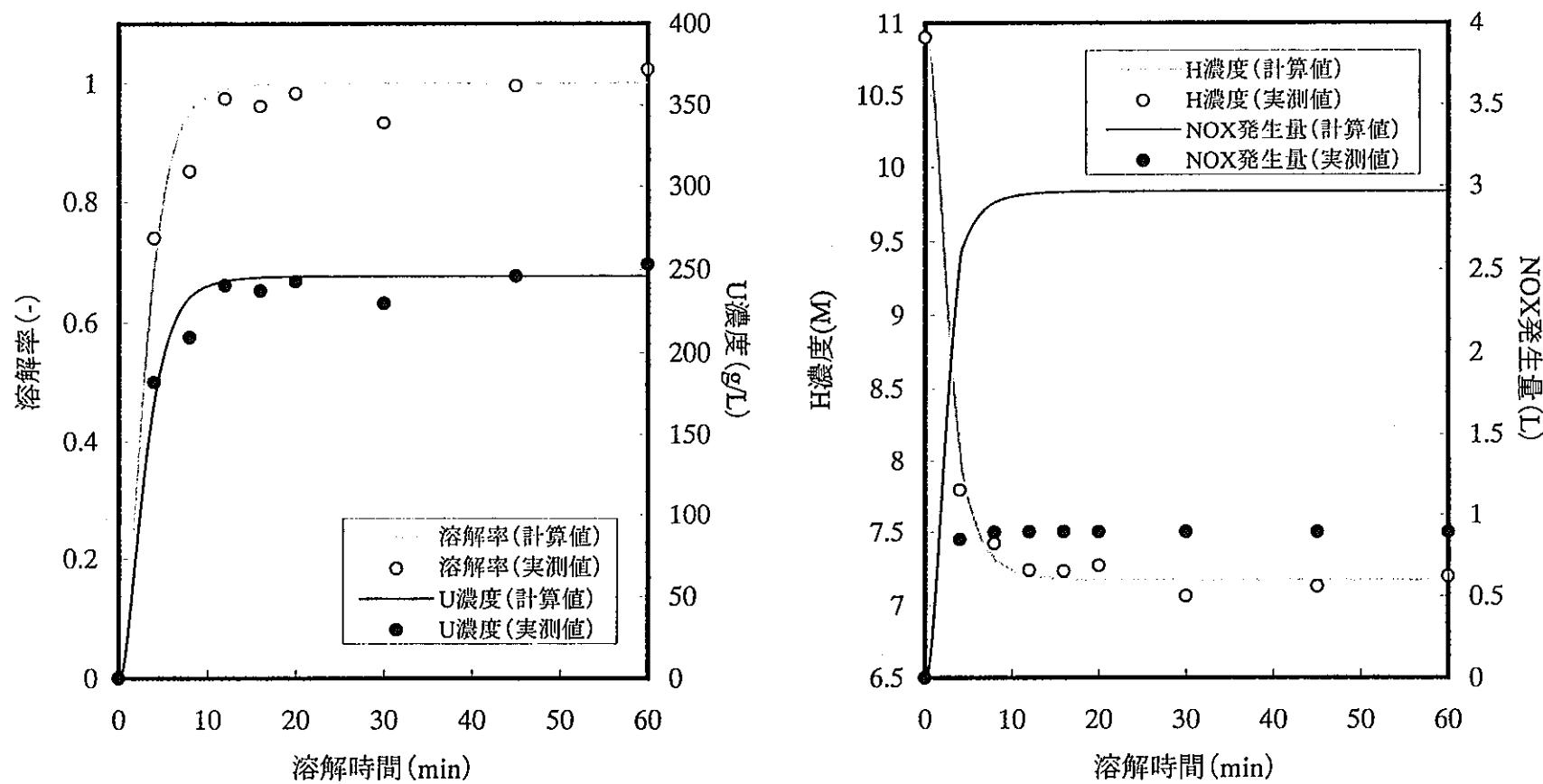
* 温度計不調のため、残り10分測定できず

計算及び試験条件

初期UO₂重量:22.3g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:5.5N

$$f=0.59\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-3(1b) 溶解温度の変化(RUN3-1)

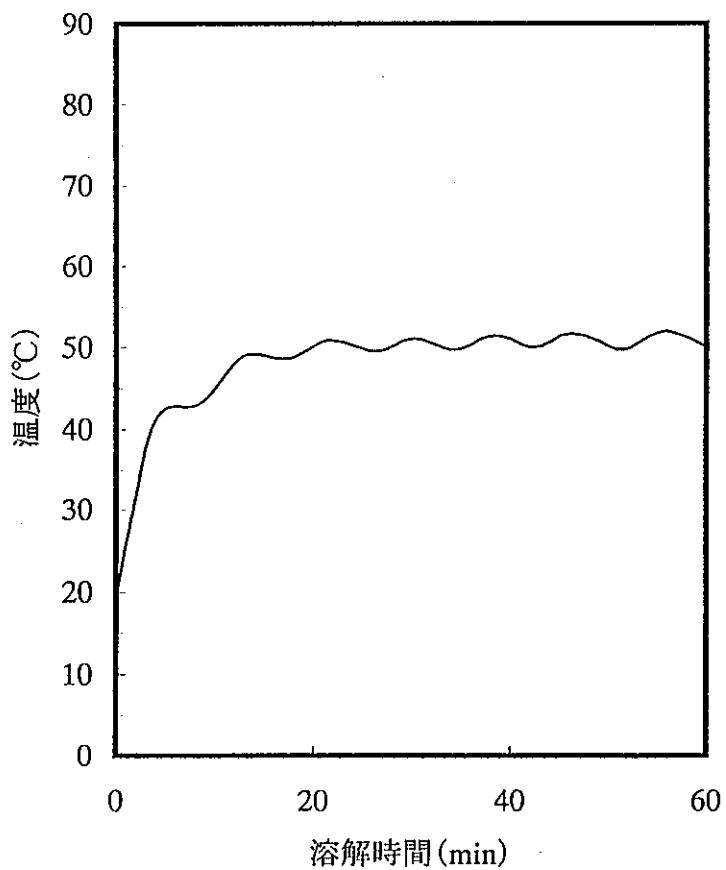


計算及び試験条件

初期 UO_2 重量:22.3g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:10.9N

$$f=0.98\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-3(2a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN3-2)

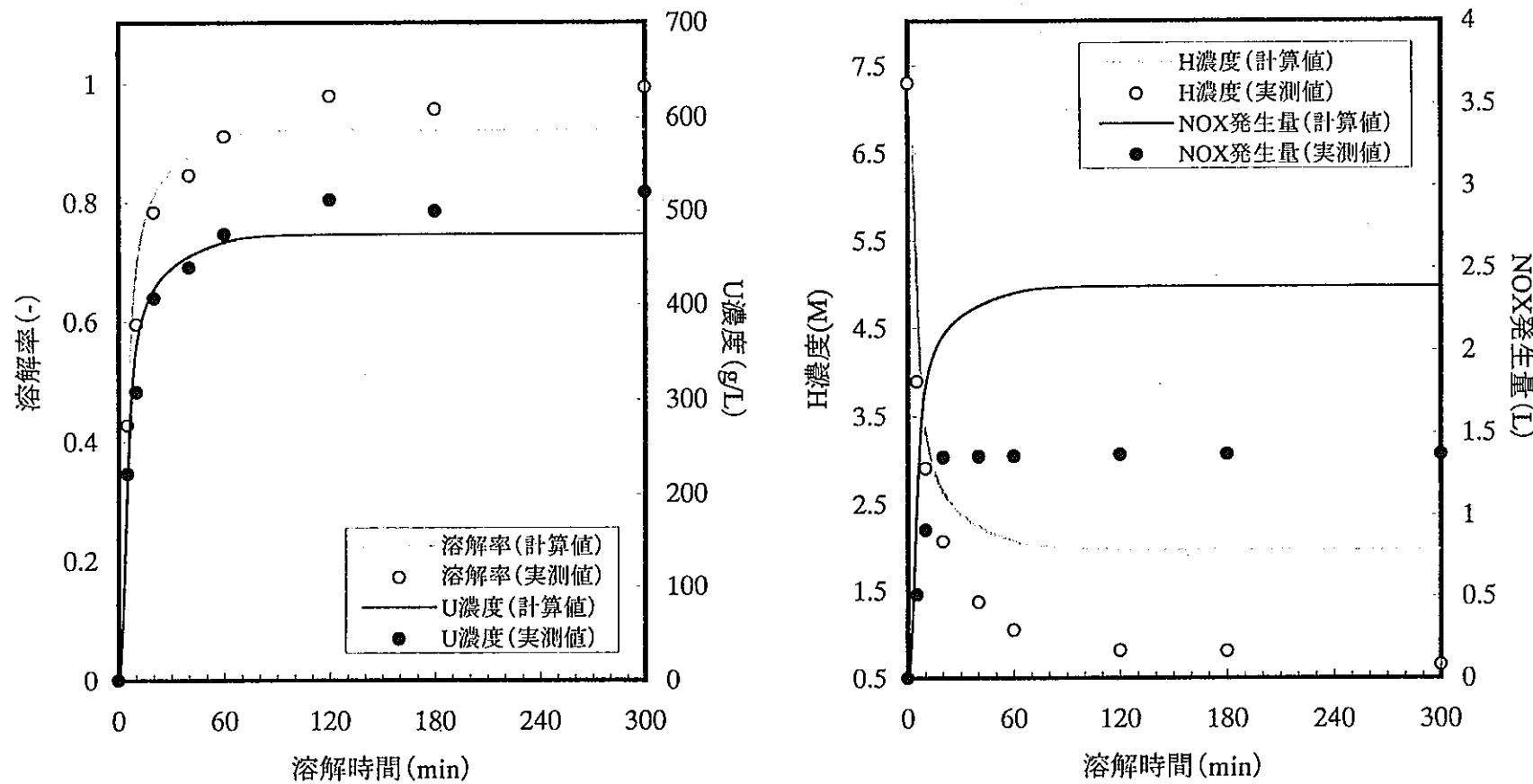


計算及び試験条件

初期 UO_2 重量:22.3g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:10.9N

$$f=0.98\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

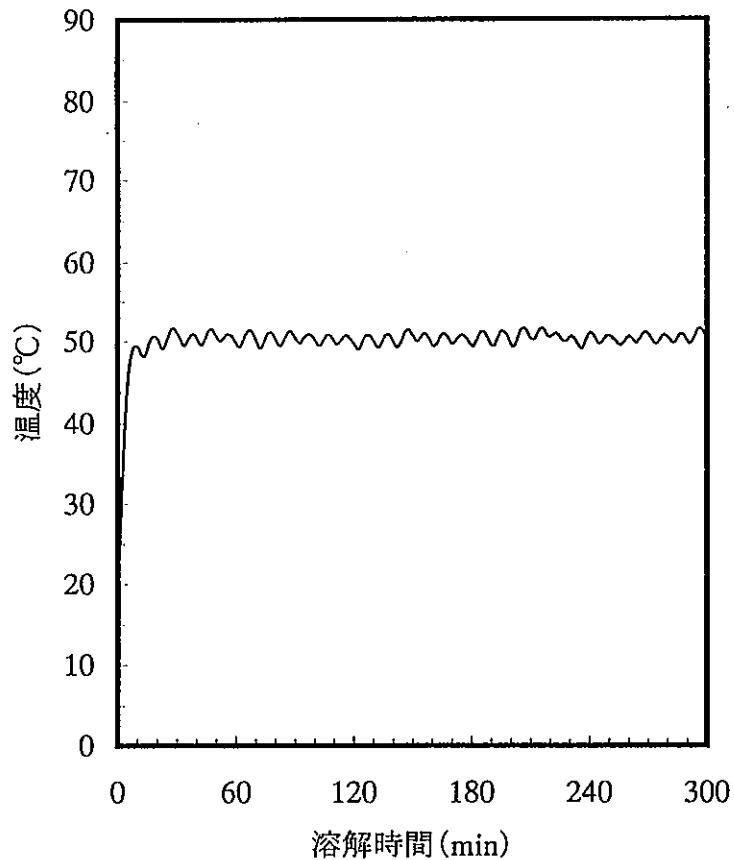
図4-3(2b) 溶解温度の変化(RUN3-2)



計算及び試験条件

初期 UO_2 重量:46.8g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:7.3N
 $f=0.65\exp(-1.55d)$ d:溶解率

図4-3(3a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN3-3)

