

本資料は 年 月 日付で登録区分、
2001. 6. 6
変更する。

[技術情報室]

CPFにおける高速炉燃料リサイクル試験

— 高速炉使用済燃料の溶解性に関する研究 —

1993年11月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

この
もので
洩がな
意して

本資

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

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

CPFにおける高速炉燃料リサイクル試験

— 高速炉使用済燃料の溶解性に関する研究 —



実施責任者 富樫 昭夫

報告者 根本 慎一, 坂井 敏幸*, 算用子 裕孝

菊池 憲治, 岩崎 伊佐央**, 栗林 正和*

松島 和美*

要 旨

CPFにおけるホット試験は1982年9月30日に実施した高速炉使用済燃料ピンのせん断作業を皮切りに、これまでの約10年間、ピューレックス法を基本として高速炉燃料再処理に関する各プロセス試験を進めてきた。

今回、これらのホット試験のうち、燃料の溶解試験に着目して総合的に評価・解析を加え、シミュレーションコードに反映できる溶解反応速度式を導出することができた。以下にその基本データについての概要を示す。

高速炉使用済燃料の溶解速度は、反応表面積および系の硝酸濃度に比例する。また、温度に関してはアレニウスの式で補正できる。

$$\text{溶解速度} = \text{速度定数} \cdot \text{反応表面積} \cdot (\text{硝酸濃度})^{1.7} \cdot e^{-E/RT}$$

- (1) 溶解速度は硝酸濃度の1.7乗に比例し、未照射UO₂ペレットの傾向とはほぼ同じである。
- (2) アレニウスプロットにより求めた見かけの活性化エネルギーは11kcal/molであり、UO₂の溶解で報告されている同エネルギーにほぼ近い。
- (3) 燃焼度の影響については、溶解反応速度式に反映できるような形での整理はできなかったが、溶解速度は硝酸濃度の低い系では燃焼度の増加に伴って低下する傾向にあること、また、8M程度の高濃度硝酸系では見かけ上ほぼ一定になることが観察された。
- (4) 溶解速度の変化より溶解反応にかかわる有効表面積を推定し、せん断片および粉末の表面積変化を数式化した。
- (5) せん断片の“つぶれ”の影響については、約30%以上確保することによりほぼ一定の溶解速度を得ることができる。

再処理技術開発部 プロセス・分析開発室

* : 常陽産業(株)

** : 検査開発(株)

目 次

1. まえがき	1
2. 溶解速度に関する知見	3
3. 試 験	7
3.1 対象燃料仕様	7
3.2 試験装置	8
3.3 溶解試験	9
3.3.1 試験項目	9
3.3.2 試験方法	10
3.4 試験結果	10
3.4.1 U, PuおよびF Pの溶解率	11
3.4.2 ^{85}Kr 放出率と燃料溶解率の関係	11
3.4.3 溶解液中の硝酸収支	12
3.4.4 硝酸濃度と溶解量の関係	12
3.4.5 溶解温度と溶解量の関係	13
3.4.6 せん断片開口率調整試験	13
3.4.7 粉末燃料溶解試験	14
3.4.8 燃料燃焼度と溶解量の関係	15
4. 考 察	17
4.1 見かけの溶解速度の算出	17
4.2 硝酸濃度の溶解速度に与える影響	17
4.3 溶解温度の溶解速度に与える影響	18
4.4 燃料燃焼度の溶解速度に与える影響	19
4.5 溶解過程における燃料表面積遷移	20
4.5.1 燃料せん断片の溶解表面積遷移	20
4.5.2 燃料粉末の溶解表面積遷移	21
4.6 速度定数の算出	22

4.7	溶解反応速度式	23
4.8	溶解反応速度式による溶解のシミュレーション	24
5.	まとめ	25
6.	参考文献	28

1. ま え が き

既存の軽水炉使用済燃料再処理プラントおよび現在開発中の高速炉使用済燃料の再処理はピューレックス法を基本としており、いずれも燃料のせん断－溶解－調整－抽出－分配－精製の各工程より構成される。高速炉使用済燃料と軽水炉使用済燃料を比較すると、次のような相違点がある。

- (1) 燃焼度が高く、核分裂生成物の含有量が多い。
- (2) 崩壊熱が大きい。
- (3) プルトニウム濃度が高い。

これらの相違点は、燃料溶解時の不溶性残渣の発生や抽出工程における抽出器内でのクラッドの発生、閉塞、さらには溶媒の放射線損傷、第3相発生、臨界上の問題など、軽水炉燃料再処理とは異なり重視しなければならない課題をつくる。

また、燃料集合体形状や組成が異なることから、前述の基本工程以外に解体工程の付加や、高いPu含有の混合酸化物であるため溶解速度への特段の配慮が必要になるといった特徴がある。

ところで、一般に使用済燃料の溶解性は、燃料の製造履歴、炉内照射履歴および再処理工程での機械的処理条件（せん断）等によるさまざまな因子が重なり合い、溶解特性を予測することは困難であると理解されている。

これに対して権田ら¹⁾は、製造履歴および炉内照射履歴を与えられた燃料の物理的特性（溶解速度、溶解時の形状崩壊等）は再処理工場での機械的処理（せん断）のみによる因子で議論を進められるとし、 UO_2 ペレットの溶解過程での表面積遷移を調べてシミュレーションコード（DISSO）の妥当性の検証を行っている。これによると、 UO_2 ペレットまたはせん断 UO_2 ペレットの初期表面積、表面積遷移、溶解速度、 UO_2 装荷量、溶解液温度条件、溶解液の体積および硝酸濃度変化が与えられれば溶解過程を計算することができるとしている。燃料表面積遷移についてはTaylorら²⁾によっても報告されているが、いずれも UO_2 ペレットを対象としたものであり、照射済燃料のせん断片ではない。

これまで、リサイクル機器試験施設（以下「RETF」という。）の溶解槽の設計と試験条件の検討が進められてきているが、この作業を通して連続溶解槽のシミュレーション

コード³⁾が開発され、設計作業に用いられてきている。本コード内で取り扱っている溶解速度式は前述の UO_2 ペレットを対象とした速度式であり、主にPNL(Pacific Northwest Laboratory)のデータ⁴⁾をもとに導かれたものである。また、溶解過程での燃料表面積遷移についても前述の権田らやTaylorの報告値をもとに数式化し、応用されている。

しかしながら、実際に対象とする燃料は高速炉使用済燃料であり、かつペレットとは異なりステンレス製の被覆管に燃料が入っているせん断片となる。前述のシミュレーションコードによる溶解速度の計算をより正しく行うには、以下の配慮が必要となる。

- (1) 高速炉使用済燃料の溶解速度を調べ、現在使用されている UO_2 ペレット溶解速度式に置き換える。
- (2) せん断片を対象とした溶解反応表面積遷移を推定する。
- (3) さらに、せん断に伴い生ずる燃料粉末の量とその表面積について可能な限り正しい推定が行える経験的データを蓄積し、コードに反映する。

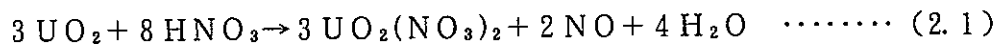
このうち、(1)についてはこれまでの高レベル放射性物質研究施設(以下「CPF」という。)の溶解試験結果より導くことができる。また、(2)の表面積についてはせん断開口部より反応表面積を仮定することは可能であるが、溶解過程での面積変化や集合体せん断時の面積推定にはかなりの困難を伴う。ましてや、(3)のせん断に伴って生ずる粉体についてもこれらの情報が必要となると、現実的には多くの試験・運転を通して得られる経験的データが重要となる。

本報告書では、高速炉使用済燃料の溶解速度に与える溶解液硝酸濃度および温度の影響を調べた。また、反応表面積として燃料ピンせん断開口部の面積を用い、単位面積当たりの溶解速度の評価を、燃焼度や開口率等について行った結果をまとめた。なお、これらの結果は先に示したシミュレーションコードに反映され、ウランデータに代わり設計作業に用いられてきている。

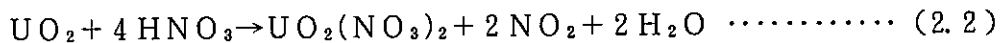
2. 溶解速度に関する知見

二酸化ウラン (UO₂) を対象とした溶解速度の実測例は多数見られる。これはペレットの初期条件が明確であり、かつ取り扱いも使用済燃料と比べると極めて容易ということによるものと推測される。高速炉使用済燃料の溶解過程や溶解速度を調べるうえでこれらウランの溶解に関する知見は重要であり、その差を明らかにすることにより高速炉使用済燃料の溶解についての基本的な課題を明確にできる。

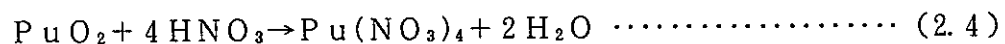
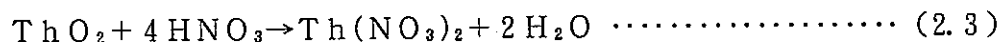
硝酸溶液中での二酸化ウランの溶解反応式はこれまで多数報告⁵⁾されており、以下に示すようにその系の硝酸濃度により異なる。



この反応は主に 10 mol/l 以下の硝酸系で支配的となるが、この濃度以上の場合、次の (2.2) 式が支配する。



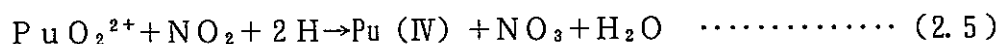
一方、二酸化プルトニウムおよび二酸化トリウムについては、次式が報告されている⁶⁾。



PuO₂-UO₂混合酸化物の溶解は、(2.1) 式および (2.4) 式が併進的に起こると考えられる。これまでの CPF での溶解試験でも、これらの反応を裏付けるいくつかの事象が次のように報告されている。

- (1) 溶解反応中、Pu (IV) が検出されず、ほぼウランの溶解が終了した時点から Pu が検出され、時間とともに増加する。

Pu (IV) は高温硝酸溶液中で容易に Pu (VI) に酸化されるが、溶解反応中は (2.1) 式により生じた NO が攪拌空気により NO₂ に変わる。この NO₂ により、(2.5) 式のように Pu (VI) が還元されて Pu (IV) にとどまるためであろう。



- (2) 溶解反応に伴い消費された硝酸量は、初期のそれぞれの酸化物重量を考慮した (2.1) 式および (2.4) 式の反応当量関係と一致する。

対象燃料を照射済混合酸化物とした場合でも、(2.1) 式および (2.4) 式を用い

ることにより必要硝酸量または消費硝酸量を十分な精度で求められる。ただし、他の共存FPについては考慮していないが、これらはウランおよびプルトニウムに比べて存在比が低いことから無視してもさしつかえないと判断されるためである。また、蒸発による硝酸のロスについては、溶解槽の形状とコンデンサー能力等によって異なる可能性があるが、CPFの場合ほぼ完全（ロスが無視できる程度）にリフラックスされている。

ところで、溶解過程をシミュレーションするには前述の反応当量関係の把握のみでは不十分であり、溶解速度とそれに与えるさまざまな因子（硝酸濃度、温度、槽内攪拌状況、反応表面積と溶解過程における表面積遷移、燃焼度、Pu富化度等）との関係を明らかにする必要がある。

J. L. Swanson ら⁴⁾は、ウランの溶解速度は(2.6)式に示すように反応表面積に比例し、反応系内の硝酸とウラン濃度の2.6乗に比例するとした結果を報告している。

$$\text{Dissolution Rate} = k (\text{表面積}) ([\text{HNO}_3] + 2 [\text{U}])^{2.6} \dots (2.6)$$

また、ORNL(Oak Ridge National Laboratory)のA. I. Uriarteら⁷⁾は、未照射ペレットの沸騰条件下での溶解試験から、

$$\text{Dissolution Rate} = k (\text{表面積}) [C_H(t) + C_U(t)]^2 \dots (2.7)$$

の速度式を報告している。これらの速度式は溶解温度一定の条件下のものであり、また、(2.7)式は単位表面積当たりの速度式である。

一方、溶解速度の温度依存性については、一般にアレニウスプロットによって求められる活性化エネルギーで示されている。松本ら⁸⁾の研究によると、Hodgson らの溶解モデルを用いて得た速度定数(k)の温度依存性は、

$$k = k_0 \cdot \exp(-E/RT) \dots (2.8)$$

と表現できるとし、未照射の天然ウランで12.3 kcal/mol、18%PuO₂-UO₂の混合酸化物で7.94 kcal/molの活性化エネルギー(E)を報告している。ウラン溶解に関する活性化エネルギーは数多く報告されており、J. L. Swansonらは、7.8M-HNO₃系で71℃から112℃におけるアレニウスプロットの直線部（沸点近傍の高い温度部を除く）より11.5 kcal/molを、辻野ら⁹⁾はU₃O₈の硝酸に対する溶解試験結果より4M-HNO₃で13.9 kcal/mol、2Mで16.9、1Mで19.2 kcal/mol、Taylorらは

15. 2 kcal/molの値を報告している。

この活性化エネルギーで示される溶解速度の温度依存性は反応速度を導くうえで重要な項目となるが、実際の照射済燃料、特に高速炉燃料のように高燃焼度、高Pu富化度を対象に求められた例は少ないと判断される（我々は入手していない）。

以上を示した二酸化ウランの溶解速度に対する硝酸濃度および活性化エネルギーの報告値を、表1にまとめた。

一方、燃料表面積が溶解速度に比例することは前述のとおりであるが、溶解過程における反応表面積遷移については高速炉照射済燃料片（SUS被覆管中に燃料が詰まっている状態）を対象としたデータがない。これに対して、 UO_2 ペレットを対象とした溶解過程における表面積遷移についてTaylorや権田らから報告されている。この場合、初期条件が明確（表面積が既知）な UO_2 ペレットを表面積変化が無視できる程度の時間、ある条件下で溶解し、その単位時間における重量変化から算出される溶解量と表面積の関係を求めている。このような手法は未照射 UO_2 ペレットの場合比較的取り入れ易いが、高速炉照射済燃料などの場合はかなりの困難さを伴う。また、せん断に伴って発生する粉末も実際の溶解に加わるため、その量と粒径分布を知ることも重要である。この粉末発生率は、せん断方式やせん断機械の状況および燃料の状況（燃焼度、Pu富化度、燃料ピン直径等）によっても異なる可能性があり、実際には経験的なデータを採用せざる得ないと判断される。

以上のように、これまで各機関における燃料溶解に関する研究の中で溶解速度を求めている手法をまとめてみると、

(1) 溶解環境条件

溶解液の硝酸濃度、亜硝酸濃度、他のイオン濃度（ウラン等の重金属濃度）との関係

(2) 温度条件

主にアレニウスプロットにより溶解速度の温度依存性を調べている

(3) 溶解表面積

- ・初期表面積および溶解過程における表面積遷移との関係
- ・粉末を対象とした表面積遷移

が主である。これに対して、高速炉照射済混合酸化物燃料の場合、

(4) 共存FPとの関係

燃焼度との関係にも結びつく

(5) Pu富化度との関係

溶解対象燃料に、コア部およびブランケット部が存在するため

(6) 照射後の燃料物性変化

燃料密度、クラック、中心空孔等の影響

など、注意しなければならない項目が増える。

このうち、(1)および(2)については比較的实施し易いが、(3)については燃料ピン中の照射MOXを対象とするため困難を伴う。ましてや、実際の系を考えるとピン集合体(束)のせん断の状態を予測することは不可能に近い。

本報告においては、以上の事項を考慮してCPFでこれまで蓄積してきた溶解試験データおよびその後実施した補足試験結果の解析を行い、溶解環境条件、温度条件および表面積遷移を考慮した高速炉照射済燃料を対象とした溶解速度式を導出するとともに、 UO_2 ペレットの溶解挙動との比較評価を併せて実施した。

3. 試 験

3.1 対象燃料仕様

C P Fにおける溶解試験でこれまでに使用した高速炉照射済燃料の種類およびその仕様¹⁰⁻²²⁾を表2に示す。また、照射済燃料中には多量の核分裂生成物が含まれているが、その一例²²⁾を表3に、燃料ピン中のUおよびPuの同位体重量²²⁾を表4に示す。これらの数値は、いずれもOrigen2-81による計算値である。

各燃料の製造履歴とその照射履歴の概略²³⁾を以下に記す。

(1) 「常陽」MK-I燃料(1~5ラン)

- Pu富化度18%，ペレット密度93%T.D.で製造され、MOX燃料コア部と軸方向ブランケット燃料部から構成されている。
- MK-I増殖炉心において初臨界からMK-I最終サイクルの75MWまでの6サイクルを炉心中央部で照射され、最高燃焼度は40,100MWd/t(集合体平均)の照射履歴を有する。燃料中心温度は、最高約1,700℃と推定される。

(2) 「常陽」MK-II燃料(6~8, 10, 14ラン)

- Pu富化度29%，ペレット密度93%T.D.で製造され、MOX燃料部と上下各1個の断熱ペレットおよびステンレス製反射体から構成されている。
- MK-II炉心初装荷燃料として100MWの第3サイクルまで炉心中央部に装荷され、集合体燃焼度は約31,700MWd/t、燃料中心最高温度は約2,190℃である(8, 10ラン用)。
- MK-II炉心出力100MWの出力上昇から定格第1サイクルまでI B Iにおいて照射され、集合体平均燃焼度は約13,800MWd/tの照射履歴を有する。燃料中心最高温度は2,152℃と推定される(6, 7ラン用)。

(3) D F R燃料(9ラン)

- Pu富化度18/20%，ペレット密度85/94%T.D.の各仕様で製造された2本であり、MOX燃料部と上下各1個の断熱ペレットから構成されている。
- 「常陽」用高密度燃料の健全性確認のため、英国ドンレイ炉にて照射試験を行った燃料である。燃料ピンは照射リグに組み込まれて計5サイクルの照射を受け、

平均燃焼度は約 55,000MWd/tである。

(4) Phoenix 燃料 (11, 12, 17ラン用)

- Pu富化度30%, ペレット密度85%T.D.で製造され, MOX燃料コア部と軸方向ブランケット燃料部より構成されている。
- 「もんじゅ」用燃料の確証試験として, 仏国Phoenix炉にてバンドル状に装荷され, 燃料要素最大108,000MWd/tまで照射された燃料である。

(5) 「常陽」MK-II C型特殊燃料²⁴⁾ (13, 15~17ラン用)

- Pu富化度30%, ペレット密度85%T.D.で製造され, MOX燃料部と上下各1個の断熱ペレットおよびステンレス製反射体から構成されている。
- MK-II炉心において 100MW定格出力第3サイクルから第11サイクルまで照射され, 集合体燃焼度は約 54,100MWd/tである。

3.2 試験装置

CPFでは, 受け入れた高速炉照射済燃料をせん断機によりせん断後, 回分式小型溶解槽にて溶解試験を行う。各装置の概略を以下に示す。

(1) せん断機

ラッピングワイヤを除去した状態の照射済燃料ピンを図1に示すせん断機に1ピン単位で供給する。約3cmごとにせん断を行い, せん断片はせん断機下部のバスケットで受ける。せん断片の端末形状はほぼ真円に近い状態である。また, せん断時に発生する燃料粉末はせん断機下部の受けポットにより回収する。

(2) 溶解槽

せん断した燃料片の溶解はいずれも回分式溶解槽にて行うが, 試験目的等により使用する溶解槽が異なる。

溶解槽には溶解液温度をモニターするための熱電対が取り付けられており, セル外部の溶解槽制御盤にてヒーター印加電圧をON/OFF制御することにより, 溶解液温度を任意の温度に調整できる。また, 溶解槽内下部より空気を供給して, 溶解液の攪拌を行う。

① 小型溶解槽（ベンチスケール）

主にピン単位の溶解時に使用する。本溶解槽の概略を、図2に示す。溶解対象燃料片（ピン単位）はバスケットに装荷後、槽内に装着される。

- ・材質：SUS304L
- ・有効容積：10ℓ
- ・加熱方式：電気ヒーターによる槽下部間接加熱方式

② フラスコ型溶解槽（ビーカースケール）

せん断片単位または燃料粉末の溶解時に使用する。本溶解装置の概略を図2に示す。槽本体が透明耐熱ガラスであるため、溶解時の槽内観察が可能である。

- ・材質：透明耐熱ガラス
- ・有効容積：1.0ℓ
- ・加熱方式：塩化スズ皮膜ヒーター*による槽外表面直接加熱方式

(*：透明な樹脂状のヒーターであり、ガラスフラスコ外表面に直接塗布できる)

(3) オフガス分析装置

燃料ピンせん断時および燃料溶解時に発生するオフガスの処理系統と分析系統を図3に示す。溶解槽オフガスはオフガス冷却器にて冷却され、凝縮性成分は凝縮されて溶解槽に回収される。冷却器を通過したオフガスは、酸回収塔、オフガスノックアウトポットを経てオフガス洗浄塔へ導かれ、水洗浄される。水洗浄後のオフガスは約90℃に加熱された銀ゼオライトカラム（オフガス吸着塔）を通過し、せん断オフガスとともにプロセス系末端フィルター（HEPA/AgZ）へ導かれる。溶解槽からのオフガスはオフガス吸着塔を通過後に分岐し、Krモニター等の測定系へ導かれる。

3.3 溶解試験

3.3.1 試験項目

CPFにおける溶解試験では、各試験（ラン）ごとにその目的が異なるが、全体的な試験パラメータとしては以下のように大別できる。

(1) 燃料製造および照射条件

- Pu富化度
- 平均燃焼度

(2) 溶解環境条件

- 溶解液の硝酸濃度
- 溶解温度

(3) 溶解表面積

- 燃料せん断片両端面の溶解表面積遷移
- 燃料粉末の溶解表面積遷移
- 燃料せん断片両端の被覆管開口率調整

3.3.2 試験方法

溶解試験は、いずれもCPFのCA-3セル内に設置された溶解試験装置により実施している。試験の目的により使用する溶解槽は異なるが、試験および評価方法は同様である。

溶解は、燃料せん断片（または燃料粉末）を溶解槽内に装荷して規定濃度の硝酸溶液を所定量供給後、ヒーター加熱温度を試験条件に基づき設定して行う。溶解中は所定時間ごとに溶解液のサンプリングを行い、液中のU、Pu、FP量および酸濃度を測定する。

溶解試験時は燃料溶解に伴い発生するオフガス中の ^{85}Kr 濃度をNaI(Tl)を検出部とするKrモニターにより監視しており、この ^{85}Kr 濃度がバックグラウンドレベルに戻ったことを確認して溶解終了と判断している。

3.4 試験結果

CPFでこれまでに実施した溶解試験条件の一覧を表5および表6に、溶解試験時の溶解時間に対する重金属（ UO_2 - PuO_2 混合酸化物燃料）の溶解量を表7および表8に示す。これらの試験条件および試験結果は、CPFでの溶解試験の一部である。表5および表6中の燃料種類は溶解試験に使用した照射済燃料の略称を記載しており、各燃料の製造履歴等の詳細については3.1項を参照されたい。また、燃料の燃焼度に関しては、

12ランおよび17-1～3ランについては試験対象燃料せん断片自体の燃焼度、他のランについては試験対象燃料ピン全体の平均燃焼度を記載している。

3.4.1 U, PuおよびFPの溶解率

溶解過程における溶解液中のU, PuおよびFPの溶解率は、下式より導出している。

$$\text{溶解率 } R_n (\%) = \frac{C_n \times V_n + \sum (C_s \times V_s)}{W_c} \times 100 \quad \dots (3.1)$$

R_n : n 時間経過時の溶解率 (%)

C_n : n 時間経過時の溶解液中元素濃度 (g/l)

C_s : サンプル中元素濃度 (g/l)

V_n : n 時間経過時の溶解液量 (l)

V_s : サンプル液量 (l)

W_c : Origenコード計算値の元素重量 (g)

溶解時間に対するU, Puの溶解率を図4および表9に、その溶解量を図5に示す。また、溶解時には照射済燃料中に含まれる核分裂生成物もあわせて溶出するが、これらの溶解率を図6および表10に示す。

図4および図5に示すように、溶解の初期から中期にかけてUとPuの溶解は時間に比例してほぼ直線的に進行し、その後は単位時間当たりの溶解率は徐々に小さくなるものの、最終的にはほぼ全量のUとPuが溶出する。また、図4に示すように、溶解時間に対するUとPuの溶解率はほぼ同じであることから、 UO_2 - PuO_2 混合酸化物燃料溶解におけるUとPuの溶解は同時に進行していると考えられる。

照射済燃料中に含まれる代表的な核分裂生成物の溶解率を図6に示すが、これらの溶解率はUやPuとほぼ同じ傾向にあり、核種の違いによる差異も認められない。

なお、溶解液中のUおよびPu濃度の分析は吸光光度法により、核分裂生成物濃度は γ スペクトルメトリーにより実施している。

3.4.2 ^{85}Kr 放出率と燃料溶解率の関係

燃料の溶解に伴ってオフガス中には ^{85}Kr が放出されるが、溶解試験時はこの ^{85}Kr 濃度をKrモニターにより監視している。溶解時の ^{85}Kr 放出率²²⁾を図7に示す。本図の縦軸は ^{85}Kr 放出率および放出量であり、横軸は溶解時間を示す。

^{85}Kr の放出量は溶解初期から中期にかけてがピークとなり、その後は徐々に少なく

なる。また、⁸⁵Kr放出率については、溶解の初期から中期にかけては溶解時間にほぼ比例して直線的に増加し、その後は単位時間当たりの放出率は徐々に小さくなる。この傾向は、3.4.1項で述べたUとPuの溶解率とほぼ同じである。

