

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 不溶解残渣に関する研究

1993年3月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

こ
もの
洩が
意し

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

する
容漏
に注

本

© 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 不溶解残渣に関する研究



実施責任者 富樫 昭夫
報告者 算用子 裕孝, 坂井 敏幸, 菊池 憲治
豊田 修*, 根本 慎一

要 旨

CPFでは、昭和57年以来、主として高速実験炉「常陽」の照射済燃料を用い、溶解から抽出プロセスにかかわるホット試験を実施してきた。本報告書では、これら試験のうち溶解試験で回収された残渣に着目し、以下に示す項目についてまとめた。

なお、これらの結果は、3.5M~8.7Mの硝酸濃度、70°C~115°Cの溶解温度および4時間~27時間の溶解条件のもとで得られたものである。

1. 不溶解残渣の形状および粒径分布

残渣粒径は燃焼度により若干の差があり、燃焼度の上昇に伴い大きくなる傾向がある。また、1.2 μ m以下の粒子のほとんどは液中に浮遊しており、これは発生した総残渣重量に対して約10w/oに相当することが分かった。

2. 残渣発生量

不溶解残渣発生量として回収残渣重量に対する溶解前の初期Mox重量の比で評価した結果、Pu富化度の上昇に伴い残渣発生量の増加が見られる。ただし、燃焼度の違いによる発生量の関係は、今回の試験範囲内では見出されなかった。

3. 組成およびPu含有量

残渣の主成分は、Mo, Pd, Ru, RhおよびTcであり、燃料の種類にかかわらず同じ成分である。また、Pu含有量は、溶解前の初期Pu量に対して0.01~0.09%が検出された。

以上、残渣発生量やPu含有量は燃料の製造条件（Pu富化度）および溶解条件等により異なり、8M程度の硝酸濃度ではMox重量の0.23%（Pu富化度18%）および0.5~1.4%（Pu富化度30%）の残渣が発生するが、Pu含有量としては初期Pu重量の0.01~0.09%程度と微量である。

一方、組成についてはMo, Pd, Ru, RhおよびTcが主であり、既往文献と一致していることが確認できた。

再処理技術開発部 プロセス・分析開発室

* 再処理技術開発部 機器材料開発室

目 次

1. まえがき	1
2. 試験条件	2
2.1 燃料製造条件	2
2.2 燃料照射条件	2
2.3 燃料溶解条件	2
2.4 不溶解残渣回収法	3
3. 試験の方法および結果	5
3.1 不溶解残渣の観察	5
3.2 不溶解残渣発生量	5
3.3 不溶解残渣中のプルトニウム含有量	6
3.4 不溶解残渣粒径	7
3.5 不溶解残渣の組成分析	9
3.5.1 発光光度法による分析	9
3.5.2 X線マイクロアナライザによる分析	9
3.5.3 γ スペクトル測定	11
4. 調査結果の概要	12
4.1 不溶解残渣の発生率と燃料の関係	12
4.2 不溶解残渣の化学形態	12
4.2.1 残渣成分元素のペレット内分布	12
4.2.2 残渣形態の推定	12
5. まとめ	14
6. 参考文献	16

1. ま え が き

照射済燃料の溶解工程では、未溶解物質として不溶解残渣（以下、残渣という）がわずかながら発生する。この残渣はMo, Pd, Ru, RhおよびTc等で構成され、かつ放射性物質としては ^{106}Ru が主である。高速炉照射済燃料は、燃焼度が高いこともあり、核分裂によって生成する残渣成分元素の割合も軽水炉燃料に比べて高く、より多くの残渣が溶解工程から発生すると考えられる。これらを含む溶解液は、清澄機（パルスフィルター、遠心清澄機等）により残渣と溶解液に分離される。清澄された溶解液は抽出工程に送られ、Pu, Uの分離回収がなされる。

ところで、分離された残渣は管理上、その組成、物性および発熱量等、多くの情報を必要とする。特に核物質の含有量は、残渣の管理や処理方法を定める上で重要なデータとなる。また、有用金属回収技術の観点からもこれら残渣は注目されており、その物性を始めとした諸特性を調べることは多くの課題解決に貢献する。

本報告書では、昭和57年から平成2年までに実施した48本の高速炉照射済燃料を用いた溶解試験で回収した残渣について、その発生量、溶解液中での挙動、粒径、組成およびPu含有量等に着目し、まとめることを試みた。ただし、これまでに実施してきた溶解試験では溶解挙動の把握を主としてきたため、回収された残渣についての条件は不揃いである。

さらに、発生量およびPu含有量などが極少量ということもあり、セル内での遠隔操作で得られた結果にはかなりの誤差を含むことが予想される。

これらを十分に考慮した上で、本報告書を参考としていただければ幸いである。

2. 試験条件

不溶解残渣の発生に影響を及ぼす要因として、以下の3点が考えられる。

- (1) 燃料製造条件 (Pu富化度, 混合法, 焼結温度, 焼結時間等)
- (2) 燃料照射条件 (燃焼度等)
- (3) 溶解条件 (溶解温度, 時間, 硝酸濃度等)

本研究は、CPFにおいて実施した高速炉使用済燃料溶解試験で発生した不溶解残渣に関するものであり、上記の各要因と不溶解残渣の発生の関係について調査したものである。

2.1 燃料製造条件

燃料製造工程において残渣の発生量に影響を与えると考えられる因子としては、Pu富化度、混合法、焼結温度および焼結時間等がある。しかしながら、 MOx 燃料製造においては燃料はほぼ一定の製造条件にて製作されていることから、これらの因子のうち、製造条件としてはPu富化度が不溶解残渣の発生量に影響を及ぼす主要な項目と考えられる。よって、本試験においては、使用済燃料のPu富化度を評価の主パラメータとした。これまでの溶解試験で使用した照射済燃料の種類およびPu富化度を表1に示す。

2.2 燃料照射条件

CPFの溶解試験に使用した使用済燃料の照射条件を表1に示す。表中の燃焼度は、燃料集合体平均燃焼度である。

燃焼度の増加に伴って、燃料中における核分裂生成物の生成量も多くなる。不溶解残渣の主成分はこの核分裂生成物であることから、燃焼度が高いほど不溶解残渣の発生量も多くなることが予想される。

2.3 燃料溶解条件

残渣の発生量は、溶解条件により大きく影響される。燃料溶解時の硝酸濃度、溶解温度および溶解時間等の違いにより残渣の発生量は変化し、また、揮発性核種については溶解温度により変化する。溶解条件によりPuおよびUの溶解率は変化するため、残渣中

のPuおよびU量にも影響を与える。

これまでに実施してきた使用済燃料溶解試験の試験条件を表2に、その概要を以下に示す。

なお、表中の溶解液硝酸濃度の終期値が初期値に対して低いのは、溶解反応により硝酸が消費されるためである。また、16-2～16-4ランについては、溶解時に硝酸溶液を追加することにより、硝酸濃度を調整している。

(1) 溶解槽：

① 小型溶解槽（ベンチスケール）

・材質：SUS304L，有効容積：3.2ℓ

② フラスコ型溶解槽（ビーカースケール）

・材質：耐熱ガラス，有効容積：1.0ℓ

(2) 硝酸濃度：

① 2.4M～8.7M一定

② 3.5M→8.5M上昇

(3) 溶解温度：

① 70℃～115℃一定

(4) 溶解時間：

① 4時間～27時間

2.4 不溶解残渣回収法

各溶解試験で発生した不溶解残渣の回収は以下に示す方法で実施した。これらの操作手順を図1に示す。なお、溶解液中のPu，UおよびFP元素の汚染を極力避けるため、残渣の洗浄は入念に行っている。

(1) 溶解

ラッピングワイヤを除去した照射済燃料ピンを、約3cmごとにせん断する。このせん断片をセル内既設の回分式小型溶解槽に装荷し、所定の硝酸濃度および溶解温度にて溶解する。

(2) 沈降

溶解試験終了後、溶解槽内の溶解液を減圧吸引法にてガラス製の沈降容器に移し換え、静置して残渣を沈降させる。

(3) 濾過

減圧吸引法にて沈降容器内の上澄み液を抜き出し、沈降残渣を回収する。上澄み液回収容器の入口部には3段のガラス繊維濾紙（濾紙孔径；1段目：1.00 μm ，2段目：0.60 μm ，3段目：0.50 μm ）が装着されているため、上澄み液中の浮遊残渣は、濾紙により回収される。

(4) 洗浄

ガラス製沈降容器内の底部に沈降した残渣の洗浄を行う。各試験における残渣の洗浄方法を表3に示す。洗浄は通常、3M-HNO₃（50~100ml）を加えて常温（約25℃）にて攪拌したのち静置沈降させ、上澄み液のみを慎重に抜き出す。抜き出された液は前項(3)と同じろ紙でろ過される。この操作を4~6回繰り返す、残渣およびわずかに残った溶解液の洗浄を行う。

一部の試験（3，8，11ラン）においては残渣中の未溶解物質を完全に除去するため、上記の常温における洗浄に加えて、洗浄液（3M-HNO₃，約100ml）を入れて加熱して沸騰状態を6~10時間保持する加熱洗浄を併せて実施した。

なお、各ステップで得られた上澄み液を採取して分析を行い、洗浄溶解された核物質質量を把握した。

(5) 乾燥

洗浄操作終了後に洗浄液を乾燥させて不溶解残渣を回収し、重量測定、組成分析等を行った。

3. 試験の方法および結果

3.1 不溶解残渣の観察

写真1～写真4に回収した残渣を示す。これらの残渣は常温洗浄後に乾燥させ、スパチュラスプーンにより保管容器にかき出したものである。残渣はいずれも黒褐色の微粒子状であり、燃料の種類、Pu富化度および燃焼度による差異はこの写真からは認められない。

写真を見る限りでは、残渣はフレーク状あるいは微粒子状を呈しているが、この違いは乾固した残渣の回収処理操作により生じたものと考えられる。

3.2 不溶解残渣発生量

これまでに実施した溶解試験の、燃料仕様、溶解試験条件および残渣発生量を表3に示す。「常陽」MK-I燃料、同MK-II燃料およびPhoenix燃料の溶解条件（硝酸濃度および溶解温度）はほぼ同じであるが、C型特殊燃料を対象とした一部の溶解試験（16ラン）については、他の試験と比較して硝酸濃度および溶解温度ともに高い。

燃料の平均燃焼度に対する不溶解残渣の発生率を図2に示す。今回の試験範囲内では各溶解条件が同一ではないこともあり、燃焼度と残渣発生率の明確な関係は見出せなかった。

溶解試験に用いた照射済燃料のPu富化度と残渣発生率の関係を図3に示す。燃料の種類が異なるものの、コア部Pu富化度の増加に伴い残渣発生率は高くなる。

Pu富化度別に発生量をまとめて得られた平均的な不溶解残渣量は、溶解燃料ピン1本当たり18%のPu富化度燃料で0.24 g、約30%のPu富化度燃料では0.32 gから1.93 gであり、これらの値は燃料重量に対してそれぞれ0.23%および0.5～1.4%の割合となる。燃料の種類により燃料ピン内に装荷されている燃料重量（Mo x 重量；PuO₂ + UO₂）が異なるため、不溶解残渣発生率は下式により導出した。

$$\text{不溶解残渣発生率} [\%] = \frac{\text{不溶解残渣発生量} [g]}{\text{燃料重量 (Mo x 重量; PuO}_2 + \text{UO}_2) [g]} \times 100$$

3.3 不溶解残渣中のプルトニウム含有量

「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料による4試験(16-1ランから16-4ラン)を対象とし、回収された残渣中のPu含有量について検討を加えた。これら溶解試験条件、残渣発生量および残渣中のPu含有量等を表4に、結果の概要を以下に記す。

- (1) 残渣中のPu含有量は、溶解条件によって変化する。これらの試験における残渣発生量および発生率はほぼ一定であるのに対して、低硝酸濃度および低溶解温度条件にて実施した16-2ランでは、残渣中のPu含有量が他の試験に比較して一桁高い値となっている。
- (2) 硝酸濃度を8.7M一定(16-1ラン)と3.5Mから8.0Mへ変化させた場合(16-3ラン)を比較すると、16-3ランの残渣中のPu含有量は16-1ランの約半分の3.25mgであった。
- (3) 溶解温度については、95℃(16-4ラン)と沸点(約115℃, 16-3ラン)を比較した場合、16-3ランのPu含有量は16-4ランの約2/3に低下し、若干ながら溶解温度を高くした効果が認められる結果を得た。

以上をまとめると、表4に示すように残渣中に含まれるPu量は溶解初期値に対して0.01~0.09%となる。

なお、Pu含有量の知見は残渣取扱いおよび管理技術上極めて重要であるため、残渣回収量は十分で、かつ回収、洗浄等の各ステップで外部からのコンタミを含め特に入念に実施した試験(16ラン)より得られた結果を選びまとめたものであり、すべての試験結果の平均的な値ではない。

表5に、未溶解残渣に関する調査結果¹⁾を示す。燃焼度91,500MWd/tの燃料の残渣発生量は、燃料重量の6~11%であり、燃焼度40,000~54,100MWd/tではその発生量は約3~5%となる。残渣中のPu量は非常に多く、13~30%である。

残渣の主成分は、CPFと同様にMo, Ru, Tc, RhおよびPdであり、高燃焼度燃料でのMoの含有割合は20%, Ruは35%を示している。中燃焼度燃料では、Moが6~10%, Ruは8~15%の成分割合となる。

これらの値をCPFの試験結果と比較すると、残渣発生量は全体的に約1桁多い値と

なる。また、残渣中のPu量も非常に多い。溶解条件についてはC P Fでの試験条件に対して硝酸濃度および溶解時間ともより高濃度、かつ長時間としたにもかかわらず、大きな差が生じている。この差は、回収した残渣の処理過程で生ずるものと考えられる。つまり、溶解液をほぼ完全に除き、溶解液からのコンタミを極力少なくすることが容易でないためであろう。

残渣成分の割合については、C P Fの試験とほぼ同様な結果を示している。

3.4 不溶解残渣粒径

7ランおよび11ランで得られた溶解液中の不溶解残渣に対して、粒度分布測定法により残渣粒径の測定を実施した。

粒度分布測定原理は、図4に示すようにオリフィスチューブの細孔の両端に電極を置き、電解液を通して両電極に電流を流す。電解液中に懸濁させた個々の粒子が真空ポンプで吸引されて通過する際、粒子体積に相当する電解液が置換され、両電極間の電気抵抗に変化が生じる。電気抵抗量は通過する粒子の体積に比例する。この抵抗変化を電圧パルスに変換し、これを増幅・検出して粒子計数とサイズ測定を行う。表6に測定条件を示す。

残渣粒径の測定は、以下の燃料について行った。

① 「常陽」MK-II照射済燃料（7ラン）

（燃焼度：13,800MWd/t, Pu富化度：29%）

② P h e n i x照射済燃料（11ラン）²⁾

（燃焼度：94,000MWd/t, Pu富化度：30%）

残渣粒径測定に用いた液は、溶解終了後に溶解槽からガラス製沈降容器に移し換えた時点で採取した静置前の溶解液（未濾過）である。なお、P h e n i x照射済燃料については静置後2.4.(3)で詳述した濾過法により濾過した後の上澄み液についても残渣粒径測定を実施した。

「常陽」MK-II照射済燃料のサンプル中の残渣粒度およびその分布率を図5および図6に、この結果を重量比で表したものを図7に示す。また、P h e n i x照射済燃料の残渣粒度およびその分布率を図8および図9に、残渣重量の割合を図10に示す。なお、

Phenix照射済燃料の残渣についてはノイズの影響により測定下限値は $0.6\mu\text{m}$ であり、これ以下の粒子については測定できなかった。図7および図10に示した溶解液中の残渣の割合は、各粒径の残渣比重が同一かつ残渣形状が真球であると仮定して、各粒径における残渣の体積比より導出した。

これら測定結果の概要を以下に記す。

- (1) 低燃焼度燃料（「常陽」MK-II照射済燃料）の不溶解残渣の粒子個数割合は、粒径が $1.24\mu\text{m}$ 以下のものが約90%を占め、かつ $0.55\mu\text{m}$ から $1.01\mu\text{m}$ の範囲が主であった。測定された最小粒径は $0.44\mu\text{m}$ 、最大粒径は $5.52\mu\text{m}$ である。

これらを残渣重量比で示すと $1.0\mu\text{m}$ 近辺の粒子の占める割合が最も高く、6w/oを占めている。溶解液中に浮遊している残渣は $1.2\mu\text{m}$ 以下のものであり、これらの占める割合は重量比で約20w/oであった。

- (2) 高燃焼度燃料（Phenix照射済燃料）の不溶解残渣については、粒子個数割合で約90%が $0.6\mu\text{m}$ から $2.0\mu\text{m}$ の残渣（重量比で約60w/o）でほぼ均等に分布しており、最大粒径は $5.12\mu\text{m}$ であった。なお、残渣重量比で示した分布では $2.0\mu\text{m}$ の粒子の占める割合が最も高く、約7w/oに相当する。

