

燃料製造プロセス開発室 研究開発概要

— 第 1 号 —

1996年7月

動力炉・核燃料開発事業団

東 海 事 業 所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部 技術管理室

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

© 動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation)1996

燃料製造プロセス開発室 研究開発概要
－第1号－

都所 昭雄* 他

要 旨

本報告書は燃料製造プロセス開発室の研究開発テーマの中で、電解溶解技術開発、MH法混合転換技術開発、噴霧熱分解法による顆粒粉末製造技術開発、プルトニウム系廃液処理プロセス開発、Np, Am回収技術開発等について、その概要を和文と英文により、記述したものである。

* 核燃料技術開発部 燃料製造プロセス開発室長

目 次

1. 電解溶解技術開発	1
2. MH法混合転換技術開発	4
3. 噴霧熱分解法による顆粒粉末製造技術開発	7
4. プルトニウム廃液処理	10
5. プルトニウム系廃液処理プロセスの開発	11
6. 研究用Npの回収試験	14
7. TRUEX法によるAm分離回収技術の開発	17
8. グローブボックス用遠隔取扱治具の開発	18

電解溶解技術開発

Development of Ag (II)-Promoted Dissolution of MOX-Fuel

硝酸に対して難溶解性の酸化物である PuO_2 の溶解技術として、電解溶解に関する技術開発を実施しています。この電解溶解とは、図 1 に示すように、硝酸銀の電解酸化反応で生成する II 価の銀イオン (Ag^{2+}) の酸化力を利用し、Pu の原子価を IV 価 (PuO_2) から VI 価 (PuO_2^{2+}) に酸化することで、硝酸へ溶解する方法です。プルトニウム燃料製造施設から発生する不純物仕様を外れた MOX を精製、湿式回収工程により精製、再利用するための溶解法として、電解溶解に関する技術開発を進めています。さらに、プルトニウム燃料製造施設から発生する α 固体廃棄物の除染や、可燃廃棄物焼却灰に極微量含まれる Pu を回収するための溶解技術として開発を進めています。

燃料製造プロセス開発室

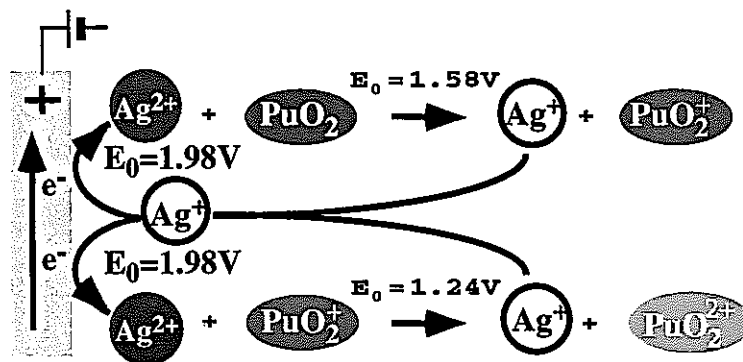


Fig.1 Principle of the Ag(II)-promoted Dissolution of PuO_2

PuO_2 is very difficult to dissolve in nitric acid



$$\Delta G = +32.04\text{kJ/mol} > 0$$

Ag(II)-Promoted Dissolution of PuO_2 was found
to be allowing completely dissolution of PuO_2 at room temperature

apply

Pu Fuel Fabrication Facility

Dissolution of MOX-Fuel in Wet-recovery process

Improvement of Pu yield

Treatment of α -contaminated solid wastes

**Recovery of Pu from ash obtained from incineration of
solid combustible α -contaminated wastes**

Decontamination of α -contaminated solid wastes

Development of Ag(II)-Promoted Dissolution of MOX-Fuel is carried out in order to improve dissolving PuO_2 in nitric acid. The principle of Ag(II)-Promoted Dissolution of MOX-Fuel, presented in Fig.1, consists in the reaction of Ag^{2+} on PuO_2 with the oxidation of Pu(IV) on the surface of the oxide in the plutonyl soluble ions PuO_2^+ and PuO_2^{2+} and in the regeneration of the oxidant Ag^{2+} by electrolytic oxidation.

Ag(II)-Promoted Dissolution of MOX-Fuel will be applied not only to mixed oxide fuel scrap recovery process but also decontamination of α -contaminated solid wastes and recovering Pu from ash produced from incineration of combustible α -contaminated solid wastes.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

電解溶解技術開発

Development of Ag(II)-Promoted Dissolution of MOX-Fuel

Ag^{2+} イオンが過剰に存在する条件において MOX ペレットを溶解した結果、 PuO_2 の溶解速度は、沸騰硝酸中への溶解に比べて 10 倍大きな溶解速度が得られることがわかりました。また、 UO_2 についても、ほぼ同じ条件の硝酸中への溶解速度に比べ、20 倍大きな溶解速度が得られました。

プルトニウム燃料製造施設から発生する α 固体廃棄物の除染技術に電解溶解法を応用することを目的として、ステンレス鋼、グローブ、ビニールバッグを Ag^{2+} イオンを含む硝酸溶液中に浸漬し、表面汚染密度の変化を測定した結果、図 4 に示すように、表面に付着した PuO_2 を硝酸に溶解することで有効に除染できることがわかりました。

燃料製造プロセス開発室

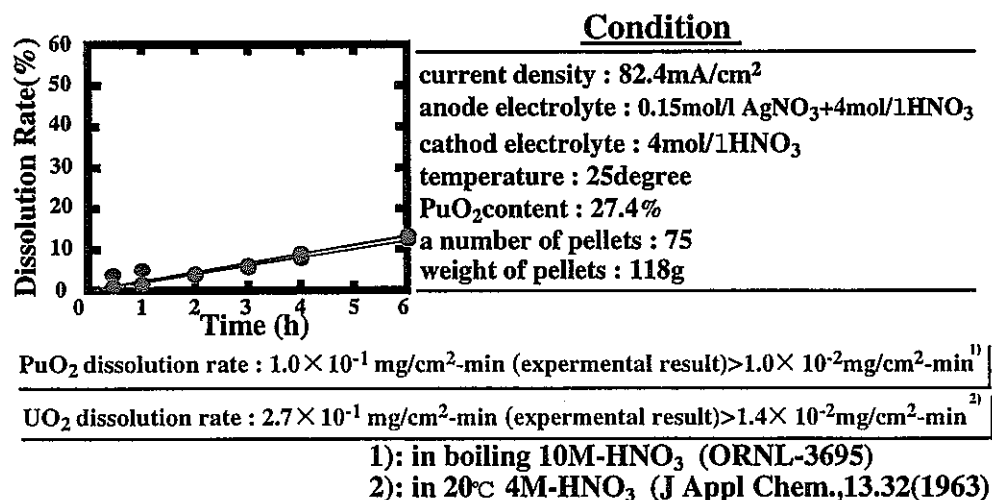
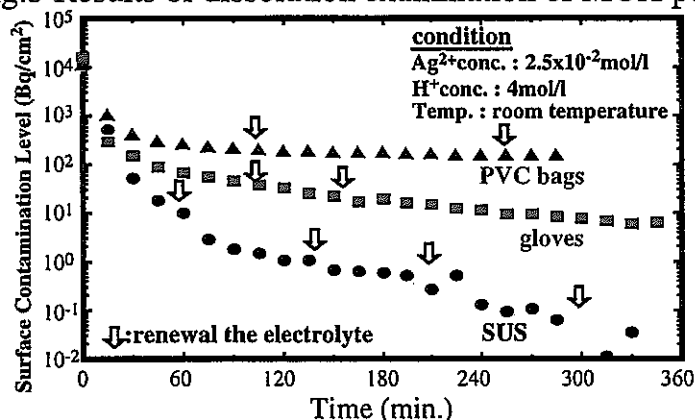


Fig.3 Results of dissolution examination of MOX pellets

Fig.4 Results of decontamination examination of α -contaminated solid wastes

Results of dissolution examination of MOX pellets under the condition in which Ag^{2+} ions excessively exist, indicate that dissolution rate of PuO_2 is ten times as fast as that in boiling 10M nitric acid without Ag^{2+} , and dissolution rate of UO_2 is twenty times as fast as that in 20°C - 4M nitric acid without Ag^{2+} , as shown in Fig.3.