燃料（U，Pu）の溶解率と⁸⁵Kr放出率との関係を図8に示す。本図は縦軸を燃料の溶解率、横軸を⁸⁵Kr放出率として両者の関係を示したものであり、燃料溶解率と⁸⁵Kr放出率は約10%の誤差内で一致する。したがって、CPFの溶解試験においては、この⁸⁵Kr濃度がバックグラウンドレベルに戻ったことを確認して溶解が終了したと判断している。

3.4.3 溶解液中の硝酸収支

燃料溶解時の溶解液中における硝酸収支については、以下の定義に基づき評価している。

- ① 液中硝酸量 : 溶解液中に未反応分として存在する硝酸量（分析値）
- ② サンプル硝酸量 : サンプルング時に溶解液から抜き出された未反応の硝酸量（分析値）
- ③ 未反応硝酸量 : t時間経過後の溶解液中と累積サンプル中の合計未反応硝酸量（計算値，①+②）
- ④ U溶解消費量 : 燃料中のウランが溶解時に消費する硝酸量（計算値）

$$3UO_2 + 8HNO_3 \rightarrow 3UO_2(NO_3)_2 + 2NO + 4H_2O \quad \dots\dots\dots (3.2)$$
- ⑤ Pu溶解消費量 : 燃料中のPuが溶解時に消費する硝酸量（計算値）

$$PuO_2 + 4HNO_3 \rightarrow Pu(NO_3)_4 + 2H_2O \quad \dots\dots\dots (3.3)$$
- ⑥ 合計硝酸量 : t時間経過後の反応，未反応分の合計硝酸量（計算値，③+④+⑤）

溶解試験時の硝酸収支を図9および表11に示す。CPFの試験においては燃料の溶解に必要な硝酸量に対して過剰の硝酸量を供給しており、UおよびPuの溶解に伴い硝酸が消費されても系に影響を及ぼさないように考慮している。

なお、溶解液中の硝酸濃度は中和滴定法により分析した。

3.4.4 硝酸濃度と溶解量の関係

2項で詳述したように、溶解液中の硝酸濃度は混合酸化物燃料の溶解に影響を及ぼ

す一因子と考えられる。燃料溶解量と溶解液の初期硝酸濃度との関係を、図10に示す。本図は、縦軸を混合酸化物燃料の溶解量、横軸を溶解時間とし、溶解温度が 100℃一定のビーカースケールにおける溶解試験結果をまとめたものである。

図からも明らかなように、溶解温度が一定の条件下では、燃料の溶解は硝酸濃度が高くなるほど速く進行する傾向にある。すなわち、燃料の溶解は溶解液中の硝酸濃度に大きく依存する。この傾向は、溶解温度が 100℃以外の条件下においても、また、ベンチスケールにおける溶解試験においても、同様である。

3.4.5 溶解温度と溶解量の関係

混合酸化物燃料溶解時の溶解液温度もまた、硝酸濃度と同様、燃料の溶解に影響を及ぼすと考えられる要因の一つである。溶解温度と燃料溶解量の関係を、図11（ベンチスケールでの試験結果、4ラン）および図12（ビーカースケールでの試験結果、17-2ラン）に示す。これらの図の縦軸は燃料の溶解量、横軸は溶解時間である。

図11はベンチスケールでの溶解試験結果であり、また、初期硝酸濃度に多少の違い（3.10～3.36M）はあるものの、溶解温度が高くなるにつれて燃料の溶解が速く進行する傾向が見られる。図12に示したビーカースケールにおける溶解試験結果では、硝酸濃度が 8.0Mと図11の試験結果に比較してより高濃度ではあるが、この傾向はより顕著となる。

したがって、溶解温度もまた、いずれの硝酸濃度においても、燃料の溶解に大きく影響を及ぼすことが確認された。

3.4.6 セン断片開口率調整試験（14ラン）

再処理プラントにおける使用済燃料のせん断は、ラッパ管を取り除き燃料束状態で機械的せん断が行われるため、せん断された燃料片はせん断条件等により被覆管の両端開口率が異なることが予想される。せん断燃料片の溶解反応は両端面より進行することから、開口率（被覆管開口面積）は溶解速度に影響する一要因と考えられる。

CPFの一部の試験においては、燃料ピンせん断片両端の開口率を変化させた場合の溶解試験を実施している。開口率の調整は、せん断片を端面形成治具に装着して圧縮し、せん断片両端面の被覆管開口部を任意の開口率に調整する。加工後、開口部の面積を画像処理法により測定する。

本試験においては、せん断片の開口率をそれぞれ 9.0, 15.0, 31.0, 36.0, 51.4 および 100% に調整して各片ごとに溶解を実施した。開口率調整後のせん断片を、写真 1 から写真 5 に示す。なお、開口率は CPF のせん断機によるせん断状態を 100% として評価している。

開口率調整時の燃料せん断片の重量変化を表 12 に示す。開口率調整によりせん断片両端面近辺の燃料ペレットが粉碎し粉末化したが、発生粉末量は調整開口率にほとんど影響されず、ほぼ一定であった。(表中のせん断片重量は、発生粉末をせん断片から除去した後に測定している。) したがって、開口率調整(9.0~51.4%)後の被覆管内の燃料ペレットの状態は、開口率に関係なくほぼ同様であると考えられる。

燃料せん断片両端の開口率変化と燃料溶解量の関係を図 13 および表 13 に示す。試験の制約上、開口率 9.0% および 15.7% の溶解は 6 時間で終了としたが、全体的には開口率が大きくなるほど単位時間当たりの燃料溶解量は多くなる傾向にある。しかしながら、開口率が 31.0% 以上では単位時間当たりの溶解量はあまり変化しないことから、燃料せん断片両端の開口率は約 30% 以上を確保できれば、溶解に与える影響はさほど大きくないものと考えられる。

3.4.7 粉末燃料溶解試験 (17-3 ラン)

溶解試験の一環として、CPF においては照射済燃料の粉末を対象とした試験も実施している。燃料粉末の調整は、まず、せん断した燃料片の被覆管を被覆管カッターにより切断し、燃料ペレットを取り出す。次に、取り出した燃料ペレットを粉碎して得られた燃料粉末を、メッシュサイズの異なる数種類のふるいにより分級する。

各燃料粉末の表面積は、ふるいのメッシュサイズを直径とする真球であるとして、下式より算出している。

- ① 燃料粉末一粒の表面積 (真球と仮定) : S (cm²)

$$S = \pi \times d^2 \dots\dots\dots (3.4)$$

d : 燃料粉末一粒の直径 (cm)

- ② 燃料粉末一粒の体積 : V (cm³)

$$V = \frac{1}{6} \times \pi \times d^3 \dots\dots\dots (3.5)$$

③ 燃料粉末一粒の重量： W_2 (g)

$$W_2 = V \times D \quad \dots\dots\dots (3.6)$$

D : 燃料密度 = 1.1 (g/cm³)

④ 燃料粉末の個数： M (個)

$$M = \frac{W_1}{W_2} \quad \dots\dots\dots (3.7)$$

W_1 : 溶解対象の燃料粉末全重量 (g)

⑤ 溶解対象燃料粉末の反応表面積 (燃料粉末の全表面積)： S_t (cm²)

$$S_t = M \times S \quad \dots\dots\dots (3.8)$$

なお、表6-5中の反応表面積は、17-3-7ランについてはふるいのメッシュサイズが297 μ m~500 μ mであることから燃料粉末粒径を400 μ mとして、17-3-12ランおよび17-3-13ランについてはふるいのメッシュサイズが<297 μ mであることから燃料粉末粒径を295 μ mと便宜上仮定して算出している。

また、各種燃料ピンの直径および反応表面積 (せん断片断面積)，粉末燃料の反応表面積を表14に示す。

粉末燃料を対象とした溶解試験 (17-3ラン) の溶解時間に対する燃料溶解量を図14に、試験条件等を表6-5および表8-5に示す。17-3ランでは硝酸濃度をパラメータとして試験を実施しているが、せん断片を対象とした試験結果 (図10参照) と同様、単位時間当たりの燃料溶解量は初期硝酸濃度が高くなるにつれて多くなる傾向にある。また、せん断片と粉末燃料の単位時間当たりの燃料溶解量を比較した場合、粉末燃料のほうが溶解量は多くなるが、これは反応表面積の違いによるものと考えられる。

3.4.8 燃料燃焼度と溶解量の関係 (17-1ラン)

燃料製造および照射条件のうち、燃料の溶解に関与するであろう要因として燃料の燃焼度がある。このため、燃料の燃焼度をパラメータとして実施した試験 (17-1ラン) の結果を図16、表6および表8に示す。これらの試験は、同一溶解条件 (溶解温度：100℃一定、初期硝酸濃度：8.0M) 下にて実施したものであり、対象燃料は Phenix 燃料である。

図15に燃料溶解量と燃焼度の関係を示す。燃焼度が高いほど、単位時間当たりの燃

料溶解量は若干多くなる傾向にあるものの、高硝酸濃度および高温条件下での溶解ということもあり、これらの試験結果からは両者の明確な関係は見出せない。したがって、燃焼度の高低は、燃料の溶解にはさほど影響を及ぼさないものと考えられる。

4. 考 察

4.1 見かけの溶解速度の算出

UO₂-PuO₂混合酸化物燃料の溶解は、その一例を図16に示すように、溶解の初期から中期にかけて燃料の溶解量は溶解時間に対して一次的に増加し、その後は単位時間当たりの溶解量は徐々に少なくなる。CPFにおける溶解試験のように、燃料せん断片を対象とした溶解では燃料は被覆管内に装荷された状態であるため、燃料と硝酸溶液との溶解反応は燃料せん断片両端の開口部においてのみ進行する。溶解の初期から中期にかけて燃料の溶解が時間に対して一次的に増加するのは、燃料と硝酸溶液との溶解反応が均一に進行する、すなわち、燃料の反応表面積が一定に推移するためと考えられる。したがって、この部分における単位時間当たりの燃料溶解量の違いは、反応表面積以外の要素である溶解温度および硝酸濃度に起因するものと考えられる。

以上のことから、この溶解反応が一次的に進行する部分の単位時間および単位表面積（燃料の反応表面積）当たりの溶解量が、その試験条件下（溶解温度および硝酸濃度）における見かけの溶解速度 r_1 となる。

$$r_1 = \frac{d [W]}{d t} \cdot \frac{1}{A} \dots\dots\dots (4.1)$$

r_1 : 見かけの溶解速度 [g/min.・cm²]

W : 燃料溶解量 [g]

t : 溶解時間 [min.]

A : 反応表面積 [cm²]

各溶解試験における反応表面積Aおよび見かけの溶解速度 r_1 を、表5および表6に示す。なお、小型溶解槽（ベンチスケール）における溶解試験では、せん断された多数の燃料片はバスケット内に装荷されて溶解されるため、表5中の反応表面積はバスケットの全孔面積とした。

4.2 硝酸濃度の溶解速度に与える影響

燃料せん断片を対象とした溶解速度と硝酸濃度との関係を、図17に示す。本図の縦軸はある試験条件下における溶解速度であり、横軸はその試験での初期硝酸濃度である。

溶解温度については、100°Cの試験条件下での結果をまとめた。

燃料種類および平均燃焼度の違いに関係なく、硝酸濃度の上昇に伴って溶解速度も大きくなり、両者はほぼ比例関係にあることが分かる。図17に示した各プロットより得られた直線の勾配は1.7であることから、溶解速度は硝酸濃度の1.7乗に比例することとなる。すなわち、溶解速度に対する硝酸濃度の反応次数は1.7となる。

燃料粉末による溶解速度と硝酸濃度との関係についても併せて調査している。図18に示すように、燃料粉末の溶解においてもせん断片と同様、溶解速度は硝酸濃度の1.7乗に比例している。したがって、硝酸濃度に関する反応次数は、せん断片および粉末とも同様の1.7となる。

また、せん断片と燃料粉末との同硝酸濃度における溶解速度を比較した場合、せん断片の溶解速度が燃料粉末に比較して全体的に約2桁高い値を示している。これは、せん断片の溶解反応はせん断片の両断面にて進行しているのに対して、燃料粉末の場合は各燃料粉末粒子の全表面が溶解反応表面積となる。すなわち、同重量のせん断片内燃料と燃料粉末の反応表面積を比較した場合、燃料粉末の方がはるかに大きくなる。この反応表面積の違いが、同硝酸濃度における溶解速度の違いとして現れているものと考えられる。

溶解速度と硝酸濃度との関係については、他の機関においても調査が行われており、それらの結果を図18に併記した。UO₂ペレット⁷⁾およびUO₂粉末²⁵⁾による硝酸濃度に対する溶解速度の関係は、試験条件等が多少異なるものの、いずれもCPFの試験結果とほぼ同様の傾向を示していることが確認された。また、これらの同硝酸濃度における溶解速度の違いは上記の溶解反応表面積の差異に起因するものと推察される。

4.3 溶解温度の溶解速度に与える影響

これまでのCPFにおける溶解試験結果より算出した溶解速度と溶解温度との関係を図19に示す。本図の縦軸はある試験条件下における溶解速度であり、横軸は $1/T \times 10^3$ である。

本図より、ビーカースケールにおける溶解試験での活性化エネルギーは11 kcal/molとなり、ベンチスケールにおける活性化エネルギーは6 kcal/molとの結果を得た。

上記の結果では溶解方法（溶解槽の種類等）によって活性化エネルギーが異なっているが、この原因について考察を加える。

前述したように、ベンチスケールにおける溶解の場合、燃料せん断片はバスケット内に装荷された後溶解槽に装着される。この時のバスケット内のせん断片の装荷状態は不均一であり、また、一部のせん断片の開口部がバスケットあるいは他のせん断片により閉塞されていることも考えられる。つまり、全せん断片の溶解は不均一に進行すると推察される。このように、ベンチスケールにおける溶解では、不均一な燃料せん断片の装荷状態、一部のせん断片開口部の閉塞および溶解反応緩衝部（バスケット）の存在により、見かけ上温度の影響を直接受けにくい溶解、つまり拡散律速であると考えられる。

一方、ビーカースケールにおける溶解では、燃料せん断片一片単位の溶解であることからベンチスケールのような溶解に対する妨害因子がないため、溶液温度の影響を受け易い状態、つまり反応律速であると考えられる。

すなわち、上記の各溶解方法における溶解過程の違いが、活性化エネルギーの差として現れたものと推察される。

4.4 燃料燃焼度の溶解速度に与える影響

溶解速度に与える燃料燃焼度の影響について検討する。図20に、溶解速度と燃料燃焼度の関係²⁶⁾を示す。本図はベンチスケールおよびビーカースケールにて実施した試験結果をまとめたものであり、溶解温度は100℃一定の条件下で実施している。

硝酸濃度が高濃度の8 Mの場合、燃焼度の違いにほとんど影響されず溶解速度はほぼ一定である。しかしながら、硝酸濃度が低い条件下では燃焼度の増加に伴って溶解速度は小さくなる傾向にあり、硝酸濃度が低くなるにつれてこの傾向はさらに顕著となる。

燃焼度の増加に伴い溶解速度が低下する一因は燃料の物性変化に関係があるとも考えられるが、現時点ではこの燃料燃焼度と溶解速度の関係については解明されておらず、今後の研究課題の一つである。

結果的には、硝酸濃度を8 M程度の高濃度条件とすることにより、燃料の燃焼度は溶解速度にほとんど影響を及ぼさなくなる。

4.5 溶解過程における燃料表面積遷移

単位時間当たりの燃料の溶解量は、溶解時間の経過、すなわち溶解の進行とともに徐々に少なくなる。この傾向はいかなる試験条件においても同様である。CPFにおける溶解試験では、硝酸は必要量に対して過剰に供給されており、また、溶解温度も一定であることから、溶解の進行に伴う溶解量の低下は対象燃料の溶解反応表面積の減少によるものと推測される。

4.5.1 燃料せん断片の溶解表面積遷移

せん断片を対象とした溶解による燃料減少は、図21に示すように推移するものと考えられる。せん断片外周は被覆管に覆われているため、溶解反応、すなわち燃料と硝酸溶液の接触はせん断片の両断面より均一に進行する。溶解の進行に伴い燃料はせん断片両端より徐々に減少し、溶解の終期においてはまず被覆管中央部の燃料中心部が貫通したのち同心円状に溶解が進行し、最終的には全量が溶解する。この燃料減少推移はCPFの溶解試験においても確認されており、せん断片内の燃料減少過程を写真6から写真8に示す。

燃料の減少がせん断片両端より均一に進行する過程、すなわち燃料の反応表面積が初期の表面積とほぼ同一である段階では溶解時間に対する燃料の溶解量は一次的に増加し、溶解がさらに進行して被覆管中央部の燃料中心部が貫通したのちの過程、すなわち反応表面積が初期表面積に比較して減少していく段階では溶解量も徐々に減少するものと考えられる。したがって、初期反応表面積を S_0 、ある時点の反応表面積を S とすれば、表面積比 R_s は次式で表される。

$$R_s = \frac{S}{S_0} \dots\dots\dots (4.2)$$

以上のことから、溶解速度式に燃料の反応表面積遷移を付加することは必要不可欠であるが、照射済燃料の溶解はセル内で実施されており、溶解過程におけるせん断片内燃料の表面積変化を測定することは現実的には不可能である。したがって、溶解過程の燃料反応表面積遷移を以下の方法により導いた。

図22に示すように、反応表面積が同一に遷移すれば、溶解時間に対する燃料溶解率は一次的に増加する。すなわち、単位時間当たりの溶解率を $d\gamma_1$ とすれば、

$$\frac{d\gamma_1}{dt} = \text{const.} = R_1 \dots\dots\dots (4.3)$$

が成立する。しかしながら、実際の溶解においては、溶解の終期にかけて単位時間当たりの溶解率は減少する。この時の単位時間当たりの溶解率を $d\gamma_2$ とすれば、

$$\frac{d\gamma_2}{dt} = R_2 \dots\dots\dots (4.4)$$

となる。したがって、実際の燃料溶解過程の表面積比は次式で示される。

$$R_s = \frac{R_2}{R_1} \dots\dots\dots (4.5)$$

CPFにおけるせん断片を対象とした溶解試験結果を基に、(4.5)式により求めた表面積遷移を図23に示す。本図の縦軸は燃料の反応表面積比 R_s であり、横軸は燃料の溶解率である。本結果をフィッティング法にて処理することにより、溶解率に対するせん断片内燃料の反応表面積遷移の関係式を導出した。

$$R_s = 1.0 - 0.6\chi + 2.7\chi^2 - 3.1\chi^3 \dots\dots\dots (4.6)$$

R_s : せん断片内燃料の反応表面積比

χ : 溶解率 (%)

せん断片燃料溶解時の表面積比は、溶解率が約70%まではほぼ一定に遷移し、その後は徐々に低下する。すなわち、溶解率が70%程度までは燃料の反応表面積はせん断片の断面積とほぼ同等に推移するが、溶解率70%から溶解終了にかけては溶解の進行に伴いせん断片内部の燃料形状が変化するため、反応表面積も徐々に減少するものと推測される。

図23には、Taylorらが報告している未照射 UO_2 ペレットを用いて調べた表面積遷移も併せて示す。ペレットの場合、せん断片とは異なり被覆管がないため、溶解反応は円柱体全表面にて進行する。せん断片の場合の溶解反応はせん断片両開口部にて起こるため、せん断片の全表面積に対する実際の反応表面積の占める割合はわずかである。この溶解対象燃料の全体積に対する反応表面積の違いが、両者の反応表面積遷移の差異になっているものと考えられる。

4.5.2 燃料粉末の溶解表面積遷移

一方、溶解対象燃料が粉末の場合、せん断片の場合と比較して溶解時間に対する溶解量の推移は異なるものの、溶解の進行に伴って単位時間当たりの溶解量が低下する

という傾向は同様である。このことも、燃料粉末の溶解反応表面積が溶解の進行に伴い減少することに起因するものと考えられる。

したがって、溶解過程における粉末燃料の反応表面積遷移を、4.5.1項と同様の手法にて求めた。CPFの試験結果を基に算出した、燃料粉末の表面積遷移を図24に示す。その結果、燃料粉末の溶解率に対する反応表面積遷移の関係式として、下式を導出した。

$$R s' = 1.0 + 0.4\chi - 2.2\chi^2 + 0.9\chi^3 \dots\dots\dots (4.7)$$

$R s'$: 燃料粉末の反応表面積比

χ : 溶解率 (%)

燃料粉末溶解時の表面積比は、溶解率が約20%において多少増加するが、その後は徐々に低下する。燃料粉末の個々の粒子はほぼ球状であると推定されることから、溶解の進行に伴って燃料粉末の反応表面積は相似的に減少する。したがって、燃料粉末の表面積比は、せん断片溶解の場合とは異なり、溶解率の増加に伴い徐々に低下すると考えられる。

4.6 速度定数の算出

4.1項から4.5項における検討結果をまとめると、燃料の溶解速度に大きく影響を及ぼす因子としては、硝酸濃度、溶解温度および燃料反応表面積の3点であると考えられる。硝酸濃度については4.2項にて、溶解温度については4.3項にて、また、燃料反応表面積については4.5項にて説明されており、これらの結果より混合酸化物燃料の溶解反応速度式は下式で表すことができる。

$$r = k \cdot [S] \cdot [HNO_3]^{1.74} \cdot e^{-E/RT} \dots\dots\dots (4.8)$$

$$S = S_o \cdot R s \dots\dots\dots (4.9)$$

r : 溶解速度 mg/min.

k : 速度定数

S : ある溶解率における燃料反応表面積 cm^2

S_o : 初期の燃料反応表面積 cm^2

$R s$: 表面積比 (S/S_o)

E : 活性化エネルギー kcal/mol

R : 気体定数 : 1.987 cal/deg. · mol

T : 溶解温度 (絶対温度) deg.

したがって、(4. 8)式中の未知要素は速度定数 k となる。本式を変形して

$$k = \frac{r}{[S] \cdot [HNO_3]^{1.74} \cdot e^{-E/RT}} \dots\dots\dots (4.10)$$

とし、各要素にはこれまでの CPF での試験結果 (実験値) を代入して、速度定数 k を算出した。なお、溶解速度 r については、試験結果より単位時間当たりの燃料実溶解量 (mg/min) を求めて代入しており、また、速度定数 k については全計算結果の平均値を採用した。

その結果、ビーカースケールにおける溶解での速度定数は 9.62×10^6 , ベンチスケールにおける溶解での速度定数は 2.09×10^3 を得た。なお、これらの速度定数は、溶解の開始から終了までの全過程を考慮したものである。

4.7 溶解反応速度式

これまでの CPF で実施した高速炉使用済燃料を対象とした溶解試験結果を基に、以上を示した解析手法により、 UO_2-PuO_2 混合酸化物燃料の溶解反応速度式 (実験式) を以下のように導出した。

$$r = k \cdot [S] \cdot [H]^{1.74} \cdot e^{-E/RT} \dots\dots\dots (4.11)$$

$$S = S_o \cdot R_s \dots\dots\dots (4.12)$$

$$R_s = 1.0 - 0.6\chi + 2.7\chi^2 - 3.1\chi^3 \dots\dots\dots (4.13)$$

$$R_s' = 1.0 + 0.4\chi - 2.2\chi^2 + 0.9\chi^3 \dots\dots\dots (4.14)$$

r : 溶解反応速度 mg/min.

k : 速度定数

・ビーカースケール : 9.62×10^6 mg/min. / mol / l · cm²

・ベンチスケール : 2.09×10^3 mg/min. / mol / l · cm²

H : 硝酸濃度 mol / l

S : ある溶解率における燃料反応表面積 cm²

S_o : 初期の燃料反応表面積 cm²

R_s : せん断片の反応表面積比

R_s' : 燃料粉末の反応表面積比

E : 活性化エネルギー

• ビーカースケール : 11 kcal/mol

• ベンチスケール : 6 kcal/mol

R : 気体定数 : 1.987 cal/deg. \cdot mol

T : 溶解温度 (絶対温度) deg.

