



再処理技術開発

3. 高レベル放射性物質研究施設 (CPF) における技術開発

東海事業所技術部高レベル放射性物質 試験室

資料番号: 59-13

3. Hot Cell Experiments in the Chemical Processing Facility (CPF)

Chemical Processing Research Section,
Fuel Cycle Technology Development Division,
Tokai Works.

CPFはA/Bの2系列から構成されており、そのうちA系列では、各種の高レベル燃料を用いて小規模の再処理試験を行っている。ピンせん断機、溶解槽、ミキサセトラ等の主要機器は、5個のホットセル及び2系統のグローブボックスに設置されており、TBP/n-ドデカンを用いたビュレックスプロセスを採用している。昭和57年9月以降、9回のホット試験を実施しており、これまでに約6kgの使用済燃料を処理し、プロセス全般にわたるデータを集積している。

Key Words: Reprocessing, FBR Fuels, Hot Cell, Purex, TBP/n-dodecan, HAN
Dissolution, Solvent Extraction.

3. 高レベル放射性物質研究施設 (CPF) における 技術開発

3.1 施設概要

CPFは2系列のホットセルライン (A系列: 再処理試験, B系列: ガラス固化試験) を有している。このうちA系列ラインは5つのセルと2つのグローブボックスから構成されており、図3-1に示すように、燃料ピン単位で、燃料受入からマイクロ液によるMOX粉末への転換までの一連の工程について試験ができるようになっている。

CA-1セルは燃料受入用のセルで、最大 10^6Ci までの放射能の燃料を取り扱うことができる。CA-2セルでは圧空駆動のせん断機を用い、燃料ピンを1本ずつ1-5cmの長さにせん断する。CA-3セルには、溶解槽、溶解液濃度及びPu原子価調整のための調整槽、材料腐食試験のための浸漬槽、抽出工程用のアクリル製ミニミキサセトラ (ミキサ部: 6ml、セトラ部: 17ml、16-19段) 等があり、溶解や溶解液を用いた種々の試験、不溶性残渣の回収、

抽出工程のうち共除染試験等、主として高放射性的な溶液系試験を行うことができる。その他、溶解槽オフガスの処理系 (凝縮器、洗浄塔、ヨウ素吸着塔) や高レベル廃液をセル外へ抜き出す貯槽配管系が設置されている。CA-4セル、グローブボックスにもアクリル製ミニミキサセトラがあり、抽出工程のうち分配試験、U・Pu精製試験を行う。また、Pu系グローブボックスにはマイクロ液加熱装置が設置されている。CA-5セルでは再処理試験、ガラス固化試験に関する分析を行っており、U、Pu硝酸濃度測定用の滴定装置、FPγ測定用のGe検出器、Pu原子価測定用の吸光分光計、不溶性残渣、ガラス固化体等の元素分析用の直流アーク発光プラズマ装置が備えられている。これら以外にも、オフガス成分測定用のKrモニタ (NaI)、四重極ガス質量分析装置等がセル外に設置されている。