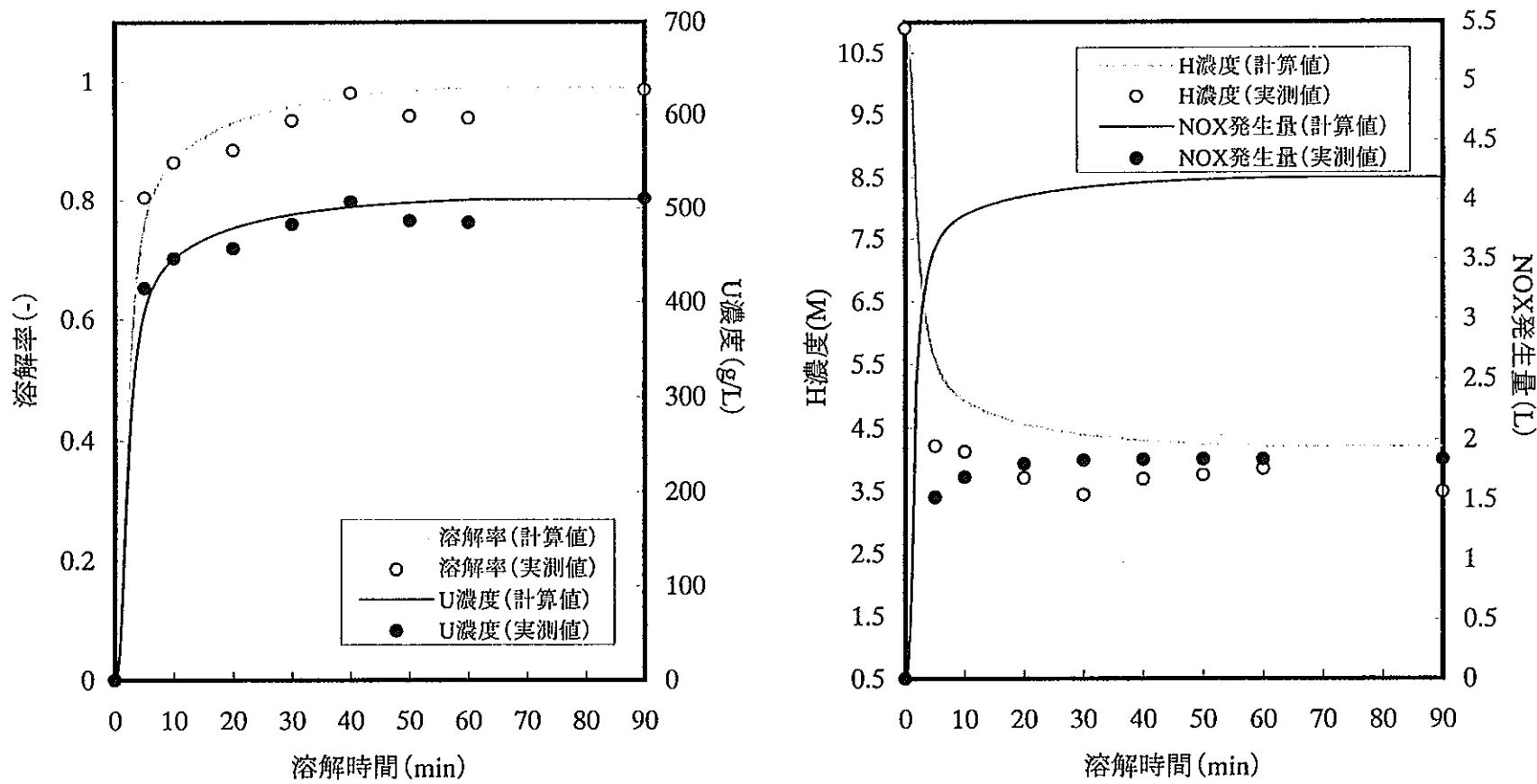


計算及び試験条件

初期UO₂重量:46.8g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:7.3N

$$f=0.65\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-3(3b) 溶解温度の変化(RUN3-3)

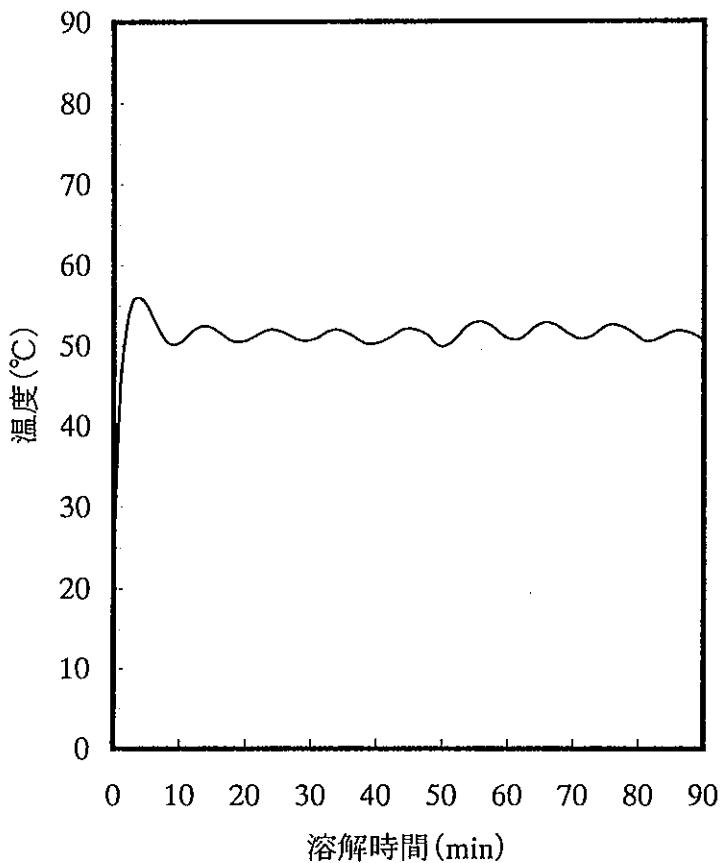


計算及び試験条件

初期UO₂重量:46.8g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:10.9N

$$f=0.43\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

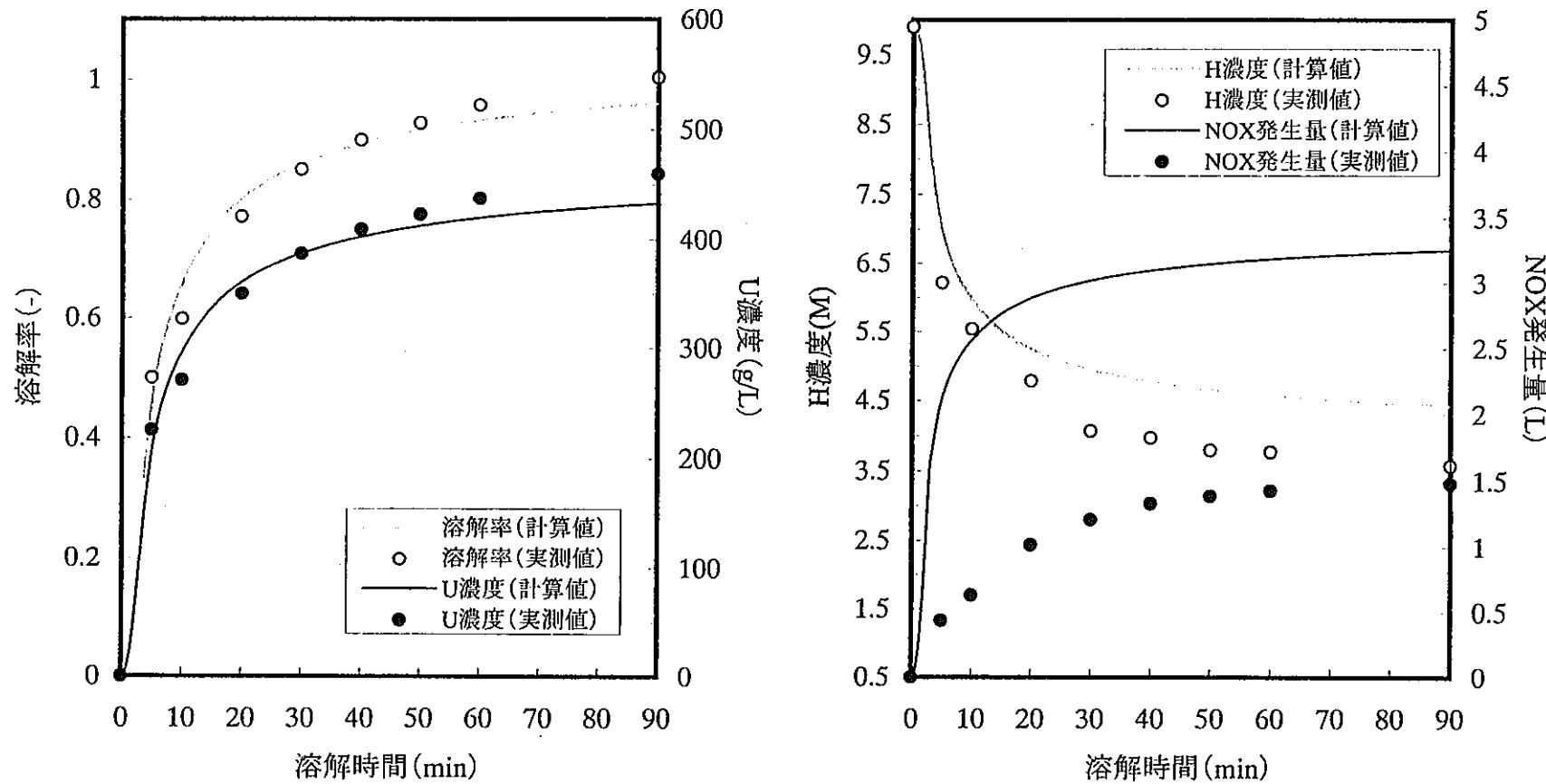
図4-3(4a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN3-4)

計算及び試験条件

初期UO₂重量:46.8g 粒径:<100μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:10.9N

$$f=0.43\exp(-1.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

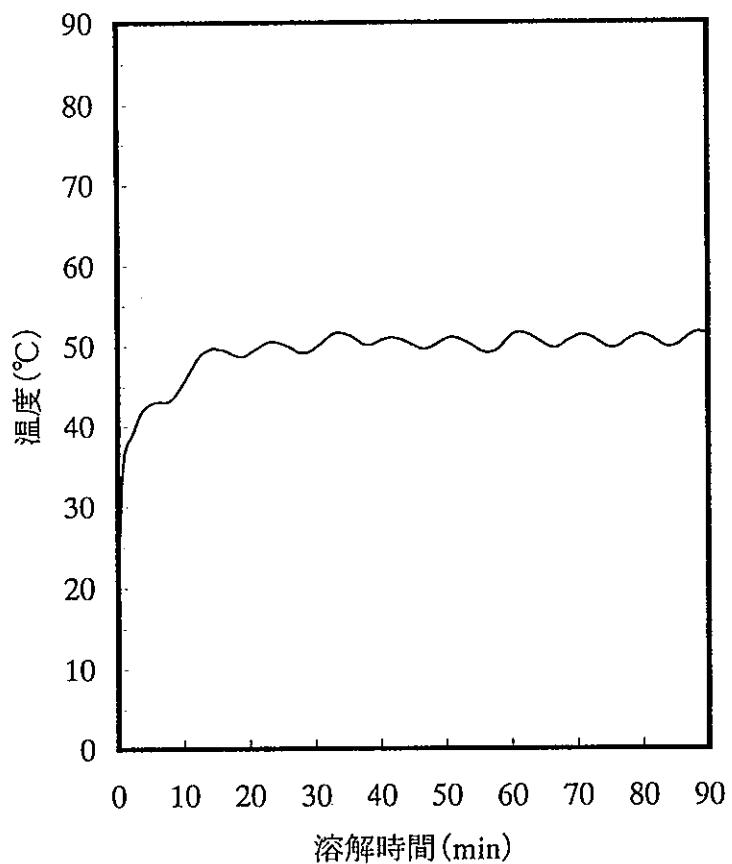
図4-3(4b) 溶解温度の変化(RUN3-4)



計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 40.9g 粒径: 100~500 μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 50°C 初期硝酸濃度: 9.9N
 $f=0.39\exp(-2.55d)$ d:溶解率

図4-4(1a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN4-1)

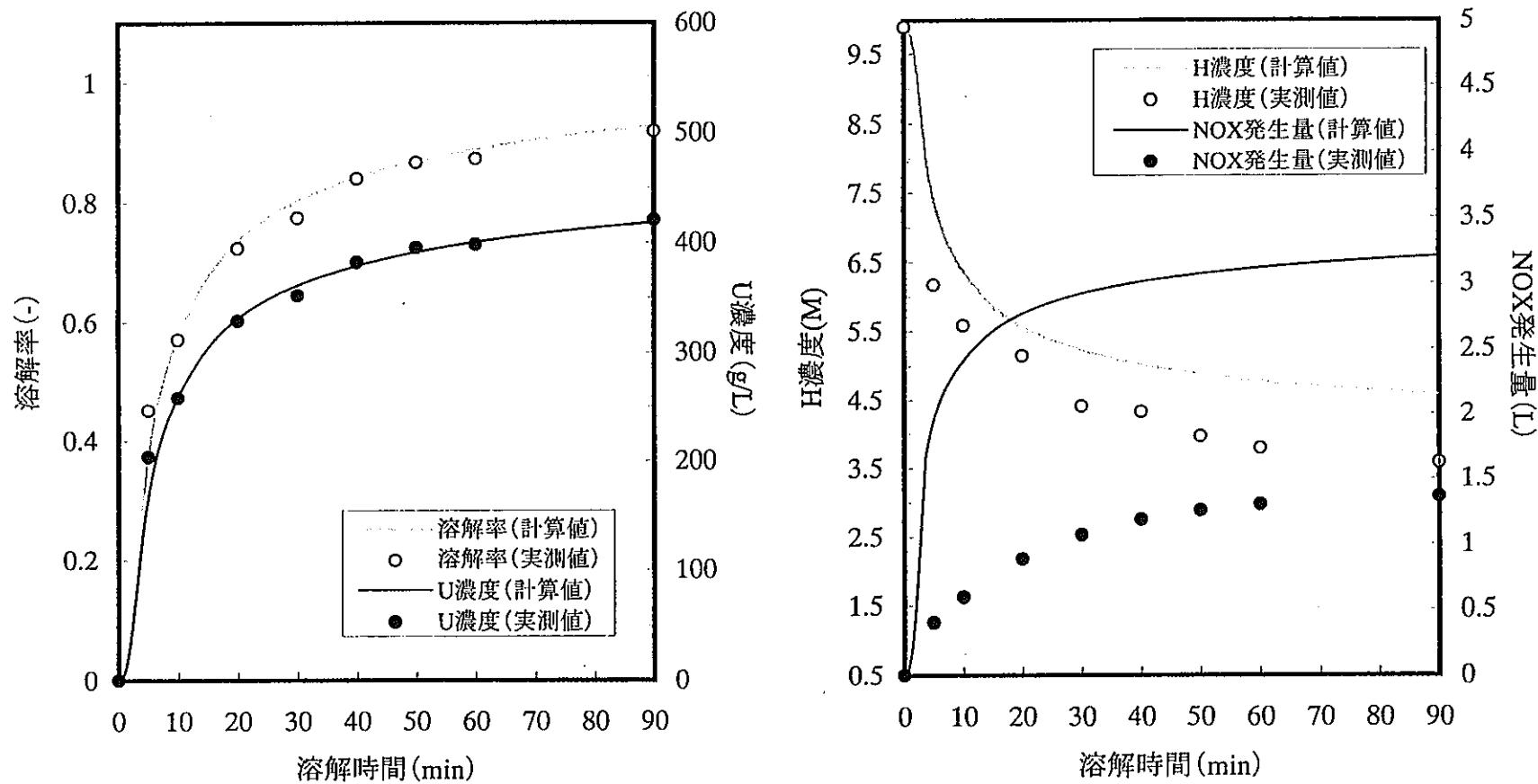


計算及び試験条件

初期UO₂重量:40.9g 粒径:100~500μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N

$$f=0.39\exp(-2.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-4(1b) 溶解温度の変化(RUN4-1)