上澄み液中では粒径が $1.2\mu\text{m}$ 以下の残渣が約80%（粒子個数比）を占め、重量比では約10w/oであることが分かった。最大粒子径は $4.77\mu\text{m}$ である。

- (3) Phenix照射済燃料の溶解試験で回収した残渣の約90%は粒径 $2.6\mu\text{m}$ 以下であり、粒径が $1.2\sim 2.4\mu\text{m}$ のものがその大多数を占める。換言すれば、残渣のほとんどは、その粒径が $2.0\mu\text{m}$ 前後のものであると考えられる。

- (4) 燃焼度と残渣粒径の関係としては、燃焼度が増加するに伴い、残渣の粒径は大きくなる傾向にある。

3.5 不溶解残渣の組成分析

不溶解残渣の組成分析を、発光光度分析法およびX線マイクロアナライザ（EPMA）により実施した。

3.5.1 発光光度法による分析

「常陽」MK-I、MK-IIおよびC型特殊照射済燃料から発生した残渣の組成分

析結果を以下に、残渣の組成割合を表7に示す。

- (1) 残渣中に含まれる主な元素は、Mo, Pd, Ru, RhおよびTcであり、燃料の違いによる変化はほとんど見られない。
- (2) 各燃料の残渣のMoの含有割合は約20～30%であり、燃料の種類や溶解条件の違いによる大きな差異は見られない。また、「常陽」MK-Iと「常陽」MK-IIの残渣を比較した場合、燃焼度や溶解条件がほぼ同じであるのに対してRuの含有率が大きく異なる。
- (3) 対象燃料が同じ「常陽」MK-II C型特殊燃料である13ランと16-1～4ランを比較した場合、13ランではRuの含有率が約20%であるのに対し、16ランでは3%前後であった。

3.5.2 X線マイクロアナライザによる分析

「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料（燃焼度：54,100MWd/t, 16-2ラン）とPhoenix照射済燃料（燃焼度：94,100MWd/t, 12ラン）から発生した残渣に対して、X線マイクロアナライザ（EPMA）により以下の項目についての物性測定を実施した。

- (1) 走査型電子顕微鏡（SEM）
- (2) 反射電子像（組成像）
- (3) 定性分析
- (4) 特性X線像

分析に用いた試料は前述の残渣回収法により乾固回収したものである。以下に分析結果を記す。

- (1) 走査型電子顕微鏡（SEM）

写真5, 6に各残渣の全体像を、写真7, 8, 9, 10, 11および12に高倍率（×100, ×300, ×1000）による残渣の形態を示す。各残渣の形態は、微細な粒子が乾固してフレーク状に固まったものである。

高倍率（×1000）による写真を比較した場合、「常陽」MK-II C型特殊燃料（写真9）より燃焼度の高いPhoenix燃料（写真12）のほうが、各粒子の粒径が多少大きく成長しているように見える。

(2) 反射電子像（組成像）

各試料の組成像を、写真13および14に示す。

これらの写真より、各試料の組成像が大きく異なることから、各残渣には質量の違う元素が存在していると推定される。

(3) 定性分析

「常陽」MK-II C型特殊燃料の残渣に対する定性分析結果を図11に、Phoenix燃料の残渣に対する分析結果を図12に示す。

この結果、「常陽」MK-II C型特殊燃料の残渣より検出された元素は、Mo, Ru, Rh, Pd, Tc, Ag, SiおよびUであった。

一方、Phoenix燃料の残渣については、上記の8元素と、その他FeおよびCrが検出された。

(4) 特性X線像

定性分析で検出された各元素の分布状態を、特性X線写真により確認する。

「常陽」MK-II C型特殊燃料の残渣から検出された元素の分布状態を写真15に、Phoenix照射済燃料の残渣の元素の分布状態を写真16に示す。

「常陽」MK-II C型特殊燃料の残渣については、Uを除く他の7元素がほぼ均一に分布している。また、Mo, Rh, Ru, Tc, PdおよびAgについては、ほぼ同一箇所各元素が検出されている。

Uの偏在分布の原因については、本残渣は低硝酸濃度領域（3.5M一定）において連続溶解槽を模擬した条件で溶解し、発生した残渣である。つまり、低硝酸濃度条件下での溶解による溶け残りのUが偏在しているものと考えられる。

Phoenix燃料の残渣については、Mo, Rh, Ru, Tc, PdおよびAgはほぼ均一に分布しているものの、U, Si, CrおよびFeについては偏在的に分布している。また、上記残渣と同様に、Mo, Rh, Ru, Tc, PdおよびAgは、ほぼ同一箇所検出されていることが分かった。

各残渣の粒径をX線像から比較すると、MoおよびPdについては「常陽」MK-II C型特殊燃料のものより燃焼度の高いPhoenix燃料の方が、粒径がより大きいことが認められる。その他の元素については、粒径の変化は特に確認されない。

また、本測定において、多数にかつ均一に分布している元素はMo, Rh, Ru, TcおよびPdであり、この結果は、発光光度分析法による残渣中の成分分析結果と一致する。

3.5.3 γ スペクトル測定

回収された残渣の γ スペクトル³⁾を図13に、また3M-HNO₃で加熱洗浄した結果からまとめた γ 核種の組成割合⁴⁾を図14に示す。

溶解液から分離回収した残渣は、溶解液中のPu, UおよびFP成分の汚染を受けているが、3M-HNO₃約50mlで加熱(100°C)洗浄することにより、その組成の主成分は¹⁰⁶Ruとなる。さらに洗浄を繰り返し、かつ洗浄時間を長くすることにより、溶解性の核種が除去され、¹⁰⁶Ruの割合が98.4%に上昇する。

4. 調査結果の概要

4.1 不溶解残渣の発生率と燃料の関係

残渣は照射済燃料の溶解に伴って発生し、その主成分はMo, Pd, Ru, RhおよびTcとされている¹⁾。これらの元素は、燃料に含まれるUおよびPuの炉内での核分裂により生成する。表8に核分裂生成物の収率と燃料中の形態⁵⁾を示す。

^{239}Pu の核分裂による金属析出物の発生量は、 ^{235}U の核分裂によるものの約2倍となる。このことから、Pu富化度および燃焼度の増加に伴って残渣発生量の増加が推測される。

C P Fの試験結果も、同じ傾向を示していることが分かった。

4.2 不溶解残渣の化学形態

4.2.1 残渣成分元素のペレット内分布

核分裂生成物(F P)は、ウランおよびプルトニウムの核分裂により生成し、照射条件、特に燃料ペレット内の温度差によりその挙動が変化する。これらの挙動は、核種によりそれぞれ特徴があり、燃料ペレット内で独特な分布を示す⁶⁾。

残渣中に含まれる代表的な元素(Mo, Pd, Ru, Rh, Tc)の分布状態を、図15^{7, 8)}に示す。本図は、「常陽」MK-II照射済燃料のペレット径方向における代表的な元素の析出濃度である。RuおよびMoについては、燃料中心部から離れるにしたがって濃度が多少低下する傾向にあるものの、全体的に高い値を示している。TcおよびRhは、低濃度でほぼ均一に析出している。Pdについては、ペレット外周部に多く析出している。

以上のように、核分裂生成物は多少の特性の違いはあるものの、燃料ペレット全体から析出する。

4.2.2 残渣形態の推定

これまでに実施したC P Fの試験においては、不溶解残渣の形態を決めるまでには至っていない。文献情報等⁹⁾をもとに、残渣中の主要元素の化学形態について、以下の推定を行った。

残渣の主要構成元素はMo, Ru, Rh, TcおよびPdであり、燃料の照射により合金相を

形成する。この合金相には、溶解性および難溶解性のものがあり、これらは初期のO/M比により決まる。

これは、Moの挙動に起因する。燃料中の酸素ポテンシャルの高低により、Moが析出物に存在するか、または燃料マトリックス中に存在するかが決まる。高O/M比では、Moは酸素と結びつき析出物から抜け出る。このことにより、析出物はRu-richの ϵ 相となる。逆に低O/M下では、Moは酸素と結びつかず析出物の中にとどまり、Mo-richの β 相である。合金相は、Mo, Ru (+Tc) および (Ru, Rh) の3元素合金状態を示し、 α , β , γ および ϵ の4相がある。これらの相の硝酸による溶解性は、以下ようになる。

α (Rh, Pd-rich) - 難溶解

β (Mo-rich) - 溶解

γ (Mo_5Ru_3) - 難溶解

ϵ (Ru-rich) - 難溶解

図16にMo-Ru-Pd 3元素合金の1500Kにおける状態図¹⁰⁾を示す。CPFにおける残渣の測定値をこの3元素状態で示すと ϵ 相に存在することが分かる。このように、残渣中に含まれる照射により生成した金属析出物は、硝酸に溶けにくい ϵ 相が主体と考えられる。

5. ま と め

昭和57年以来、主として高速実験炉「常陽」の照射済燃料を用い、溶解から抽出プロセスにかかわるホット試験を実施してきた。本報告書では、これら溶解試験で回収された残渣に着目して解析・評価を加え、以下に示す結果を得た。

- (1) $2\mu\text{m}$ 以下の残渣粒子は個数比で90%を占めるが、重量比では6～7 w/oである。

燃焼度の上昇に伴い、発生する残渣の粒径は大きくなる傾向にある。13,800MW d/tの燃料から得られた残渣のうち90%（個数比）は $1.24\mu\text{m}$ 以下であり、94,000MW d/tの燃料では同90%（個数比）を $2.0\mu\text{m}$ 以下の粒子が占める。

さらに、これらを重量比で求めると発生した総残渣の約6 w/o（13,800MW d/tの燃料）が $1.0\mu\text{m}$ の粒子で、94,000MW d/tの燃料では約 $2.0\mu\text{m}$ の粒子が7 w/oに相当する量である。

- (2) 沈降性の残渣は80 w/o～90 w/oを占める。

一方、上澄み液中には $1.2\mu\text{m}$ 以下の残渣が浮遊しており、これらは全残渣重量の10w/o（94,000MW d/t）～20w/o（13,800MW d/t）に相当する量であることが分かった。つまり、これ以上の粒径の残渣は沈降性であり、一定時間（試験では10～12時間）静置することにより、沈降分離が可能であることを示している。

- (3) 残渣の成分は、Mo, Pd, Ru, RhおよびTcが主である。

不溶解残渣の主成分はMo, Pd, Ru, RhおよびTcであり、燃料の種類の違いによる変化はほとんど見られなかった。

放射性同位元素としては ^{106}Ru が98%を占める。

- (4) 残渣中に含まれるPuは微量である。

残渣中に含まれるPu量は溶解時の硝酸濃度等により異なり、約8 Mで得られた残渣中のPu量は初期Pu重量に対して0.01w/o～0.02w/o、3.5Mでは0.09w/oであった。

本試験では硝酸による残渣洗浄を入念に行い、溶解液のコンタミをほぼ完全に除いた。したがって、実際のプロセスから生ずる残渣中のPu量についてはその処理工程を考慮して評価しなければならない。

(5) 残渣は初期燃料重量の0.5w/o～1.4w/o発生する。

不溶解残渣の発生量については溶解時の硝酸濃度および溶解時間が異なっているため単純に比較できないが、燃料ピン1本当たり0.24g～1.9gの残渣が発生している。この値は燃料の初期Mox重量に対して0.5w/o～1.4w/oに相当する。

以上、これまでにCPFの試験で蓄積してきた残渣に関するデータをまとめ評価作業を行った。この中で特記すべきこととして、発生した残渣のうち $2.0\mu\text{m}$ 以下の粒子が個数比で90%を占め、かつそのうち低燃焼度燃料で生じた残渣は重量比で $1.0\mu\text{m}$ 程度にピークをもち、高燃焼度燃料では約 $2.0\mu\text{m}$ にピークを有する。沈降性の粒子は $1.2\mu\text{m}$ 以上の残渣であり、約80w/o～90w/oがこれに相当する。

よって、現在計画されている清澄機への負担を軽減する1つの方策として、粗分離（自然沈降を利用した）工程を付加することにより図17に示したフローシートも成立する可能性がある。むろん、この可能性をより現実的なものとするには各粒子の沈降時間の測定、さらには粗分離した残渣の回収方法等、本提案プロセスに必要なデータを確保することが重要である。

6. 参 考 文 献

- (1) $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ 混合酸化物燃料の溶解性の調査, N842-82-01
- (2) 高速炉燃料リサイクル試験(16) -第11回ホット試験-, PNC ZN8410 88-026
- (3) 高速炉燃料リサイクル試験 -第2回ホット試験-, PNC ZN841-83-88
- (4) 高速炉燃料リサイクル試験(3) -第3回ホット試験(その1)-,
PNC ZN841-84-24
- (5) D. R. Olander : Fundamental Aspects of Nuclear Reactor fuel Elements,
TID-26711-P1 (1976)
- (6) 「常陽」MK-I炉心燃料(P P J × 1 3)の照射後試験(2), PNC I941 84-01
- (7) 「常陽」MK-II炉心燃料集合体(P F D 0 0 1)の照射後試験(2),
PNC I9410 87-004
- (8) 「常陽」MK-II炉心燃料集合体(P F D 0 0 3)の照射後試験(2),
PNC I941 85-10
- (9) 高速炉再処理における不溶解残渣組成に関する基礎研究, PNC SJ165 83-02
- (10) C P Fにおける高速炉燃料ホット試験 -不溶解残渣について-,
日本原子力学会「昭和61年会」, H 6 1
- (11) W. Ochsenfeld, et al. : Untersuchungen zur Lösbarkeit von MOX-Brennstoff
alterer Fertigung für Ihermische Reakloren, KfK 2943 (March 1981)
- (12) P. De Regge, et al. : Dissolution of Mechanical Mixed UOB-PuOB and Insoluble
Residue Characteristics, Proceedings of a symposium sponsored by the Society
of Chemical Industry and held at UKAEA Dounreay Nuclear Power Development
Establishment. (May 1979)
- (13) J. C. Boudry and P. Miquel : ADAPTATION OF THE PUREX PROCESS TO THE
REPROCESSING OF FAST REACTOR FUELS, Int. Solvent Ext. Conf., Lyon, 2, 1551
(1974)
- (14) J. Sauteron, et al. : REPROCESSING OF FAST REACTOR FUELS IN FRANCE,
ERDA-TR-206 (May 1976)

- (15) J. Sauteron, et al. : Technology of Reprocessing Fast-Reactor Fuel, BNWL-TR-336 (Aug 1978)
- (16) F. Baumgartner and W. Ochsenfeld : Development and Status of LMFBR Fuel Reprocessing in the Federal Republic of Germany, KfK 2031 (May 1976)
- (17) W. Ochsenfeld, et al. : Experience with the Reprocessing of LWR, Pu Recycle, and FBR Fuel in the MILLI Facility, KfK 2665 (July 1978)
- (18) J. A. Crofts, et al. : FAST REACTOR OXIDE FUEL DISSOLUTION STUDIES IN THE UK, Fast Reactor Fuel Reprocessing Proceedings of a symposium sponsored by the Society of Chemical Industry and held at UKAEA Dounreay Nuclear Power Development Establishment (May 1979)
- (19) D. Steele : Preparing to close the fast reactor fuel cycle, Nuclear Engineering International, 12 (July 1979)
- (20) W. Ochsenfeld, et al. : STUDIES ON FAST REACTOR FUEL REPROCESSING IN KARLSRUHE, Fast Reactor Fuel Reprocessing, Proceedings of a symposium sponsored by the Society of Chemical Industry and held at UKAEA Dounreay Nuclear Power Development Establishment. (May 1979)
- (21) T. D. Reilly : The Measurement of Leached Hulls, LA-7784-MS (July 1979)

