

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。 2001. 6. 6

[技術情報室]

高速炉燃料リサイクル試験(5)

—— C P F ホット試験58年度年報 ——

FBR Fuel Reprocessing Experiments at CPF (5)

Annual Report for FY1983

昭和 59 年 4 月

動力炉・核燃料開発事業団
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番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

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

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



高速炉燃料リサイクル試験

—— CPF ホット試験 58 年度年報 ——

実施責任者 樫原英千世, 堀江 水明
報告者 大内 仁, 出光 一哉

要 旨

高レベル放射性物質研究施設 (CPF) の A 系列において, 高速実験炉「常陽」の使用済燃料を 8 本処理し, 約 110 g のプルトニウムを回収した。

燃料は約 3.5 M の沸騰硝酸により約 4 時間で溶解し, 燃焼度 40,100 MWD/T の燃料から約 0.2wt% の不溶解性残渣が回収された。不溶解性残渣の主成分は, モリブデン, ルテニウムで, プルトニウムとウランはほとんど含まれていなかった。

Purex 法を採用し, 抽出器としてミキサセトラ, 抽出溶媒として TBP/n-ドデカン, プルトニウム還元試薬として硝酸ヒドロキシルアミンを用い抽出工程全体の基本フローを確認した。共除染工程において, 抽出器内相界面に第 3 相が観察された。

FBR Fuel Reprocessing Experiments at CPF (5)

Annual Report for FY1983



Hidechiyo KASHIHARA, Misato HORIE

Jin OHUCHI, Kazuya IDEMITSU

Abstract

FBR fuel reprocessing experiments were performed at the Chemical Processing Facility (CPF) with eight mixed oxide fuel pins burned in the experimental fast reactor "JOYO".

These experiments produced approximately 110g plutonium and following informations.

The fuel dissolutions were completed in 4 hours by boiled 3.5M nitric acid. Undissolved residue was recovered to be 0.2wt% of the fuel burned to 40,100 MWD/T and mainly consists of Mo and Ru. Purex method was adopted in the extraction process with mixersettlers. Hydroxylamine nitrate was used as a reducing reagent of Pu. The 3rd phase was observed at the interface between organic phase and aqueous phase in co-decontamination process.

目 次

1. まえがき	1
2. スケジュール	2
3. ホット試験	3
3.1 剪断	6
3.2 溶解	7
3.3 抽出	13
4. あとがき	17

1. ま え が き

高レベル放射性物質研究施設（略称CPF）では，昭和57年9月から，高速実験炉「常陽」の使用済燃料を用いたホット試験を開始し，昭和59年3月までに3回の試験を行った。

これらの試験は，現在概念設計を進めている「高速炉燃料リサイクル試験施設」に反映するために実施したもので，3回の試験により種々のデータが得られたので報告する。

Table 1.1 FBR fuel reprocessing experiment at CPF

項目	試験	第 1 回	第 2 回	第 3 回
試料名		PPJWIH	PPJD2U	PPJX13
Burn up (MWD/t)		4,400	32,000	40,100
Pin 本数		2	2	4
MOx (g)*		659.6	662.8	1,295.8
DUO ₂ (g)**		376	377	753
Pu (g)***		44.5	45.2	87.9
U (g)***		536.9	529.1	1,054.4
剪断日		昭和57年9月30日	昭和58年6月17日	昭和58年9月28日
溶解日		昭和58年2月28日	6月20日	10月4日
抽出第1サイクル		3月14日～3月15日	6月28日～6月29日	11月1日～11月2日 11月14日～11月15日 12月5日～12月6日 (3分割)
抽出第2サイクル		3月28日～3月30日	7月5日～7月7日	昭和59年1月18日 ～1月19日 1月23日～1月24日 1月26日～1月27日
Pu 精製サイクル		4月7日～4月8日 4月21日(セル) 5月16日～5月18日 (GB)	7月19日(セル) 7月29日～8月2日 (GB)	2月20日～2月23日 (GB)
U 精製サイクル		5月18日～5月27日	7月27日～8月3日	2月13日～2月16日 2月20日～2月23日 2月27日～2月29日
転換		5月24日(MOX) 5月31日(U)	8月10日(MOX) 8月8日(U)	3月9日(MOX) 2月23日(U) 2月29日(U) 3月7日(U)
MOX 粉末 (g)		46.93 (Pu) 1.73 (U)	40.07 注1)	82.9
U (g)		1.45 (NU)	1.35 (DU, EU)	2.7 (DU, EU)
Pu (g)		29.0	27.0	54.6
U 粉末 (g)		546.4	425.9	886.7
U (g)		453.4	354.1 注2)	734.6

* Pu 燃出荷核物質重量表
 ** Pu, U 重量から算出
 *** 大洗 SMART コードから算出

注1) 転換時 40.25 g
 搬出時に再測定 40.07 g
 注2) 転換粉末サンプリングし calcine.
 重量 x 0.848 = U量として算出

2. スケジュール

Table 2.1 に、3回のホット試験のスケジュールを示す。

第1回試験は燃焼度 4,400 MWD/T の使用済燃料ピンを 2 本用いて、昭和57年9月から昭和58年5月にかけて、第2回試験は燃焼度 32,000 MWD/T の使用済燃料ピンを 2 本用いて、昭和58年6月から8月にかけて、第3回試験は燃焼度 40,100 MWD/T の使用済燃料ピンを 4 本用いて、昭和58年9月から昭和59年3月にかけて行った。

Table 2.1 Schedule of hot test in CPF

項目	年	57				58												59		
	月	9	10	11	12	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
ホット試験						第1回試験					第2回試験				第3回試験					
剪断		▽ 4,400 MWD/t 2ピン									▽ 32,000 MWD/t 2ピン				▽ 40,100 MWD/t 4ピン					
溶解						▲					▲				▲					
清澄・調整						▲					▲				▲					
共除染						▲					▲				▲					
分配						▲					▲				▲					
Pu精製						■					■				■					
U精製						■					■				■					
転換						MOx/U					MOx/U				MOx/U					