CPFのフローシートはビュレックス法を基本としており、燃料ピンは長さ約3cmにせん断され、バスケット内に集められた状態で溶解槽内に装荷され

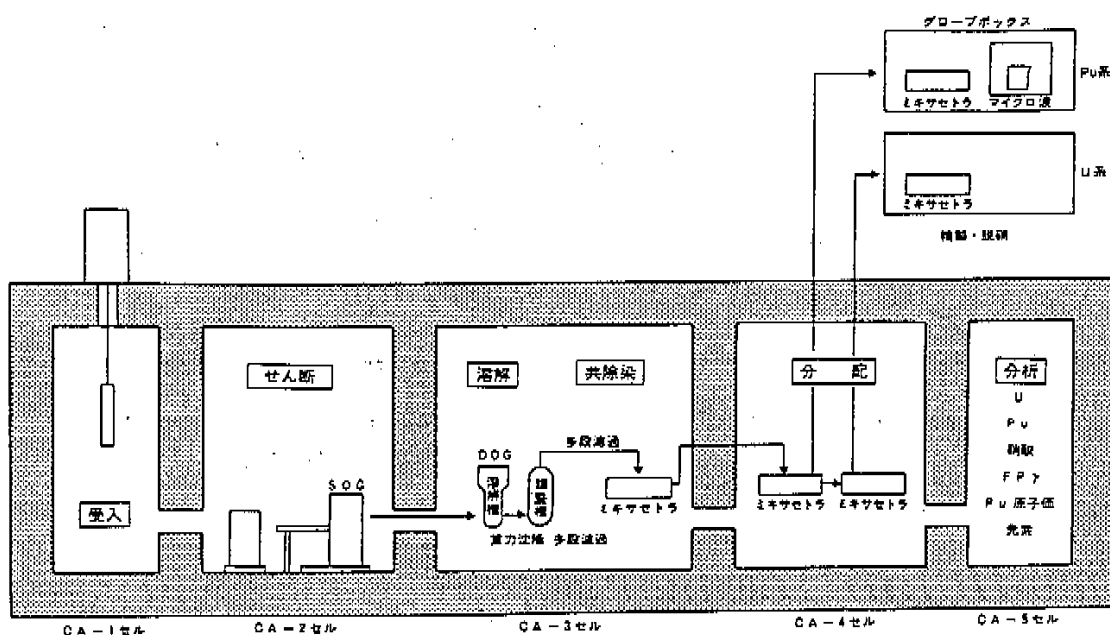


図3-1 O P Fにおける高速炉燃料リサイクルホット試験概略図

る。燃料は、硝酸によって溶解され、U、Pu、硝酸濃度及びPu原子価を調整された後抽出工程へ供給される。抽出工程では、溶媒として30%TBP-nドデカンを用い、還元試薬として硝酸ヒドロキシルアミン（HAN）を用いている。ミキサセトラを用いて、除染分配、精製されたプルトニウム溶液はウラン溶液と混合後マイクロ波加熱によりMOX粉末に転換される。

3.2 試験実績

C P Fの試験スケジュールを図3-2に示す。

C P Fはこれまでに燃料を6回受け入れており、その内訳は、「常陽」MK-I燃料（4,400～40,100 MWD/T）が27本、「常陽」MK-II燃料（13,800～31,700 MWD/T）が18本、英国ドンレイ高速実験炉（D F R）照射燃料（48,500～55,300 MWD/T）が2本相当である。

これらの燃料を用いて昭和57年9月から昭和61年3月までに通算9回のホット試験を実施した。第1回試験では低燃焼度の燃料を用い、機器の作動確認及びプロセスの確認を行った。この際、抽出工程において、抽出器セトラ部の有機相・水相界面にクラッド（黒色の異物）が発生した。第2回試験では燃焼度32,000 MWD/Tの燃料を用い、清澄法に若干の改良を加えることによりクラッド発生を低減した。

第3回試験では「常陽」MK-I燃料の燃焼度40,100 MWD/Tのものをを用い、不溶性残渣を定量的に回収すると共に、清澄を入念に行うことによりクラッド発生を大巾に低減した。第4回、第5回試験では40,100 MWD/Tの燃料を用いパラメトリックな試験を開始した。第4回試験では、溶解条件をパラメータに4回の溶解を行うと共に、それぞれの溶解液中から不溶性残渣を定量回収した。さらに抽出工程において第1サイクル分離フローの試験を行った。第5回試験では、燃料をコア部とブランケット部に分け、それぞれの溶解特性、不溶性残渣の発生量確認を行った。第6回、第7回試験では燃焼度13,800 MWD/Tの「常陽」MK-II燃料を用い、高Pu富化度（29%）の燃料の溶解性確認を行った。第8回試験では燃焼度31,700 MWD/Tのものをを用い、溶解性の確認を行うと共に、小型のバルスカラム（内径35mm、カラム長1m）を用いた試験を実施した。第9回試験では、初めて海外（ドンレイ高速実験炉＝D F R）で照射された、これまで最高の55,300 MWD/Tの燃料を用い、溶解性確認、不溶性残渣の回収を行うと共に、せん断片断片を用いた小型の溶解試験を実施した。