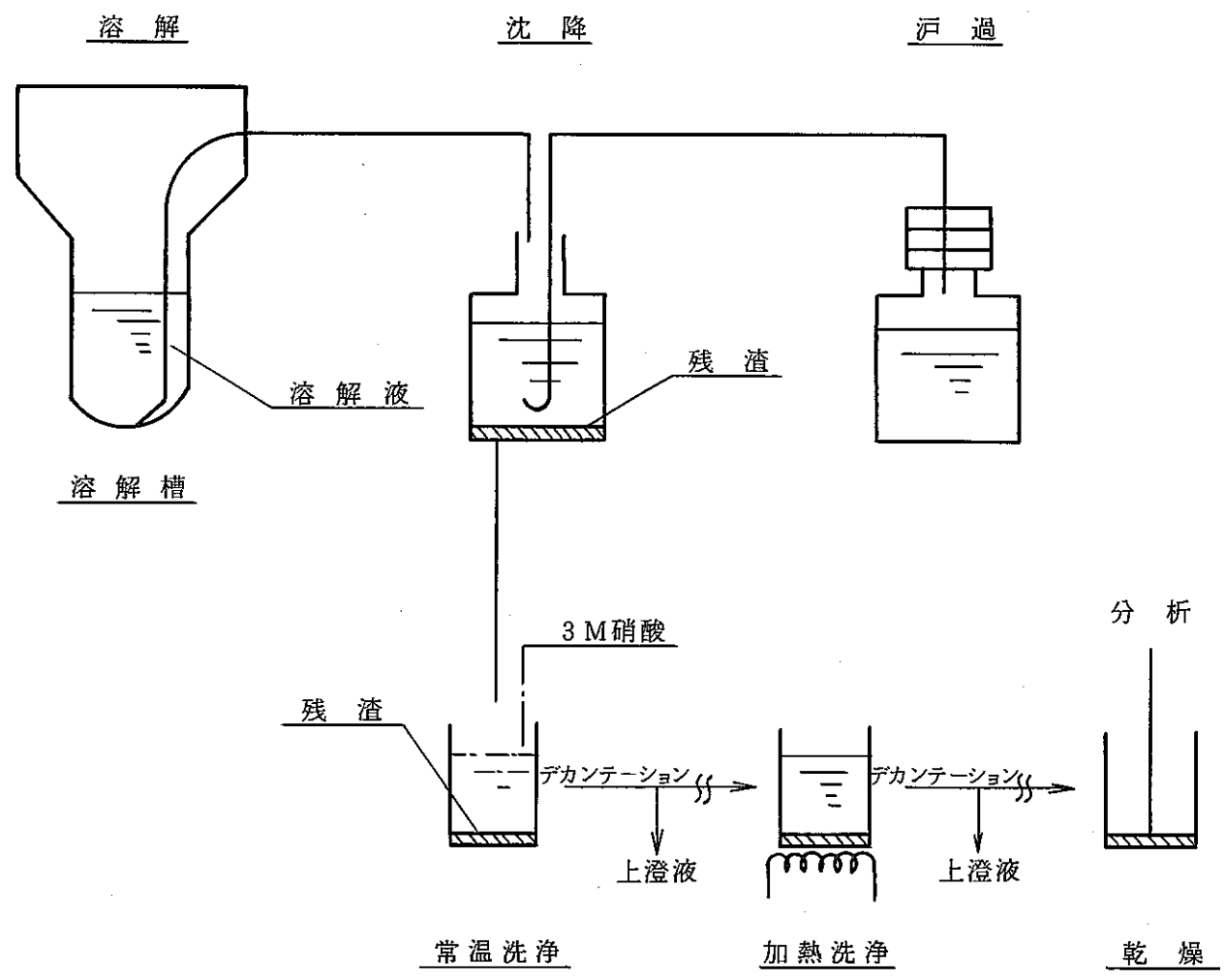


図 1 不溶解残渣回収フロー

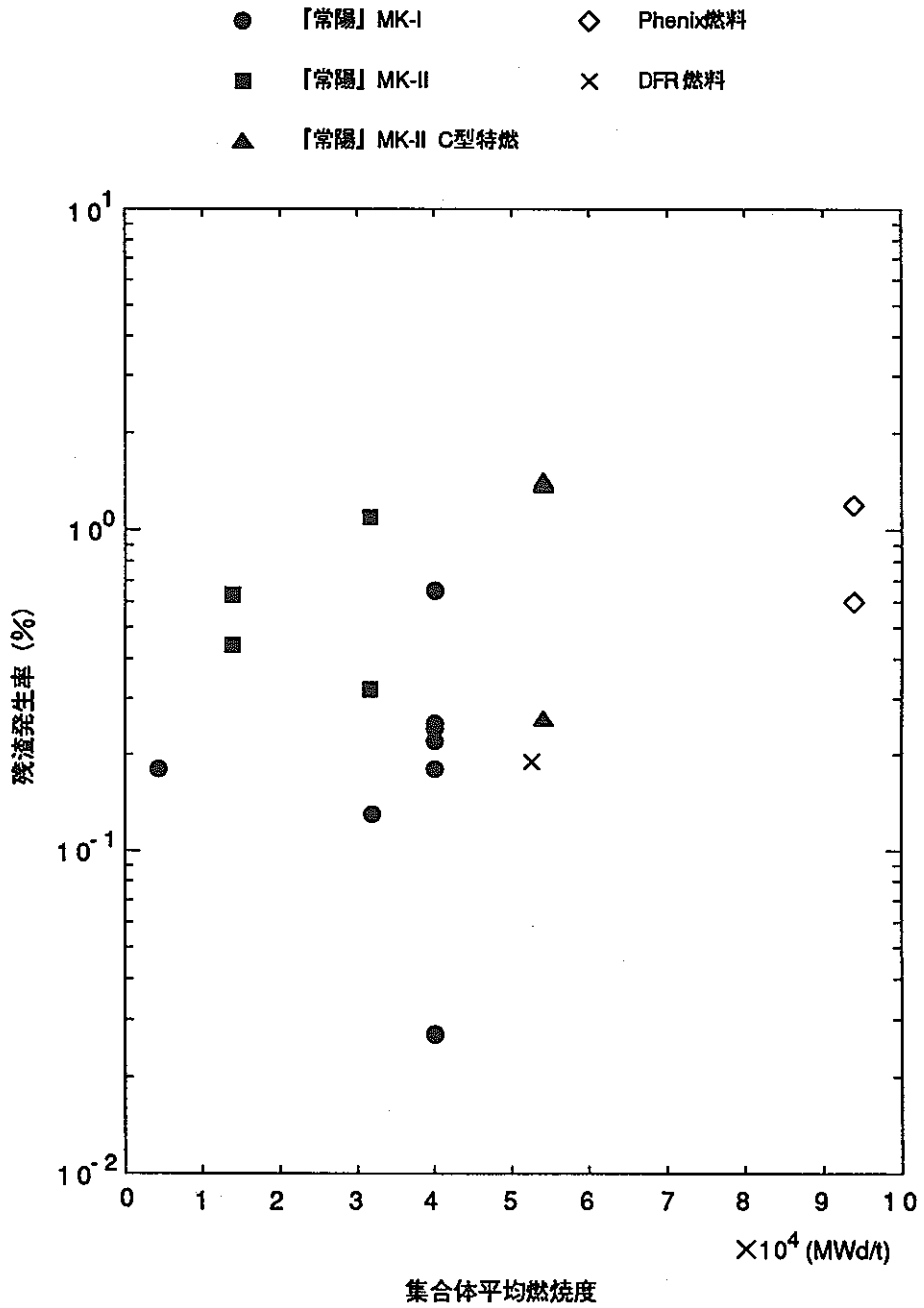


図2 燃料の平均燃焼度に対する残渣発生率

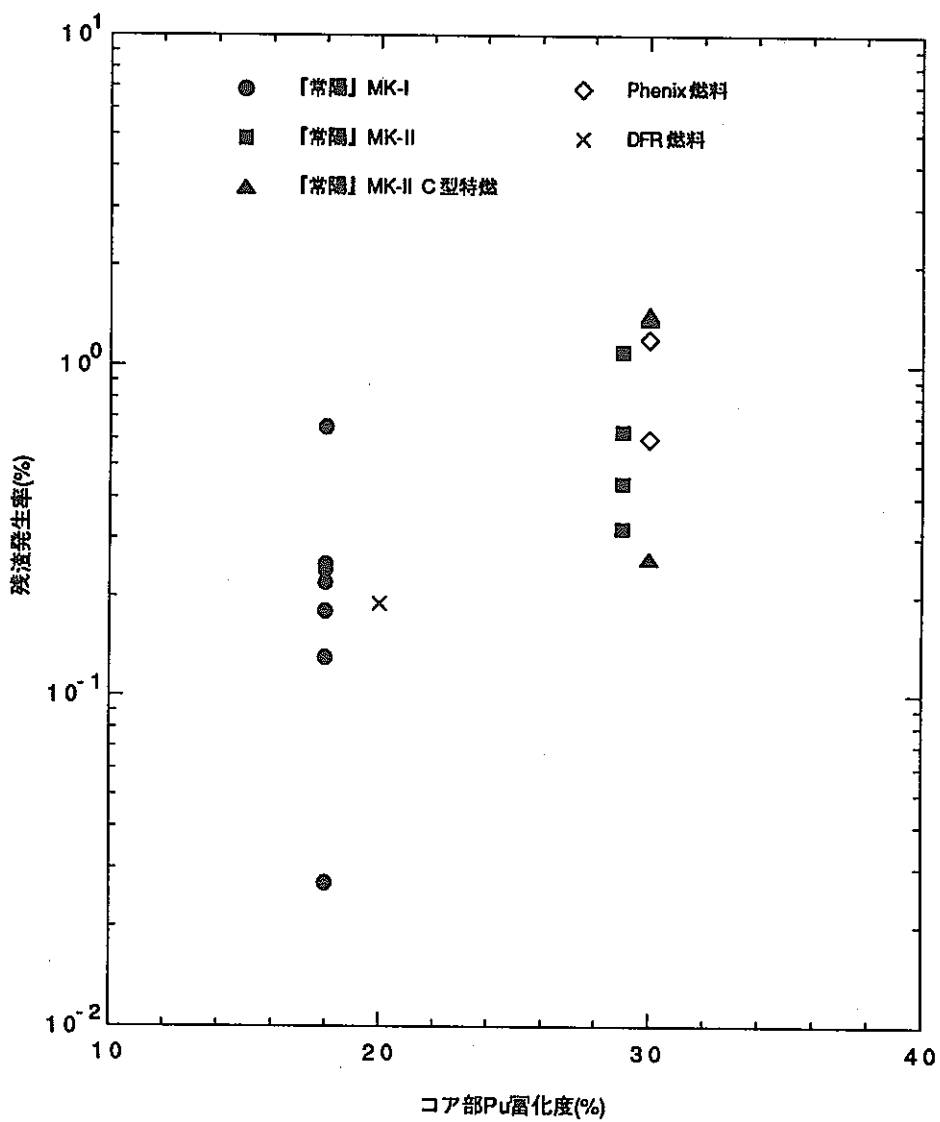
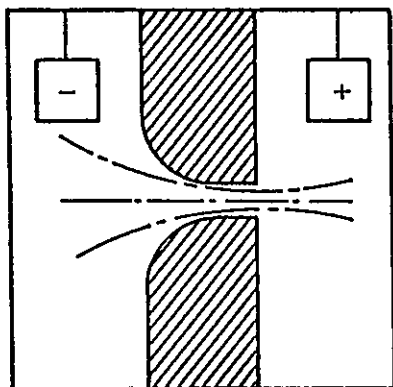
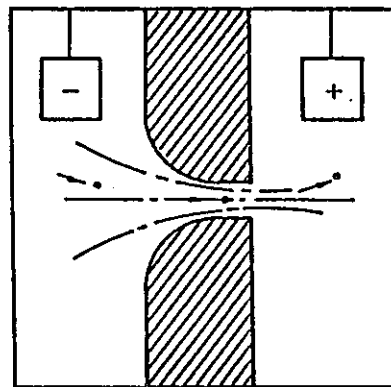


図3 燃料のPu富化度に対する残渣発生率

オリフィス断面図



電気抵抗R



電気抵抗R' (粒子通過時)

オリフィスの電気抵抗は粒子の通過とともに瞬間的に増加する

抵抗変化量: $\Delta R = R' - R$

$$\Delta R = \frac{\text{電解液固有抵抗}}{(\text{オリフィス断面積})^2} \times \text{粒子体積}$$

すなわち、抵抗変化量は粒子体積に比例する

図4 粒度分布測定原理

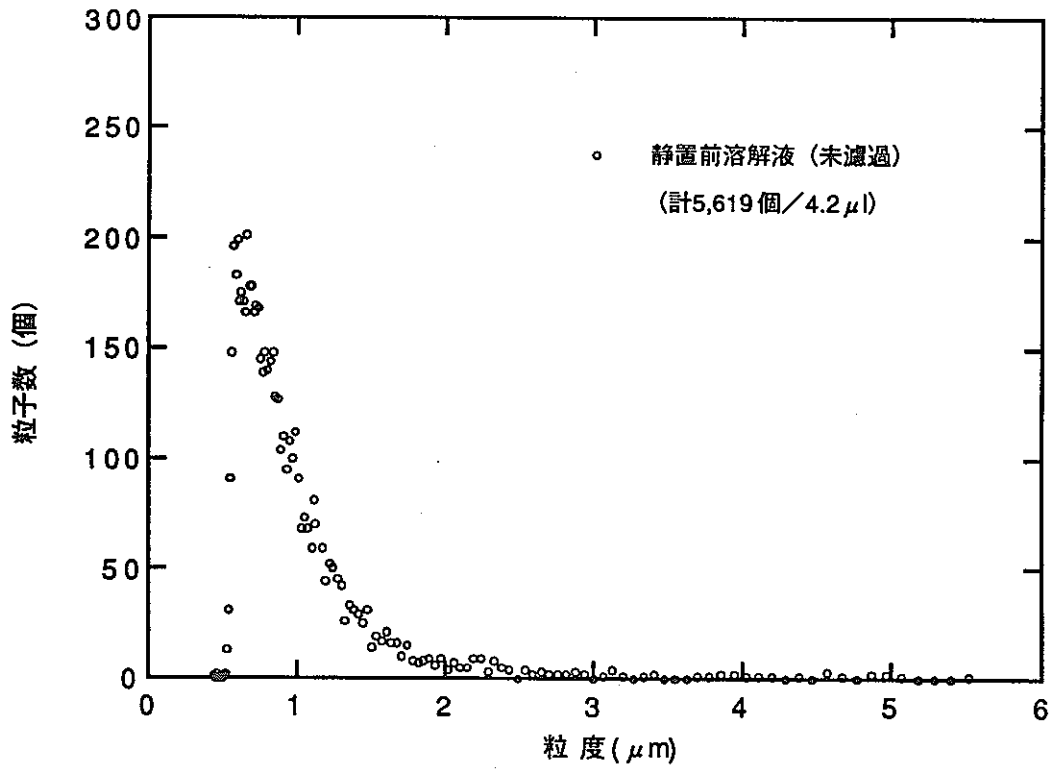


図5 「常陽」MK-II照射済燃料溶解液の残渣粒度
(燃焼度:13,800Mwd/t, Pu富化度:29%)

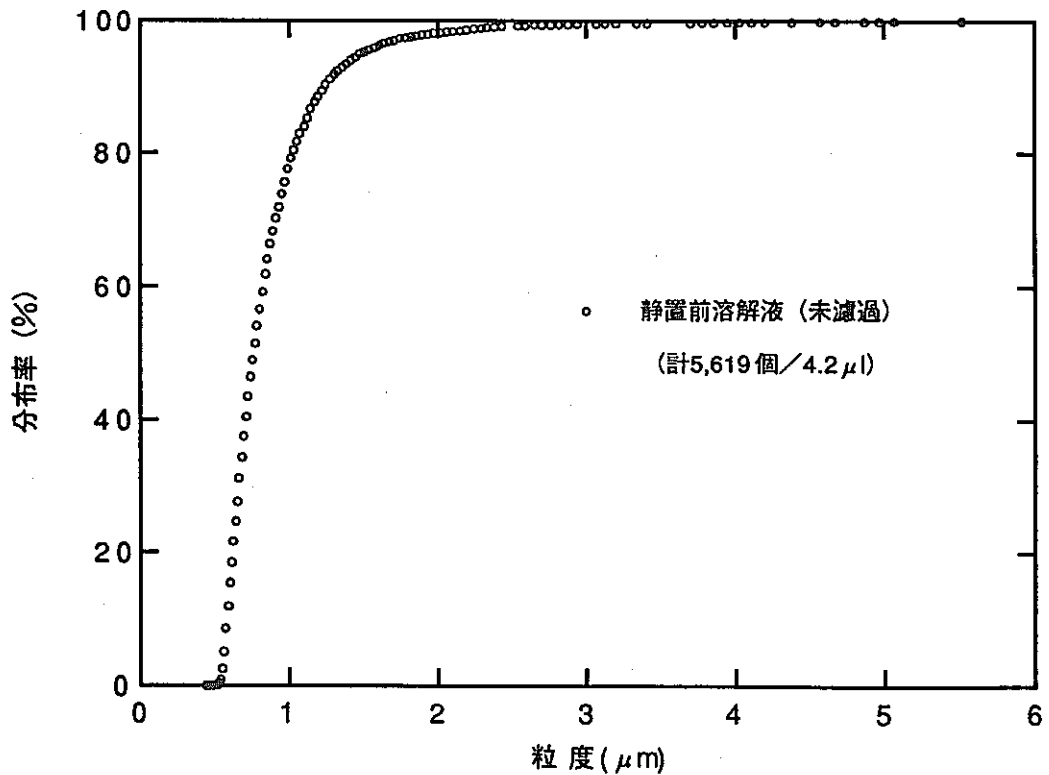


図6 「常陽」MK-II照射済燃料溶解液の粒度分布
(燃焼度:13,800Mwd/t, Pu富化度:29%)