準備 試験
▲

3. ホット試験

試験に用いた燃料は高速実験炉「常陽」のMK-I炉心燃料である。

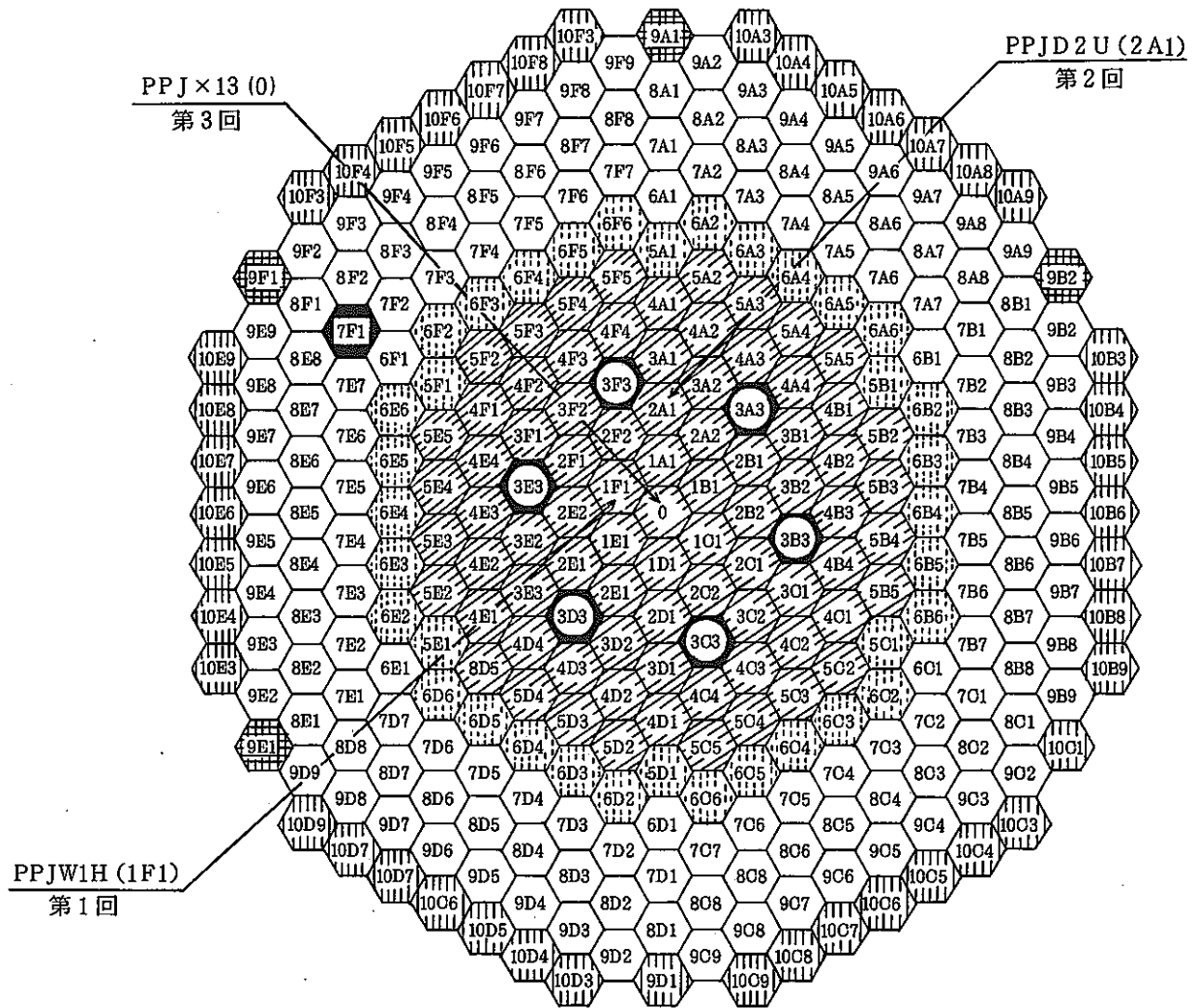
燃料ピンには、Pu富化度18%の機械混合法により製造された混合酸化物ペレットとその上下に劣化ウランの酸化物ペレットが充填されている。

Table 3.1 に、第1回試験から第3試験までに用いた燃料のコア部(MO_x)燃料の製造条件、燃焼度、冷却日数、FPの生成量を示す。Fig. 3.1には、これらの燃料が入っていた集合体の炉内における位置を示す。

Table 3.1 The record of the tested fuels

項 目	第 1 回	第 2 回	第 3 回
Pu 富 化 度	約 18 %	約 18 %	約 18 %
機 械 混 合 時 間 (hr)	4 ~ 5	6	7 ~ 14
成 型 圧 (t/cm ²)	3	2.2	3.7 ~ 4.0
焼 結 温 度 (°C)	1,800	1,600	1,700
焼 結 時 間 (hr)	2 ~ 3	2	93.2 ~ 93.7
密 度 (%TD)	93.5 ~ 93.7	93.9	93.2 ~ 93.7
固 溶 度	> 95 %	> 95 %	> 95 %
コア部平均燃焼度 (MWD/T)	4,400	32,000	40,100
冷 却 日 数 (溶解時)	430	654	648
$\beta\gamma$ 核 種 (ORIGEN計算値)	160 Ci/2ピン	350 Ci/2ピン	850 Ci/4ピン
FP 生 成 量 (g)	1.26/2ピン	7.94/2ピン	21.1/4ピン

炉内照射位置



構成要素種類	装 荷 位 置	
炉心燃料集合体	79本	
制 御 棒	6本 (3A ³ , 3B ³ , 3C ³ , 3D ³ , 3E ³ , 3F ³) * : 調整棒 o : 安全体	
半径方向ブランケット集合体	179本 (内側 36本, 外側 143本)	
中性子源	1本 (7F1)	
反 射 体	43本	
サーベイランステストリブ (反射体位置用)	5本	

高速実験炉炉心マトリックス

Fig. 3.1 Location of the tested fuels in reactor "JOYO"

Fig. 3.2 に試験フローを示す。

剪断工程においては燃料ピンを1本ずつ3cmごとに剪断した。溶解工程においては約3.5Mの硝酸を用いて、2本分または4本分の燃料片をバッチで溶解した。重力沈降および各種濾紙を用いて溶解液を清澄し、不溶性残渣を回収した。ウランとプルトニウムの合計濃度を200 g/lに、酸濃度を3Mに調整した後、共除染工程においてミキサ・セトラを用いて、FPを除去した。分配工程では、硝酸ヒドロキシルアミンを用いプルトニウムの還元を行い、ウランとプルトニウムを分配した。ウラン溶液とプルトニウム溶液は、各々硝酸ヒドロキシルアミンを用いて精製を行った後、マイクロ波加熱で粉末にした。

