

軽水炉燃料再処理の高度化のための新ヘッド・エンド・プロセス技術の開発[†]水野峰雄¹ 後藤一郎² 藤岡綱昭³ 安池由幸² 池田泰久⁴ 高島洋一²

現行の再処理において採用されているチョップ・アンド・リーチ法では、大型剪断装置を必要とし、かつ使用済み燃料を酸難溶性のジルカロイ被覆管を付けたまま高温・高濃度の硝酸溶液で処理するため、溶解工程における負荷が大きいものとなっている。

本研究では、このような現行のヘッド・エンド・プロセスの抱える課題を解決するため、燃料集合体を解体し、燃料を被覆管より取り出した後、燃料のみを現行法より温和な条件で連続的に溶解させるとともに、燃料内のトリチウムやヨウ素を除去することによる溶解以降の工程の負荷軽減にも寄与しうる新ヘッド・エンド・プロセス技術の開発を行っている。

本報では、新ヘッド・エンド・プロセスの要素技術である燃料取出技術、ボロキシデーション技術、燃料溶解技術に関する研究成果の概要について報告する。

Keywords: 再処理, 燃料取出, ヘッド・エンド・プロセス, ボロキシデーション, 溶解

The chop and reach method used in conventional reprocessing facilities has several disadvantages as follows,

(1) A large shearing machine is used for chopping fuel assemblies. It has significant problems for long-term operation and maintenance.

(2) Dissolution rate of fuel pellets with zircalloy cladding is very slow. The dissolver is operated in severe conditions.

Hence, a new head-end process was developed to improve disadvantages in conventional one. This process consists of several steps, such as the dismantling of fuel assemblies without a large shearing machine, the chemical decladding of fuel, the removal of iodine from the fuel by using voloxidation technique and the dissolution of fuel under milder conditions.

In this paper, the recent research on the development of proposed process was reported and its applicability to the practical use was reported.

Keywords: reprocessing, decladding, head end process, voloxidation, dissolution

1 はじめに

現在、軽水炉燃料再処理においてコスト低減及び信頼性向上が重要課題とされている。また、将来予想される高燃焼度燃料及び MOX 燃料等、多様化する使用済み燃料へ対応しうる技術を開発しておく必要がある。

現行再処理プロセスにおける溶解工程では、国内外で使用実績のあるチョップ・アンド・リーチ法が採用されているが、剪断装置の稼働率向上及び酸溶解工程の負荷軽減が課題とされている[1]。

本研究は、現行プロセスの信頼性及び経済性の向上を目的とし、燃料集合体を解体し、酸化物燃料を被覆管より取り出した後、燃料のみを現状より温和な条件で連続的に溶解させる新ヘッド・エンド・プロセス技術の開発を目指したものである。

この新ヘッド・エンド・プロセスは、Fig.1 に示すように、燃料取出技術と粉体状燃料の連続溶解技術からなる。開発当初、燃料取出技術として、高島らによる拡管脱被覆法[2]が有望視されたが、高燃焼度燃料のような脆化の著しい被覆管[3]の場合、処理中における被覆管の健全性と判断された。そのため、本研究では、拡管脱被覆法に

代わる技術として、酸化熱処理法及び通電加熱処理法による燃料取出技術を選定し、その要素技術について検討を行った。また、溶解技術に関しては、溶解液中の亜硝酸濃度を高めることにより、沸騰以下の温度においても、沸騰条件と同様な速度で溶解しうるとの従来の知見[4-8]に基づき、粉体状高燃焼度燃料及び MOX 燃料の温和な条件下での溶解法について検討を行った。

本報では、上記の新ヘッド・エンド・プロセスの開発に必要な要素技術に関する研究成果の概要について報告する。

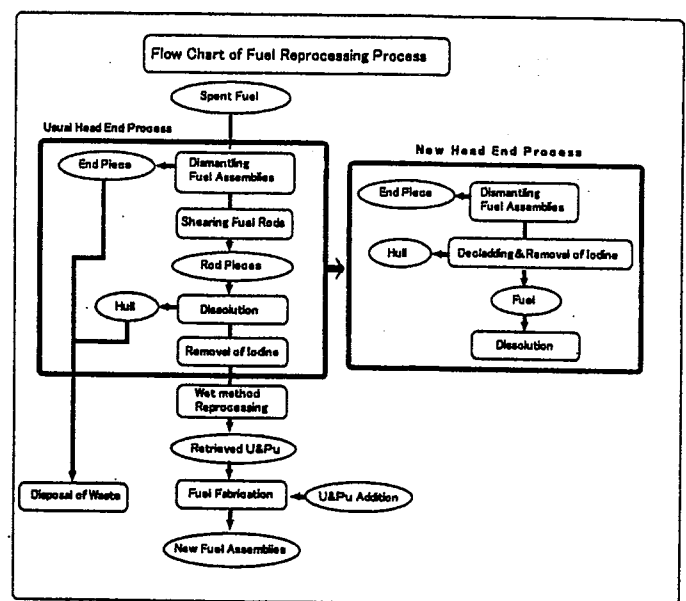


Fig.1 Comparison of the new head-end process with the conventional one

[†] The Development of New Head-End Process Techniques in the Reprocessing of LWR Spent Fuel, by Mineo Mizuno, Ichiro Goto, Tsunaaki Fujioka, Yoshiyuki Yasuike, Yasuhisa Ikeda, Yoichi Takashima

1 ニュクリア・デベロップメント(株) Nuclear Development Co. 〒319-1111 那珂郡東海村舟石川622-12

2 (財)産業創造研究所 Institute of Research and Innovation 〒277-0861 柏市高田1201

3 三菱重工業(株) Mitsubishi Heavy Industries Co. 〒220-8401 横浜市西区みなとみらい3-3-1

4 東京工業大学原子炉工学研究所 Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology 〒152-8550 目黒区大岡山2-12-1

2. 燃料取出技術の開発

2.1 酸化熱処理法

本処理法は、酸化還元熱処理法である AIROX 法[9]を参考に、その工程簡素化を目標として実施した基礎試験結果を基に開発したものである。

AIROX 法は、集合体より引き抜いた燃料棒被覆管にポンチングで約 25 mm 間隔で丸孔の開孔処理を施した後、酸化及び還元熱処理を 3 回以上繰り返すことにより被覆管脆化と燃料ペレットの粉体化を図り、燃料粉体化時の体積膨張力で被覆管を大きく開腹させるものである。

そこで、本研究では予備検討として、孔径 (2 mm ϕ , 3 mm ϕ)、開孔間隔 (25 mm, 12.5 mm)、孔形状 (丸形, 菱形) をパラメータとした酸化-還元熱処理試験を実施し、被覆管の開腹に及ぼす開孔条件の影響を調べた。結果を Table1 に示すが、どのケースにおいても被覆管が開孔することがわかった。特に Table1 のケース D に示すように、12.5 mm 間隔で菱形開孔した場合、初回の酸化熱処理のみで開腹することがわかった。これは、菱形孔端部への応力集中による亀裂伝播の効果と考えられる。また、初回到還元熱処理を十分行くと、開孔条件に関わらず次の酸化熱処理で確実に被覆管を破砕させられることもわかった。ただし、この場合少なくとも 2 段階以上の処理が必要とされるため、工程がやや複雑化する。