これまでにC P Fに受け入れた燃料は約11kg（酸化物重量）であり、第9回試験までに使用した燃料は約6 kgである。

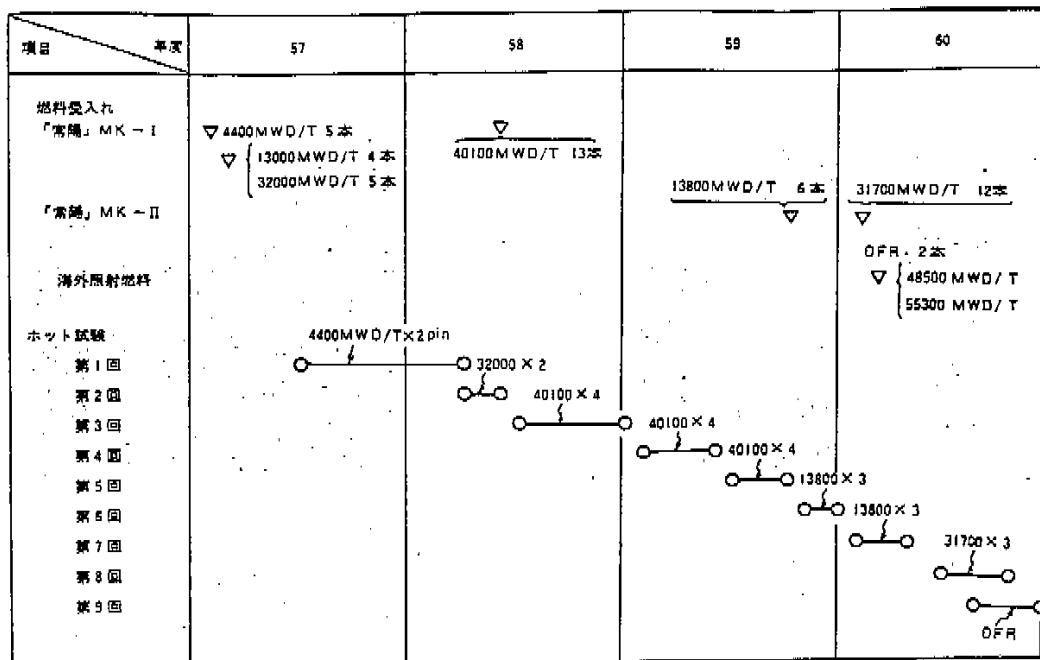


図3-2 CPF高速炉燃料リサイクル試験スケジュール

なお、第1回、第2回試験で回収したMOX粉末は、昭和58年9月にプルトニウム燃料第一開発室へ輸送され、同施設でMOX燃料に再加工された後、高速実験炉「常陽」に装荷され、昭和59年9月に運転に供されている。

3.3 試験結果

(1) セン断

ラッピングワイヤを取り除かれた燃料ピンを1本ずつ、長さ約3cmにせん断した結果、燃料ミート部の切口はもとの形状からあまり変化せずほぼ真円を保っている。また、せん断片のミートはかなり脆くなっており、振動、衝撃により容易に崩壊し被覆管から脱離するものもあることが観測された。

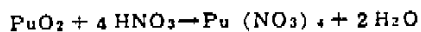
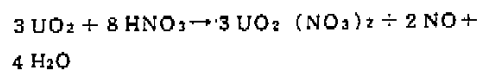
また、せん断時にオフガス中に放出されるKrの量は、低燃焼度の燃料を除いて燃料ピン中の全Krの30～50%となり、残りは溶解時に放出されることが判明した。

(2) 溶解

「常陽」MK-I燃料の場合1～4本分を、MK-II燃料の場合3本分を、DFR燃料の場合2本分をそれぞれバッチで溶解した。使用した硝酸は3.5N（一部2.5N）で、沸点、90℃、80℃、70℃の温度で試験している。攪拌は空気吹込（0.5Nm³/h）で行っている。また、せん断片1～2片を用いて、ピ

一カ規模の溶解試験も行った。

MK-I燃料は良好な溶解性を示し、3.5N硝酸中において、沸点で約4時間、90℃で5～6時間ではほぼ全量溶解する。FP元素のうち、Cs、CeはU、Puとほぼ同じか若干早く溶解するが、Ruは10時間程度では溶解が終了せず、不溶性残渣の主要成分となる。硝酸消費量は下記溶解反応式の計算値とよく一致する。



燃料の溶解がほぼ終了した頃から、Puの原子価が4価から6価へ変化し始め、加熱時間によっては、Puのほぼ全量が6価（PuO₂²⁺）となる。溶解時のオフガスへのKr放出は、燃料の溶解と良い相関関係を持っている。また、コア部（Pu18%）とブランケット部（劣化U酸化物）を比較したが、Pu、U、FP等の成分割合のちがいににもかかわらず溶解時間に有意差は見られなかった。