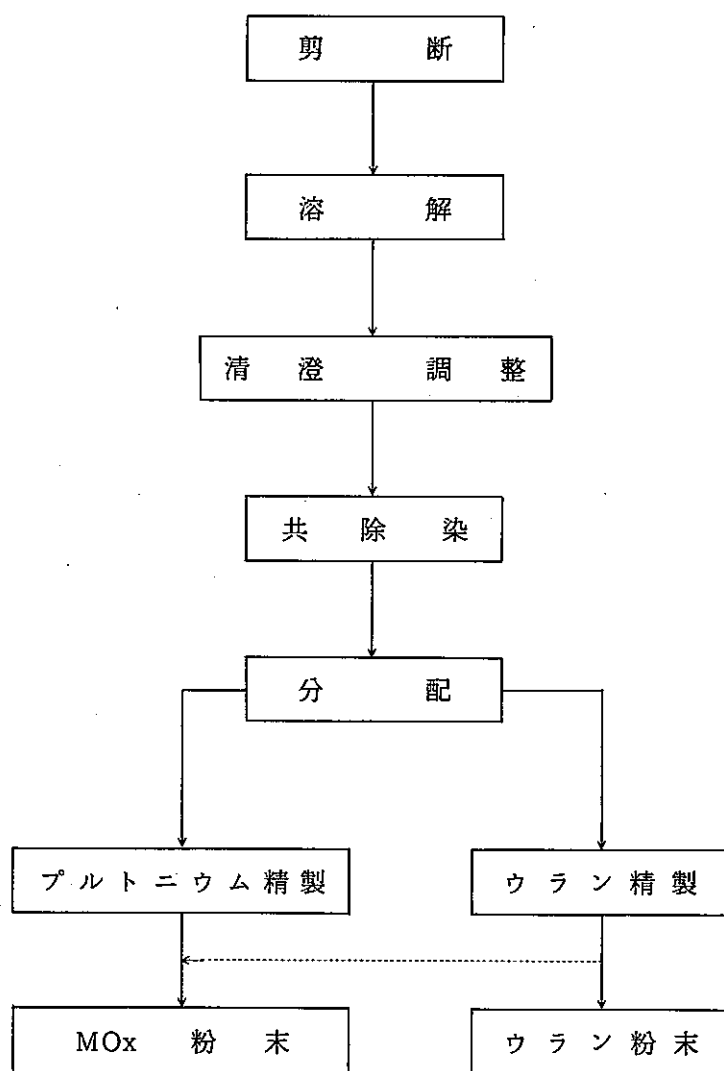


Fig. 3.2 Flow sheet of the FBR fuel reprocessing experiments

3.1 剪断

燃料ピンに含まれていたFPガスは、燃焼度 4,400 MWD/T の場合を除いて、FPガス総量の約 40 %が剪断開始と同時に放出された。Table 3.2 に各試験において放出されたクリプトンガスの量と総クリプトンガス量に対する割合を示す。Photo 3.1 に剪断片の写真を示す。剪断片はあまり変形しておらず、切り口はほぼ円形に保たれていた。燃料ミートはかなりもろくはなっており、振動を加えることにより容易に崩れ落ちる状態だった。

Table 3.2 Amount of released ^{85}Kr

試験	燃焼度 (MWD/T)	剪断時 (Ci)	溶解時 (Ci)	剪断時放出率 (%)
第 1 回	4,400	0.014/2ピン	0.32/2ピン	4
第 2 回	32,000	0.69 /2ピン	1.3 /2ピン	35
第 3 回	40,100	1.8 /4ピン	2.9 /4ピン	38

3.2 溶解

溶解槽の断面を Fig. 3.3 に示す。

燃料剪断片を入れたバスケットを、槽の貯液部に収納し、約 3.5 M の硝酸を 3 ℓ 注入して沸騰させ、燃料の溶解を行った。

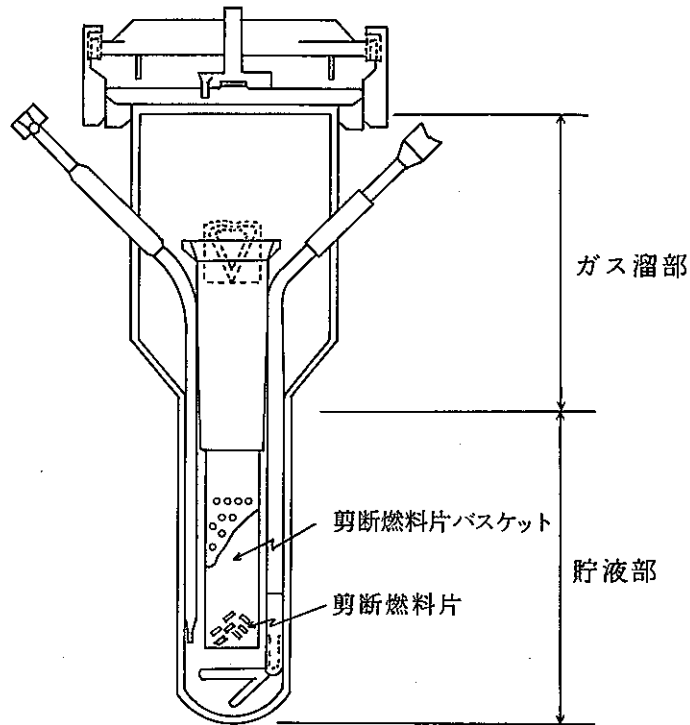


Fig. 3.3 Cross section of dissolver

Table 3.3 に各試験ごとの溶解条件および溶解終了時の溶解液の組成を示す。溶解終了時のウランとプルトニウムの合計濃度は 200 ~ 400 g/l になるように運転した。

Table 3.3 Condition of dissolution tests

項 目	第 1 回	第 2 回	第 3 回
燃 焼 度 (MWD/T)	4,400	32,000	40,100
燃料重量 U (g)	537	530	1,060
Pu	45	45	89
硝酸濃度 (mol/l)	3.6 → 1.9	3.5 → 1.9	3.6 → 2.4 → 2.9
液 量 (l)	3 → 2.2	3 → 2.9	3.3 → 2.6
溶解温度 (°C)	95 ~ 97	95 ~ 97	100 ~ 101
溶解時間		~ 10 hr	
空気供給		~ 0.5 m ³ /hr	
槽内負圧		~ -200 mmAq	
溶解終了時			
U (g/l)	240	172	385
Pu (g/l)	20	15	29.5
FP (rCi/l)	10	43	100
HNO ₃ (mol/l)	1.9	1.9	2.9
液 量 (l)	2.2	2.9	2.6

いずれの条件においても燃料は良く溶け、約4時間で溶解反応が終了した。Fig. 3.4に第3回試験の時のウラン、プルトニウムの濃度変化、クリプトンの放出パターンを示す。FPガスは約2時間でピークをむかえ、約4時間で放出を終了した。Fig. 3.5には放出ピーク時の溶解オフガス中の成分スペクトルを示す。オフガス成分は、空気成分の他に、FPガスであるクリプトンおよびキセノン、反応生成ガスであるNO_xガス等であった。