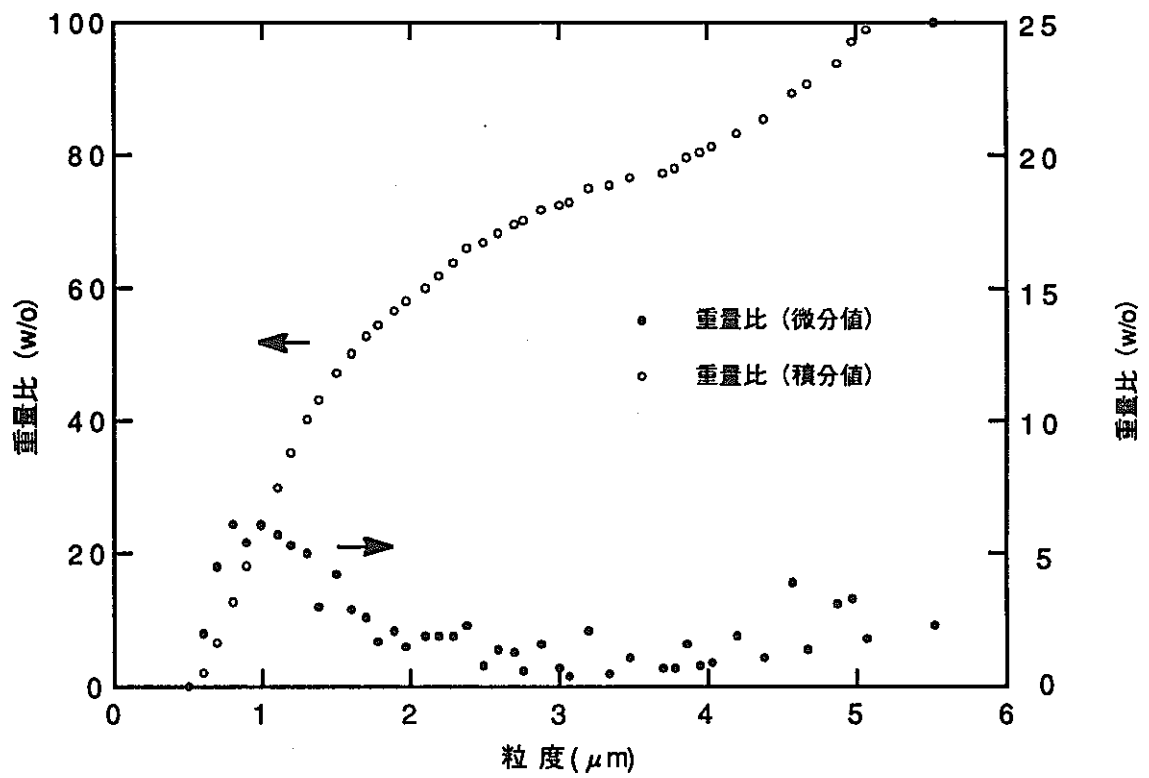


図7 「常陽」MK-II照射済燃料溶解液中残渣重量比
(燃烧度:13,800Mwd/t, Pu富化度:29%)

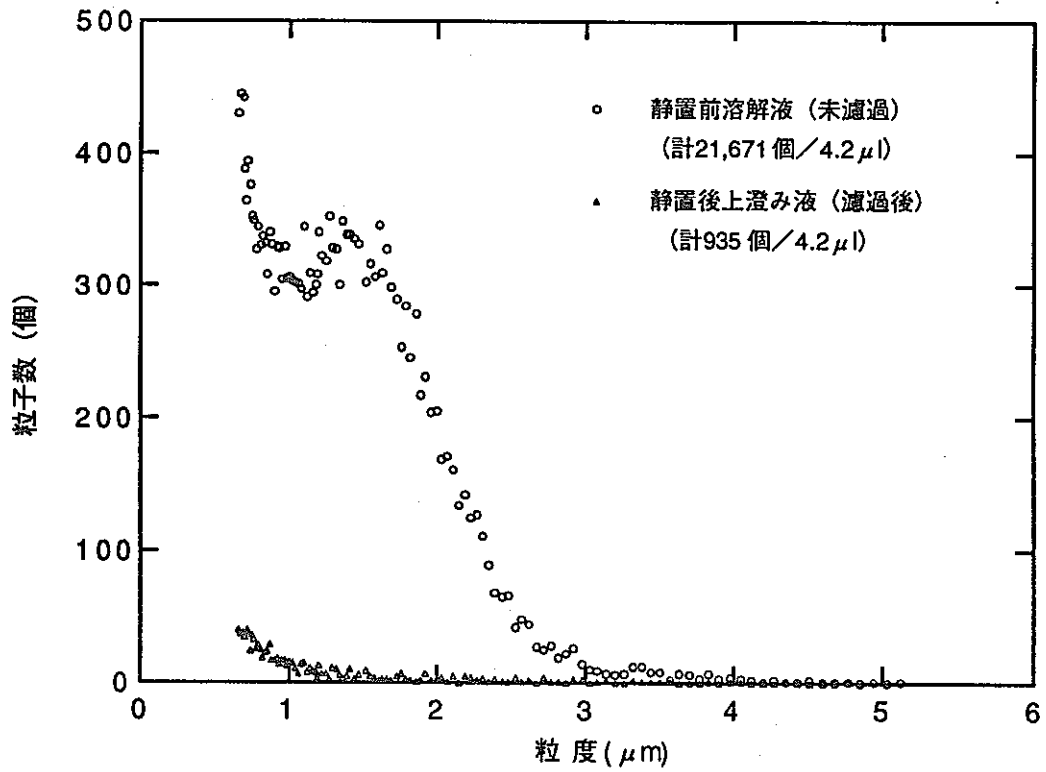


図8 Phoenix照射済燃料溶解液の残渣粒度
(燃焼度:94,000Mwd/t, Pu富化度:30%)

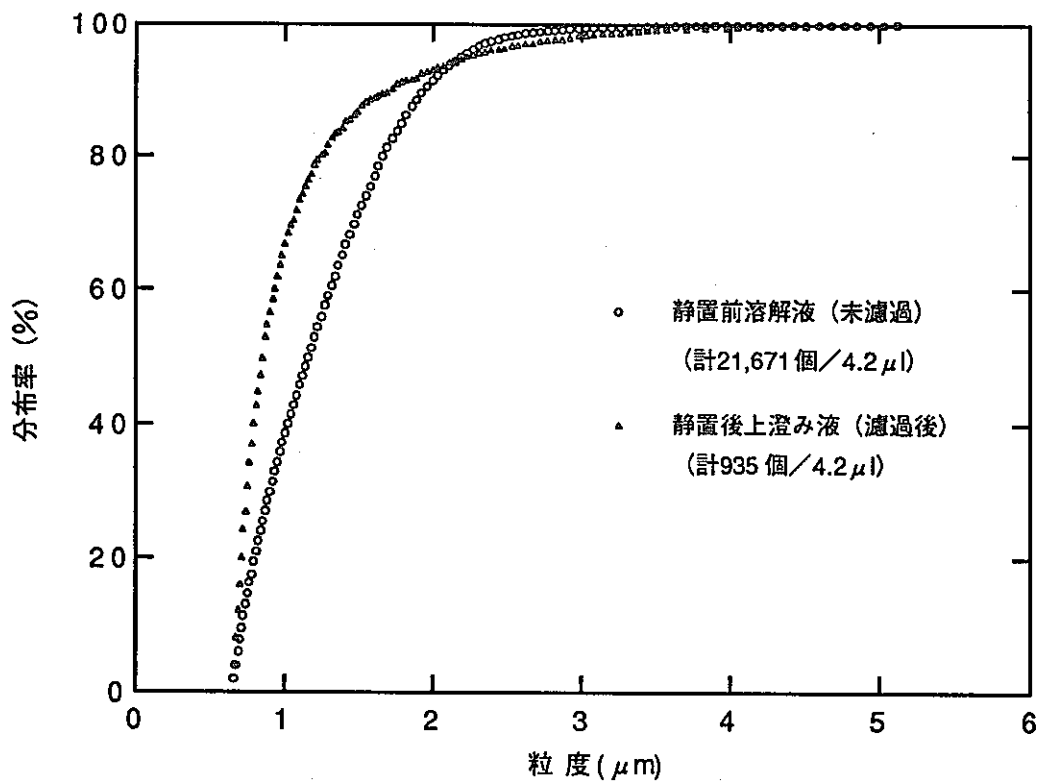


図9 Phoenix照射済燃料溶解液の粒度分布
(燃焼度:94,000Mwd/t, Pu富化度:30%)

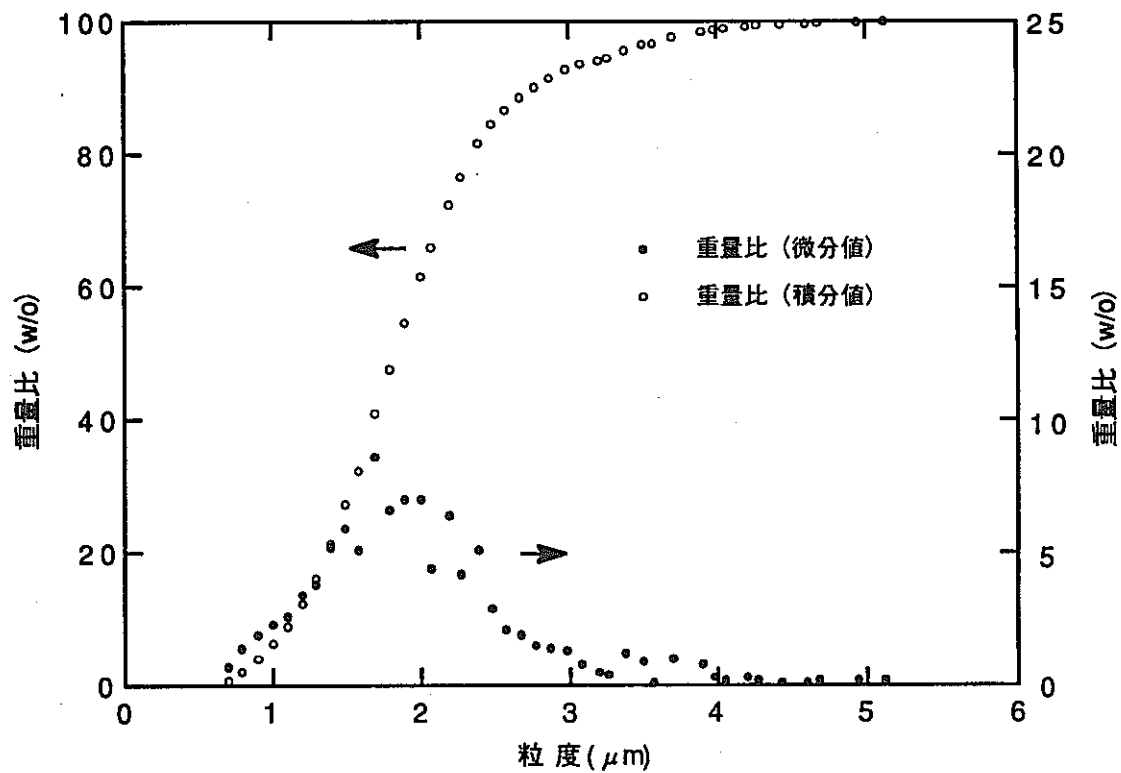


图10 Phoenix照射済燃料溶解液中残渣重量比
(燃烧度:94,000Mwd/t, Pu富化度:30%)

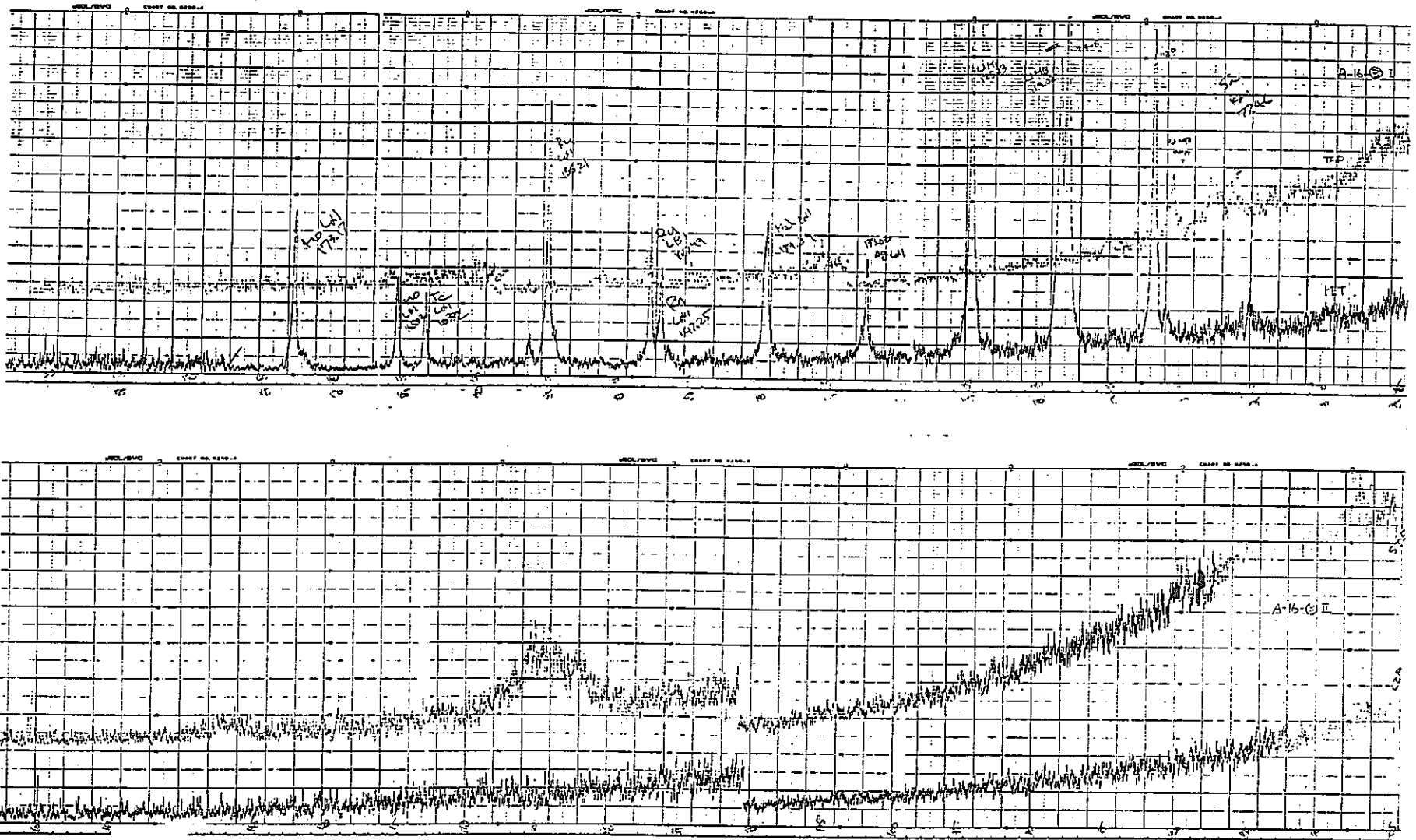


図11 「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料残渣の定性分析チャート
 (燃焼度:54, 100Mwd/t, Pu富化度:30%)