χ : 溶解率 %

4.8 溶解反応速度式による溶解のシミュレーション

動燃では、前処理プロセスシミュレーションコード‘PEACH’ (PEACH:PNC/Element Analyzing Code for Head-end process)³⁾を開発している。PEACHでは、使用済燃料前処理の各工程における主要機器のシミュレーションが可能であり、この機器の中には回分式溶解槽も含まれている。また、シミュレーション対象物質としては H_2O 、 HNO_3 、 U 、 Pu 、 NO 、 NO_2 等、プロセス量としては燃料重量、反応表面積、溶解速度、液量、温度および密度等があり、本コードにより燃料の溶解やオフガスの凝縮についての質量バランス・熱バランスの動特性のシミュレーションが可能である。

しかしながら、開発時の本コード対象燃料は UO_2 ペレットおよび UO_2 粉末であり、硝酸濃度の影響や活性化エネルギーについても UO_2 燃料に対する値が採用されていたため、混合酸化物燃料溶解のシミュレーションには適さなかった。このため、混合酸化物燃料溶解のシミュレーションも可能となるように、4.7項で導出したFBR混合酸化物燃料の溶解反応速度式(実験式)を参考に、本コードの改良が行われた。

CPFで実施したある試験の試験条件を本シミュレーション・コードに入力して得られた、溶解時間に対する燃料溶解量と実際の試験結果との比較を図25に示す。計算値と実験値がほぼ一致していることから、今回導出した溶解反応速度式(実験式)の妥当性が実証されたと考える。

5. ま と め

C P Fにおけるホット試験は1982年9月30日に実施した高速炉照射済燃料ピンのせん断作業を皮切りに、これまでの約10年間、ピューレックス法を基本として高速炉燃料再処理に関する各プロセス試験を進めてきた。

今回、これらの試験のうち、燃料の溶解試験に着目して総合的に評価・解析を加え、一応の結論を見出すに至った。なお、解析に当たっては、可能なかぎり客観性を持たせるために、同様の試験結果が紹介されている文献情報に従ってC P Fのホットデータの処理を進め、溶解反応速度の実験式を導出した。この速度式は以下に示すように、硝酸濃度、表面積および温度に関する項で構成される。

$$r = k \cdot [S] \cdot [H]^{1.74} \cdot e^{-E/RT}$$

$$S = S_0 \cdot R_s$$

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

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

r : 溶解反応速度 mg/min.

k : 速度定数

・ ビーカースケール : 9.62×10^6 mg/min. / mol/l · cm²

・ ベンチスケール : 2.09×10^3 mg/min. / mol/l · cm²

H : 硝酸濃度 mol/l

S : ある溶解率における燃料反応表面積 cm²

S₀ : 初期の燃料反応表面積 cm²

R_s : せん断片の反応表面積比

R_s' : 燃料粉末の反応表面積比

E : 活性化エネルギー

・ ビーカースケール : 11 kcal/mol

・ ベンチスケール : 6 kcal/mol

R : 気体定数 : 1.987 cal/deg. · mol

T : 溶解温度 (絶対温度) deg.

χ : 溶解率 %

本報告書で述べてきた重要ポイントおよび上記溶解速度式について、以下に示す。

(1) 硝酸濃度の影響

高速炉照射済燃料の場合も、未照射ウラン酸化物燃料と同じ傾向で溶解される。溶解速度に与える影響は一連のパラメータの中で硝酸濃度が最も大きく、高速炉燃料の溶解速度は硝酸濃度の1.7乗に比例して増大し、未照射ウラン酸化物は文献によって幅があるものの、2.0~2.6乗に比例する。

(2) 温度の影響

アレニウスプロットにより求めた見かけの活性化エネルギーは、11kcal/mol（1片のせん断片を対象としたビーカースケール試験）および6kcal/mol（バスケット内に20~40片のせん断片を含むベンチスケール溶解）である。また、報告されている未照射UO₂ペレットの見かけの活性化エネルギーは、条件によっても異なるが、ビーカースケールに近い条件下で求められた値は8kcal/mol~15kcal/molである。本解析により求められた活性化エネルギーはこの範囲内であり、基本的には溶解速度の温度依存性についても未照射UO₂ペレットとほぼ同じ傾向である。

(3) 燃焼度の影響

今回の解析の中で、燃焼度の影響についての評価を行うにはさらに多くの情報が必要であり、溶解反応速度式に反映できるような形での結論は見出せなかった。ただし、硝酸濃度の低い領域における見かけの溶解速度は燃焼度に依存して低下する傾向があるものの、8M程度の硝酸濃度では燃焼度による速度の低下は観察されず、見かけ上ほぼ一定となることが分かった。

(4) 溶解反応表面積の影響

照射済燃料ピンのせん断片の反応表面積を測定することは困難であったため、溶解速度の推移から間接的に求める手法を採った。これは、溶解速度を求める試験において、反応中硝酸濃度が一定と見なせる系で約70%の溶解率までほぼ直線的に全ての溶解が進行し、それ以降観察されている速度の低下は表面積変化のみによるものと仮定して求めたものである。この方法によって、せん断片および燃料粉末の溶解に伴って変化する表面積を3次式で表現し、速度の補正が可能ないようにした。

(5) せん断片の開口率による影響

実際のプラントでは集合体または燃料ピン束単位でせん断が行われる。各ピンのせん断開口部はその時の燃料の状態やせん断機の状況によって“つぶれ”の程度が決まり、一定と考えるには無理がある。

CPFではそれらを予測して“つぶれ”の程度と溶解速度の関係を調べ、開口部の約30%を確保できれば溶解に影響を与えないことを実験的に確認した。

高速炉照射済燃料の溶解特性を全てのパラメータに対して評価するにはまだ不十分ではあるが、この評価・解析をとおして一部（燃焼度効果）を除き、これまでに報告されているような溶解反応速度式を導出することができた。この速度式により、さまざまな条件下における溶解プロセスを算出することができる。また、本解析をとおして、硝酸濃度が6～8 M、温度が100℃程度の条件下では、燃料は燃焼度によらず4～5時間程度で溶解が終了することも確認できた。

6. 参 考 文 献

- (1) 使用済燃料の溶解過程, PNCT 841-79-06
- (2) R. F. Taylor et al. : Dissolution Rates of Uranium Dioxide Sintered Pellets in Nitric Acid Systems, J. Appl. Chem., 13, 32 (Jan. 1963)
- (3) 前処理プロセスシミュレーションコードの開発(2) PNC ZJ6216 89-001(2)
- (4) J. L. Swanson et al. : Laboratory Studies of Shear/Leach Processing of Zircaloy Clad Metallic Uranium Reactor Fuel, PNL-5708
- (5) M. Benedict et al. : Nuclear Chemical Engineering, Second Edition, McGraw-Hill International Book Company
- (6) R. W. Dyck et al. : Dissolution of (Th,U)O₂ in Nitric Acid-Hydrofluoric Acid Solutions, ABCL-5957 (1977)
- (7) A. L. Uriarte et al. : Dissolution of High-Density UO₂, PuO₂ and UO₂-PuO₂ Pellets in Inorganic Acids, ORNL-3695 (1965)
- (8) 溶解シミュレーションに関する研究(II), PNC ZJ 6609 89-001
- (9) T. Tsujino et al. : Dissolution Rates of U₃O₈ Powders in Nitric Acid, Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., 23, 122 (1984)
- (10) 高速炉燃料リサイクル試験(1) -第1回ホット試験-, PNC ZN841-83-80
- (11) 高速炉燃料リサイクル試験(2) -第2回ホット試験-, PNC ZN841-83-88
- (12) 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
- (13) 高速炉燃料リサイクル試験(6) -第4回ホット試験(その1)-, PNC ZN845-84-03
- (14) 高速炉燃料リサイクル試験(9) -第5回ホット試験-, PNC ZN845-85-02
- (15) 高速炉燃料リサイクル試験(10) -第6回ホット試験-, PNC ZN845-85-08
- (16) 高速炉燃料リサイクル試験(11) -第7回ホット試験-, PNC ZN8450-86-01
- (17) 高速炉燃料リサイクル試験(13) -第8回ホット試験-, PNC ZN8440-87-01
- (18) 高速炉燃料リサイクル試験(14) -第9回ホット試験-, PNC ZN8410-87-12
- (19) 高速炉燃料リサイクル試験(15) -第10回ホット試験-, PNC ZN8410 88-004
- (20) 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

- (21) 高速炉燃料リサイクル試験(17) -第12回ホット試験-, PNC ZN8410 90-032
- (22) 高速炉燃料リサイクル試験(18) -第13回ホット試験-, PNC ZN8410 90-030
- (23) 高レベル放射性物質試験施設におけるFBR再処理試験(その1)
-せん断・溶解・清澄試験-, PNC ZN8410 90-035
- (24) 「常陽」MK-II C型特殊燃料集合体(PFC020)の照射後試験(1)
-集合体及び燃料要素の非破壊試験-, PNC I9410 88-008
- (25) 平成3年度再処理技術高度化調査(高度要素技術調査および再処理プロセスシミュレーション調査)成果報告書, 財団法人産業創造研究所, 平成4年3月
- (26) Development status on the FBR Fuel reprocessing technology in PNC
-Record of oral and poster presentation at RECOD'91-, PNC PN8410 91-212

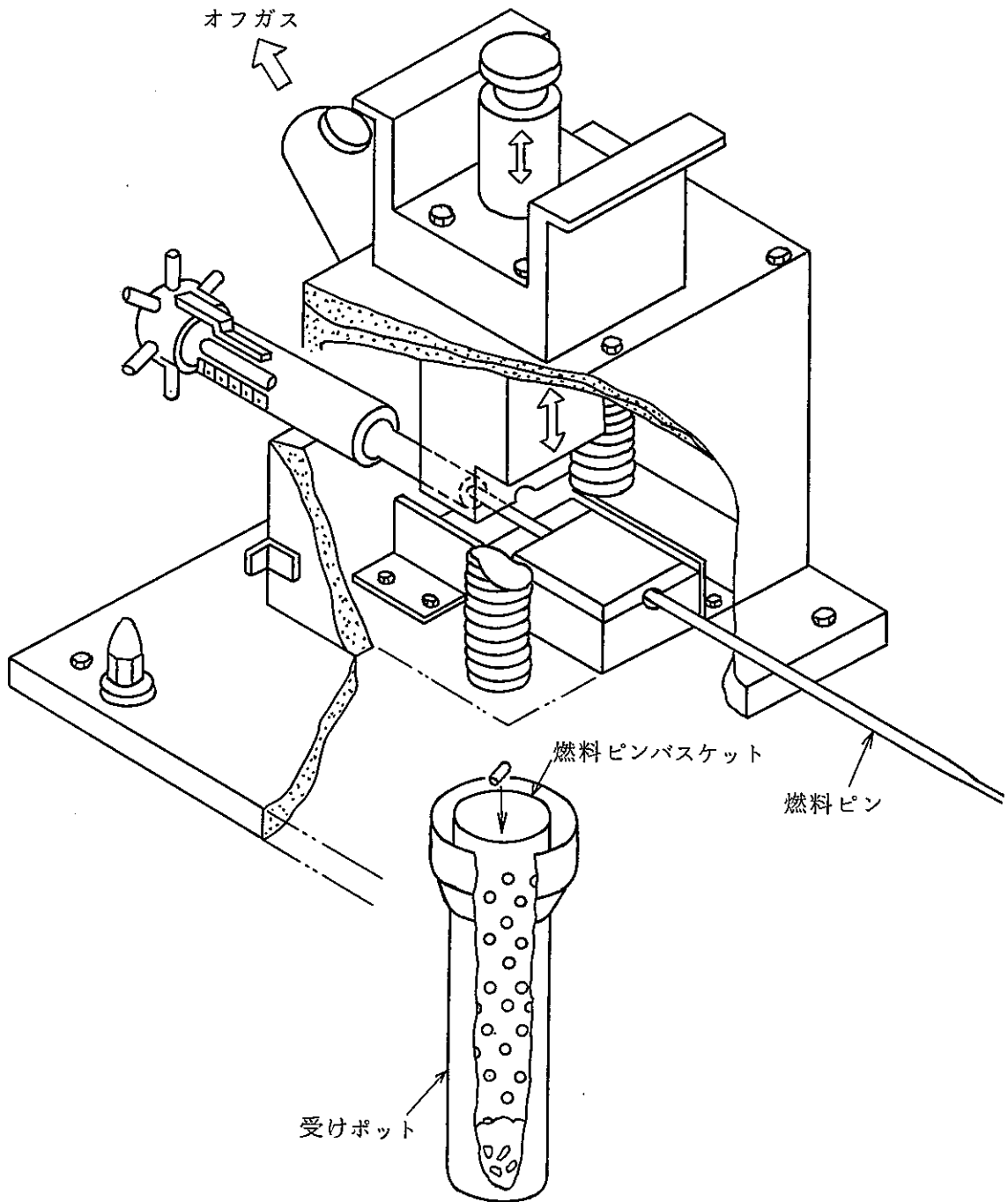
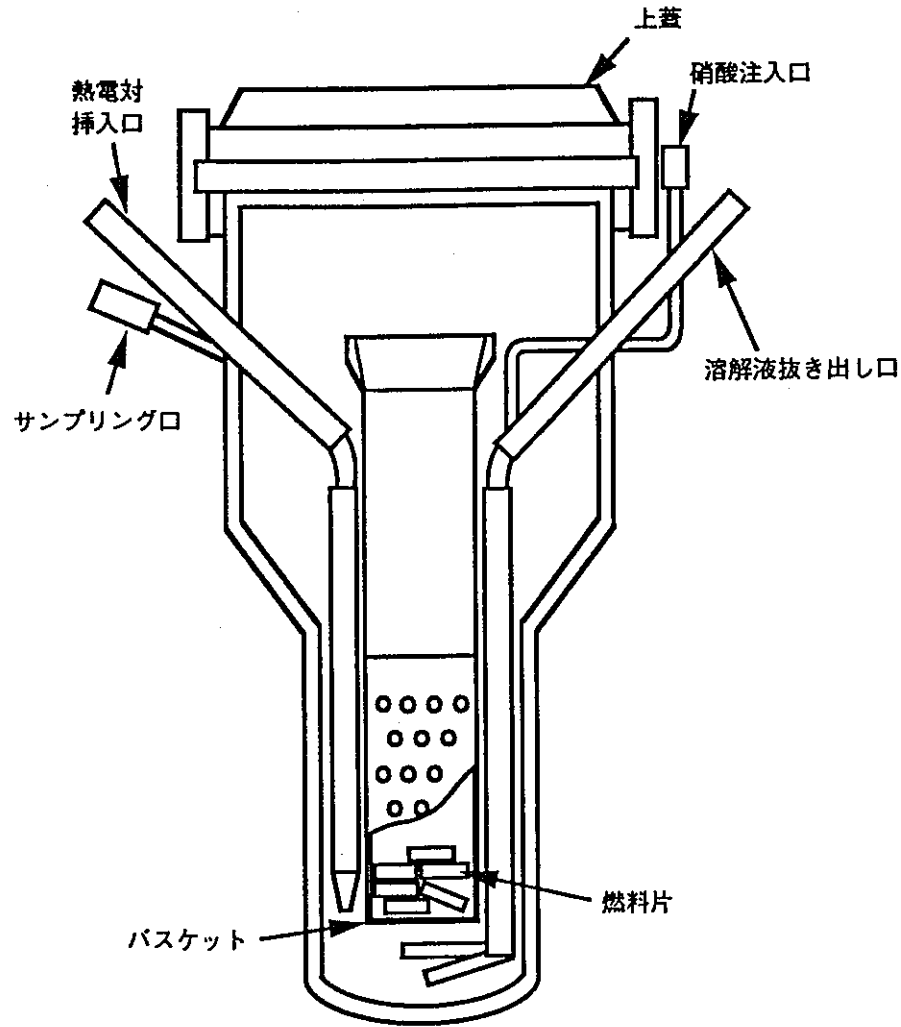
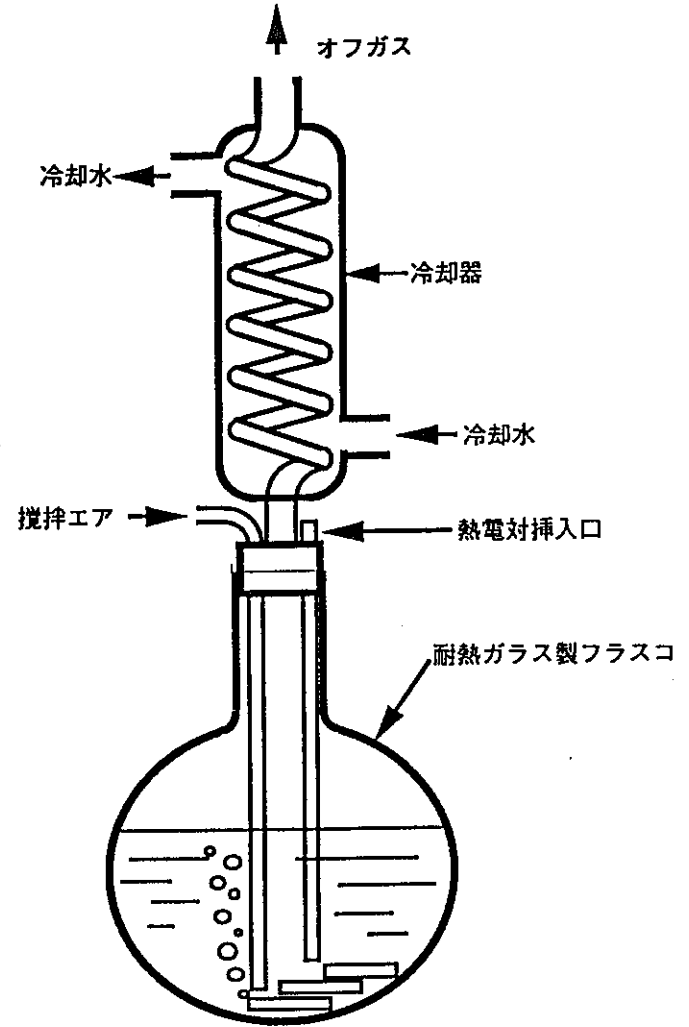


図1 せん断機



小型溶解槽 (ベンチスケール)



フラスコ型溶解槽 (ビーカースケール)

図2 溶解試験装置概略図

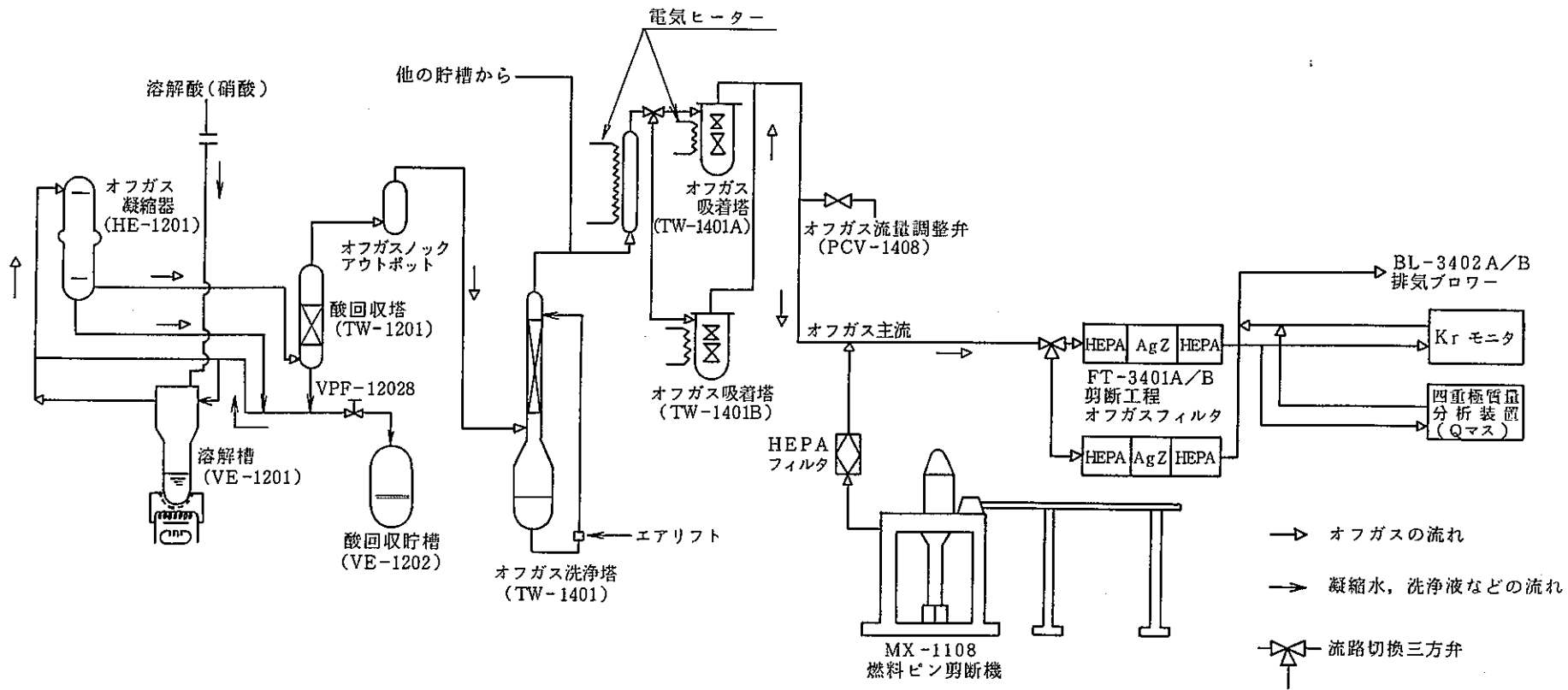
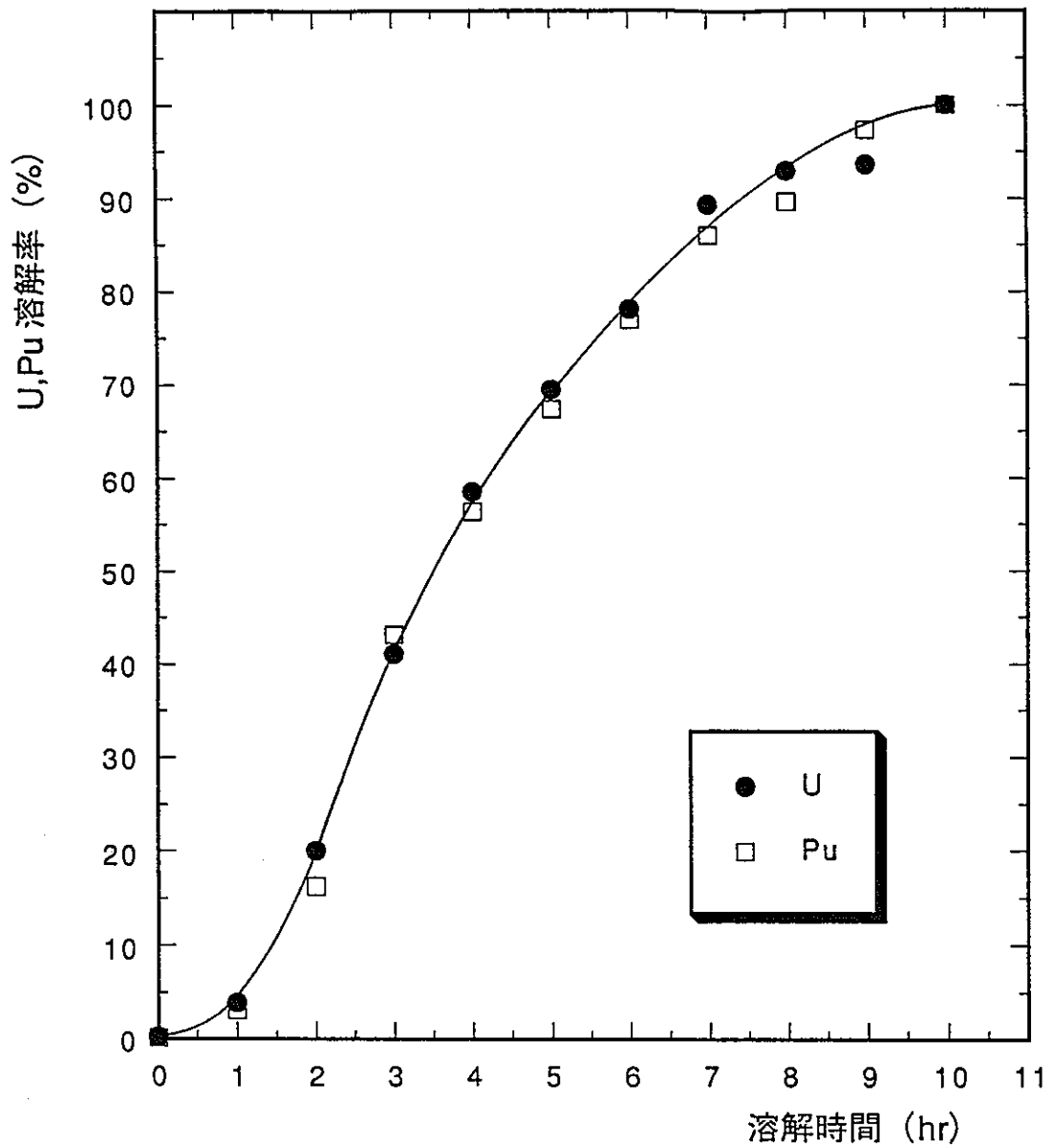
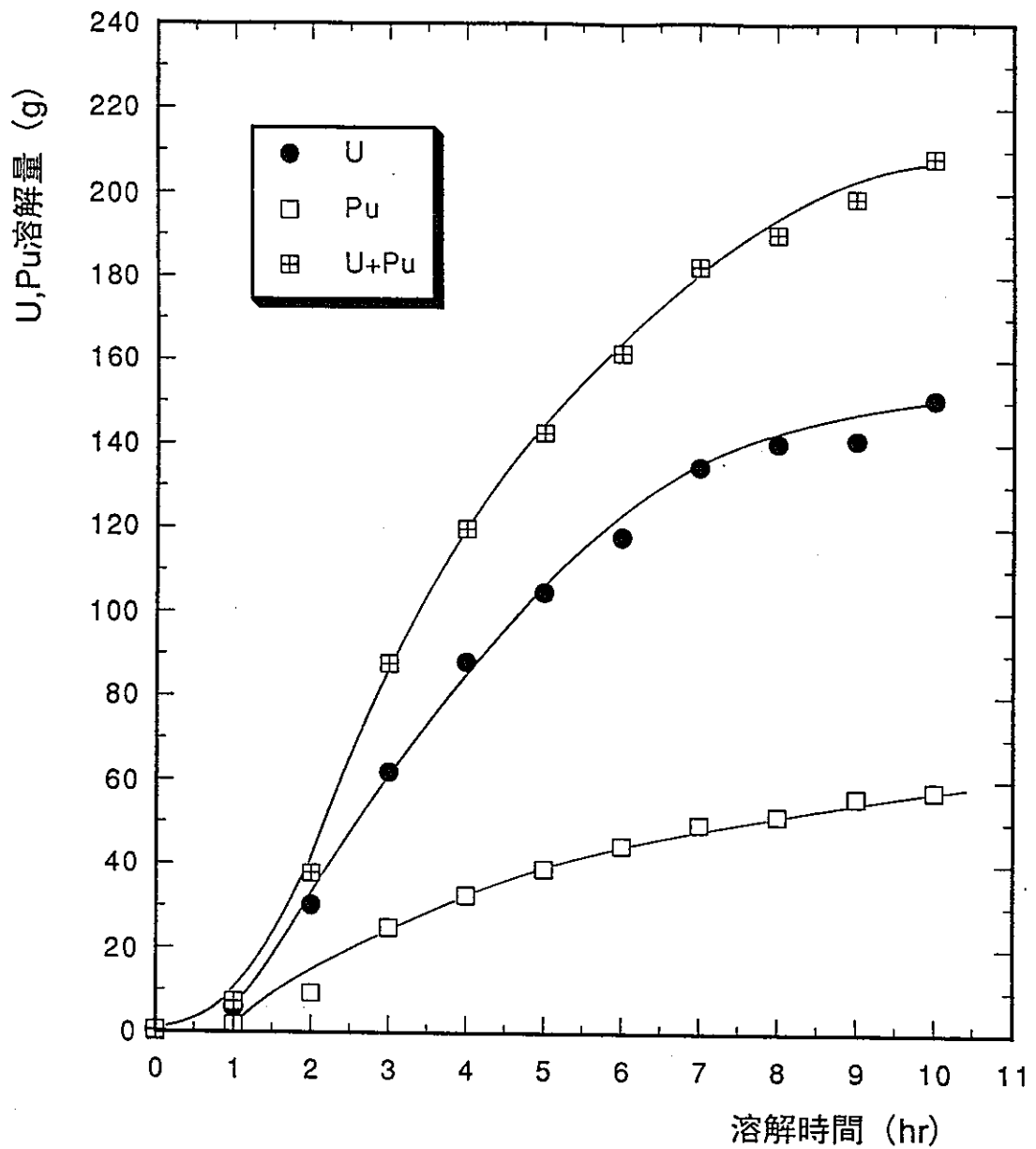