MK-II燃料（Pu29%）の溶解挙動は、MK-Iとほぼ同じであるが、MK-Iに比べ溶解速度が若干遅くなる。

DFR燃料（Pu18～20%）は、MK-I燃料とはほぼ同じ溶解挙動を示した。

(3) 不溶性残渣

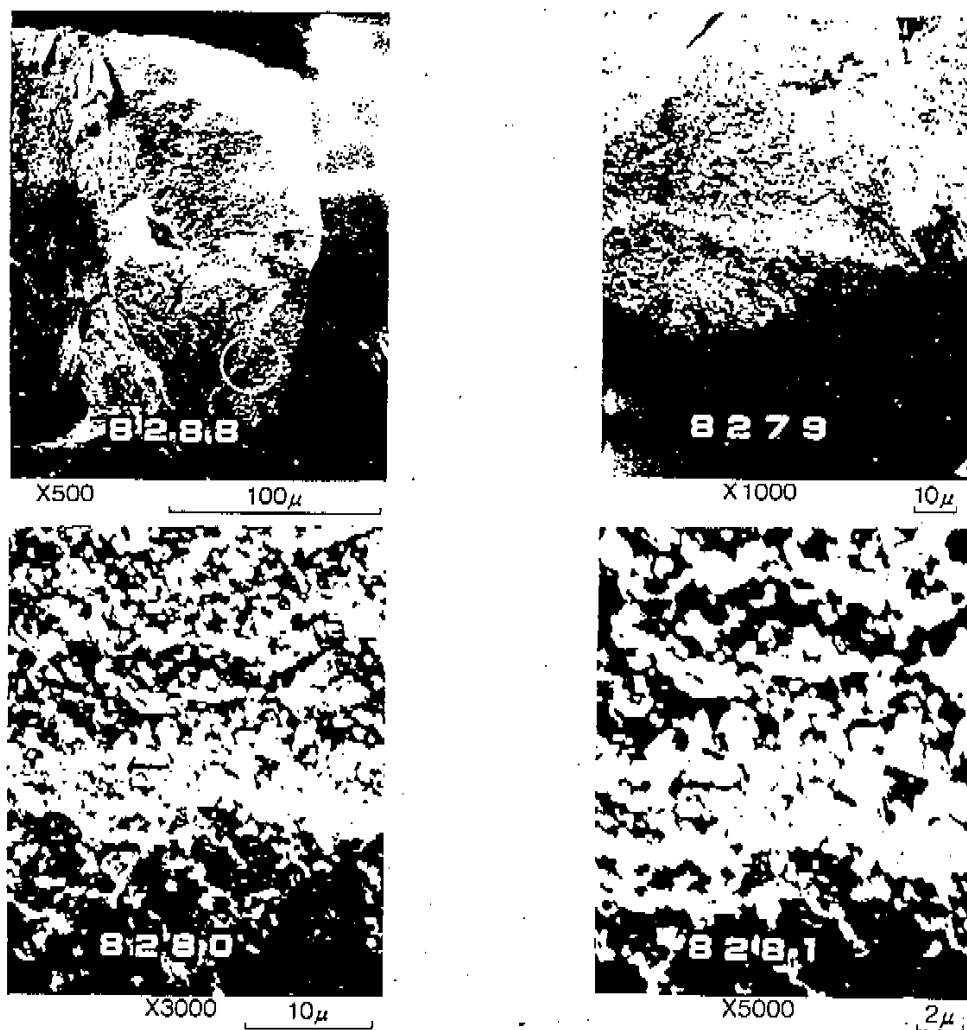


図3-3 不溶性残渣（2次電子像）

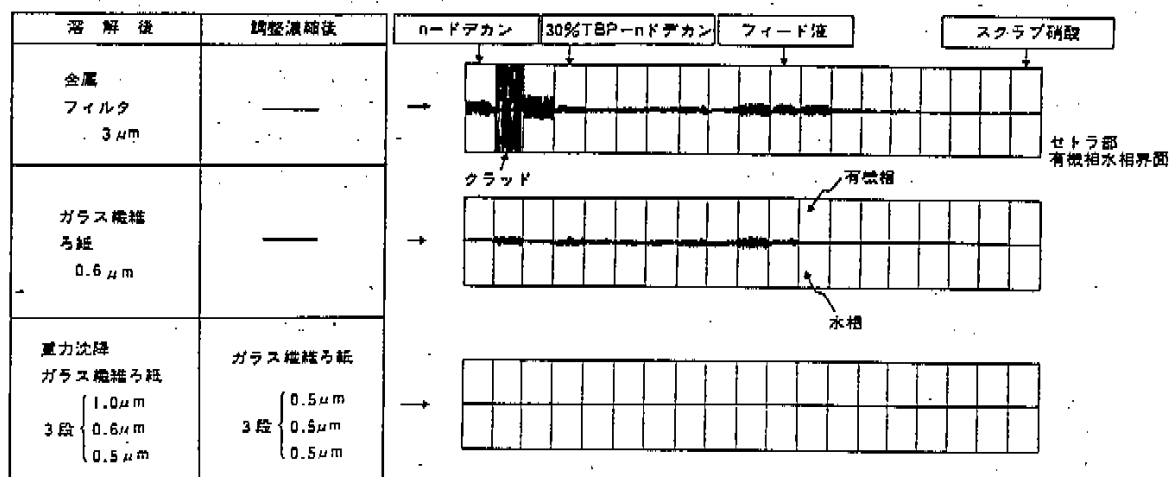


図3-4 清澄条件とクラッド発生状況

燃焼度40,100MWD/TのMK-I燃料、MK-II燃料、DFR燃料の溶解液中から、不溶性残渣を回収した。回収は、溶解液を約1日間静置し不溶性残渣を重力沈降させて行き、回収物は硝酸により数回洗浄した。回収した不溶性残渣については、重量測定、元素分析、 γ 核種分析、EPMA観察を行った。また、溶解液中に浮遊している状態において粒度分布測定を行った。