Decontamination examinations of stainless steel, gloves and PVC bags have been carried out in order to apply Ag(II)-Promoted Dissolution of MOX-Fuel to decontamination of α -contaminated solid wastes from mixed oxide fuel fabrication facility. It was found that PuO_2 adhering to the surface of wastes, had been dissolved in nitric acid by using Ag(II), so that α -contaminated solid wastes were possible to be effectively decontaminated as shown in Fig.4.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

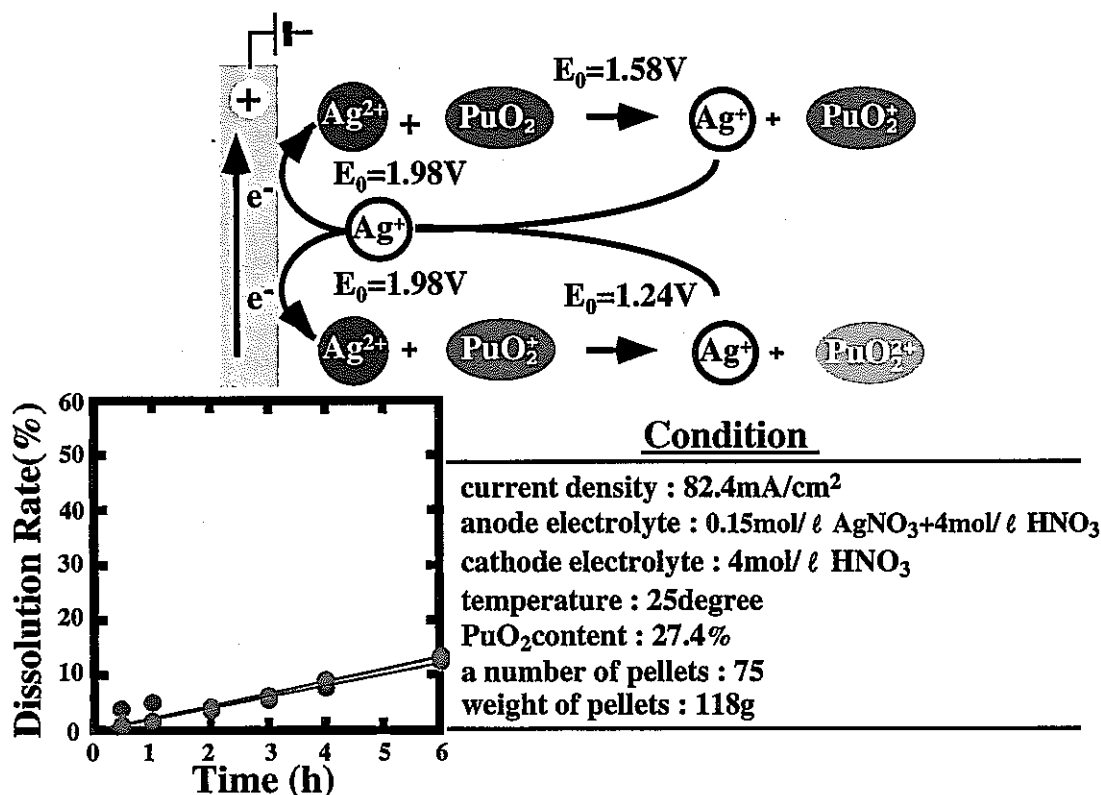
電解溶解技術開発

Development of Ag(II)-Promoted Dissolution of MOX-Fuel

硝酸銀の電解酸化反応で生成する II 価の銀イオン Ag^{2+} を酸化触媒とした PuO_2 の溶解法(電解溶解法)は、図 1 に示すように、沸騰硝酸中での溶解に比べて約 10 倍大きな溶解速度が得られる有効な方法です。この溶解法を、プルトニウム燃料製造施設から発生する不純物仕様の外れた MOX を精製、再利用する湿式回収工程の溶解に採用するための技術開発を進めています。

さらに、電解溶解法が有する「 PuO_2 を容易に溶解できる」という特徴を、プルトニウム燃料製造施設から発生する α 固体廃棄物の除染技術や、可燃廃棄物の焼却灰に極微量含まれる Pu を回収するための溶解技術として採用するための開発を進めています。

燃料製造プロセス開発室



PuO_2 dissolution rate : $1.0 \times 10^{-1} \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{min}$ (experimental result) $> 1.0 \times 10^{-2} \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{min}$ ¹⁾

UO_2 dissolution rate : $2.7 \times 10^{-1} \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{min}$ (experimental result) $> 1.4 \times 10^{-2} \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{min}$ ²⁾

1): in boiling 10M- HNO_3 (ORNL-3695)

2): in 20°C 4M- HNO_3 (J.Appl.Chem.,13,32(1963))

Fig.1 Results of dissolution examination of MOX pellets

Ag(II)-Promoted Dissolution of MOX-Fuel, which is the dissolution method of PuO_2 using Ag(II) generated by electrolytic oxidation of silver nitrate as catalyst. As shown in Fig.1, dissolution rate of PuO_2 obtained by this method is ten times as fast as the rate in boiling nitric acid.

Development of Ag(II)-Promoted Dissolution of MOX-Fuel is carried out in order to apply this method to dissolution step of mixed oxide fuel scrap recovery process. Further, this method will be applied to decontamination of α -contaminated solid wastes and recovering Pu from ash obtained through incineration of combustible α -contaminated solid wastes.

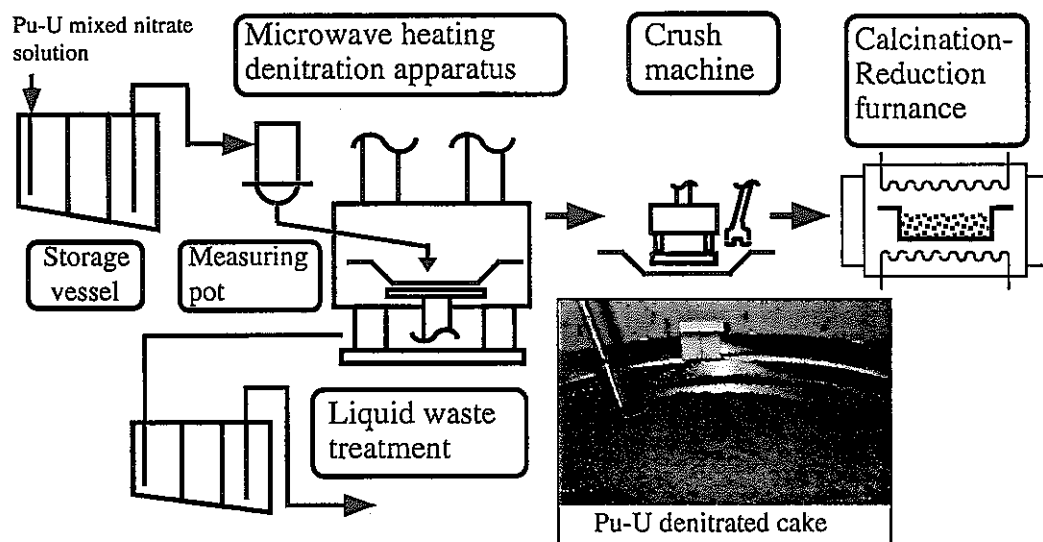
Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

MH法混合転換技術開発

Development of Conversion Technology of Microwave Heating Direct Denitration Method

マイクロ波加熱直接脱硝法による混合転換技術の開発は、1977年から開始され、他の混合転換法との比較検討のための試験等を行い、1980年に最適な混合転換法選定しました。マイクロ波加熱直接脱硝法の特徴は、以下の通りです。1) マイクロ波加熱により混合溶液を直接MOXに転換できるため、試薬等の添加の必要が無く、工程が単純で廃液の発生も少なくなります。また、流動床法と比べてオフガスの発生量も少ないプロセスです。2) マイクロ波加熱源である発振器などはグローブボックス外に設置できるため、操作および保守を行う上での安全性が高くなります。3) 本法で転換したMOX粉末は、ペレット製造を行う上で適切な比表面積や粒子径であり、焼結特性も良くなります。4) プルトニウムとウランの混合性が良いため、焼結ペレットのプルトニウムスポットが発生しにくくなります。

燃料製造プロセス開発室



Process flow of microwave heating direct denitration method.

Plutonium and uranium co-conversion process using a microwave heating direct denitration method has been developed since 1977. After the evaluation of several co-conversion process, the microwave heating direct denitration process was selected as the best one in 1980. The features of microwave heating direct denitration process are as follows: 1) This process is simple and the amount of liquid waste is small. Further, the amount of process off-gas is small comparing with that by the fluidized bed process., because no reagent is necessary and a mixed solution is converted directly to MOX powder by heating microwave, without any complicated system. 2) This process is safe for operation and maintenance, because this process mainly consists of static equipments and microwave heating apparatus is located outside of a glove box. 3) MOX powder converted by microwave heating direct denitration process is suitable for fuel pellet fabrication because of suitable specific surface area, particle size and sintability. 4) the powder has such a good homogeneity between plutonium and uranium, that plutonium spot in a sintered pellet is small and little.