それゆえ、これらの処理法の中、より簡素で安全性も高いと考えられた菱形開孔-酸化熱処理法を脱被覆技術として選定した。

実用性の観点から、ポンチ形状及び材質、ポンチングによる UO_2 入り被覆管への開孔の可否、ポンチの耐久性、ポンチング時の発生荷重、最適開孔間隔、高燃焼度燃料 (燃料-被覆管間に固着有, FP 生成) への適用性確認, MOX 燃料への適用性確認等の試験を実施した。

開孔用ポンチ形状については先端形状としてののみ型ともり型とした場合、ポンチ材質については超鋼材および Cr/V 鋼として開孔特性を調べた。その結果、先端形状はのみ型の方が被覆管縦方向の亀裂をより大きく生じさせるため、脱被覆に適していることがわかった。また、超鋼材は硬度は大きい欠け易いのに対し、Cr/V 鋼では硬

度は超鋼材に比して小さいものの、粘りがあり欠けにくく、実際に UO_2 を装荷した被覆管への開孔試験では良好な耐久性を示した。したがって、ポンチ母材には Cr/V 鋼のように粘りがあり欠けにくい材料を採用するのが適当と結論された。Photo 1 に開孔試験装置外観, Photo 2 に開孔試験後のポンチ先端部外観を示す。

被覆管の脆化は中性子照射量 1×10^{21} nvt ($E > 1$ MeV) 程度の照射で初期に顕著に進行する[3]ため、1 サイクル以上の照射を受けた使用済み燃料では、燃料ペレットに接する被覆管の延性は大きく低下していると予想される。そこで、新管及び延性が数%程度まで低下した水素吸収被覆管 (水素吸収量: 約 1600 ppm) を使用し、ポンチングによる被覆管開孔特性を調べた。その結果、 UO_2 ペレットは衝撃で割れ易くかつ被覆管は縦に裂け易くなっているため、ポンチング時の発生荷重はポンチ降下速度には依存せず、発生荷重は約 500 kg 程度となり、1ヶ所当たり数秒程度で開孔処理が可能であることがわかった。

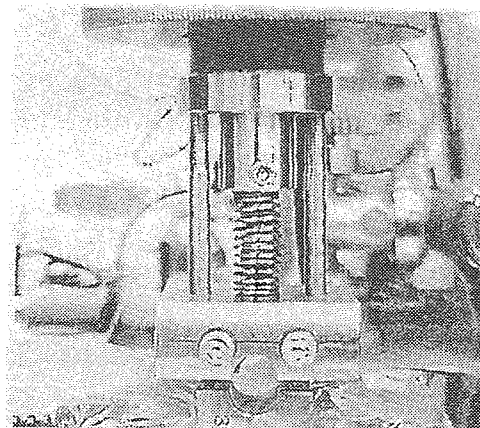


Photo 1 Appearance of a punching test apparatus

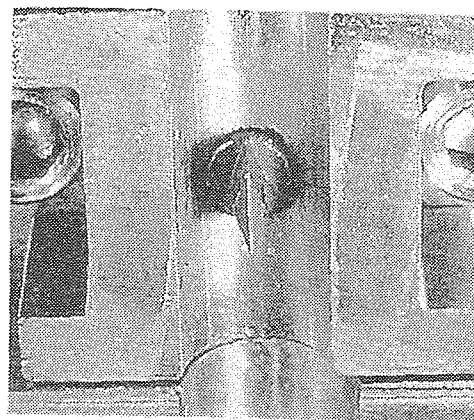


Photo 2 Head of punch after punching tests

Table 1 Conditions of Heat-treatment Test

Case	A	B	C	D	E
Hole Shape	Circle 2mm ϕ $\times$ 25mm	Circle 3mm ϕ $\times$ 25mm	Circle 2mm ϕ $\times$ 12.5mm	Diamond 3mm ϕ $\times$ 12.5mm	Circle 2mm ϕ $\times$ 12.5mm
Oxidation Under Air 480°C $\times$ 2hr	○	○	○	○	—
Reduction Under H_2 600°C $\times$ 2hr	○	○	○	—	○
Oxidation Under Air 480°C $\times$ 2hr	○	○	○	—	○

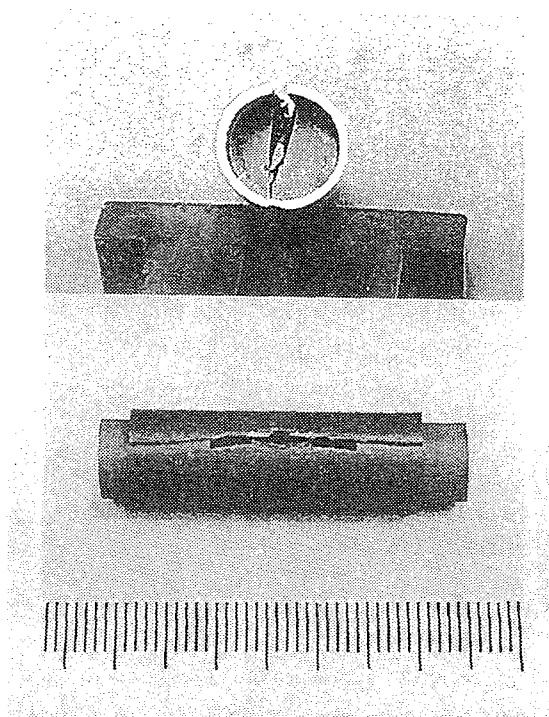
Photo 3 Test rod with UO₂ pellets after punching

Photo 3 に開孔処理後の UO₂ ペレット装荷試験体を、Photo 4 には酸化熱処理試験前後の UO₂ ペレット装荷試験体外観を示す。熱処理後の被覆管の開腹状況が良好であることが観察される。

2.2 通電加熱処理法

本処理法は、ジルカロイ被覆管に模擬燃料ペレットとしてコーゼライト（セラミック・ヒーター材）を装荷した試験体に対して、通電加熱を行うことにより被覆管を脆化させることができるのを確認したことを基本としている。

被覆管をできるだけ短時間で脆化させる上で必要な通電加熱条件の把握及び燃料ペレット装荷による電流－電圧特性への影響確認に重点を置いた検討を実施した。その結果、被覆管は大気中で表面温度が 1600 °C 近傍になるまで通電加熱すると、約 1 分間で処理前の 15 分の 1 程度にまで強度が低下すること、燃料ペレットを装荷すると熱容量増大効果により定常状態への到達時間は被覆管のみの場合の 3～5 秒に対し 1 分程度にまで大きくなるが、電流は被覆管のみの通電時に比較して約 10 % 増大する程度で必要電力量に及ばず影響は大きくないことがわかった。通電加熱試験時の UO₂ ペレット装荷試験体の外観を Photo 5 に示す。

