

高速炉燃料リサイクル試験

— 高燃焼度MOX燃料(94,000MWd/t)の溶解温度パラメータ試験 —

1 9 9 5 年 3 月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Information Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome , Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, JAPAN

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ください。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13
動力炉・核燃料開発事業団
技術協力部 技術情報室

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

1995年3月

高速炉燃料リサイクル試験

-高燃焼度MOX燃料(94,000MWd/t)の溶解温度パラメータ試験-

実施責任者 富樫 昭夫

報告者 坂井 敏幸*¹, 算用子 裕孝, 岩崎 伊佐央*²
栗林 正和*¹, 根本 慎一

要 旨

CPFでは、これまでに「常陽」MK-I、MK-IIおよび海外炉照射済燃料等を対象とした多数のホット溶解試験を実施し、高速炉使用済燃料再処理に関する基礎的なデータを取得してきた。これらの結果をふまえて、今回の第18回試験では仏国「Phoenix」炉で照射された平均燃焼度が94,000 MWd/tの高燃焼度燃料を対象として、高硝酸濃度(8 M)条件下において溶解温度を主な試験パラメータとした合計2回の溶解試験を実施した。以下にその概要を示す。

1. 溶解速度に与える溶解温度の影響

高硝酸濃度条件下においても溶解速度は溶解温度に依存し、温度の上昇に伴い速くなる。しかしながら、沸点より5℃程度低い温度以上では逆に溶解速度の低下が観察され、既往文献に報告されているウラン溶解挙動と同じ傾向を示すことが確認された。

2. 不溶解性残渣の発生率

本試験結果とこれまでのCPF試験結果を併せて評価した結果、燃料燃焼度の上昇に伴って不溶解性残渣の発生率も増加する傾向にあることが見出された。また、これまでの溶解試験で回収した残渣と燃焼度をパラメータに算出した残渣成分元素(Mo, Tc, Ru, RhおよびPd)の生成量との比較・評価を行った結果、計算値に対して約20%から100%が残渣として回収されている。

なお、本報告書は使用済燃料再処理工程のうちのせん断・溶解・清澄試験に関するものであり、これ以降の工程に関する試験結果については別途報告することとする。

再処理技術開発部 プロセス・分析開発室

*1: 常陽産業(株)

*2: 検査開発(株)

目 次

| | |
|----------------------------|----|
| 1. まえがき | 1 |
| 2. 対象燃料 | 3 |
| 3. 試 験 | 4 |
| 3.1 せん断 | 4 |
| 3.1.1 方 法 | 4 |
| 3.1.2 結 果 | 4 |
| 3.2 溶 解 | 5 |
| 3.2.1 方 法 | 5 |
| 3.2.2 18-1ラン結果 | 6 |
| 3.2.3 18-2ラン結果 | 8 |
| 3.3 不溶解性残渣の回収 | 9 |
| 3.3.1 方 法 | 9 |
| 3.3.2 結 果 | 10 |
| 4. 考 察 | 11 |
| 4.1 溶解温度の溶解速度に与える影響 | 11 |
| 4.1.1 見かけの溶解速度 | 11 |
| 4.1.2 これまでの溶解試験結果および文献調査結果 | 12 |
| 4.1.3 溶解温度と溶解速度との関係 | 13 |
| 4.2 不溶解性残渣 | 14 |
| 4.2.1 不溶解性残渣の発生率 | 15 |
| 4.2.2 燃料組成と残渣発生率との関係 | 15 |
| 4.2.3 燃料燃焼度と残渣発生率との関係 | 16 |
| 5. まとめ | 17 |
| 6. 参考文献 | 19 |

図リスト

| | | |
|-----|---|----|
| 図1 | Phenix PNC-3燃料ピンの構造 | 20 |
| 図2 | Phenix PNC-3照射リグの炉内装荷位置 | 21 |
| 図3 | Phenix PNC-3切断試料のC P Fでの受入れ状況 | 22 |
| 図4 | せん断機 | 23 |
| 図5 | 小型溶解試験装置（ビーカースケール） | 24 |
| 図6 | せん断・溶解時のオフガス処理系統及び分析系統図 | 25 |
| 図7 | 18-1ラン ⁸⁵ Kr放出状況 | 26 |
| 図8 | 18-1ラン溶解試験結果 | 27 |
| 図9 | 18-1ラン溶解試験時の硝酸収支 | 28 |
| 図10 | 18-1ラン核分裂生成物の溶解挙動 | 29 |
| 図11 | 18-1ラン核分裂生成物の溶解特性 | 30 |
| 図12 | 18-2ラン ⁸⁵ Kr放出状況 | 31 |
| 図13 | 18-2ラン溶解試験結果 | 32 |
| 図14 | 18-2ラン溶解試験時の硝酸収支 | 33 |
| 図15 | 18-2ラン核分裂生成物の溶解挙動 | 34 |
| 図16 | 18-2ラン核分裂生成物の溶解特性 | 35 |
| 図17 | 不溶解性残渣回収方法 | 36 |
| 図18 | 第18回試験溶解特性 | 37 |
| 図19 | Uranium Dissolution at Different Temperatures | 38 |
| 図20 | Effect of Temperature on Uranium Dissolution Rate | 39 |
| 図21 | Nitrous Acid and Uranium Concentrations During Dissolution at Different Acidities | 40 |
| 図22 | Nitrous Acid and Uranium Concentrations During Dissolution at Different Temperatures | 41 |
| 図23 | Dissolution Rate vs stirring speed for Grade A pellets | 42 |

| | | |
|-----|--------------------------------------|----|
| 図24 | 溶解速度に与える溶解温度の影響 | 43 |
| 図25 | 燃料のPu富化度に対する残渣発生率（ホット試験結果） | 44 |
| 図26 | 燃料燃焼度に対する残渣成分元素の生成量（計算結果） | 45 |
| 図27 | 燃料の平均燃焼度に対する残渣発生率 （試験結果と計算結果との比較） | 46 |

表リスト

| | | |
|-----|---------------------|----|
| 表1 | 燃料仕様 | 47 |
| 表2 | 主要核分裂生成物の組成 | 48 |
| 表3 | 溶解試験に用いた燃料試料のせん断 | 49 |
| 表4 | 溶解試験条件 | 50 |
| 表5 | 18-1ラン溶解試験結果 | 51 |
| 表6 | 18-1ラン溶解時の硝酸収支 | 52 |
| 表7 | 18-1ラン核分裂生成物の溶解特性 | 53 |
| 表8 | 18-2ラン溶解試験結果 | 54 |
| 表9 | 18-2ラン溶解時の硝酸収支 | 55 |
| 表10 | 18-2ラン核分裂生成物の溶解特性 | 56 |
| 表11 | 18-1ラン不溶解性残渣洗浄記録 | 57 |
| 表12 | 18-2ラン不溶解性残渣洗浄記録 | 58 |
| 表13 | 18ラン溶解特性 | 59 |
| 表14 | 第5回試験供試燃料の核分裂生成物質量 | 60 |
| 表15 | 第6回試験供試燃料の核分裂生成物質量 | 61 |
| 表16 | 第8回試験供試燃料の核分裂生成物質量 | 62 |
| 表17 | 第11回試験供試燃料の核分裂生成物質量 | 63 |
| 表18 | 第13回試験供試燃料の核分裂生成物質量 | 64 |

写真リスト

| | | | |
|------|------------------|-------|----|
| 写真 1 | 溶解試験装置（ビーカースケール） | | 65 |
|------|------------------|-------|----|

1. ま え が き

高レベル放射性物質研究施設（以下「C P F」という。）では、これまでに「常陽」M K - I, M K - II および海外炉照射済燃料等を供試燃料として多数のホット試験を実施してきており、高速炉使用済燃料再処理に関する基礎的なデータを取得してきた¹⁾。その結果、高速炉照射済燃料の溶解については、以下に示す事項が明らかになった²⁾。

- (1) 硝酸濃度は高濃度になるほど溶解を促進するが、3 M程度の硝酸濃度においても高速炉照射済燃料の溶解は十分に可能である。
- (2) 溶解温度については、より高い温度が有効である。
- (3) 燃料燃焼度に関しては、5 M以下の硝酸濃度では燃焼度の増加に伴い多少溶解速度が低下する傾向が見られるものの、8 M程度の高硝酸濃度においては燃焼度の違いによる溶解速度の変化は認められない。
- (4) 燃料溶解に伴い発生する不溶解性残渣については、これまでのC P F試験結果よりその成分元素や粒径分布等が確認されている³⁾。しかしながら、燃料組成等との関係については不確定要素も多く、残渣特性に関する十分な知見を得るためにはさらなる調査が必要である。

これらの結果をふまえて、今回の第18回試験では仏国「P h e n i x」炉で照射された平均燃焼度が94,000 MWd/tの高燃焼度燃料を対象として、以下の事項を目的とした合計2回の溶解試験を実施した。

・高硝酸濃度（8 M）条件下における溶解速度に与える溶解温度の影響の確認

これまでC P Fで求めてきた溶解速度の確認を90℃および沸点（約113℃）の溶解温度条件下で行い、その結果をこれまでのC P F試験結果と併せて解析することにより、沸点近傍での溶解速度を評価する。なお、これまでに求めてきた溶解速度はリサイクル機器試験施設（以下「R E T F」という。）の試験条件等の検討⁴⁾に用いられてきており、今回の試験結果もこれらのバックデータに補足される。

・高燃焼度における不溶解性残渣特性の把握

本試験の対象燃料は、集合体平均燃焼度が94,000 MWd/tの高燃焼度燃料である。
本燃料の残渣発生率を確認し、これまでのC P F結果と比較することにより、燃料組成と不溶解性残渣特性との関係を確認する。

・ Np共抽出試験用フィード液の確保

本試験により発生する溶解液を調整し、P u r e xプロセス高度化の一環として実施するU/Pu/Np共抽出連続試験のフィード液とする。

本報告書では、第18回溶解試験結果を報告するとともに、これまでのC P Fにおける溶解試験結果等との関係についても併せて調査した。

2. 対象燃料

試験対象燃料は仏国の「Phoenix」炉で照射された照射済燃料ピンであり、大洗工学センター燃料材料開発部において照射後試験⁵⁾を行った残りのコア部切断試料である。

本燃料は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おり、「もんじゅ」用燃料の確証試験として「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⁶⁾の一部である。燃料要素を図1に、燃料集合体の炉内配置を図2に示す。

上記切断試料は2本の燃料ピンの一部であり、1ピン目（ピンNo：84K2）はコア部長さが570mm（健全ピンのコア部長：720mm）、2ピン目（ピンNo：88S1）は230mmである。これらの切断試料のCPFでの受入れ状況を図3に示す。1ピン目は6片に、2ピン目は4片にそれぞれ切断された状態で、他の健全ピン4本とともに受け入れた。

本燃料切断試料の仕様を表1に、主要核分裂生成物質量（ORIGEN 2-M86による計算値）を表2に示す。表中の核燃料物質量は切断試料分の値であるが、放射エネルギー等については健全ピン2本相当として評価した。

3. 試 験

3.1 せん断

前項で詳述したように、本試験の対象燃料はすでに切断された試料であるが、これまでのC P Fでの溶解試験においては燃料ピンは3 cm単位でせん断したのちに溶解を実施している。したがって、試験条件の整合性等を考慮して、本試験対象の燃料試料についても3 cm単位でのせん断を行った。

3.1.1 方 法

燃料試料のせん断はC P FのCA-2セル内既設のせん断機により実施する。せん断機の概要を図4に示す。せん断は、上記燃料試料を1片単位でせん断機に供給して約3 cmごとに行う。せん断片はせん断機下部のバスケットで受ける。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。

燃料ピンせん断時の放出オフガスについては、これまでのC P Fでの試験と同様にNaI(Tl)を検出部とするKrモニターにより ^{85}Kr の放出量を測定する。

3.1.2 結 果

2ピン相当の燃料試料を、計26片にせん断した(せん断回数:計18回)。各燃料試料およびせん断片の寸法を表3に示す。各燃料試料は基本的には3 cm単位でせん断したが、燃料試料自体が3 cm以下のものおよびせん断機によりせん断するには長さが不十分な試料についてはせん断を行わなかった。せん断により発生した燃料粉末量は、4.76 gであった。

各せん断片の両端末形状はほぼ真円に近い状態であり、せん断による燃料被覆管の‘つぶれ’等は確認されなかった。

また、本燃料試料はすでに切断された状態であったことから、燃料せん断時のオフガス(^{85}Kr 等)の発生は確認されなかった。

3.2 溶解

本溶解試験は溶解温度を試験パラメータとして、2回に分けて実施した。便宜上、1回目の溶解試験を18-1ラン、2回目を18-2ランとして報告する。溶解試験は、CA-3セル内既設の回分式小型溶解試験装置（ビーカースケール）により実施した。

3.2.1 方法

(1) 溶解試験装置

溶解試験装置の概略を図5に示す。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。溶解槽本体が透明耐熱ガラス製であるため、溶解時の槽内観察が可能である。溶解槽外観を写真1に示す。

- ・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）

(2) 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6に示す。溶解槽オフガスはオフガス凝縮器にて冷却され、凝縮性成分は凝縮されて溶解槽に回収される。凝縮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、NaI(Tl)を検出部とするKrモニターへ導かれる。

(3) 溶解試験方法

溶解試験条件を表4に示す。溶解は、規定濃度に調製された硝酸溶液を溶解槽に供給して所定の溶解温度まで加熱したのち、所定の燃料せん断片を溶解槽内に投入する。燃料せん断片が溶解槽に装荷された時点で溶解開始とする。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量および硝酸濃度を測定する。

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 放出量をKrモニターにより監視しており、この ^{85}Kr 放出率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する。

本試験では、初期硝酸濃度を8M一定とし、溶解温度を沸点（約113℃）および90℃とした2回の溶解試験を実施している。沸点での試験を18-1ラン、90℃での試験を18-2ランとする。その他の試験条件（溶解液量および攪拌空気流量等）は各ランとも同様である。なお、各ランに用いた燃料試料の詳細については表3に示す。

3.2.2 18-1ラン結果

(1) ^{85}Kr 放出状況

本溶解工程における ^{85}Kr の放出状況を図7に示す。本図の縦軸は ^{85}Kr 放出率および積算放出量であり、横軸は溶解時間を示す。放出率としては燃料投入後約10分から80分にかけて有意な値を示し、投入後約40分にピークが見られる。約3時間の溶解継続後に ^{85}Kr の放出率がほぼバックグラウンドレベルに戻ったため、溶解終了と判断して溶解槽の加熱を停止した。

(2) 燃料（U、Pu）溶解

燃料溶解時の溶解液中のU、Puおよび硝酸濃度変化を図8および表5に示す。図中の左縦軸は溶解液中の核物質（U、Pu）濃度、右縦軸は硝酸濃度であり、横軸は溶解時間を示す。

溶解液中のU、Pu濃度はほぼ同様の割合で増加しており、この増加率は図7に示

す⁸⁵Krの積算放出量と同様の傾向を示す。これまでのC P Fでの溶解試験結果⁷⁾においても、この燃料溶解量と⁸⁵Kr放出量との関係については同様の結果が確認されている。

なお、溶解液中のUおよびPu濃度の分析は、吸光光度法により実施した。

(3) 硝酸収支

本溶解工程における溶解液中の硝酸収支を、図9および表6に示す。この硝酸収支については、以下の定義に基づき評価した。

- 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 : サンプルリ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計サンプル中の合計未反応硝酸量 (計算値, ①+②)
- ④U溶解消費量 : 燃料中のUが溶解時に消費する硝酸量 (計算値)

$$3UO_2 + 8HNO_3 \rightarrow 3UO_2(NO_3)_2 + 2NO + 4H_2O \quad \dots\dots\dots (3. 1)$$
- ⑤Pu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)

$$PuO_2 + 4HNO_3 \rightarrow Pu(NO_3)_4 + 2H_2O \quad \dots\dots\dots (3. 2)$$
- 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)

本試験においては、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、溶解に必要な硝酸量に対して過剰の硝酸量を供給していることから、溶解終了時においても初期供給硝酸量の80%以上が未反応分として溶解液中に残存している。

なお、溶解液中の硝酸濃度は中和滴定法により分析した。

(4) 核分裂生成物の溶解挙動

燃料の溶解に伴い、核分裂生成物も溶解液中に溶出する。本溶解過程における核分裂生成物の溶解挙動を図10に示す。本図の縦軸は放射能濃度、横軸は溶解時間で

ある。溶解液中の核分裂生成物質濃度はγスペクトルメトリーにより分析した。また、核分裂生成物の溶解特性を図11および表7に示す。本図の縦軸は溶解終了時点の濃度を100%とした溶解率であり、横軸は溶解時間を示す。

溶解液中に溶出する主要核種は ^{125}Sb 、 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce 、 ^{154}Eu および ^{155}Eu であり、 ^{137}Cs の濃度が最も高い。

3.2.3 18-2 ラン結果

(1) ^{85}Kr 放出状況

本溶解工程における ^{85}Kr の放出状況を図12に示す。単位時間当たりの放出量としては、燃料投入後約10分から最大値を示しているが、18-1ランと比較してその値は低く、全体的に緩やかな放出特性となった。また、放出率がほぼバックグラウンドレベルまで低下（溶解終了と判断）したのは燃料投入約6時間後であり、18-1ランと比較してほぼ同量の核物質を溶解するのに約2倍の時間を要した。

これら2つのランの試験条件の相違点は溶解温度のみであるため、この溶解時間の差異は溶解温度に起因するものと考えられる。

(2) 燃料（U, Pu）溶解

燃料溶解時の溶解液中のU、Puおよび硝酸濃度変化を図13および表8に示す。本ランの結果を18-1ランと比較した場合、溶解液中のUおよびPu濃度変化はほぼ同様に推移しているものの、溶解時間は大きく異なる。すなわち、溶解温度の違いは溶解速度に大きな影響を与えることが確認された。

(3) 硝酸収支

本溶解工程における溶解液中の硝酸収支を、図14および表9に示す。本ランにおいても18-1ランと同様に、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、必要量に対して過剰の硝酸量を供給しており、硝酸消費状況は18-1ランとほぼ同じである。

(4) 核分裂生成物の溶解挙動

本ランの核分裂生成物の溶解挙動を図15に、また、溶解特性を図16および表10に示す。

溶解液中に溶出する主要核種の種類およびその傾向は18-1ランとほぼ同様であるが、各核種の溶解特性の違いはより顕著となった。溶解開始約100分後ではU、Pu等の溶解率は70%前後であるのに対して、 ^{137}Cs はすでにその約95%が溶出している。

3.3 不溶性残渣の回収

本試験においてもこれまでの試験と同様の手法により、燃料溶解で発生した不溶性残渣の回収を実施した。なお、溶解液中のU、Puおよび核分裂生成物質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。

3.3.1 方法

不溶性残渣回収の操作手順を図17に、操作要領を以下に示す。

- ① 溶解終了後、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る。また、溶解槽底部および内面に残留した残渣についても槽内に洗浄液（0.2M-HNO₃）を供給して全量回収する。その後静置して、残渣を自然沈降させる。
- ② 沈降容器の底部に沈降した残渣の洗浄を行う。洗浄液（0.2M-HNO₃）を約200ml加えて常温（約25℃）にて攪拌したのち静置沈降させ、上澄み液のみを減圧吸引法により慎重に抜き出す。この操作を5回程度繰り返して、残渣およびわずかに残った溶解液の洗浄を行う。
- ③ 最終洗浄作業時は上澄み液を抜き出した後、残渣を含む沈降容器内洗浄液をあらかじめ重量を測定したビーカーに移し換える。沈降容器内に残留した残渣についても容器内を洗浄液により洗浄しながら回収する。
- ④ 静置沈降させてビーカー内の上澄み液を抜き出し後、洗浄液を自然乾燥させる。ビーカー内の洗浄液が全量乾燥したことを確認して、残渣を含むビー

カーの重量測定を行う。乾燥後ビーカー重量と空ビーカー重量の差が残渣重量となる。

3.3.2 結果

18-1 ランの残渣洗浄記録を表11に、18-2 ランの記録を表12に示す。いずれのランの残渣も計6回の洗浄を実施しており、各洗浄時には200ml前後の洗浄液を追加している。各ランの回収残渣量を以下に示す。

・18-1 ラン：0.74 g

・18-2 ラン：1.80 g

ほぼ同量の燃料を溶解したのにもかかわらず、18-2 ランの回収残渣量は18-1 ランに比較して約2.4倍と非常に多い。しかしながら、現時点では回収残渣の組成分析も未実施であるため、何に起因するのかは不確定である。

4. 考 察

これまでのCPFにおける溶解試験結果および既往文献をもとに、今回の溶解試験で得られた結果についての考察を加える。

4.1 溶解温度の溶解速度に与える影響

本試験における主な試験パラメータは溶解温度であることから、溶解温度と溶解速度の関係について調査する。

4.1.1 見かけの溶解速度

溶解温度と溶解速度との関係を調べるに当たり、まず、各ランにおける燃料の見かけの溶解速度を求める。各ランの溶解時間に対する燃料溶解量を図18および表13に示す。本溶解速度の定義については燃料溶解に関する技術報告書⁷⁾にて詳述しているので、本報告においては省略する。本溶解試験に用いた燃料は照射済UO₂-PuO₂混合酸化物燃料であり、各ランにおける見かけの燃料溶解速度は以下のとおりとなる。なお、本溶解対象燃料は「Phoenix」炉用（コア部被覆管内径：φ5.60mm）であり、各ランの燃料試料数は10片であることから、燃料試料の合計反応表面積は4.93cm²となる。

$$r = \frac{d(w)}{dt} \cdot \frac{1}{A} \dots\dots\dots (4.1)$$

r : 見かけの溶解速度 [mg/cm²・min.]

w : 燃料(U+Pu)溶解量 [mg]

t : 溶解時間 [min.]