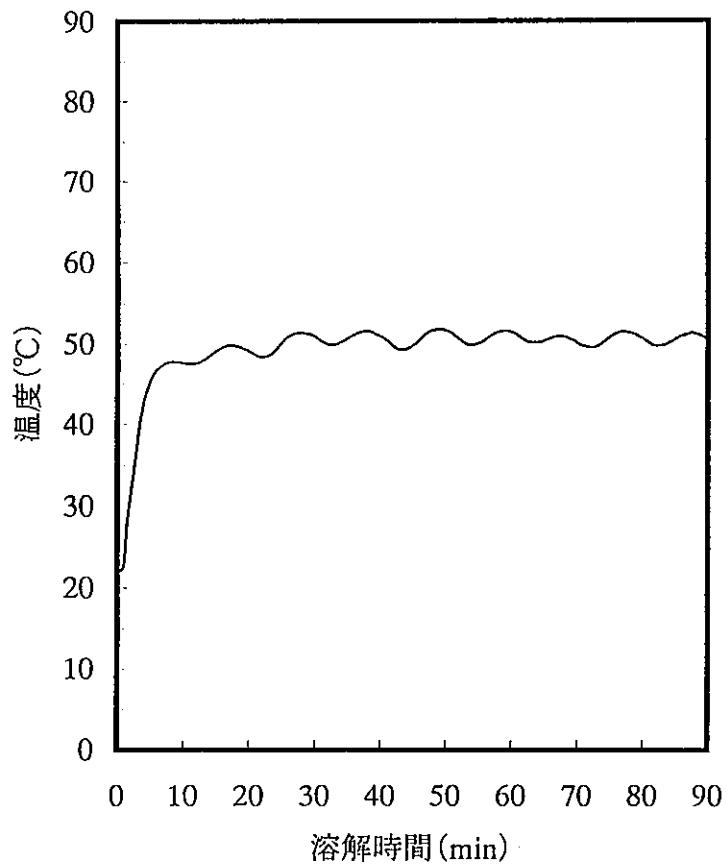


計算及び試験条件

初期UO₂重量:40.9g 粒径:500~1000μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N

$$f=0.25\exp(-2.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

図4-4(2a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN4-2)

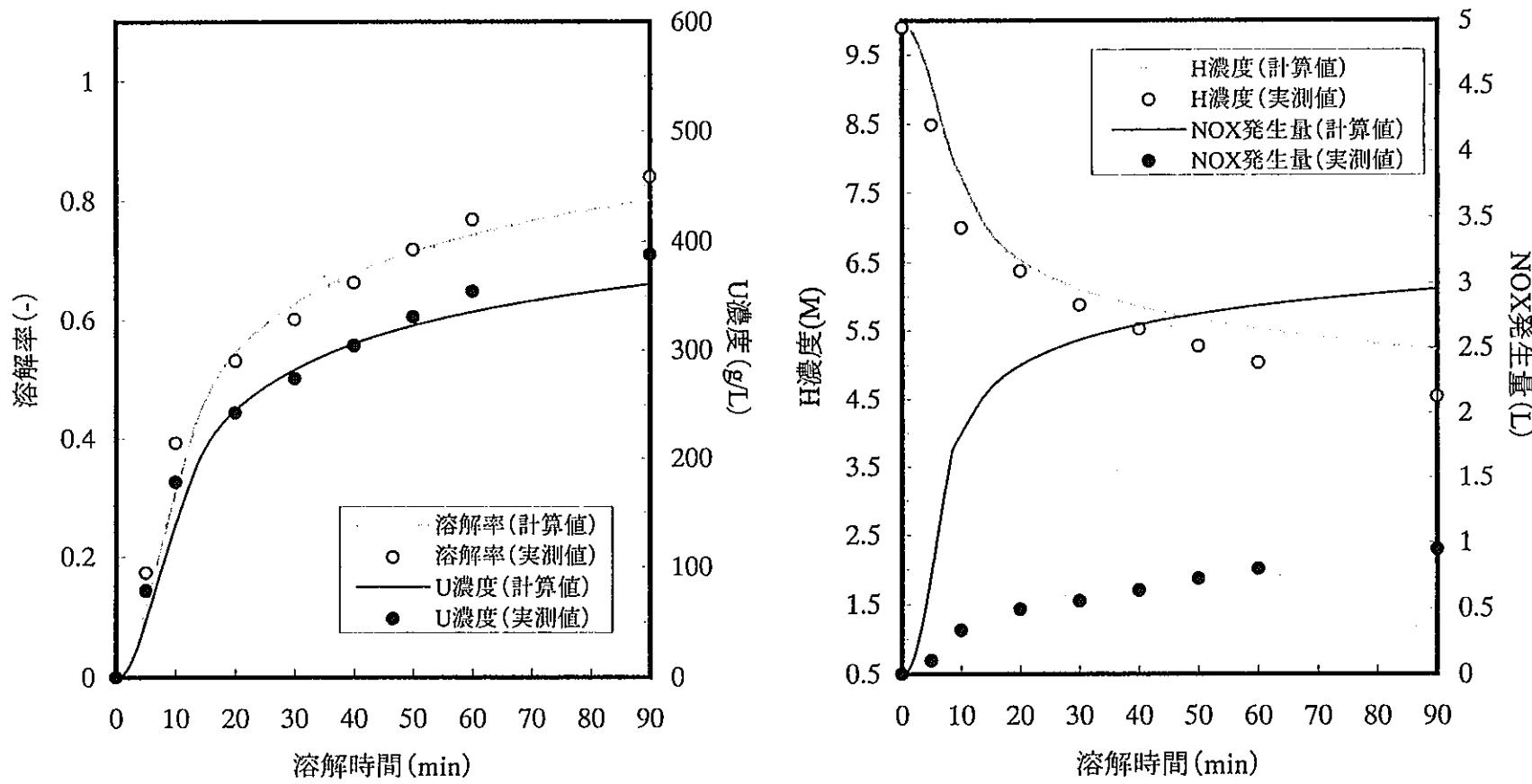


計算及び試験条件

初期UO₂重量:40.9g 粒径:500~1000μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N

$$f=0.25\exp(-2.55d) \quad d: \text{溶解率}$$

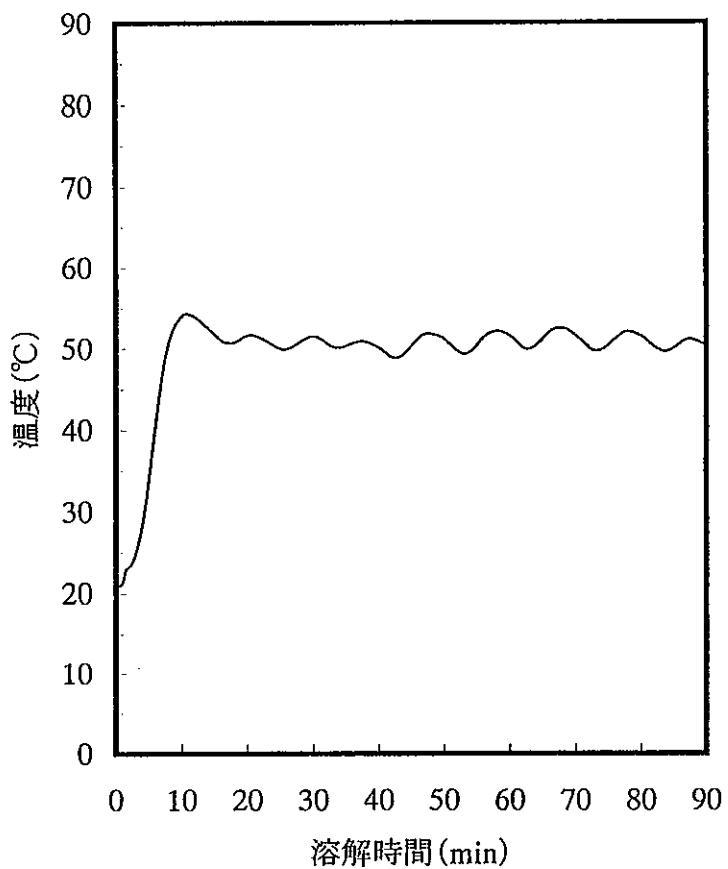
図4-4(2b) 溶解温度の変化(RUN4-2)



計算及び試験条件

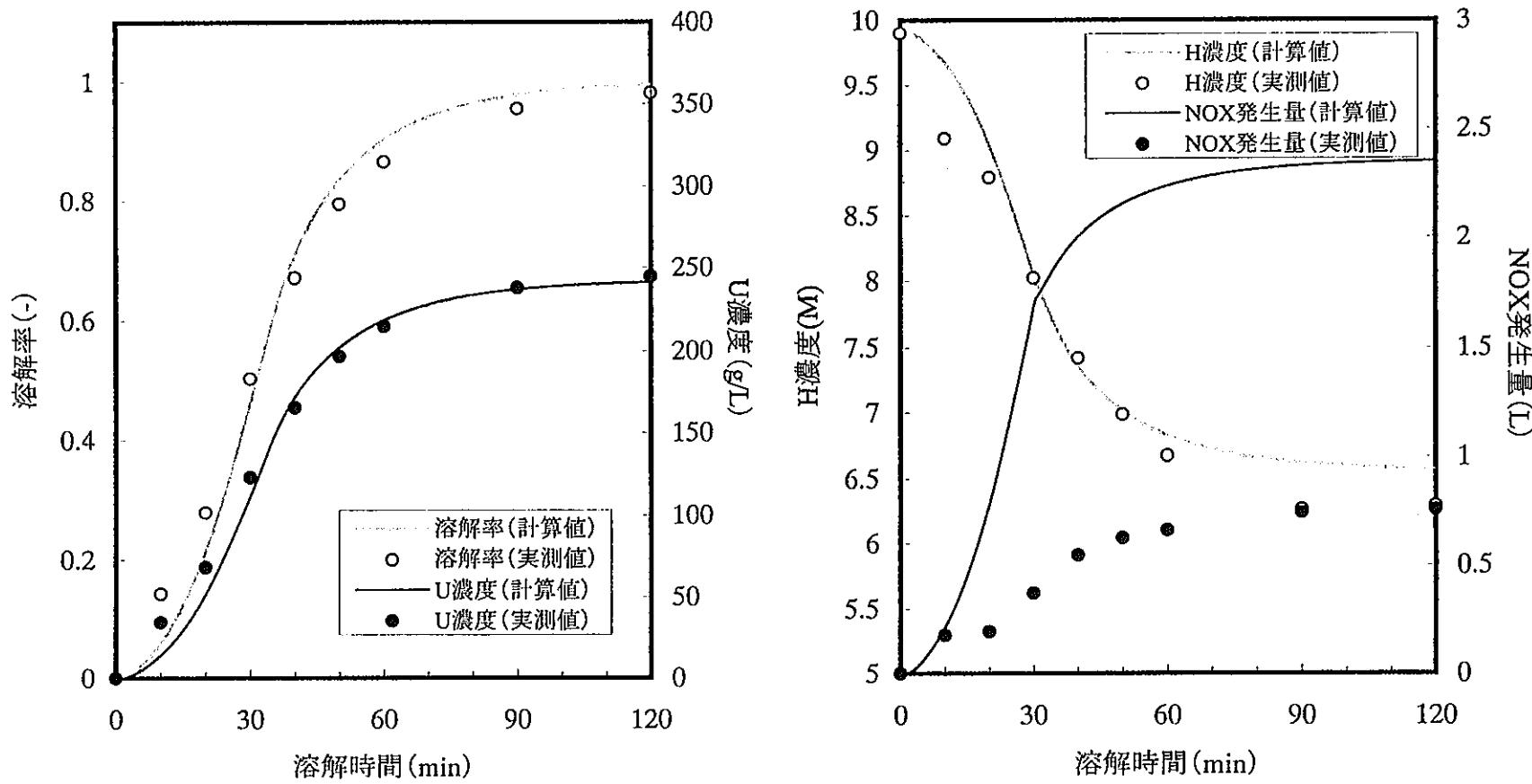
初期 UO_2 重量: 40.9g 粒径: >1000μm 初期液量: 80ml 溶解温度: 50°C 初期硝酸濃度: 9.9N
 $f = 7.35 \times 10^{-2} \exp(-2.55d)$ d: 溶解率

図4-4(3a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN4-3)

計算及び試験条件

初期UO₂重量:40.9g 粒径:>1000μm 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N
 $f=7.35 \times 10^{-2} \exp(-2.55d)$ d:溶解率

図4-4(3b) 溶解温度の変化(RUN4-3)



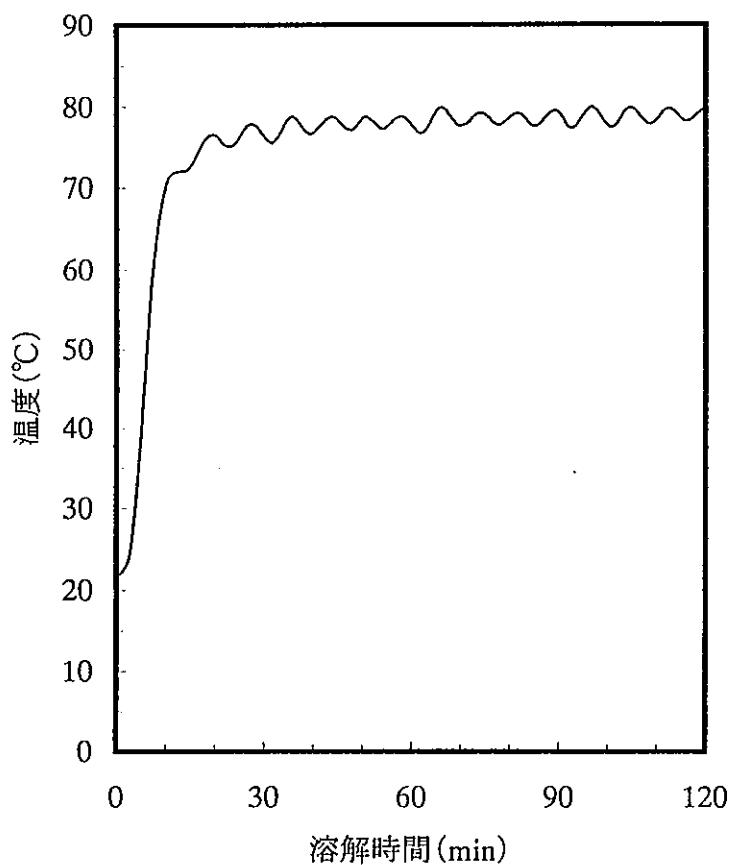
計算及び試験条件

初期 UO_2 重量:22g(ペレット) 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N

$$f=4.74 \times 10^{-3}$$

d:溶解率

図4-5(1a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN6-1)