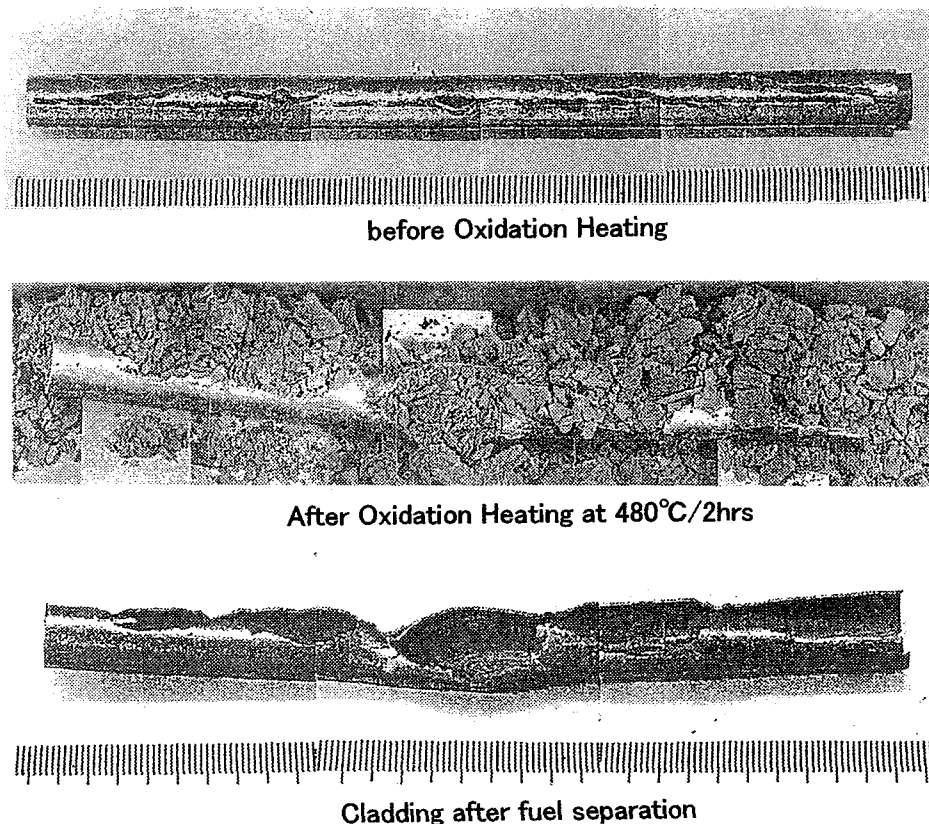
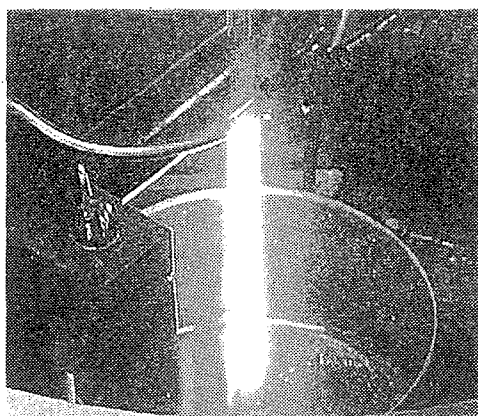
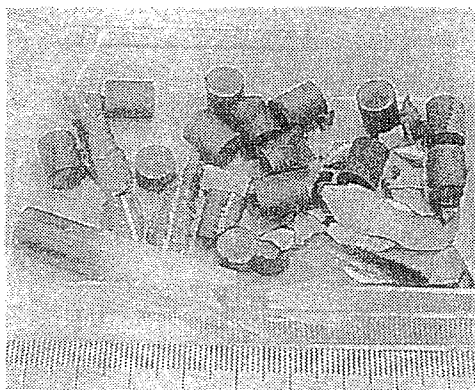


Photo 4 Appearance of test rod in heating test with oxidation conditions



During Heating



after Decladding

Photo 5 Appearance of test rod in electric resistant heating test

次に、実用化の観点から、より低温での被覆管脆化条件の確認と高燃焼度燃料への適用性確認、並びに集集体ごと処理の実現可能性等に関して検討した。その結果、燃料ペレットを装荷した被覆管の表面温度を 1200 °C とした場合でも通電時間を約 8 分間とすることにより、1600 °C、1 分間の通電加熱処理時と同程度にまで被覆管強度を低下させられることがわかり、被覆管表面温度を 1600 °C にする場合よりも電力設備を約 40 % 節減できる。また、電力制御方式で通電加熱を行う場合、被覆管の脆化の程度をリアルタイムでモニターする手段として電流降下量の観察が有効であることを見出した。これは電力量を一定として通電加熱を行った場合、被覆管表面側から酸化が進行し、酸化部分では電流が通り難くなるため、被覆管の酸化の程度（酸化膜肉厚）に対応して電流が降下し、電圧が増大する関係を利用したものである。この特性を示す被覆管の通電加熱時の電流－電圧特性測定データの一例を Fig.2 に示す。また、通電加熱後の被覆管の断面金相観察により、電流降下量が 10 % より 20 % に変化する際に被覆管内のノジュール酸化膜厚及び母材部中への拡散酸素量増大に伴う相変態により発生する