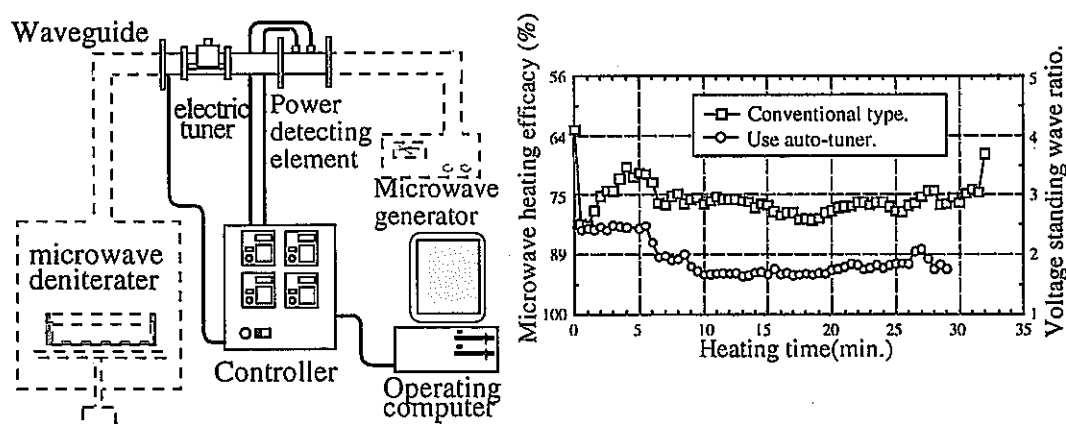
Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

MH法混合転換技術開発

Development of Conversion Technology of Microwave Heating Direct Denitration Method

マイクロ波電界中では、硝酸プルトニウム・硝酸ウランの混合溶液は、物質自身の誘電損失によって濃縮・脱硝されます。その誘電損失は、物質の温度および状態によって変化します。この損失の変化がオープンインピーダンス変化を引き起こします。しかし、マイクロ波発振器のインピーダンスは一定であるため、不整合が生じます。この不整合がマイクロ波加熱効率を低下させています。これを解決するために、MH法高度化開発として、装置開発を行い、加熱効率等の改善を図ってきました。それらのうちの1つにオートチューナがあります。この装置は、常にインピーダンス整合を行えるため、オープンからのマイクロ波反射波を最少とすることができます。

燃料製造プロセス開発室



Automatic microwave tuning system.

Advanced technology for MH method.

In a microwave electric field, mixed solution of plutonium and uranium is concentrated and denitrated by dielectric loss of materials. This dielectric loss is controlled by temperature and states of materials. This loss induces the change of impedance of a oven. However, the constant impedance of microwave generator causes mismatch and lowers the microwave heat efficiency. In order to improve the heat efficiency various apparatuses have been contrived. One of them is the automatic microwave tuning system, which minimizes the reflection of microwave from the oven by continually adjusting the impedance.

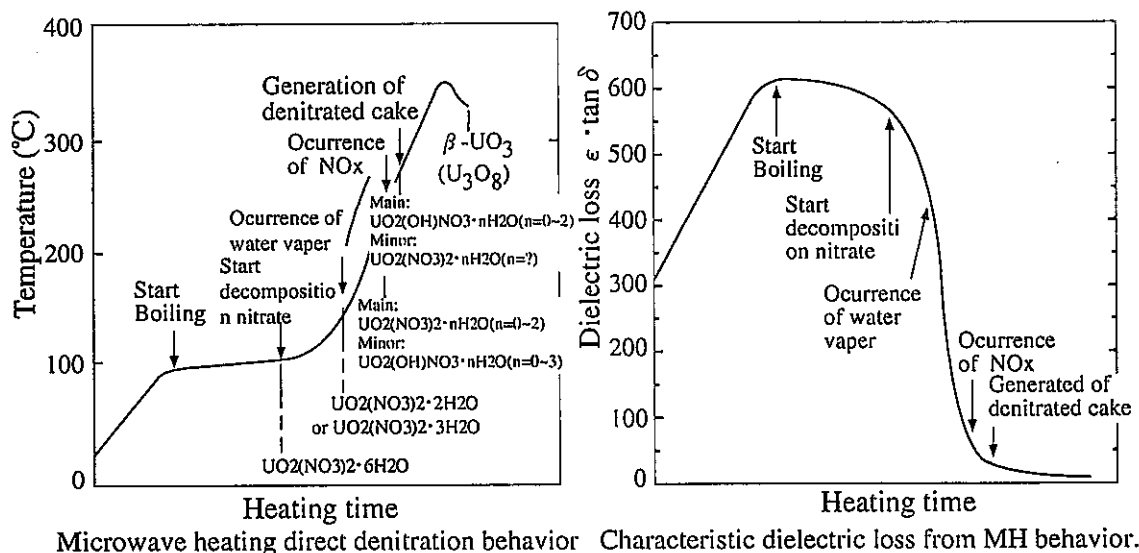
Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

MH法混合転換技術開発

Development of Conversion Technology of Microwave Heating Direct Denitration Method

マイクロ波加熱直接脱硝法の技術開発を行う上で、その反応過程における生成物質の同定および反応温度、さらにはその時の誘電特性を把握することが重要であります。これを行うために、マイクロ波加熱中にも連続して温度測定が可能な温度計や誘電特性測定装置等の開発を行いました。これらを用いてマイクロ波加熱直接脱硝反応機構を解明しました。

燃料製造プロセス開発室



Continuous measurement of temperature, dielectric characteristics and identification of composition of intermediate product of heating object during microwave heating denitration. They are important for the development of conversion technology of microwave heating direct denitration method, which converts plutonium/uranyl nitrate solution to mixed oxide. However continuous measurement is not easy, because the sensor is interacted with the electric field of microwave. The passive-type infrared rays thermometer is developed to measure the temperature in the electric field of microwave, therefore high-temperature proof dielectric characteristics measuring apparatus is also developed to examine the mechanism of converting plutonium/uranyl nitrate solution to mixed oxide.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

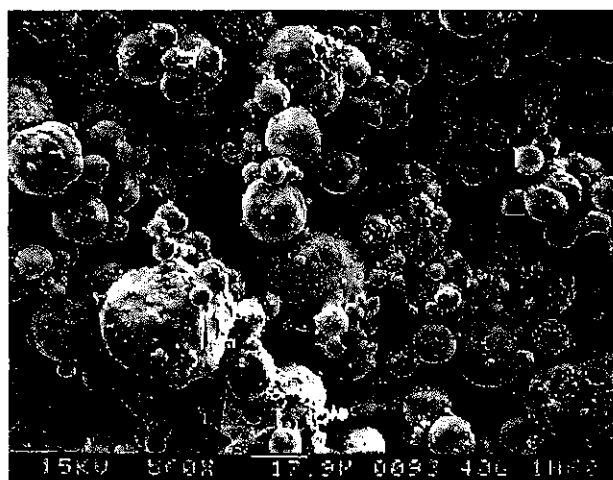
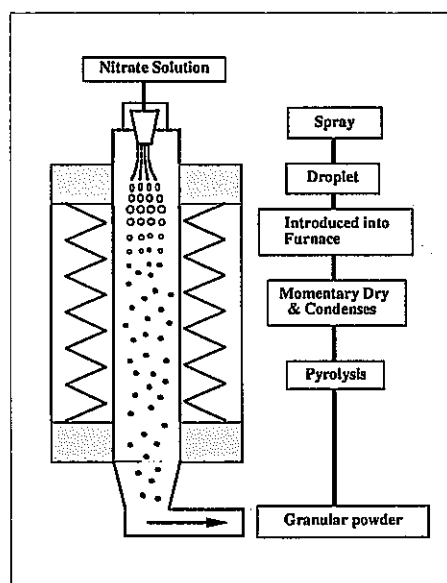
噴霧熱分解法による顆粒粉末製造技術開発

Development of Granular Powder Manufacturing Technology by Spray Pyrolysis

燃料製造工程の短縮や取り扱い性の向上を目的として、顆粒粉末製造技術開発に取り組んでいます。顆粒粉末は、粒子径を大きくできること、球状の粒子形状を持つことから流動性に優れているので、粉末の飛散や装置への付着等を低減できる可能性があります。さらに、粉末の物性の制御が精度良く行えるため安定した粉末を供給することができます。

顆粒粉末を製造するプロセスとして、図に示す噴霧熱分解法があります。従来までのプロセスである MH 法と比較し、噴霧熱分解法では、大きな径の球状の粉末の製造を行うことができます

燃料製造プロセス開発室



18 μ m

The Principles of Spray Pyrolysis

Photograph of Cerium oxide Powders

For shortening of fuel fabrication process and improvement in treatment of raw materials, the granular powder fabrication technology has been developed. Since the granular powders has large grain size and spherical shape, which show superior fluidity, they can reduce powdery scattering and adhesion to equipment. Furthermore regulating powdery properties is easy, enough to supply powders of high quality.