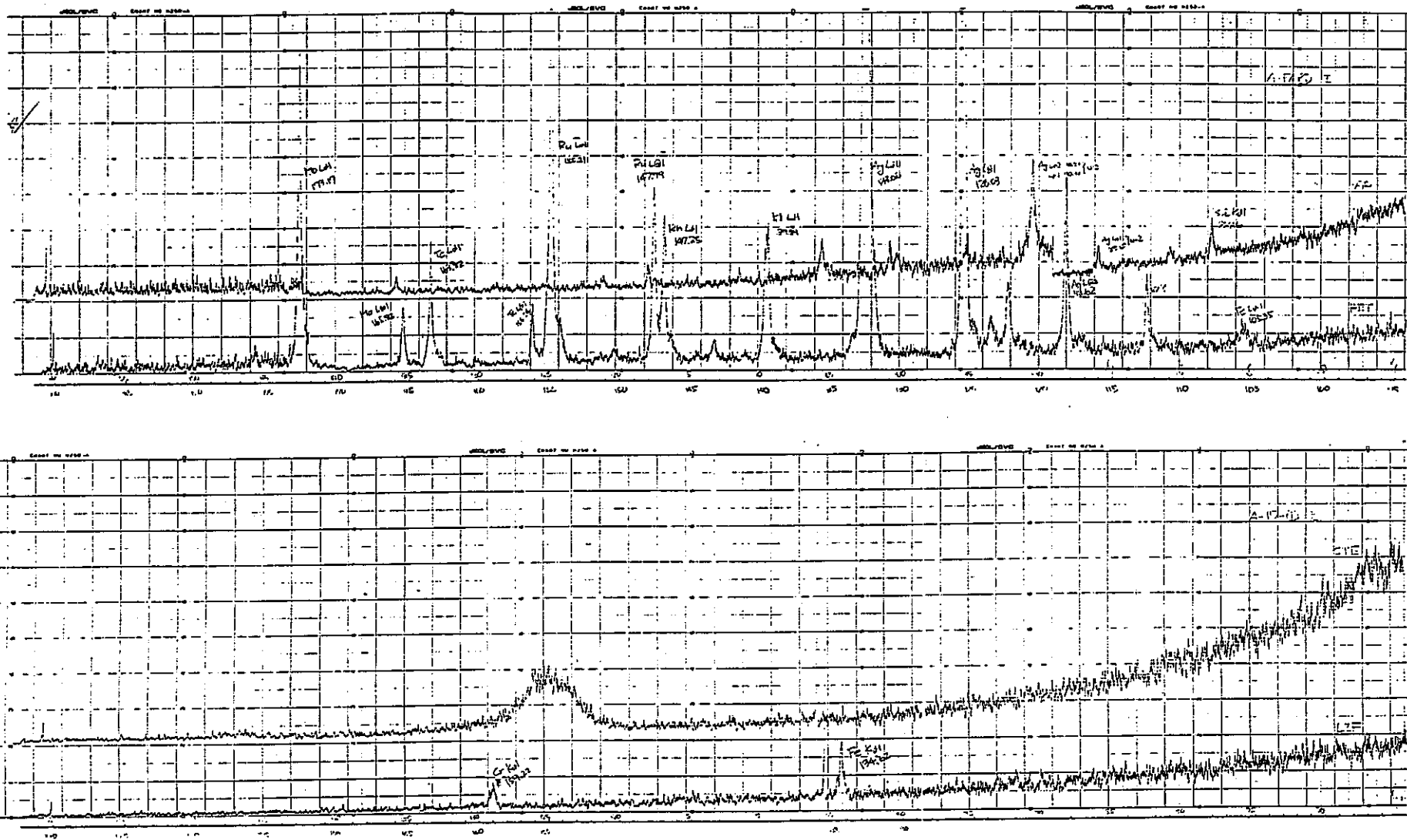


図12 Phoenix照射済燃料残渣の定性分析チャート
 (燃焼度:94,000MWd/t, Pu富化度:30%)

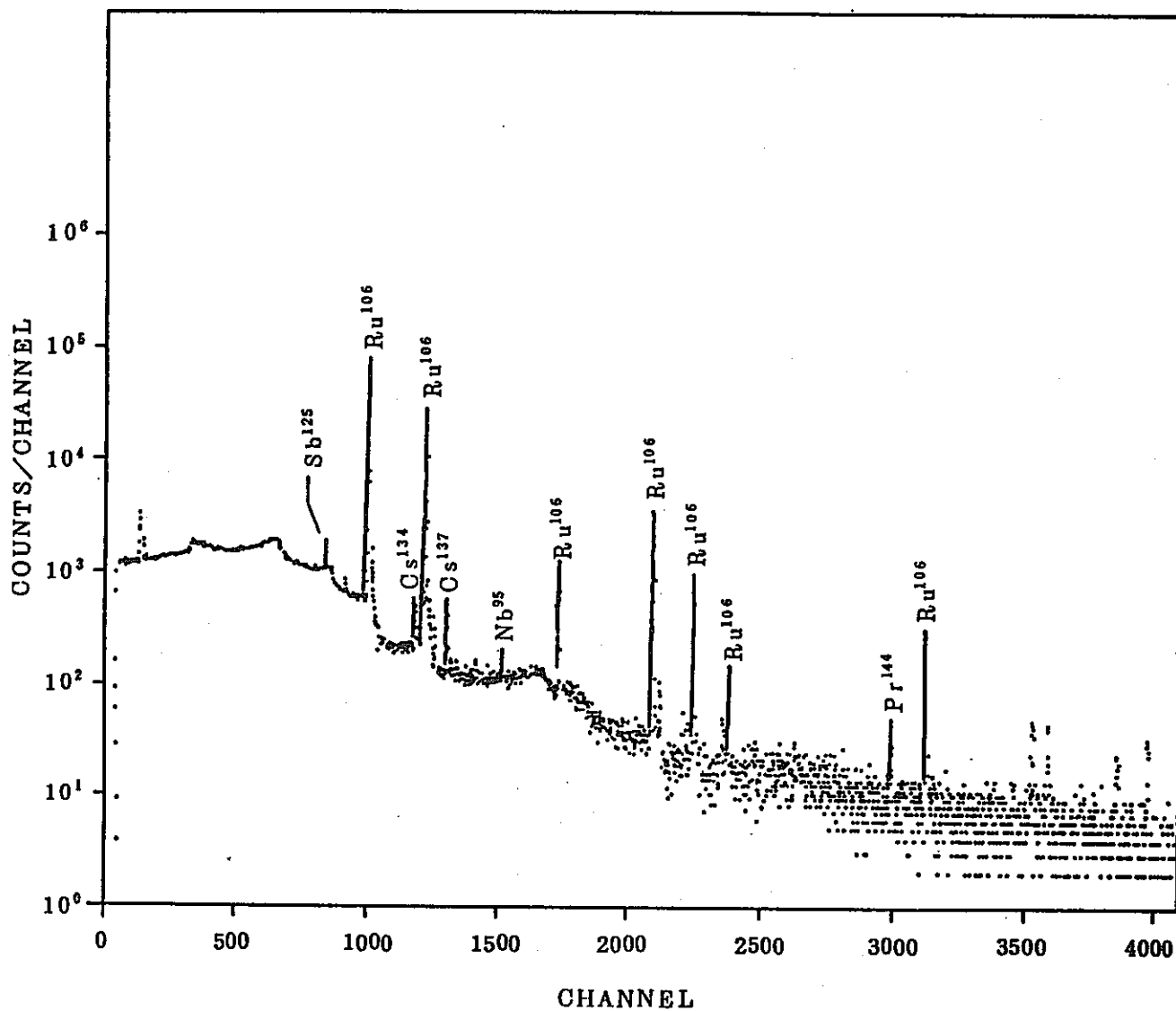


図13 不溶解残渣のγスペクトルの一例

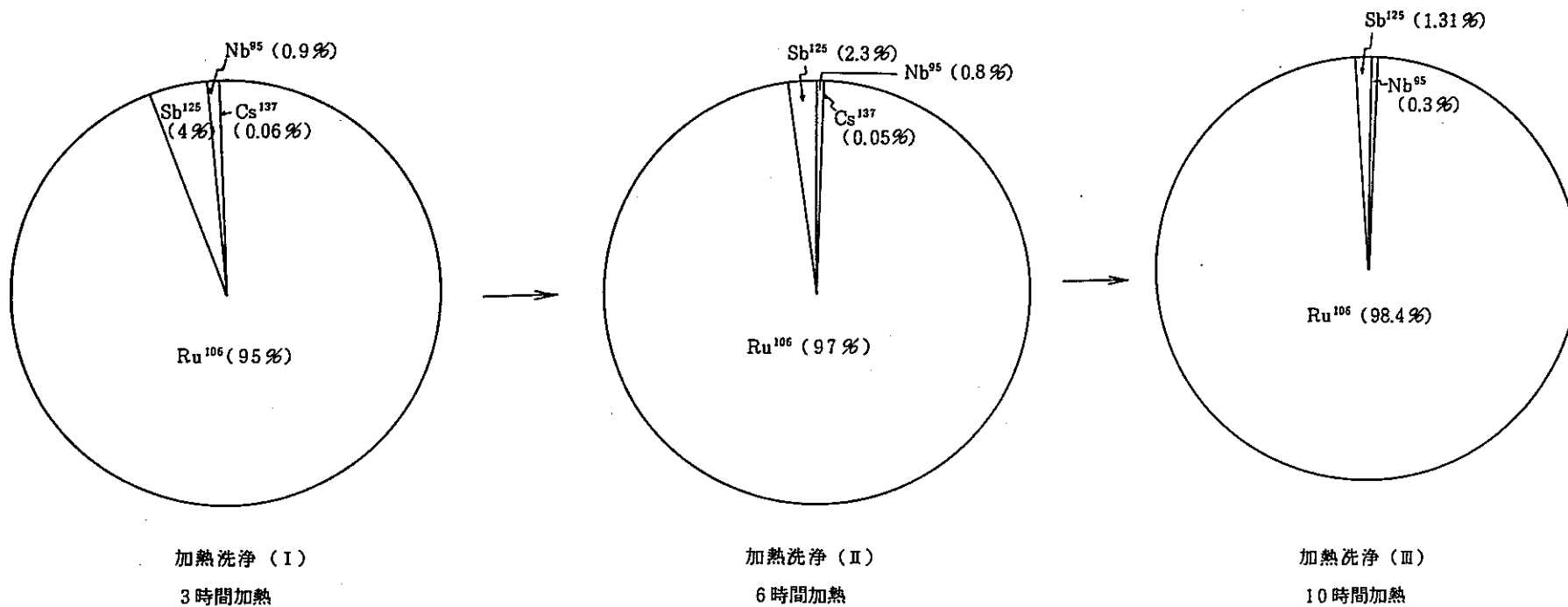
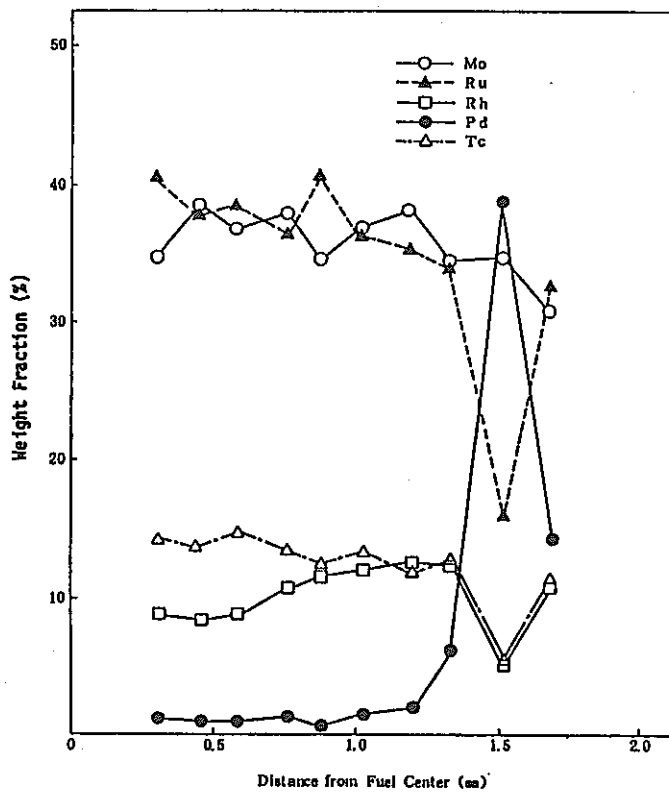
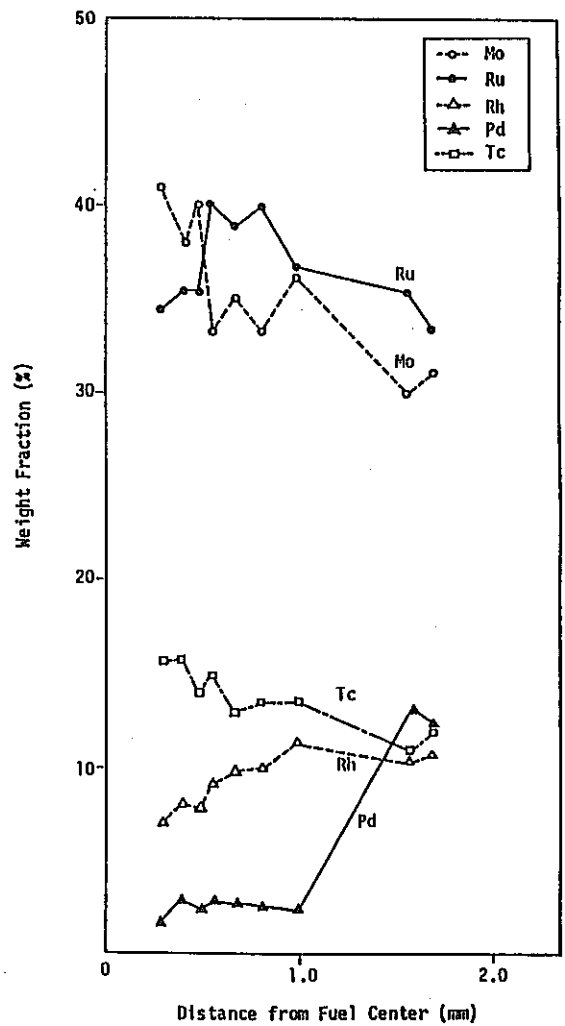


図14 回収残渣のγ核種割合 (3 M-HNO₃ 100°C洗浄 ; 第3回試験)



PFD001



PFD003

図15 「常陽」MK-II照射済燃料内の主要元素分布

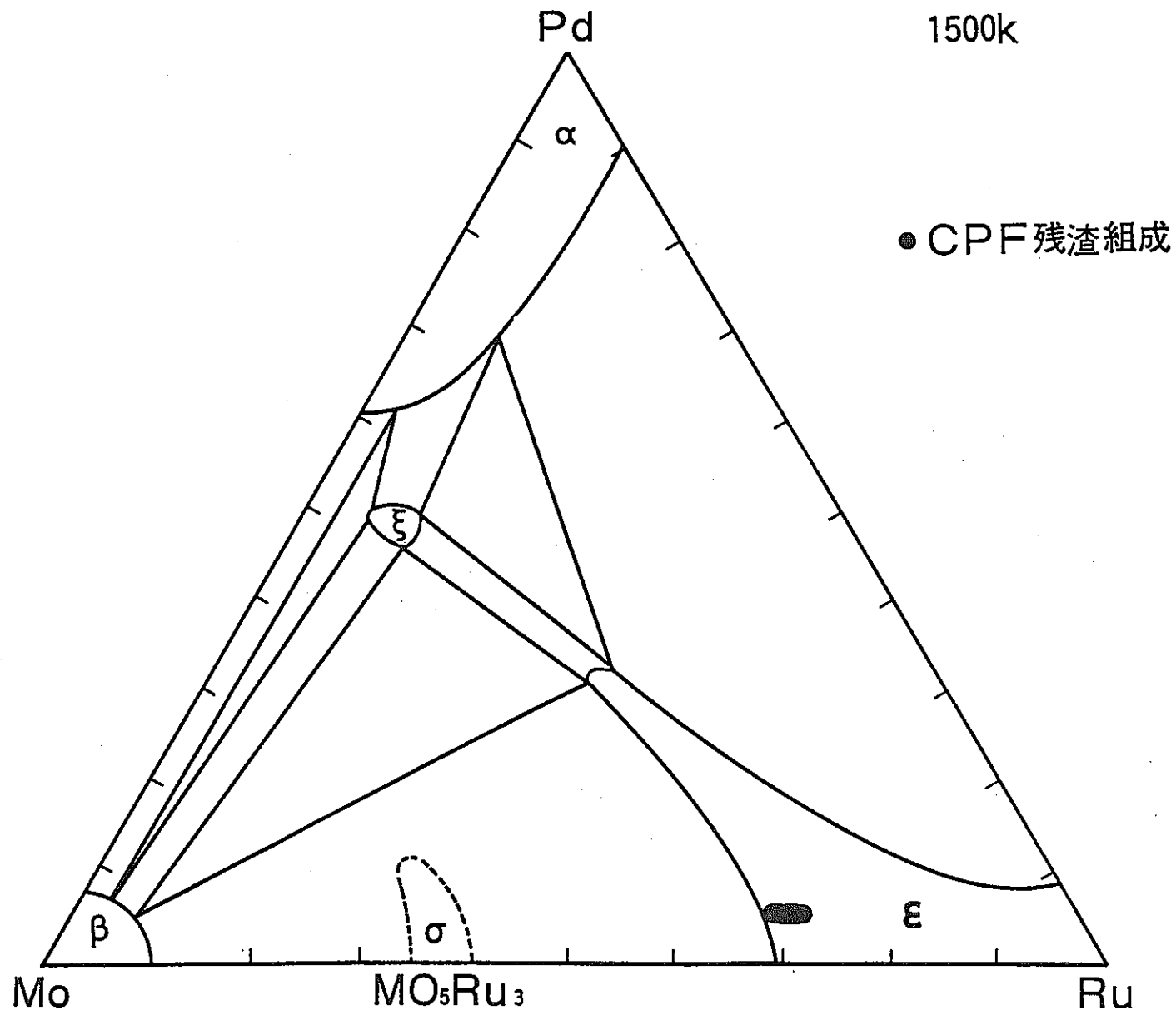
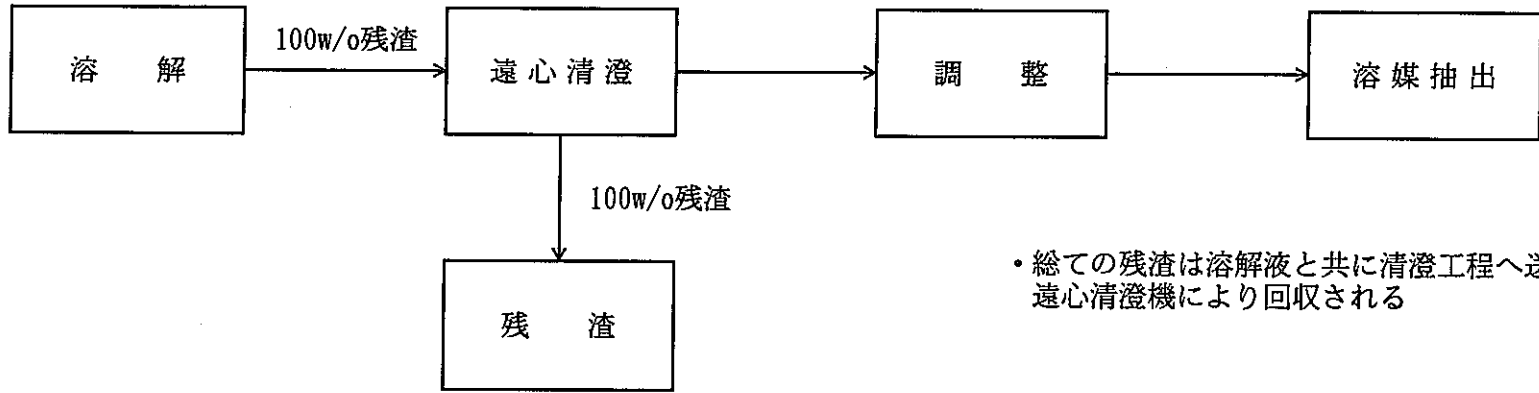