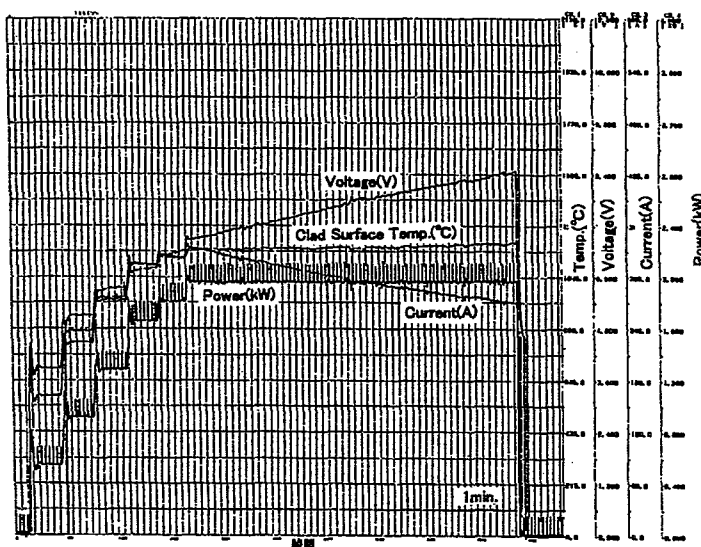


Fig.2 Measured data of cladding test rod at electric resistant heating test

クラック量が急激に増大し、これにより顕著な被覆管強度低下が引起されることが判明した。

さらに、模擬高燃焼度燃料（被覆管とペレットを固着させた試験体）を用いた通電加熱処理試験の結果、通電加熱時の被覆管体積変化は、被覆管とペレットの固着部を剥離させる効果のあることが新たにわかった。電流降下量が 20 % となるまで通電加熱した後の UO_2 ペレット装荷試験体の断面金相を Photo 6 に示す。Fig. 3 に良く知られているジルカロイの脆化に要する時間と酸化温度の関係 [10] と、本試験で得られた電流降下量 10 % 及び 20 % 酸化条件を示すが、本研究での測定結果は、図中の 17 % 酸化条件と良く対応していることがわかった。この図より、酸化温度条件をより低くした場合、所要時間は指数関数的に増大することがわかる。本試験で見出された 1200 °C、8 分間という通電加熱条件で、PWR 燃料棒集合体 (17×17) の複数燃料棒処理 (13 本/回) を行うケースでは集集体解体ライン 1 系列に対し、通電加熱処理ラインを 2 系列設ければ、実機プラントに適用できる見通しが得られている。実用システムとして必要な電力設備容量は、試験体長さや所要電力、実機燃料のサイズから、PWR 燃料棒 1 本当たり約 45KW で 1 系列 (13 本) 当たり約 600 KW と概算される。これは、市販の電源ボックス (80 V×2000 A、寸法 1×1×2 m) 2 個直列×2 組 (2 系列では 4 組) で対応できる電力である。

本処理法を採用したヘッド・エンド・システムとしては、燃料ごと処理については上述のように成立見通しが得られたと考えられるが、「集集体のまま 1 列ごとの通電加熱処理を行う集集体ごと処理」は集集体解体工程が不要で、省スペースの点でもメリットの大きい処理システムと考えられ、その実現可能性を確認するための試験を実施中である。

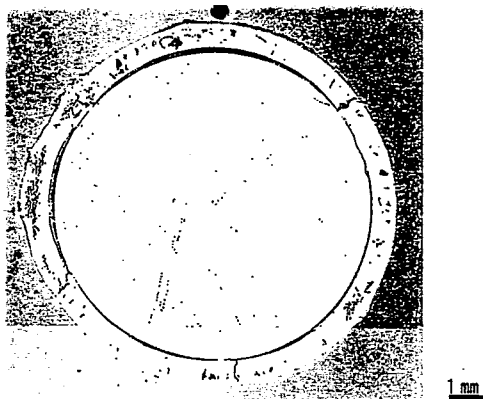


Photo 6 Ceromography of test rod of simulated bonding fuel after electric resistant heating test

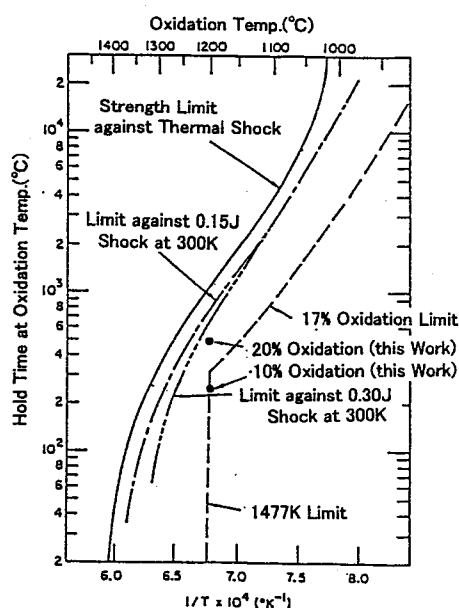


Fig.3 Comparison of oxidation conditions of zircaloy[8] and test results in this work

3 ボロキシデーショントクの開発

ボロキシデーショントクは、燃料ペレットを酸化により粉体化し、酸溶解し易い形態にするとともに、トリチウムや揮発性 FP を除去することにより、後段の酸溶解工程の負荷軽減を目指す処理技術[11]である。

本研究において、燃料取出法として酸化熱処理法を選択した場合、脱被覆処理と従来のボロキシデーショントク処理を同一工程で行える可能性がある。また、通電加熱処理法においても通電加熱で被覆管強度を大幅に低下させた後の脱被覆処理法の選択肢の一つとして酸化熱処理を行うことも可能であり、これにボロキシデーショントク処理を兼ねさせることも基本的に可能である。

ここでは、燃料取出技術とボロキシデーショントク技術の種々の組み合わせについて、技術的な成立性を判定する

ための基礎試験を実施し、考え得るシステムの概念検討を行った。

3.1 酸化熱処理法とボロキシデーショントク

燃料取出を目的とした酸化熱処理は、燃料ペレット（二酸化ウラン）を U_3O_8 に酸化することにより固体密度を約 40% 低下させるとともに、燃料ペレット粉体化による体積膨張力で被覆管を開腹させるものである。このとき、処理温度を段階的に変化させることにより 90 % 以上のヨウ素除去の可能性が期待され、燃料溶解工程の負荷軽減の観点では有利である。

このため、酸化熱処理条件としては UO_2 の U_3O_8 への酸化速度が最も大きく、かつ酸化が十分に完了し得るものでなくてはならない。本検討では、 UO_2 の酸化速度に関する既報告データ[11]を基に、脱被覆の為の基本的酸化条件として大気中、480 °C、2 時間を採用した。

UO_2 ペレットと被覆管の間に厚さ 15~50 μm の Zr-U-O 反応層を形成させた固着模擬試験体の酸化熱処理試験結果から、高燃焼度燃料のように燃料と被覆管の間に固着が生じた燃料棒でも燃料ペレットの酸化は十分進行し、燃料ペレットの粉体化が可能であることがわかった。酸化熱処理によるヨウ素除去特性試験を現在実施中であるが、酸化熱処理法では燃料取出を目的とした酸化熱処理にボロキシデーショントク機能を兼ねさせることができると考えられる。

3.2 通電加熱処理法とボロキシデーショントク

通電加熱処理は、被覆管強度を大きく低下させ、脱被覆し易くすることが目的であり、燃料ペレットは脱被覆後に全量が燃料溶解工程に送られる。また、本方法は通電加熱処理後の脱被覆法として、機械的（破碎）処理とともに酸化熱処理も選択肢とすることができる。

脱被覆を機械的方法で行う場合には、燃料は UO_2 ペレット破砕片として取り出されるため、ヨウ素を除去するには別途ボロキシデーショントク処理が必要となる。これに対して、酸化熱処理による脱被覆においては、通電加熱処理により強度が大きく低下している被覆管を UO_2 の酸化粉体化に伴う体積膨張力で破碎させるとともに、ヨウ素等を除去するボロキシデーショントク処理を兼ねさせることを期待する。通電加熱処理後の模擬高燃焼度燃料（被覆管とペレットを固着させた試験体）を大気中、480 °C、2 時間の追加酸化熱処理を行うことにより、何らの外力を加えることなく、被覆管を破碎し、篩いにより被覆管と粉体化燃料とを分離しうることを確認した。

4 燃料溶解技術の開発

燃料溶解技術に関しては、以前より硝酸溶液中での

UO₂ 燃料の溶解挙動に関する研究を実施してきた[4-8].
その結果, UO₂ 粉体の溶解フラックス (Φ : mol·cm⁻²·min⁻¹)
が,

$$\Phi = (k_a + k_b[\text{HNO}_2]) \cdot [\text{NO}_3]_T^{2.3}$$

ただし, [HNO₂]: 溶液中の亜硝酸濃度, [NO₃]_T: 溶液中の総硝酸根濃度と表すことができることを明らかにした.
したがって, UO₂ 粉体の溶解を速めるためには, 溶解温度を高めることが必ずしも有効ではなく, 溶液中の亜硝酸濃度を高く維持することが重要であり, 80~90 °C の低温においても沸騰条件と同等の速度で UO₂ 粉体を溶解しうること, また, UO₂ を粉体状にすることで, ペレット状で溶解するよりも速く溶解できること等を明らかにしている[7,8].