The above figure shows the schematic diagram of Spray Pyrolysis, which is one of the processes of manufacturing granular powders. This method is able to produce powder with spherically larger size than conventional Microwave Heating Denitration method.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

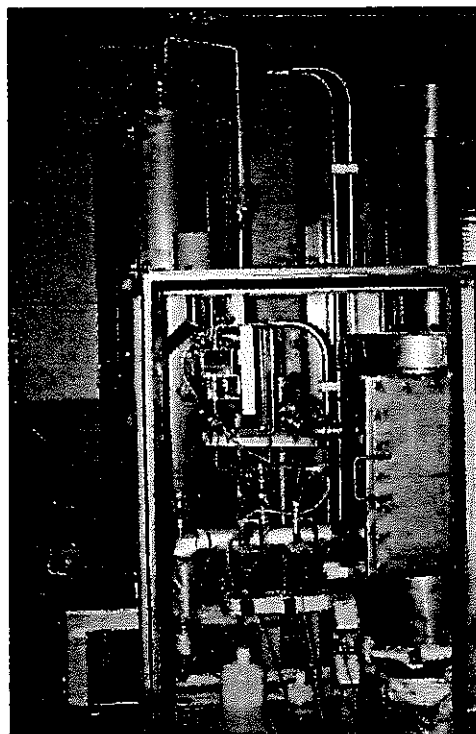
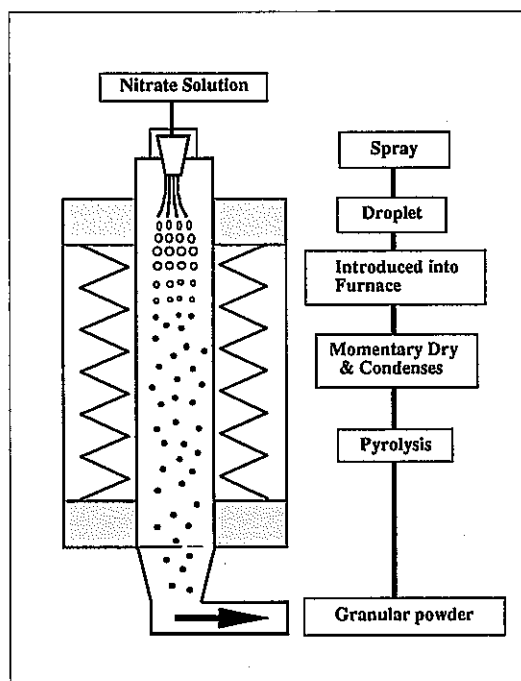
噴霧熱分解法による顆粒粉末製造技術開発

Development of Granular Powder Manufacturing Technology by Spray Pyrolysis

燃料製造工程の短縮や取り扱い性の向上を目的として、顆粒粉末製造技術開発に取り組んでいます。顆粒粉末は、粒子径を大きくできること、球状の粒子形状を持つことから流動性に優れているので、粉末の飛散や装置への付着等を低減することができます。さらに、粉末物性の制御が容易なため特性の安定した粉末を供給することが可能となります。

顆粒粉末を製造するプロセスとして、図に示す噴霧熱分解法があります。現在、基礎的な試験を写真に示す装置を用いて実施し、プロセスの成立性の評価を行っております。

燃料製造プロセス開発室



The Principles of Spray Pyrolysis

For shortening of fuel fabrication process and improving in treatment of raw materials, the granular powder fabrication technology has been developed. Since the granular powder have large grain size and spherical shape, which show superior fluidity, they can reduce powdery scattering and adhesion to equipment. Furthermore regulating powdery properties is easy, enough to supply powders of high quality.

The above figure shows the schematic diagram of Spray Pyrolysis, which is one of the processes of manufacturing granular powders. The feasibility study of this process is being carried out by using the equipment shown in the above photograph.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

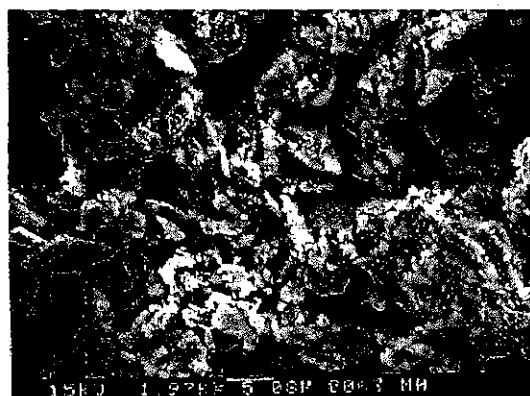
噴霧熱分解法による顆粒粉末製造技術開発

Development of Granular Powder Manufacturing Technology by Spray Pyrolysis

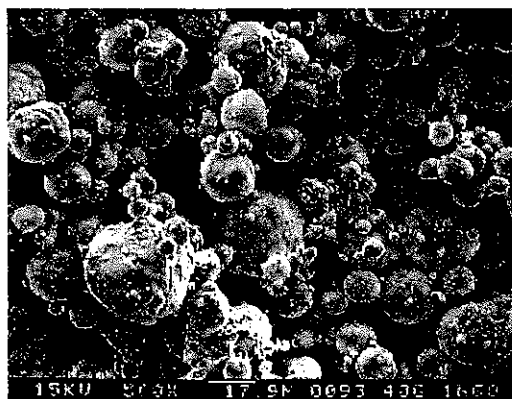
現在、硝酸プルトニウム溶液の模擬溶液として硝酸セリウム溶液を用いた噴霧熱分解法による顆粒粉末製造技術開発を行っております。溶液を噴霧して微粒化し、加熱することで溶液の濃縮、蒸発及び脱硝を1工程で行い、顆粒状の粉末の製造に成功しております。従来までのプロセスであるMH法と噴霧熱分解法で製造した粉末の拡大写真を比較すれば、噴霧熱分解法では、MH法に対して球状で大きな径の粉末が製造でき、MOX燃料用原料粉末製造にも適用可能であると考えられます。

ここで製造した粉末を焼結し、模擬燃料ペレットの成形を行っており、現行プロセスに近い特性を持ったペレットが得られております。さらに、ウラン溶液を用いた試験も実施しており、良好な成果が得られております。今後は、再処理施設等から得られる硝酸プルトニウム溶液を用いた試験を行い、製造プロセスの確立に努めていきたいと考えております。

燃料製造プロセス開発室



5 μ m
Microwave Heating Process



18 μ m
Spray Pyrolysis Process

Photograph of Cerium Oxide Powders

The granular powder manufacturing technology by spray pyrolysis is now being developed, using cerium nitrate aqua as cold trial solution of plutonium nitrate solution. By making the solution sprayed and heated to be fine particles, concentration, evaporation and denitration of solution are conducted at the same time which lead us to successful granular powdery production of this solution. Comparing the above photographs, the spray pyrolysis method is found to produce powder with spherically larger size than conventional MH method.

We have sintered cold trial fuel powder and formed a pellet, which have similar characteristics to these obtained by conventional process. Furthermore, an examination using uranium solution was also made and successful results were obtained. In future, we will carry out examination using plutonium nitrate solution from the reprocessing plant and try for establishment of this production process.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

プルトニウム系廃液処理

Plutonium Liquid Waste Treatment

プルトニウム燃料の製造・研究開発を進める過程において発生するプルトニウムを含む廃液は、1) 品質管理工程からの分析廃液と、2) 燃料スクラップの湿式回収に伴う工程廃液に大別されます。

プルトニウム廃液は、一次処理として図1に示すような凝集沈殿 (Fe 共沈) と吸着法を併用したプロセスで処理され、処理液中の α β 線放射能濃度を $5.6 \times 10^{-2} \text{ Bq/ml}$ 以下としています。廃液処理装置は図2に示すようなグローブボックス内に配置され、月平均で約 400ℓの廃液を処理しています。また、廃液処理に伴って発生する微量のプルトニウムを含む中和沈殿物及び Fe 共沈殿物は、焙焼体として缶詰後に貯蔵されます。

燃料製造プロセス開発室

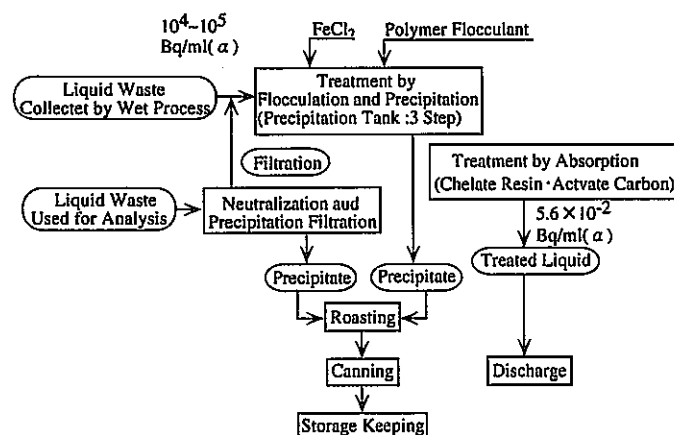


Fig.1 Block Flow for Plutonium Liquid Waste

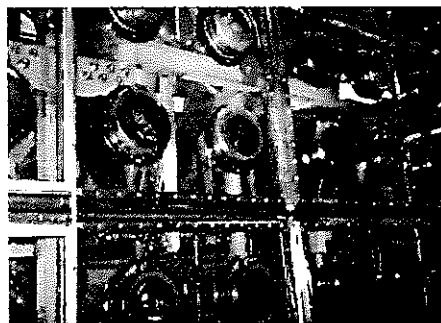


Fig.2 Glove Box for Liquid Waste Treatment

Liquid waste containing plutonium produced in the plutonium fuel facility can be roughly classified into two groups: 1) liquid waste used for analysis in a quality control process and 2) liquid waste produced from the wet recovery process of the MOX fuel scraps.