A : 反応表面積 4.93 [cm²]

各ランにおける見かけの溶解速度は、

・18-1ラン：202.8 mg/cm²・min. (溶解温度：沸点(113℃))

・18-2ラン：75.1 mg/cm²・min. (溶解温度：90℃)

である。これまでの試験結果と同様に、溶解温度の上昇に伴って溶解速度も速くなる

傾向にある。

4.1.2 これまでの溶解試験結果および文献調査結果

これまでにC P Fで実施した溶解試験結果によると、溶解温度以外の溶解試験条件（硝酸濃度、燃料反応表面積および溶解槽形状等）が同じであれば、溶解速度は溶解温度に依存する。

一方、J. L. Swansonら⁸⁾は、硝酸系におけるウランの溶解速度に関するパラメトリックな試験を実施しており、溶解温度と溶解速度との関係について以下のように報告している。

硝酸濃度が7.8M一定の条件下におけるウラン溶解率と溶解温度との関係を図19に示す。溶解温度が105℃まではウラン溶解率は溶解温度の上昇に伴い増加しているが、溶解温度が112℃（沸点）においては105℃の結果に比較して溶解率が減少している。これらの結果から求めた溶解速度と溶解温度との関係をアレニウスプロットにより示したものが図20である。溶解温度の上昇に伴って溶解速度も増加しているが、溶解温度が約108℃以上では、逆に溶解速度が低下する事象が報告されている。

この原因として、硝酸系における溶解時に発生する亜硝酸の影響を挙げており、亜硝酸に関する調査も行っている。酸化ウランの高硝酸濃度系での溶解において、硝酸の還元生成物である亜硝酸が自己触媒作用により溶解反応を促進するであろうことはこれまで多数報告⁹⁾されている。

Swansonらは、硝酸濃度および温度を変化させた場合のウラン溶解に伴う亜硝酸の発生量についても報告している。硝酸濃度変化に対するウラン溶解時の溶解液中の亜硝酸濃度については図21に、また、溶解温度変化時の亜硝酸濃度を図22に示す。初期硝酸濃度を変化させた場合、硝酸濃度の増加に対して亜硝酸濃度は減少している（図21）。また、溶解温度を変化させた場合では、溶解温度が97℃までは溶解液中の亜硝酸濃度はほぼ一定であるが、それ以上の温度においては亜硝酸濃度は大幅に減少している（図22）。ただし、溶解温度の上昇に対する亜硝酸濃度の減少とある温度以上におけるウランの溶解速度の低下との関係については明確にされていない。

これらの結果をもとに、Swansonらはウラン溶解速度に与える亜硝酸の影響について、亜硝酸はウランの溶解に際して触媒的作用を示すためウランの溶解を促進するのに効果的であるが、亜硝酸濃度とウランの溶解速度についての明確な関係は見出せないとしている。

一方、R. F. Taylorら¹⁰⁾はUO₂ペレットの溶解速度と攪拌速度との関係について調査しており、UO₂ペレットの溶解においては通常の固液反応と異なり、図23に示すように、攪拌速度が600rpm程度までは攪拌することによりある程度まで溶解速度が低下する。この傾向は溶解温度が高温の領域で顕著になるとしている。また、溶解液中に酸素をバブリングすることにより、バブリング酸素量が1.5 l/min.までは攪拌と同様に、ある程度まで溶解速度が低下することを報告している。

4.1.3 溶解温度と溶解速度との関係

今回の第18回試験結果より得られた溶解速度と溶解温度との関係を図24に示す。また、本図には前述のJ. L. Swansonらの結果および第17-2回溶解試験結果も併記した。第17-2回溶解試験とは溶解温度をパラメータとしてCPFで実施したホット試験であり、試験条件等を以下に記す。

- ・対象燃料：「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料
(平均燃焼度63,000 MWd/t, Pu富化度30%)
- ・溶解硝酸濃度：8.0 M (初期)
- ・溶解液量：500 ml
- ・溶解装置：回分式小型溶解装置 (第18回試験と同装置)
- ・溶解方法：せん断片 (30mm長) 1片単位の回分式溶解

第17-2回試験では、溶解速度は溶解温度の上昇にともなって大きくなる傾向にあるものの、溶解温度が沸点である113°Cにおいては、108°Cの結果に比べて溶解速度は低下している。第18回試験における各温度での溶解速度は第17-2回試験結果とほぼ同じであることから、第18回試験においても第17-2回試験と同様の傾向を示すとも推測される。

図24に示したSwansonらの結果から得られた活性化エネルギーは約11 kcal/molであ

り、これまでのC P Fでの高速炉照射済燃料を対象とした溶解試験で得られた値とほぼ一致する。したがって、C P Fでは高溶解温度条件下（108℃近傍）での再現試験を実施していないこと、ならびに燃料組成および試験パラメータ等の試験条件に違いがあることから、C P F試験（第17-2回および第18回溶解）結果とSwansonらの結果を直接比較することは困難であるものの、両者はほぼ同じ傾向にあると考えられる。すなわち、高速炉照射済燃料を対象とした溶解（C P F試験）においても、ある条件下では溶解速度は溶解温度に対して一定の関係を示すのではなく、沸点より5℃程度低い温度を変曲点として、それ以上の溶解温度では溶解速度は低下するものと推測される。

前項で詳述した調査結果をもとに、ある溶解温度（沸点より5℃程度低い温度）以上で溶解速度が低下する原因について考察を加える。

UO₂-PuO₂混合酸化物燃料の溶解においても、ウランの溶解と同様に、溶解液中の攪拌条件や亜硝酸濃度が影響すると仮定すれば、本溶解試験における溶解槽内への攪拌空気供給量は200cc/min.であり、この流量はTaylorらの報告による溶解速度が攪拌の影響を受ける領域に入る。溶解温度が沸点に近づくにつれて、溶解液中では温度の上昇に伴う気泡の発生量が増加し、結果的に攪拌空気量が増加することとなる。この見かけの攪拌空気量の増加に伴い、溶解液中の亜硝酸の分解や溶解液外への放出が促進され、溶解液中の亜硝酸濃度は低下する。

したがって、これら攪拌空気量の増加および溶解液中の亜硝酸濃度の低下の相乗作用により、結果的にある温度（沸点より5℃程度低い温度）以上で溶解速度が低下することになったものと推測される。

4.2 不溶解性残渣

3.3.2項で述べたように、本溶解試験においても不溶解性残渣の回収を行っており、18-1ラン（溶解温度：沸点（約113℃））では0.74g、18-2ラン（溶解温度：90℃）では1.80gの残渣をそれぞれ回収している。これらの結果および過去のC P F試験結果をもとに、燃料組成と不溶解性残渣との関係について調べる。

4.2.1 不溶解性残渣の発生率

溶解対象燃料に対する不溶解性残渣発生量を評価する場合、残渣発生率として解析する必要があるため、下式により不溶解性残渣発生率を重量比として導出した。

$$\text{残渣発生率[w/o]} = \frac{\text{不溶解性残渣発生量 [g]}}{\text{溶解対象燃料重量(UO}_2\text{+PuO}_2\text{)[g]}} \times 100 \quad \text{----- (4. 2)}$$

本溶解試験における不溶解性残渣発生率は、

・ 18-1 ラン： 1. 2 8 w/o

・ 18-2 ラン： 3. 1 6 w/o

となる。18-2 ランの残渣発生率は、18-1 ランに比較してかなり高い値を示しているが、現時点では何に起因するのかは不確定である。

4.2.2 燃料組成と残渣発生率との関係

(1) Pu富化度に対する残渣発生率

CPFで再処理試験に用いた照射済燃料のコア部Pu富化度に対する残渣発生率との関係を図25に示す。本図の横軸は燃料コア部のPu富化度、縦軸は(4. 2)式にもとづき算出した燃料溶解による残渣発生率（重量比）であり、第18回試験結果も併記した。

本試験結果もこれまでの結果と同様の傾向にある。すなわち、燃料コア部のPu富化度の上昇に伴い、残渣発生率も増加する傾向にあることが確認された。

(2) 不溶解性残渣の組成

一般的に不溶解性残渣の組成はMo, Ru, Rh, Pd, Tcなどが主成分であるとされており、これはCPFの結果でも同様である。CPFでこれまでの溶解試験に供した照射済燃料に含まれる核分裂生成物質量の代表的な例を表14から表18⁽¹⁾⁻⁽⁵⁾に示す。これらのデータをもとに、燃料平均燃焼度と上記残渣中主要元素の生成量（ORIGENコードによる計算値）との関係を図26にまとめた。

いずれの元素生成量も、平均燃焼度の上昇に比例してほぼ直線的に増加している。すなわち、燃焼度の増加に伴い、燃料中には上記元素の含有量も多くなることとなる。

なお、本図ではORIGENコードによる核分裂生成物質量の計算値と燃料燃焼度との関係に多少のばらつきが見られるが、これはコード計算時の各燃料の冷却期間の違いに起因するものと推測される。

4.2.3 燃料燃焼度と残渣発生率との関係

燃料溶解に伴い発生する不溶解性残渣については、すでにCPFデータを解析して報告している³⁾。これらのCPFデータおよび第18回試験結果をまとめた燃料の燃焼度に対する残渣発生率の関係を図27に示す。本図の横軸はCPFで溶解試験に用いた燃料の集合体平均燃焼度を、縦軸は(4.2)式にもとづく残渣の発生率(重量比)を示したものである。

燃料の種類により多少のばらつきがあるものの、全体的には燃料燃焼度の上昇に伴い残渣発生率が増加する傾向がみられる。これらは、試験条件や残渣回収法が同一ではないので単純に比較することは困難ではあるが、燃焼度の増加とともに残渣量も増加するという権田らの調査結果¹⁶⁾とも一致する。この傾向は、軽水炉および高速炉燃料のいずれにおいても同様であるとしている。

この理由としては、燃料燃焼度の増加に伴い、燃料中の残渣成分元素(Mo, Ru, Rh, PdおよびTc)の含有量も多くなる。したがって、溶解時に発生する不溶解性残渣量も燃料燃焼度の上昇に応じて増加するものと考えられる。

なお、本図には4.2.2項で算出した燃料中の残渣成分主要元素生成量(ORIGENコードによるMo, Ru, Rh, PdおよびTc重量の合算値)も併記した。試験条件や残渣回収法等に違いがあるものの、これらの元素は計算値に対して約20%から100%が不溶解性残渣として回収されている。

5. ま と め

C P Fでは、これまでに「常陽」MK-I、MK-IIおよび海外炉照射済燃料等を供試燃料として多数のホット試験を実施し、高速炉使用済燃料再処理に関する基礎的なデータを取得してきた。これらの結果をふまえて、今回の第18回試験では仏国「P h e n i x」炉で照射された平均燃焼度が94,000 MWd/tの高燃焼度燃料を対象として、高硝酸濃度（8 M）条件下において溶解温度を主な試験パラメータとした合計2回の溶解試験を実施し、以下に示す結果を得た。

- (1) 燃料の溶解は溶解温度に大きく依存し、溶解温度の上昇に伴って溶解速度も速くなるが、ある温度（沸点より5℃程度低い温度）以上では逆に溶解速度は低下する傾向にある。

溶解温度が約90℃と沸点（約113℃）との結果を比較すると、溶解時間では約2倍、溶解速度では約1/2.7となり、燃料の溶解は溶解温度に大きく依存する。また、溶解速度に与える溶解温度の影響を第17-2回溶解試験結果と併せて評価したところ、ある温度（沸点より5℃程度低い温度）以上では溶解速度は逆に低下する傾向が確認された。これは、既往文献に報告されているウランの溶解挙動と同じ傾向を示す。

- (2) 燃料平均燃焼度の上昇に伴い、不溶性残渣の発生率も増加する傾向が確認された。高燃焼度燃料（平均燃焼度：94,000 MWd/t）を対象とした本試験で得られた不溶性残渣量をこれまでのC P F試験結果に補足して評価した結果、集合体平均燃焼度の上昇に伴って残渣発生率も増加する傾向にあることが確認された。また、残渣成分主要元素（Mo, Tc, Ru, RhおよびPd）のO R I G E Nコードによる生成量を燃焼度をパラメータに算出した結果、計算値に対して約20%から100%が残渣として回収されている。なお、Pu富化度の増加に対しても、残渣発生率は上昇する傾向にある。

以上、今回の第18回溶解試験で得られた結果の概要を示した。今回の試験においては、これまでのCPFにおける溶解試験では確認できなかった沸点付近での溶解速度の低下や燃料燃焼度の上昇に伴う残渣発生率の増加の傾向等が確認された。しかし、これらの評価は定性的なものであり、これらの結果を定量的に評価するためには、より多くの基礎データの取得が必要となる。

6. 参 考 文 献

- 1) 高レベル放射性物質研究施設におけるFBR再処理試験(その1)
-せん断・溶解・清澄試験-, PNC ZN8410 90-035
- 2) Development status on the FBR fuel reprocessing technology in PNC
-Record of oral and poster presentation at RECOD'91-, PNC ZN8410 91-212
- 3) 高速炉燃料リサイクル試験 -不溶解残渣に関する研究-, PNC ZN8410 93-080
- 4) リサイクル機器試験施設化学設備試験計画(第1期), PNC I8020 90-001
- 5) 高燃焼度燃料の照射挙動評価 -Phoenix P-3照射試験結果-,
PNC SN9410 89-015
- 6) Phoenix照射用PNC-3燃料要素の製造, PNC ZN843 84-07
- 7) 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-, PNC ZN9410 93-283
- 8) J. L. Swanson et al. : Laboratory Studies of Shear/Leach Processing of
Zircaloy Clad Metallic Uranium Reactor Fuel, PNL-5708 (1985)
- 9) 連続溶解槽設計条件の検討(昭和60年度), 財団法人 工業開発研究所, 1986年3月,
PNC ZJ199 85-49
- 10) R. F. Taylor et al. : Dissolution Rates of Uranium Dioxide Sintered Pellets
in Nitric Acid System, J. Appl. Chem., 13, 32 (Jan. 1963)
- 11) 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
- 12) 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
- 13) 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
- 14) 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
- 15) 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
- 16) $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ 混合酸化物燃料の溶解性の調査, N842-82-01

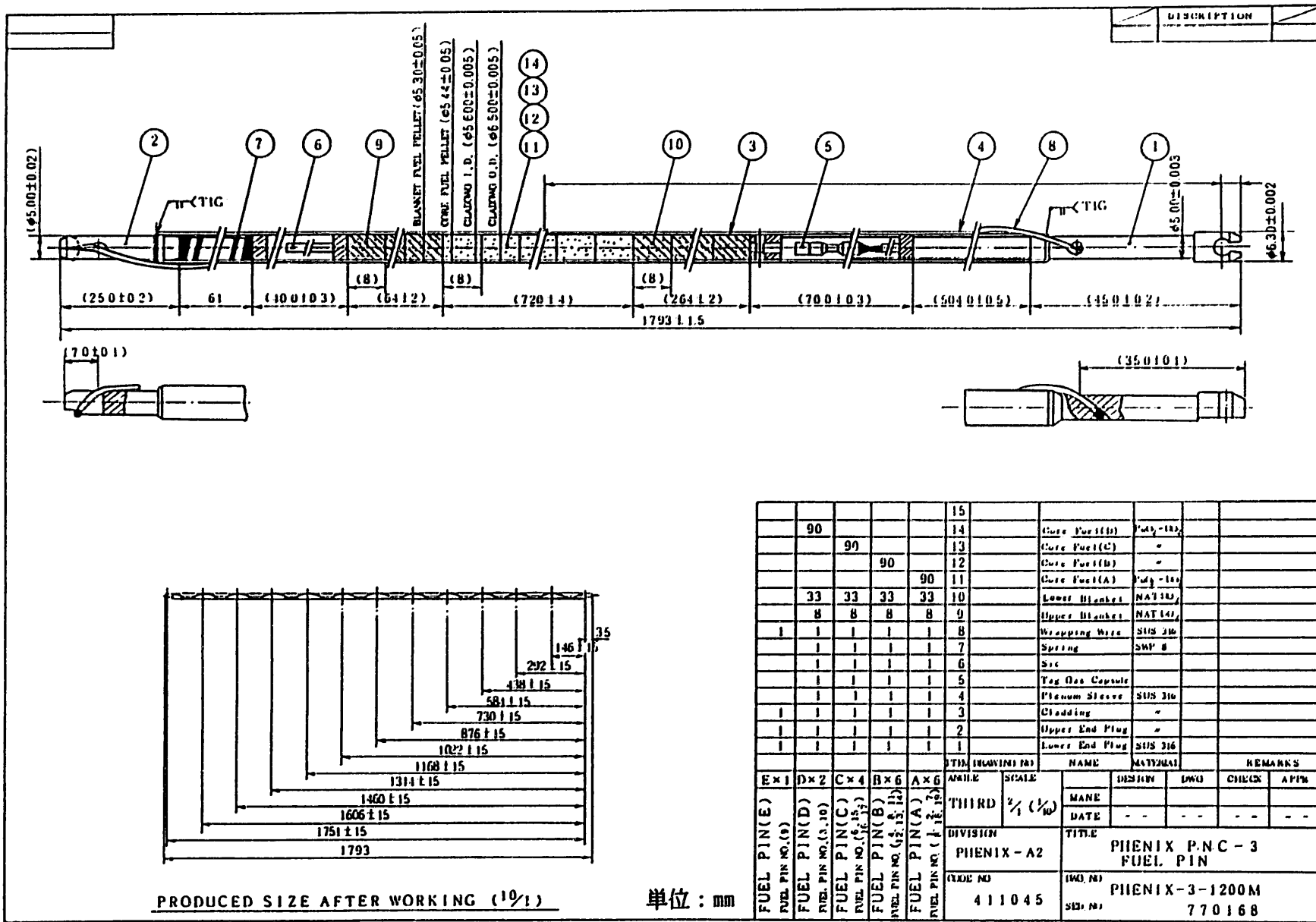


図1 Phenix PNC-3燃料ピンの構造

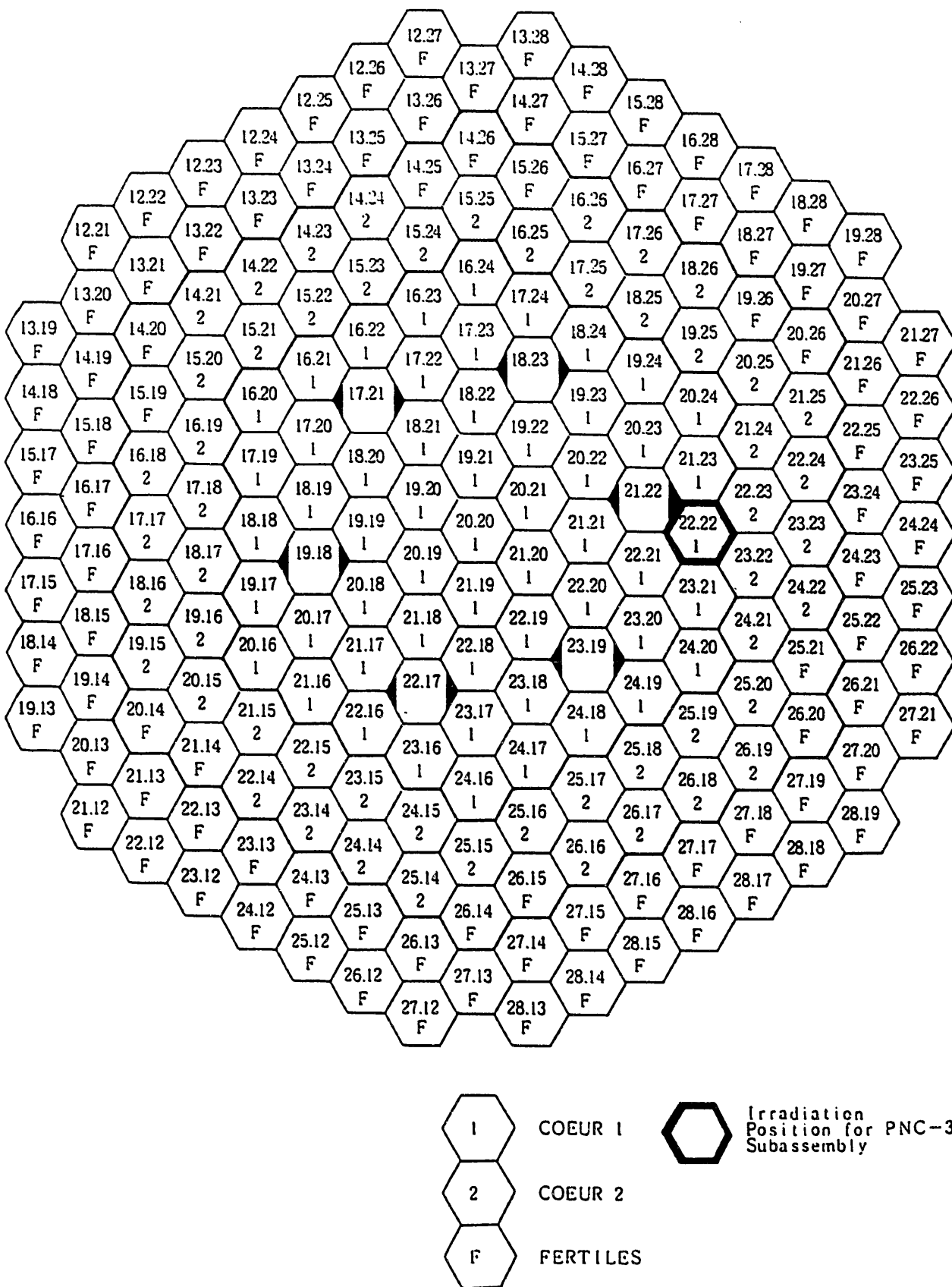
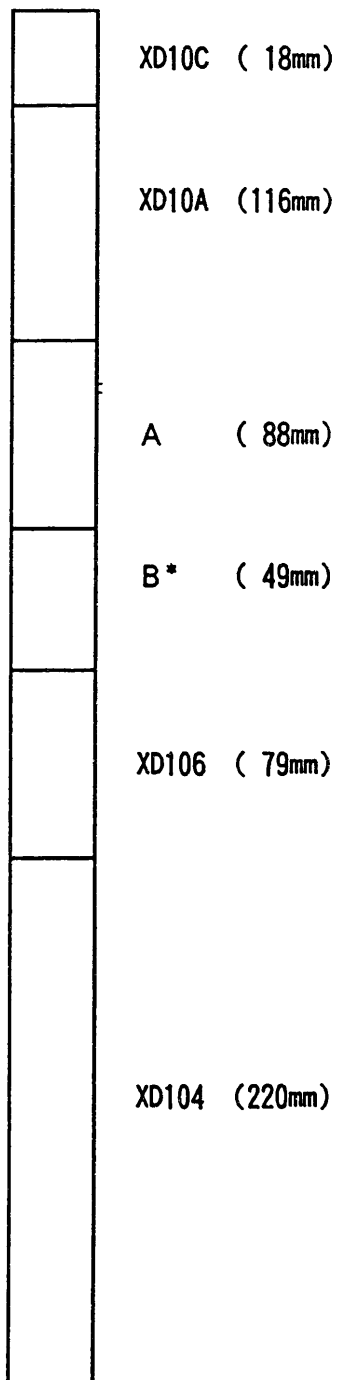
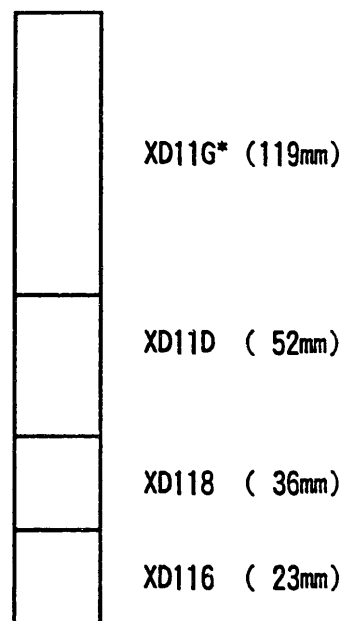