本開発においては, 対象となる使用済み燃料が, 脱被覆した MOX 燃料や高燃焼度燃料であるので, 上記のことが, これらの燃料に対しても適用可能か検討するため, 種々の条件で模擬燃料を用いた溶解試験を行った. 溶解試験は, Fig.4 に示す溶解試験装置を用い, 所定濃度の硝酸溶液 500 ml に, 約 1 g の粉体状模擬燃料あるいは約 6.5 g のペレット状模擬燃料を添加することにより行い, 試験中の硝酸濃度及び総硝酸根濃度は一定と見なした. なお, 亜硝酸濃度を一定条件とする場合は, 自動分注器により亜硝酸ナトリウム溶液を定量供給することにより制御した. また, 種々の粉体状模擬燃料として, ペレットをステンレス製乳鉢にて粉碎し, 篩いにより粒子径 300~355 μm となるように調製した試料を用いた.

4.1 模擬 MOX 燃料の溶解挙動

Pu の模擬物質として粉末状 CeO₂ を UO₂ に 10 wt% 添加したペレットを作製した. XRD (X 線回折) 測定結果より, UO₂ と CeO₂ が固溶化していると推測した. また, EPMA (電子線マイクロアナライザ) 測定結果より, Ce が UO₂ 中でほぼ均一に分散していることを確認した.

なお, CeO₂ を PuO₂ の模擬物質として用いることは, 模擬 MOX 燃料製造の観点から以前より行われており, CeO₂ 含有量が 30 wt% までの模擬燃料が作製された報告がある[12].

酸に難溶な PuO₂ が UO₂ と固溶化することにより, 溶解性が向上することは一般に知られているが, このことを模擬 MOX 燃料で再現することを試みるため, 硝酸濃度 4 M, 温度 80 °C, 攪拌速度 300 rpm の条件の下で溶解試験を行った. その結果を Fig.5 に示す. これより UO₂ 及び CeO₂ それぞれの単体の場合溶解が遅く, 特に CeO₂ 単体であると全く溶解しないのに対し, UO₂ と CeO₂ が固溶した模擬 MOX 燃料の場合, 両者の溶解が飛躍的に速くなることがわかる. これは UO₂ と CeO₂ が固溶化していることから, 燃料ペレット焼結時に UO₂ 及び CeO₂ が

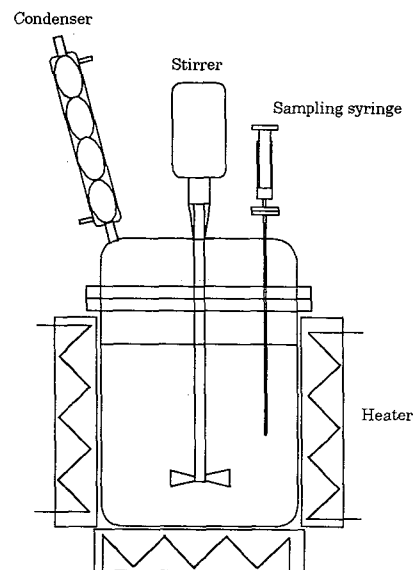


Fig.4 Apparatus for dissolution experiments

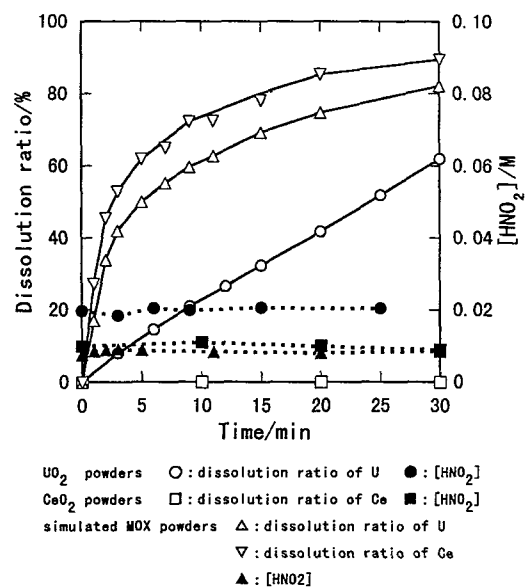


Fig.5 Plots of dissolution ratios and [HNO₂] vs. time for the dissolution of simulated MOX fuel powders in 4 M HNO₃ solution at 80°C. Stirring speed = 300 rpm. (Comparison of the sim-MOX with simple substance of UO₂ and CeO₂)

水素により還元されることにより U 及び Ce の酸素ポテンシャルが変化したためと推察される.

UO₂ の酸素ポテンシャル (O/U) は, 化学量論的には 2 であるが, 使用済み燃料のように UO₂ 中に FP が生成する場合には, O/U は 2 以下の非化学量論的な値をとり[13,14], この O/U の変化が UO₂ の溶解性に大きく影響すること[15]が知られている. 不純物が添加されることにより UO₂ の溶解が促進されるのは, このことに起因していると考えられる. 同様のことが Ce にも起こっているため, Ce の溶解も促進されたと推測される.

このように、 UO_2 と CeO_2 が固溶化した燃料の溶解が促進される現象は、実 MOX 燃料における U と Pu の溶解挙動と一致している[16].