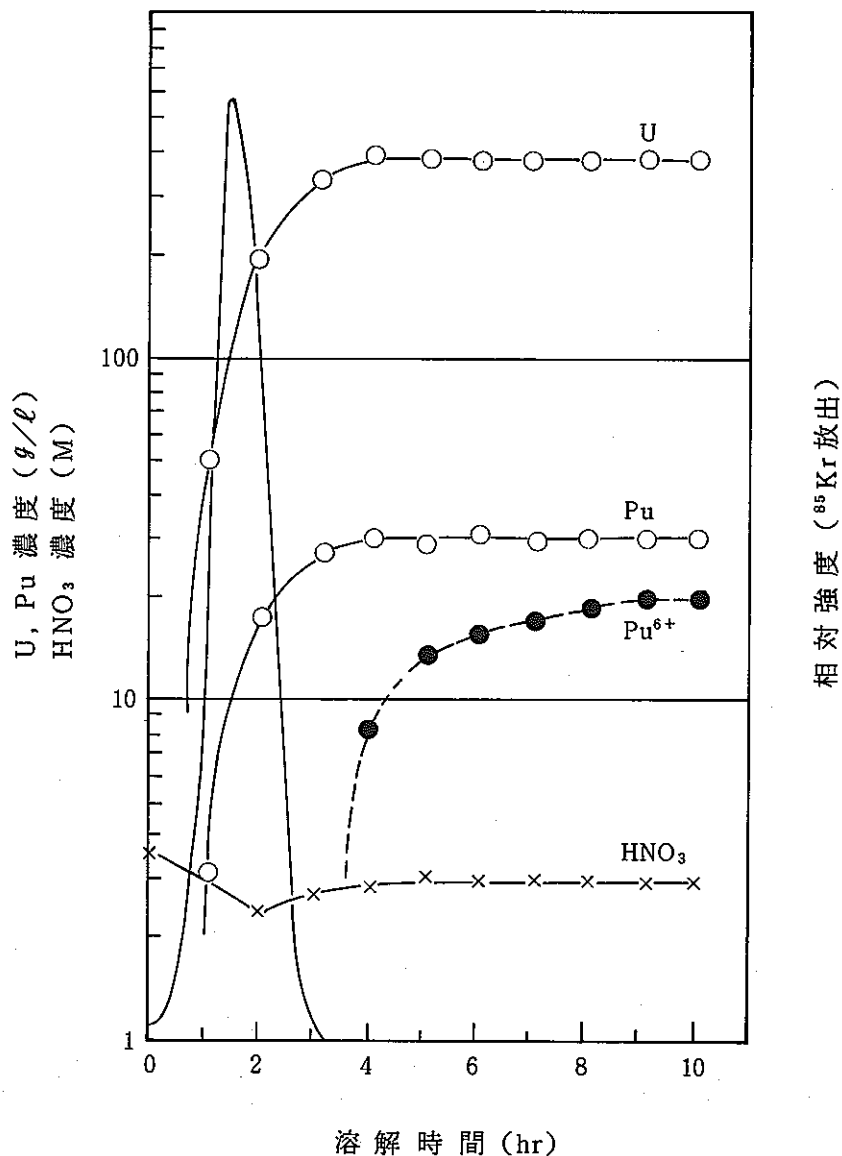


Fig. 3.4 Concentration profiles of dissolved solution (U, Pu, HNO₃) and monitoring of ⁸⁵Kr

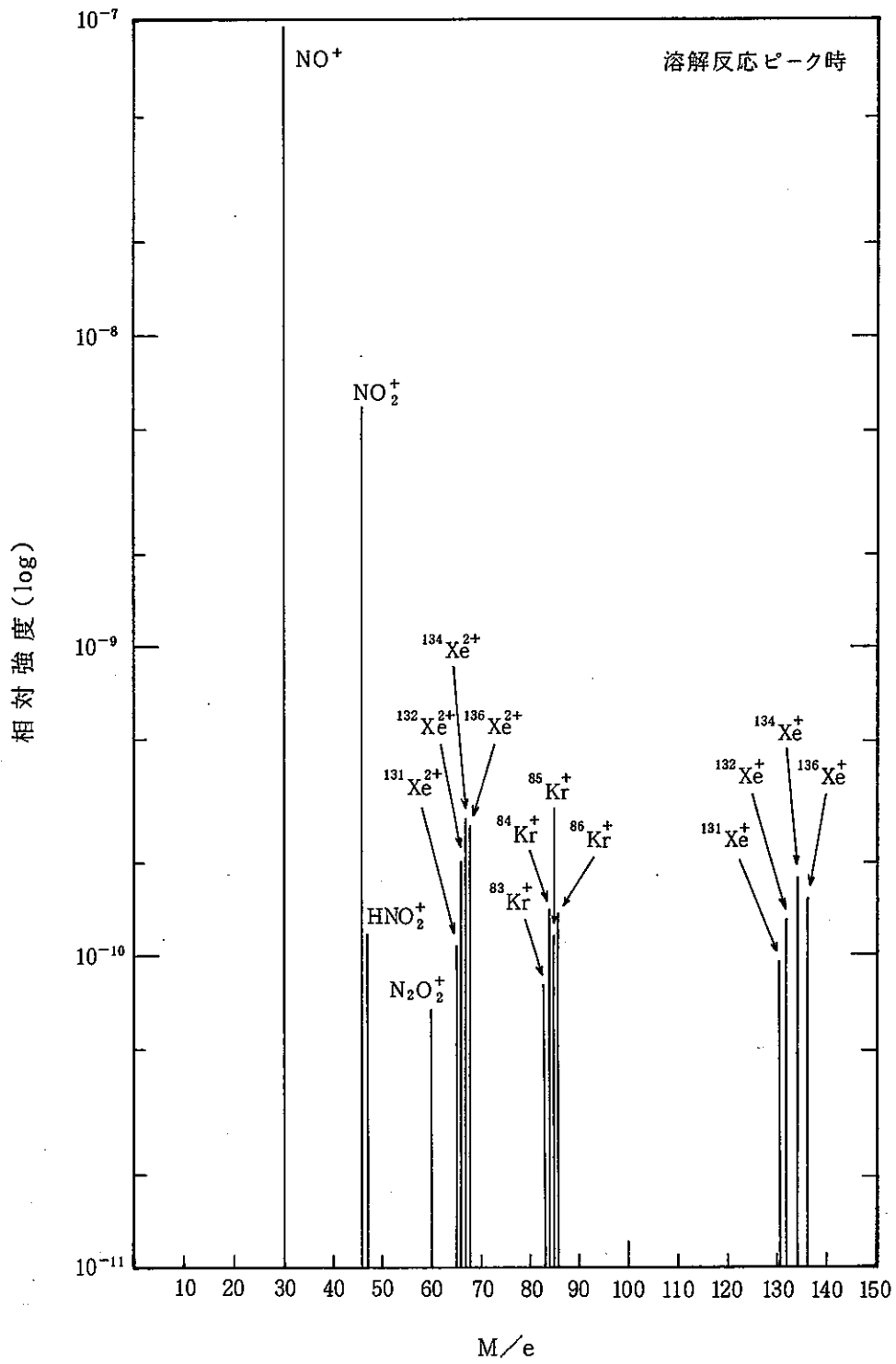


Fig. 3.5 Analytical result of gaseous components
With quadrupole mass spectrometer