図2 Phenix PNC-3照射リグの炉内装荷位置

小径缶No : D 5 1 2 4
(Core長さ : 570mm)
PinNo : 84K2 (XD10)



小径缶No : D 5 1 2 7
(Core長さ : 230mm)
PinNo : 88S1 (XD11)



* : 曲がり大きい

図3 Phenix PNC-3切断試料のCPFでの受入れ状況

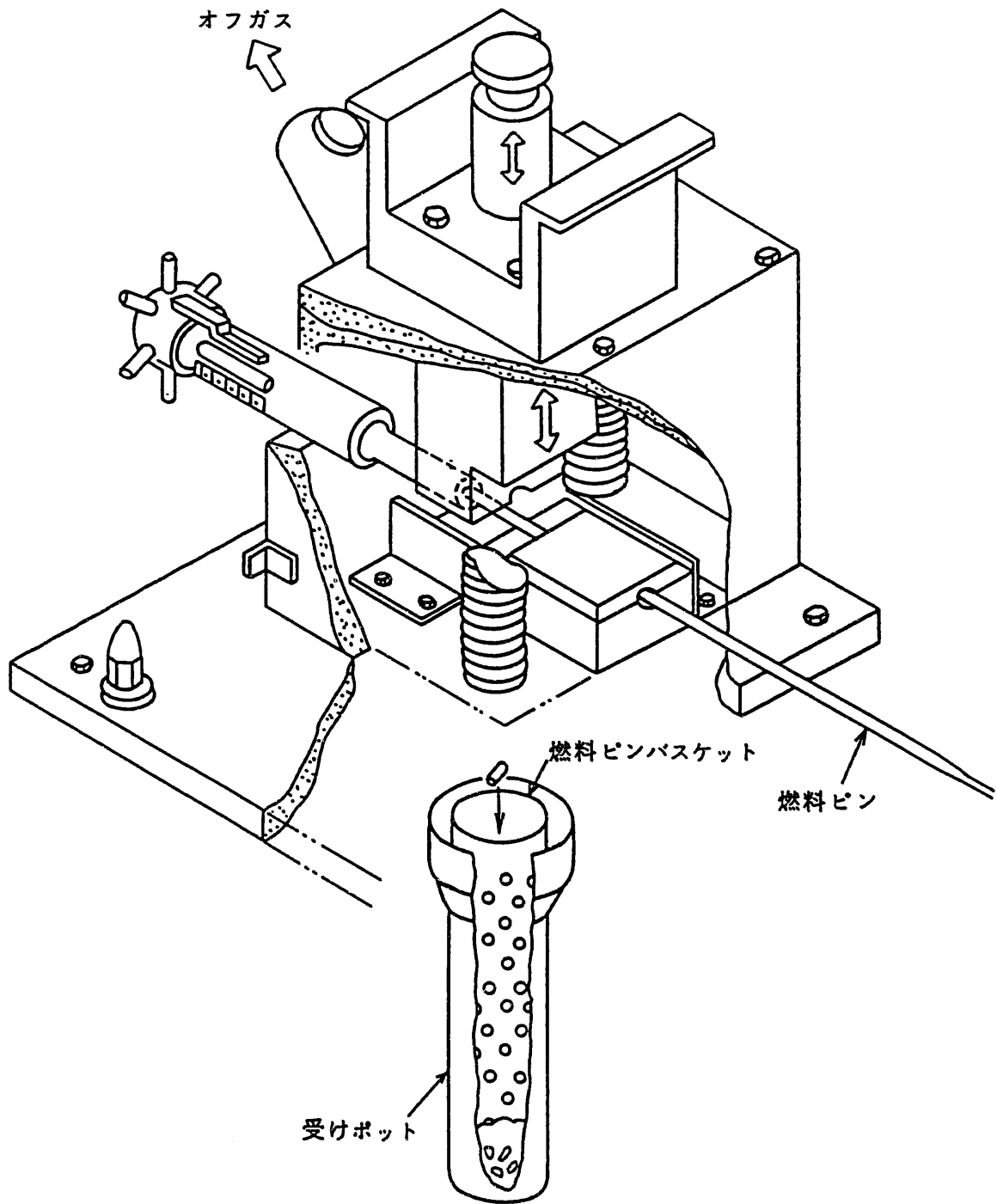


図4 せん断機

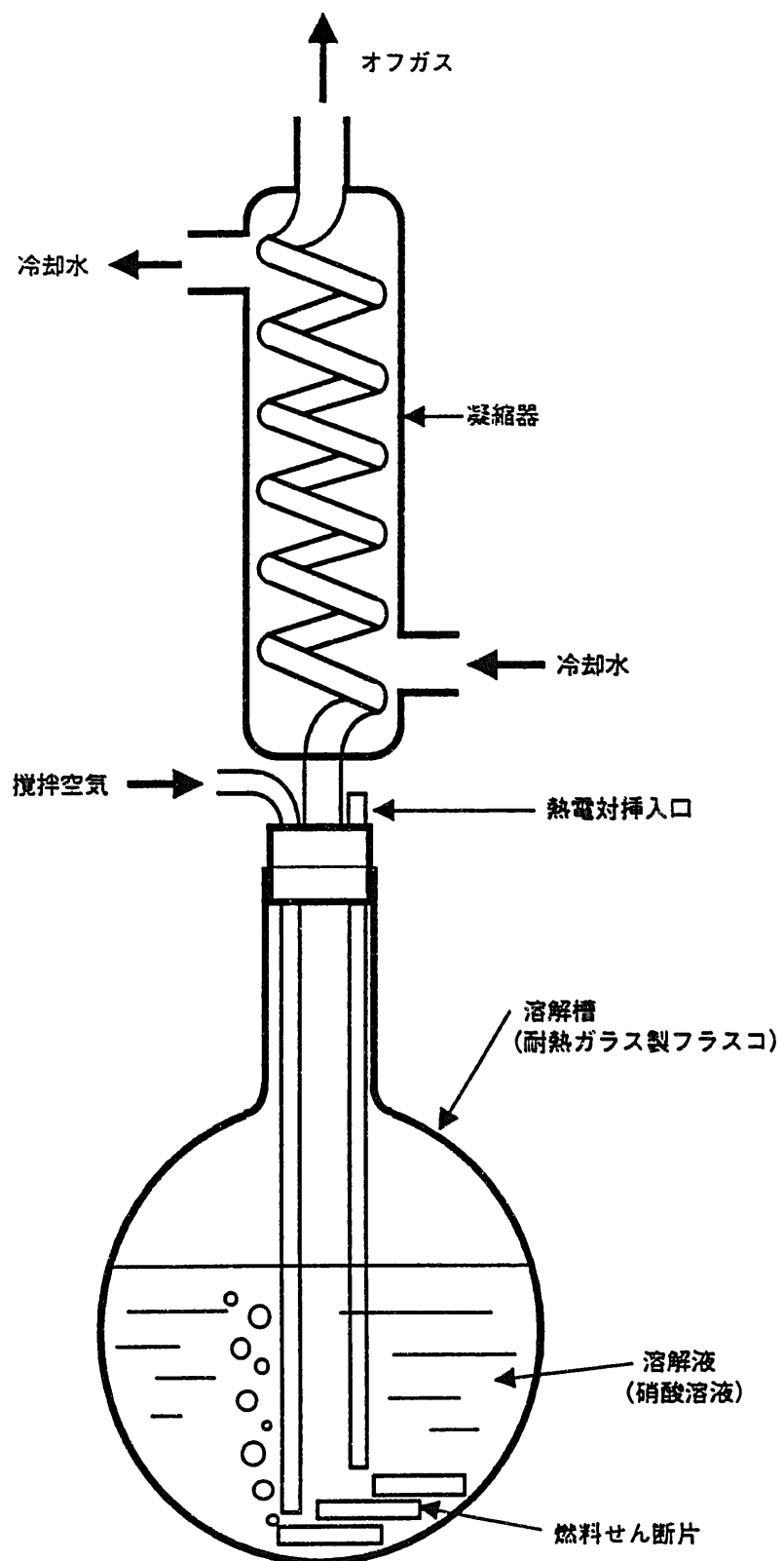


図5 小型溶解試験装置（ビーカースケール）

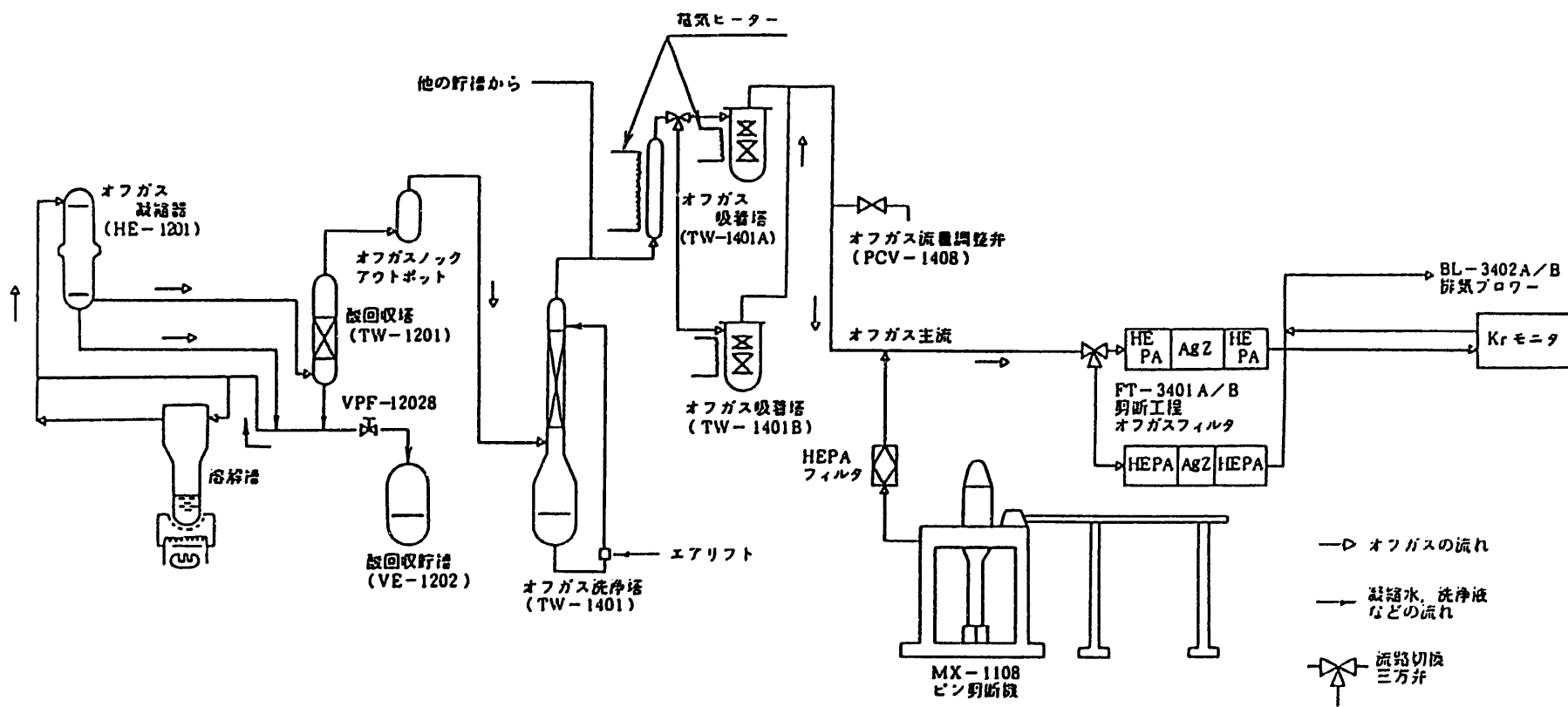


図6 せん断・溶解時のオフガス処理系統及び分析系統図

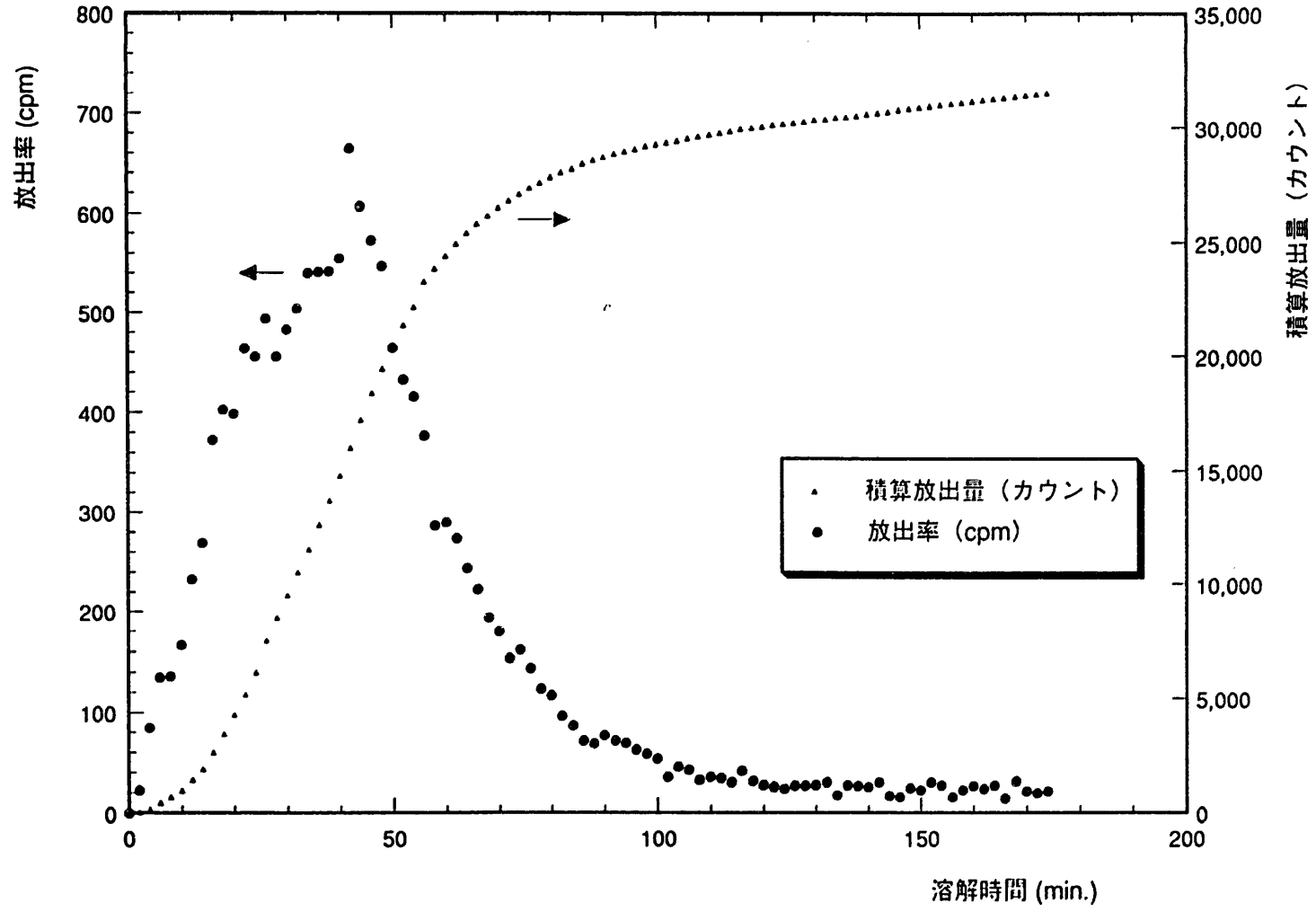
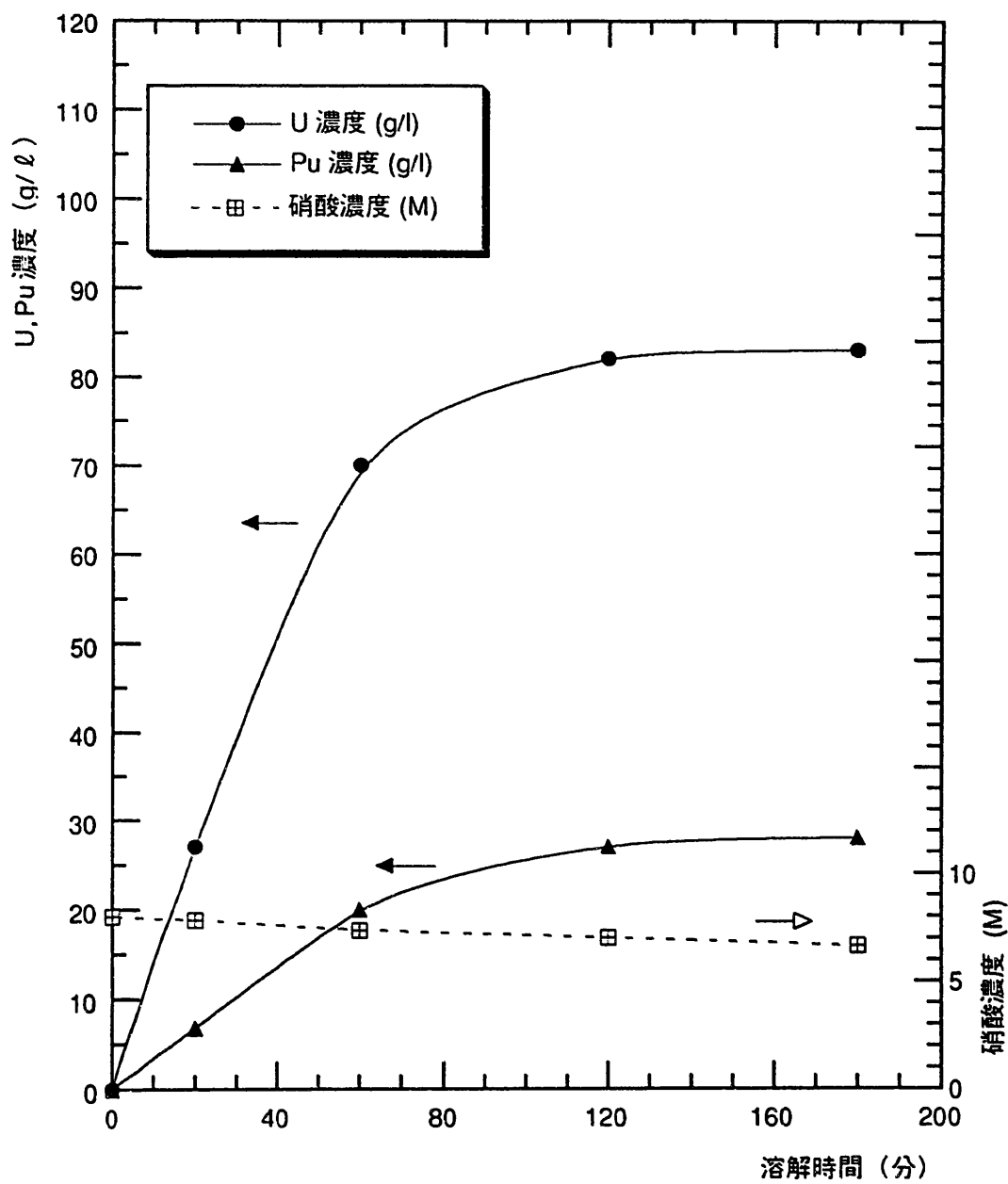
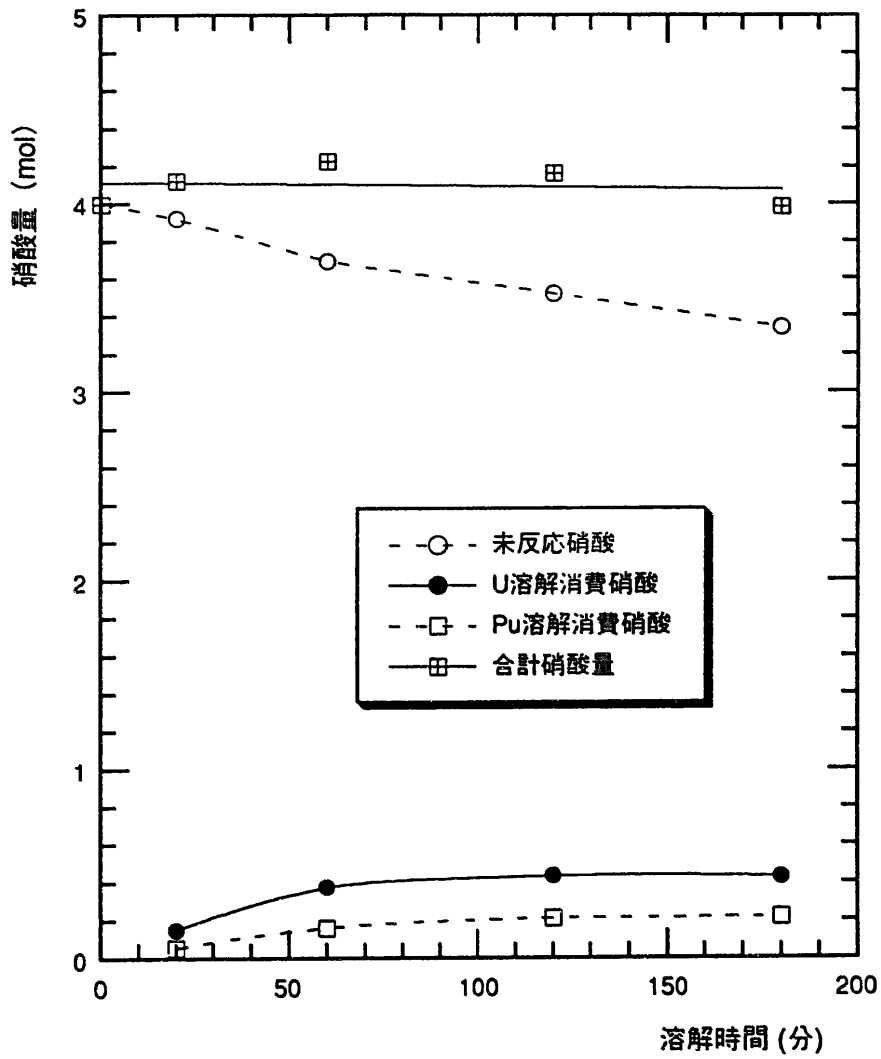