亜硝酸濃度の影響について検討した結果を Fig.6 に示す。差は顕著ではないが、 UO_2 も CeO_2 も亜硝酸濃度が高くなるほど溶解が速くなり、特に溶解後期においてその傾向が著しくなることがわかる。亜硝酸濃度が高くなるほど溶解速度が速くなる傾向は、無添加 UO_2 の溶解挙動とも一致している。

以上より、固溶化の観点からは、Pu の模擬物質として Ce を用いたことの妥当性が示された。したがって、 UO_2 中で Pu の固溶状態が良好な MOX 燃料は、速やかに溶解することが予想されるので、MOX 燃料の調製条件を精密に制御し、Pu の固溶状態を良好に保つことが重要と考えられる。

4.2 模擬高燃焼度燃料の溶解挙動

模擬高燃焼度燃料は、13 種の模擬 FP 元素 (Sr, Mo, Ru, Rh, Ag, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Pd, Te) を UO_2 に添加することにより作製した。FP 元素の添加量を変化させることにより、燃焼度 45 及び 55 GWd/t の 2 種の模擬燃料を作製した。

溶解試験結果を Fig.7 に示す。模擬 FP 添加量が多くなる（燃焼度が高くなることを模擬）ほど溶解が速くなることかわかる。この原因についても模擬 MOX 燃料の場合と同様に、ウランの酸素ポテンシャルの変化が影響してい

ると推測される。

Fig.8 は、硝酸濃度の影響を検討した結果である。硝酸濃度が高くなるほど溶解が速くなることかわかる。

亜硝酸濃度の影響を検討した結果、模擬 MOX 燃料の場合と同様、顕著ではないが亜硝酸濃度が高くなるほど溶解が速くなる傾向が認められた。

模擬高燃焼度燃料と無添加 UO_2 燃料の溶解挙動を比較すると、前者は溶解速度が後者よりも速くなり、また、亜硝酸濃度の影響が小さくなる傾向がある。これより高燃焼度燃料の溶解においては、亜硝酸濃度の影響よりも、ウランの酸素ポテンシャルの変化による溶解促進効果がより強く現れると予想される。

以上より、粉体状高燃焼度燃料は通常の粉体状燃料と同様にあるいはそれ以上に溶解が促進されると予想される。このような傾向は溶解条件をよりマイルドにするという観点で好ましい。

5 システム概念検討

すでに述べたように、最適な燃料の取り出し方法として酸化還元熱処理法及び通電加熱法が選択された。そこで、新しい燃料取出・連続溶解技術に関するシステム概念検討を行った。

酸化還元熱処理法を採用した場合のシステムフローを Fig.9 に示す。この方法ではロッドコンソリデーションが

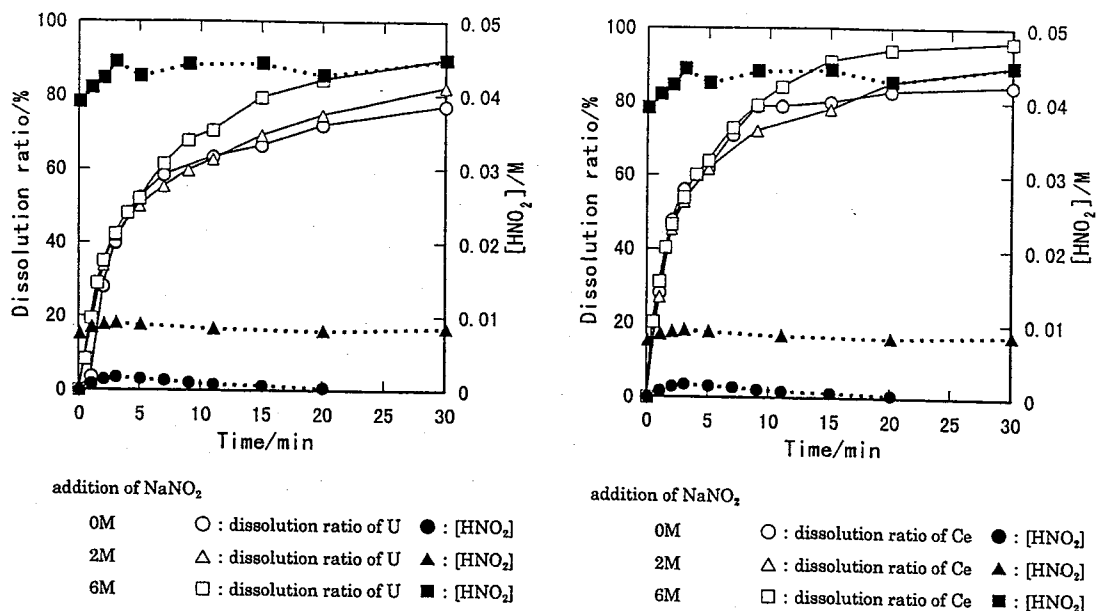


Fig.6 Plots of dissolution ratios and $[\text{HNO}_2]$ vs. time for the dissolution of simulated MOX fuel powders in 4 M HNO_3 solution at 80°C under various $[\text{HNO}_2]$ concentrations. Stirring speed = 300 rpm.

必要で、工程・装置が複雑化する可能性があるが、ボロキシデーション処理も兼ねることが可能で、また、処理温度を段階的に変化させることでヨウ素除去の可能性もあるのでオフガス処理の観点からは非常に有利と考えられる。この場合、燃料溶解工程においてはヨウ素を除去

したことによる負荷低減が期待され、また、燃料も粉体状で取り出されるのでより温和な条件での溶解が可能となる。

通電加熱法を採用した場合のシステムフローを Fig.10 に示す。この方法ではボロキシデーション処理を兼ねる

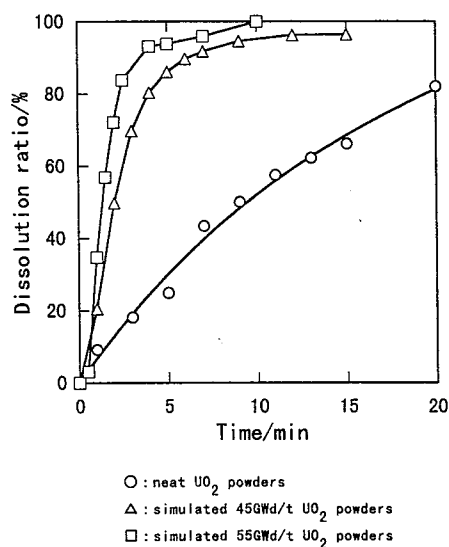


Fig.7 Plots of dissolution ratios vs. time for the dissolution of simulated high burnup fuel powders in 3 M HNO_3 solution at 80°C. Stirring speed = 300 rpm. (Comparison of the simulated high burnup fuels and neat UO_2)

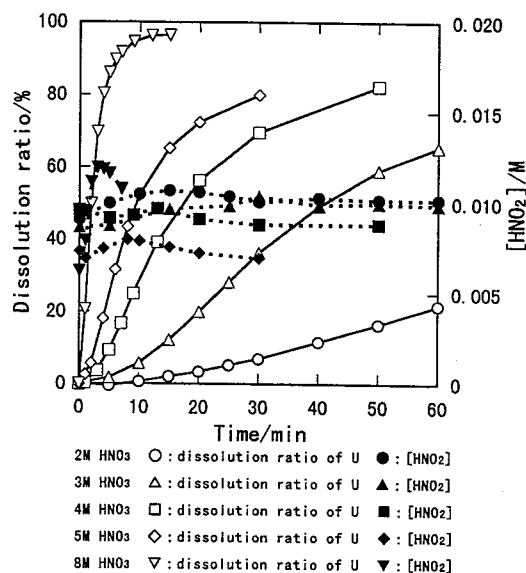


Fig.8 Plots of dissolution ratios and $[\text{HNO}_2]$ vs. time for the dissolution of simulated high burnup fuel powders in various HNO_3 concentration solution at 80°C. Stirring speed = 300 rpm.

