

主要核分裂生成物及びアクチニド核種の溶解挙動

－ 不溶解残渣への移行率のまとめ －

1992年1月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technology Management Section Tokai Works Power Reactor and
Nuclear Fuel Development Corporation Tokai 4-33, Muramatsu,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation) 1992

主要核分裂生成物及びアクチニド核種の溶解挙動
－不溶解残渣への移行率のまとめ－

実施責任者 富樫 昭夫¹⁾
実施担当者 滑川 卓志¹⁾
豊田 修¹⁾

要 旨

高速炉燃料再処理に関し、ヘッドエンドプロセス設計に必要とされる主要アクチニド及び核分裂生成物の溶解挙動をまとめた。

高レベル放射性物質研究施設（CPF：Chemical Processing Facility）においては、高速実験炉「常陽」及び仏国「Phoenix」炉による照射済燃料を用いて溶解試験を実施した。主要核種の不溶解残渣への移行率を燃料仕様、溶解試験条件と対比させ整理してデータベース化した。

¹⁾ 再処理技術開発部 プロセス・分析開発室

目 次

1. 目 的	1
2. 試験方法	1
3. 試験結果	2
(1) 不溶解残渣へのZr, Ru及びRhの移行率	2
(2) 不溶解残渣へのU, Puの移行率	2
4. 考 察	3
5. 参考文献	3

目 次 (図および表)

図-1	回分式小型溶解槽	4
表-1	試験条件及びZ rの不溶解残渣への移行率	5
表-2	試験条件及びR uの不溶解残渣への移行率	6
表-3	試験条件及びR hの不溶解残渣への移行率	7
表-4	試験条件及びU, P uの不溶解残渣への移行率	8
表-5	不溶解残渣への移行率の文献報告例	9

1. 目 的

使用済高速炉燃料の再処理においては、現行の軽水炉燃料再処理と同様にピューレックス法が適用可能であると考えられる。高速炉燃料は軽水炉燃料と比較して高プルトニウム富化度でかつ、高燃焼度であることから核分裂生成物の含有率が多いなどの特徴が挙げられる。この為に、溶解工程において発生する不溶解残渣の増加による抽出工程でのクラッドの発生及び閉塞、また溶媒の放射線損傷、第三相の発生さらには臨界の問題など、重視しなければならない課題が多く存在する。

この中で、不溶解残渣に着目してみると、使用済高速炉燃料の溶解液に含まれる不溶解残渣は、使用済軽水炉燃料の場合と比べて発生量が多く、さらにPu富化度、燃焼度が増加することにより多くなると言われている¹⁾。また、燃焼度 45,000Mwd/t、2.4年冷却の使用済燃料溶解液中の不溶解残渣の多くはMo-Ru-Tc-Rh-Pd (16-47- 8-11-18) などの合金であったという報告もされているが²⁾、詳細な性状については解明されていない。

高レベル放射性廃液研究施設(CPF)では、「常陽」MK-I, II 及び海外照射済燃料を供試燃料として、小規模ながら再処理工程(せん断、溶解、清澄、調整、抽出、精製、転換)一連の試験を実施し、使用済高速炉燃料の溶解特性、不溶解残渣の発生量、抽出特性などに関するデータを取得した。

本報告書では、使用済高速炉燃料を硝酸にて溶解、清澄して得られた不溶解残渣の発生量及び残渣中に含まれる主要核種の組成について述べる。

2. 試験方法

ラッピングワイヤを除去した使用済燃料ピンを、約3cmに1ピンづつせん断する。このせん断片を回分式小型溶解槽(図-1に示す)に装荷し、硝酸注入後加熱昇温して燃料を溶解させる。溶解は初期硝酸濃度、溶解温度、溶解時間、燃料量/硝酸比などをパラメータとしながら、製造方法、Pu富化度及び、燃焼度などが異なる使用済高速炉燃料を供試燃料とした。使用済燃料を溶解した後の溶解液及び溶解槽の洗浄液をガラス製のビンへ送り、放置することによって不溶解残渣を自然沈降させる。自然沈降した不溶解残渣は、付着している溶解液を除去するために、ビーカーに移し換えて3M硝酸にて常温あるいは加熱洗浄にて不溶解残渣の洗浄を行う。洗浄後の不溶解残渣は、ガラス製ビーカーに移し換えて自然乾燥させた後、秤量及び、発光分光分析法による組成分析、X線マイクロアナライザー(E PMA)による各元素の分布を同定した。

不溶解残渣中への各元素の移行率は下記の式により求めた。

$$\text{移行率 (wt\%)} = \text{残渣中の各元素重量} / \text{使用済燃料中の各元素重量 (ORIGEN値)}$$

3. 試験結果

(1) 不溶解残渣へのZr, Ru及びRhの移行率

1) Zrの不溶解残渣への移行率について

- ・ Zrの不溶解残渣への移行率は、0.3～11.5W%であった。
- ・ 使用済燃料の燃焼度が増加するに従い、不溶解残渣の発生量は増加する。
- ・ 溶解条件（初期硝酸濃度を上げる）を改善することにより、不溶解残渣の発生量を低減することができる。