図3 せん断溶解オフガス処理系統図



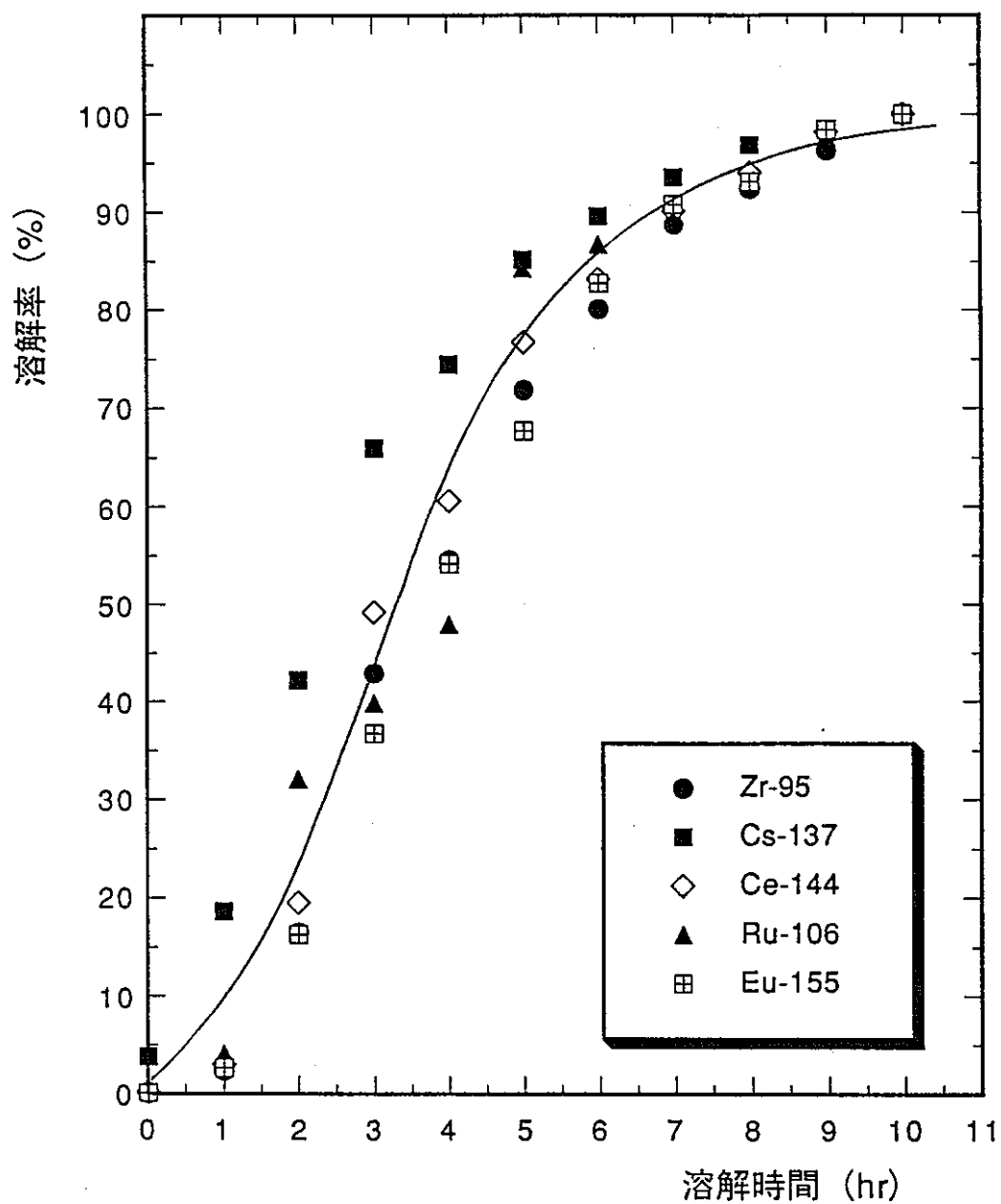
試験No. : 8 ラン
対象燃料 : 「常陽」 MK-II (3ピン)
燃焼度 : 31,700 MWd/t
硝酸濃度 : 3.5M → 2.8M
溶解液量 : 2.4L → 2.0L
溶解温度 : 97°C一定

図4 溶解過程におけるU, Puの溶解率



試験No. : 8 ラン
 対象燃料 : 「常陽」 MK-II (3ピン)
 燃焼度 : 31,700 MWd/t
 硝酸濃度 : 3.5M → 2.8M
 溶解液量 : 2.4L → 2.0L
 溶解温度 : 97°C一定

図5 U, Puの溶解量



試験No. : 8 ラン
 対象燃料 : 「常陽」 MK-II (3ピン)
 燃焼度 : 31,700MWd/t
 硝酸濃度 : 3.5M → 2.8M
 溶解液量 : 2.4L → 2.0L
 溶解温度 : 97°C 一定

図6 核分裂生成物の溶解率

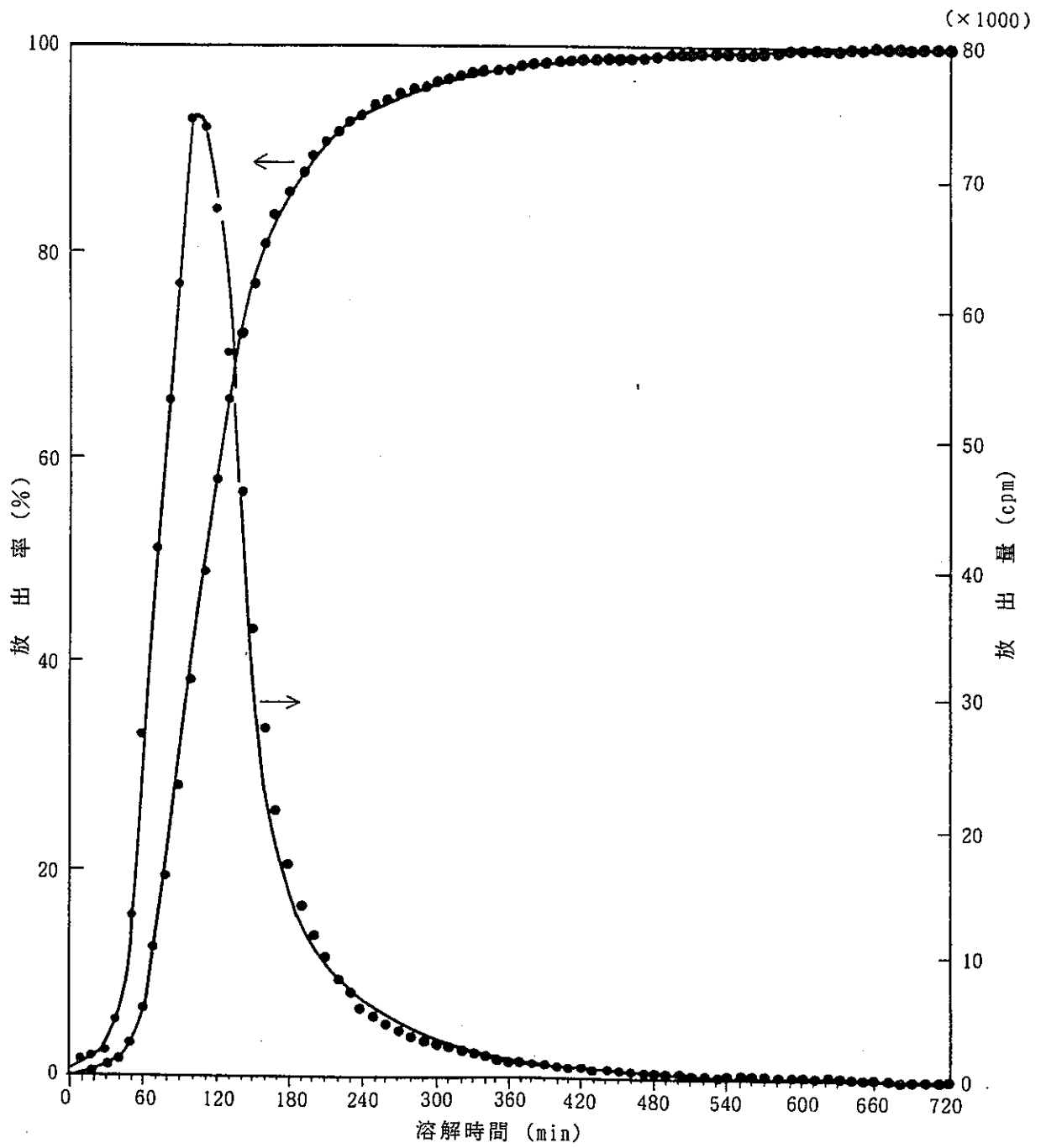
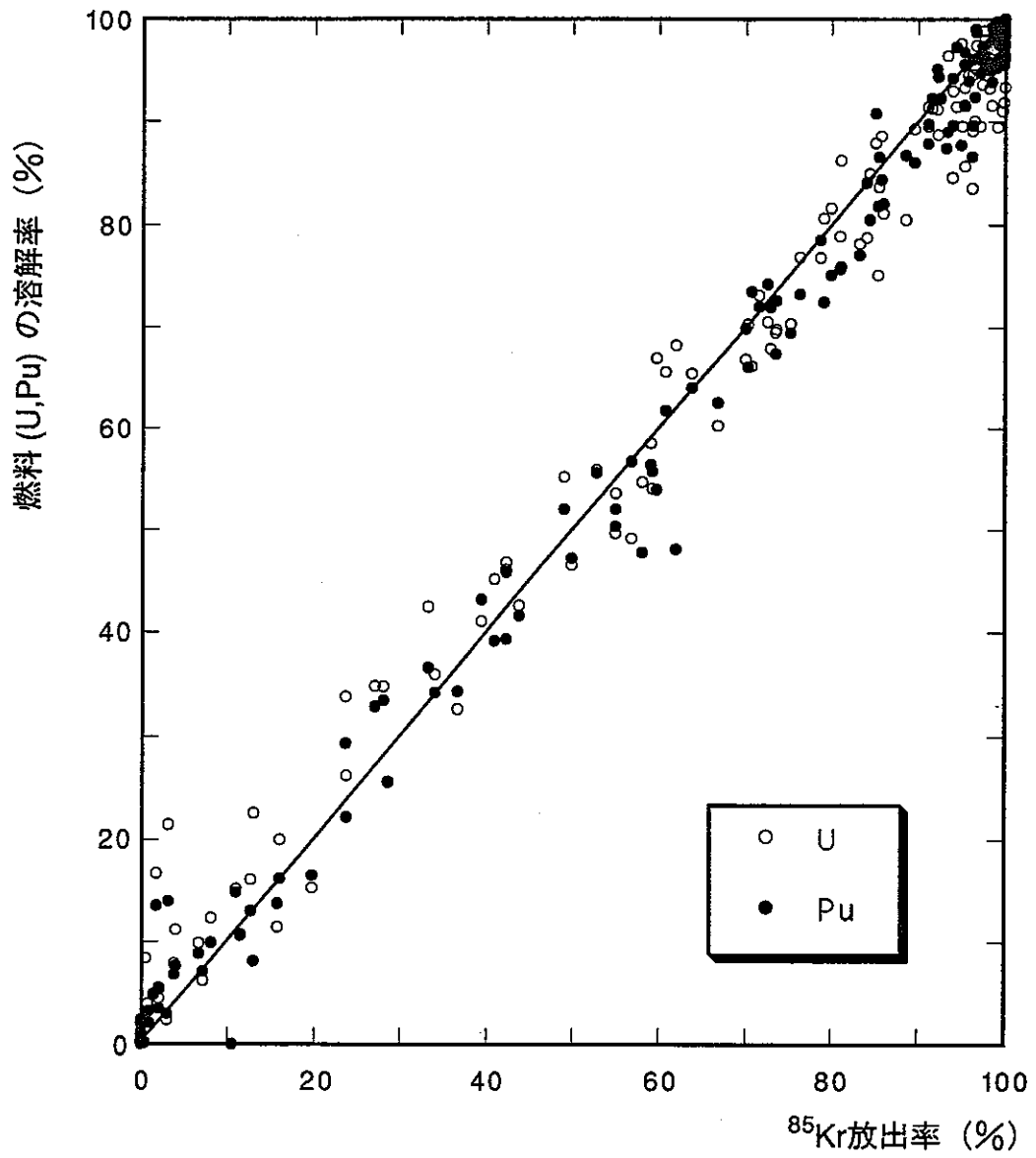
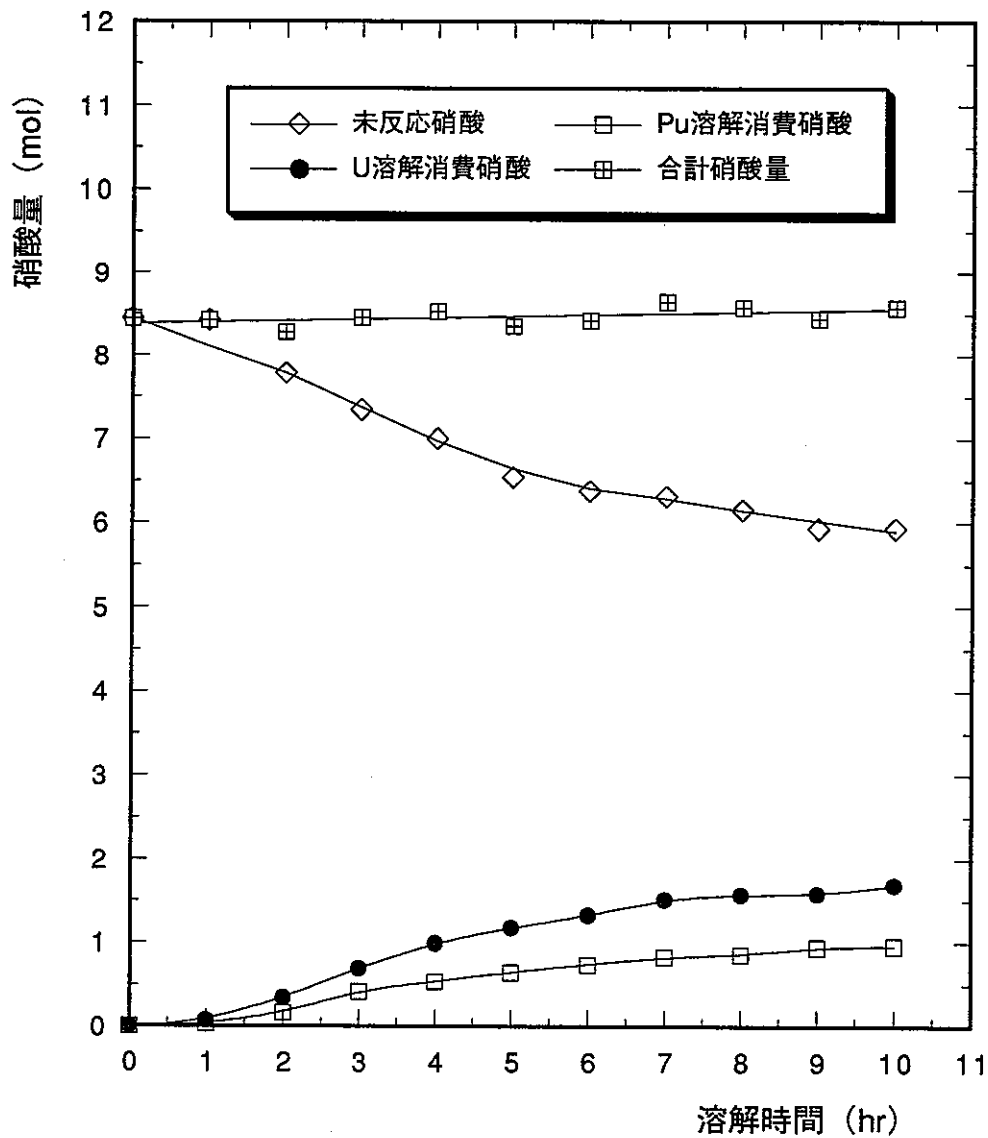


図7 溶解時の ^{85}Kr 放出率



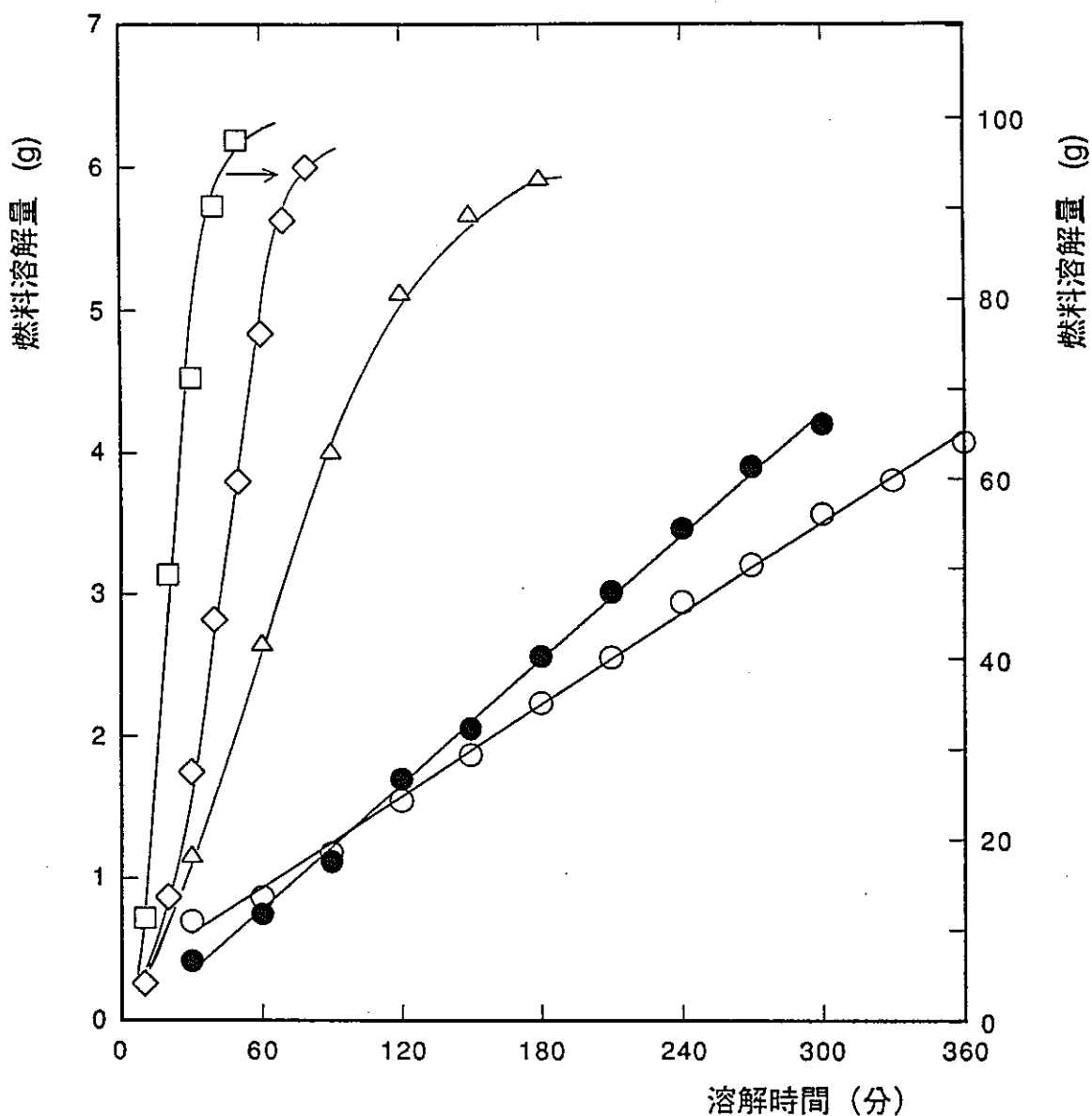
平均燃焼度 : 4,400 ~ 94,000 MWd/t
Pu富化度 : 18 % ~ 30 %

図8 燃料の溶解率と⁸⁵Kr放出率との関係



試験No. : 8 ラン
 対象燃料 : 「常陽」MK-II (3ピン)
 燃焼度 : 31,700Mwd/t
 硝酸濃度 : 3.5M → 2.8M
 溶解液量 : 2.4L → 2.0L
 溶解温度 : 97°C一定

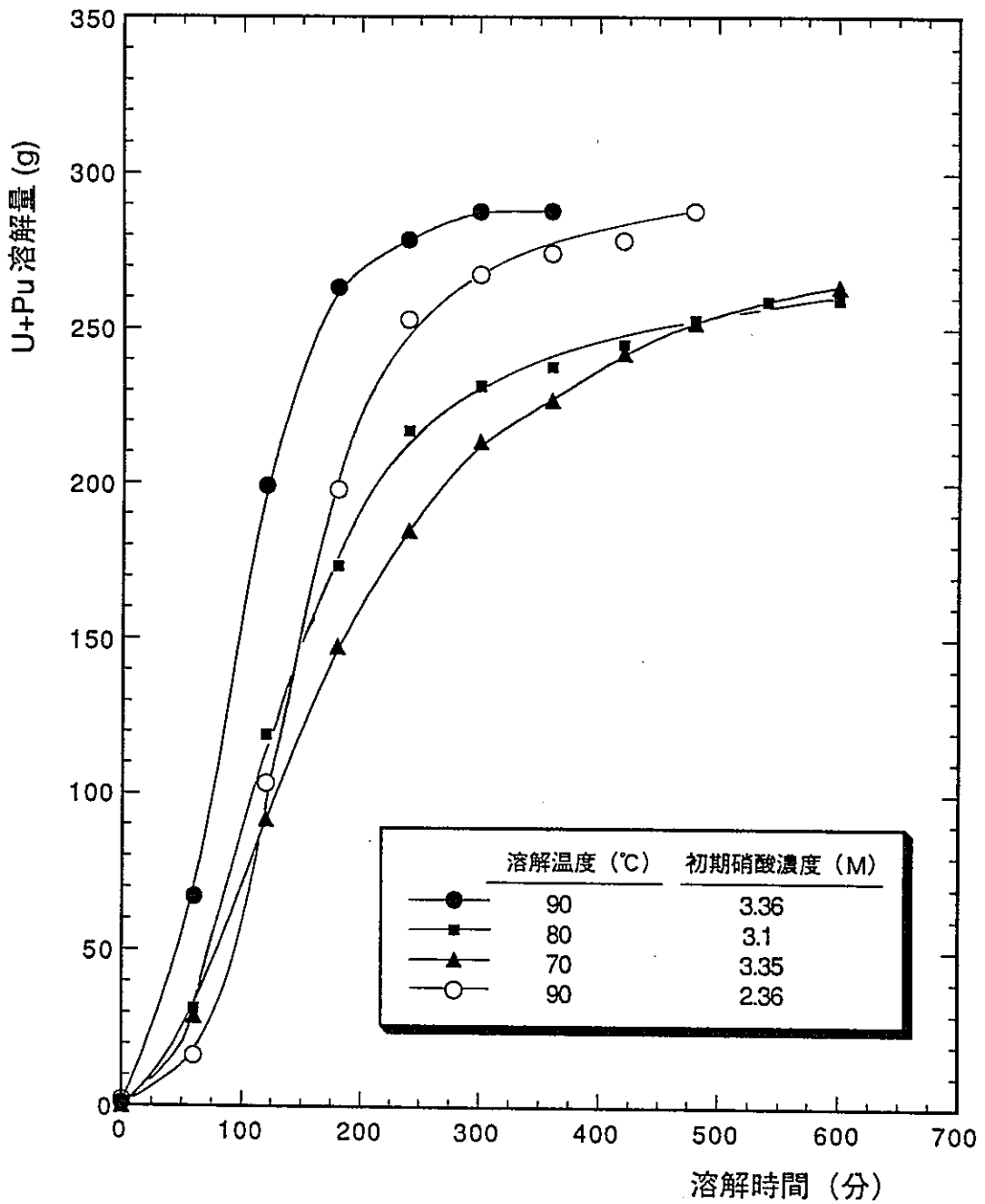
図9 溶解試験時の硝酸収支



	HNO ₃ (M)	Temp.(°C)	MOX	試験No.
○	2.5	100	6	10-5
●	3.5	100	6	10-1
△	5.0	100	6	17-1-P8
◇	8.0	100	6	17-1-P21
□	8.5	100	101.5	16-1

