

難燃性低気化熱希釈剤と CHON 抽出剤を用いたプロセスによる MA 分別保管技術の開発

(9) 蒸留・加熱処理による希土類・ウラン酸化物の生成

Development of Minor Actinides separation and storage technology by process using flame-retardant and low heat of vaporization diluent and CHON

(9) Productions of uranium-based solid matrix containing lanthanide by distillation and heating processes

*山村朝雄¹, 田端千紘¹, 小中真理子¹, 中瀬正彦², 針貝美樹², 柿木 浩一³,
小川 尚樹³, 瀨口 涼吉³, 塚本 泰介³, 島田 隆³

¹京大, ²東工大, ³MHI

溶媒抽出で得られるマイナーアクチノイド (MA) について、数十年程度の期間、熱的にも安定な酸化物固溶体として保管するとの観点から、難燃性低気化熱希釈剤を用いた蒸留からの直接的な酸化物生成を検討した。安定な酸化物固体として蛍石構造を有するウラン二酸化物マトリックスの新たな合成法と、希土類の固溶法に関する検討結果を報告する。

キーワード: アクチノイド, ランタノイド, 蛍石構造酸化物

1. 緒言 高レベル放射性廃棄物の長期毒性を低減するために、放射性廃棄物からマイナーアクチノイド (MA) を分離し、安定した固体状態に変換し保管することが有効な方法の一つとして提案されている。マイナーアクチノイドを溶媒抽出によって分離した後の後段プロセスとして、その抽出溶媒から固体を取り出し、蛍石構造酸化物固溶体へ変換することで保管可能な形態に至ることができる。今回我々は、蒸留によって抽出溶媒から固体を取り出す手法を提案している。MA の模擬元素として希土類を使用し、ウランを含む溶液と合わせて蒸留処理を行い、得られた固体を加熱処理することで、希土類が二酸化ウランの蛍石構造マトリックスに取り込まれた固溶体を生成することに成功した。

2. 実験 難燃性低気化熱希釈剤としての HFC (三井ケマーズ、バートル XF) は希釈剤を溶解し、溶媒抽出が可能である。希土類を抽出した溶媒にウラン錯体を (0.6 mmol/L) 添加し、これを 80°C で加熱すると HFC150g を 1 実験として固体を回収した。-15°C の冷却部で溶媒を回収した。

蒸留後、回収した残渣を石英ボートにのせ、電気炉で焼成した。最初に残留有機物や硝酸根の除去のために 300~500°C の大気雰囲気中で焼成した。次に不純物を十分除去するために、600~900°C、真空中で焼成を行った。

最後に、蛍石構造化のためにアルゴン・水素雰囲気中で 800°C~1000°C で焼成を行った。得られた固体は粉末 XRD、SEM、CHN 元素分析、TGA で結晶構造、粒子径、残留有機物の有無の観点から評価した。

3. 結果と考察 蒸留操作による溶媒回収は、1 バッチあたり 10 分程度で終了し、溶媒回収率は 95% 以上であった。回収溶媒の物性について表面張力を液滴法で測定することで未使用品と同等であり、再利用可能であることを確認した。焼成操作では、最初の低温・大気中焼成後には、主に U_3O_8 あるいは UO_3 の形態をとっていることがわかった。中段の真空中焼成後も同様に U_3O_8 が主成分であったが、XRD ピークが成長し、より結晶性が高まっていることが示唆された。最後の水素雰囲気中での焼成を経ると、ほぼ単相の $(U, Ln)O_2$ が得られた (Fig.1)。TGA や CHN の結果からも、得られた UO_2 粉末は有機物などの不純物をほぼ含んでおらず、本プロセスが保管に適した蛍石構造固溶体を生成する有効な手法であることが示された。

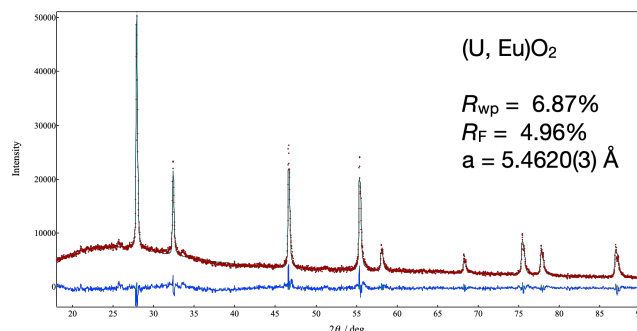


Fig. 1 水素雰囲気中での焼成処理によって得られた固体の XRD パターン

*Tomoo Yamamura¹, Chihiro Tabata¹, Mariko Konaka¹, Masahiko Nakase², Miki Harigai², Koichi Kakinoki³, Naoki Ogawa³, Ryokichi Hamaguchi³, Taisuke Tsukamoto³, and Takashi Shimada³

¹Kyoto Univ., ²Tokyo Tech, ³MHI