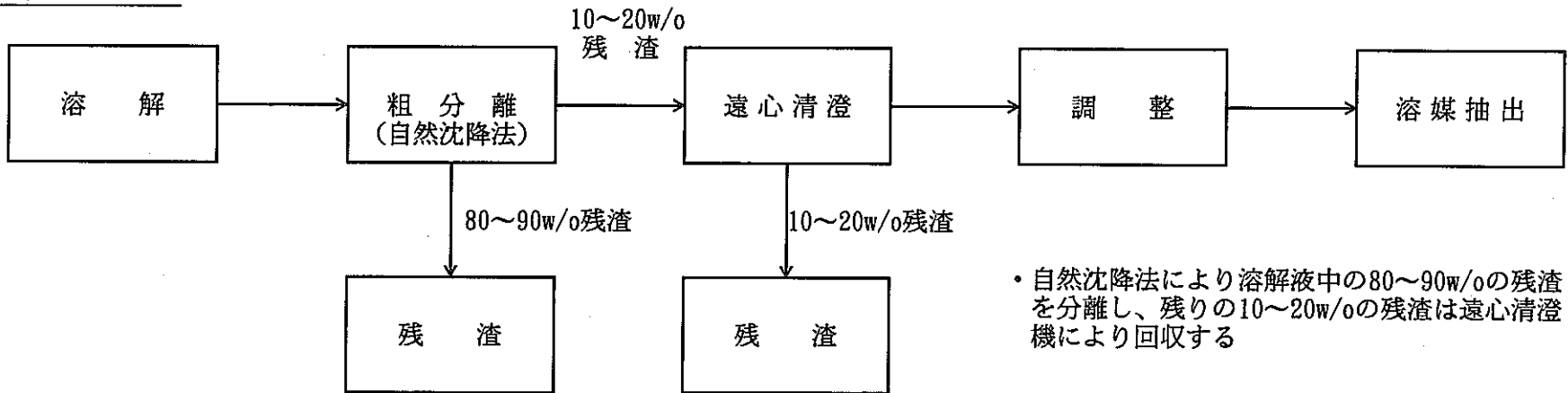
图16 Mo-Ru-Pd三元素状态图

従来プロセス



• 総ての残渣は溶解液と共に清澄工程へ送られ、遠心清澄機により回収される

提案プロセス



• 自然沈降法により溶解液中の80~90w/oの残渣を分離し、残りの10~20w/oの残渣は遠心清澄機により回収する

図17 清澄プロセスの改善

表1 溶解試験に用いた高速炉照射済燃料の仕様

試験 No. (ランNo.)	燃料の種類	溶解ピン 本数 (本)	コア部 Pu富化度 (%)	燃料総重量 (g)	Mox重量 (g)		ブランケット重量 (g)	平均燃焼度 (Mwd/t)	線出力 (W/cm)	備考
					PuO ₂	UO ₂				
1	「常陽」MK-I照射済燃料	2	18	660.0	51.0	232.5	376.5	4,400	250	
2	「常陽」MK-I照射済燃料	2	18	660.0	51.0	232.5	376.5	32,000	250	
3	「常陽」MK-I照射済燃料	4	18	1320.3	102.1	465.0	753.2	40,100	250	
4-1	「常陽」MK-I照射済燃料	1	18	1314.0	101.8	463.9	752.0	40,100	250	
4-2		1								
4-3		1								
4-4		1								
5-1	「常陽」MK-I照射済燃料	4	18	1322.9	102.3	466.1	—	40,100	250	コア部の溶解試験
5-2					—	—	754.5			ブランケット部の溶解試験
6	「常陽」MK-II照射済燃料	3	29	286.9	83.2	203.7	—	13,800	360	
7	「常陽」MK-II照射済燃料	3	29	287.9	83.5	204.4	—	13,800	360	
8	「常陽」MK-II照射済燃料	3	29	288.0	83.5	204.4	—	31,700	309	
10	「常陽」MK-II照射済燃料	3	29	287.5	83.4	204.1	—	31,700	309	
11	Phoenix照射済燃料	3	30	412.2	289.4	122.8	—	94,000	440	
12	Phoenix照射済燃料	3	30	708.0	144.3	336.6	227.1	94,000	440	
13	「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料	4	30	473.8	142.1	331.6	—	54,100	360	
14	「常陽」MK-II照射済燃料	3	29	289.5	86.8	202.6	—	54,700	360	
15	「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料	1	30	118.7	31.4	87.3	—	54,100	360	
16-1	「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料	1	30	118.9	31.4	87.5	—	54,100	360	
16-2		1		118.6	31.4	87.2	—			
16-3		1		118.7	31.4	87.3	—			
16-4		1		120.4	31.8	88.6	—			

表2 溶解試験条件

試験No. (ランNo.)	燃料の種類	溶解液硝酸濃度 (M)		溶解液量 (ℓ)	溶解温度 (°C)	溶解時間 (hr)	溶解槽 形状*1
		初期	終期				
1	「常陽」MK-I 燃料	3.6	1.9	3.0	98	10.2	B
2	「常陽」MK-I 燃料	3.5	1.6	3.0	96	10	B
3	「常陽」MK-I 燃料	3.6	2.9	3.8	101	10	B
4-1	「常陽」MK-I 燃料	3.4	2.0	2.0	90	10	B
4-2		3.1	1.6	2.0	80	10	B
4-3		3.4	2.0	2.0	70	10	B
4-4		2.4	1.7	4.1	90	10	B
5-1	「常陽」MK-I 燃料	3.3	1.8	3.7	90	10	B
5-2		3.3	1.8	4.6	90	10	B
6	「常陽」MK-II 燃料	3.5	2.7	2.8	97	10	B
7	「常陽」MK-II 燃料	3.5	2.6	2.7	90	10	B
8	「常陽」MK-II 燃料	3.4	2.7	2.5	97	10	B
10	「常陽」MK-II 燃料	3.5	2.7	3.5	97	13	B
11	Phoenix 燃料	3.0	2.0	2.5	96	27	B
12	Phoenix 燃料	5.1	4.8	3.2	107	25	B
13	「常陽」MK-II C型特燃	4.4	2.5	2.0	104	12	B
14	「常陽」MK-II 燃料	3.5	2.7	2.8	97	12	B
15	「常陽」MK-II C型特燃	パラメータ	パラメータ	0.5	パラメータ	パラメータ	F
16-1	「常陽」MK-II C型特燃	8.7	6.9	0.5	115	4	F
16-2*2		3.5	3.5	0.8 → 0.9	100	8.5	F
16-3*2		3.5	8.0	0.4 → 1.0	115	4	F
16-4*2		3.5	8.5	0.4 → 1.0	95	4	F

注 *1 B : 小型溶解槽 (パンスケール) , F : フラスコ型溶解槽 (ビーカースケール)

*2 溶解時に硝酸溶液を追加して、硝酸濃度を調整した。

表3 高速炉照射済燃料の溶解試験における不溶解残渣発生状況

溶解試験 No. (ラン No.)	燃料の 種類*1	密度 (M.D.T)	コア部 Pu富化度 (%)	燃料ピン 本数 (本)	燃料MOX 総重量** (g)	ブランケット 重量 (g)	集合体 平均燃焼度 (Mwd/t)	平均 線出力 (W/cm)	溶解槽 種類*1	溶解液硝酸濃度(M)		硝酸 追加	溶解 液量 (ℓ)	溶解 温度 ($^{\circ}\text{C}$)	溶解時間 (hr)	残渣洗浄方法		残渣 発生量 (g)	残渣 発生率** (%)	組成 分析
										初期	終期					方法*4	洗浄液 (洗浄回数)			
1	J 1	93	18	2	660	376.5	4,400	250	B	3.6	1.9	-	3.0	98	10.2	常温	3M-HNO ₃ (4)	1.2	0.18	-
2	J 1	93	18	2	660	376.5	32,000	250	B	3.5	1.6	-	3.0	96	10	常温	3M-HNO ₃ (4)	0.868	0.13	○
3	J 1	93	18	4	1320.3	753.2	40,100	250	B	3.6	2.9	-	3.76	101	10	常温+加熱	3M-HNO ₃ (3+3)	2.4	0.18	○
4-1	J 1	93	18	1	328.8	188.1	40,100	250	B	3.36	2.02	-	2.03	90	10	常温	3M-HNO ₃ (4~6)	0.713	0.22	○
4-2				1	328.8	188.1				3.10	1.60	-	2.0	80	10			0.792	0.24	○
4-3				1	327.1	188.2				3.35	1.97	-	2.03	70	10			0.785	0.24	○
4-4				1	329.3	187.6				2.36	1.68	-	4.09	90	10			0.831	0.25	○
5-1	J 1	93	18	4	568.4	-	40,100	250	B	3.3	1.8	-	3.7	90	10	常温	3M-HNO ₃ (4)	3.825	0.65	-
5-2				-	754.5	3.3				1.8	-	4.6	90	10	常温	3M-HNO ₃ (4)	0.202	0.027	-	
6	J 2	93	29	3	286.9	-	13,800	360	B	3.5	2.7	-	2.8	97	10	常温	3M-HNO ₃ (5)	1.262	0.44	-
7	J 2	93	29	3	287.9	-	13,800	360	B	3.48	2.61	-	2.7	90	10	常温	3M-HNO ₃ (6)	1.805	0.63	-
8	J 2	93	29	3	288.0	-	31,700	309	B	3.4	2.71	-	2.5	97	10	常温+加熱	3M-HNO ₃ (6+3)	3.215	1.1	-
9	D	93	18/20	2本相当	(179.4)	-	52,600	410	B	3.3	2.9	-	2.5	98	10	常温	3M-HNO ₃ (4)	0.382	(0.19)	-
10	J 2	93	29	3	287.5	-	31,700	309	B	3.5	2.7	-	3.5	97	13	常温	0.2M(1)+3M-HNO ₃ (4)	0.913	0.32	○
11	P	85	30	3本相当	(479.9)	-	94,000	440	B	3.0	2.0	-	2.5	96	27	常温+加熱	3M-HNO ₃ (4+2)	5.785	(1.2)	○
12	P	85	30	3	708	227.1	94,000	440	B	5.1	4.8	-	3.2	107	25	常温	3M-HNO ₃ (5)+H ₂ O(1)	4.225	0.60	○
13	J 2C	85	30	4	473.8	-	54,100	360	B	4.4	2.5	-	2.0	104	12	常温	3M-HNO ₃ (4)+H ₂ O(2)	0.963	0.26	○
14	J 2	93	29	3	298.5	-	54,700		B	3.5	2.7	-	2.8	97	12	常温	3M-HNO ₃ (4)+H ₂ O(2)	-	-	-
15	J 2C	85	30	1	122.5	-	54,100	360	F	3.5	-	-	0.5	107	10	常温	3M-HNO ₃ (4)+H ₂ O(2)	-	-	-
16-1	J 2C	85	30	1	122.8	-	54,100	360	F	8.7	6.9	-	0.5	115	4	常温	3M-HNO ₃ (5)+H ₂ O(2)	1.75	1.43	○
16-2**				1	122.4	-				3.5	3.5	有り	0.8 → 0.9	100	8.5			1.73	1.41	○
16-3**				1	122.5	-				3.5	8.0	有り	0.4 → 1.0	115	4			1.70	1.39	○
16-4**				1	124.2	-				3.5	8.5	有り	0.4 → 1.0	95	4			1.71	1.38	○

注*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-IIC型特燃, P: Phoenix燃料, D: DFR燃料)

*2: 燃料MOX総重量 (コア+ブランケット重量 (ブランケット重量は製造時のデータ))

*3: 溶解槽タイプ (B: 小型溶解槽 (ベンチスケール), F: フラスコ型溶解槽 (ビーカースケール))

*4: 洗浄方法 (常温: 約25℃の洗浄液で攪拌, 加熱: 沸騰状態を約1時間保持後、自然冷却)

*5: 残渣発生率 (%) = (残渣発生量 / 燃料MOX総重量) × 100

*6: 溶解時に硝酸溶液を追加して、硝酸濃度を調整した。

表4 「常陽」MK-II C型特殊燃料の残渣中Pu含有量

試験 No. (ランNo.)	溶解試験条件		Mox重量 (g)		不溶解残渣 発生量 (g)	不溶解残渣 Pu含有量 (mg)	Pu含有率 (%) [残渣中のPu] /[Mox中のPu]
	硝酸濃度 (M)	溶解温度 (°C)	PuO ₂	UO ₂			
16-1	8.7 → 6.9	115	31.4	87.5	1.75	7.2	0.023
16-2	3.5一定* ¹	100	31.4	87.2	1.73	30.0	0.096
16-3	3.5 → 8.0* ¹	115	31.4	87.3	1.70	3.25	0.010
16-4	3.5 → 8.5* ¹	95	31.8	88.6	1.71	4.99	0.016

注 *1 : 溶解時に硝酸溶液を追加して、硝酸濃度を調整した。

表5 MOX 燃料溶解液の未溶解残渣 (文献調査結果)

燃料データ			溶解条件		溶解残渣			Pu未溶解率	溶解残渣の組成 (wt%)										粒 径 (μm)	引用文献
燃焼前のPuの割合 $\frac{\text{Pu}}{\text{U+Pu}}$	燃 焼 度 MWD/MT	燃料棒出力 W/cm	HNO ₃ M	溶解時間 hr	燃料の%	溶解残渣の%		Pu Pu total	U	Pu	Am	Zr	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	そ の 他		
						U	Pu													
3.53	8,800	163	10	5	1.05	24	64	21	24	64	1.2	0.9	1.2		1.8			(11)		
			10	2+3	1.03	16	48	17	16	48	0.9	0.1	1.3		1.7					
3.53	9,200	171	10	5	0.87	17	47	14	17	47	1.0	0.6	1.0		3.6					
			10	2+3	0.88	20	55	15	20	55	1.1	0.7	1.4		2.2					
3.96	36,900	245+260+220	8	6	0.65	5.9	8.9	2.5	5.9	8.9	0.6	0.3	3.9		15.0					
2.21	8,300	152	10	5.5	0.53	16	58	15	16	58	1.5	1.6	1.3		1.9					
			10	5	0.36	21	47	9	21	47	1.2	1.3	2.6		4.0					
	11,400	211	10	5	0.53	19	50	12	19	50	1.1	0.9	2.0		2.8					
			10	5	0.17	15	35	4	15	35	1.1	3.3	1.8		4.2					
10	5	0.26																		
2.10	>14,500	-250+250	10	5	0.32	8.8	15	4	8.8	15	0.6	0.7	7.6		10.0					
			10	5	0.33	11	15	4	11	15	0.8	0.8	8.6		12.0					
30	91,500	480	10	6+6	6~11			6~12					19.7	33.5	35.7	8.2	2.9	残渣中のRu-106は インベントリーの91~85%	(12)	
			10	0.1M-HP	8	2.0								18.9	33.1	37.1	7.6	2.7		Ru-106は インベントリーの93~86%
<30	75,000		11	10									○	○	○	○	○		<0.5	(13)
25	30,000~40,000		8~12										○	○	○	○	○		1~10	(14,15)
15	61,000		8~10	2~3	0.3~0.7			0.04					○	○	○	○	○	その他Fe, Ni, Sn, Zr。ハル 中のU, Puは0.02~0.04%	(16,17)	
15	40,000 ~80,000		6.5	3~8	0.39~0.53								26~32	○	○	○	○	左記PPのインベントリーの 約50%が残渣中に含まれる	~2 μm , 10 μm , 50~100 μm	(18)
													○	○	○	○	○	発熱量~1W/g	2	(19)
30	40,000	355	10	>8.5	3.9				14.9	32.2		0.6	6.3		7.9			DFR燃料の上端部	(20)	
	52,000	475			4.3			10.6	17.5		0.5	10.3		14.4				DFR燃料の中央部近傍		
	54,000	480			3.3			15.5	30.4		0.7	8.3		15.0				DFR燃料の中央部		
	52,000	475			4.6			6.5	13.3		0.4	7.3		10.4				DFR燃料の中央部近傍		
	40,000	355			3.9			17.6	29.2		0.7	9.2		11.9				DFR燃料の下端部		
15	61,000		5.5+10	12+3	0.06			0.002	2.8	0.47		<0.3	0.6	<0.3	<0.3	<0.3	0.6	Sn<1.1 Ni 2.3 Fe 4.0 Sn<1.0 Ni<1.9 Fe<3.6 Sn<0.8 Ni<1.4 Fe<3.6 Sn<0.8 Ni 1.0	(21)	
	61,000		7.5	26	0.05			0.0006	0.8	1.0		<0.3	4.3	1.1	2.1	0.5				
	61,000		10.5	6.5	0.73			0.07	7.9	1.2		<0.6	5.7	<1.4	4.0	<1.2				
	61,000		8.5	5.75	0.46			0.02	0.6	0.5		<0.5	19.0	2.9	6.7	<1.5				
	61,000		9~9.7	9	0.045			0.01	15.7	3.4		<0.5	5.8	<1.3	4.2	<0.8				
	50,000		10.6~11	5	0.27			0.08	20.6	3.8		<1.2	<2.9	<0.6	1.0					
50,000 ~60,000		8~9.8	7.75	0.48			0.04	5.3	1.0											