表-1に試験条件及びZrの不溶解残渣への移行率を示す。

2) Ruの不溶解残渣への移行率について

- ・ Ruの不溶解残渣への移行率は、約5～16W%であった。
- ・ 使用済燃料の燃焼度が増加するに従い、不溶解残渣の発生量は増加する。
- ・ 溶解条件（初期硝酸濃度を上げる）を改善することにより、不溶解残渣の発生量を低減することができる。

表-2に試験条件及びRuの不溶解残渣への移行率を示す。

3) Rhの不溶解残渣への移行率について

- ・ Rhの不溶解残渣への移行率は、約20W%であった。

表-3に試験条件及びRhの不溶解残渣への移行率を示す。

(2) 不溶解残渣へのU, Puの移行率

不溶解性残渣へのU, Puの移行率は、溶解条件（硝酸濃度、溶解温度）によって変動する。また、燃料の製造条件及び照射条件によっても変動するが、「常陽」MK-I, MK-II特殊燃料を用いた溶解試験結果より、

1) Uの不溶解残渣への移行率について

- ・ Uの不溶解残渣への移行率は、「常陽」MK-I燃料で0.008W%以下、「常陽」MK-II特殊燃料で0.07W%以下である。

(2) Puの不溶解残渣への移行率について

・Puは試験条件によりバラツキがあり、0.01~0.09W%の範囲であった。

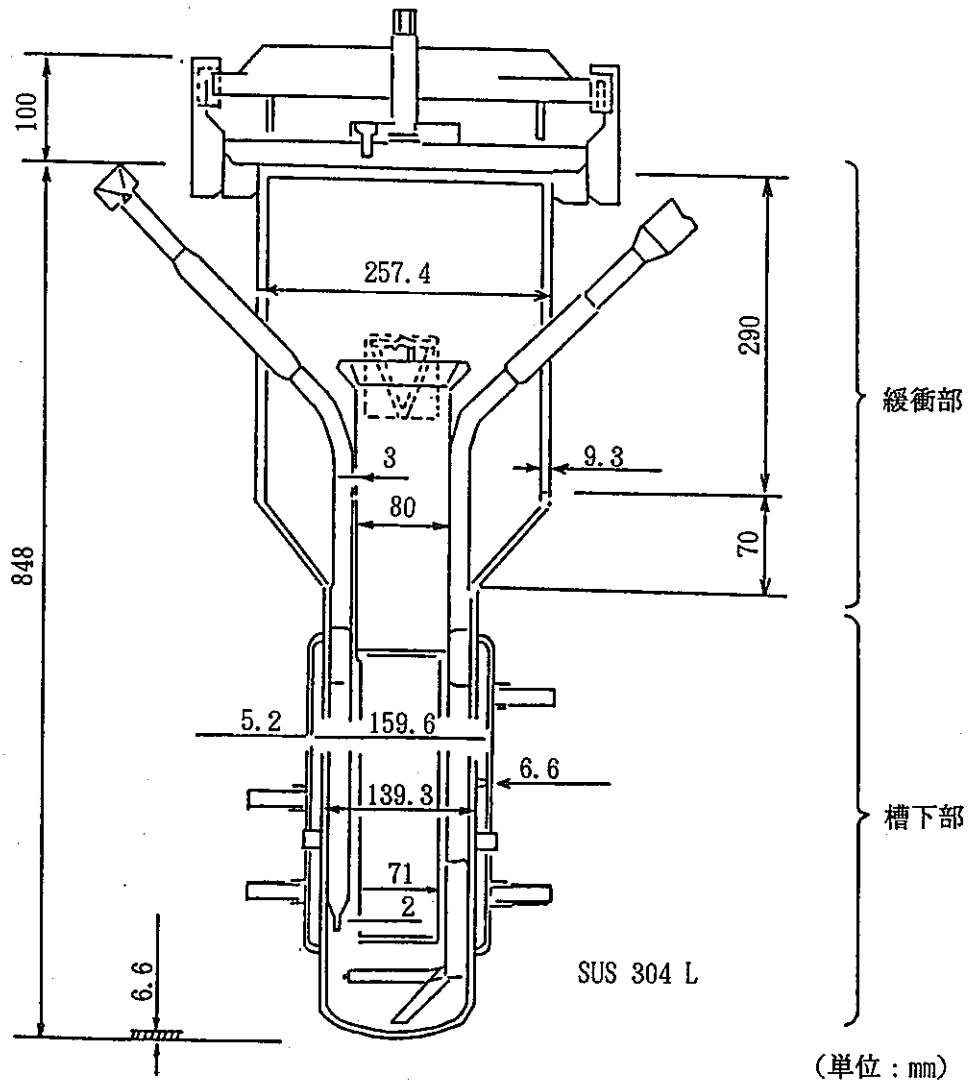
表-4に試験条件及びU, Puの不溶解残渣への移行率を示す。

4. 考 察

不溶解残渣への移行率の文献報告例を表-5に示す^{3) -7)}。Ru及びRhについては、C PFのデータと近い値を示している。Puの残渣への移行率については、文献報告は高い値を示しているが、燃料製造条件及び溶解条件の詳細が報告されていないので比較は出来ない。