不溶性残渣は、コア部燃料から発生し、その量はコア部重量の1%程度である。不溶性残渣の主要成分はRu、Moであり、FPY成分としては ^{106}Ru がほぼ100%を占める。EPMAを用いて観察した残渣の写真(2次電子像)を図3-3に示す。残渣は非常に小さな粒子からなり、その大部分が直径1 μm 以下である。これらの結果から、不溶性残渣は、照射された燃料中に生成析出する貴金属(Ru、Pd等)及びMoの合金と同一であると思われる。なお今回のブランケット燃料からは、不溶性残渣はほとんど発生しなかった。

(4) 清澄

清澄には、第1回試験では焼結金属フィルタ(3 μm)、第2回試験では捕捉粒子径0.6 μm のガラス繊維ろ紙、第3回試験以降は重力沈降分離後、捕捉粒子径1、0.6、0.5 μm の3種のガラス繊維ろ紙を組み合わせたものを用いた。

第1回試験においては、抽出第1サイクルミキサセトラのセトラ部有機相・水相界面にクラッド(黒色異物、図3-4)が多量に発生した。このクラッドには ^{106}Ru (クラッド中の放射能としてはこの元素の寄与がほぼ100%)が含まれており、それが放置された場合には抽出器運転に支障を与えると共に溶媒劣化を促進する可能性がある。第2回試験においてはクラッド発生を少し低減したのみであったが、第3回試験以降、入念な清澄を行うことによりクラッドの発生を大巾に低減した。

(5) Pu原子価調整

溶解時の加熱によって生じた6価のPu(PuO_2^{2+})及び分配工程以降の還元分離された3価のPu(Pu^{3+})を、亜硝酸(NaNO_2 、 NO_2 ガス)を用いて4価のPu(Pu^{4+})に調整した。

亜硝酸ソーダ、亜硝酸ガスのいずれによってもPu原

子価の調整は可能であるが、含塩廃棄物低減のためには亜硝酸ガスを用いる方が望ましい。ただし、亜硝酸ガスを用いた場合、溶液の硝酸濃度が上昇する。

(6) 共除染

第2サイクル分離フローでは抽出部8段、洗浄部8段、第1サイクル分離フローでは抽出部15段、洗浄部17段で抽出、除染を行っている。これまでにを行った試験のパラメータは、使用した溶媒(30%TBP- n -ドデカン)のアルカリ洗浄の有無、スクラブ硝酸の濃度(3-1.5N)等がある。

溶媒をアルカリ洗浄して用いた場合、洗浄しない場合に比べ除染係数(特にZr)が向上する。スクラブ硝酸濃度は、Zr以外の成分の除染係数にはあまり影響しないことを確認した。硝酸濃度が3N以上になるとZrの分配係数が高くなり、抽出器内での蓄積等を起こし、除染係数が著しく低下する。

(7) 分配・精製(HAN還元)

分配サイクル及びU、Pu精製サイクルの試験においては、Pu還元剤としてHANを用いた。分配及びPu精製工程では、Puの2-4倍当量のHANを用いて分離(Pu逆抽出)を行い、またU精製工程においては、Puの1,000-50,000倍量のHANを用いU液中の微量Puの除去を行った。

分配工程においては、2-4倍当量のHANで、十分にUとPuを分離することができ、HANの使用量を増すにしたがってU中に混入するPuを低減することができた。

(8) バルスカラム試験

セル内にアクリル製のバルスカラム(内径35mm、カラム長1m)を設置し、第1サイクル抽出部に関する試験を実施した。主として、溶媒中への水相の混入量、HETS測定、液滴観察等のデータを得た。

3.4 今後の試験

昭和61年度以降に受入れ予定の燃料は、仏國の高速原型炉(Phoenix)照射燃料(Pu29%、燃焼度94,000MWD/T)「常陽」MK-II特殊燃料(Pu29%、-60,000MWD/T)等があり、これら高燃焼度燃料を用いた試験を行うと共に、基礎データ(溶解速度、抽出度等)を充実させていく予定である。