表6 粒度分布測定条件

項 目	仕 様	備 考
電 解 液	1 M-HNO ₃	1.0 , 0.2 μm濾紙にて濾過
吸 引 圧 力	2 0 0 mmA q	
測 定 時 間	3 0 秒間	
吸 引 量	4 . 2 μ l	3 0 秒当たりの吸引量
電 解 液 液 量	1 5 ml	
サ ン プ ル 採 取 量	0 . 1 ml	約 1 5 0 倍希釈で測定

測 定 装 置 : 米パーチクルデータ社製, 型式8 0 K Y, 1 1 2 - 3 型

オリフィス径: 1 2 μ

表7 不溶解残渣組成割合

試験No. (ランNo.)	燃料の種類	平均燃焼度 (MWd/t)	溶解条件			不溶解残渣含有元素割合(w/o)				
			硝酸濃度(M)	溶解温度(°C)	溶解温度(hr)	Mo	Pd	Ru	Rh	Tc
5	「常陽」MK-I燃料	40,100	3.3→1.8	90	10	18.0	6.7	32.2	6.6	9.4
10	「常陽」MK-II燃料	31,700	3.5→2.7	97	13	22.2	9.0	7.4	7.8	5.2
13	「常陽」MK-II C型特殊燃料	54,100	4.4→2.5	104	12	24.2	11.6	20.2	8.5	8.8
16-1	「常陽」MK-II C型特殊燃料	54,100	8.7→6.9	115	4	28.1	14.6	2.7	7.0	12.9
16-2			3.5一定*1	100	8.5	23.2	12.9	3.4	7.0	10.3
16-3			3.5→8.0*1	115	4	28.0	15.7	3.3	9.0	12.1
16-4			3.5→8.5*1	95	4	27.6	14.9	3.4	8.5	12.4

注 *1 : 溶解時に硝酸溶液を追加して、硝酸濃度を調整した。

表 8 核分裂生成物の収率と燃料中の形態

元 素* ¹	元素収率* ³		燃 料 中 の 形 態
	²³⁵ U	²³⁹ Pu	
Zr + Nb	0.298	0.204	酸化物として固溶。Zrの一部はアルカリ土類と複合酸化物を作る。
Y + 希土類* ²	0.534	0.471	酸化物として固溶。
Ba + Sr (アルカリ土類)	0.149	0.096	アルカリ土類酸化物として析出。
Mo	0.240	0.203	酸化物として固溶。または金属析出物中に存在。
Ru + Tc + Rh + Pd	0.263	0.516	金属析出物を形成。
Cs + Rb	0.226	0.189	単位蒸気。または低温領域で酸化物として析出。
I + Te	0.012	0.070	単位蒸気。IはCsと結合し易い。
Xe + Kr	0.251	0.248	単位ガス。

*1: 化学的性質が類似した元素のグループ

*2: La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd

*3: 高速中性子による核分裂による

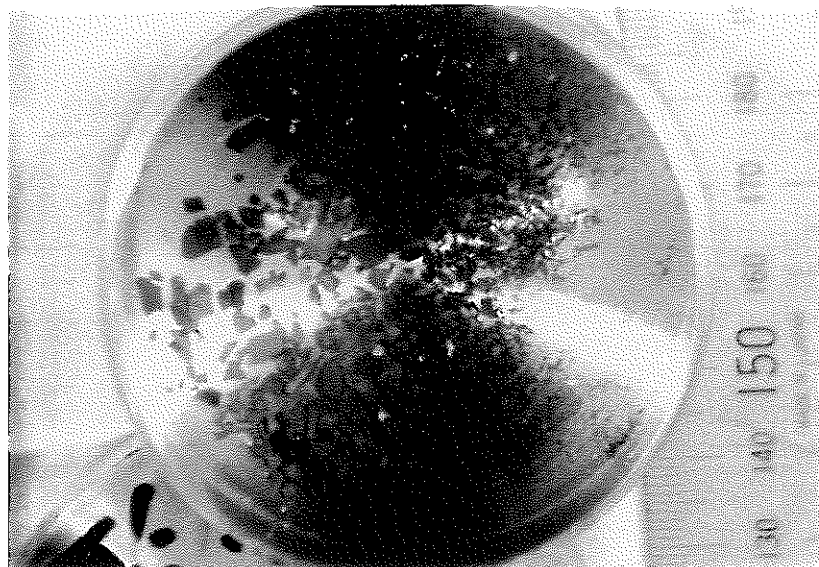


写真1 「常陽」MK-II照射済燃料の不溶解残渣
(燃焼度:54,700Mwd/t, Pu富化度:29%)

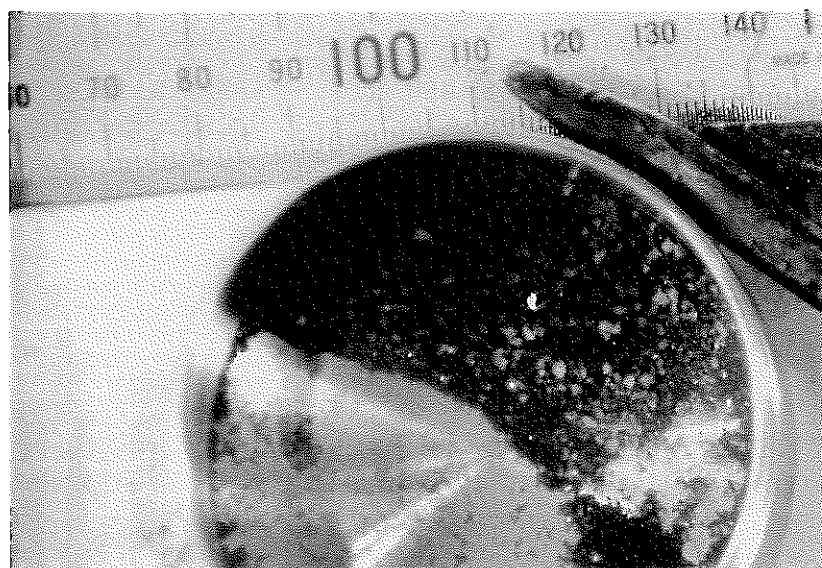


写真2 「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料の不溶解残渣
(燃焼度:54,100Mwd/t, Pu富化度:30%)

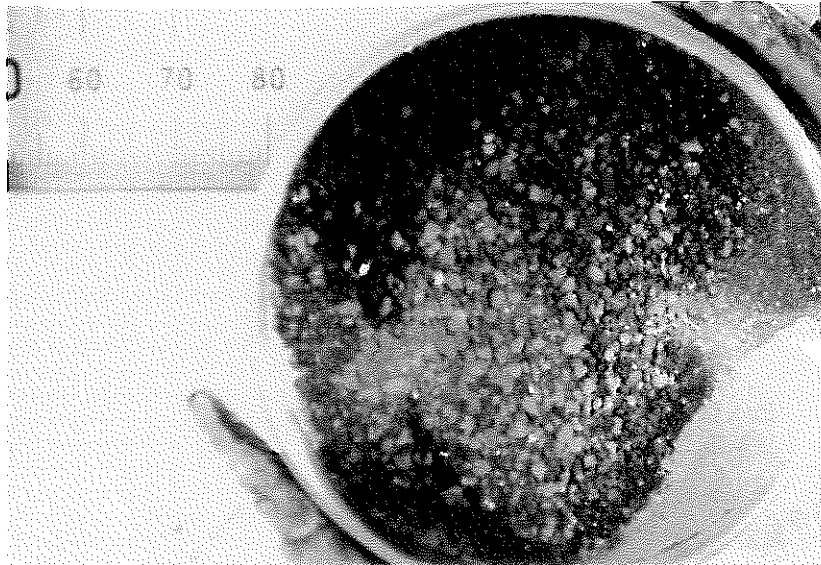


写真3 「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料の不溶解残渣
(燃焼度:54,100Mwd/t, Pu富化度:30%)

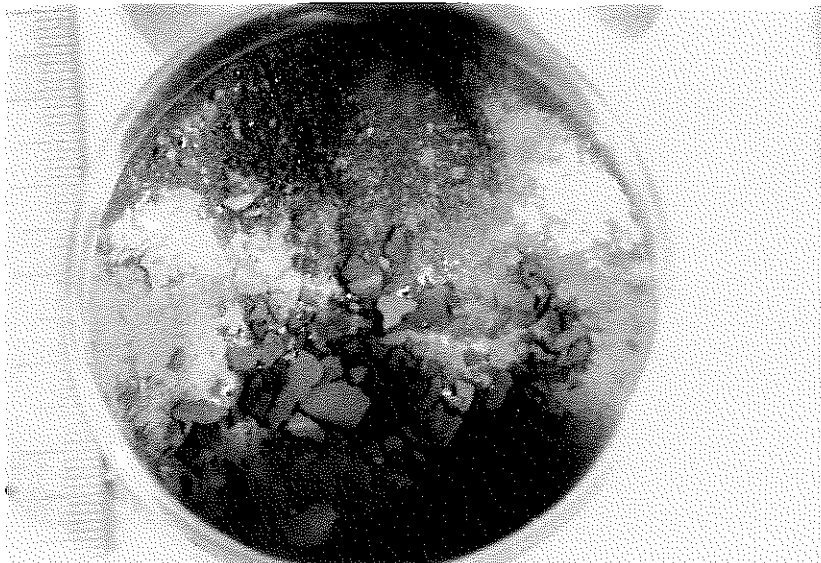


写真4 Phoenix照射済燃料の不溶解残渣
(燃焼度:94,000Mwd/t, Pu富化度:30%)

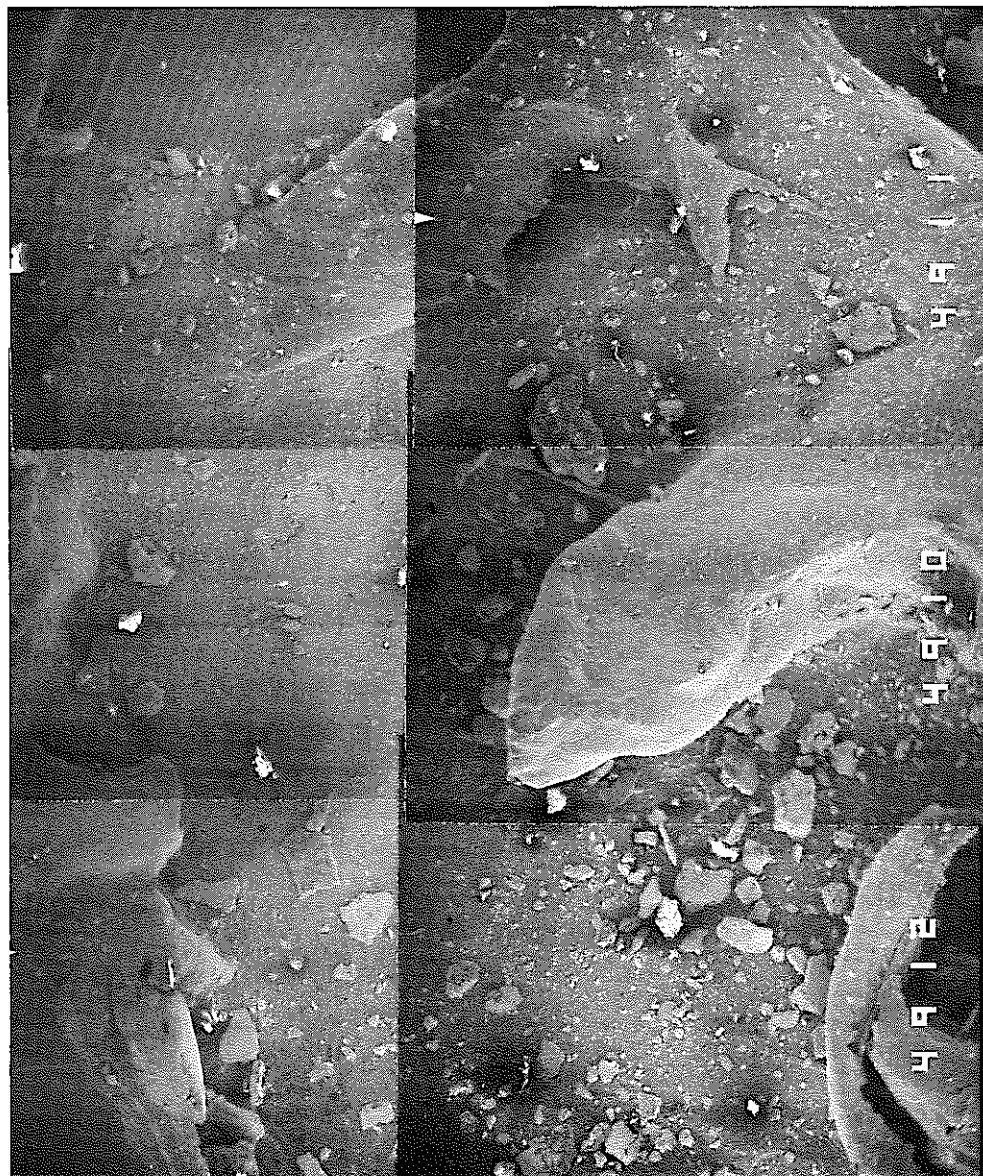


写真5 「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料の不溶解残渣（倍率：50倍）
（燃焼度：54, 100Mwd/t, Pu富化度：30%）



写真6 Phoenix照射済燃料の不溶解残渣（倍率：50倍）

（燃焼度：94,000Mwd/t, Pu富化度：30%）

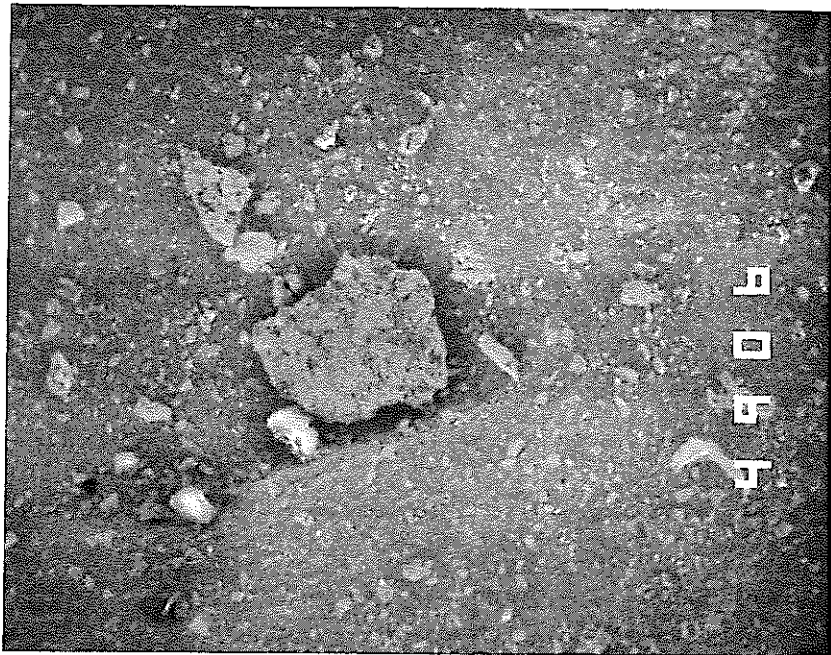


写真7 「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料の不溶解残渣（倍率：100倍）
（燃焼度：54, 100MWd/t, Pu富化度：30%）