Fig. 3.6にFPr成分の濃度変化を示す。ルテニウム以外は、約4時間で一定濃度になり溶解が終了したことを示している。ルテニウムは10時間後でもまだ濃度が増加する傾向にあり、溶け残っていることを示している。

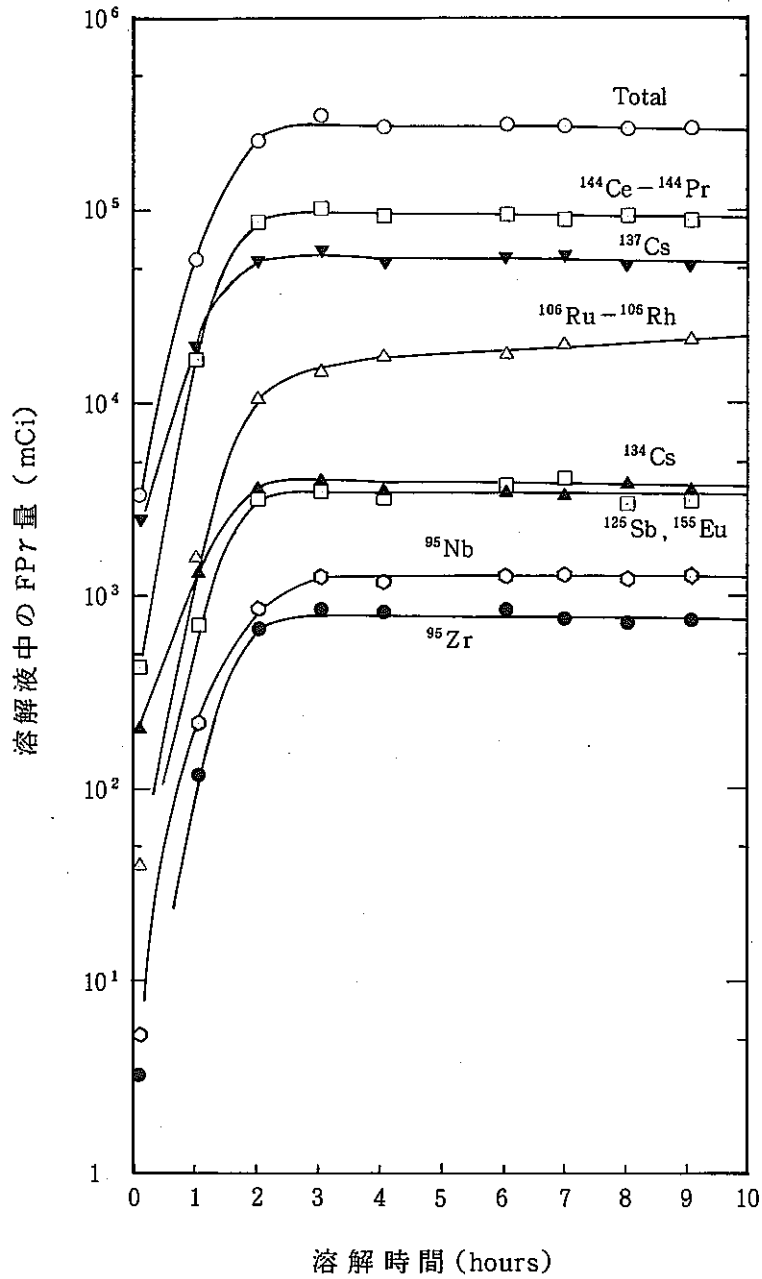


Fig. 3.6 Amount of components in dissolved solution (FPr)

溶解液中の不溶性残渣は沈降しやすく、10～20分でその大部分が沈降した（Fig.3.7）。第3回試験では、不溶性残渣を重力沈降させ回収した。回収した不溶性残渣をPhoto 3.2に示す。この時回収した不溶性残渣の重量は、コア部燃料重量の約0.4%程度だった。

Photo 3.3に、溶解終了後、溶解槽内から取り出したハルを示す。ハルの放射線測定の結果、主なガンマ核種はマンガン-54とコバルト-60であり、またルテニウムの若干の付着が認められた。

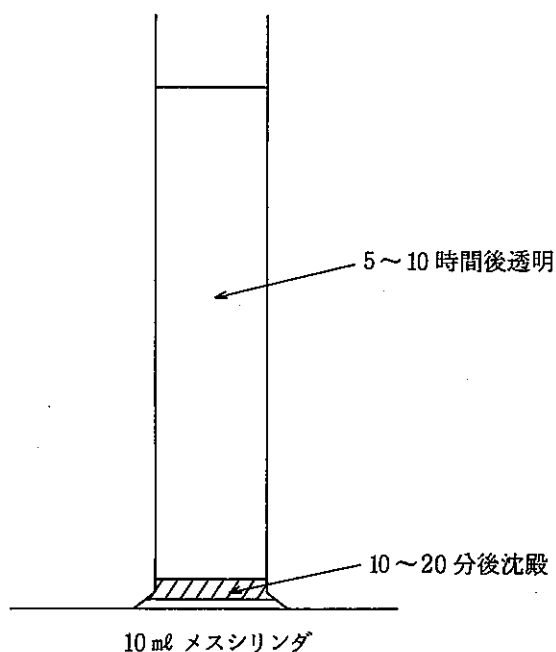


Fig. 3.7 Sedimentation of residue

3.3 抽出

抽出工程における基本フローをFig. 3.8に示す。

共除染工程において、抽出バンクのセトラ部の有機相/水相界面に黒色のクラッドが発生した (Photo 3.4)。このクラッドは、 γ スペクトル測定の結果から、不溶性残渣のうち粒径の小さいもの (ファイン) が有機相/水相界面に蓄積したものと推定される。第1回試験のときには孔径 $3\ \mu\text{m}$ の焼結金属フィルタで濾過したが、清澄が不十分だったためクラッドが大量に発生した。第3回試験では、不溶性残渣沈降後の上澄液を公称 $0.5\ \mu\text{m}$ のガラス繊維濾紙で濾過し、高度な濾過を行うことによりその発生量を低減した。

FPF成分のうちジルコニウムの分配係数が1に近く、抽出器内でアキュムレーションを起こしたこのためジルコニウムの除染係数が著しく低下した。Fig. 3.9にジルコニウムとルテニウムの濃度プロフィールを示す。