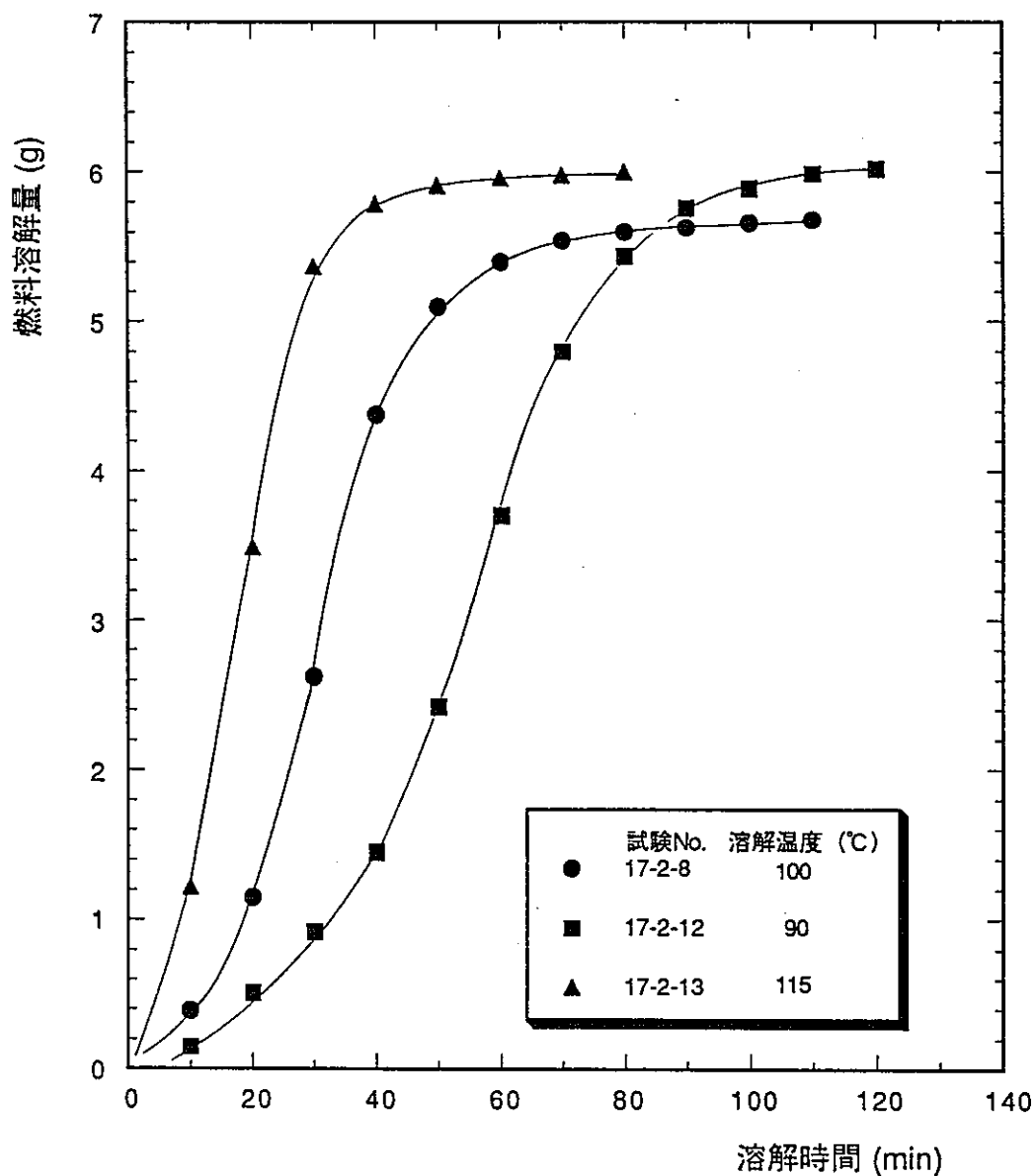
平均燃焼度 : 31000~94000 MWd/t
 Pu 富化度 : 30%

図10 燃料溶解量と硝酸濃度の関係



試験No. : 4 ラン
 対象燃料 : 「常陽」MK-I (1ピン)
 平均燃焼度 : 40,100 MWd/t
 Pu 富化度 : 18 %
 溶解槽種類 : ベンチスケール

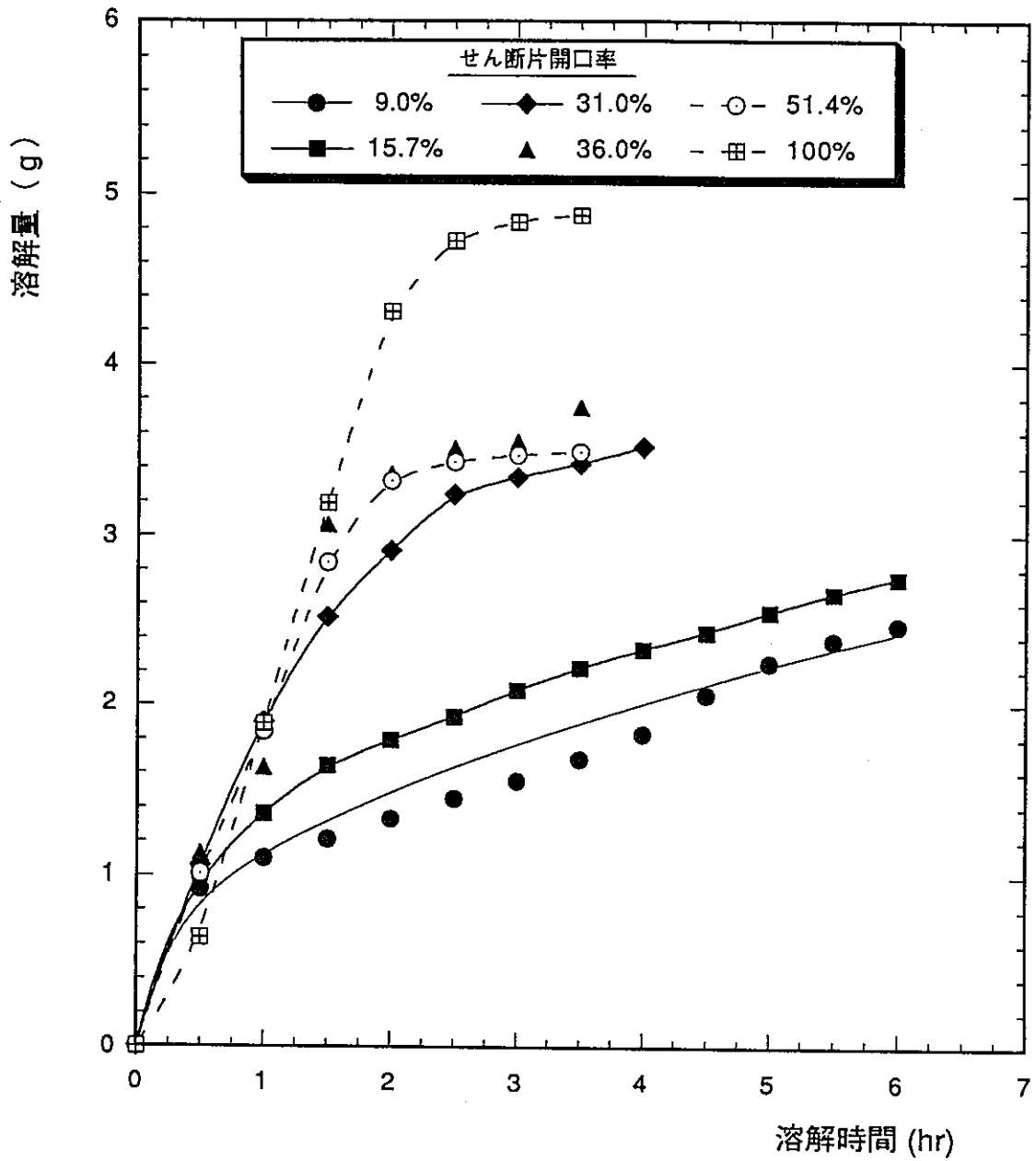
図11 溶解温度と燃料溶解量の関係



試験No.	溶解温度 (°C)
● 17-2-8	100
■ 17-2-12	90
▲ 17-2-13	115

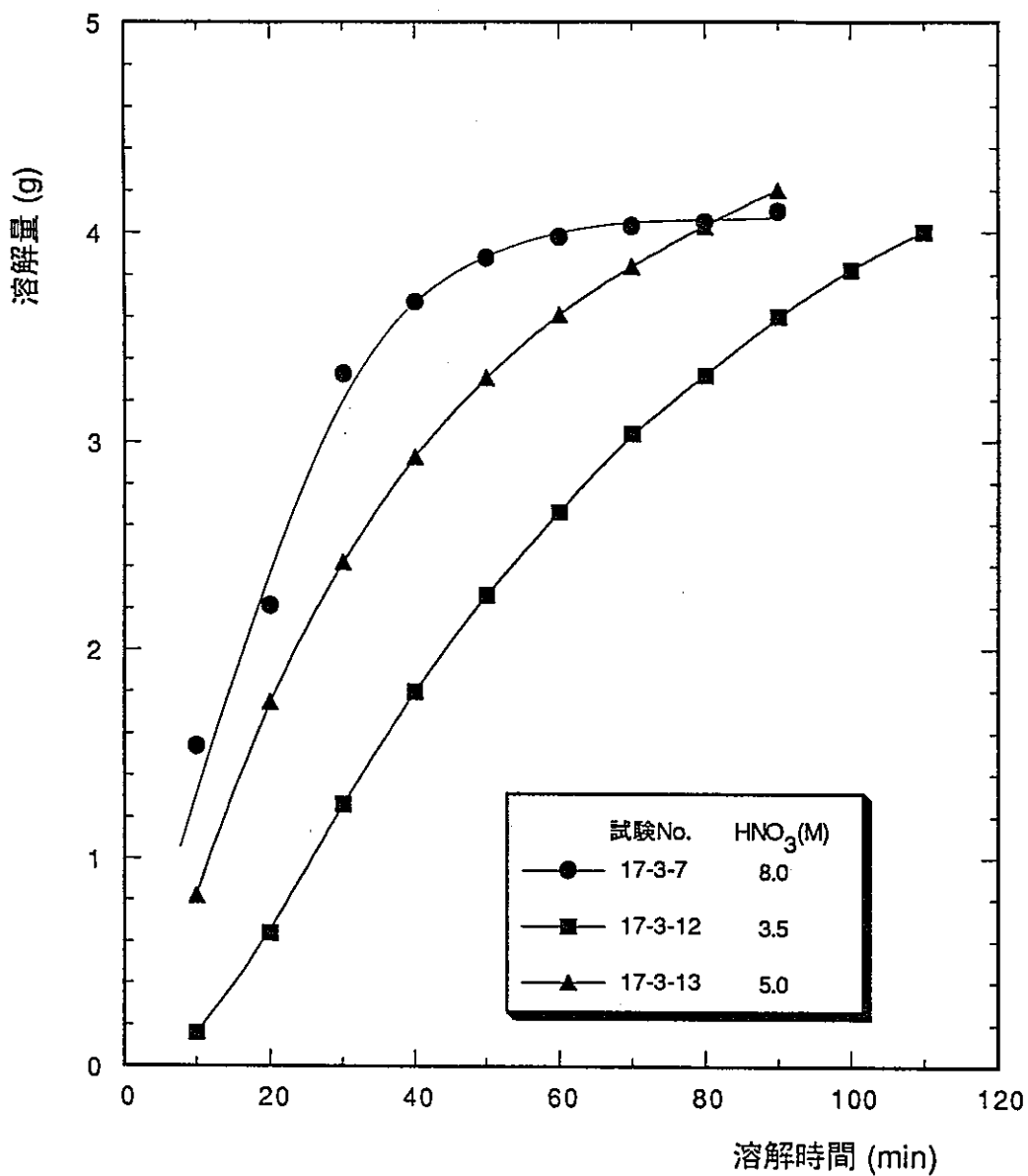
試験 No. : 17-2 ラン
 対象燃料 : 「常陽」MK-IIIC 型 (1 片)
 平均燃焼度 : 54,100 MWd/t
 Pu 富化度 : 30 %
 溶解液量 : 0.5 L
 硝酸濃度 : 8.0M 一定
 溶解槽種類 : ビーカースケール

図12 溶解温度と燃料溶解量の関係



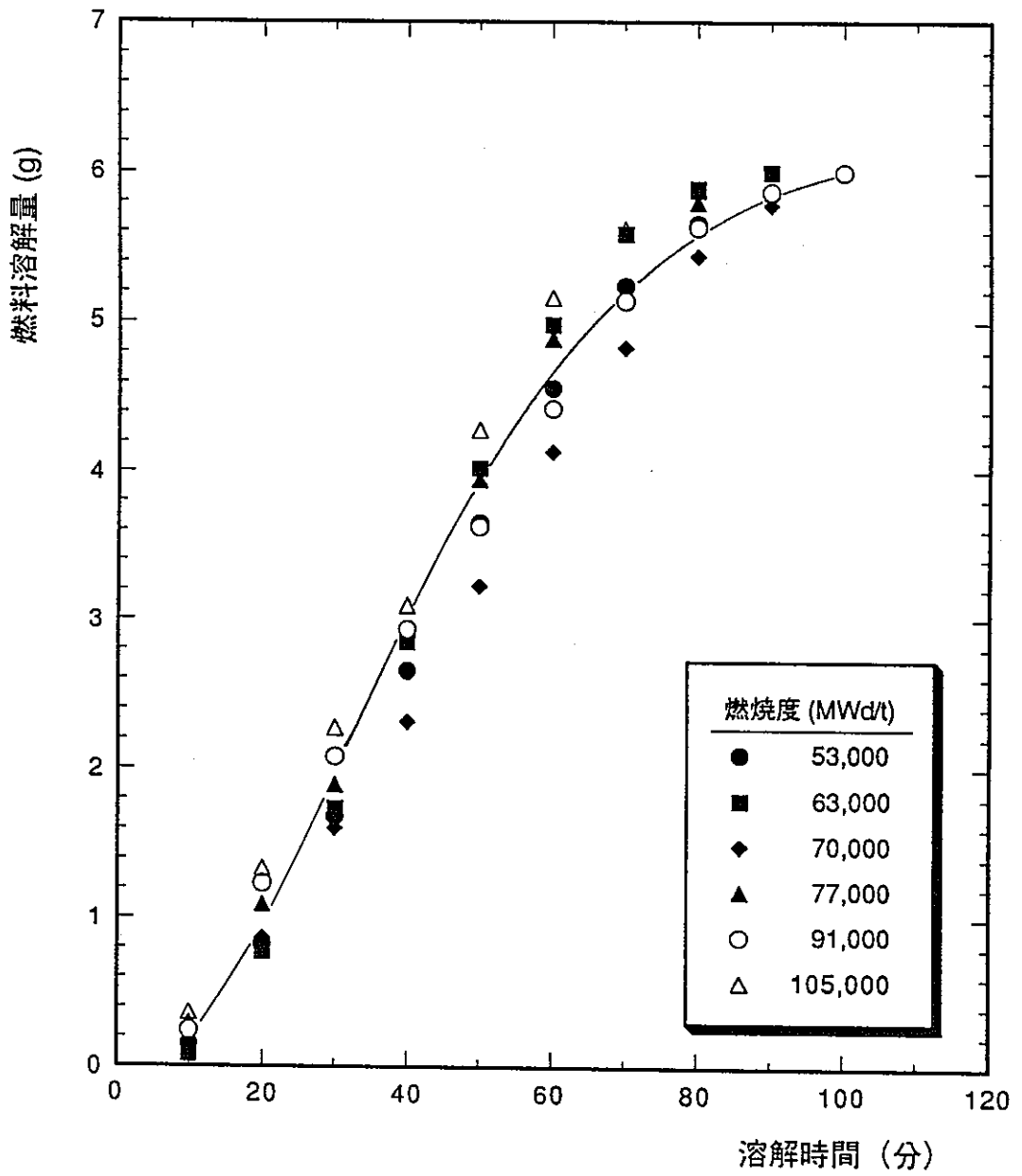
試験No. : 14ラン
 対象燃料 : 「常陽」MK-II (Pu 富化度 : 29%)
 燃焼度 : 54,700MWd/t
 硝酸濃度 : 5.0M
 溶解液量 : 100ml
 溶解温度 : 100°C一定

図13 開口率の溶解量に与える影響



試験No. : 17-3 ラン
 対象燃料 : 「常陽」MK-II C 型 (粉末)
 燃焼度 : 60,000 MWd/t
 溶解液量 : 0.5 L
 溶解温度 : 100℃一定

図14 粉末燃料の溶解特性



試験No. : 17-1 ラン
 硝酸濃度 : 8.0 M
 溶解温度 : 100 °C
 Pu 富化度 : 30 %

図15 燃料燃焼度と溶解量の関係

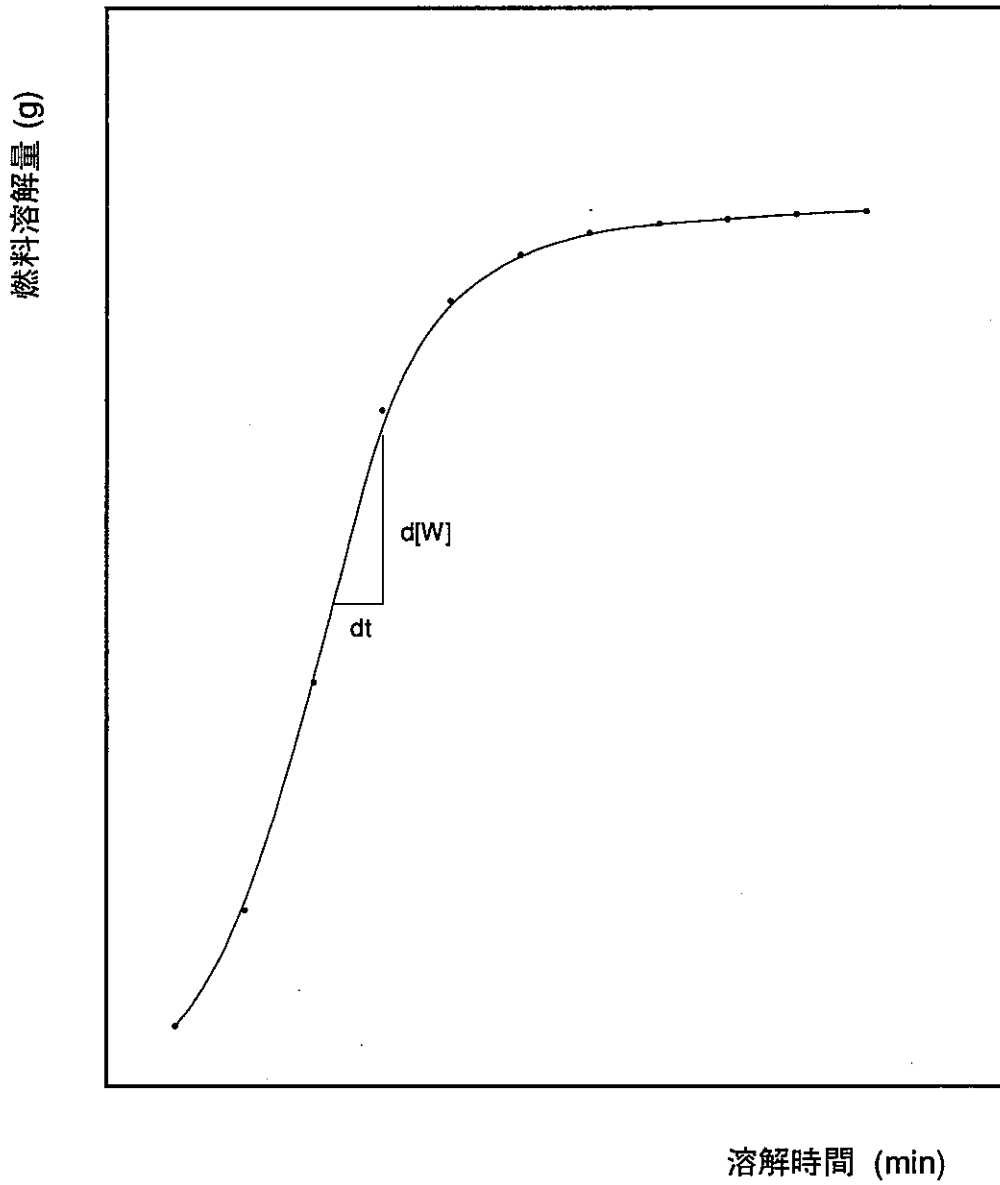


図16 UO_2-PuO_2 混合酸化物燃料の溶解過程

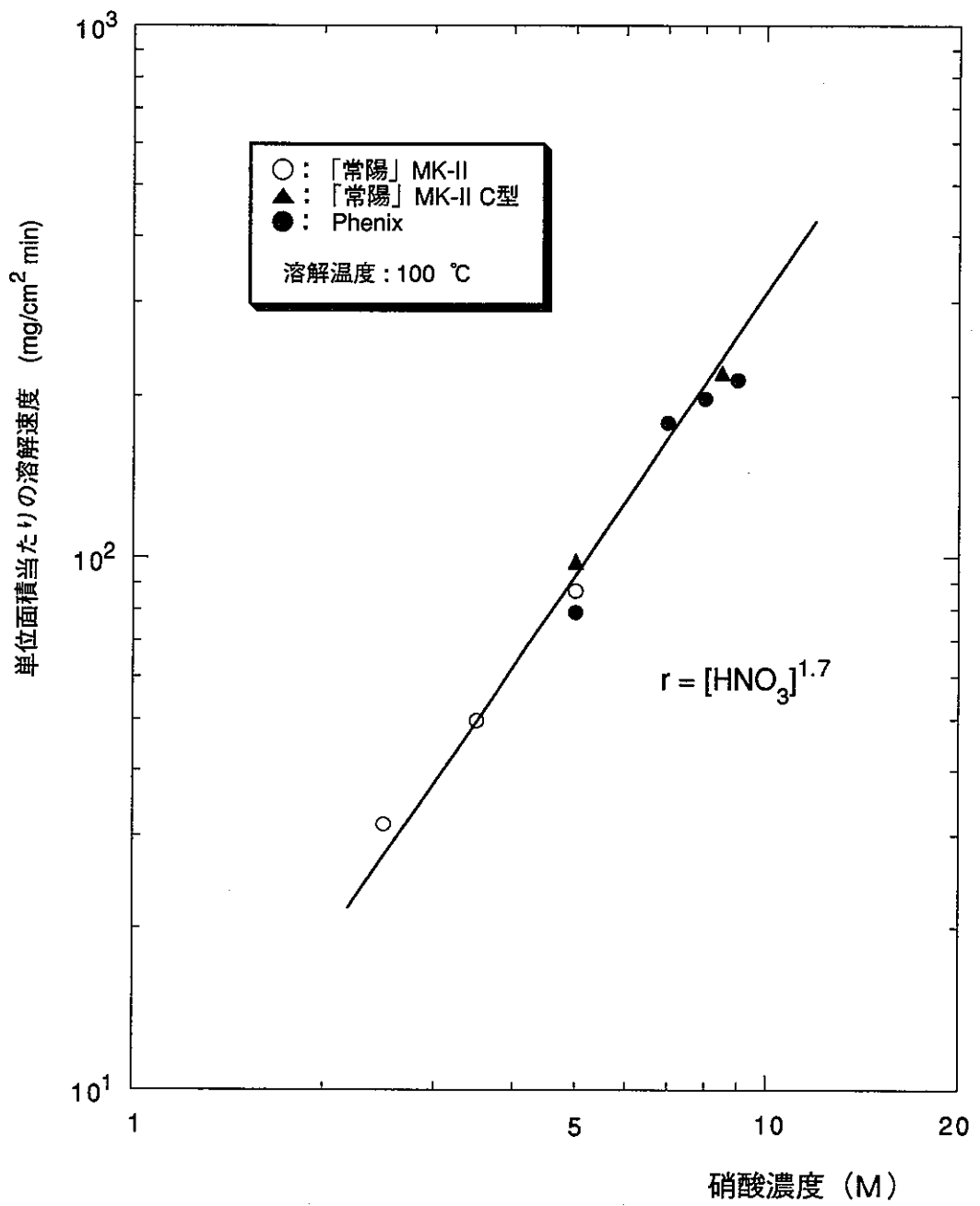
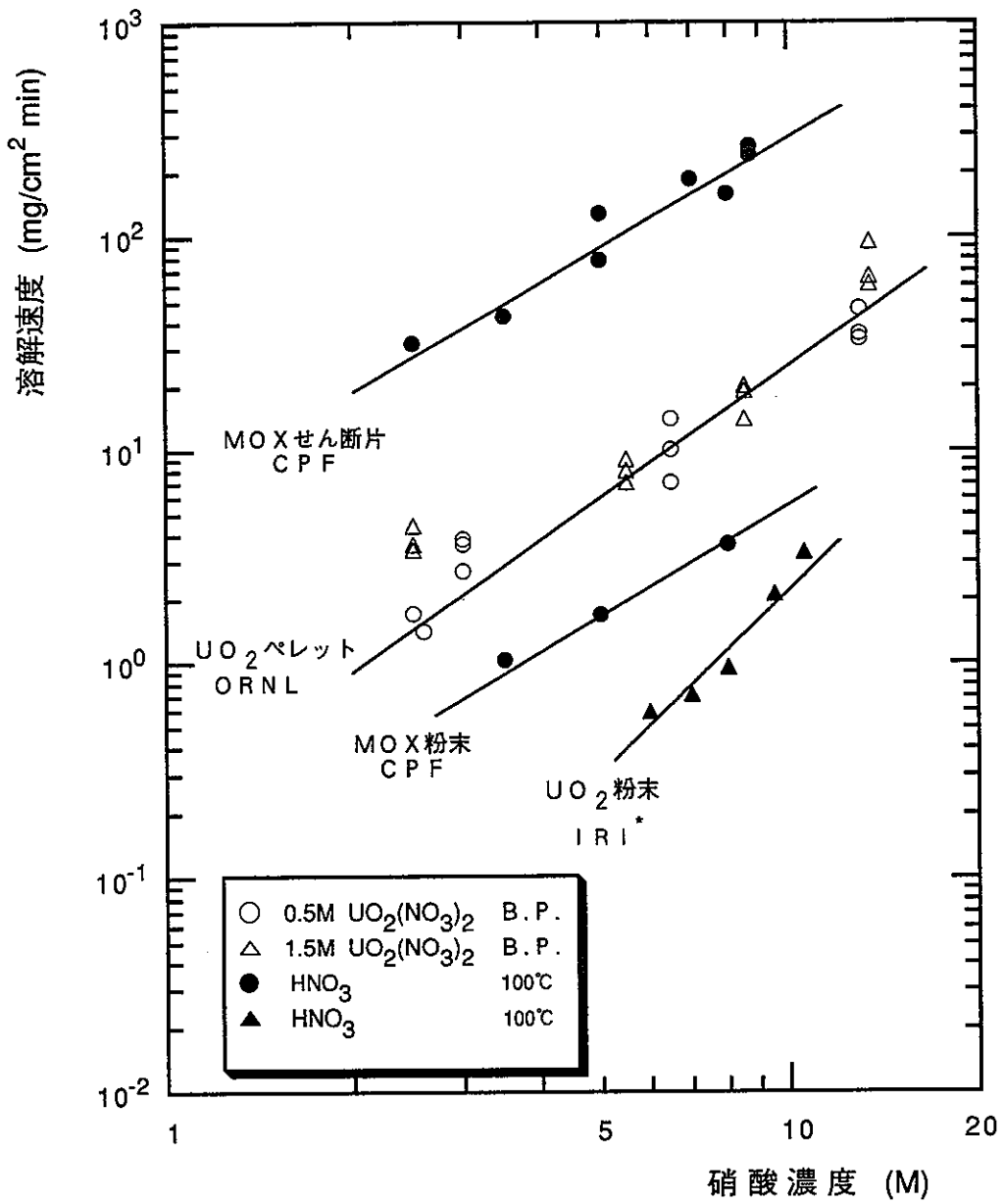