図7 18-1ラン ^{85}Kr 放出状況



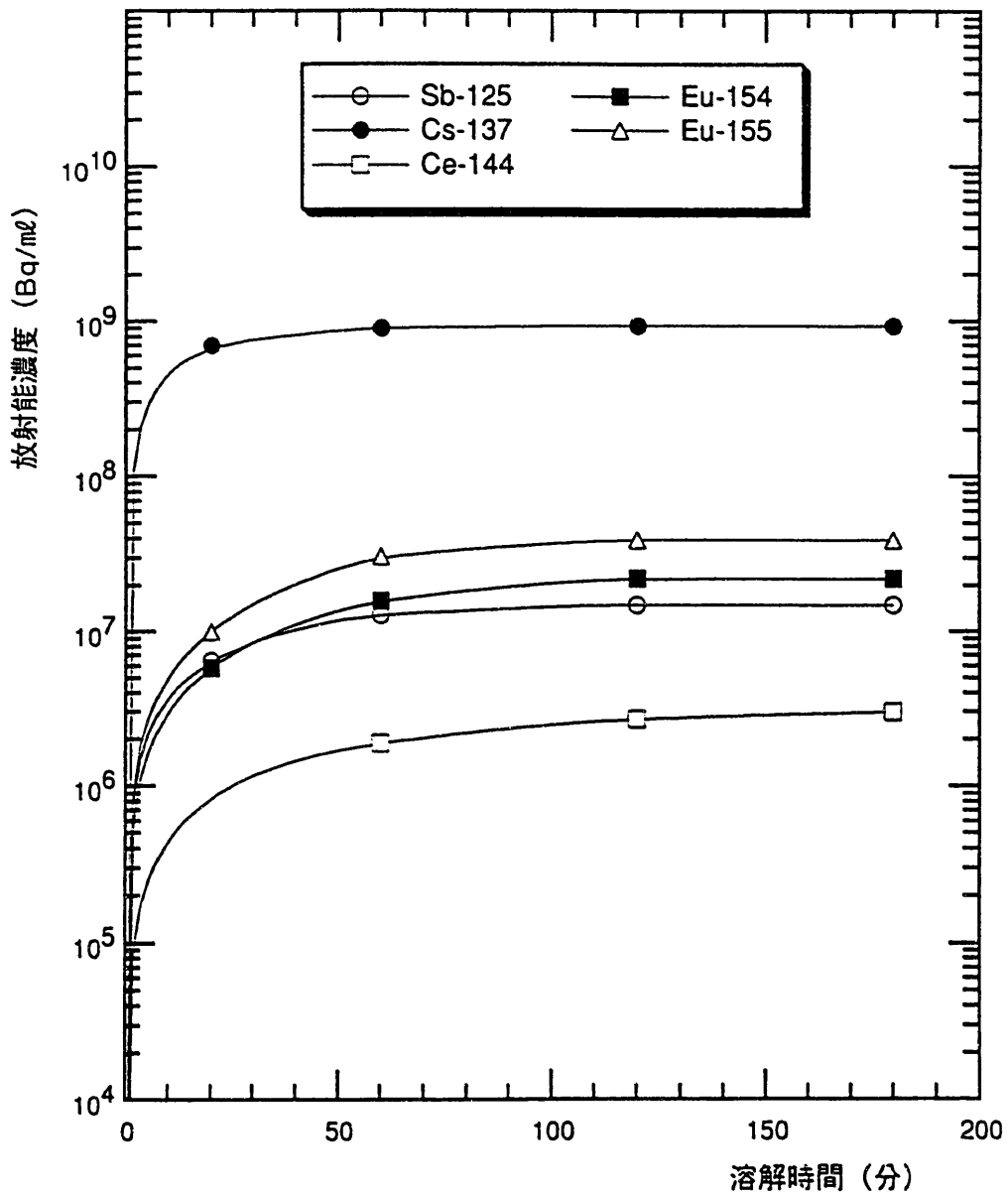
対象燃料：Phenix 燃料,10片 (Pu 富化度：30%)
 平均燃焼度：94,000 MWd/t
 溶解温度：沸点 (113 °C)
 初期溶解液量：500 ml
 初期硝酸濃度：8.0 M
 攪拌エア流量：200cc/min.

図8 18-1ラン溶解試験結果



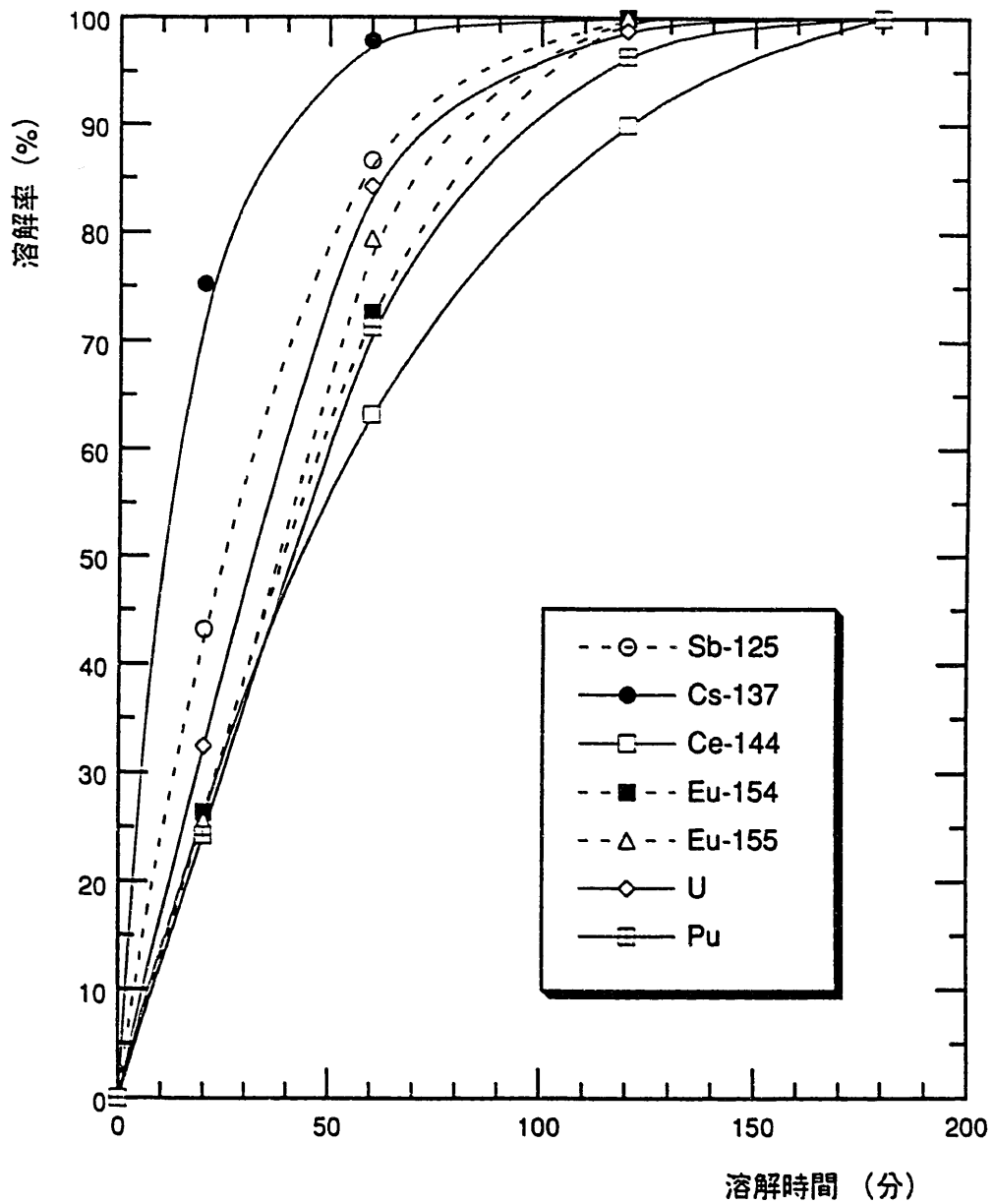
対象燃料：Phenix 燃料, 10片 (Pu富化度：30%)
 平均燃焼度：94,000 MWd/t
 溶解温度：沸点 (113 °C)
 初期溶解液量：500 ml
 初期硝酸濃度：8.0 M
 攪拌エア流量：200 cc/min.

図9 18-1ラン溶解試験時の硝酸収支



対象燃料：Phenix 燃料, 10片 (Pu富化度：30%)
 平均燃焼度：94,000 MWd/t
 溶解温度：沸点 (113 °C)
 初期溶解液量：500 ml
 初期硝酸濃度：8.0 M
 攪拌エア流量：200 cc/min.

図10 18-1 ラン核分裂生成物の溶解挙動



対象燃料：Phenix 燃料, 10片 (Pu富化度：30%)
 平均燃焼度：94,000 MWd/t
 溶解温度：沸点 (113 °C)
 初期溶解液量：500 ml
 初期硝酸濃度：8.0 M
 攪拌エア流量：200 cc/min.

図11 18-1 ラン核分裂生成物の溶解特性

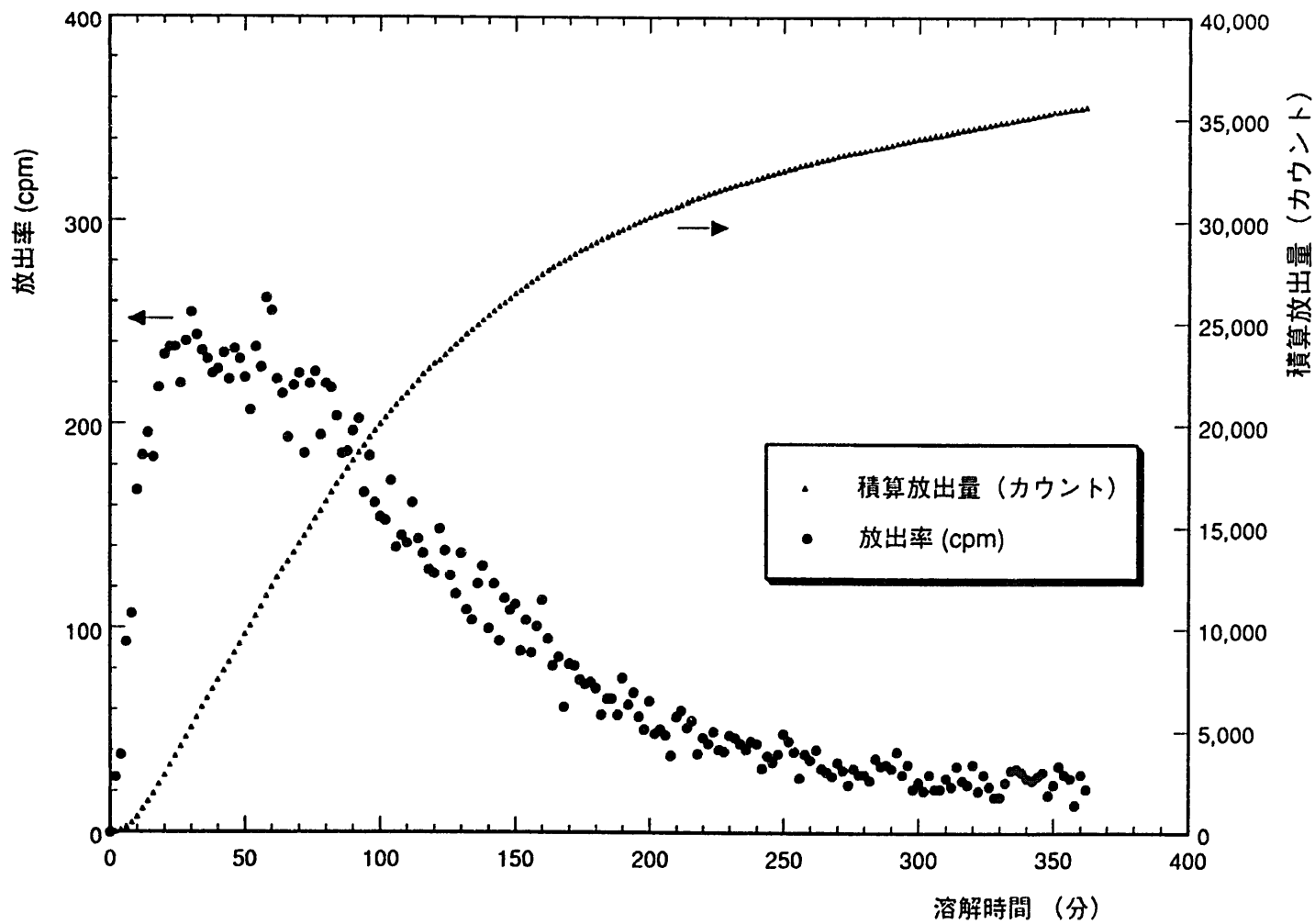
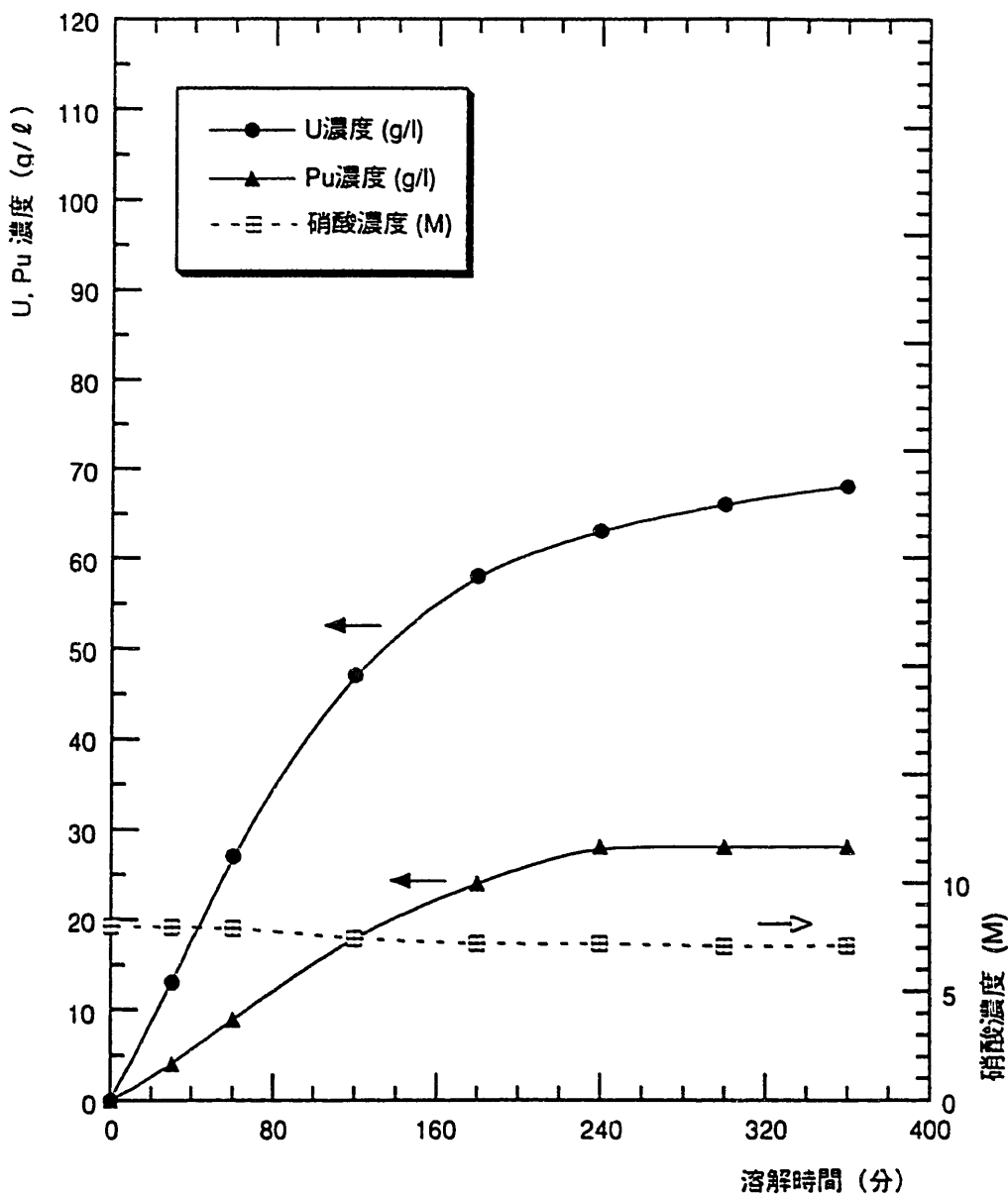
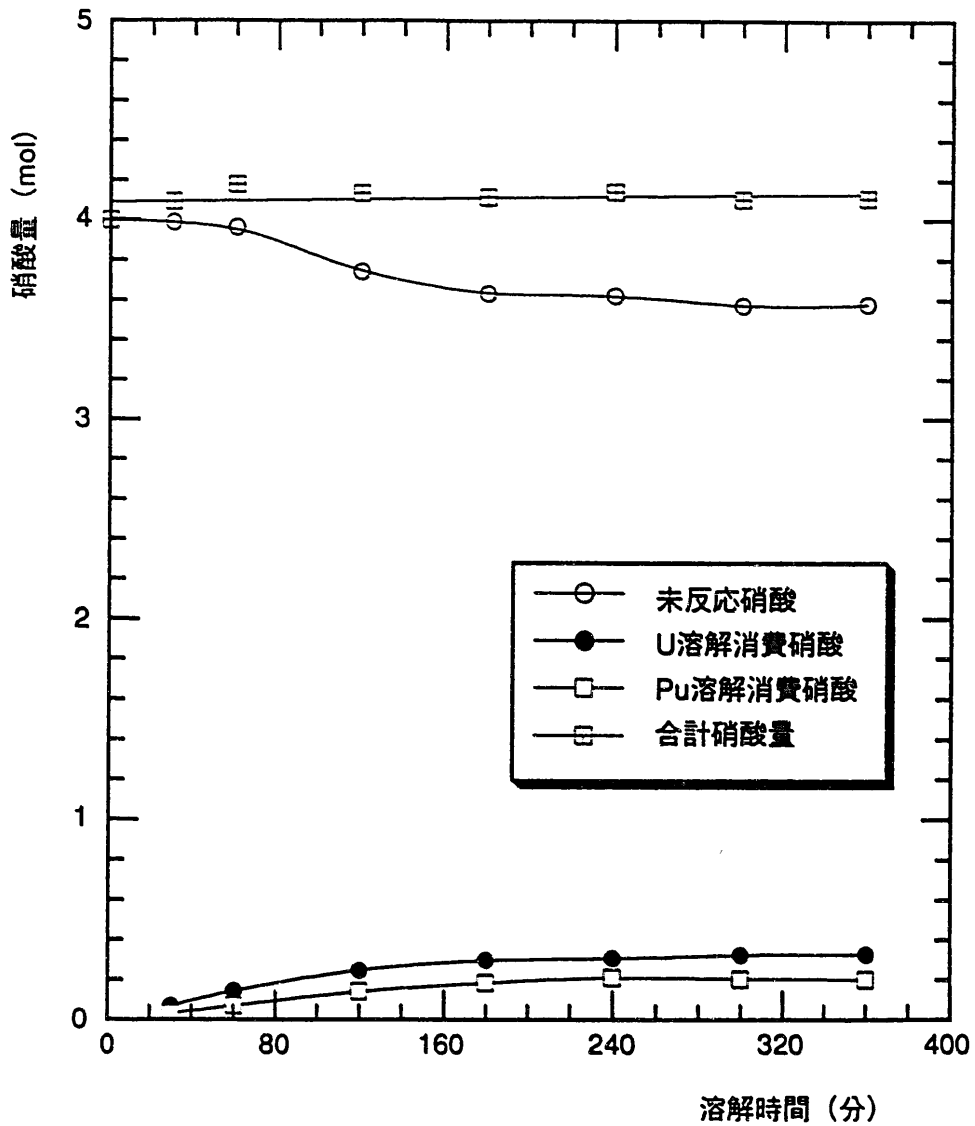