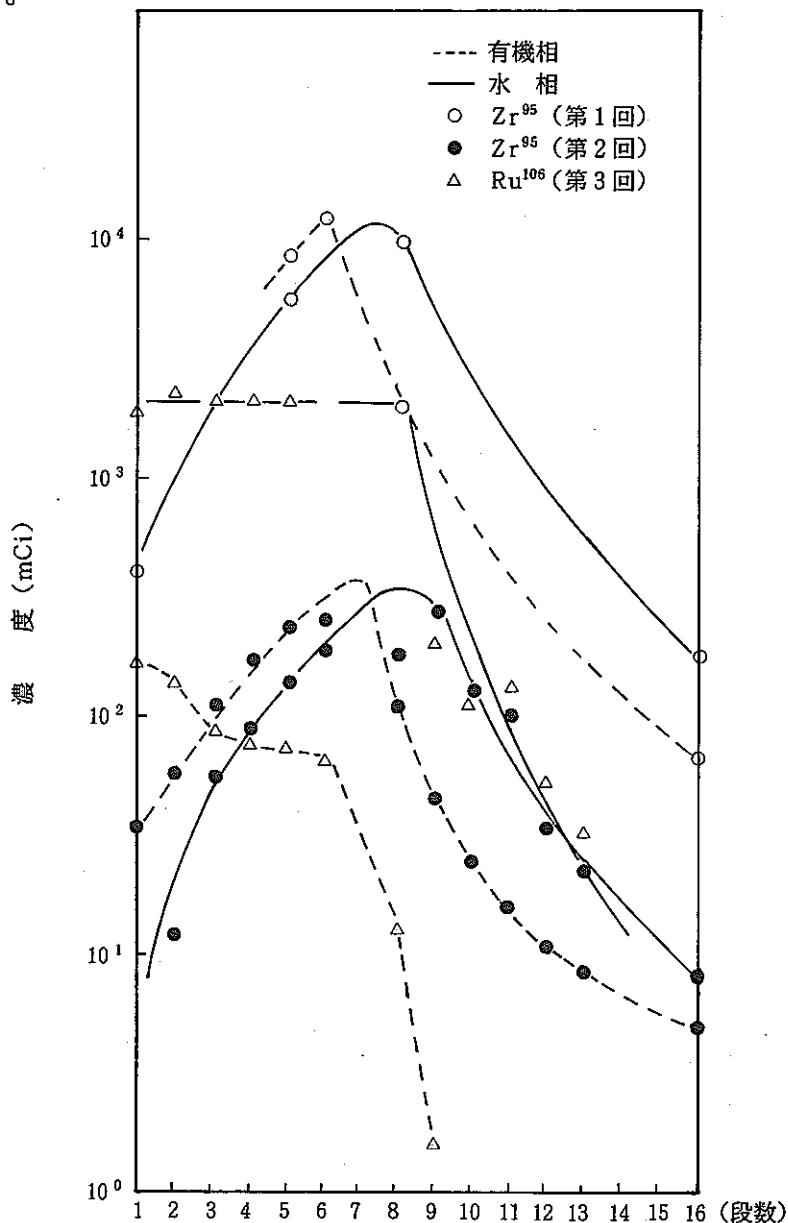
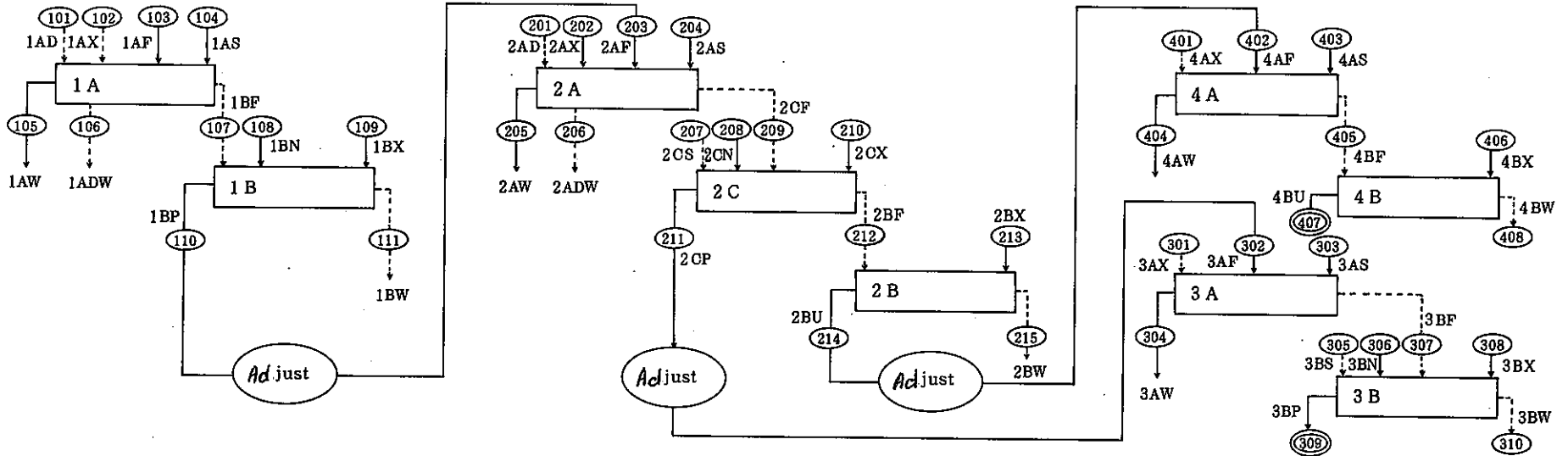


Fig. 3.9 Concentration profiles in co-decontamination process (⁹⁵Zr, ¹⁰⁶Ru)