At the liquid waste treatment process, the plutonium liquid waste is jointly treated with flocculation and precipitation method (Fe coprecipitation) and the α β radioactivity concentration in the treated liquid waste is kept below $5.6 \times 10^{-2} \text{ Bq/ml}$. The apparatus for the liquid waste treatment is arranged within the glove box shown in Fig.2 by which liquid waste of approximately 400ℓ are treated on monthly average. The neutralization precipitate and the Fe co-precipitation containing a very small amount of plutonium are produced during the treatment, which are stored up after calcined and canned.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

プルトニウム系廃液処理プロセスの開発

Development of Plutonium Liquid Waste Treatment Process

プルトニウム系廃液の処理は凝集沈澱法（Fe 共沈）と吸着法（活性炭, キレート樹脂）を併用して処理され、処理液中の α β 線放射能濃度は $5.6 \times 10^{-2} \text{ Bq/ml}$ 以下にして次工程に排出しています。処理に伴い、多くの副生成物（中和沈澱物, Fe 共沈澱物の焙焼体及び使用済み吸着剤）が発生するという、課題がのこされています。

図1に示す不溶性タンニンは、構成元素が酸素、炭素、窒素であり、焼却処理によって CO_2 等に、完全にガス化する特徴があり、吸着剤として最適です。また、処理プロセスとして単純であり、十分に除染効果も高く、実用化の見通しが得られました。（図2参照）

燃料製造プロセス開発室

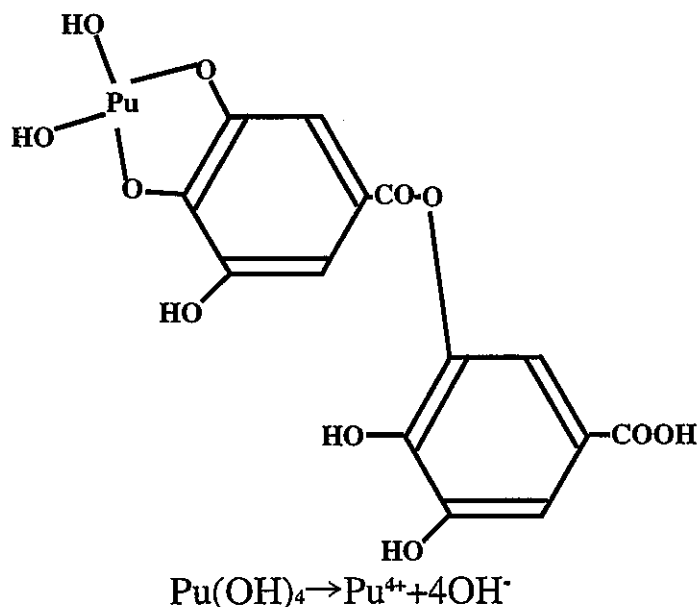


Fig.1 Chemical Structure of Pu^{4+} Absorbent

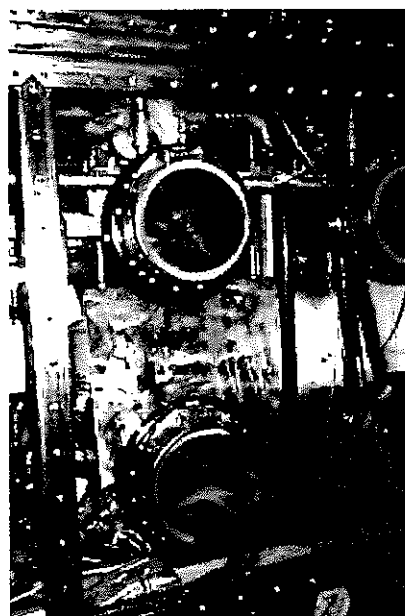


Fig.2 Test Equipment in Grove Box

The plutonium liquid waste in our facilities is treated with both flocculation and precipitation method (Fe co-precipitation) and absorption method, and α β radioactivity in the treated liquid waste is kept below $5.6 \times 10^{-2} \text{ Bq/ml}$. The problem at hand is the amounts of by-products from the treatment such as calcined neutralization precipitate Fe co-precipitate and used adsorbent process.

Insoluble Tannin is adopted as a good adsorbent for the process, because the constituent elements are Oxygen, Carbon and Nitrogen (Fig.1) and combustion makes it to be perfect gas such as CO_2 . A preliminary tests gave us the prospect of practical usage with simple treatment and effective decontamination. (Fig.2)

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

プルトニウム系廃液処理プロセスの開発

Development of Plutonium Liquid Waste Treatment Process

不溶性タンニン(吸着剤)は、植物性タンニン(C_6H_6O)を不溶化したものであるため、焼却(熱分解)処理により、完全にガス化する特徴があります。プルトニウム廃液を使用する基礎試験(ピーカバッチ試験、カラム通水試験及び熱分解試験)により得られた成果は以下の通りです。

- (1) $pH3 \sim 10$ の範囲で Pu の吸着率は、いずれも 99% 以上となり不溶性タンニン 1g あたりの Pu の吸着量は 175mg となります。
- (2) 線速度は遅い程、またカラム長が長い程 DF(除染係数)は向上し、図 1 に示すようにカラム長さ 2m、線速度 5cm/hr の条件下では、 α 放射能濃度排出基準値 $5.6 \times 10^{-2} Bq/ml$ より、さらに低下できます。
- (3) 使用済タンニンは、図 2 に示すように約 $600^\circ C$ で完全に熱分解して CO_2 にガス化することを確認できました。

燃料製造プロセス開発室

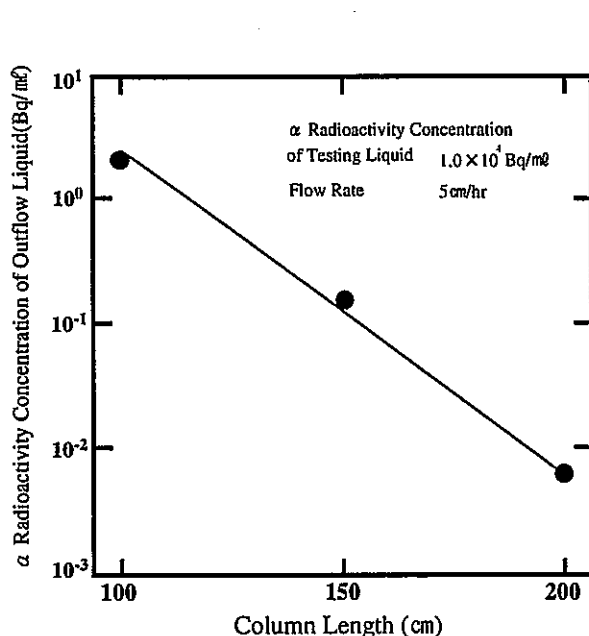


Fig.1 Column Length and α Radioactivity Concentration of Outflow Liquid

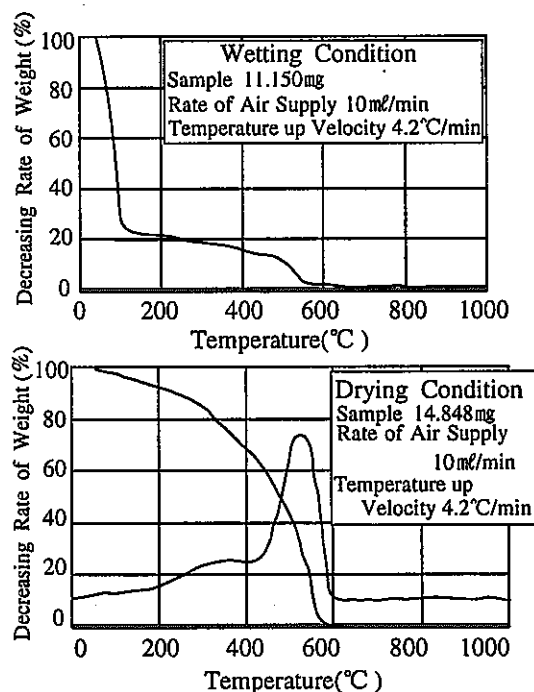


Fig.2 Pyrolytic Property of Insoluble Tannin

Insoluble Tannin is characterized by perfect gasification through combustion, since it is made from vegetable Tannin (C_6H_6O) through insolubilizing. The results from the preliminary tests with use of plutonium liquid waste are as follows:

- (1) Adsorption efficiency of Pu is above 99%, in the range of $pH3 \sim 10$, and adsorption quantity of Pu is about 175 mg per 1g tannin.
- (2) As shown in Fig.1, DF (Decontamination Factor) increases as flow rate is lower and column is longer. the α radioactivity concentration of outflow liquid falls below the regulation limit $5.6 \times 10^{-2} Bq/ml$ under the conditions that column is 2m long and flow rate is 5cm/hr.
- (3) As shown in Fig.2 it is confirmed that the used tannin is completely decomposed to CO_2 by heating above about $600^\circ C$.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

プルトニウム系廃液処理プロセスの開発

Development of Plutonium Liquid Waste Treatment Process

不溶性タンニン（吸着剤）によるプルトニウム廃液処理プロセスの概念を構築するための基礎研究を実施した結果、1) 従来の凝集沈澱処理法（Fe 共沈）及び吸着法（活性炭、キレート樹脂）におけるPuの除染係数（DF）と同等以上のDFが得られること、2) 二次副生成物が発生しないこと、3) 処理にあたってはプロセスが単一工程であり、他処理プロセスとの組み合わせが必要ない等の大きなメリットを確認できました。図1に従来の処理プロセスと本プロセスを比較をしています。今後は、本不溶性タンニンを充填したカラムを配置し、その確証試験を、計画中であり、将来の実用化プロセス設置に向け、データ収集を開始します。

燃料製造プロセス開発室

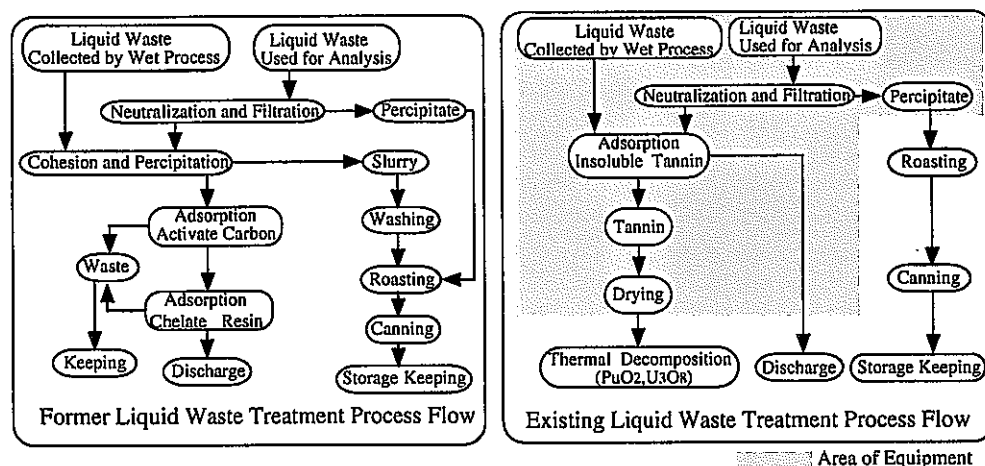


Fig.1 Comparison of Liquid Waste Treatment Process

	1995	1996	1997	1998
Manufacturing and Installation of Confirmatory Test Equipment	—			
Confirmatory Test		—		
Design and Premission of Practical Process		Manufacturing and Installation	—	
Manufacturing and Installation of Practical Process			Premission	
Operation(Treatment)				—

Table-1 Work Schedule

A preliminary conceptual study has been performed on plutonium liquid waste treatment with insoluble tannin. The results show the following merits: 1) the decontamination factor by treatment is equivalent to or better than that by the current treatments (flocculation and precipitation method and adsorption method), 2) by-products are not produced and 3) this process is a single process without combination of other processes. Figure 1 shows the comparison between this treatment and the current ones. Now, we are planning to start a reliability test with the insoluble tannin filled column for the purpose of designing the practical process in future.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

研究用 Pu-Np の回収試験

Recovering Study of Pu-Np for Research

事業団では新しい考え方の核燃料サイクルとして、U・Puはもちろん Np,Am,Cm 等のマイナーアクチニド (MA) を可能な限り廃棄物とせず、高速炉燃料サイクルの中で効率的に燃焼しエネルギーとして利用していく、先進的核燃料リサイクル (図 1) の研究開発を実施しています。これは最新の原子力開発利用長期計画 ('94,6 月) にも明記され、今後より一層の研究開発が望まれている技術の一つであります。このため現在事業団では、MA 含有燃料の基礎物性試験や照射試験等に、必要な研究用 Pu-Np の回収に関する技術開発を進めています。

使用済核燃料に含まれる Np (図 2) は、そのほとんどが再処理により高レベル放射性廃液中に移行しますが、硝酸 Pu 溶液中に微量同伴しています。研究用 Pu-Np の回収は、不純物が少なく、回収方法の比較的容易なものが望まれており、使用済核燃料再処理から得られる硝酸 Pu 溶液からの回収が計画されています。

燃料製造プロセス開発室

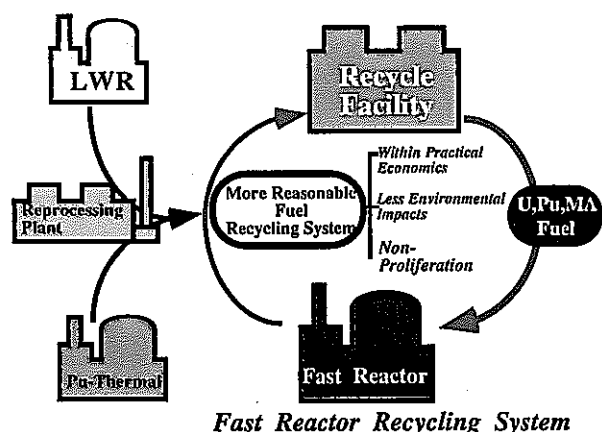


Fig.1 Concept of Advanced Nuclear Fuel Recycle including Pu and Minor Actinide Multi Cycles.

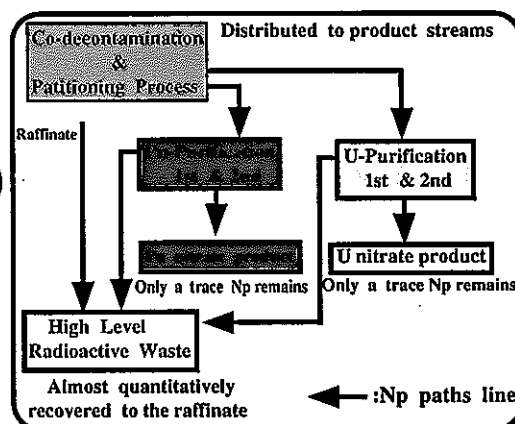


Fig.2 The Np behavior in the conventional PUREX Extraction Process

An Advanced Recycle (Fig.1) is a new nuclear fuel recycling concept based on fast breeder reactor technology in which total actinides, such as U,Np,Pu, Am and Cm, are effectively burnt and used for energy production with minimum generation of wastes bearing them. A necessity of the development of this technology is explicitly declared in 'the developments of advanced of Nuclear fuel Recycling Technology' in an article of a long-term program for Research, Development and Utilization of Nuclear Energy by Atomic Energy Commission in June 1994. PNC has studied to recover Pu-Np for research of characteristics and irradiation test of Pu-Np containing MOX fuel.