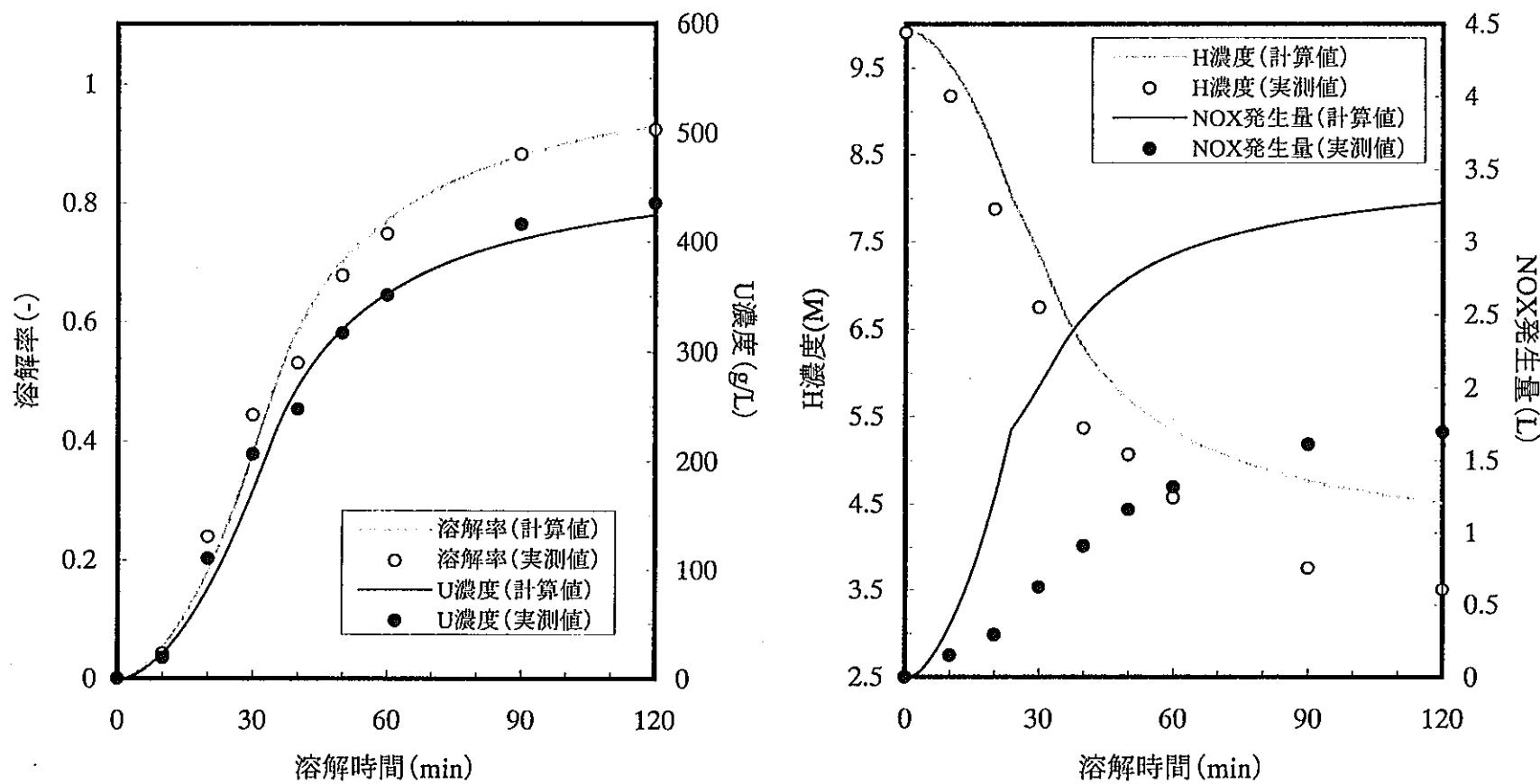
計算及び試験条件

初期UO₂重量:22g(ペレット) 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N

$f=4.74 \times 10^{-3}$

d:溶解率

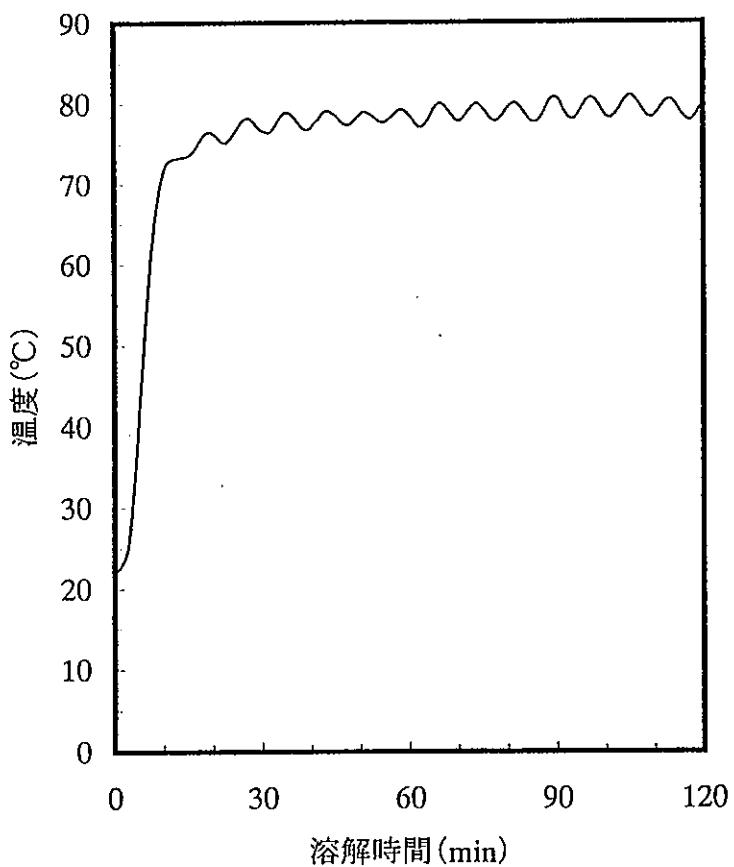
図4-5(1b) 溶解温度の変化(RUN5-1)



計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 41.6g(ペレット) 初期液量: 80ml 溶解温度: 50°C 初期硝酸濃度: 9.9N
 $f = 4.18 \times 10^{-3}$ d: 溶解率

図4-5(2a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN6-2)



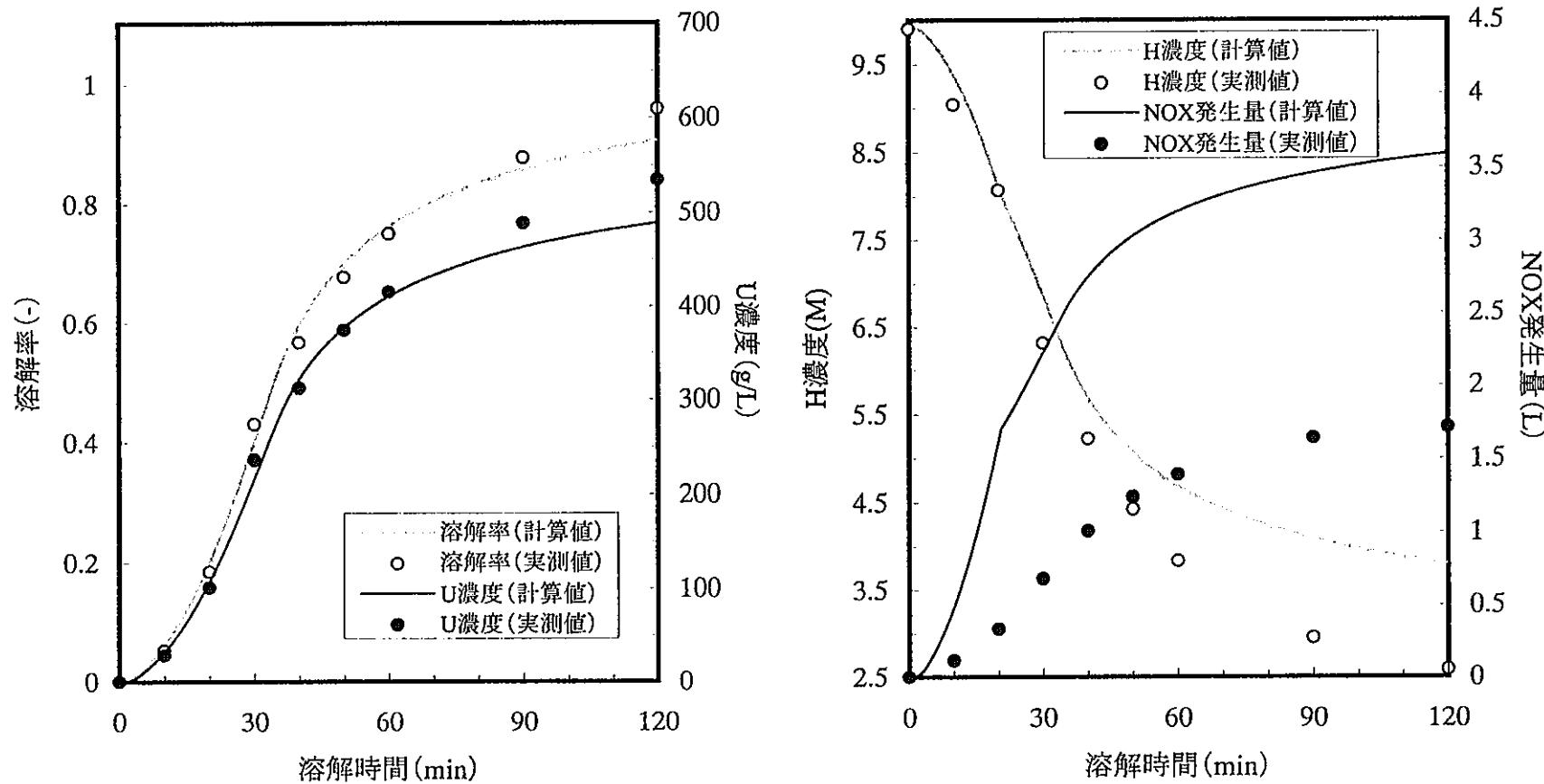
計算及び試験条件

初期UO₂重量:41.6g(ペレット) 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N

$f=4.18 \times 10^{-3}$

d:溶解率

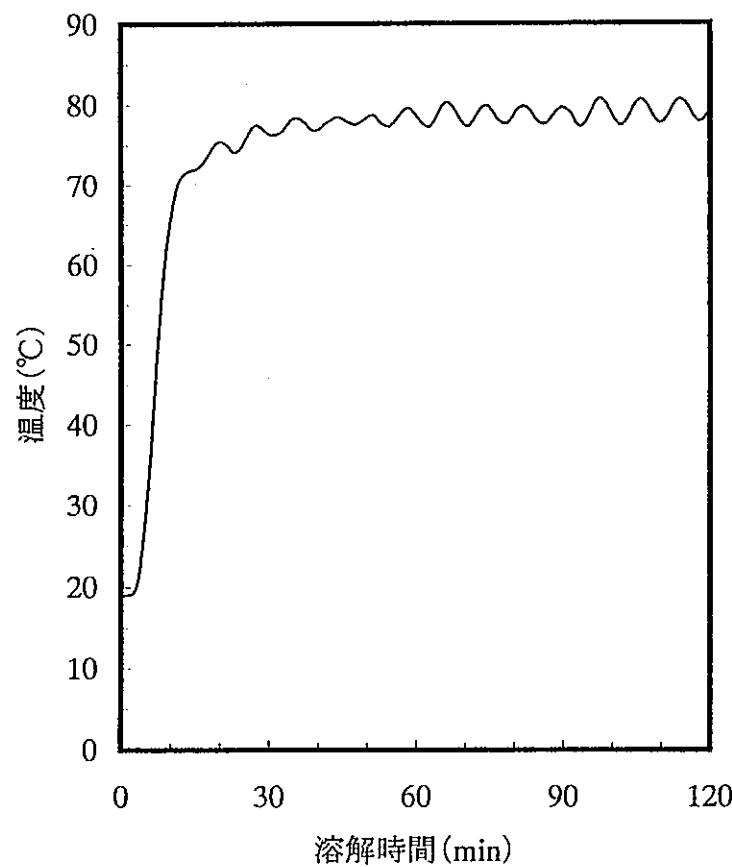
図4-5(2b) 溶解温度の変化(RUN5-2)



計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 49g(ペレット) 初期液量: 80ml 溶解温度: 50°C 初期硝酸濃度: 9.9N
 $f = 4.96 \times 10^{-3}$ d: 溶解率

図4-5(3a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN6-3)