図17 溶解速度に与える硝酸濃度の影響



* : Institute of Research and Innovation, 産業創造研究所

図18 溶解速度の比較

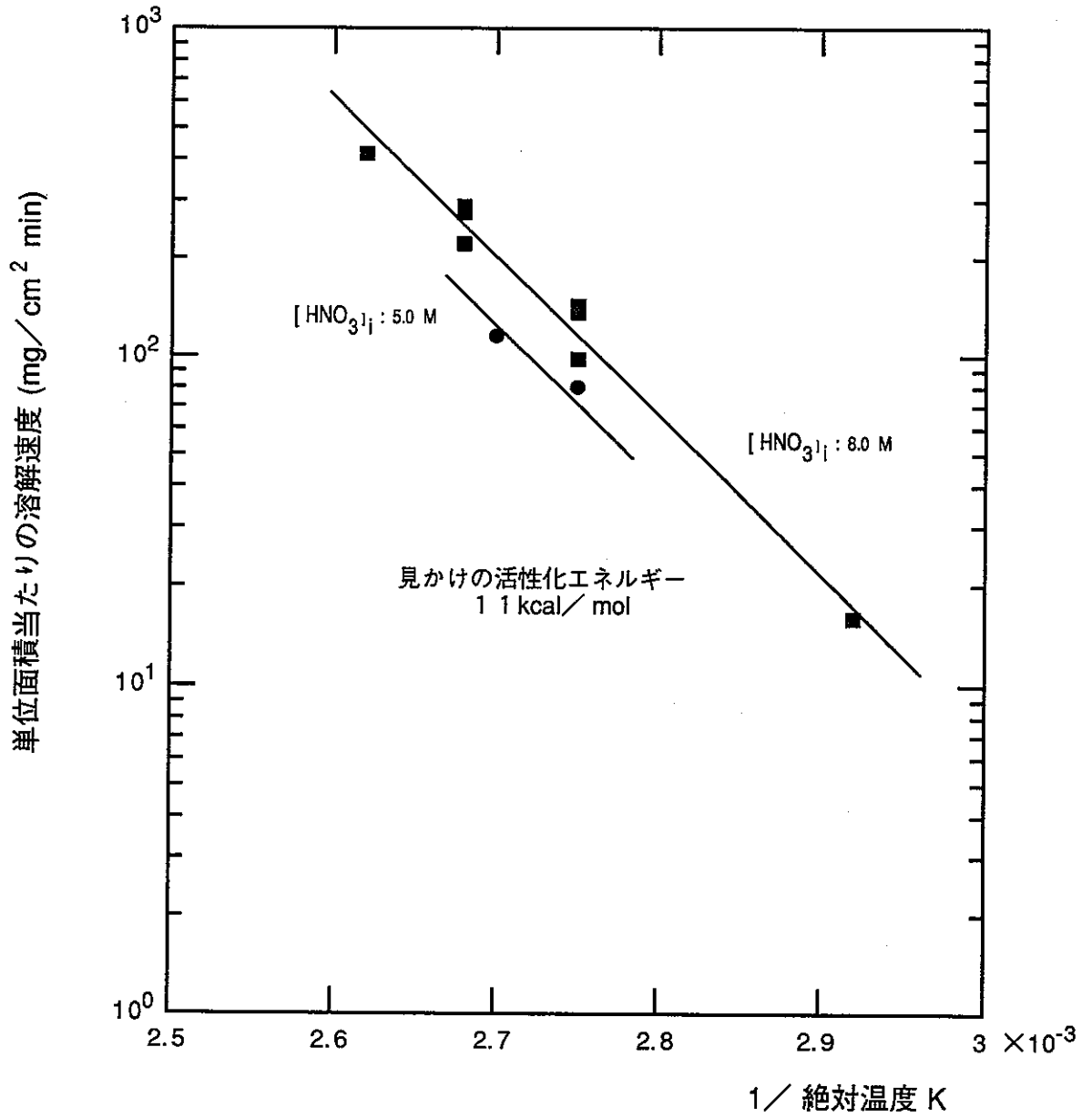


図19 溶解速度に与える溶解温度の影響

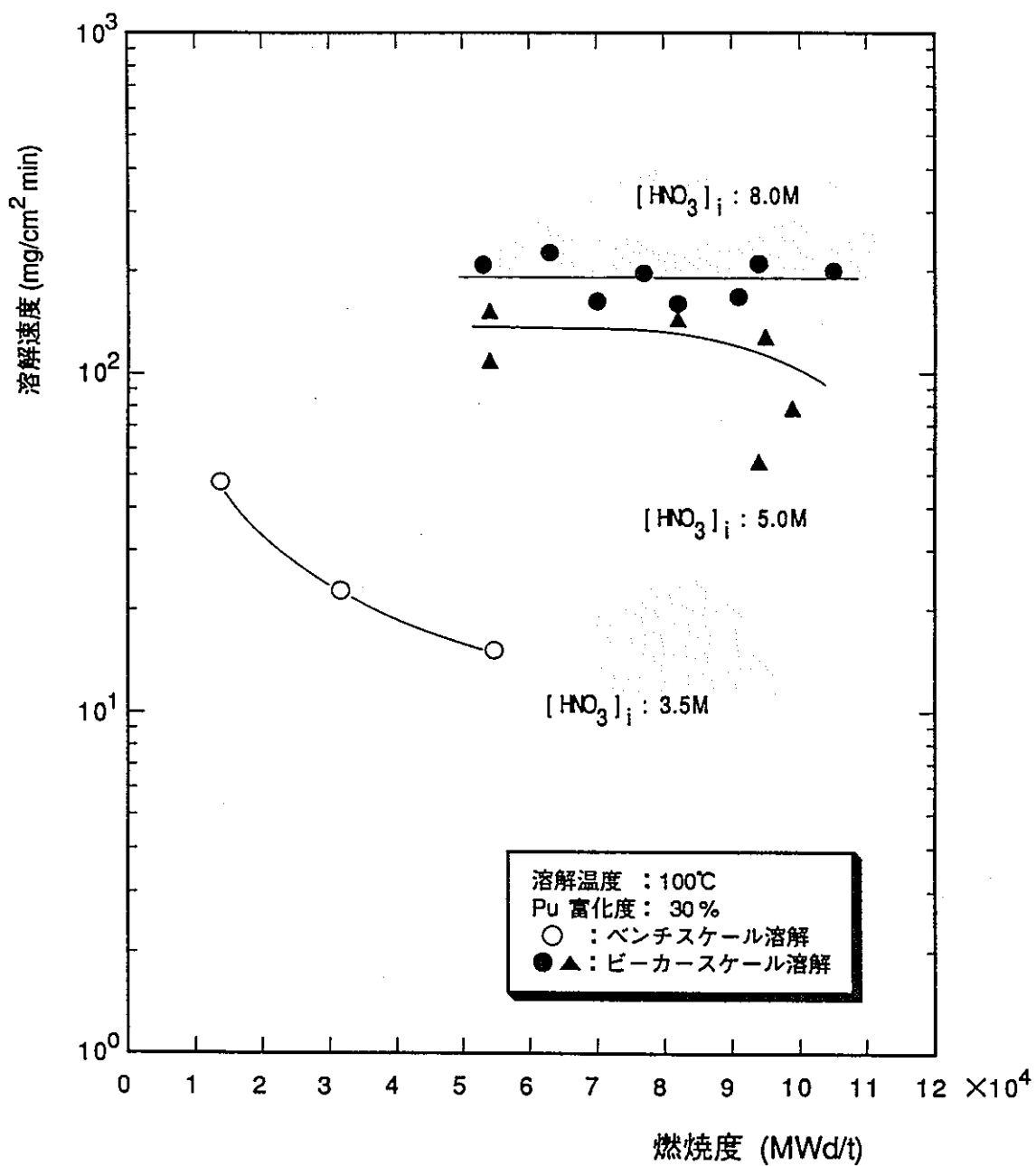


図20 溶解速度に与える燃焼度の影響

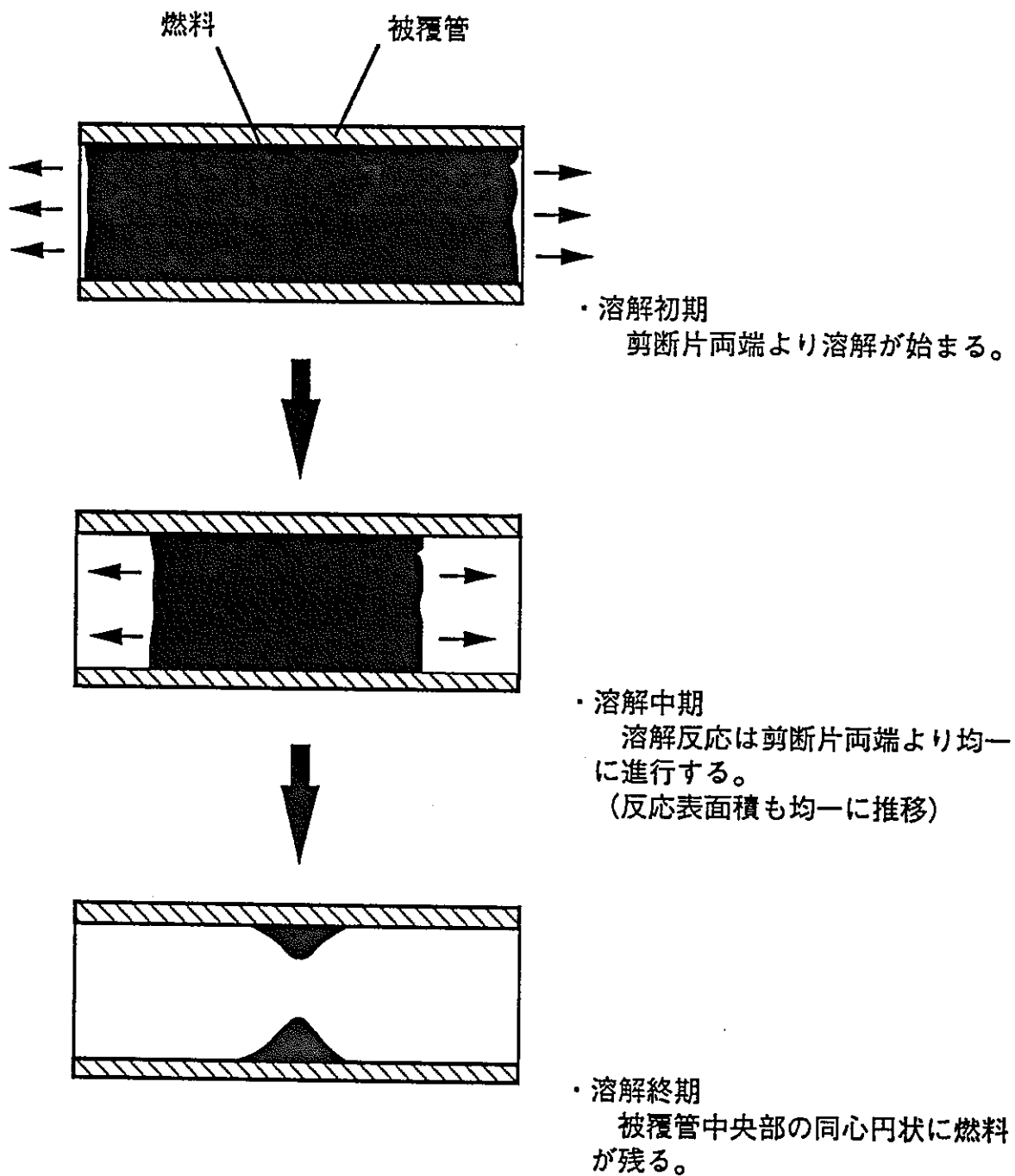


図21 溶解による剪断片の燃料減少推移

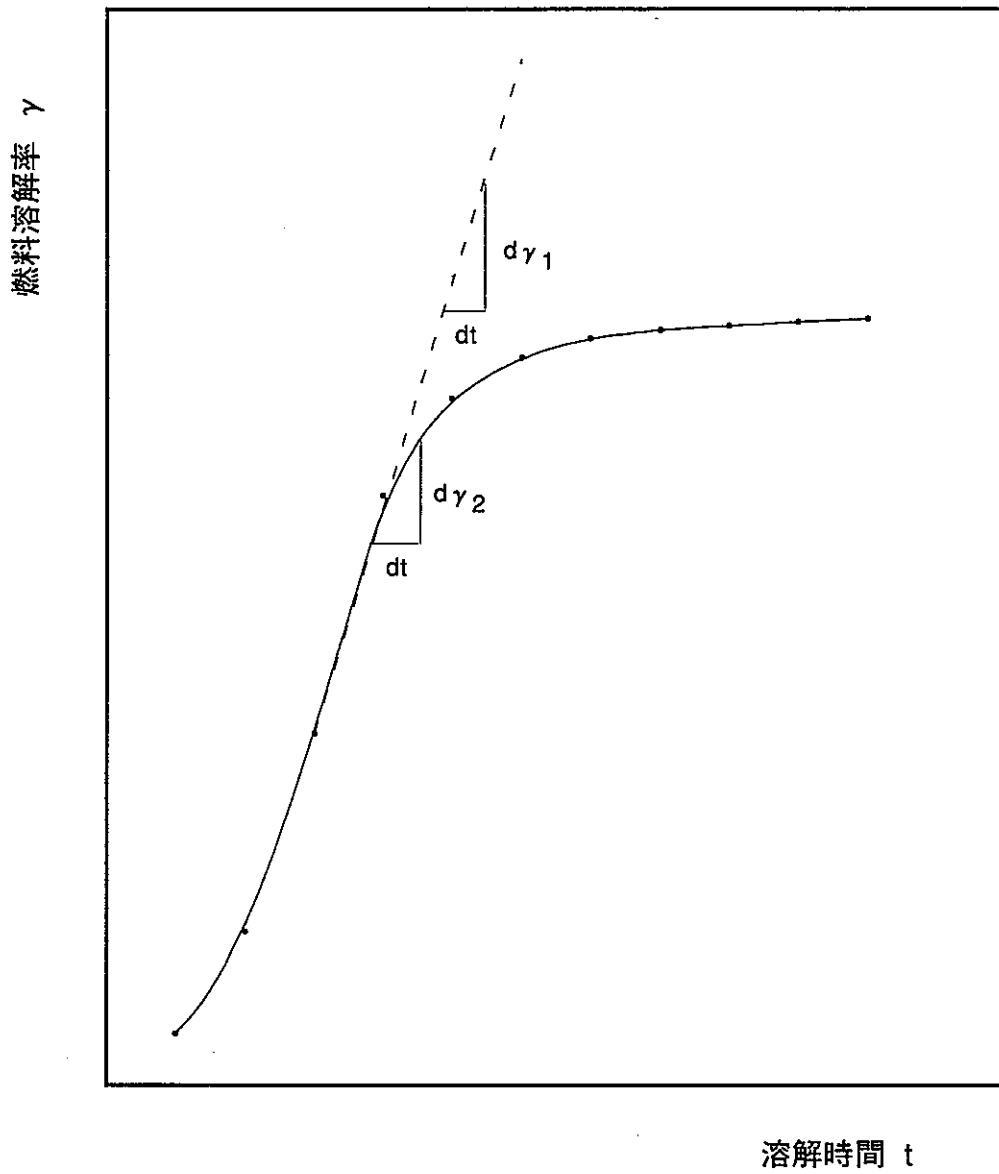


図22 溶解時間に対する燃料溶解率推移

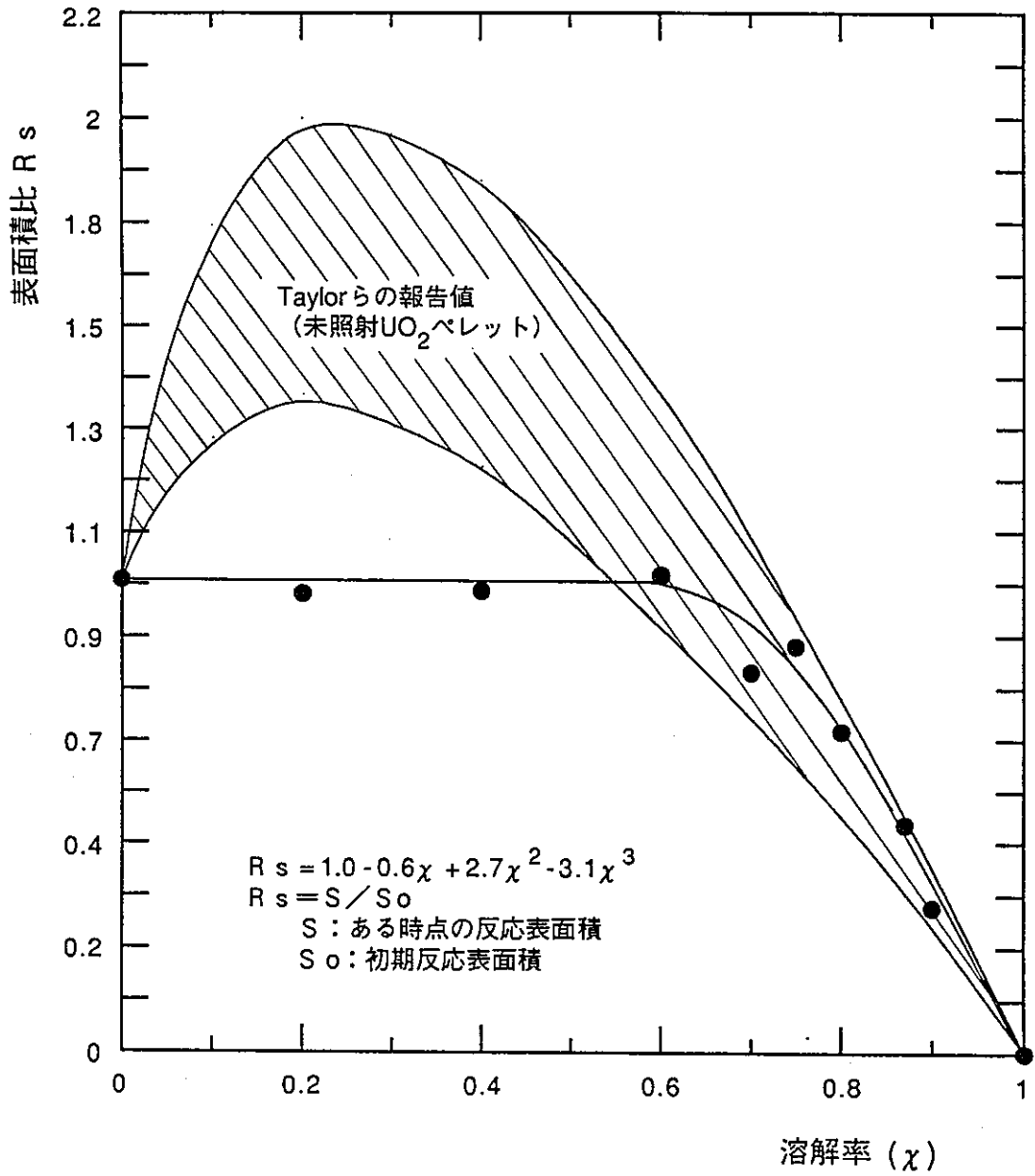


図23 せん断片の溶解過程における表面積遷移

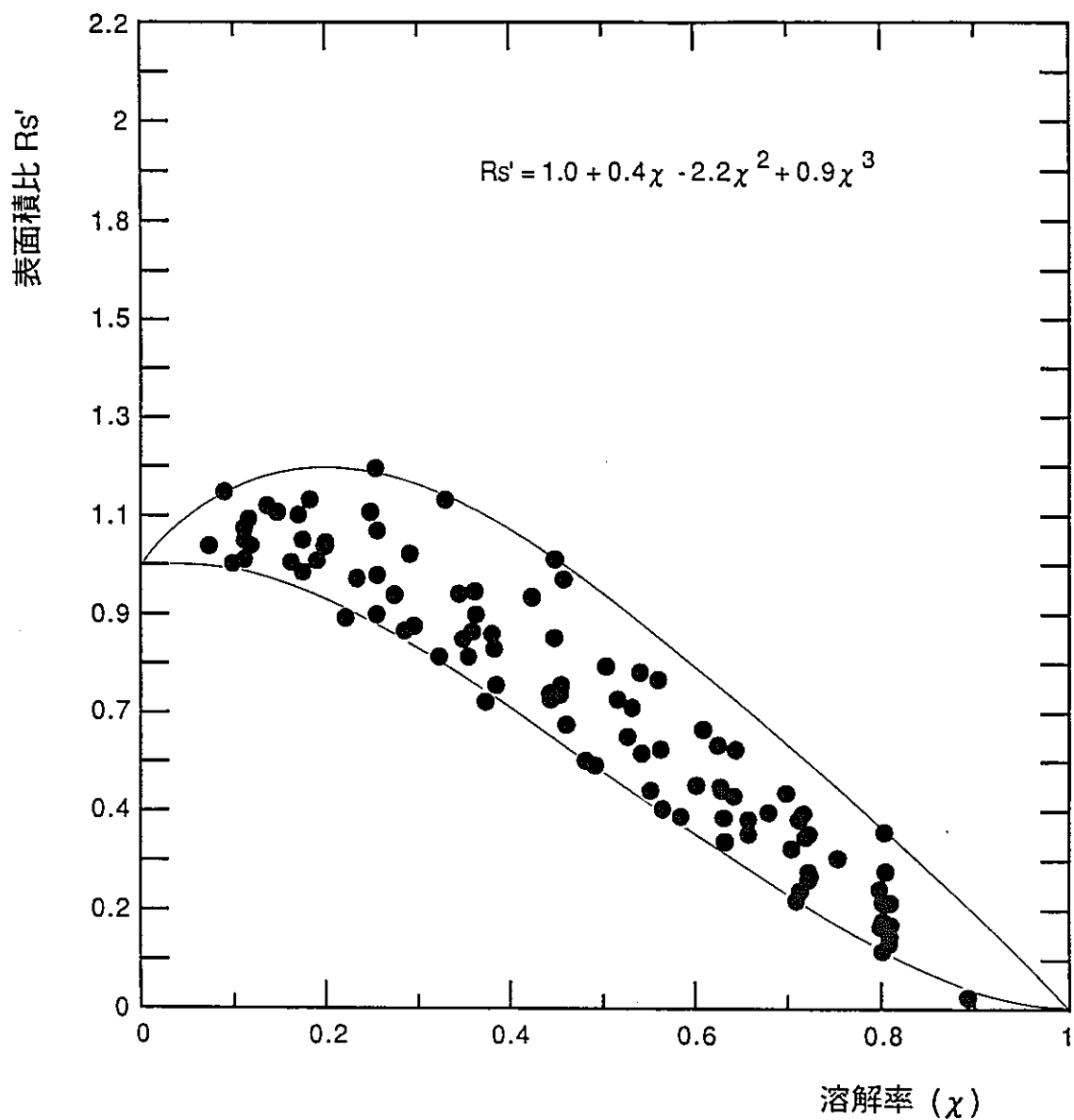


図24 燃料粉末の溶解過程における表面積遷移

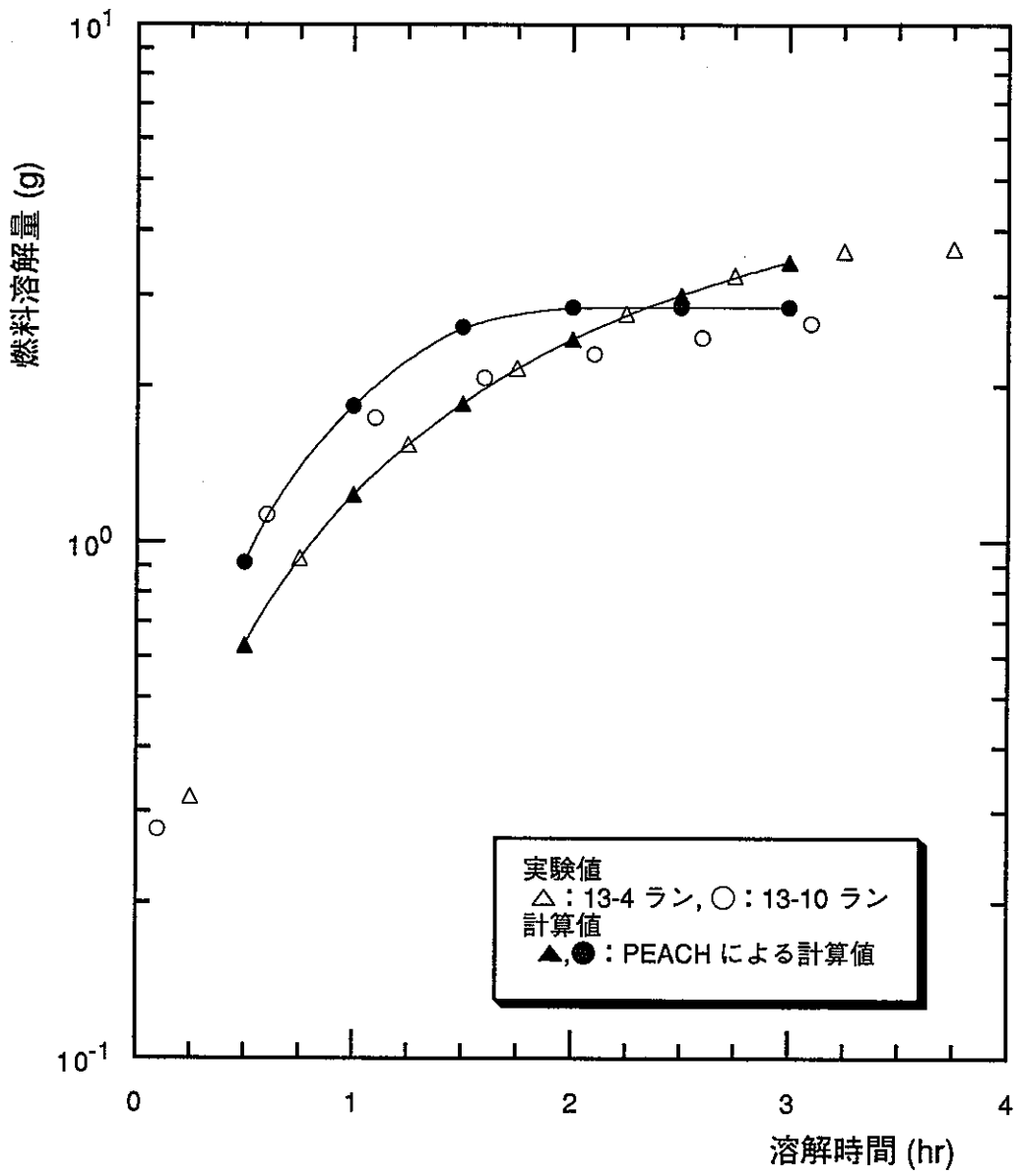


図25 溶解反応速度式 (実験式) の評価

表1 ウランに関する溶解反応 (報告値)

$$\text{Dissolution Rate} = k \cdot (\text{表面積}) \cdot A \cdot e^{(-E/RT)}$$

報告者	A	E (kcal/mol)	備考
R. F. Taylor ²⁾	$[\text{HNO}_3]^{2.8}$	15.2	UO ₂ ペレット
J. L. Swanson ⁴⁾	$[\text{HNO}_3 + 2\text{U}]^{2.6}$	11.5 (7.8M-HNO ₃ , 71~112°C)	UO ₂ ペレット
A. L. Uriarte ⁷⁾	$[\text{HNO}_3 + \text{U}]^{2.6}$	—	UO ₂ ペレット
松本 ⁸⁾	—	12.3	未照射の天然ウラン
		7.94	18%PuO ₂ -UO ₂ 混合酸化物
辻野 ⁹⁾	—	19.2 (1.0M-HNO ₃) 16.9 (2.0M-HNO ₃) 13.9 (4.0M-HNO ₃)	U ₃ O ₈

表2 CPFにおける高速炉照射済燃料の溶解試験

溶解試験 No. (ラン No.)	燃料の 種類**	密度 (KT.D)	コア部 Pu富化度 (%)	燃料ピン 本数 (本)	燃料重量 (g)		集 合 体 平均燃焼度 (Mwd/t)	平 均 線出力 (W/cm)	冷 却 日数**	燃料溶 解方法	溶解槽 種類**	溶解液硝酸濃度(M)		硝酸 追加	溶 解 液 量 (ℓ)	溶 解 温 度 (℃)	溶解時間 (hr)	備 考
					PuO ₂	UO ₂						初 期	終 期					
1	J 1	93	18	2	44.7	535.2	4,400	250	430	ピ単位	V	3.6	1.9	-	3.2 → 2.2	98	10.2	
2	J 1	93	18	2	44.8	530.4	32,000	250	654	ピ単位	V	3.5	1.6	-	3.0 → 2.9	96	10	
3	J 1	93	18	4	87.93	1054.4	40,100	250	648	ピ単位	V	3.6	2.9	-	3.8 → 2.7	101	10	
4-1	J 1	93	18	1	21.9	263.1	40,100	250	830	ピ単位	V	3.36	2.02	-	2.0 → 1.6	90	6	
4-2				1	21.9	263.1						3.10	1.60	-	2.0 → 1.6	80	10	
4-3				1	21.8	262.1						3.35	1.97	-	2.0 → 1.6	70	10	
4-4				1	22.0	264.2						2.36	1.68	-	4.1 → 3.6	90	10	
5-1	J 1	93	18	4	84.3	395.3	40,100	250	1000	ピ単位	V	3.3	1.8	-	3.7 → 2.7	90	10	コア部の溶解試験
5-2				3.8	660.5	ピ単位				V	3.3	1.8	-	4.6 → 4.2	90	10	ブランク部部の溶解試験	
6	J 2	93	29	3	70.9	190.4	13,800	360	408	ピ単位	V	3.5	2.7	-	2.8 → 2.3	97	10	
7	J 2	93	29	3	70.9	190.4	13,800	360	495	ピ単位	V	3.48	2.61	-	2.7 → 2.2	90	10	
8	J 2	93	29	3	64.3	173.8	31,700	309	395	ピ単位	V	3.5	2.8	-	2.4 → 2.0	97	10	
9	D	85/94	18/20	2本相当	30.5	129.9	55,000	410	4770	ピ単位	V	3.3	2.9	-	2.5 → 2.0	98	10	
10	J 2	93	29	3	57.0	154.0	31,700	309	360	片単位	V, F	3.5	2.7	-	3.5 → 3.1	97	13	溶解データはベンチスケール溶解のもの
11	P	85	30	3本相当	90.8	242.0	94,000	440	927	ピ単位	V	3.0	2.0	-	2.5 → 1.8	96	27	
12	P	85	30	3	69.2	390.8	94,000	440	1488	片単位	V, F	5.1	4.8	-	3.2 → 1.7	107	25	溶解データはベンチスケール溶解のもの
13	J 2C	85	30	4	94.2	242.6	54,100	360	736	片単位	V, F	4.4	2.5	-	2.0 → 1.6	104	12	溶解データはベンチスケール溶解のもの
14	J 2	93	29	3	68.0	169.6	54,700	-	344	片単位	V, F	3.5	2.7	-	2.8 → 2.0	97	12	せん断片開口率変化試験を実施
15	J 2C	85	30	1	31.4	76.5	54,100	360	1021	片単位	F	不明	不明	-	不明	不明	不明	
16-1	J 2C	85	30	1	31.4	87.5	54,100	360	1310	ピ単位	F	8.7	6.9	-	0.8 → 0.9	115	4	
16-2**				1	31.4	87.2						3.5	3.5	有り	0.8 → 0.9	100	8.5	
16-3**				1	31.4	87.3						3.5	8.0	有り	0.4 → 1.0	115	4	
16-4**				1	31.8	88.6						3.5	8.5	有り	0.4 → 1.0	95	4	
17-1	P	85	30	1	42.2	165.9	94,000	440	2390	片単位	F	不明	不明	-	不明	不明	不明	
17-2	J 2C	85	30	2	62.8	147.1	54,100	360	1506	片単位	F	不明	不明	-	不明	不明	不明	
17-3										粉末	F	不明	不明	-	不明	不明	不明	

注*1: 燃料の種類 (J1: 「常陽」MK-Iドライバ燃料, J2: 「常陽」MK-IIドライバ燃料, J2C: 「常陽」MK-IIIC型特燃, P: Phenix燃料, D: DFR燃料)

*2: 炉停止日から燃料ピンせん断までの日数

*3: 溶解槽タイプ (V: 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: 溶解時に硝酸溶液を追加して、硝酸濃度を調整した。

表3 照射済燃料中の核分裂生成物質量

燃料：「常陽」MK-II C型特殊燃料
 燃焼度：54,100 MWd/t (集合体平均)
 冷却期間：2.0年
 Origen 2-81 による計算値

元 素	濃度 (g/4Pins)	放射性核種	濃度 (g/4Pins)
H	4.69×10^{-5}	H-3	1.67×10^{10}
Ge	7.81×10^{-4}		
As	2.39×10^{-4}		
Se	3.00×10^{-2}		
Br	1.03×10^{-2}		
Kr	1.95×10^{-1}	Kr-85	1.65×10^{11}
Rb	1.75×10^{-1}		
Sr	3.99×10^{-1}	Sr-89	1.07×10^9
		Sr-90	1.18×10^{12}
Y	2.12×10^{-1}	Y-90	1.19×10^{12}
		Y-91	5.55×10^9
Zr	1.99×10^0	Zr-95	1.88×10^{10}
Nb	3.10×10^{-5}	Nb-95	4.18×10^{10}
Mo	2.24×10^0		
Tc	5.81×10^{-1}	Tc-99	3.65×10^8
Ru	1.95×10^0	Ru-103	1.64×10^8
		Ru-106	6.22×10^{12}
Rh	6.20×10^{-1}	Rh-103M	1.48×10^8
		Rh-106	6.22×10^{12}
Pd	1.41×10^0		
Ag	1.49×10^{-1}	Ag-110M	1.11×10^{10}
Cd	1.04×10^{-1}		
In	9.30×10^{-3}		
Sn	9.78×10^{-2}	Sn-123	3.77×10^9
Sb	3.32×10^{-2}	Sb-125	4.14×10^{11}
Te	4.22×10^{-1}	Te-125M	1.01×10^{11}
		Te-127	6.51×10^9
		Te-127M	6.62×10^9
I	2.44×10^{-1}		
Xe	3.15×10^0		
Cs	2.69×10^0	Cs-134	4.63×10^{11}
		Cs-137	2.61×10^{12}
Ba	9.86×10^{-1}		
La	8.31×10^{-1}		
Ce	1.58×10^0	Ce-144	4.81×10^{12}
Pr	7.97×10^{-1}	Pr-144	4.81×10^{12}
		Pr-144M	5.77×10^{10}
Nd	2.51×10^0		
Pm	1.26×10^{-1}	Pm-147	4.37×10^{12}
Sm	6.47×10^{-1}	Sm-151	1.01×10^{11}
Eu	7.88×10^{-2}	Eu-154	4.81×10^{10}
		Eu-155	2.91×10^{11}
Gd	5.93×10^{-2}		
Td	4.93×10^{-3}		
Dy	3.13×10^{-3}		
Ho	1.11×10^{-4}		
Er	1.18×10^{-4}		
合 計	2.43×10^1	合 計	3.65×10^{13}

表4 燃料ピン中のU, Puの同位体重量

燃料：「常陽」MK-II C型特殊燃料（4本当たり）
 燃焼度：54,100 MWd/t（集合体平均）
 Origen 2-81 による計算値

部 位	放射性核種	重 量 (g)	
		照 射 前	照 射 後
Core	U-234	—	—
	U-235	24.38	18.77
	U-236	—	—
	U-238	269.37	259.91
Insulator pellet	U-234	—	—
	U-235	—	—
	U-236	—	—
	U-238	12.00	12.00
Core + Insulator pellet	U	305.75	290.68
Core	Pu-238	0.17	0.18
	Pu-239	85.82	81.37
	Pu-240	22.58	27.05
	Pu-241	3.50	3.39
	Pu-242	0.69	0.88
Insulator pellet	Pu-238	—	—
	Pu-239	—	—
	Pu-240	—	—
	Pu-241	—	—
	Pu-242	—	—
Core	Pu	124.38	112.86

表5 ベンチスケール溶解試験条件

ラ ン No.		4-1	4-2	4-3	4-4	6	7	8			
燃 料	種 類	MK-I	MK-I	MK-I	MK-I	MK-II	MK-II	MK-II			
	燃 焼 度 (Mwd/t)	40,100	40,100	40,100	40,100	13,800	13,800	31,700			
	Pu富化度 (%)	18	18	18	18	29	29	29			
燃 料	ピ ン 数 (本)	1	1	1	1	3	3	3			
	せん断片数 (片)	20	20	20	20	60	60	60			
条 件	装 荷 量	U+Pu (g)	285.0	285.0	283.9	286.2	261.3	261.3	238.1		
		U (g)	263.1	263.1	262.1	264.2	190.4	190.4	173.8		
		Pu (g)	21.9	21.9	21.8	22.0	70.9	70.9	64.3		
溶 解 条 件	硝 酸	初期濃度 (M)	3.36	3.10	3.35	2.36	3.50	3.48	3.50		
		終期濃度 (M)	2.02	1.60	1.97	1.68	2.70	2.61	2.81		