A small amount Np are included in a reprocessed Pu nitrate solution as an α -emitter impurity, however almost Np are distributed to the high active liquid wastes in the reprocessing stream (Fig.2). PNC has a plan that will recover the Pu-Np from the Pu nitrate solution because the Pu nitrate solution product have little impurities and is not comparatively hard the handling.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

研究用 Pu-Np の回収試験

Recovering Study of Pu-Np for Research

事業団では新しい考え方の核燃料サイクルとして、U・PuはもちろんNp、Am、Cm等のマイナーアクチニド (MA) を可能な限り廃棄物とせず、高速炉燃料サイクルの中で効率的に燃焼しエネルギーとして利用していく、先進的核燃料リサイクル (図1) の研究開発を実施しています。これは最新の原子力開発利用長期計画 ('94,6月) にも明記され、今後より一層の研究開発が望まれている技術の一つであります。このため事業団では、MA含有燃料の基礎物性試験や照射試験等に、必要な研究用Pu-Npの回収に関する技術開発を進めており、再処理製品硝酸Pu溶液中に微量に含有するNpを、それに資する計画であります。

その回収方法として、III 価のPuの還元力によるIV 価Npの原子価調整法と、イオン交換法を組合せた回収方法を検討しています。その結果、微量Np含有硝酸Pu溶液 ($Np/Pu = 0.01$) から、 $Np/Pu = 0.45$ に濃縮された硝酸Pu-Np溶液が回収可能であることを確認しました (図2)。本法はPu (III) の調製に、分解・除去可能な還元剤を使用しており、系内への不純物混入がなく、シンプルで、廃棄物発生量の低減化が期待できるプロセスであります。

燃料製造プロセス開発室

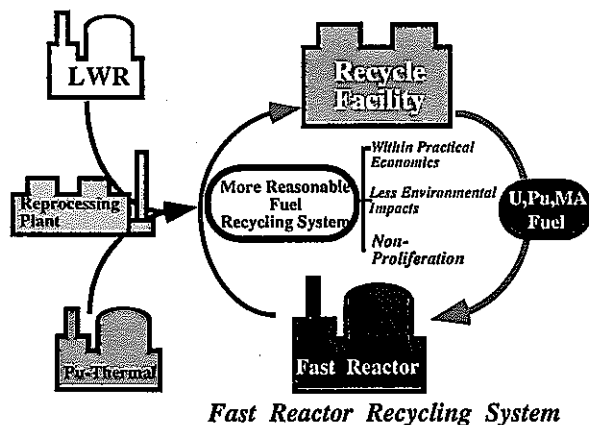


Fig.1 Concept of Advanced Nuclear Fuel Recycle including Pu and Minor Actinide Multi Cycles.

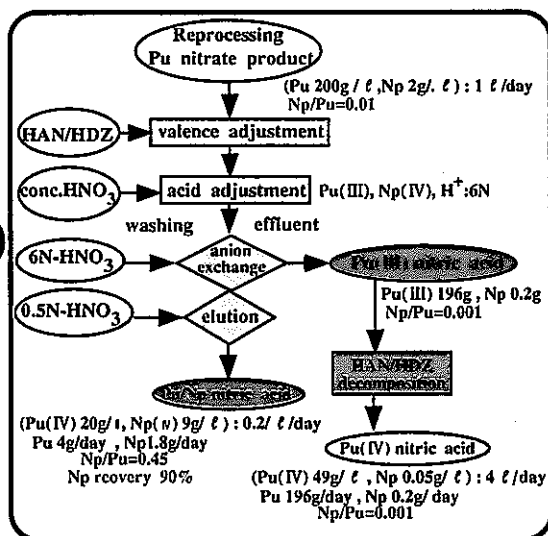


Fig.2 Recovery of research Np from the reprocessing Pu nitrate
(HAN:Hydroxylamine, HDZ:Hydrazine)

An Advanced Recycle (Fig.1) is a new nuclear fuel recycling concept based on fast breeder reactor technology in which all actinides, such as U, Np, Pu, Am and Cm, are effectively burnt and used for energy production with minimum generation of wastes. A necessity of the development of this technology is explicitly declared in 'the developments of advanced Nuclear fuel Recycling Technology' in an article of a long-term program for Research, Development and Utilization of Nuclear Energy by Atomic Energy Commission in June 1994. PNC has studied on the recovery of the Pu-Np which is used for measurement of physical properties of MOX fuel contained Np and irradiation test in the first stage for the developments of the Advanced Recycle and has a plan of recovering the Pu-Np from the Pu nitrate solution in the nuclear fuel reprocessing.

This study confirmed that only coexisted Pu (III) does accomplish the valence adjustment of Np (IV) in a nitric acid solution. As a result of this adjustment, Np concentrated Pu-Np nitrate solution from Pu nitrate solution containing small amount of Np has well succeeded (Fig.2). This process is very simple and achieves the minimization of waste generation, because used reducing agents such as hydroxylamine nitrate and hydrazine, is decomposed and impurities do not remain in an used any solution.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

研究用Pu-Npの回収試験

Recovering Study of Pu-Np for Research

事業団では、再処理製品硝酸Pu溶液中に微量に含有するNpを、先進的核燃料リサイクルに必要な研究用Npとして使用するため、Pu-Np回収試験を実施しています。酸性溶液中でNpイオンはIV, V, VI価の原子価を有し、その挙動は複雑であります。従来、アクチニド各元素の存在割合のコントロールは、溶媒抽出法やイオン交換法があり、これらの前処理として各イオンの原子価調整法は重要であります。

試験の結果、IV, V, VI価のNpが混在する硝酸溶液(酸濃度6N)が、硝酸Pu(III)により、IV価のみのNpに調整できることを確認しました(図1)。またIII価のPuイオンによるIV価Npの原子価調整法とイオン交換法を組合せ、微量Np含有硝酸Pu溶液($Np/Pu = 0.01$)を $Np/Pu = 0.45$ に濃縮した硝酸Pu-Np溶液が回収可能であることを確認しました(図2)。本法はPu(III)の調製に、分解・除去可能な硝酸ヒドロキシルアミンやヒドラジンを使用しており、系内への不純物混入がなく、シンプルで、廃棄物発生量の低減化が期待できるプロセスであります。

燃料製造プロセス開発室

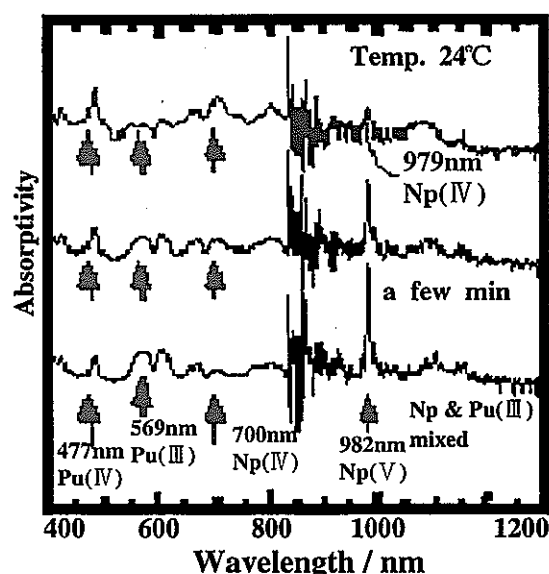


Fig.1 The absorption spectra of Np & Pu ions for Np reducing by Pu(III) in the nitrate solution. The Pu(III) was prepared by hydroxylamine nitrate and hydrazine.

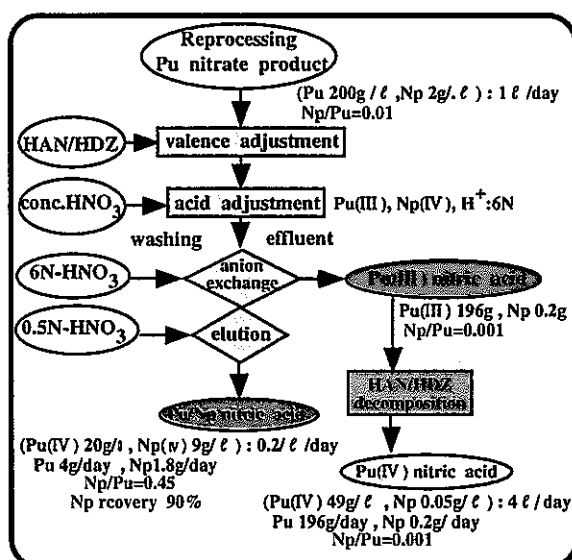


Fig.2 Recovery of research Np from the reprocessing Pu nitrate
(HAN:Hydroxylamine, HDZ:Hydrazine)

For the first step of an Advanced recycle study, experiments have been carried out on the concentration of Np in the reprocessed Pu nitrate solution. The Np element has IV, V and VI valences in acid solution and, therefore the behaviors are complex. Conventionally, a concentration of each actinide elements is controlled by the extraction or the ion exchange, in which the valence adjustment that is a key point of their technique.