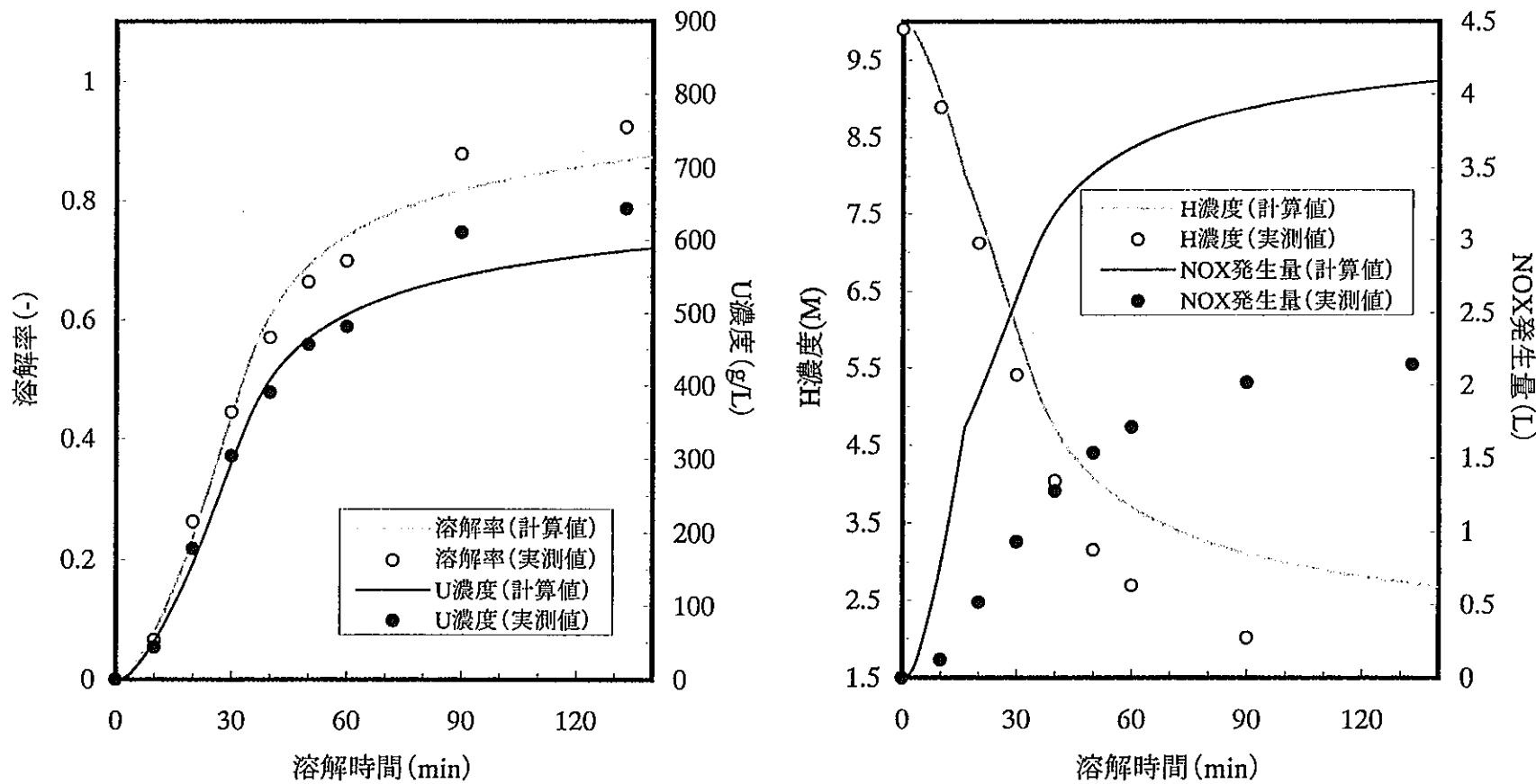
計算及び試験条件

初期UO₂重量:49g(ペレット) 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N

f=4.96x10⁻³

d:溶解率

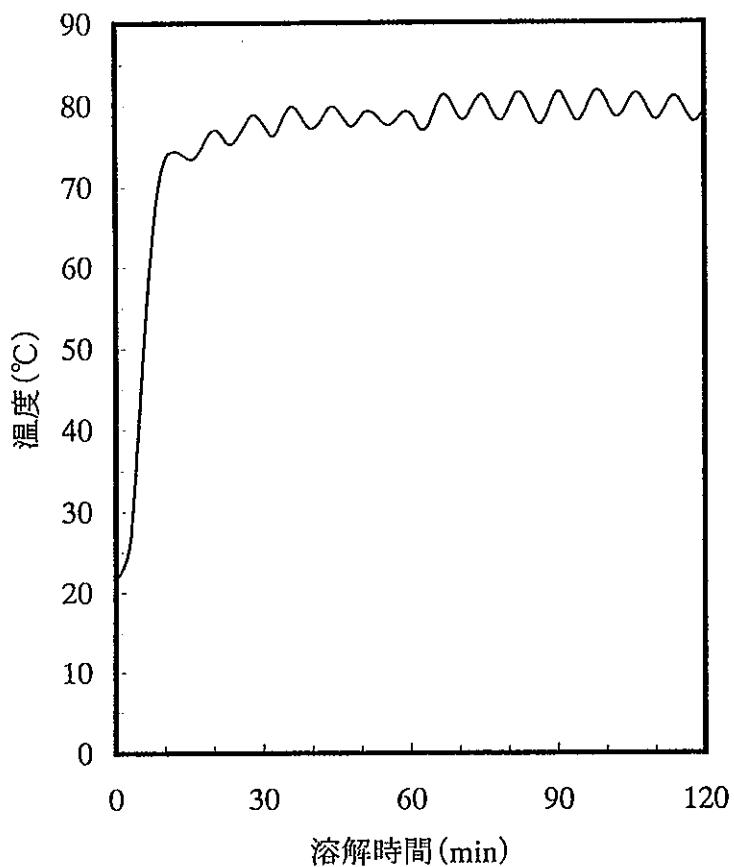
図4-5(3b) 溶解温度の変化(RUN5-3)



計算及び試験条件

初期UO₂重量:61.2g(ペレット) 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N
 $f=6.73 \times 10^{-3}$ d:溶解率

図4-5(4a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN6-4)

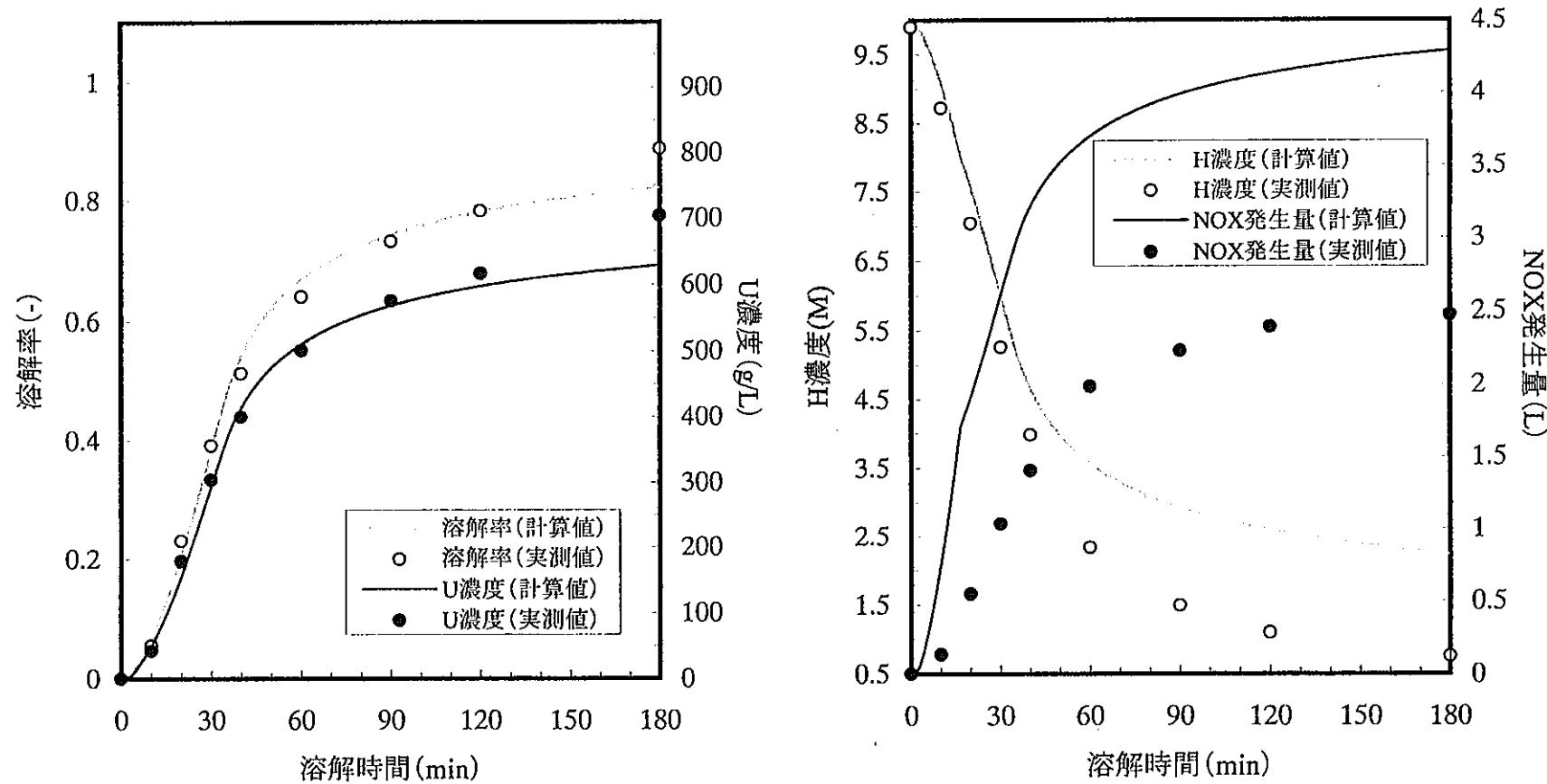
計算及び試験条件

初期UO₂重量:61.2g(ペレット) 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N

$$f=6.73 \times 10^{-3}$$

d:溶解率

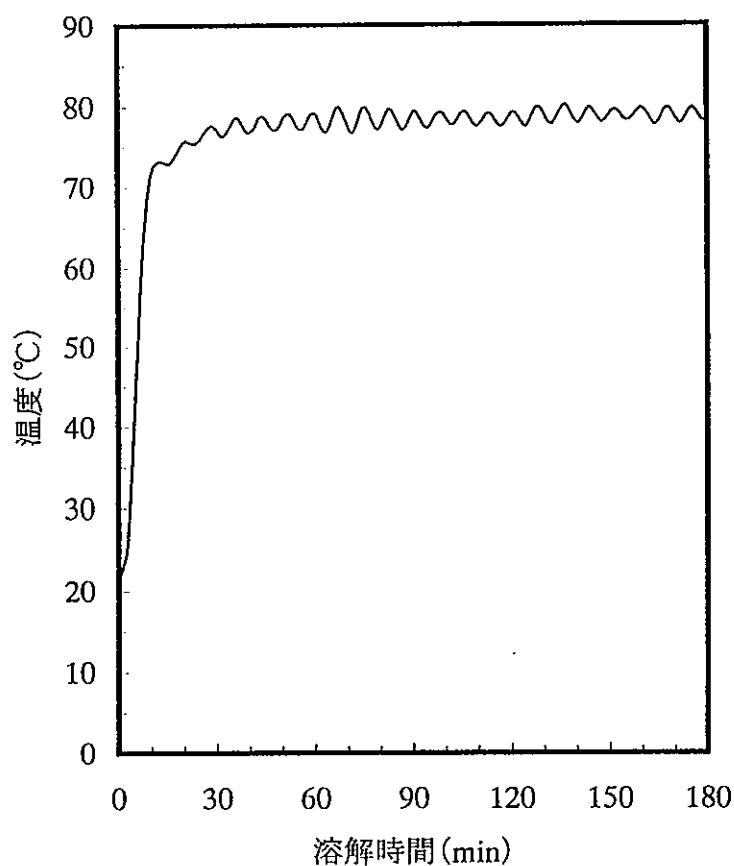
図4-5(4b) 溶解温度の変化(RUN5-4)



計算及び試験条件

初期 UO_2 重量: 69.5g(ペレット) 初期液量: 80ml 溶解温度: 50°C 初期硝酸濃度: 9.9N
 $f = 5.62 \times 10^{-3}$ d: 溶解率

図4-5(5a) U、酸濃度、溶解率及びオフガス発生量の変化(RUN6-5)



計算及び試験条件

初期UO₂重量:69.5g(ペレット) 初期液量:80ml 溶解温度:50°C 初期硝酸濃度:9.9N

$$f=5.62 \times 10^{-3}$$

d:溶解率

図4-5(5b) 溶解温度の変化(RUN5-5)