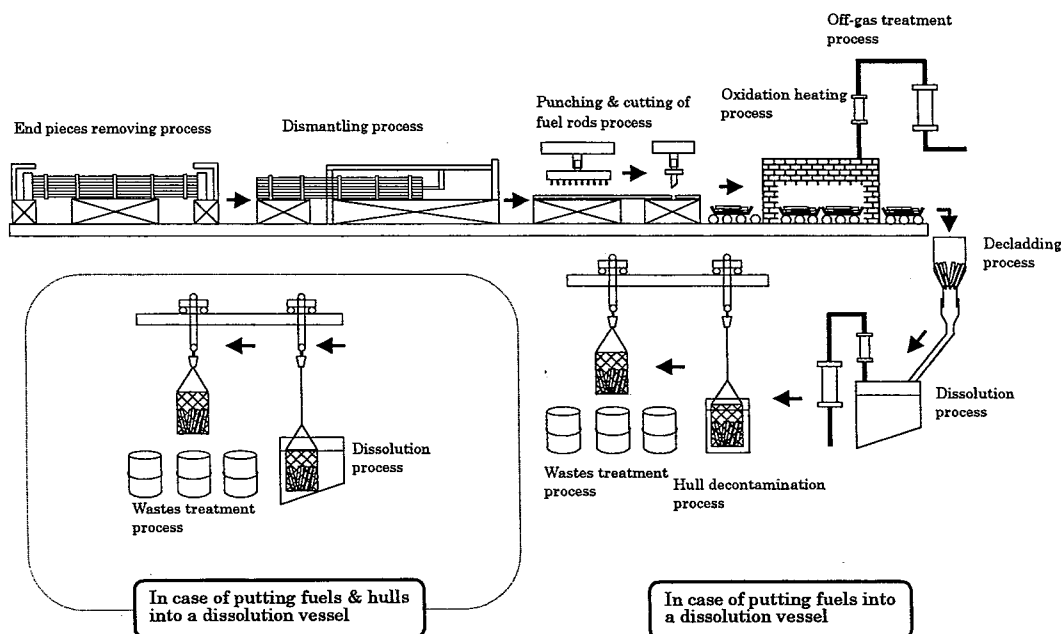


Fig.9 System flow of new head-end processes with the oxidation heating method

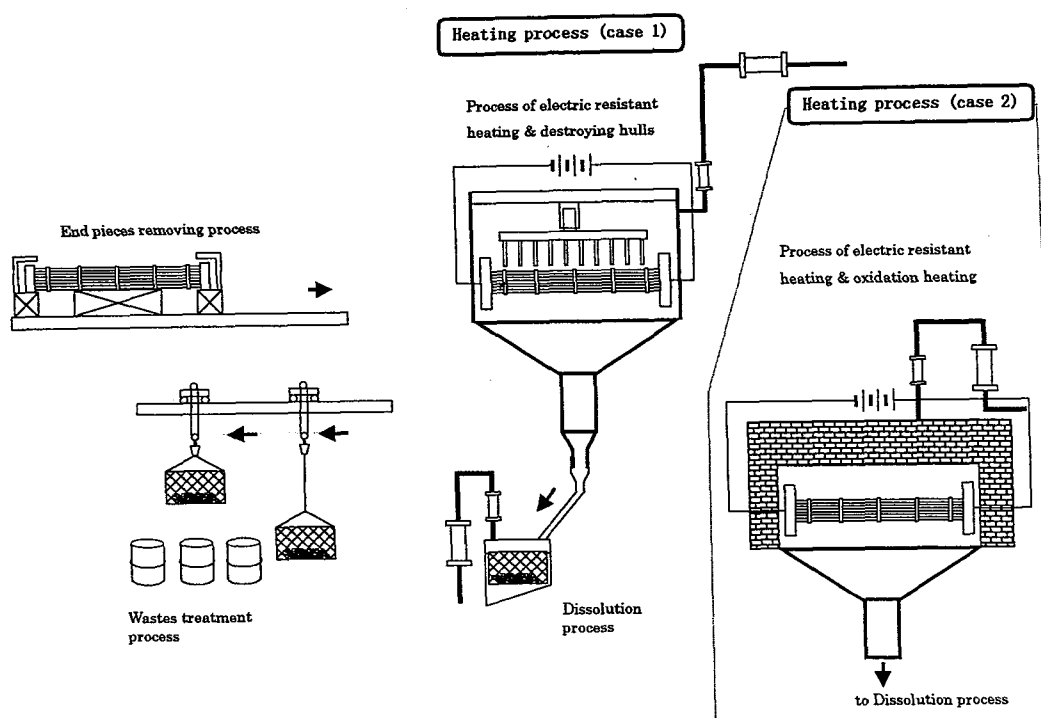


Fig.10 System flow of new head-end processes with the electric resistant heating method

ことができないので、オフガス処理を重視する場合には、酸化焙焼装置を付加することによる工程・装置の複雑化は避けられない。しかし、集合体あるいは複数本の燃料棒の同時処理の見通しが立てば、この部分での簡略化が可能となり有利である。酸化焙焼装置を付加する場合、燃料溶解工程に関しては酸化還元熱処理法を採用した場合と同様であるが、付加しない場合は燃料溶解工程においてヨウ素除去装置の付加が必要となり、燃料はペレット破砕片として取り出されるので、溶解条件も粉体状燃料の溶解条件よりも若干厳しいものとなる。

これらの燃料取出技術の特徴を Table 2 にまとめて示す。

今後、実用性確認に重点を置いた試験を実施することにより、両取出法の処理速度、装置体系の大きさ、コスト、安全性などの特性を把握し整理する必要がある。

6 まとめ

本研究では、湿式再処理プロセスの信頼性及び経済性向上を目標に、酸溶解工程前に燃料と被覆管を分離し、燃料のみを温和な条件で溶解させるための新ヘッド・エンド・プロセスの開発を検討している。具体的な技術の狙いは前処理工程における剪断装置を使用しない燃料集合体解体の実現と、燃料の溶解性向上及びヨウ素除去に

よる燃料溶解工程の負荷低減に置かれた。上記プロセスの開発に必要な要素技術に関する検討の結果、下記の事項が明らかとなった。

- (1) 酸化熱処理法においては燃料集合体からの燃料棒引き抜きと被覆管への開孔処理が必要となるが、開孔処理に関しては開孔形状を菱形とすることにより、開腹性能の大幅な向上と熱処理プロセスの簡素化が可能となることがわかった。酸化熱処理法では脱被覆の他にボロキシデーションの目的である溶解性向上のための燃料粉体化が可能であり、また、トリチウム、ヨウ素等の除去の可能性もあるので、燃料溶解工程における負荷低減が期待できる。
- (2) 通電加熱処理法では被覆管の最適脆化条件及び脆化の程度を通電時の電流降下量によりモニターできることがわかった。また、被覆管脆化後も燃料は UO_2 の化学形態のままで酸難溶解性とされる高次ウラン酸化物は形成されず、追加酸化熱処理による U_3O_8 への粉体化がスムーズに進行することを確認した。本処理法による燃料棒ごと処理についてはほぼ成立見通しが得られ、脱被覆による燃料溶解工程での負荷低減が期待できるが、燃料棒引き抜きを行わないことによる処理スペース節減が見込まれる集合体ごと処理については、その実現性確認試験を実施中である。
- (3) 粉体状の模擬 MOX 燃料及び模擬高燃焼度燃料を用い