	液 量	初 期 (ℓ)	2.0	2.0	2.0	4.1	2.8	2.7	2.4		
		終 期 (ℓ)	1.6	1.6	1.6	3.6	2.3	2.2	2.0		
		溶解温度 (°C)	90.0	80.0	70.0	90.0	97.0	90.0	97.0		
		反応表面積 (cm ²)	21.53	21.53	21.53	21.53	21.53	21.53	21.53		
		溶解時間	6.0 hr	10.0 hr	10.0 hr	8.0 hr	10.0 hr	10.0 hr	10.0 hr		
		溶解速度(mg/cm ² .min)	80.7	60.7	49.5	69.1	60.5	54.5	39.6		
備 考											

表6-1 ビーカースケール溶解試験条件(1/6)

ラン No.		10-1	10-5	10-9		12-2	12-3	12-5	12-21		
燃料	種類	MK-II	MK-II	MK-II		Phenix	Phenix	Phenix	Phenix		
	燃焼度 (Mwd/t)	31,700	31,700	31,700		94,000	108,000	108,000	80,000		
	Pu富化度 (%)	29	29	29		30	30	30	30		
燃料	ピン数 (本)	—	—	—		—	—	—	—		
	せん断片数 (片)	1	1	1		1	1	1	1		
燃料 条件	装 荷 量	U+Pu (g)	4.9	4.9	6.7		6.2	5.7	5.3	6.4	
		U (g)	—	—	—		—	—	—	—	
		Pu (g)	—	—	—		—	—	—	—	
溶 液	酸	初期濃度 (M)	3.50	2.50	5.00		5.00	5.00	7.00	5.09	
		終期濃度 (M)	—	—	—		4.78	4.78	6.98	4.37	
溶 液 量	初期 (ℓ)	0.1	0.1	0.1		0.50	0.50	1.00	0.10		
	終期 (ℓ)	—	—	—		0.49	0.48	—	—		
条 件	溶解温度 (°C)	100.0	100.0	100.0		108.0	108.0	110.0	102.0		
	反応表面積 (cm ²)	0.362	0.362	0.362		0.493	0.493	0.493	0.493		
	溶解時間	4.0 hr	6.5 hr	3.5 hr		5.0 hr	4.0 hr	3.5 hr	4.0 hr		
	溶解速度 (mg/cm ² .min)	49.7	31.5	86.6		77.7	76.9	111.6	69.8		
備 考											

表6-2 ビーカースケール溶解試験条件(2/6)

ラ ン No.		13-1	13-2	13-3	13-4	13-10					
燃 料	種 類	MK-II C型	MK-II C型	MK-II C型	MK-II C型	MK-II C型					
	燃 焼 度 (MWd/t)	63,200	63,200	63,200	63,200	63,200					
	Pu富化度 (%)	30	30	30	30	30					
燃 料 条 件	ピ ン 数 (本)	—	—	—	—	—					
	せん断片数 (片)	1	1	1	1	1					
	装 荷 量	U+Pu (g)	5.3	5.2	5.4	5.2	4.0				
		U (g)	—	—	—	—	—				
		Pu (g)	—	—	—	—	—				
溶 解 条 件	硝 酸	初期濃度 (M)	3.00	5.00	7.00	5.00	5.00				
		終期濃度 (M)	2.86	4.98	6.55	4.79	4.88				
	液 量	初 期 (ℓ)	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50				
		終 期 (ℓ)	0.48	0.48	0.46	—	—				
	溶解温度 (°C)	100.0	100.0	87.0	85.0	99.0					
	反応表面積 (cm ²)	0.486	0.486	0.486	0.486	0.486					
	溶解時間	5.5 hr	4.0 hr	4.0 hr	4.5 hr	4.5 hr					
	溶解速度(mg/cm ² .min)	42.8	98.3	127.0	68.3	72.0					
備 考											

表6-3 ビーカースケール溶解試験条件(3/6)

ラン No.		14-1	14-2	14-3	14-4	14-5	14-6		16-1		
燃料	種類	MK-II	MK-II	MK-II	MK-II	MK-II	MK-II		MK-II C型		
	燃焼度 (Mwd/t)	54,700	54,700	54,700	54,700	54,700	54,700		54,100		
	Pu富化度 (%)	29	29	29	29	29	29		30		
燃料条件	ピン数 (本)	—	—	—	—	—	—		1		
	せん断片数 (片)	1	1	1	1	1	1		20		
	装荷量	U+Pu (g)	6.2	5.1	4.8	5.1	5.1	5.1		101.5	
		U (g)	—	—	—	—	—	—		71.0	
		Pu (g)	—	—	—	—	—	—		30.5	
溶解条件	硝酸	初期濃度 (M)	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00		8.50	
		終期濃度 (M)	—	—	—	—	—	—		6.92	
	液量	初期 (ℓ)	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1		0.5	
		終期 (ℓ)	—	—	—	—	—	—		—	
	溶解温度 (°C)	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0		100.0	
	反応表面積 (cm ²)	0.362	0.362	0.362	0.362	0.362	0.362	0.362		9.72	
	溶解時間	3.5 hr	6.0 hr	3.5 hr	3.5 hr	4.0 hr	6.0 hr	6.0 hr		3.5 hr	
	溶解速度 (mg/cm ² .min)	128.9	60.8	100.1	96.8	91.1	28.6	28.6		221.2	
備考	開口率試験 (100%)	開口率試験 (15.0%)	開口率試験 (51.4%)	開口率試験 (36.0%)	開口率試験 (31.0%)	開口率試験 (9.0%)	開口率試験 (9.0%)				

表6-4 ビーカースケール溶解試験条件(4/6)

ラ ン No.		17-1-08	17-1-10	17-1-11	17-1-12	17-1-16	17-1-19	17-1-20	17-1P21	17-1-22	
燃 料	種 類	Phenix	Phenix	Phenix	Phenix	Phenix	Phenix	Phenix	Phenix	Phenix	
	燃 焼 度 (MWd/t)	99,000	100,000	100,000	99,000	91,000	81,000	77,000	70,000	63,000	
	Pu富化度 (%)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	
燃 料 条 件	ピ ン 数 (本)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	せん断片数 (片)	1	1	1	1	1	1	1	1	1	
	装 荷 量	U+Pu (g)	5.8	5.7	5.7	5.8	6.0	6.0	5.9	6.1	6.1
		U (g)	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		Pu (g)	—	—	—	—	—	—	—	—	—
溶 液 条 件	硝 酸	初期濃度 (M)	5.00	8.00	9.00	7.00	8.00	8.00	8.00	8.00	
		終期濃度 (M)	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	液 量	初 期 (ℓ)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
		終 期 (ℓ)	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	溶解温度 (°C)	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	
	反応表面積 (cm ²)	0.493	0.493	0.493	0.493	0.493	0.493	0.493	0.493	0.493	
	溶解時間	190 min.	70 min.	80 min.	80 min.	80 min.	80 min.	70 min.	90 min.	80 min.	
	溶解速度(mg/cm ² .min)	78.9	197.7	214.2	178.0	177.4	157.9	194.4	160.7	223.1	
備 考											

表6-5 ビーカースケール溶解試験条件(5/6)

ラ ン No.		17-1-23	17-1-24		17-3-7	17-3-12	17-3-13				
燃 料	種 類	Phenix	Phenix		MK-II C型	MK-II C型	MK-II C型				
	燃 焼 度 (MWd/t)	53,000	94,000		60,000	60,000	60,000				
	Pu富化度 (%)	30	30		30	30	30				
燃 料 条 件	ピ ン 数 (本)	—	—		—	—	—				
	せん断片数 (片)	1	3		粉 末	粉 末	粉 末				
	装 荷 量	U+Pu (g)	6.1	18.0		4.1	4.0	4.2			
		U (g)	—	—		—	—	—			
		Pu (g)	—	—		—	—	—			
溶 解 条 件	硝 酸	初期濃度 (M)	8.00	8.00		8.00	3.50	5.00			
		終期濃度 (M)	—	—		—	—	—			
	液 量	初 期 (ℓ)	0.5	0.5		0.5	0.5	0.5			
		終 期 (ℓ)	—	—		—	—	—			
		溶解温度 (°C)	100.0	100.0		100.0	100.0	100.0			
		反応表面積 (cm ²)	0.493	1.479		55.78	73.40	73.40			
		溶解時間	70 min.	90 min.		90 min.	110 min.	90 min.			
		溶解速度(mg/cm ² .min)	205.5	207.1		3.54	1.03	1.59			
備 考					粉末粒径： 297-500 μm	粉末粒径： <297 μm	粉末粒径： <297 μm				

表6-6 ビーカースケール溶解試験条件(6/6)

ラ ン No.		17-2-03	17-2-08	17-2-11	17-2-12	17-2-13	17-2-16	17-2-17	17-2-19		
燃 料	種 類	MK-II C型	MK-II C型	MK-II C型	MK-II C型	MK-II C型	MK-II C型	MK-II C型	MK-II C型		
	燃 焼 度 (MWd/t)	45,500	61,500	63,200	63,000	60,000	56,000	53,000	47,000		
	Pu富化度 (%)	30	30	30	30	30	30	30	30		
燃 料 条 件	ピ ン 数 (本)	—	—	—	—	—	—	—	—		
	せん断片数 (片)	1	1	1	1	1	1	1	1		
	装 荷 量	U+Pu (g)	6.05	6.15	6.03	6.02	6.06	5.98	6.11	6.00	
		U (g)	—	—	—	—	—	—	—	—	
		Pu (g)	—	—	—	—	—	—	—	—	
溶 解 条 件	硝 酸	初期濃度 (M)	8.00	8.00	8.00	8.00	8.00	8.00	8.00		
		終期濃度 (M)	—	—	—	—	—	—	—	—	
	液 量	初 期 (ℓ)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	
		終 期 (ℓ)	—	—	—	—	—	—	—	—	
	溶解温度 (°C)	90 → 70	100.0	70 → 100	90.0	115.0	90.0	100.0	100.0		
	反応表面積 (cm ²)	0.486	0.486	0.486	0.486	0.486	0.486	0.486	0.486		
	溶解時間	130 min.	110 min.	380 min.	120 min.	80 min.	130 min.	90 min.	70 min.		
	溶解速度(mg/cm ² .min)	98.3	221.7	16.0	137.0	416.7	143.3	276.7	288.3		
備 考	溶解温度 降下試験		溶解温度 上昇試験								