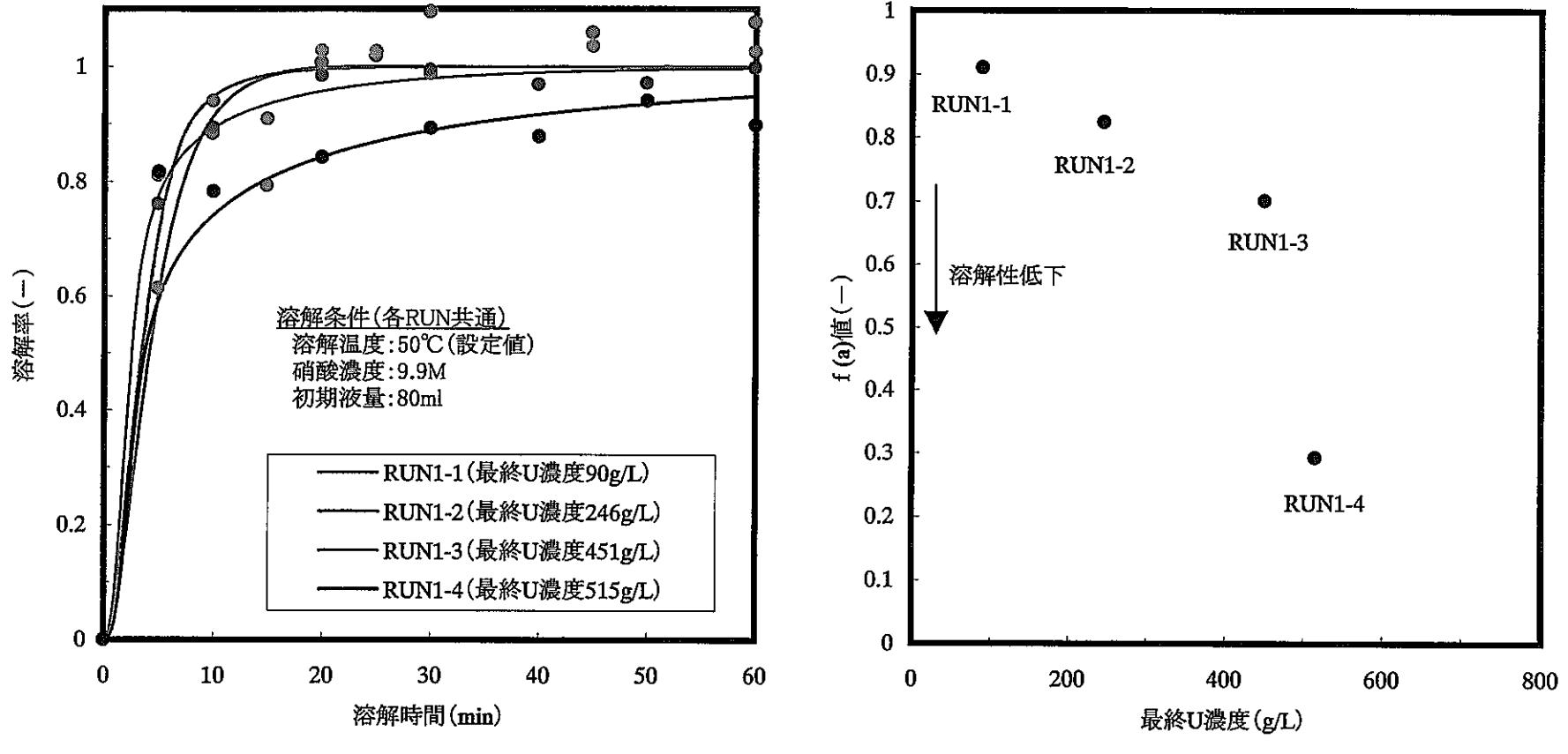
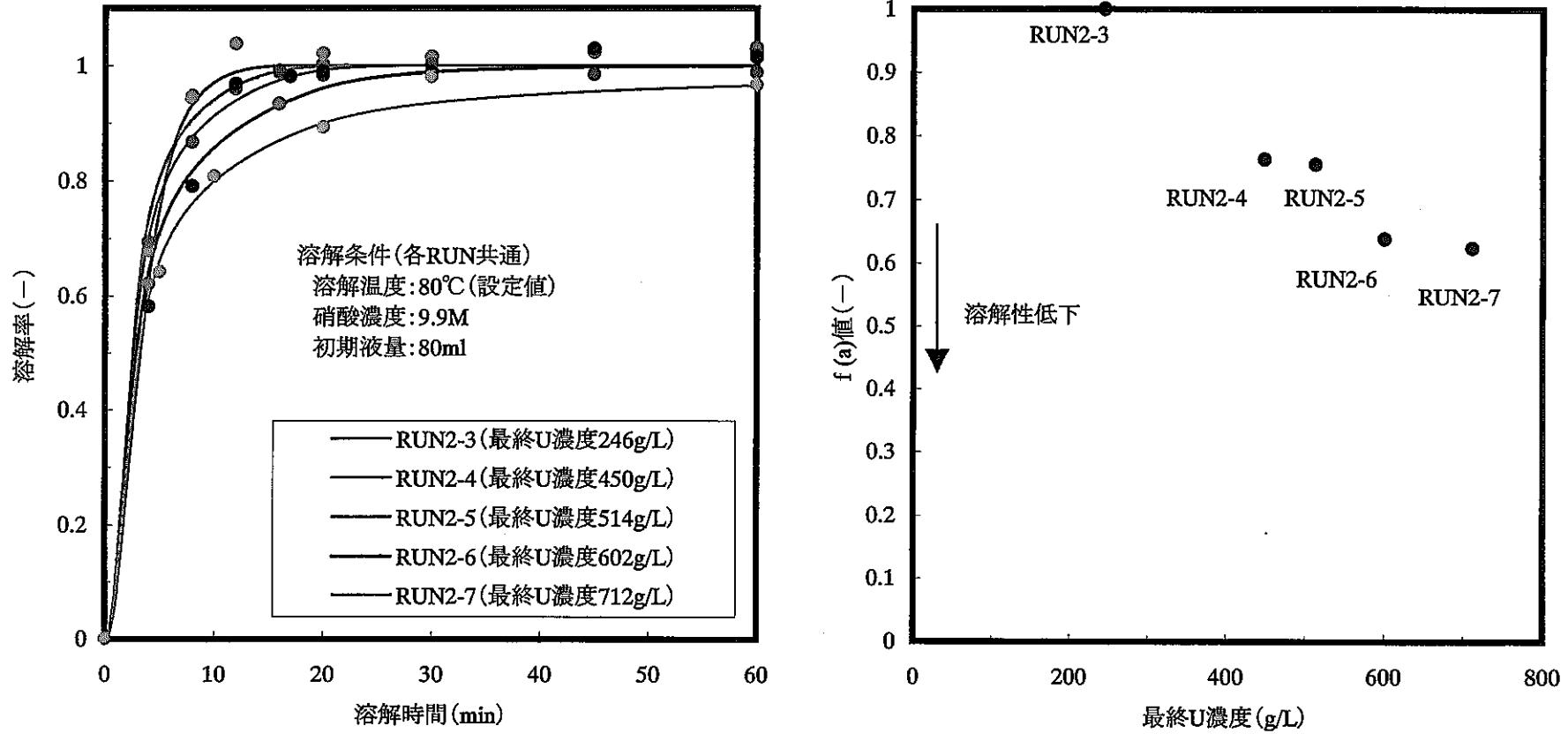
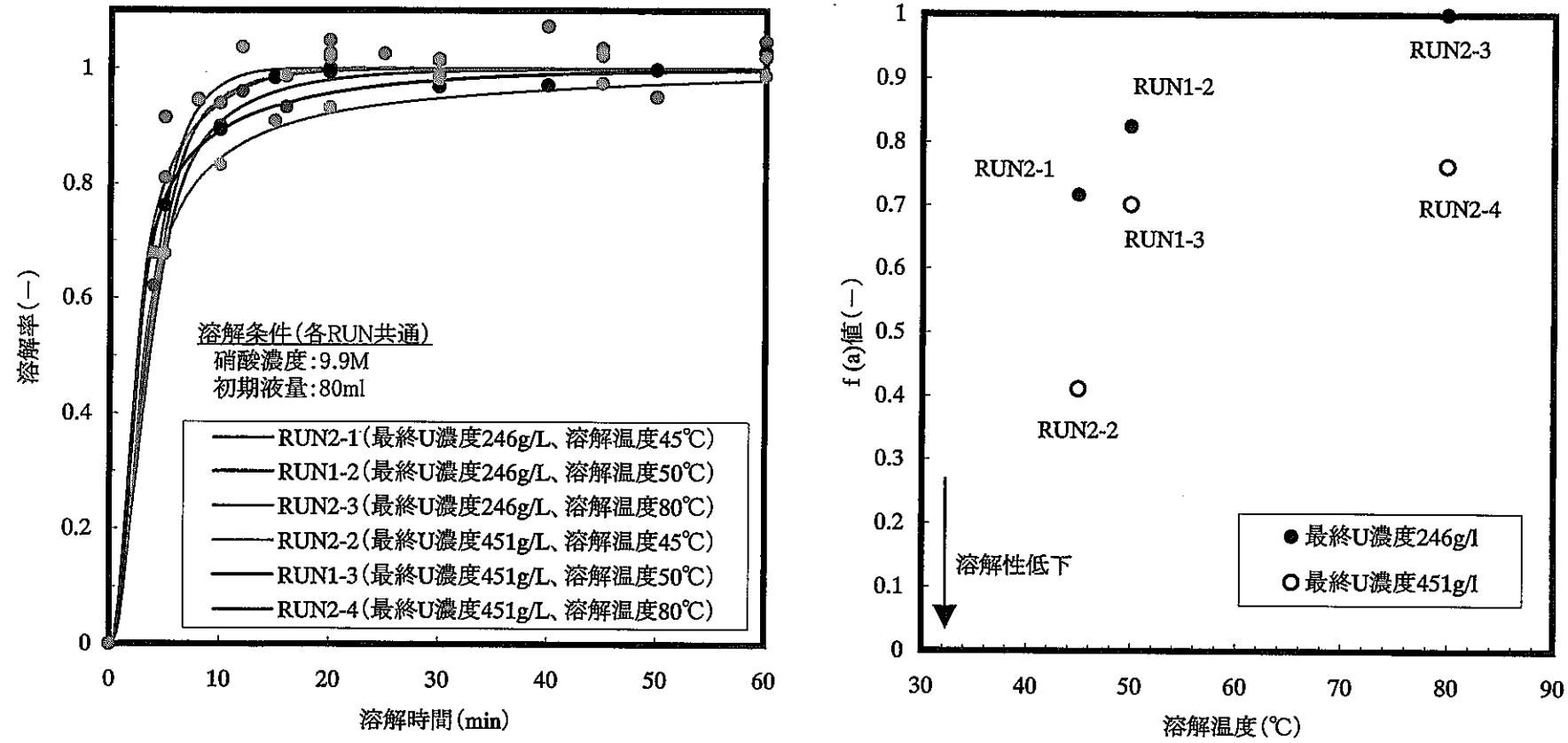


図4-6 最終U濃度とf値との関係(粉末溶解)



*1 最終U濃度 = 投入U量 / 初期液量(80ml)

図4-7 最終U濃度とf値との関係(粉末溶解)



*1 最終U濃度 = 投入U量／初期液量(80ml)

図4-8 溶解温度とf値との関係(粉末溶解)

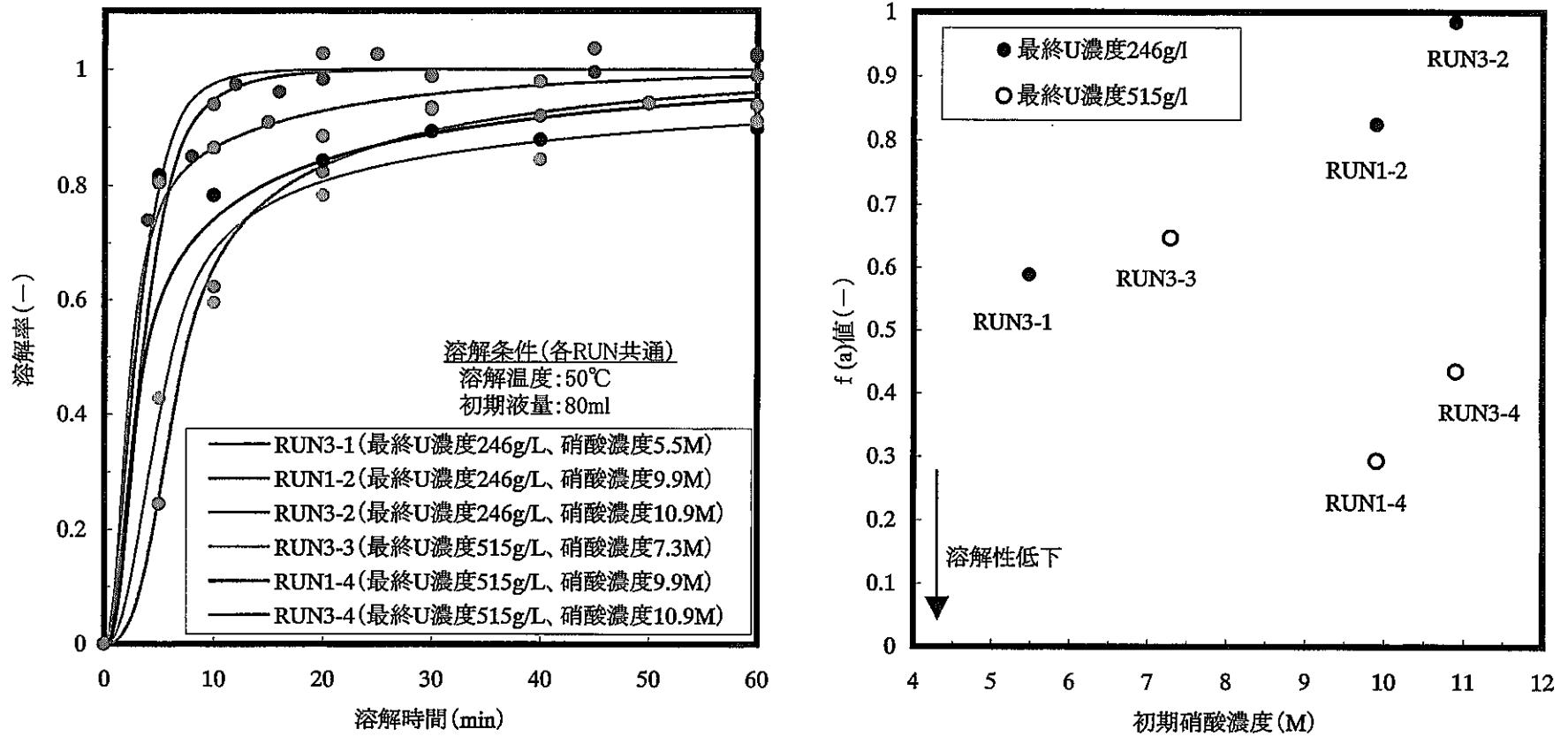


図4-9 初期硝酸濃度とf値との関係(粉末溶解)