図12 18-2 ラン ^{85}Kr 放出状況



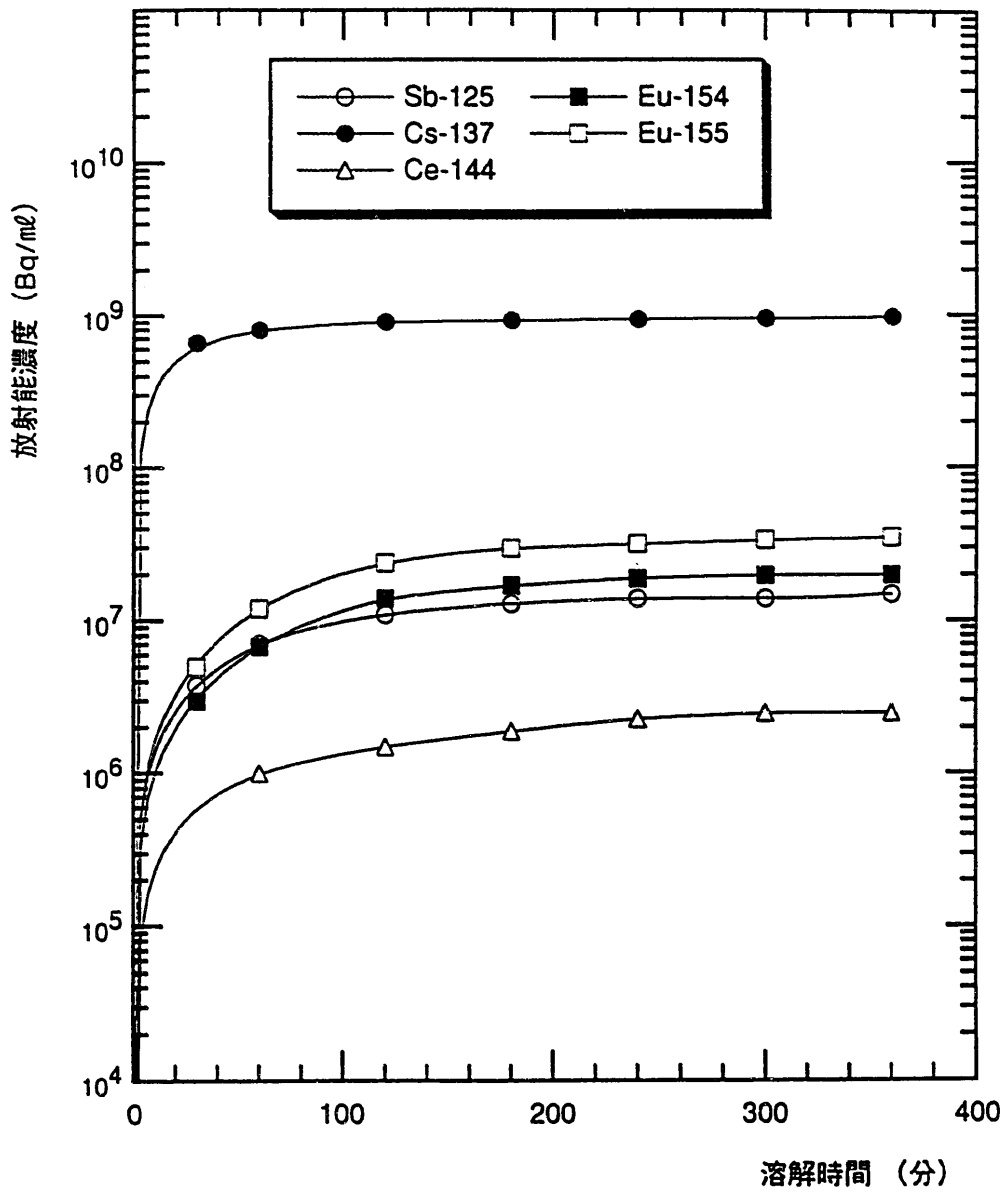
対象燃料：Phenix 燃料, 10片 (Pu 富化度：30%)
 平均燃焼度：94,000 MWd/t
 溶解温度：90 °C
 初期溶解液量：500 ml
 初期硝酸濃度：8.0 M
 攪拌エア流量：200cc/min.

図13 18-2 ラン溶解試験結果



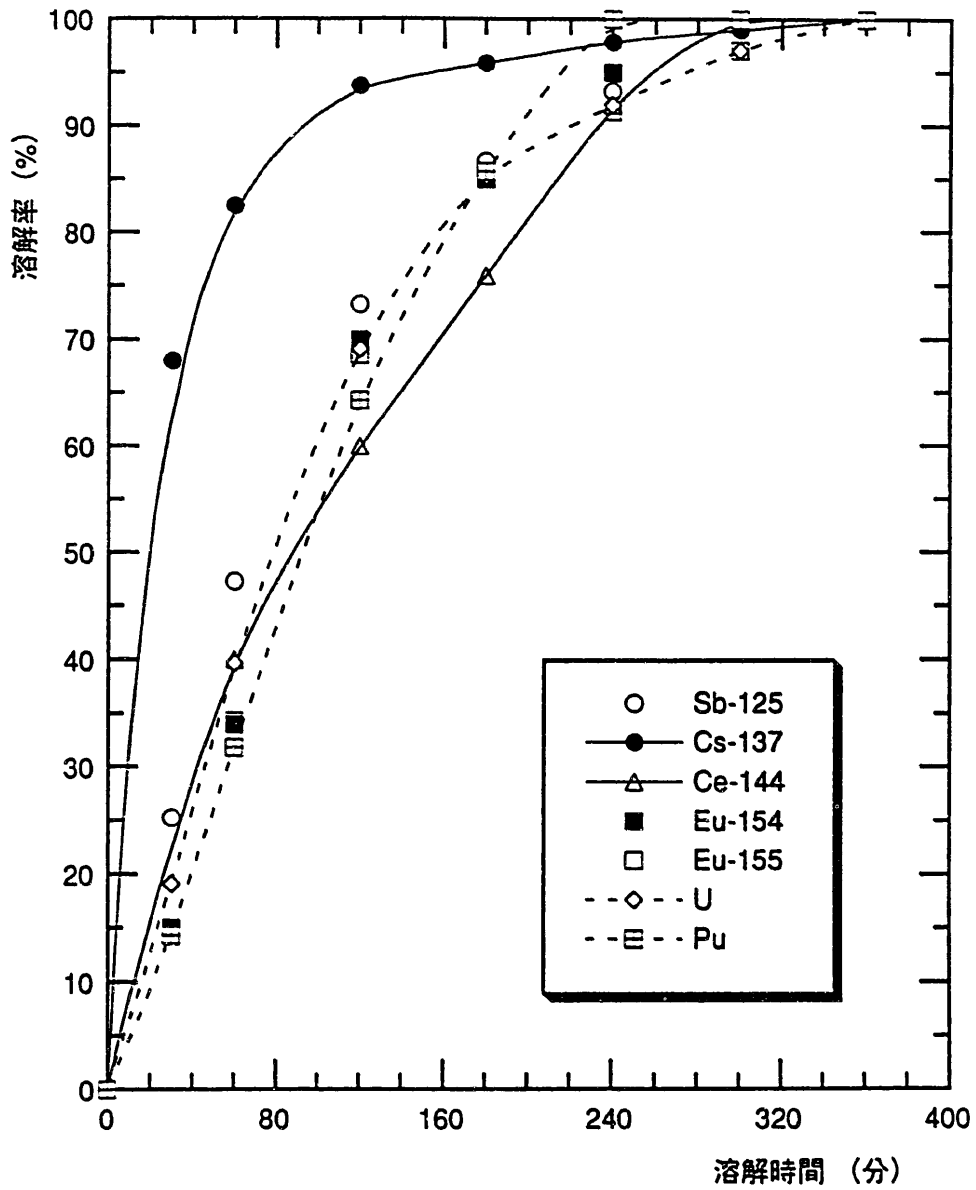
対象燃料：Phenix 燃料, 10 片 (Pu 富化度：30%)
 平均燃焼度：94,000MWd/t
 溶解温度：90 °C
 初期溶解液量：500 ml
 初期硝酸濃度：8.0 M
 攪拌エア流量：200 cc/min.

図14 18-2 ラン溶解試験時の硝酸収支



対象燃料：Phenix 燃料, 10片 (Pu富化度：30%)
 平均燃焼度：94,000 MWd/t
 溶解温度：90 °C
 初期溶解液量：500 ml
 初期硝酸濃度：8.0 M
 攪拌エア流量：200 cc/min.

図15 18-2 ラン核分裂生成物の溶解挙動



対象燃料：Phenix 燃料, 10片 (Pu富化度：30%)
 平均燃焼度：94,000 MWd/t
 溶解温度：90 °C
 初期溶解液量：500 ml
 初期硝酸濃度：8.0 M
 攪拌エア流量：200 cc/min.

図16 18-2 ラン核分裂生成物の溶解特性

溶解

沈 降

洗 浄 (常 温)

乾 燥 (自 然)

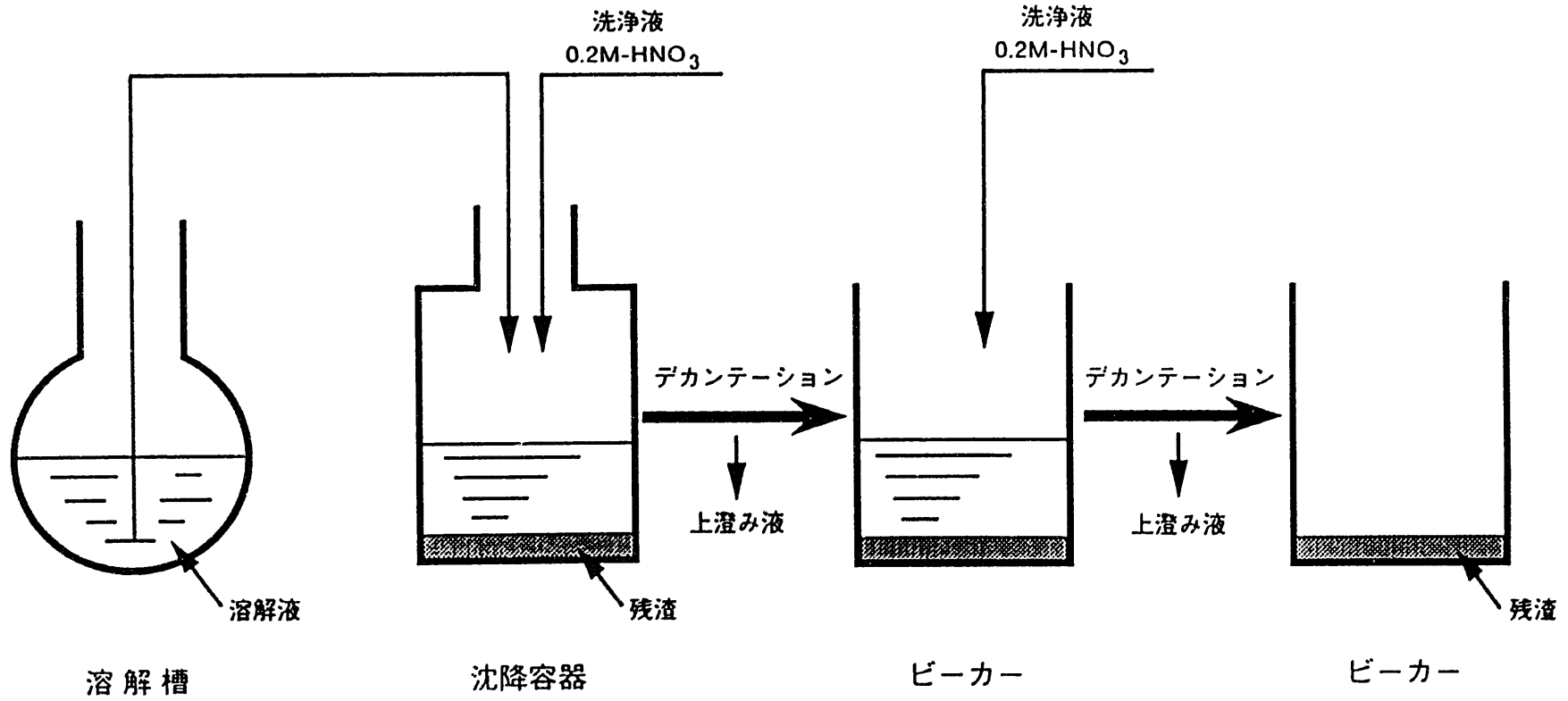


図17 不溶解性残渣回収方法

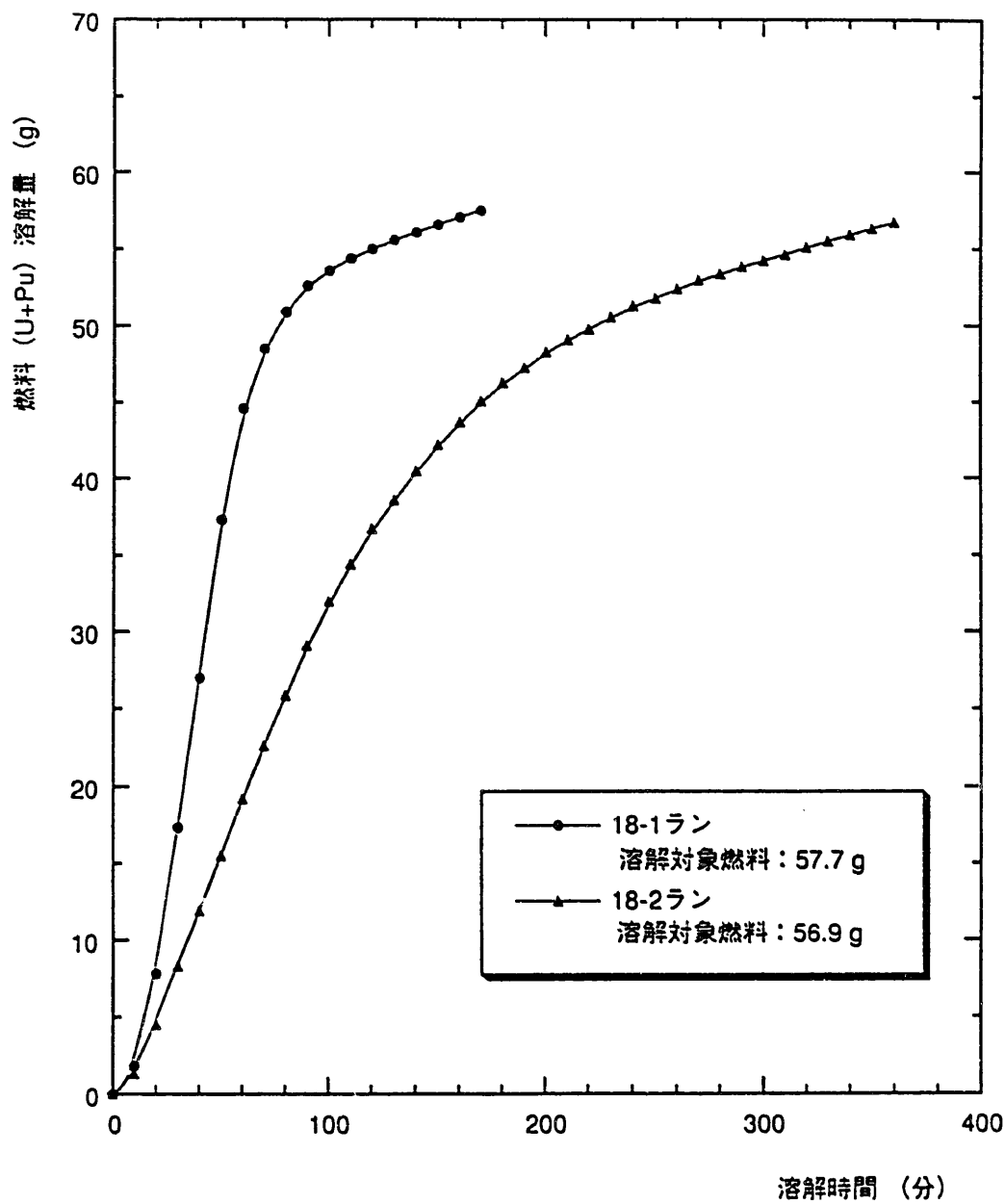
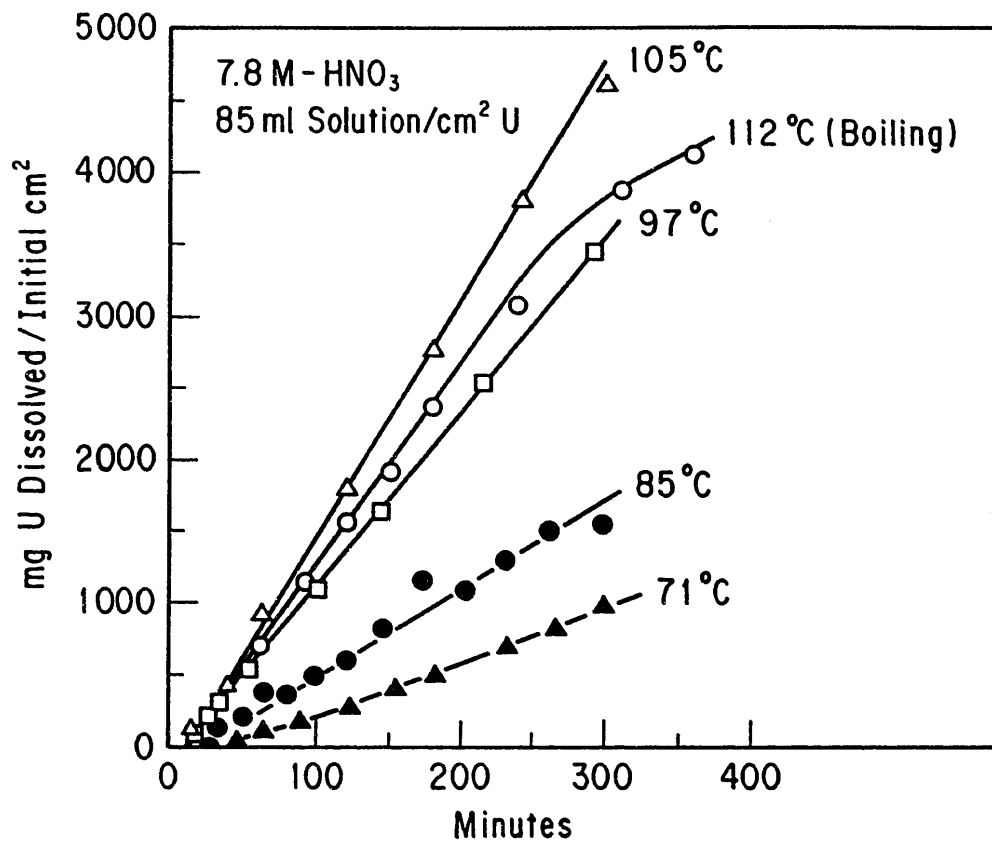