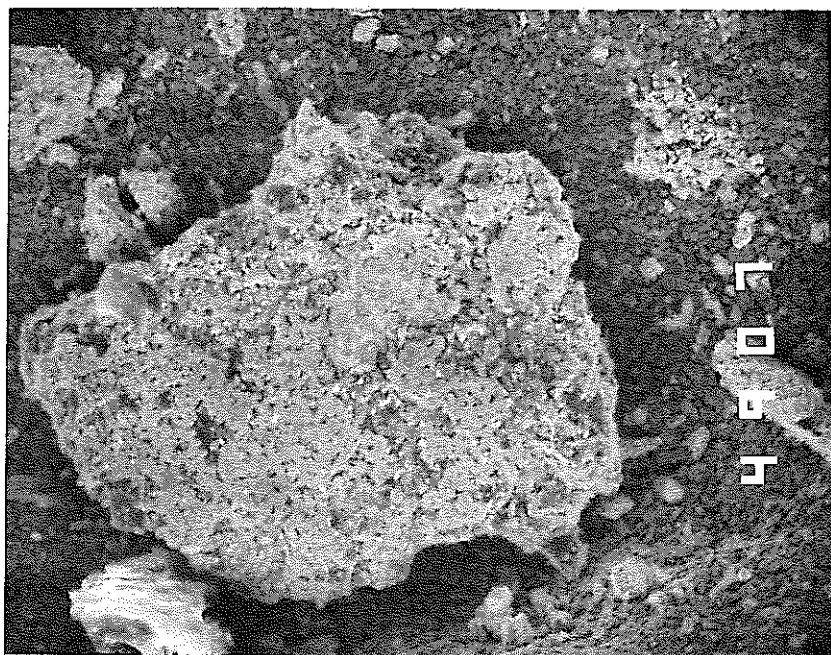


写真8 「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料の不溶解残渣（倍率：300倍）
（燃焼度：54, 100MWd/t, Pu富化度：30%）

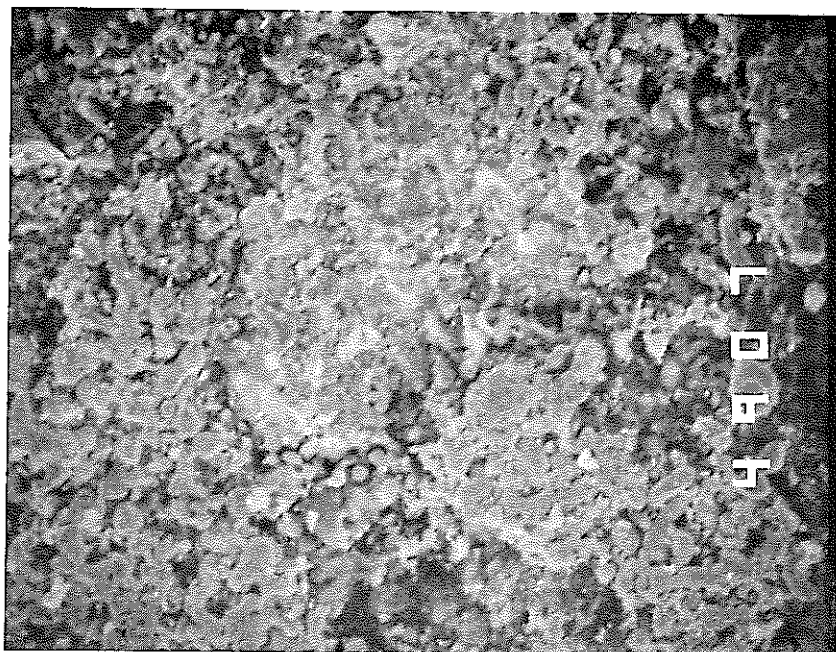


写真9 「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料の不溶解残渣（倍率：1000倍）
（燃焼度：54, 100Mwd/t, Pu富化度：30%）



写真10 Phoenix照射済燃料の不溶解残渣（倍率：100倍）
（燃焼度：94,000Mwd/t, Pu富化度：30%）

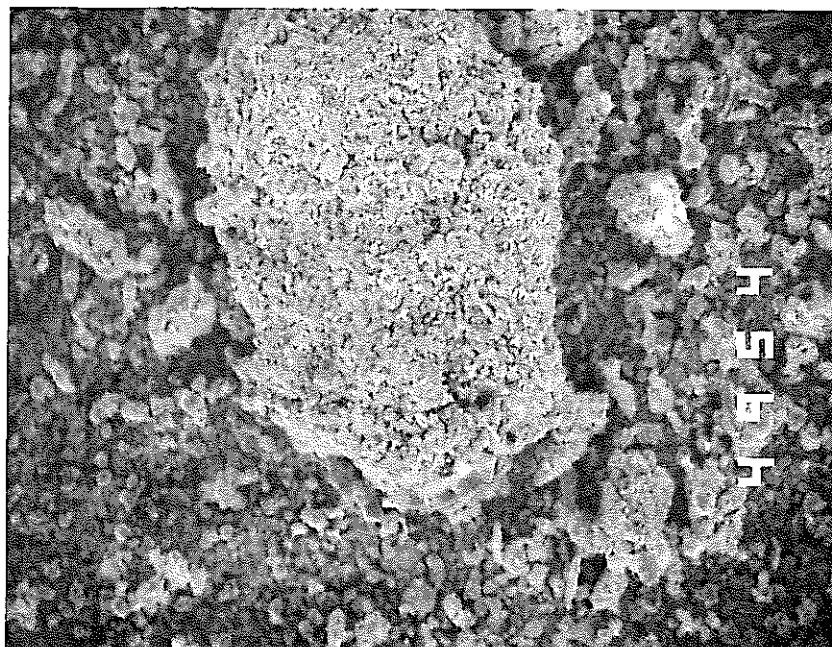


写真11 Phoenix照射済燃料の不溶解残渣（倍率：300倍）
（燃焼度：94,000Mwd/t, Pu富化度：30%）



写真12 P h e n i x 照射済燃料の不溶解残渣（倍率：1000倍）

（燃焼度：94,000Mwd/t, Pu富化度：30%）

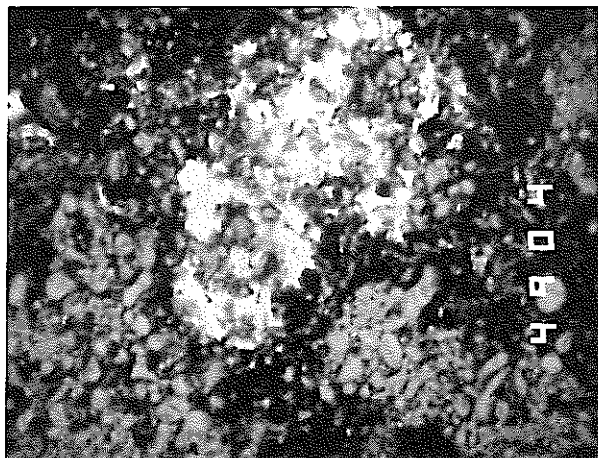


写真13 「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料の不溶解残渣組成像（倍率：1000倍）
（燃焼度：54,100Mwd/t, Pu富化度：30%）

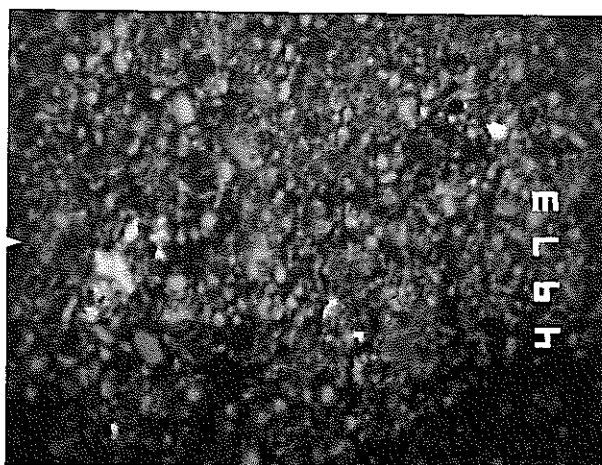


写真14 Phoenix照射済燃料の不溶解残渣組成像（倍率：1000倍）
（燃焼度：94,000Mwd/t, Pu富化度：30%）

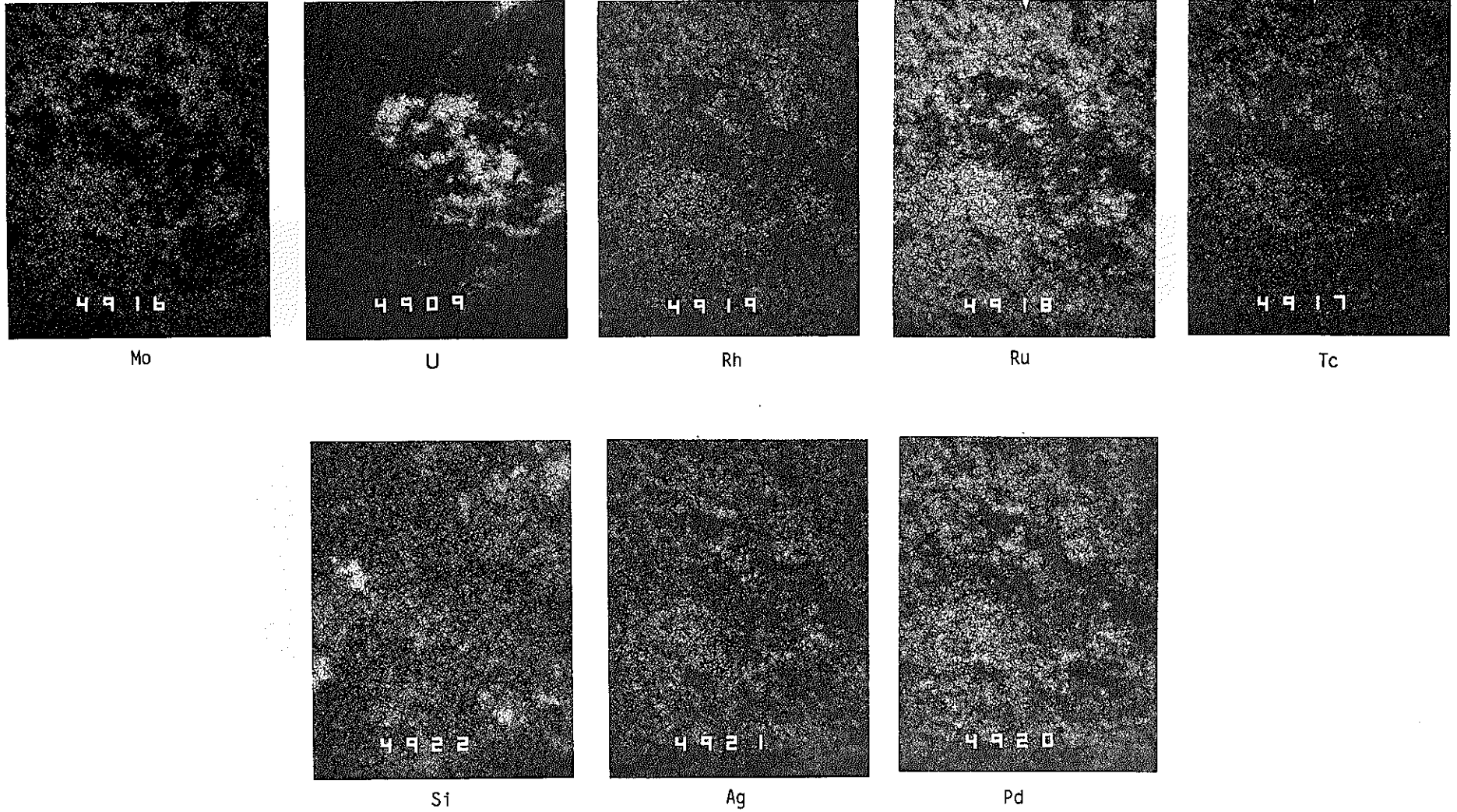
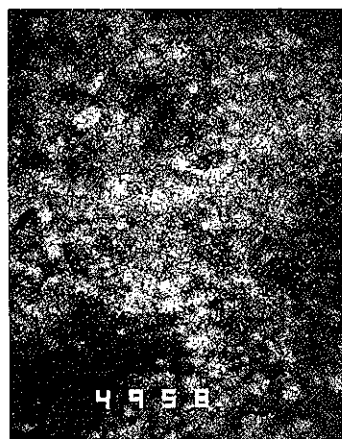
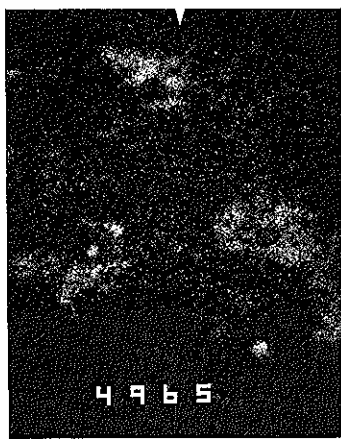


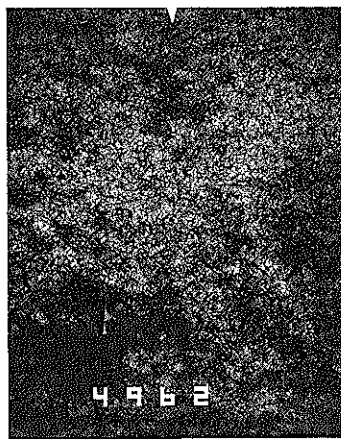
写真15 「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料残渣の特性X線像
(燃焼度:54, 100MWd/t, Pu富化度:30%)



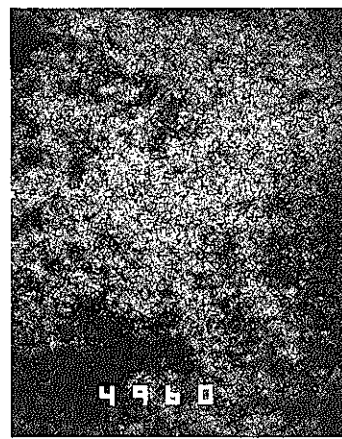
Mo



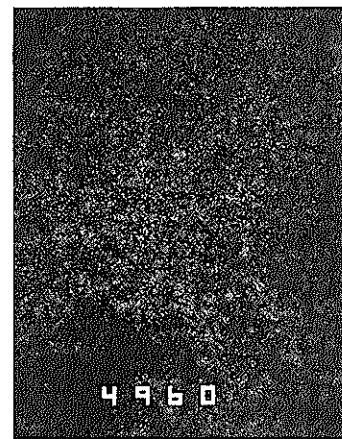
U



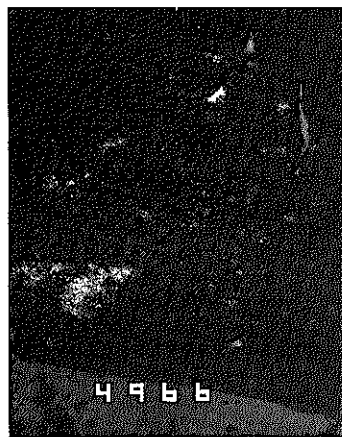
Rh



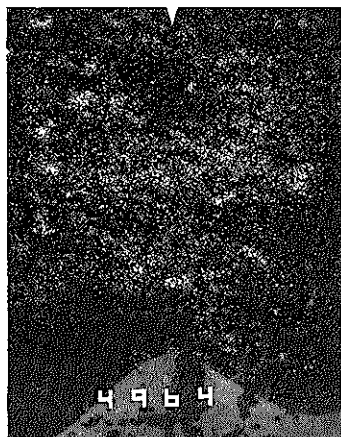
Ru



Tc



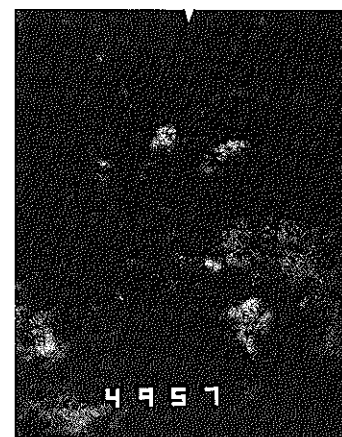
Si



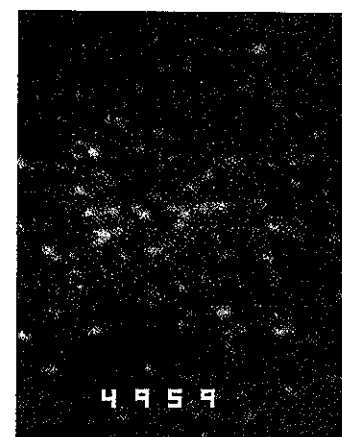
Ag



Pd



Cr



Fe

写真16 Phoenix照射済燃料残渣の特性X線像
(燃焼度:94,000Mwd/t, Pu富化度:30%)