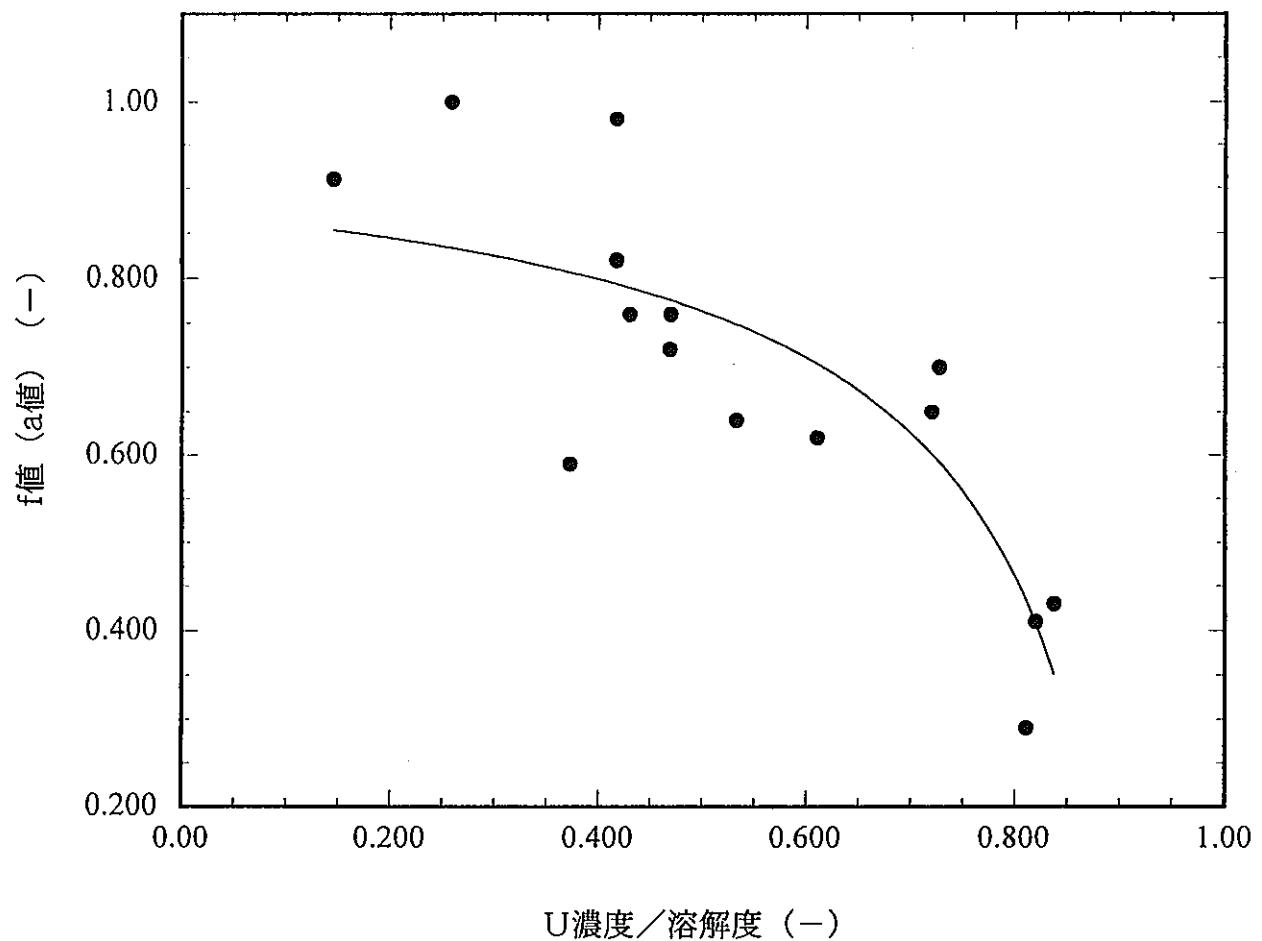


図4-10 溶解度に対する最終U濃度の割合とf値 (a値) との関係

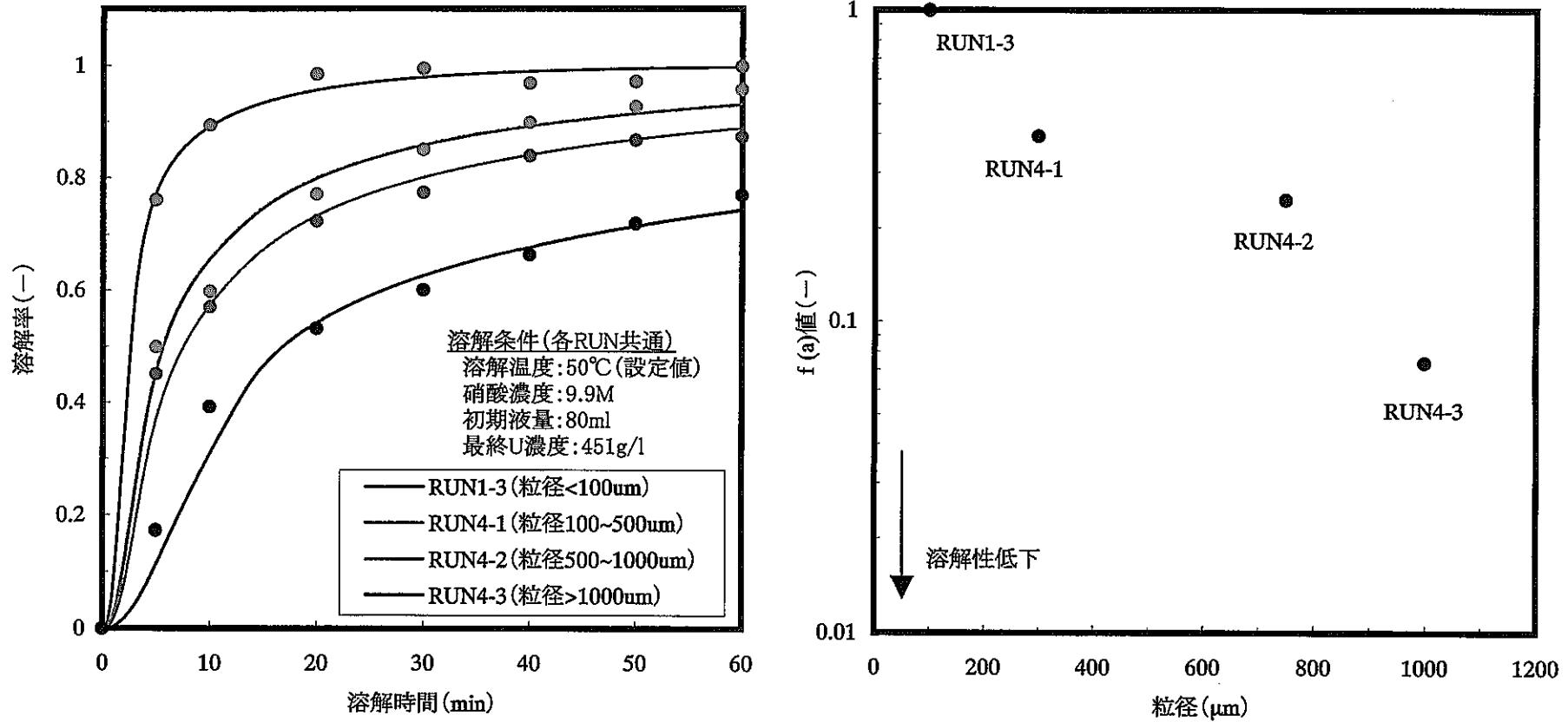


図4-11 粒径とf値との関係(粉末溶解)

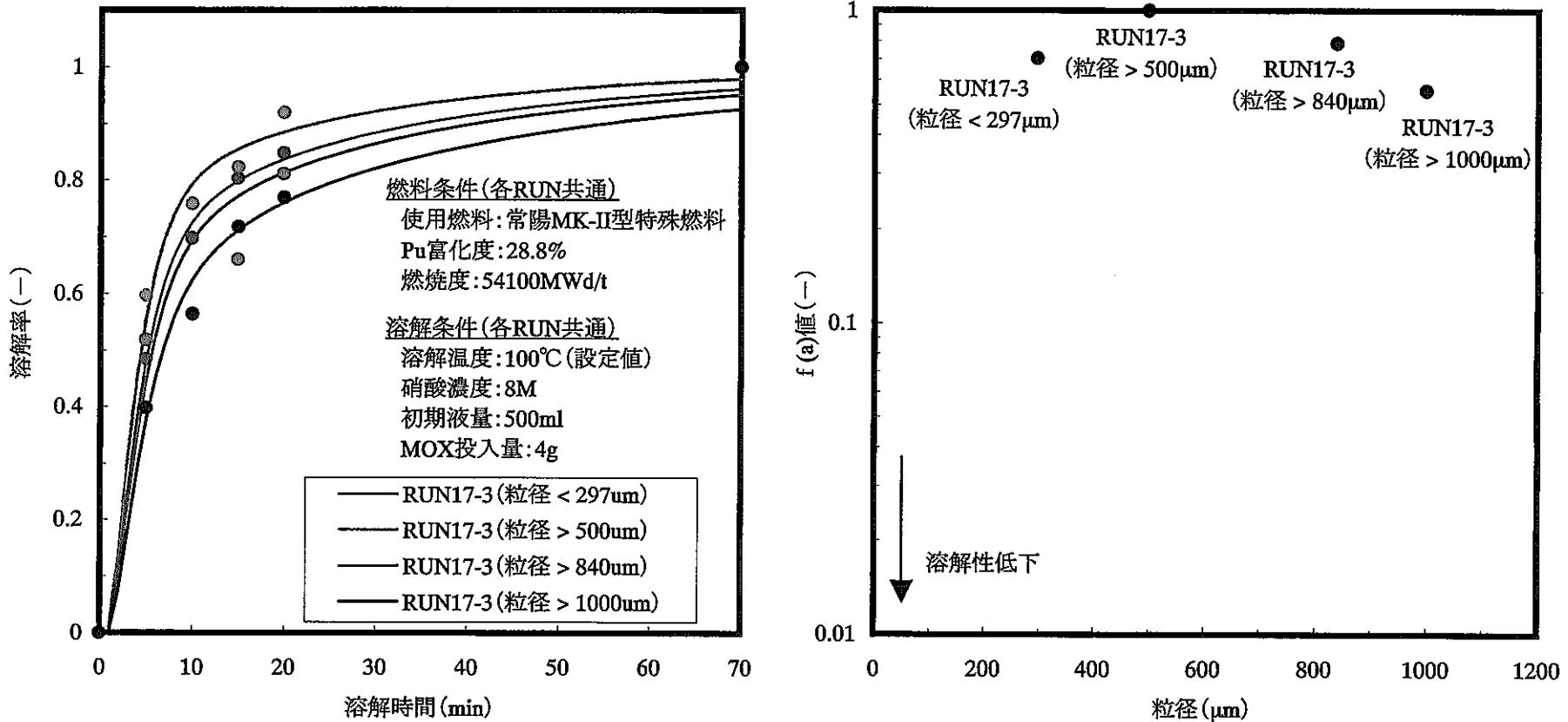
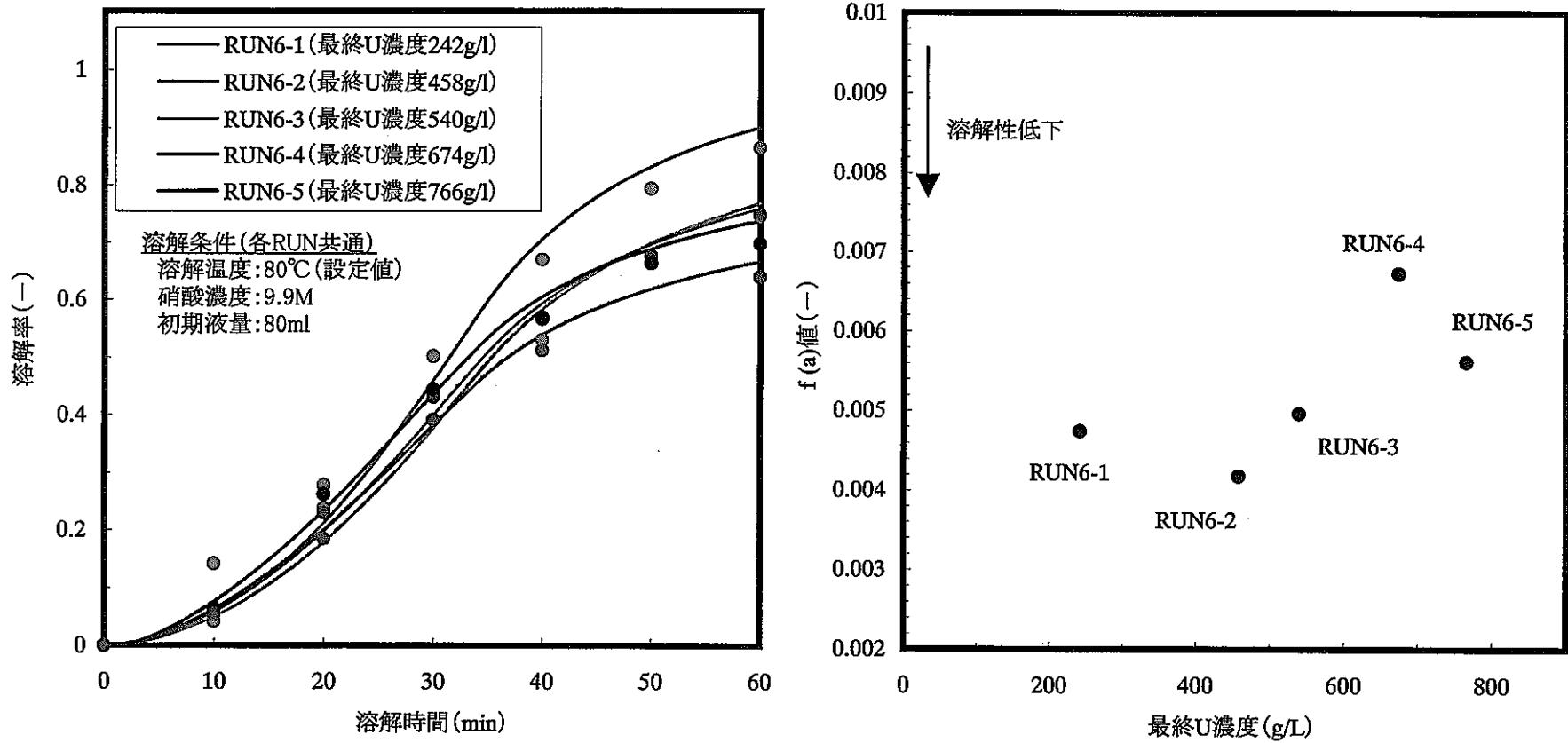


図4-12 粒径とf値との関係(粉末溶解(照射済MOX燃料))



*1 最終U濃度 = 投入U量 / 初期液量 (80ml)

図4-13 最終U濃度とf値との関係(ペレット溶解)