図18 第18回試験溶解特性



☒19 Uranium Dissolution at Different Temperatures⁸⁾

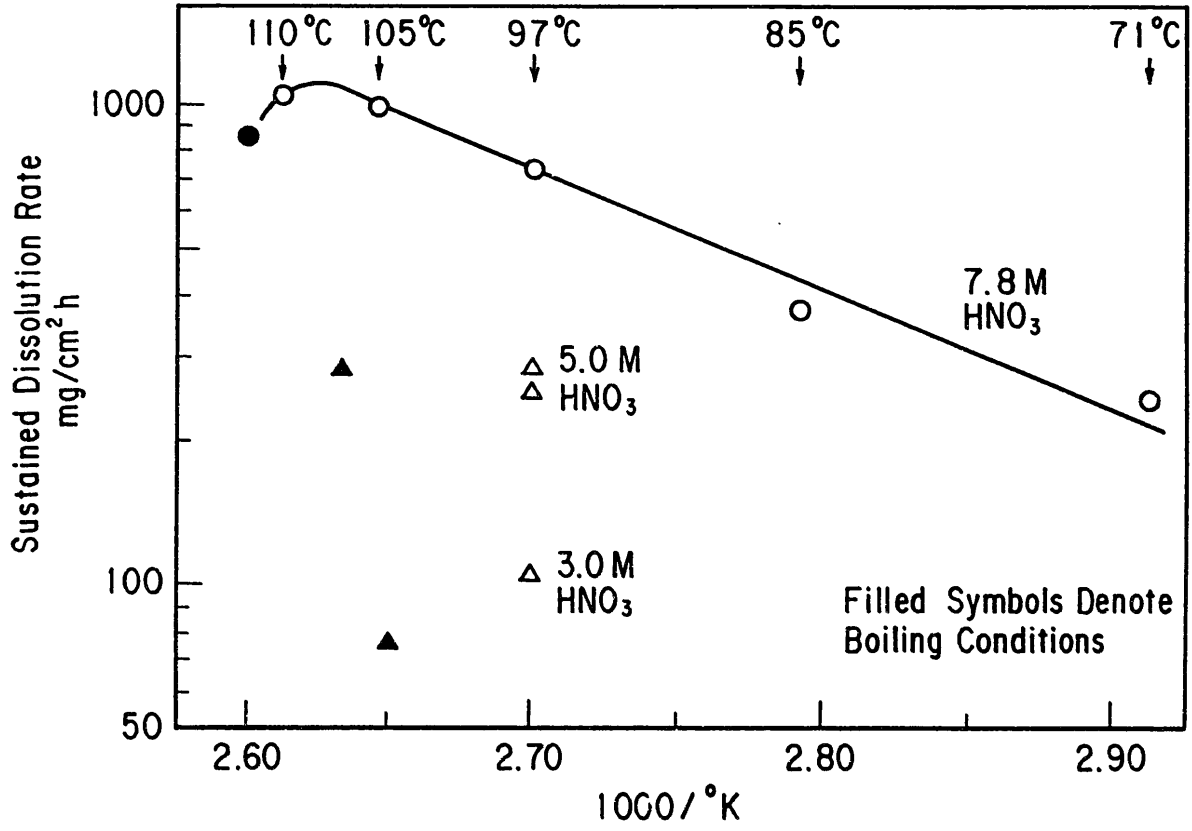
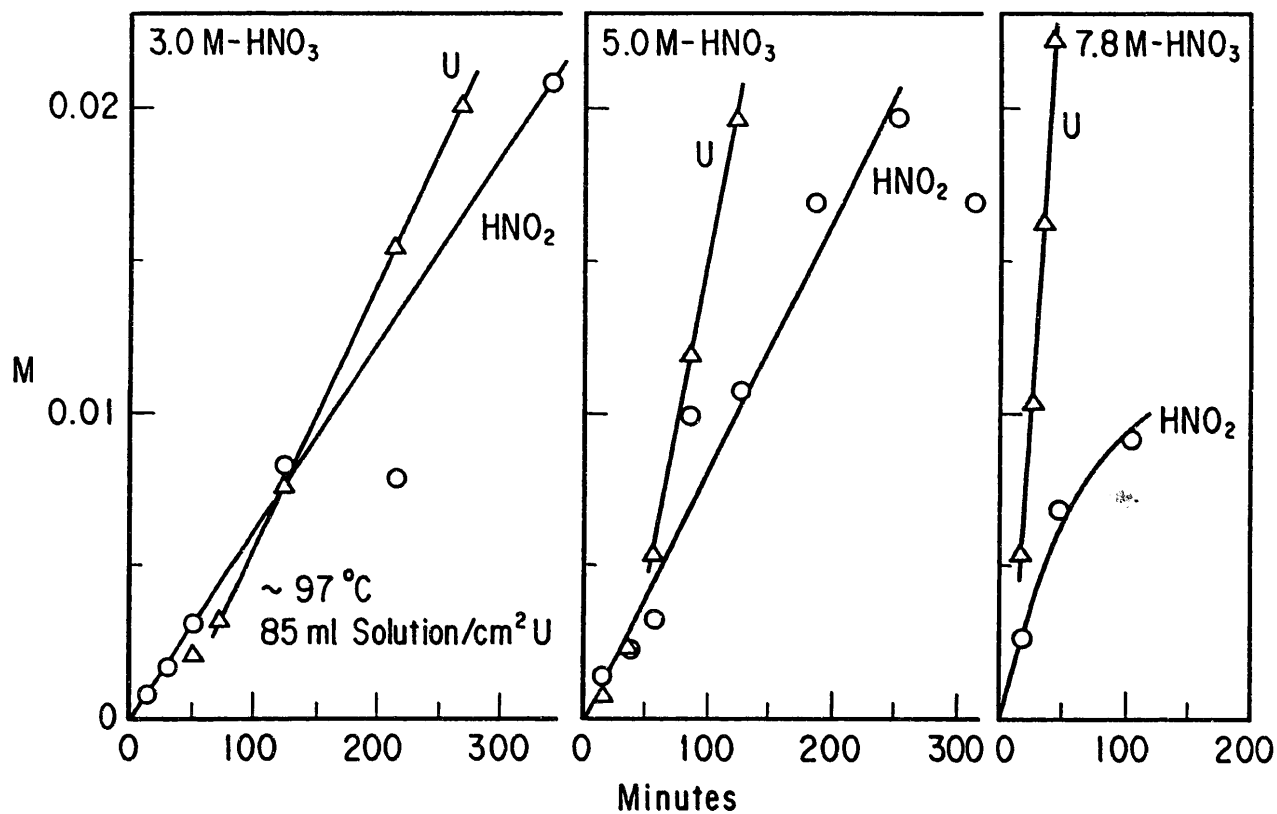
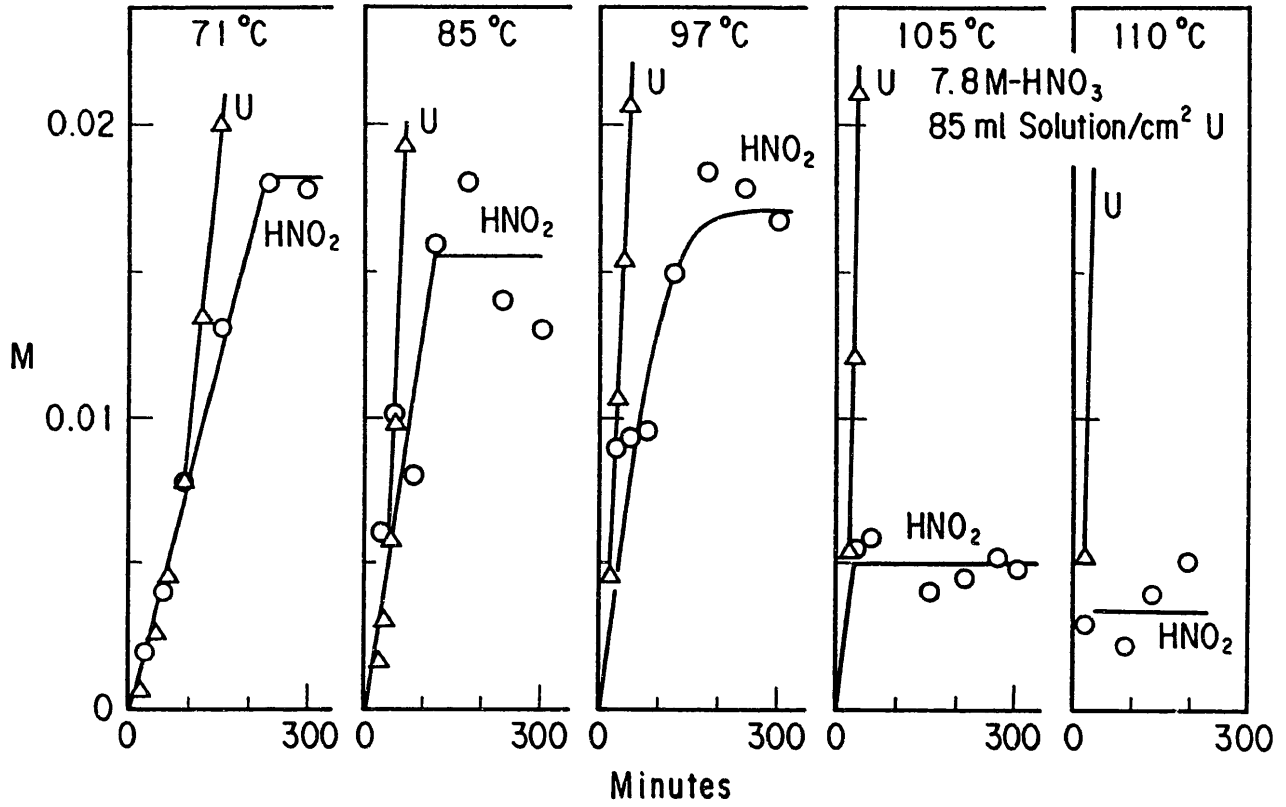


Fig. 20 Effect of Temperature on Uranium Dissolution Rate⁸⁾



21 Nitrous Acid and Uranium Concentrations During Dissolution at Different Acidities⁸⁾



22 Nitrous Acid and Uranium Concentrations During Dissolution at Different Temperatures⁸⁾

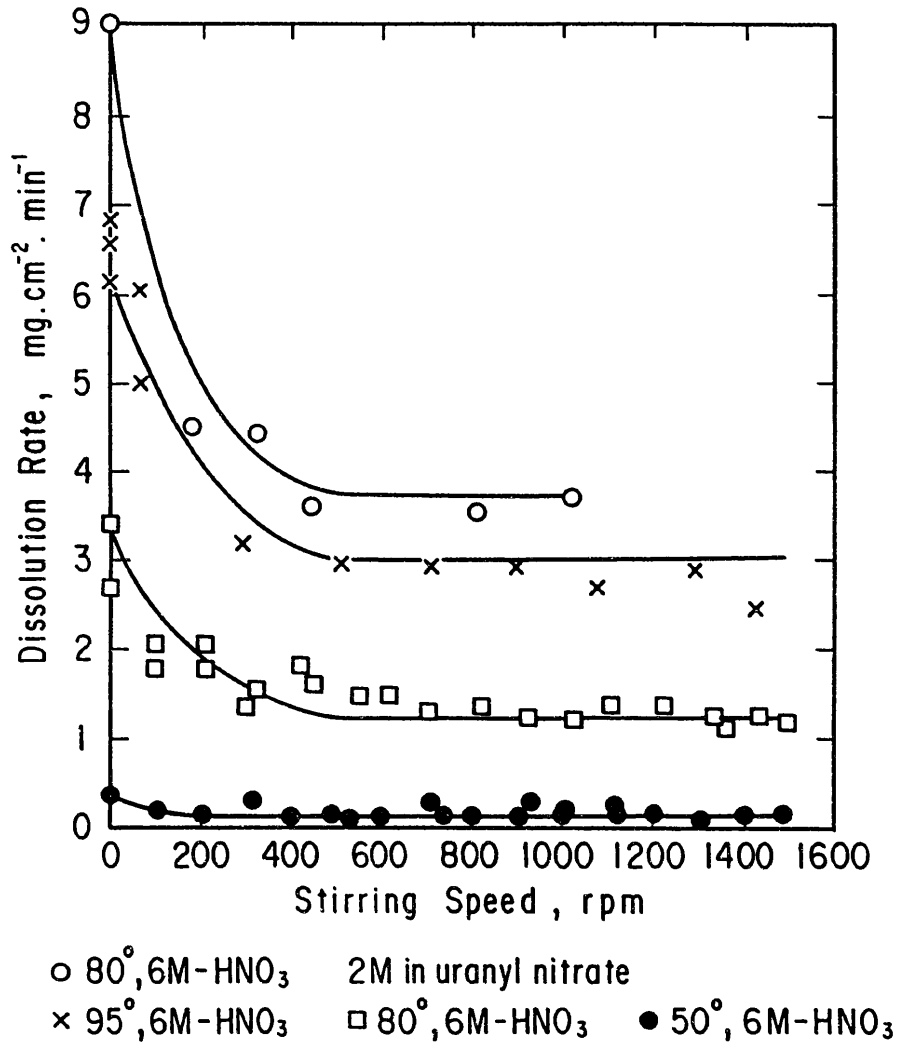
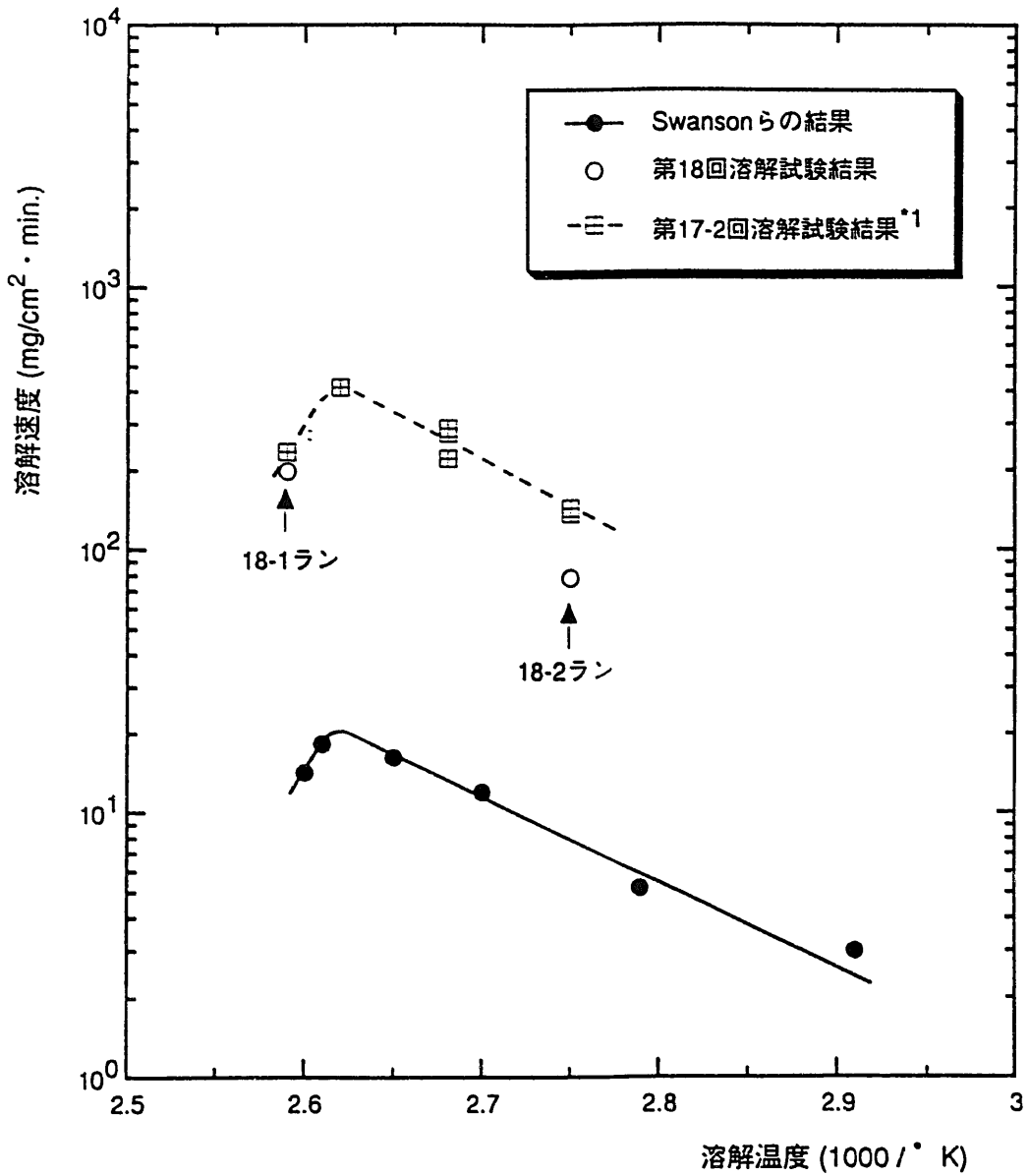


Fig 23 Dissolution rate vs stirring speed for Grade A pellets¹⁰⁾



*1: 対象燃料 ; 「常陽」MK-II C型特殊燃料
平均燃焼度 ; 63,000 MWd/t

図24 溶解速度に与える溶解温度の影響

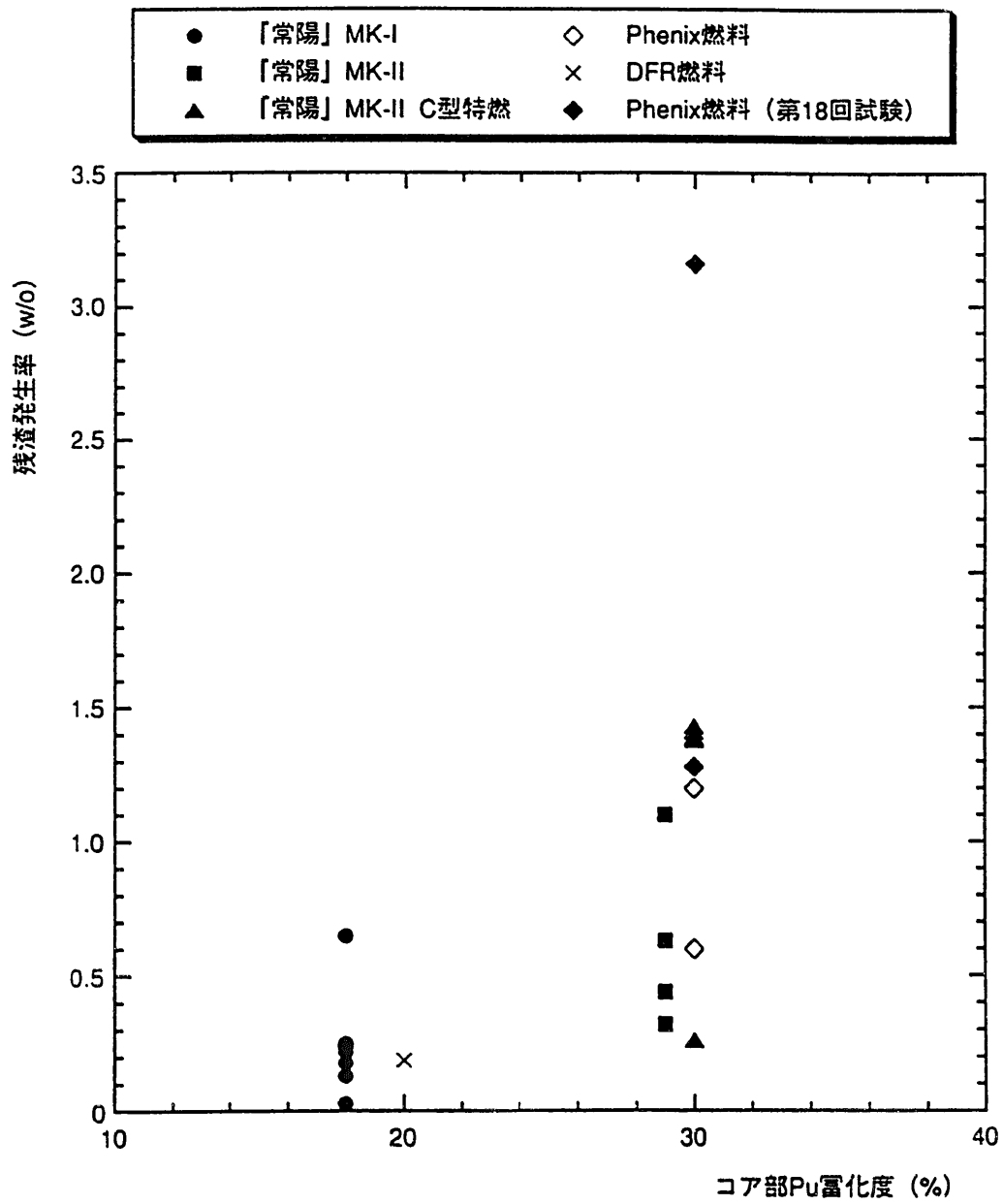
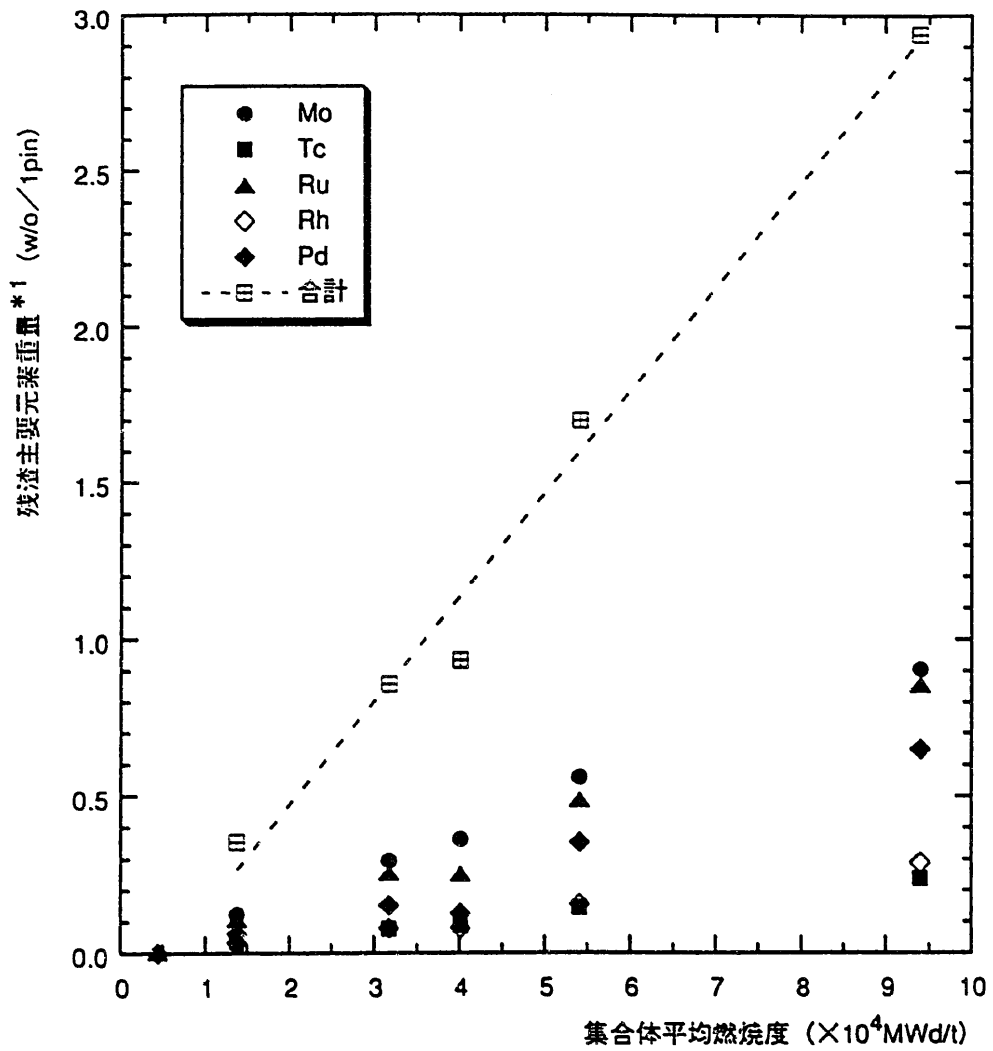
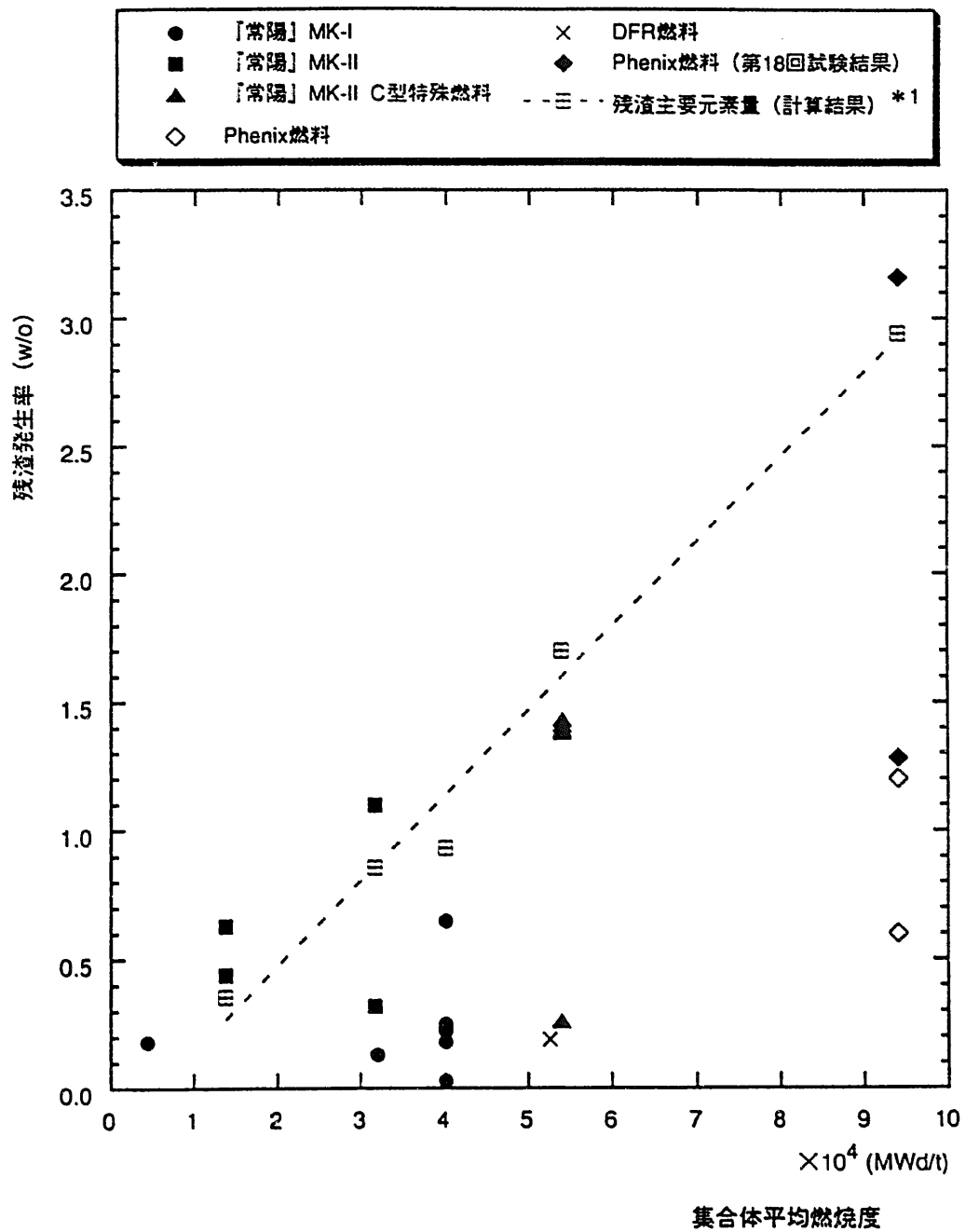