This study confirmed that only coexisted Pu(III) does accomplish the valence adjustment of Np(IV) in a nitric acid solution (Fig.1). As a result of this adjustment, recovery of the Np concentrated nitrate solution ($Np/Pu = 0.45$) from a Pu nitrate solution ($Np/Pu = 0.01$) (Fig.2). The Pu(III) was prepared with use of hydroxylamine nitrate and hydrazine which is decomposed. Accordingly, the recovery process is expected to be very simple without impurities left in the used solution and to achieve the minimization of waste generation.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

TRUEX 法による Am-241 回収技術の開発

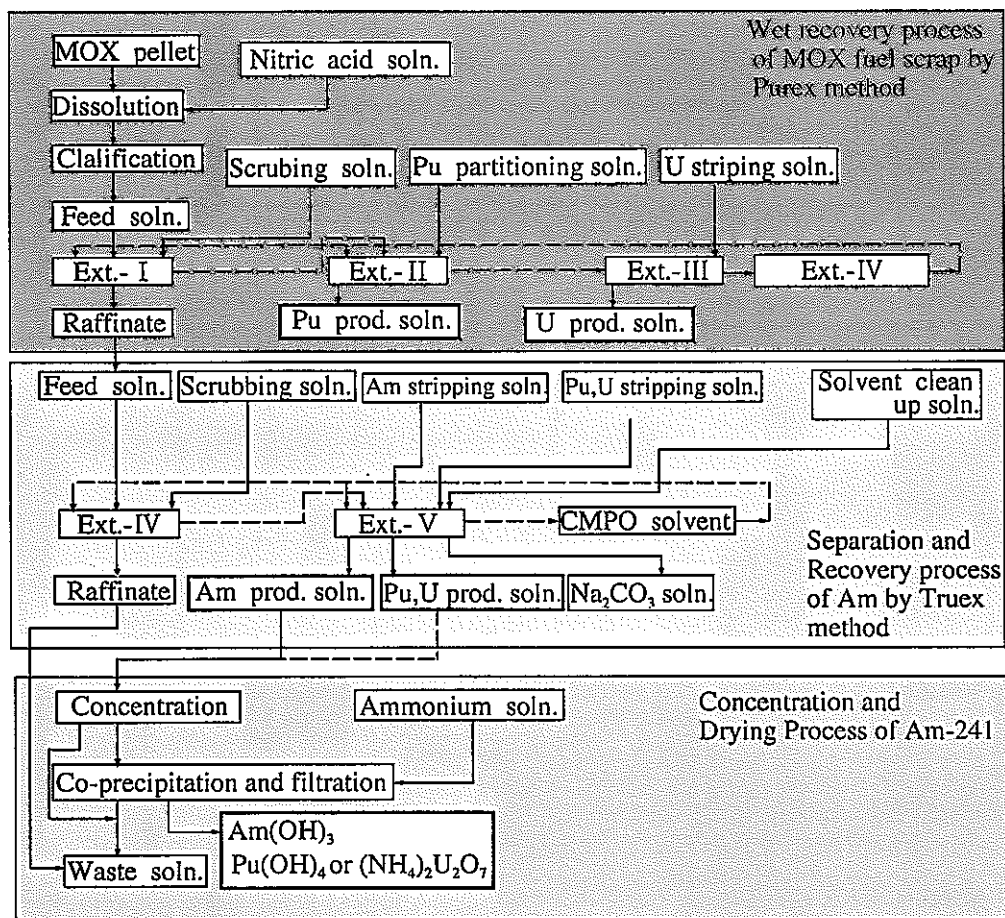
Recovery Studies of Am-241 from Nitric Acid Solution by the TRUEX Solvent Extraction Process

先進的核燃料サイクル技術開発の一環として、Am-241 を照射試験用試料の製造用原料として供給するため、MOX 燃料スクラップの PUREX 法による Pu 及び U の回収処理に伴って発生する抽出廃液に含まれる Am-241 の TRUEX 法による回収技術の開発を行っています。

現在この回収試験をするため、1995 年から 1996 年にかけて試験設備の製作・据付工事を行いました。本処理試験設備のフローダイアグラムを下图に示します。

この処理試験設備の運転を通じて、回収技術の開発はもちろん、被ばく低減化対策や Am-241 の物性研究・分析方法等を確立します。

燃料製造プロセス開発室



PUREX and TRUEX Process flow diagram for extraction of Am-241 from nitric acid solution(raffinate)

We have been developing the recovery technique of Am-241 from nitric acid solution by the TRUEX solvent extraction process as a part of advanced nuclear fuel cycle technology. Now, for the purpose of irradiation tests of Am-241, we are planning to recover Am-241 from the raffinate which was produced through the wet recovery process of plutonium and uranium from the MOX fuel scrap by PUREX method.

In 1995 ~ 1996, we have constructed and equipped the test equipment for the recovery study. The flow diagram is shown in the above figure, we will establish not only the development of recovery techniques but also the development of reduction technique of radiation exposure and the study of physical properties and analysis of Am-241 to be carried out through the operation of this equipment

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section

グローブボックス用遠隔取扱治具の開発

Development of Remote Handling Tools for Glove Box

先進的核燃料リサイクル技術開発の一環として、MOX 燃料スクラップ中に存在する Am-241 を TRUEX 法による回収試験を実施する予定です。この試験を行う場合、作業中の被ばくの低減化が重要な課題のひとつです。そのため根本的な被ばくの低減化の観点から、遠隔操作可能な多関節型治具の開発を行っています。現在は以下のような特徴を備えた試作機を製作して、機能試験を実施しています。

- (1) 本治具は、肩 (旋回、伸縮)、肘 (旋回)、腕 (ねじり)、手首 (旋回、ねじり)、ハンド (開閉) の 7 自由度を持った作業範囲の広い多関節型治具です。
- (2) 放射性物質で汚染されるのがハンド部のみであるため、メンテナンスが簡単です。
- (3) ハンド部から分離できるため、他のグローブポートにも容易に取り付けられます。
- (4) ハンド部の爪の交換が容易にできるため、操作対象物の形状に合った爪に交換することができます。
- (5) 手動遠隔操作のみでなく自動遠隔操作もできます。

燃料製造プロセス開発室

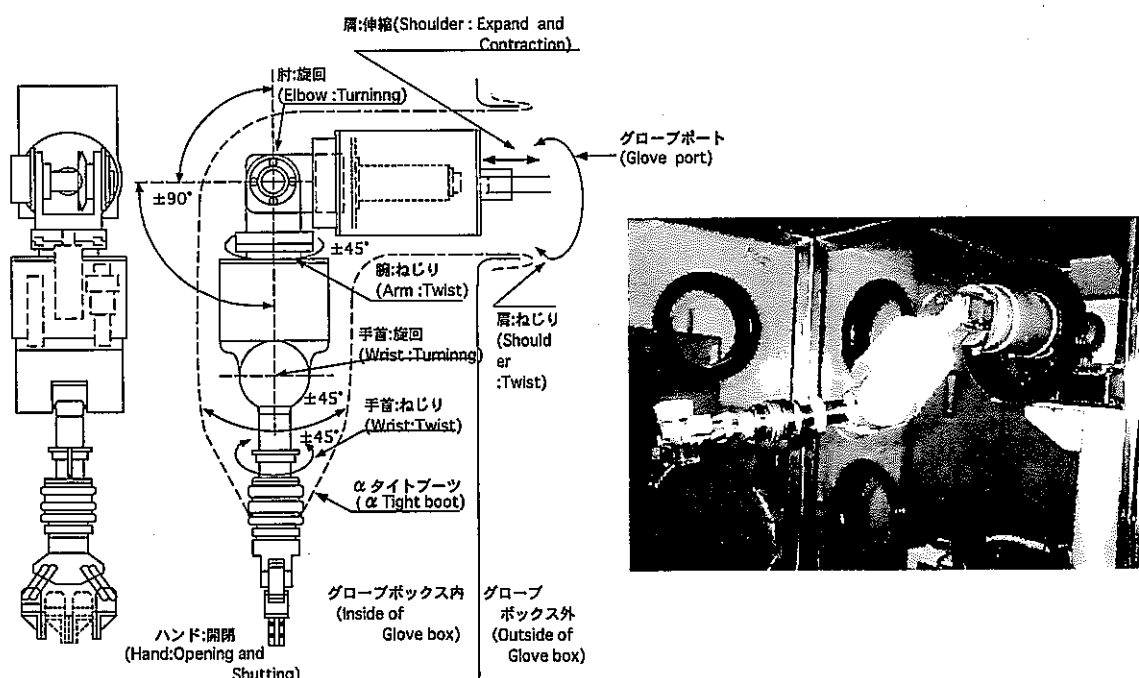


Fig.1 グローブボックス用遠隔操作治具
Remote handling tools for glove box

For the purpose of development of advanced nuclear fuel recycling technology, we are planning to recover Am-241 from MOX fuel scrap by TRUEX process. To carry out this examination, reduction of exposure from Am-241 is one of the important subjects. To solve this problem fundamentally, we have been developing many joints type remote handling tools for glove box and manufactured a trial machine. It possesses the following characteristics:

- (1) This tool has 7 degree of freedoms, and has wide working area.
- (2) Only the hand part is contaminated by the radioactive materials, so the maintenance is easy.
- (3) The part of hand is easily separated from the port and installed to other glove port.
- (4) The nail part can be changed so as to conform to shape of operation object.
- (5) Both manual operation remote control and automatic remote control are possible.

Advanced Fuel Fabrication Process Development Section