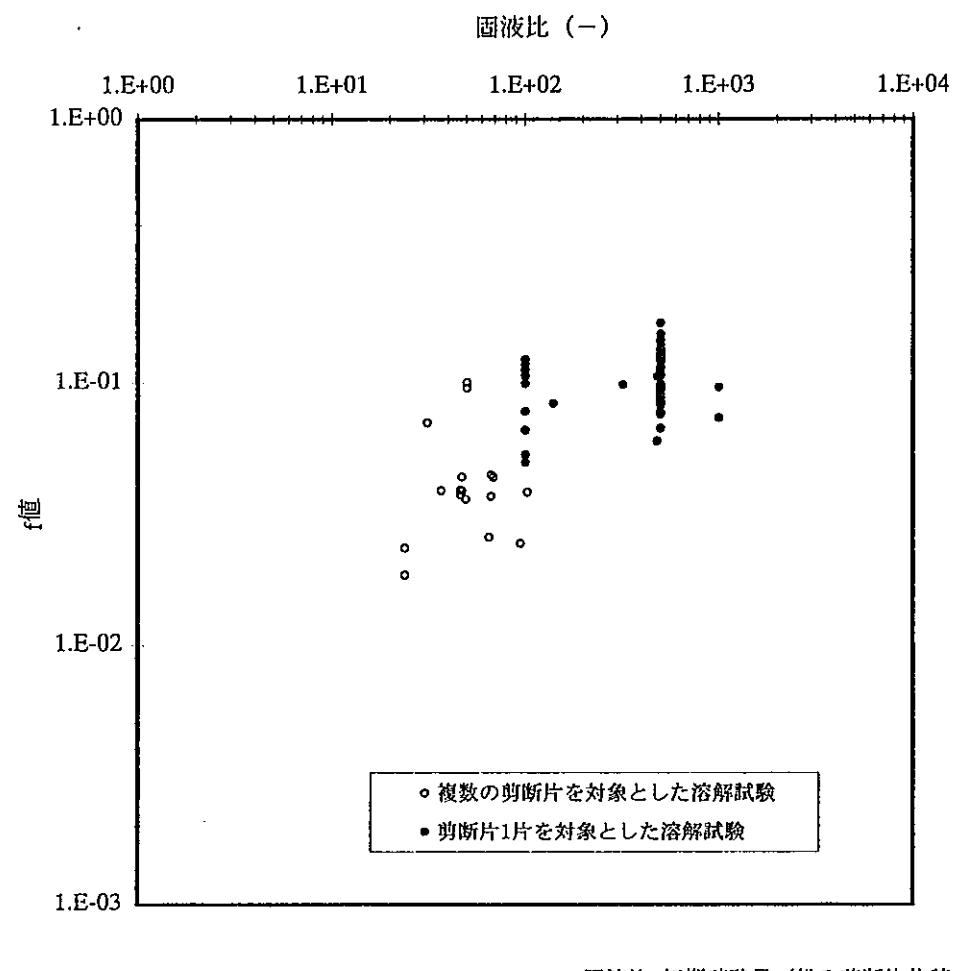


図5-1 照射済高速炉燃料剪断片を対象とした回分式溶解試験における
固液比と f 値との関係

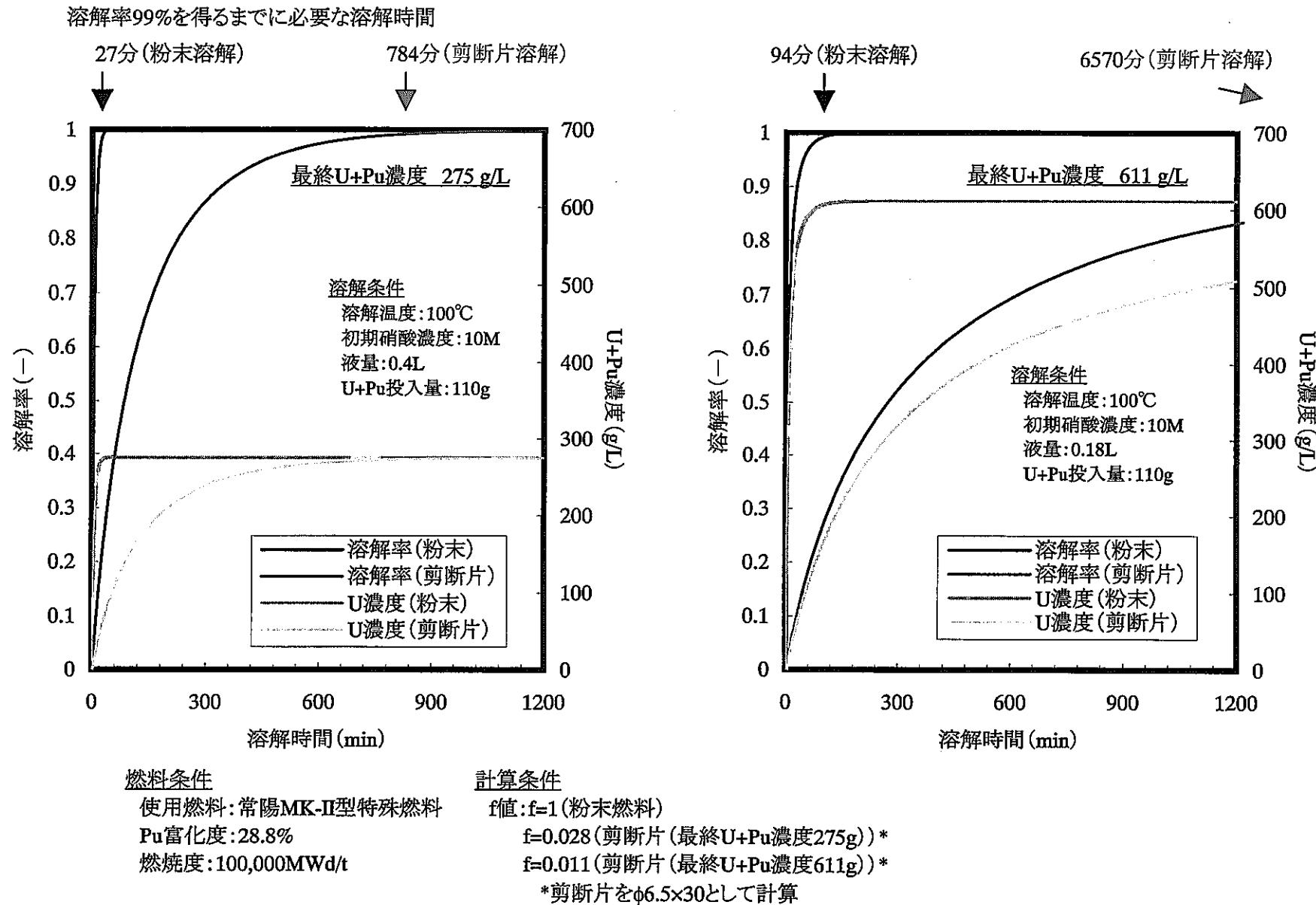


図5-2 照射済MOX燃料の溶解挙動に及ぼす燃料形態及び最終HM濃度の影響

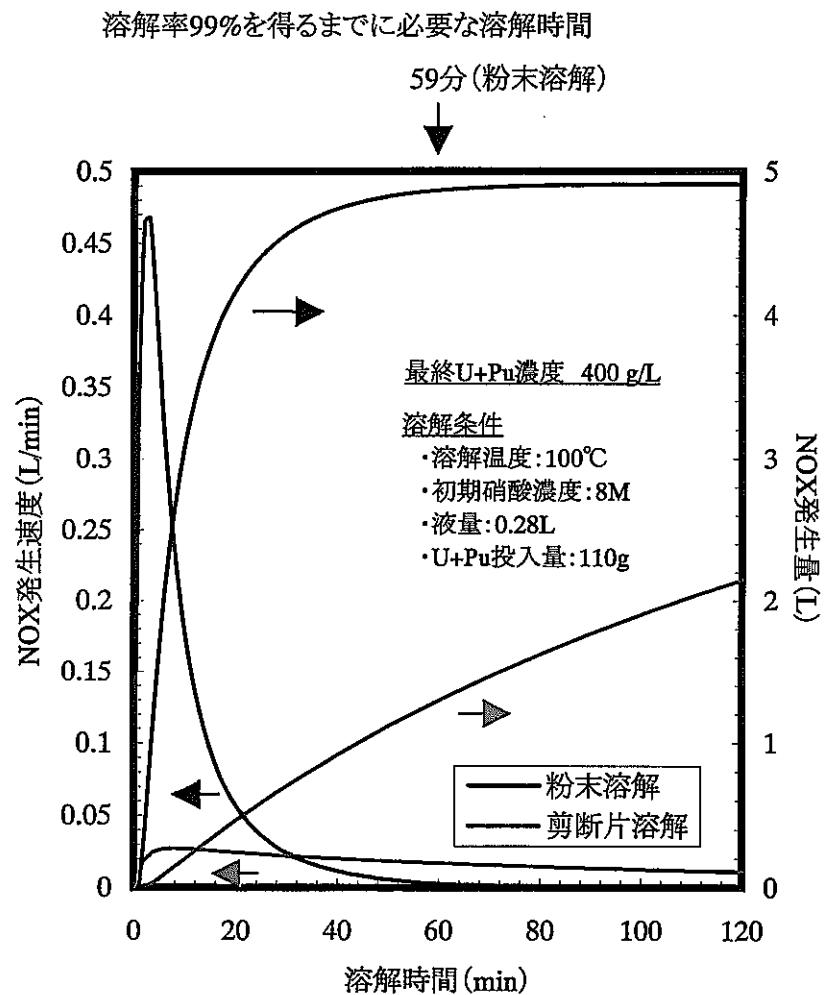


図5-3(1) NOX発生挙動に及ぼす燃料形態の影響

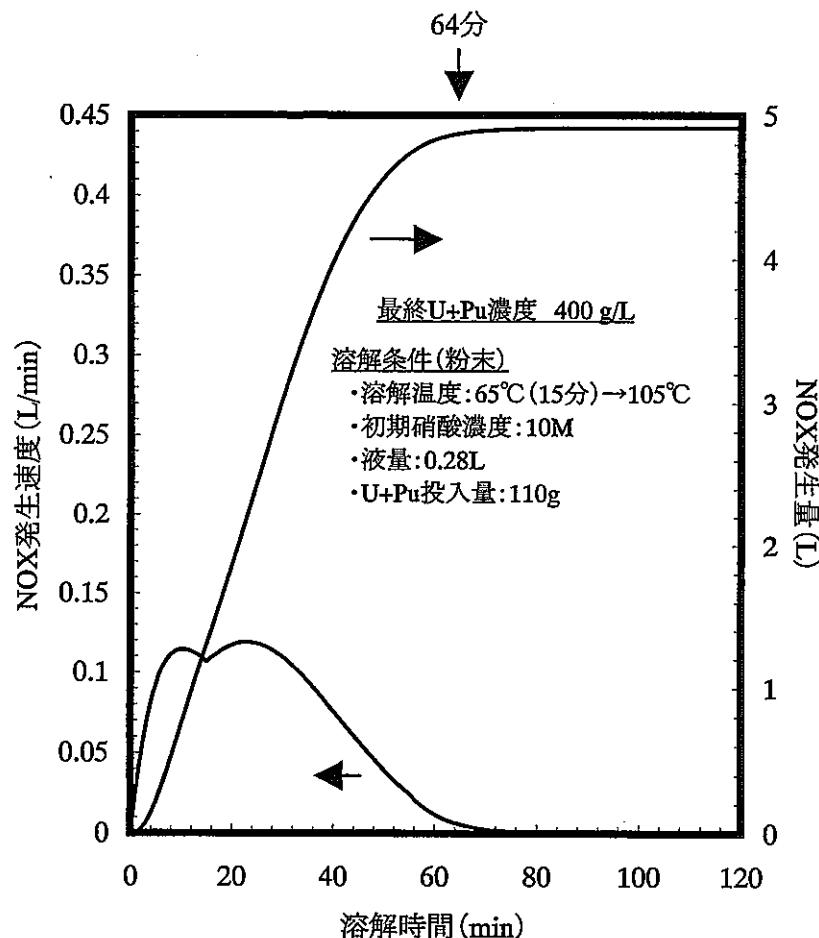


図5-3(2) NOX発生挙動に及ぼす溶解条件の影響(1)

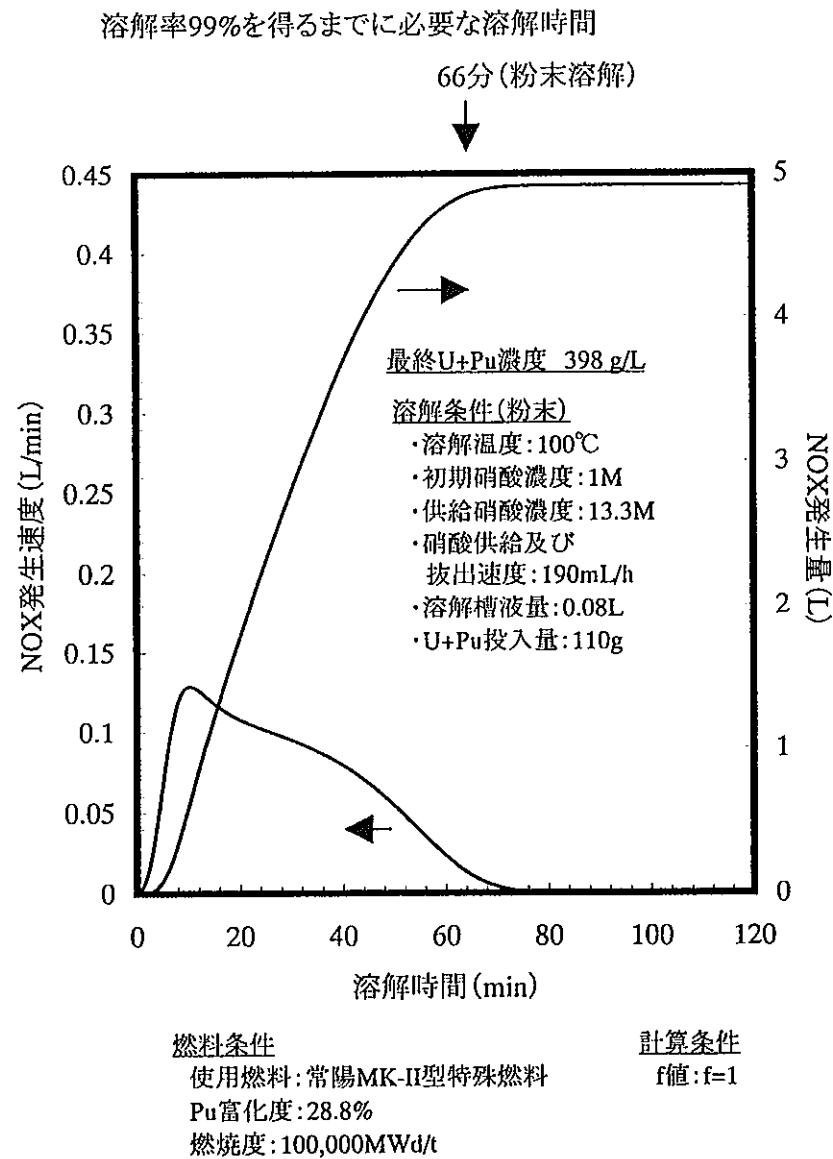


図5-3(3) NOX発生挙動に及ぼす溶解条件の影響(2)