液流番号	101	102	103	104	105	106	107	108	109	110	111	201	202	203	204	205	206	207	208	209	210	211	301	302	303	304	305	306	307	308	309	310	401	402	403	404	405	406	407	408								
記号(相)	1AD(S)	1AX(O)	1AF(A)	1AS(A)	1AW(A)	1ADW(S)	1BF(O)	1BN(A)	1BX(A)	1BP(A)	1BW(O)	2AD(S)	2AX(O)	2AF(A)	2AS(A)	2AW(A)	2ADW(S)	2CS(O)	2CN(A)	2CF(O)	2CX(A)	2CP(A)	3AX(O)	3AF(A)	3AS(A)	3AW(A)	3BS(O)	3BN(A)	3BF(O)	3BX(A)	3BP(A)	3BW(O)	4AX(O)	4AF(A)	4AS(A)	4AW(A)	4BF(O)	4BX(A)	4BU(A)	4BW(O)								
流量 ml/hr	30.0	223.2	101.9	40.8	142.7	30.0	223.2	8.4	276.8	285.2	223.2	30.0	187.0	264.0	65.0	329.0	30.0	90.0	11.0	187.0	110.0	121.0	110.0	400.0	80.0	480.0	50.0	23.0	110.0	160.0	183.0	160.0	160.0	300.0	60.0	360.0	160.0	170.0	170.0	160.0	170.0	170.0	160.0	160.0	170.0	170.0	160.0	160.0
U g/l	0	0	184	0	0.20	0	84.0	0	0	65.6	0.08	0	0	52.5	0	0.07	0	0	0	74.0	0	0.02	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0					
Pu g/l			16	0	0.011		7.3	0	0	5.7	0.007			4.6	0	0.011			0	6.5	0	10.0																										
硝酸 M			3.0	3.0	3.0		0.2	11.0	0.02	0.5	0.001			3.0	3.0	3.0			6.0	0.2	0.15	0.68																										
HAN M																																																
HDZ M																																																
液流番号	212	213	214	215	301	302	303	304	305	306	307	308	309	310	401	402	403	404	405	406	407	408																										
記号(相)	2BF(O)	2BX(A)	2BU(A)	2BW(O)	3AX(O)	3AF(A)	3AS(A)	3AW(A)	3BS(O)	3BN(A)	3BF(O)	3BX(A)	3BP(A)	3BW(O)	4AX(O)	4AF(A)	4AS(A)	4AW(A)	4BF(O)	4BX(A)	4BU(A)	4BW(O)																										
流量 ml/hr	277.0	318.6	318.6	277.0	110.0	400.0	80.0	480.0	50.0	23.0	110.0	160.0	183.0	160.0	160.0	300.0	60.0	360.0	160.0	170.0	170.0	160.0																										
U g/l	50.0	0	43.4	0.13	0	0.01	0	3×10 ⁻³	0	0	0.04	0	7×10 ⁻³	0.03	0	33.5	0	4×10 ⁻⁵	62.0	0	59.1	0.1																										
Pu g/l	1×10 ⁻³	0	1×10 ⁻⁴	1×10 ⁻³		7.0	0	1×10 ⁻³		0	25.4	0	15.2	0.04		8×10 ⁻⁵	0	5×10 ⁻⁶	4×10 ⁻⁵	0	2×10 ⁻⁵	1×10 ⁻⁵																										
硝酸 M	0.02	0.02	0.04	0.001		3.0	1.5	2.7		7.0	0.1	0.15	1.0	0.03		3.0	0.15	2.5	0.01	0.02	0.03	0.001																										
HAN M												0.21	0.12				0.05	0.01																														
HDZ M												0.2	0.17				0.2	0.03																														

→ 水相流 (A): 水相
 - - - 有機相流 (O): 30%TBP/n-ドデカン
 (S): ドデカン

Fig. 3.8 Extraction flow sheet in CPF

分配工程においては、硝酸ヒドロキシルアミン (HAN) を用いてプルトニウムの還元分離を行った。Fig. 3.10 にプルトニウム分離の結果を示す。HANの量を増すことによりウラン溶液中のプルトニウム濃度を1 ppm以下に下げることができた。

精製工程においてもHANを用いて、ウラン溶液、プルトニウム溶液それぞれの精製を行った。Fig. 3.11 にウラン精製工程の結果を示す。HANの量を増すことによりウラン溶液中のプルトニウムを0.3～0.5 ppmにまで下げることができた。

精製した各溶液をマイクロ波加熱により直接脱硝してプルトニウム約110 gを含むMO_x粉末を回収した。Photo 3.5 に回収粉末の写真を、Table 3.4 にその同位体組成を示した。

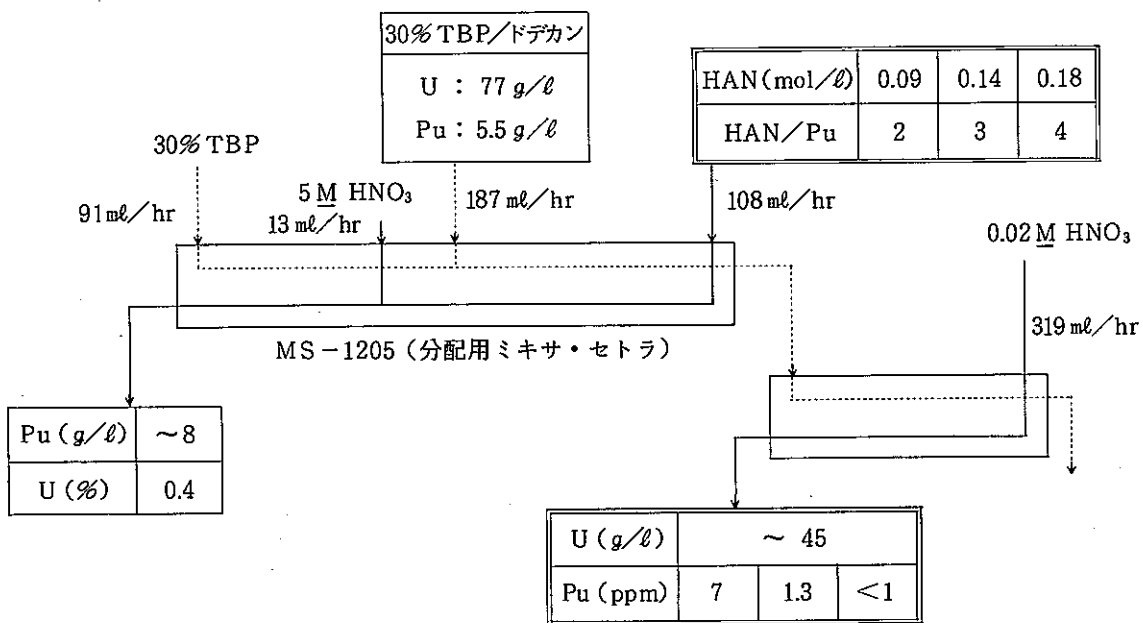


Fig. 3.10 Results of partitioning process experiments

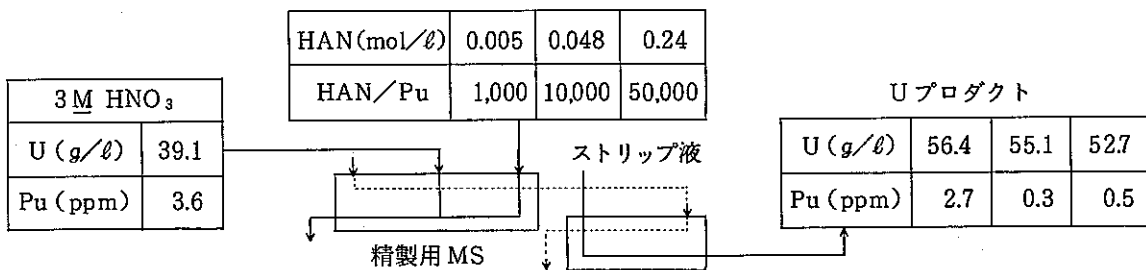


Fig. 3.11 Results of purification process experiments

Table 3.4 Isotopic composition of Pu and U in the recovered MOx

収納物	重量(Net)	重量(Metal)	同位体比 (wt/o)
回収 MOx (第2ラン)	40.07 g	Pu : 27.0 g	Pu ²³⁸ 0.144
			Pu ²³⁹ 76.69
			Pu ²⁴⁰ 20.32
			Pu ²⁴¹ 2.223
			Pu ²⁴² 0.624
		U : 1.35 g	U ²³⁴ 0.0436
			U ²³⁵ 8.13
			U ²³⁶ 0.2576
			U ²³⁸ 91.56