表7 ベンチスケール溶解試験における重金属溶解量

溶解時間(hr)	ラ ン No.											
	4-1		4-2		4-3		4-4		6		7	
	U	Pu	U	Pu	U	Pu	U	Pu	U	Pu	U	Pu
1.0	62.7	4.3	29.5	1.9	27.4	1.4	15.2	1.2	8.0	2.3	8.2	3.2
2.0	183.7	15.4	110.3	8.8	85.5	6.2	95.8	7.4	80.4	26.6	71.6	24.3
3.0	243.4	19.8	160.0	13.4	137.1	10.4	181.7	16.2	125.3	44.8	110.7	41.1
4.0	258.3	20.3	200.4	16.6	171.2	13.6	232.3	20.7	151.2	54.6	129.6	48.7
5.0	266.6	21.2	214.4	17.2	197.4	16.2	245.9	21.7	162.9	59.5	149.5	56.1
6.0		21.4	219.2	18.6	209.9	17.1	252.5	22.0	173.7	62.6	154.1	61.3
7.0			226.7	18.8	224.6	17.6	256.5		175.2	65.3	157.2	63.5
8.0			234.6	18.9	234.1	18.0	266.1		177.1	66.8	162.6	65.1
9.0			240.2	19.0	—	—			178.0	67.4	166.9	66.3
10.0			241.4	19.2	244.9	18.7			178.1	67.8	168.8	66.5

表 8-1 ビーカースケール溶解試験における重金属溶解量 (1/5)

溶解時間(hr)	U+Pu溶解量 [g]											
	10-1	10-5	10-9	12-2	12-3	ラ ン 12-5	No. 12-21	13-1	13-2	13-3	13-4	13-10
0.5	0.23	0.68	1.01	0.003	0.32	0.02	1.23	0.72	0.51	2.12	0.47	0.39
1.0	0.58	0.94	1.73	0.05	1.41	1.54	2.21	1.28	2.12	3.86	1.29	1.59
1.5	1.47	1.26	2.89	0.83	2.85	3.53	3.27	1.88	3.33	4.26	2.52	2.45
2.0	2.52	1.65	4.07	1.90	4.02	3.93	4.18	2.66	4.02	4.49	3.46	2.92
2.5	3.45	2.03	5.02	3.32	4.58	4.57	4.83	3.31	4.44	4.67	4.04	3.25
3.0	4.00	2.41	6.18	4.51	4.97	4.88	5.31	3.77	4.70	4.85	4.41	3.50
3.5	4.33	2.77	6.56	5.13	5.28	5.16	5.72	4.16	4.98	5.03	4.70	3.72
4.0	4.63	3.14		5.49	5.57		6.10	4.45	5.20	5.21	4.96	3.94
4.5		3.45		5.75				4.70			5.20	4.00
5.0		3.76		6.00				4.92				
5.5		4.06						5.11				
6.0		4.36										
6.5		4.64										
7.0												

表 8-2 ビーカースケール溶解試験における重金属溶解量 (2/5)

溶解時間(hr)	ラ ン No.						U+Pu溶解量 [g]
	14-1	14-2	14-3	14-4	14-5	14-6	16-1
0.5	0.64	1.01	1.01	1.13	1.06	0.92	71.06
1.0	1.89	1.36	1.84	1.63	1.90	1.10	99.53
1.5	3.19	1.64	2.84	3.06	2.52	1.21	100.99
2.0	4.31	1.79	3.32	3.36	2.91	1.33	101.26
2.5	4.73	1.93	3.43	3.51	3.24	1.45	101.40
3.0	4.84	2.09	3.47	3.55	3.34	1.55	101.47
3.5	4.88	2.22	3.50	3.76	3.42	1.68	101.50
4.0		2.33		5.49	3.52	1.83	
4.5		2.43		5.75		2.06	
5.0		2.55		6.00		2.25	
5.5		2.66				2.38	
6.0		2.75				2.47	
6.5							
7.0							

表 8 - 3. ビーカースケール溶解試験における重金属溶解量 (3 / 5)

溶解時間(min.)	ラ ン No.										
	17-1-08	17-1-10	17-1-11	17-1-12	17-1-16	17-1-19	17-1-20	17-1-21	17-1-22	17-1-23	17-1-24
10	0.05	0.58	0.29	0.26	0.72	0.47	0.61	0.42	0.38	0.55	2.20
20	0.10	1.55	1.02	0.88	1.79	1.14	1.49	1.13	1.30	1.47	5.36
30	0.30	2.42	2.24	1.75	2.60	1.90	2.37	1.87	2.32	2.53	8.60
40	0.65	3.33	3.66	2.82	3.37	2.81	3.39	2.71	3.54	3.61	11.97
50	1.04	4.51	4.88	3.80	4.21	3.93	4.50	3.69	4.72	4.66	14.80
60	1.44	5.32	5.55	4.84	5.00	4.92	5.47	4.55	5.46	5.51	16.60
70	1.82	5.70	5.84	5.63	5.66	5.57	5.90	5.23	5.89	6.10	17.44
80	2.24		6.00	6.00	6.00	6.00		5.82	6.10		17.82
90	2.66			5.75				6.10			18.00
100	3.15			6.00							
110	3.67										
120	4.10										
130	4.59										
140	4.98										
150	5.26										
160	5.44										
170	5.58										
180	5.66										
190	5.80										

表 8-4 ビーカースケール溶解試験における重金属溶解量 (4/5)

溶解時間(min.)	ラ ン No.								
	17-2-3	17-2-8	17-2-11	17-2-12	17-2-13	17-2-16	17-2-17	17-2-19	U+Pu溶解量 (g)
10	0.05	0.39	10:0.01	200:1.24	0.15	1.22	0.23	0.54	0.87
20	0.23	1.15	20:0.03	210:1.34	0.51	3.49	0.69	1.87	3.04
30	0.59	2.62	30:0.06	220:1.45	0.92	5.37	1.29	3.67	4.85
40	1.07	4.38	40:0.10	230:1.56	1.45	5.79	2.01	5.16	5.51
50	1.65	5.10	50:0.17	240:1.84	2.42	5.91	2.97	5.68	5.74
60	2.28	5.40	60:0.23	250:2.64	3.70	5.96	4.01	5.87	5.85
70	2.99	5.54	70:0.28	260:3.44	4.80	5.98	4.95	5.94	5.95
80	3.71	5.60	80:0.38	270:4.08	5.44	6.00	5.48	5.97	
90	4.34	5.63	90:0.45	280:4.55	5.76		5.72	6.00	
100	4.84	5.66	100:0.50	290:4.88	5.89		5.83		
110	5.42	5.68	110:0.56	300:5.16	5.99		5.88		
120	5.63		120:0.63	310:5.39	6.02		5.91		
130	5.66		130:0.70	320:5.55			5.98		
140			140:0.79	330:5.69					
150			150:0.85	340:5.77					
160			160:0.90	350:5.84					
170			170:0.96	360:5.91					
180			180:1.05	370:5.96					
190			190:1.14	380:6.00					

表 8 - 5 ビーカースケール溶解試験における重金属溶解量 (5 / 5)

U + Pu溶解量 [g]

溶解時間(min.)	ラ ン No.		
	17-3-7	17-3-12	17-3-13
10	1.54	0.16	0.82
20	2.21	0.64	1.75
30	3.33	1.26	2.42
40	3.67	1.80	2.93
50	3.88	2.26	3.31
60	3.98	2.66	3.61
70	4.03	3.04	3.84
80	4.05	3.32	4.03
90	4.10	3.60	4.20
100		3.82	
110		4.00	
120			
130			
140			
150			
160			
170			
180			
190			

表9 U, Puの溶解率

溶解時間 (hr)	U		Pu		U+Pu	
	溶解率 (%)	溶解量 (g)	溶解率 (%)	溶解量 (g)	溶解率 (%)	溶解量 (g)
0	0.28	0.42	0.18	0.10	0.23	0.52
1	3.91	5.89	3.10	1.79	3.51	7.68
2	20.02	30.16	16.23	9.35	18.13	39.51
3	41.10	61.91	43.16	24.87	42.13	86.78
4	58.53	88.17	56.39	32.50	57.51	120.67
5	69.53	104.74	67.40	38.84	68.46	143.58
6	78.16	117.74	77.05	44.40	77.61	162.14
7	89.28	134.49	86.02	49.57	87.65	184.06
8	92.97	140.05	89.65	51.67	91.31	191.72
9	93.59	140.98	97.33	56.09	95.46	197.07
10	100.00	150.64	100.00	57.63	100.00	208.27

対象燃料：「常陽」MK-II燃料（3ピン溶解）

燃焼度：31,700 MWd/t（Pu富化度：29%）

硝酸濃度：3.5 mol/l → 2.8 mol/l

溶解液量：2.4 l → 2.0 l

溶解温度：95℃一定

表10 FP元素の溶解率

溶解時間(hr)	Zr-95 (%)	Ru-106 (%)	Cs-137 (%)	Ce-144 (%)	Eu-155 (%)
0	0.10	0.18	3.82	0.15	0.11
1	2.37	4.03	18.62	2.96	2.64
2	16.48	32.10	42.21	19.53	16.30
3	42.89	39.82	65.98	49.21	36.73
4	54.50	47.93	74.46	60.59	54.16
5	71.86	84.31	85.19	76.73	67.73
6	80.08	86.74	89.62	83.19	82.78
7	88.75	89.29	93.63	90.13	90.82
8	92.39	92.74	96.90	94.05	93.15
9	96.27	97.77	98.51	98.21	98.42
10	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
合計*	1.77×10^{11} Bq	5.54×10^{11} Bq	7.68×10^{11} Bq	3.31×10^{12} Bq	8.43×10^{10} Bq

対象燃料：「常陽」MK-II燃料（3ピン溶解）

溶解液量：2.4 ℓ → 2.0 ℓ

燃焼度：31,700 MWd/t (Pu富化度：29%)

溶解温度：95°C一定

硝酸濃度：3.5 mol/ℓ → 2.8 mol/ℓ

*：溶解終了時の溶解液中濃度

表11 溶解時の硝酸収支

溶解時間 (hr)	溶解液中硝酸量① (mol)	サンプル硝酸量② (mol)	未反応硝酸量③ ①+② (mol)	U溶解消費量④ (mol)	Pu溶解消費量⑤ (mol)	合計硝酸量⑥ (mol) ③+④+⑤
0	8.39	0.06	8.45	0.00	0.00	8.45
1	8.21	0.12	8.33	0.07	0.03	8.43
2	7.61	0.17	7.78	0.34	0.16	8.28
3	7.10	0.24	7.34	0.69	0.42	8.46
4	6.70	0.30	7.00	0.99	0.54	8.53
5	6.18	0.36	6.54	1.17	0.65	8.36
6	5.95	0.42	6.37	1.32	0.74	8.43
7	5.84	0.47	6.31	1.51	0.83	8.65
8	5.62	0.53	6.15	1.57	0.86	8.58
9	5.34	0.59	5.93	1.58	0.94	8.45
10	5.26	0.67	5.93	1.69	0.96	8.58

対象燃料：「常陽」MK-II燃料（3ピン溶解）

燃焼度：31,700 MWd/t (Pu富化度：29%)

硝酸濃度：3.5 mol/l → 2.8 mol/l

溶解液量：2.4 l → 2.0 l

溶解温度：95°C一定

表12 開口率試験における燃料せん断片重量変化

開口率 (%)	開口率調整時の重量変化 (g)			溶解試験時の重量変化 (g)			溶解率 (%) ^{*7}
	調整前重量① ^{*1}	調整後重量② ^{*2}	発生粉末量③ ^{*3} (①-②)	溶解後重量④ ^{*4}	燃料溶解量⑤ ^{*5} (②-④)	未溶解量⑥ ^{*6}	
9.0	6.17	5.01	1.16	2.54	2.47	1.24	66.6
15.7	6.14	5.04	1.10	2.29	2.75	0.99	73.7
31.0	6.20	4.82	1.38	1.55	3.52	0.00	100.0
36.0	6.19	5.06	1.13	1.30	3.76	0.00	100.0
51.4	6.15	4.80	1.35	1.30	3.50	0.00	100.0
100.0	6.18	6.18	0.00	1.30	4.88	0.00	100.0

*1 : 燃料ピンせん断時のせん断片重量。せん断片長さ : 30 mm。

*2 : 開口率調整後のせん断片重量。開口率調整時に発生した燃料粉末は含まず。

*3 : 開口率調整時に発生した燃料粉末量。溶解試験時には添加せず。

*4 : 溶解後のせん断片重量。

*5 : 燃料溶解量。

*6 : 6時間溶解後の未溶解燃料重量。(溶解後せん断片重量④-ハル重量(1.3g))

*7 : 6時間溶解後の燃料溶解率。

(溶解後せん断片重量④-ハル重量(1.3g)) ÷ 開口率調整後のせん断片重量② × 100)

表13 開口率変化試験における燃料溶解量

(表中数値は燃料溶解量 (g))

溶解時間(hr)	せん断片開口率 (%)					
	9.0	15.7	31.0	36.0	51.4	100.0
0.5	0.92	1.01	1.06	1.13	1.01	0.64
1.0	1.10	1.36	1.90	1.63	1.84	1.89
1.5	1.21	1.64	2.52	3.06	2.84	3.19
2.0	1.33	1.79	2.91	3.36	3.32	4.31
2.5	1.45	1.93	3.24	3.51	3.43	4.73
3.0	1.55	2.09	3.34	3.55	3.47	4.84
3.5	1.68	2.22	3.42	3.76	3.50	4.88
4.0	1.83	2.33	3.52	—	—	—
4.5	2.06	2.43	—	—	—	—
5.0	2.25	2.55	—	—	—	—
5.5	2.38	2.66	—	—	—	—
6.0	2.47	2.75	—	—	—	—
溶解率 (%)	66.6* ¹	73.7* ¹	100.0	100.0	100.0	100.0

* 1 : 6時間溶解時の溶解率 (溶解は6時間で終了とした)

- 対象燃料 : 「常陽」MK-II (Pu富化度 : 2.9%)
- 燃焼度 : 54,700 MWd/t
- 硝酸濃度 : 5.0 M (溶解初期濃度)
- 溶解温度 : 100℃一定
- 溶解液量 : 100 ml

表14 各燃料形態における溶解反応表面積

燃料形態	燃料種類	反応表面積 (cm ²)	備考
せん断片	「常陽」MK-I	0.486	被覆管内径：φ5.56mm
	「常陽」MK-II	0.362	被覆管内径：φ4.80mm
	「常陽」MK-II C型	0.486	被覆管内径：φ5.56mm
	Phoenix	0.493	被覆管内径：φ5.60mm
燃料粉末	「常陽」MK-II C型	73.40	燃料粉末粒径：φ0.295mm
		55.78	燃料粉末粒径：φ0.400mm

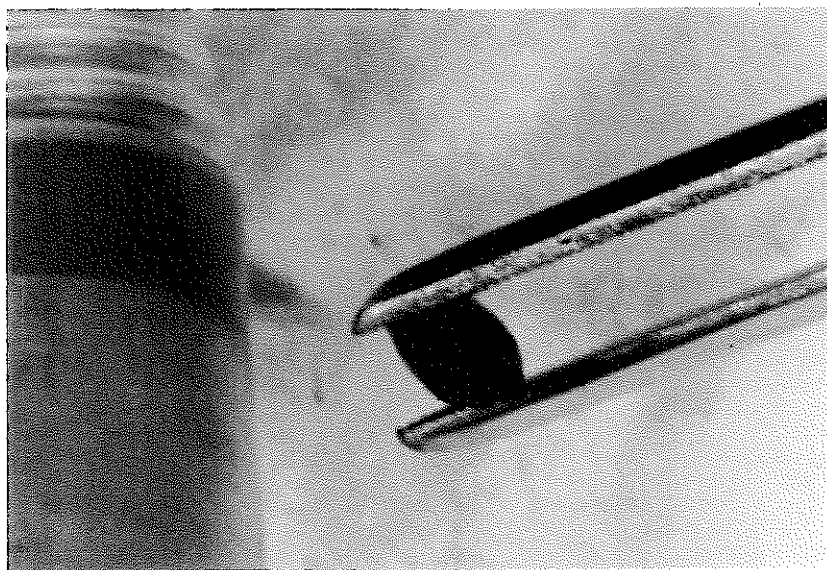


写真1 開口率調整後のせん断片（開口率：9.0%，試験No.：14-6ラン）

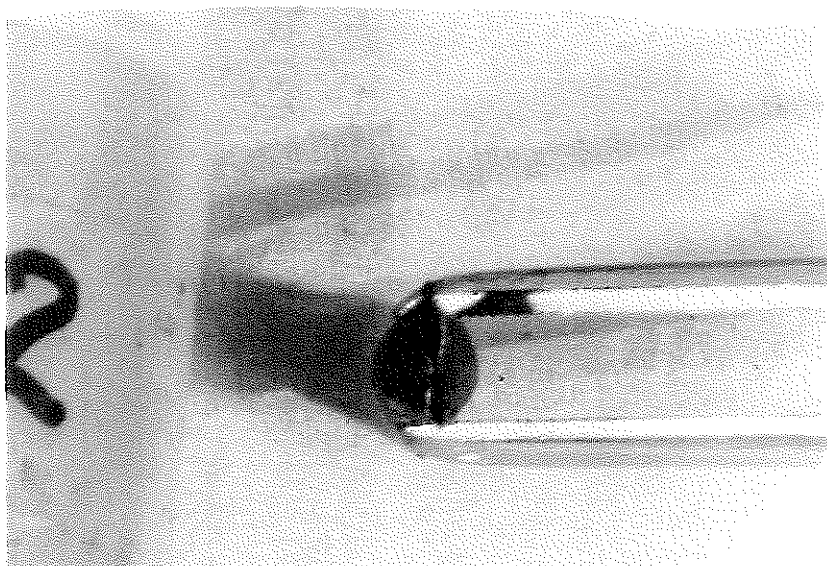


写真2 開口率調整後のせん断片（開口率：15.7%，試験No.：14-2ラン）

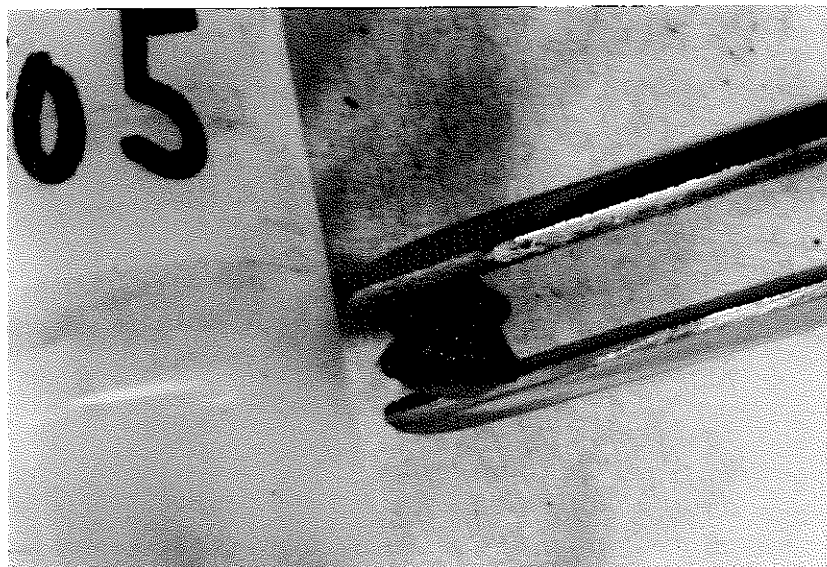


写真3 開口率調整後のせん断片（開口率：36.0%，試験No.：14-5ラン）

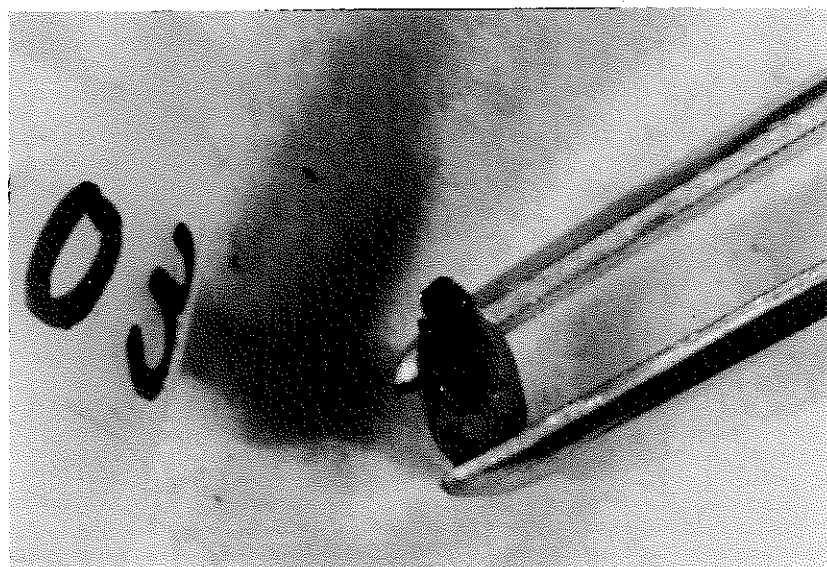


写真4 開口率調整後のせん断片（開口率：51.4%，試験No.：14-3ラン）

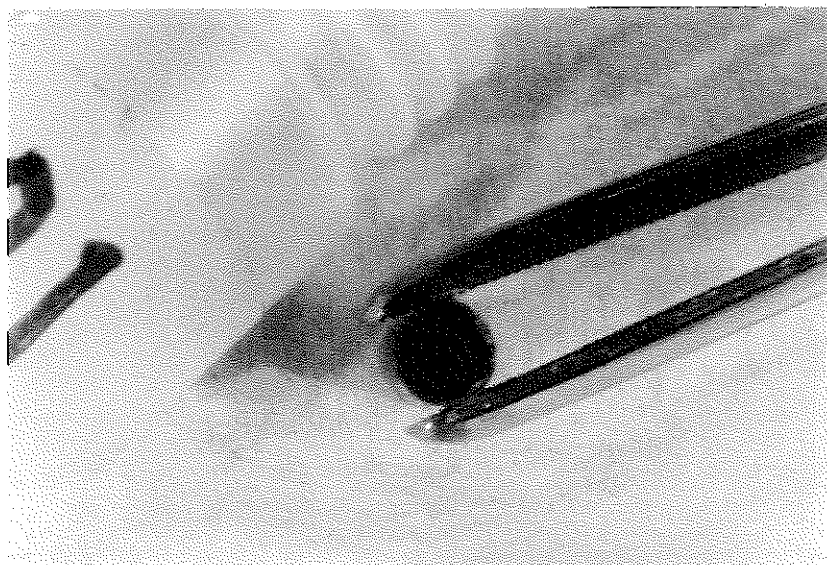


写真5 開口率調整後のせん断片（開口率：100.0%，試験No.：14-1ラン）

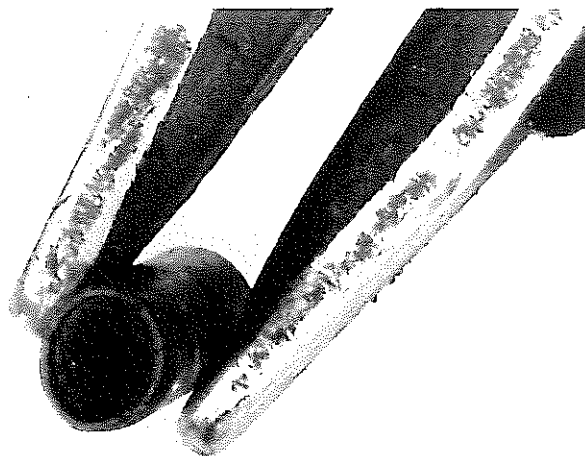


写真6 せん断片内燃料減少過程（溶解初期）

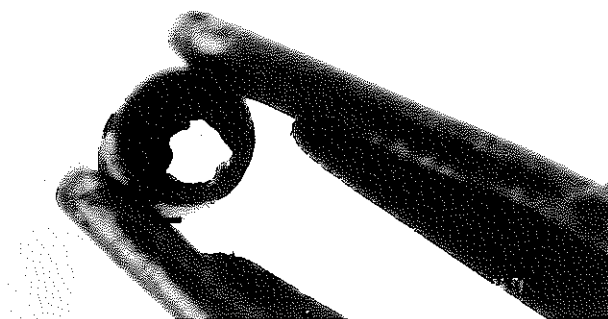


写真7 せん断片内燃料減少過程（溶解後期）

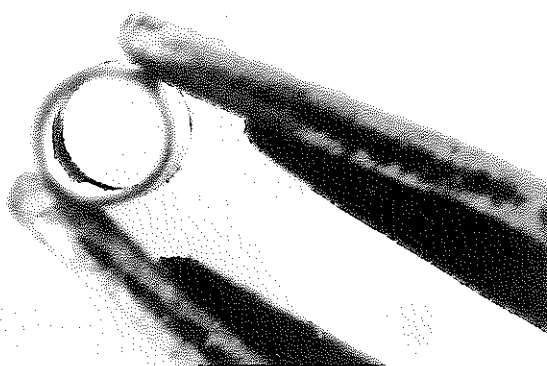


写真8 せん断片内燃料減少過程（溶解終期）