図25 燃料のPu富化度に対する残渣発生率（ホット試験結果）



*1: ORIGINコードによる計算値

図26 燃料燃焼度に対する残渣成分元素の生成量 (計算結果)



* 1 : ORIGINコードによる残渣成分主要元素 (Mo,Ru,Rh,Pd,Tc) 重量の合算値

図27 燃料の平均燃焼度に対する残渣発生率 (試験結果と計算結果との比較)

表1 燃 料 仕 様

| 項 目 | | 仕 様 | |
|---------------------|---------|---|---------------|
| 要 素 Na | | 仏国「Phoenix」炉 照射済燃料ピン, PNC-3 | |
| ピ ン 数 | | 2 ピン相当*1 | |
| 燃 焼 度 | | 94,000 MWd/t (集合体平均) | |
| Pu富化度 (w/o) | | 30 | |
| 核物質質量*2 | | 約 158 g | Pu : 約 47 g |
| | | | 天然ウラン: 約111 g |
| *3 同位体組成 初期値 | Pu % | 238 | 0.1 (0.3) |
| | | 239 | 77.6 (66.8) |
| | | 240 | 18.8 (28.9) |
| | | 241 | 3.1 (3.0) |
| | | 242 | 0.4 (1.1) |
| | | 235 | 0.7 (0.4) |
| | | 238 | 99.3 (99.6) |
| 内蔵放射能量 | | 約 18.8 TBq*4 | |
| 冷却日数 | | 2,675 日 (平成3年6月2日現在) | |
| 炉停止日 | | 昭和59年 3月 5日 | |
| 炉外取り出し日 | | 昭和59年 3月17日 | |
| ペレットデータ | | 混合時間 (機械混合) : 10 hrs 形成圧 : 1.5~3.5 t/cm ² 焼結温度 : 1650 °C 焼結時間 : 2 hrs 焼結雰囲気 : 5%H ₂ -95%N ₂ 焼結密度 : 85.93 %TD PuO ₂ 富化度 : 30 % | |

*1: 大洗工学センター燃料材料開発部において照射後試験を行った残りのコア部燃料切断試料 (試料長さ: 800mm)

*2: 健全ピン2ピン分 (コア部長さ: 1440mm) データより切断試料 (長さ: 800mm) を評価した値

*3: () 内の値はORIGEN 2-M86による冷却後の計算値

*4: 健全ピン2ピンとして総FP量を評価した値

表2 主要核分裂生成物の組成
ORIGEN 2-M86による計算値

| 核 種 | 放射能* ¹ (Bq/ml) |
|------------------------|---------------------------|
| H - 3 | 1.87×10^{10} |
| Kr - 85 | 1.56×10^{11} |
| Sr - 90 | 1.32×10^{12} |
| Y - 90 | 1.32×10^{12} |
| Y - 91 | 5.98×10^{-1} |
| Zr - 95 | 1.64×10^1 |
| Nb - 95 | 5.98×10^1 |
| Ru - 103 | 3.01×10^{-7} |
| Ru - 106 | 2.19×10^{11} |
| Rh - 106 | 2.19×10^{11} |
| I - 129 | 1.31×10^6 |
| I - 131 | — |
| Xe - 131m | — |
| Cs - 137 | 3.63×10^{12} |
| Ba - 137m | 3.44×10^{12} |
| Ce - 144 | 4.62×10^{10} |
| Pr - 144 | 4.62×10^{10} |
| Pm - 147 | 1.47×10^{12} |
| Pu - 239* ² | 9.88×10^{10} |
| Pu - 240* ² | 1.62×10^{11} |
| Pu - 241* ² | 6.96×10^{12} |

*1: 核分裂生成物核種ではないが、主要核種として記載した
*2: 使用した燃料は切断ピンであるが、健全ピンとして評価した

表3 溶解試験に用いた燃料試料のせん断

1. ピンNo: 84K2 (XD10)

| 燃料試料No.*1 | 試料長 | | せん断後燃料片数及び長さ |
|---------------|-------|---|----------------|
| ・XD10C | 18mm | → | 1×18mm*2 |
| ・XD10A | 116mm | → | 3×30mm, 1×26mm |
| ・XD106 | 79mm | → | 1×30mm, 1×49mm |
| ・XD104 | 220mm | → | 6×30mm, 1×40mm |
| ・A | 88mm | → | 2×30mm, 1×28mm |
| ・B | 49mm | → | 1×49mm*2 |
| 合計6試料 (570mm) | | | 合計18片 |

2. ピンNo: 88S1 (XD11)

| 燃料試料No.*1 | 試料長 | | せん断後燃料片数及び長さ |
|---------------|-------|---|----------------|
| ・XD11G | 119mm | → | 3×30mm, 1×29mm |
| ・XD11D | 52mm | → | 1×30mm, 1×22mm |
| ・XD118 | 36mm | → | 1×36mm*2 |
| ・XD116 | 23mm | → | 1×23mm*2 |
| 合計4試料 (230mm) | | | 合計8片 |

3. せん断後燃料片

| |
|-------------------|
| 1 × 18mm |
| 1 × 22mm |
| 1 × 23mm |
| 1 × 26mm |
| 1 × 28mm |
| 1 × 29mm |
| 16 × 30mm (内4片*3) |
| 1 × 36mm |
| 1 × 40mm |
| 1 × 49mm*3 |
| 1 × 51mm*3 |
| 合計26片 |

4. 溶解試験に用いた燃料片*4

| 18-1ラン | 18-2ラン |
|---------------|---------------|
| 1×36mm | 1×40mm |
| 6×30mm | 6×30mm |
| 1×28mm | 1×29mm |
| 1×26mm | 1×22mm |
| 1×23mm | 1×18mm |
| 合計10片 (293mm) | 合計10片 (289mm) |

注 *1: 燃料受入れ時の燃料試料No
 *2: 試料長さが不十分であったため、未せん断
 *3: 他の試験に流用
 *4: ピンNo 84K2と88S1の燃料せん断片が混合した状態で各溶解試験を実施

表4 溶解試験条件

| 試験 No | | 18-1ラン | 18-2ラン |
|----------------|-------|---|---------------------------|
| 試験実施日 | | 平成4年11月19日 | 平成4年12月9日 |
| 対象燃料 | 種類 | 仏国「Phoenix」炉 照射済燃料ピン, PNC-3 | |
| | 燃焼度 | 94,000 MWd/t (集合体平均) | |
| | Pu富化度 | 30 w/o | |
| 装荷量 | 核物質質量 | 約 57.7 g | 約 56.9 g |
| | Pu | 約 17.3 g | 約 17.1 g |
| | U | 約 40.4 g | 約 39.8 g |
| せん断片数 (せん断片全長) | | 10片 (293mm) | 10片 (289mm) |
| 硝酸濃度 | 初期 | 8.0 M | 8.0 M |
| | 終期 | 6.64 M | 7.10 M |
| 溶解液量 | 初期 | 500 ml | 500 ml |
| | 終期 | 458 ml | 430 ml |
| 溶解温度 | | 113℃ (沸点) | 90℃ |
| 溶解時間 | | 180分 | 360分 |
| 反応表面積 | | 4.93cm ² (10片) | 4.93cm ² (10片) |
| 攪拌空気流量 | | 200 cc/min. | 200 cc/min. |
| 測定対象 | | <ul style="list-style-type: none"> • Pu濃度 (溶解液中濃度) • U濃度 (溶解液中濃度) • 硝酸濃度 (溶解液中濃度) • FP濃度 (溶解液中濃度) • ⁸⁵Kr放出量 (Krモニターによるオフガス中放出量) | |

表5 18-1ラン溶解試験結果

| 溶解時間 (min.) | 溶解率*1 (%) | U溶解量 (g/l) | | Pu溶解量 (g/l) | | 硝酸濃度 (M) | |
|----------------|--------------|------------|------|-------------|------|----------|------|
| | | 計算値 | 測定値 | 計算値 | 測定値 | 計算値 | 測定値 |
| 0 | 0.0 | 0.0 | — | 0.0 | — | 8.0 | — |
| 20 | 30.5 | 11.1 | 27.0 | 4.6 | 6.8 | 8.0 | 7.84 |
| 60 | 81.1 | 48.0 | 70.0 | 20.1 | 20.0 | 7.8 | 7.37 |
| 120 | 99.1 | 70.1 | 82.0 | 29.4 | 28.0 | 7.6 | 7.02 |
| 180 | 100.0 | 73.8 | 83.0 | 30.9 | 28.0 | 7.6 | 6.64 |

*1: 溶解180分後のU+Pu溶解量(測定値)を100%として算出した。

表6 18-1ラン溶解時の硝酸収支

| 溶解時間 (min.) | 溶解液中の硝酸量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 | 4.00 | — | 4.00 | — | — | 4.00 |
| 20 | 3.84 | 0.08 | 3.92 | 0.15 | 0.06 | 4.12 |
| | | 0.08 | | | | |
| 60 | 3.54 | 0.07 | 3.69 | 0.38 | 0.16 | 4.23 |
| | | 0.15 | | | | |
| 120 | 3.30 | 0.07 | 3.52 | 0.43 | 0.21 | 4.17 |
| | | 0.22 | | | | |
| 180 | 3.05 | 0.07 | 3.34 | 0.43 | 0.22 | 3.99 |
| | | 0.29 | | | | |

対象燃料 : Phenix燃料, 10片 (Pu富化度 : 30%)
 平均燃焼度 : 94,000 MWd/t
 溶解温度 : 113 °C (沸点)
 初期溶解液量 : 500 ml
 初期硝酸濃度 : 8.0 M
 攪拌エア流量 : 200 cc/min.

表7 18-1ラン核分裂生成物の溶解特性

| 溶解時間 (min.) | ¹²⁵ Sb | | ¹³⁷ Cs | | ¹⁴⁴ Ce | | ¹⁵⁴ Eu | | ¹⁵⁵ Eu | |
|----------------|----------------------|------------|----------------------|------------|----------------------|------------|----------------------|------------|----------------------|------------|
| | 溶解量 (Bq/ml) | 溶解率 (%) | 溶解量 (Bq/ml) | 溶解率 (%) | 溶解量 (Bq/ml) | 溶解率 (%) | 溶解量 (Bq/ml) | 溶解率 (%) | 溶解量 (Bq/ml) | 溶解率 (%) |
| 0 | — | — | — | — | — | — | — | — | — | — |
| 20 | 6.50×10 ⁶ | 43.3 | 7.00×10 ⁶ | 75.3 | — | — | 5.80×10 ⁶ | 26.4 | 1.00×10 ⁷ | 25.6 |
| 60 | 1.30×10 ⁷ | 86.7 | 9.10×10 ⁶ | 97.8 | 1.90×10 ⁶ | 63.3 | 1.60×10 ⁷ | 72.7 | 3.10×10 ⁷ | 79.5 |
| 120 | 1.50×10 ⁷ | 100.0 | 9.30×10 ⁶ | 100.0 | 2.70×10 ⁶ | 90.0 | 2.20×10 ⁷ | 100.0 | 3.90×10 ⁷ | 100.0 |
| 180 | 1.50×10 ⁷ | 100.0 | 9.30×10 ⁶ | 100.0 | 3.00×10 ⁶ | 100.0 | 2.20×10 ⁷ | 100.0 | 3.90×10 ⁷ | 100.0 |

対象燃料 : Phenix燃料, 10片 (Pu富化度: 30%)
 平均燃焼度 : 94,000 MWd/t
 溶解温度 : 113 °C (沸点)
 初期溶解液量 : 500 ml
 初期硝酸濃度 : 8.0 M
 攪拌エア流量 : 200 cc/min.

表 8 18-2 ラン溶解試験結果

| 溶解時間 (min.) | 溶解率*1 (%) | U溶解量 (g/l) | | Pu溶解量 (g/l) | | 硝酸濃度 (M) | |
|----------------|--------------|------------|------|-------------|------|----------|------|
| | | 計算値 | 測定値 | 計算値 | 測定値 | 計算値 | 測定値 |
| 0 | 0.0 | 0.0 | — | 0.0 | — | 8.00 | — |
| 30 | 17.7 | 10.9 | 13.0 | 4.6 | 4.0 | 7.93 | 7.98 |
| 60 | 37.4 | 25.3 | 27.0 | 10.6 | 8.9 | 7.85 | 7.93 |
| 120 | 67.7 | 48.4 | 47.0 | 20.3 | 18.0 | 7.71 | 7.47 |
| 180 | 85.4 | 61.2 | 58.0 | 25.7 | 24.0 | 7.63 | 7.23 |
| 240 | 92.7 | 67.7 | 61.0 | 28.4 | 28.0 | 7.60 | 7.21 |
| 300 | 97.9 | 71.8 | 66.0 | 30.1 | 28.0 | 7.57 | 7.12 |
| 360 | 100.0 | 75.0 | 68.0 | 31.5 | 28.0 | 7.55 | 7.10 |

*1 : 溶解360分後のU + Pu溶解量 (測定値) を100%として算出した。

表9 18-2ラン溶解時の硝酸収支

| 溶解時間 (min.) | 溶解液中の硝酸量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 | 4.00 | — | 4.00 | — | — | 4.00 |
| 30 | 3.91 | 0.08 | 3.99 | 0.07 | 0.03 | 3.90 |
| | | 0.08 | | | | |
| 60 | 3.81 | 0.08 | 3.97 | 0.15 | 0.07 | 4.18 |
| | | 0.16 | | | | |
| 120 | 3.51 | 0.08 | 3.75 | 0.25 | 0.14 | 4.14 |
| | | 0.24 | | | | |
| 180 | 3.33 | 0.07 | 3.63 | 0.30 | 0.19 | 4.12 |
| | | 0.31 | | | | |
| 240 | 3.25 | 0.07 | 3.62 | 0.31 | 0.21 | 4.14 |
| | | 0.38 | | | | |
| 300 | 3.12 | 0.07 | 3.57 | 0.33 | 0.21 | 4.10 |
| | | 0.45 | | | | |
| 360 | 3.06 | 0.07 | 3.58 | 0.33 | 0.20 | 4.11 |
| | | 0.52 | | | | |

対象燃料 : PNC TN8410 95-056 度 : 30%)
 平均燃焼度 :
 溶解温度 : 90 °C
 初期溶解液量 : 500 ml
 初期硝酸濃度 : 8.0 M
 攪拌エア流量 : 200 cc/min.

表10 18-2ラン核分裂生成物の溶解特性

| 溶解時間 (min.) | ¹²⁵ Sb | | ¹³⁷ Cs | | ¹⁴⁴ Ce | | ¹⁵⁴ Eu | | ¹⁵⁵ Eu | |
|----------------|----------------------|------------|----------------------|------------|----------------------|------------|----------------------|------------|----------------------|------------|
| | 溶解量 (Bq/ml) | 溶解率 (%) | 溶解量 (Bq/ml) | 溶解率 (%) | 溶解量 (Bq/ml) | 溶解率 (%) | 溶解量 (Bq/ml) | 溶解率 (%) | 溶解量 (Bq/ml) | 溶解率 (%) |
| 0 | — | — | — | — | — | — | — | — | — | — |
| 20 | 3.80×10 ⁶ | 25.3 | 6.60×10 ⁶ | 68.0 | — | — | 3.00×10 ⁶ | 15.0 | 5.00×10 ⁶ | 14.3 |
| 60 | 7.10×10 ⁶ | 47.3 | 8.00×10 ⁶ | 82.5 | 1.00×10 ⁶ | 40.0 | 6.80×10 ⁶ | 34.0 | 1.20×10 ⁷ | 34.3 |
| 120 | 1.10×10 ⁷ | 73.3 | 9.10×10 ⁶ | 93.8 | 1.20×10 ⁶ | 48.0 | 1.40×10 ⁷ | 70.0 | 2.40×10 ⁷ | 68.6 |
| 180 | 1.30×10 ⁷ | 86.7 | 9.30×10 ⁶ | 95.9 | 1.90×10 ⁶ | 76.0 | 1.70×10 ⁷ | 85.0 | 3.00×10 ⁷ | 85.7 |
| 240 | 1.40×10 ⁷ | 93.3 | 9.50×10 ⁶ | 97.9 | 2.30×10 ⁶ | 92.0 | 1.90×10 ⁷ | 95.0 | 3.20×10 ⁷ | 91.4 |
| 300 | 1.40×10 ⁷ | 93.3 | 9.60×10 ⁶ | 99.0 | 2.50×10 ⁶ | 100.0 | 2.00×10 ⁷ | 100.0 | 3.40×10 ⁷ | 97.1 |
| 360 | 1.50×10 ⁷ | 100.0 | 9.70×10 ⁶ | 100.0 | 2.50×10 ⁶ | 100.0 | 2.00×10 ⁷ | 100.0 | 3.50×10 ⁷ | 100.0 |

対象燃料 : Phenix燃料, 10片 (Pu富化度 : 30%)
 平均燃焼度 : 94,000 MWd/t
 溶解温度 : 90 °C
 初期溶解液量 : 500 ml
 初期硝酸濃度 : 8.0 M
 攪拌エア流量 : 200 cc/min.