Photo 3.5 Recoverd MOx

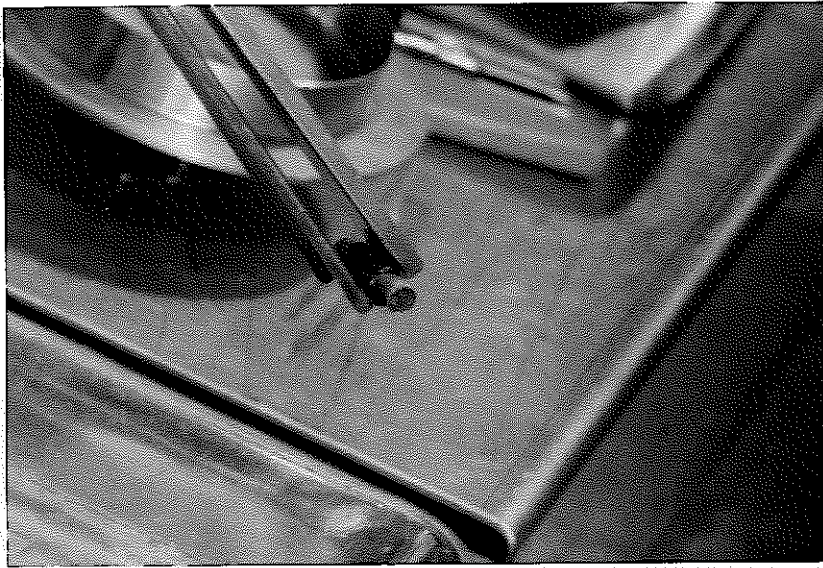


Photo 3.1 Sheared fuel Piece

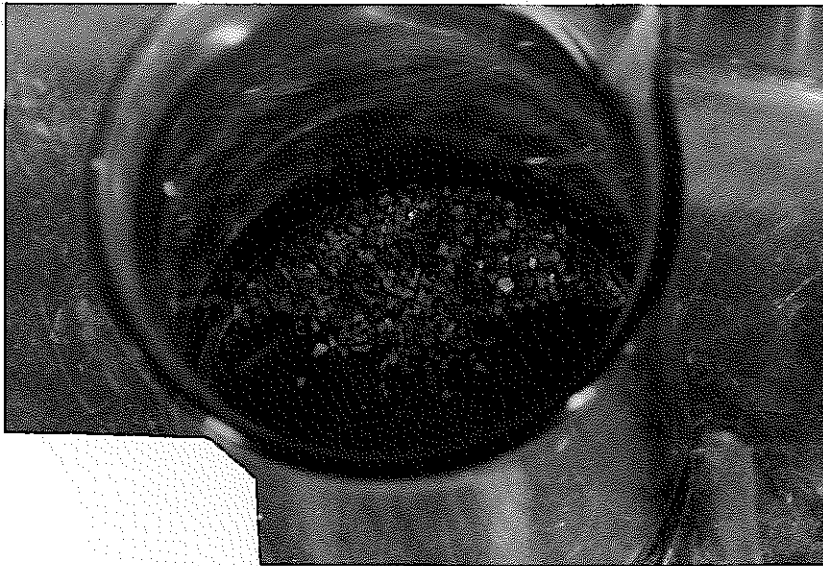


Photo 3.2 Undissolved residue



Photo 3.3 Hulls

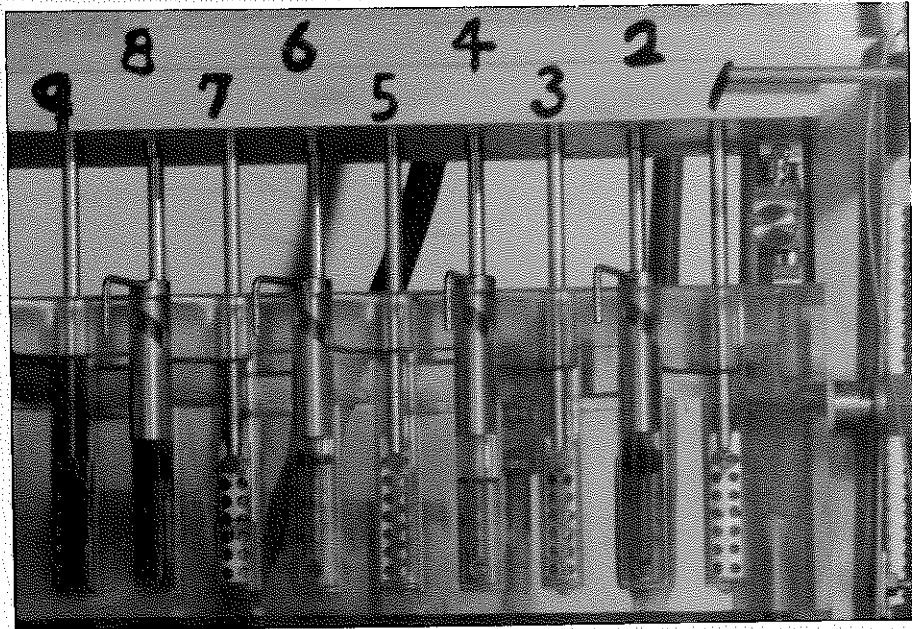


Photo 3.4 CRUD in mixer-settler of co-decontamination process

4. あ と が き

3回のホット試験の結果、高速炉燃料再処理のポイントが定性的にはほぼ確認できたので、これらの結果に基づき昭和59年度は以下のポイントについて重点的に試験を行う。

- (1) 溶解条件の緩和（低温，低硝酸濃度）
- (2) 燃料の溶解性（コア部，ブランケット部）
- (3) 不溶解性残渣の特性把握（沈降性，発生量，プルトニウム含有率，溶解性，成分，粒度分布等）
- (4) 清澄方法の検討
- (5) 溶解オフガスの測定（H-3，C-14，I等）
- (6) FPの抽出挙動（溶解条件，飽和度，抽出速度等）
- (7) プルトニウム還元試験（HAN，電解）

Table. 4.1 に59年度スケジュールを示す。

Table 4.1 Schedule of FBR fuel reprocessing experiments for FY1984

項目	年	59										60		
	月	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	
ホット試験		第4回試験					第5回試験					第6回試験		
剪断		▽ (計4本)						▽ 4本				▽ 2本		
溶解		■	■	■	■			■	■			■		
清澄・調整		■					■	■			■			
共除染				■				■	■			■		
分配					■				■	■			■	
Pu精製						■			■	■			■	
U精製				■				■	■			■		
転換		MOx U			○				○	○			○	