5. 参考文献

- 1) PuO₂-UO₂ 混合酸化物燃料の溶解性の調査, N842-82-01
- 2) F. Baumgaertner, A. Huber, ISEC' 86, p. 11~16, sep. 1986
- 3) J. A. Crofts, L. R. Wetherly, K. L. Wilkinson: UKAEA Harwell, unpublished report, 1981
- 4) H. Kleykamp: Jahrestagung Kerntechnik ' 81, Dusseldorf, 1981, Proceedings, p. 327
- 5) H. Kleykamp in: kfk 3278 (1982) p. 100
- 6) H. Kleykamp, R. Pejisa, W. Kohnert: Kernforschungszentrum Karlsruhe, unpub. report, 1981
- 7) H. Kleykamp: Atomwirtschaft 27 (1982) 385



全 容 積: 22.0 ℓ
 有 効 容 積: 10 ℓ
 (液面警報レベル)
 運 転 容 積: 3.2 ℓ
 (通常運転容積)
 排 出 不 可 能 量: 0.035 ℓ
 計 測 不 可 能 量: 0.15 ℓ
 (液面計の作動限界)

図-1 回 分 式 小 型 溶 解 槽

表 1 試験条件及びZrの不溶解残渣への移行率

データNo.	対象燃料	溶解量 (ピン本数)	燃焼度 (MWD/t)	硝酸濃度 (M)	溶解温度 (°C)	溶解時間 (hr)	不溶解残渣への移行率 Zr (wt%)
1	常陽MK-II 炉心燃料	3本	31,700	3.5→2.7	97	13	1.6
2	Phoenix 炉心燃料	3本相当*	94,000	3.0→2.0	96	27	11.5
3	Phoenix 炉心燃料	3本	94,000	4.3→5.0	107	25	0.3

$$\text{Zrの不溶解残渣への移行率} = \frac{\text{残渣中のZrの重量}}{\text{使用済燃料中のZrの重量 (ORIGEN値)}}$$

* 照射後試験後の切断片を用いた

表 一 2 試験条件及びRuの不溶解残渣への移行率

データNo.	対象燃料	溶解量 (ピン本数)	燃焼度 (MWD/t)	硝酸濃度 (M)	溶解温度 (°C)	溶解時間 (hr)	不溶解残渣への移行率 Ru (wt%)
1	常陽MK-II 炉心燃料	3本	31,700	3.5→2.7	97	13	5.3
2	Phoenix 炉心燃料	3本	94,000	4.3→5.0	107	25	16.3
3	常陽MK-II 特殊燃料	4本	54,100	4.4→2.5	104	12	6.9

$$\text{Ruの不溶解残渣への移行率} = \frac{\text{残渣中のRuの重量}}{\text{使用済燃料中のRuの重量 (ORIGEN値)}}$$

表 3 試験条件及びRhの不溶解残渣への移行率

データNo.	対象燃料	溶解量 (ピン本数)	燃焼度 (MWD/t)	硝酸濃度 (M)	溶解温度 (°C)	溶解時間 (hr)	不溶解残渣への移行率 Rh (wt%)
1	常陽MK-II 炉心燃料	3本	31,700	3.5→2.7	97	13	19.4
2	Phoenix 炉心燃料	3本	94,000	4.3→5.0	107	25	20.3

$$\text{Rhの不溶解残渣への移行率} = \frac{\text{残渣中のRhの重量}}{\text{使用済燃料中のRhの重量 (ORIGEN値)}}$$

表-4 試験条件及びU, Puの不溶解残渣への移行率

データNo.	対象燃料	溶解量 (ピン本数)	燃焼度 (MWD/t)	硝酸濃度 (M)	溶解温度 (°C)	溶解時間 (hr)	不溶解残渣への移行率 (wt%)	
							U	Pu
1	常陽MK-II 特殊燃料	1本	54,100	8.7→8.0	BP.	4	<0.07	0.03
2	同上	1本	"	3.5→3.5	BP.	8.5	<0.07	0.09
3	同上	1本	"	3.5→8.5	BP.	4	<0.07	0.02
4	同上	1本	"	3.5→8.5	95	4	<0.07	0.03
5	常陽MK-I	4本	40,100	3.6→2.9	101	10	<0.008	0.01
6	同上	1本	"	3.4→2.0	90	10	<0.008	0.04
7	同上	1本	"	3.1→1.6	80	10	<0.008	0.06

$$\text{U又はPu不溶解残渣への移行率} = \frac{\text{残渣中のU又はPuの重量}}{\text{使用済燃料中のU又はPuの重量 (ORIGEN値)}}$$

表-5 不溶解残渣への移行率の文献報告

Pu 富化度 (%)	燃 焼 度 (MWD/t)	硝酸濃度 (M)	不溶解残渣への移行率 (wt%)				
			U	Pu	Zr	Ru	Rh
30	53,000	7~10	—	1.9~4.5	—	27~39	7~10

$$\text{各元素の不溶解残渣への移行率} = \frac{\text{残渣中の各元素の重量}}{\text{使用済燃料中の各元素の重量 (計算値)}}$$