表11 18-1ラン不溶解性残渣洗浄記録

| 洗浄回数 (回) | 実施日 | 容器内液量 (ml) | 抜き出し量 (ml) | 容器残液量 (ml) | 洗浄液追加量 (ml) | 最終液量 (ml) | 備 考 |
|-------------|------------|---------------|---------------|---------------|----------------|--------------|-------------------------|
| — | H4. 11. 24 | — | — | — | 400 | 850 | 溶解液量：450ml (溶解槽から移送) |
| 1 | H4. 12. 7 | 850 | 760 | 90 | 260 | 350 | |
| 2 | H4. 12. 8 | 350 | 250 | 100 | 250 | 350 | |
| 3 | H4. 12. 9 | 350 | 250 | 100 | 200 | 300 | |
| 4 | H4. 12. 10 | 290 | 190 | 100 | 200 | 300 | |
| 5 | H4. 12. 11 | 300 | 200 | 100 | 200 | 300 | サンプル採取 (DS01-18A, 12ml) |
| 6 | H4. 12. 14 | 255 | 205 | 50 | 30 | 80 | サンプル採取 (DS02-18A, 9ml) |
| — | H4. 12. 16 | 60 | 35 | 25 | — | 25 | 乾燥開始 |

$$\begin{aligned}
 & \cdot \text{残渣重量} = \text{乾燥後ビーカー重量 (含残渣)} - \text{空ビーカー重量} \\
 & = 69.30 \text{ g} - 68.56 \text{ g} \\
 & = 0.74 \text{ g}
 \end{aligned}$$

表12 18-2ラン不溶解性残渣洗浄記録

| 洗浄回数 (回) | 実施日 | 容器内液量 (ml) | 抜き出し量 (ml) | 容器残液量 (ml) | 洗浄液追加量 (ml) | 最終液量 (ml) | 備 考 |
|-------------|------------|---------------|---------------|---------------|----------------|--------------|------------------------------|
| — | H4. 12. 9 | — | — | — | 250 | 680 | 溶解液量：430ml (溶解槽から移送) |
| 1 | H4. 12. 11 | 660 | 550 | 110 | 210 | 320 | サンプル採取 (DS11-18A, 8ml) |
| 2 | H4. 12. 14 | 280 | 180 | 100 | 200 | 300 | サンプル採取 (DS12-18A, 10ml) |
| 3 | H4. 12. 15 | 300 | 205 | 95 | 205 | 300 | サンプル採取 (DS13-18A, 10ml) |
| 4 | H4. 12. 16 | 290 | 180 | 100 | 200 | 300 | サンプル採取 (DS14-18A, 10ml) |
| 5 | H4. 12. 17 | 290 | 205 | 85 | 225 | 300 | サンプル採取 (DS15-18A, 10ml) |
| 6 | H4. 12. 18 | 280 | 250 | 30 | 35 | 65 | 乾燥開始。サンプル採取 (DS16-18A, 10ml) |
| — | — | — | — | — | — | — | — |

$$\begin{aligned}
 & \cdot \text{残渣重量} = \text{乾燥後ビーカー重量 (含残渣)} - \text{空ビーカー重量} \\
 & = 69.20 \text{ g} - 67.40 \text{ g} \\
 & = 1.80 \text{ g}
 \end{aligned}$$

表13 18ラン溶解特性

| 溶解時間 (分) | 18-1ラン | | 18-2ラン | |
|----------|---------|---------|---------|---------|
| | 溶解率 (%) | 溶解量 (g) | 溶解率 (%) | 溶解量 (g) |
| 0 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 |
| 10 | 3.10 | 1.80 | 2.20 | 1.30 |
| 20 | 13.6 | 7.80 | 7.90 | 4.50 |
| 30 | 30.0 | 17.3 | 14.5 | 8.30 |
| 40 | 46.8 | 27.0 | 21.0 | 11.9 |
| 50 | 64.7 | 37.3 | 27.2 | 15.5 |
| 60 | 77.3 | 44.6 | 33.7 | 19.2 |
| 70 | 84.1 | 48.5 | 39.7 | 22.6 |
| 80 | 88.3 | 50.9 | 45.6 | 25.9 |
| 90 | 91.1 | 52.6 | 51.2 | 29.1 |
| 100 | 92.9 | 53.6 | 56.2 | 32.0 |
| 110 | 94.2 | 54.4 | 60.4 | 34.4 |
| 120 | 95.4 | 55.0 | 64.5 | 36.7 |
| 130 | 96.3 | 55.6 | 67.8 | 38.6 |
| 140 | 97.2 | 56.1 | 71.1 | 40.5 |
| 150 | 98.1 | 56.6 | 74.1 | 42.2 |
| 160 | 98.9 | 57.1 | 76.8 | 43.7 |
| 170 | 99.7 | 57.5 | 79.2 | 45.1 |
| 180 | | | 81.3 | 46.3 |
| 190 | | | 83.1 | 47.3 |
| 200 | | | 84.8 | 48.3 |
| 210 | | | 86.2 | 49.1 |
| 220 | | | 87.6 | 49.8 |
| 230 | | | 88.9 | 50.6 |
| 240 | | | 90.1 | 51.3 |
| 250 | | | 91.1 | 51.8 |
| 260 | | | 92.1 | 52.4 |
| 270 | | | 93.1 | 53.0 |
| 280 | | | 93.9 | 53.4 |
| 290 | | | 94.7 | 53.9 |
| 300 | | | 95.5 | 54.3 |
| 310 | | | 96.2 | 54.7 |
| 320 | | | 97.0 | 55.2 |
| 330 | | | 97.7 | 55.6 |
| 340 | | | 98.4 | 56.0 |
| 350 | | | 99.2 | 56.4 |
| 360 | | | 99.8 | 56.8 |

表14 第5回試験供試燃料の核分裂生成物質量*1

燃料 : 「常陽」MK-I 照射済燃料
 平均燃焼度 : 40,100 MWd/t
 冷却期間 : 約2.7年

| 元 素 | 重量 (g/pin) | 放射性核種 | 放射能量 (Ci/pin) |
|-----|-----------------------|---------|-----------------------|
| H | 1.15×10^{-5} | H- 3 | 1.12×10^{-1} |
| Ge | 1.96×10^{-4} | | |
| As | 5.56×10^{-5} | | |
| Se | 8.51×10^{-3} | | |
| Br | 3.12×10^{-3} | | |
| Kr | 5.64×10^{-2} | | |
| Rb | 5.31×10^{-2} | Sr- 89 | 3.35×10^{-4} |
| Sr | 1.28×10^{-1} | Sr- 90 | 1.06×10^{-1} |
| Y | 6.87×10^{-2} | Y- 90 | 1.06×10^{-1} |
| Zr | 5.37×10^{-1} | Y- 91 | 1.83×10^{-3} |
| Nb | 9.95×10^{-7} | Zr- 95 | 8.21×10^{-3} |
| Mo | 5.23×10^{-1} | Nb- 95 | 1.77×10^{-2} |
| Tc | 1.30×10^{-1} | Tc- 99 | 2.21×10^{-3} |
| Ru | 3.65×10^{-1} | Ru-103m | 8.20×10^{-6} |
| Rh | 1.13×10^{-1} | Ru-106 | 1.27×10^{-1} |
| Pd | 1.87×10^{-1} | Rh-103 | 8.21×10^{-6} |
| Ag | 1.81×10^{-2} | Rh-106 | 1.27×10^{-1} |
| Cd | 1.18×10^{-2} | Ag-110 | 3.99×10^{-2} |
| In | 1.26×10^{-3} | | |
| Sn | 1.39×10^{-2} | Sn-123 | 6.99×10^{-3} |
| Sb | 4.23×10^{-3} | Sb-125 | 1.29×10^0 |
| Te | 8.46×10^{-2} | Te-125m | 3.15×10^{-1} |
| I | 4.64×10^{-2} | Te-127 | 5.60×10^{-3} |
| Xe | 6.76×10^{-1} | Te-127m | 5.71×10^{-3} |
| Cs | 5.82×10^{-1} | Cs-134 | 5.21×10^{-1} |
| Ba | 2.23×10^{-1} | Cs-137 | 1.54×10^{-1} |
| La | 1.92×10^{-1} | | |
| Ce | 3.59×10^{-1} | Ce-144 | 1.61×10^{-1} |
| Pr | 1.85×10^{-1} | Pr-144 | 1.61×10^{-1} |
| Nd | 6.06×10^{-1} | Pr-144m | 1.93×10^{-1} |
| Pm | 2.58×10^{-2} | Pm-147 | 2.39×10^{-1} |
| Sm | 1.34×10^{-1} | Sm-151 | 5.06×10^{-1} |
| Eu | 1.32×10^{-2} | Eu-154 | 6.83×10^{-2} |
| Gd | 8.26×10^{-3} | Eu-155 | 1.16×10^0 |
| Tb | 6.31×10^{-4} | | |
| Dy | 3.56×10^{-4} | | |
| Ho | 1.39×10^{-5} | | |
| Er | 3.00×10^{-6} | | |
| 合 計 | 5.36×10^0 | — | 1.38×10^2 |

*1 : ORIGEN 79による計算値

表15 第6回試験供試燃料の核分裂生成物質量*1

燃料 : 「常陽」MK-I 照射済燃料
 平均燃焼度 : 13.800 MWd/t
 冷却期間 : 408日

| 元 素 | 重量 (g/pin) | 放射性核種 | 放射能量 (Ci/pin) |
|-----|-----------------------|---------|-----------------------|
| H | 3.32×10^{-6} | H- 3 | 3.13×10^{-2} |
| Ge | 3.91×10^{-5} | | |
| As | 1.16×10^{-5} | | |
| Se | 1.57×10^{-3} | | |
| Br | 5.41×10^{-4} | | |
| Kr | 1.08×10^{-2} | Kr- 85 | 2.81×10^{-1} |
| Rb | 9.76×10^{-3} | Sr- 89 | 3.32×10^{-1} |
| Sr | 2.35×10^{-2} | Sr- 90 | 2.00×10^0 |
| Y | 1.23×10^{-2} | Y- 90 | 2.00×10^0 |
| Zr | 1.07×10^{-1} | Y- 91 | 8.11×10^{-1} |
| Nb | 1.15×10^{-4} | Zr- 95 | 2.08×10^0 |
| Mo | 1.17×10^{-1} | Nb- 95 | 4.51×10^0 |
| Tc | 3.05×10^{-2} | Tc- 99 | 5.19×10^{-4} |
| Ru | 1.02×10^{-1} | Ru-103m | 1.24×10^{-1} |
| Rh | 3.13×10^{-2} | Ru-106 | 2.24×10^1 |
| Pd | 5.86×10^{-2} | Rh-103 | 1.24×10^{-1} |
| Ag | 6.74×10^{-3} | Rh-106 | 2.24×10^1 |
| Cd | 3.82×10^{-3} | | |
| In | 3.75×10^{-4} | Sn-123 | 1.06×10^{-1} |
| Sn | 3.82×10^{-3} | Sb-125 | 7.20×10^{-1} |
| Sb | 1.50×10^{-3} | Te-125m | 1.76×10^{-1} |
| Te | 2.05×10^{-2} | Te-127 | 1.54×10^{-1} |
| I | 1.20×10^{-2} | Te-127m | 1.57×10^{-1} |
| Xe | 1.60×10^{-1} | I -129 | 1.55×10^{-6} |
| Cs | 1.41×10^{-1} | Cs-137 | 3.83×10^0 |
| Ba | 4.87×10^{-2} | Ba-137m | 3.62×10^0 |
| La | 4.35×10^{-2} | Ce-144 | 2.61×10^1 |
| Ce | 8.82×10^{-2} | Pr-144 | 2.61×10^1 |
| Pr | 4.21×10^{-2} | Pr-144m | 3.13×10^{-1} |
| Nd | 1.25×10^{-1} | Pm-147 | 1.05×10^1 |
| Pm | 1.13×10^{-2} | Sm-151 | 1.43×10^{-1} |
| Sm | 2.79×10^{-2} | Eu-154 | 8.11×10^{-3} |
| Eu | 4.04×10^{-3} | Eu-155 | 5.33×10^{-1} |
| Gd | 2.41×10^{-3} | | |
| Tb | 2.34×10^{-4} | | |
| Dy | 1.31×10^{-4} | | |
| Ho | 5.54×10^{-6} | | |
| Er | 1.11×10^{-6} | | |
| 合 計 | 1.25×10^0 | — | 1.30×10^2 |

*1 : ORIGEN 79による計算値

表16 第8回試験供試燃料の核分裂生成物質質量*1

燃料 : 「常陽」MK-II照射済燃料
 平均燃焼度 : 31,700 MWd/t
 冷却期間 : 約1.1年

| 元素 | 重量 (g/pin) | 放射性核種 | 放射能量 (Ci/pin) |
|----|-----------------------|---------|-----------------------|
| H | 7.68×10^{-6} | H- 3 | 7.44×10^{-2} |
| Ge | 9.45×10^{-5} | | |
| As | 2.78×10^{-5} | | |
| Se | 3.79×10^{-3} | | |
| Br | 1.30×10^{-3} | | |
| Kr | 2.60×10^{-2} | Kr- 85 | 6.65×10^{-2} |
| Rb | 2.36×10^{-2} | Sr- 89 | 4.55×10^{-2} |
| Sr | 5.65×10^{-2} | Sr- 90 | 4.80×10^0 |
| Y | 2.96×10^{-2} | Y- 90 | 4.80×10^0 |
| Zr | 2.60×10^{-1} | Y- 91 | 1.11×10^0 |
| Nb | 1.57×10^{-4} | Zr- 95 | 2.87×10^0 |
| Mo | 2.83×10^{-1} | Nb- 95 | 6.11×10^0 |
| Tc | 7.36×10^{-2} | Tc- 99 | 1.25×10^{-3} |
| Ru | 2.45×10^{-1} | Ru-103 | 1.77×10^{-1} |
| Rh | 7.62×10^{-2} | Ru-106 | 4.48×10^1 |
| Pd | 1.46×10^{-1} | Rh-103m | 1.78×10^{-1} |
| Ag | 1.63×10^{-2} | Rh-106 | 4.48×10^1 |
| Cd | 9.45×10^{-3} | Ag-110m | 6.60×10^{-3} |
| In | 9.06×10^{-4} | | |
| Sn | 9.29×10^{-3} | Sn-123 | 1.66×10^{-1} |
| Sb | 3.51×10^{-3} | Sb-125 | 1.61×10^0 |
| Te | 4.97×10^{-2} | Te-125m | 3.94×10^{-1} |
| I | 2.90×10^{-2} | Te-127 | 2.32×10^{-1} |
| Xe | 3.87×10^{-1} | Te-127m | 2.37×10^{-1} |
| Cs | 3.40×10^{-1} | Cs-134 | 4.61×10^{-1} |
| Ba | 1.20×10^{-1} | Cs-137 | 9.21×10^0 |
| La | 1.06×10^{-1} | | |
| Ce | 2.09×10^{-1} | Ce-144 | 4.99×10^1 |
| Pr | 1.02×10^{-1} | Pr-144 | 4.99×10^1 |
| Nd | 3.09×10^{-1} | Pr-144m | 5.93×10^{-1} |
| Pm | 2.50×10^{-2} | Pm-147 | 2.32×10^1 |
| Sm | 7.02×10^{-2} | Sm-151 | 3.43×10^{-1} |
| Eu | 9.69×10^{-3} | Eu-154 | 4.69×10^{-2} |
| Gd | 6.03×10^{-3} | Eu-155 | 1.24×10^0 |
| Tb | 5.65×10^{-4} | | |
| Dy | 3.29×10^{-4} | | |
| Ho | 1.33×10^{-5} | | |
| Er | 2.87×10^{-6} | | |
| 合計 | 3.02×10^0 | — | 2.56×10^2 |

*1 : ORIGEN 79による計算値

表17 第11回試験供試燃料の核分裂生成物質量*1

燃料 : Phoenix照射済燃料
 平均燃焼度 : 94,100 MWd/t
 冷却期間 : 約2.5年

| 元素 | 重量 (g/3pin) | 放射性核種 | 放射能量 (Ci/3pin) |
|----|-----------------------|---------|-----------------------|
| H | 1.11×10^{-4} | H- 3 | 1.07×10^0 |
| Ge | 1.29×10^{-3} | | |
| As | 3.87×10^{-4} | | |
| Se | 4.76×10^{-2} | | |
| Br | 1.47×10^{-2} | | |
| Kr | 3.37×10^{-1} | Kr- 85 | 7.23×10^0 |
| Rb | 3.05×10^{-1} | Sr- 89 | 2.78×10^{-3} |
| Sr | 6.49×10^{-1} | Sr- 90 | 5.34×10^1 |
| Y | 3.58×10^{-1} | Y- 90 | 5.34×10^1 |
| Zr | 3.70×10^0 | Y- 91 | 1.55×10^{-2} |
| Nb | 1.19×10^{-5} | Zr- 95 | 9.10×10^{-2} |
| Mo | 4.47×10^0 | Nb- 95 | 1.96×10^{-1} |
| Tc | 1.18×10^0 | Tc- 99 | 2.02×10^{-2} |
| Ru | 4.22×10^0 | Ru-103 | 7.10×10^{-5} |
| Rh | 1.43×10^0 | Ru-106 | 1.94×10^2 |
| Pd | 3.22×10^0 | Rh-103m | 1.86×10^{-4} |
| Ag | 3.33×10^{-1} | Rh-106 | 1.94×10^2 |
| Cd | 2.08×10^{-1} | Ag-110m | 1.02×10^{-1} |
| In | 1.71×10^{-2} | Cd-113m | 2.38×10^{-1} |
| Sn | 1.69×10^{-1} | Sn-123 | 9.03×10^{-2} |
| Sb | 5.04×10^{-2} | Sb-125 | 1.56×10^1 |
| Te | 8.52×10^{-1} | Te-125m | 3.81×10^0 |
| I | 5.03×10^{-1} | Te-127 | 7.58×10^{-2} |
| Xe | 6.33×10^0 | Te-127m | 7.74×10^{-2} |
| Cs | 5.50×10^0 | Cs-134 | 1.87×10^1 |
| Ba | 2.11×10^0 | Cs-137 | 1.44×10^2 |
| La | 1.67×10^0 | Ba-137m | 1.36×10^2 |
| Ce | 3.04×10^0 | Ce-144 | 1.05×10^2 |
| Pr | 1.62×10^0 | Pr-144 | 1.05×10^2 |
| Nd | 4.98×10^0 | Pr-144m | 1.27×10^0 |
| Pm | 1.91×10^{-1} | Pm-147 | 1.77×10^2 |
| Sm | 1.45×10^0 | Sm-151 | 5.81×10^2 |
| Eu | 1.70×10^{-1} | Eu-154 | 2.65×10^0 |
| Gd | 1.48×10^{-1} | Eu-155 | 1.72×10^1 |
| Tb | 1.14×10^{-2} | | |
| Dy | 8.36×10^{-3} | | |
| Ho | 2.70×10^{-4} | | |
| Er | 8.66×10^{-5} | | |
| 合計 | 4.93×10^1 | — | 1.24×10^3 |

*1: ORIGEN 79による計算値

表18 第13回試験供試燃料の核分裂生成物質量*1

燃 料 : 「常陽」MK-II C型特殊照射済燃料
 平均燃焼度 : 54.100 MWd/t
 冷却期間 : 約2.0年

| 元 素 | 重量 (g/4pin) | 放射性核種 | 放射能量 (Ci/4pin) |
|-----|-----------------------|---------|-----------------------|
| 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- 89 | 1.07×10^9 |
| Sr | 3.99×10^{-1} | Sr- 90 | 1.18×10^{12} |
| Y | 2.12×10^{-1} | Y- 90 | 1.19×10^{12} |
| Zr | 1.99×10^0 | Y- 91 | 5.55×10^9 |
| Nb | 3.10×10^{-5} | Zr- 95 | 1.88×10^{10} |
| Mo | 2.24×10^0 | Nb- 95 | 4.18×10^{10} |
| Tc | 5.81×10^{-1} | Tc- 99 | 3.65×10^9 |
| Ru | 1.95×10^0 | Ru-103 | 1.64×10^9 |
| Rh | 6.20×10^{-1} | Ru-106 | 6.22×10^{12} |
| Pd | 1.41×10^0 | Rh-103m | 1.48×10^9 |
| Ag | 1.49×10^{-1} | Rh-106 | 6.22×10^{12} |
| Cd | 1.04×10^{-1} | Ag-110m | 1.11×10^{10} |
| 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} |
| I | 2.44×10^{-1} | Te-127 | 6.51×10^9 |
| Xe | 3.15×10^0 | Te-127m | 6.62×10^9 |
| Cs | 2.69×10^0 | Cs-134 | 4.63×10^{11} |
| Ba | 9.86×10^{-1} | Cs-137 | 2.61×10^{12} |
| 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} |
| Nd | 2.51×10^0 | Pr-144m | 5.77×10^{10} |
| 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} |
| Gd | 5.93×10^{-2} | Eu-155 | 2.91×10^{11} |
| Tb | 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 | — | 3.65×10^{13} |

*1: ORIGEN 2-81による計算値

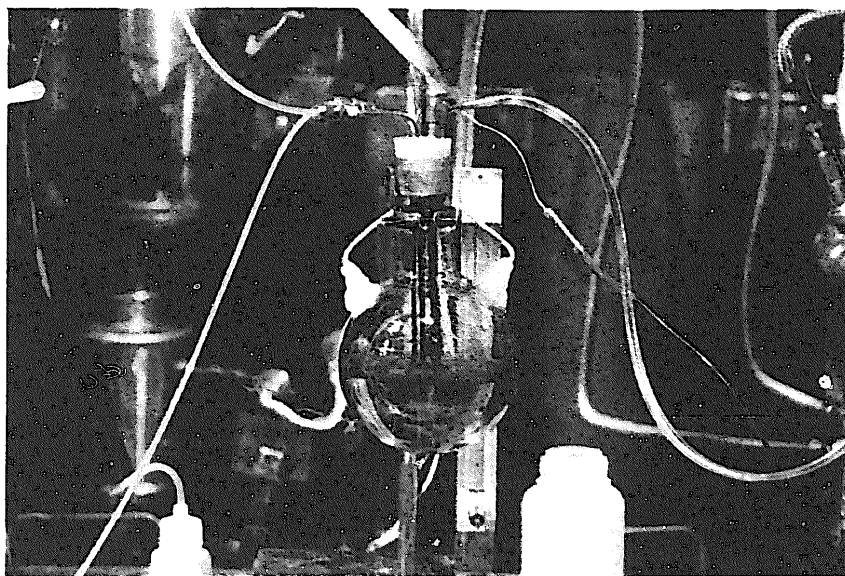


写真1 溶解試験装置（ビーカースケール）