Table 2 Comparison of decladding techniques

Decladding Techniques	System Flow Chart	Character and Problems
Oxidation Heating Method	<pre> graph TD A[Removal of End Piece] --> B[Extraction of Fuel Rods] B --> C[Punching to make holes in Cladding] C --> D[Oxidation Heating] D --> E[Decladding] E --> F["(to Dissolution Process)"] </pre>	① Requires the extraction of fuel rods & the punching to make holes in cladding ② The punching can be carried out in a several seconds per hole. ③ Needs just one oxidation heating process ④ Can be applied to high BU fuel rods in which fuel adherent to cladding inner surface. ⑤ Can improve dissolubility of fuel by converting fuel pellets to powder ⑥ Can be expected to remove iodine from fuel before dissolution process [Problems to be solved] ① Applicability to fuel pellets which contain a large quantity of FP and MOX fuel.
Electric Resistant Heating Method	<pre> graph TD A[Removal of End Piece] --> B["(Assembly Unit) (Fuel Rod Unit)"] B --> C[Electric Resistant Heating] C --> D[Destruction of Cladding] D --> E[Decladding] E --> F["(to Dissolution Process)"] B --> G[Extraction of Fuel Rods] G --> H[Electric Resistant Heating] H --> I[Destruction of Cladding] I --> J[Decladding] J --> F </pre>	① Requires the extraction of fuel rods in case of rod unit processing ② Cladding strength reduces remarkably by heating up to 1200°C in air ③ The extent of reduction of cladding strength can be monitored by electric current during heating ④ Can be applied to high BU fuel rods in which fuel adherent to cladding inner surface. ⑤ In case of mechanical destruction of cladding, fuel is retrieved as UO ₂ pellets ⑥ If the destruction of cladding is done by Oxidation heating, fuel is retrieved as U ₃ O ₈ powder and iodine can be removed from fuel. ⑦ Hull volume can be decreased by compressing drastically [Problems to be solved] ① Applicability to assembly unit process ② Optimize electric equipments size and processing capability

た溶解試験の結果、これらの燃料は無添加 UO₂ 燃料の溶解挙動に比較して、亜硝酸濃度の影響は小さくなるが、溶解速度が速くなることがわかった。このような傾向は、溶解条件をよりマイルドにするという観点で好ましいと言えます、燃料溶解工程における負荷をより低減できる。

- (4) Pu の模擬物質として Ce を用いた模擬 MOX 燃料の溶解において、UO₂ と CeO₂ が固溶化した燃料は、無添加 UO₂ 燃料よりも溶解が促進された。これより、実 MOX 燃料の製造においても UO₂ と PuO₂ が固溶化するような条件設定を行うことが重要と言える。
- (5) 模擬 FP を UO₂ に添加することにより作製した模擬高燃焼度燃料は、無添加 UO₂ に比較して溶解が促進され、その傾向は模擬 FP の添加量を増す（燃焼度が増加することを模擬）と強くなった。これより、本プロセスは高燃焼度化の進んだ燃料に対しても十分に対応できると考えられる。

謝辞

本研究は、科学技術庁の委託事業である「新湿式再処理システム技術開発等」の一環として実施された試験の成果の一部である。本研究を実施するに当たり、ご協力いただいた関係各位に対し、記して謝意を表します。また、本研究の学会等での発表の際に貴重なご助言、ご指導を賜った多くの方々に心から感謝致します。

参考文献

- [1] (財) 産業創造研究所：昭和 63 年度再処理技術高度化調査（再処理技術および経済性調査）成果報告書、65-66 (1989)。
- [2] Takashima, Y. et al.: New concept on the head end of purex process toward the next century. *International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management RECOD '87*, volume 2, Paris, France, August 23-27, 1987, 569-572 (1987)。
- [3] 日本原子力学会 超高燃焼度燃料調査専門委員会編：超高燃焼度燃料に関わる調査（調査文献データ集）

- (被覆関連), 平成4年2月 p34-35 (1992).
- [4] Yasuike, Y. *et al.*: Dissolution of UO_2 powders in nitric Acid. *The Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management RECOD '91*, volume 2, Sendai, Japan, April 14-18, 1991, 692-697 (1991).
- [5] Ikeda, Y. *et al.*: Acceleration effect of noble metals on dissolution rate of UO_2 powders in nitric acid. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **30**, 485-487 (1993).
- [6] Ikeda, Y. *et al.*: ^{17}O NMR study on dissolution reaction of UO_2 in nitric acid. *J. Nucl. Sci. Technol.* **30**, 962-964 (1993).
- [7] Nishimura, K. *et al.*: Effect of nitrous acid on Dissolution of UO_2 powders in nitric acid -Optimal Conditions for Dissolving UO_2 . *J. Nucl. Sci. Technol.* **32**, 157-159 (1995).
- [8] Ikeda, Y. *et al.*: Kinetic study on dissolution of UO_2 powders in nitric acid. *J. Nucl. Mater.* **224**, 266-272 (1995).
- [9] Asquith, J.G. *et al.*: Low decontamination approach to a proliferation-resistant fuel cycle. *Nucl. Tech.* **41**, 137-148 (1978).
- [10] (財) 原子力安全研究協会: 軽水炉燃料のふるまい 編集委員会編: 軽水炉燃料のふるまい. (1990).
- [11] Goode, J.H.: Voloxidation removal of volatic fission products from spent LMFBR fuels. ORNL-TM3723 (1973).
- [12] Dorrr, W., Hellmann, S.: Study on the formation of $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ solid solution by means of $\text{UO}_2\text{-CeO}_2$ simulate. *J. Nucl. Mater.*, **140**, 7-10 (1986).
- [13] Teske, K.: Investigation of the Oxygen activity of Oxide fuels and fuel-fission product systems by solid electrolyte techniques. Part I, Qualification and limitations of the method. *J. Nucl. Mater.* **116**, 260-266 (1983).
- [14] Kudo, T.: Effect of gadolinium doping on electrical properties of UO_2 grain Boundaries. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **30**, 664-672 (1993).
- [15] (財) 産業創造研究所: 平成5年度再処理技術高度化調査 (高度要素技術調査及び再処理プロセスシミュレーション調査) 成果報告書. (1993).
- [16] Benedict, M. *et al.*, 清瀬量平訳: 原子力化学工学第IV分冊「燃料再処理と放射性廃棄物管理の化学工学」. 日刊工業新聞社, 東京, pp121(1983).