

沈殿法と蒸留法を用いた核燃料物質を含むアルカリ塩化物の除染プロセス ～蒸留試験～

Decontamination of alkali chloride baths containing nuclear material

by precipitation and distillation techniques

～ distillation experiment～

*伊部 淳哉¹, 三谷 眞緒¹, 高島 容子², 渡部 創², 渡部 雅之², 松浦 治明¹

¹ 東京都市大学, ² 日本原子力研究開発機構

乾式再処理試験開発により生じた試験廃塩の廃棄体化の前処理として沈殿剤を添加してUを沈殿分離後、減圧蒸留にてU以外の浴構成元素を蒸発分離する2段階のプロセスを検討している。本実験ではUの模擬としてCeを用いて、沈殿処理と蒸留処理を連続プロセスで行い、より実際の処理に近い条件で実験を行った。

キーワード：乾式再処理，溶解塩，U分離，沈殿，減圧蒸留

1. 緒言

乾式再処理法はTRUの回収が可能で、臨界安全管理が容易^[1]等の利点から、各国で研究開発が行われている。その過程で生じた試験廃塩を廃棄体化する前処理として、沈殿剤を添加し、Uを沈殿分離後、減圧蒸留にて浴構成元素を蒸発分離する2段階のプロセスを検討している。本実験では沈殿処理と蒸留処理を連続プロセスで行い、より実際の処理に近い条件で実験を行うことで、実廃塩の処理に向けて、求めてきた条件が適用可能か評価した。

2. 実験方法

浴塩(LiCl-KCl=58.8:41.2 mol比またはNaCl-2CsCl=1:2 mol比)に対して核物質の模擬であるCeCl₃を5 wt%、沈殿剤のLi₂OをCeの物質質量に対し化学量論的に150%、200%相当量を容器に入れ、自作の蒸留装置内へ持ち込み、減圧した後、電気炉で溶解させた。溶解温度は両浴800℃で行った。処理後、試料をAr循環グローブボックス内に持ち込み、蒸留前後の質量から塩回収率を求めた。回収塩については各元素濃度分析を行い、残留物についてはXRD測定及びXAFS測定を行い残留物中のCeの化学状態を評価した。XAFS測定は、大型放射光施設SPring-8 BL22XUにおいて実施し、データの解析には、WinXAS Ver.3.02を使用した。

3. 結果・考察

Table.1にLi₂Oの添加量及び蒸留時間等を換えた時の塩回収率を示す。沈殿処理と蒸留処理をバッチプロセス^[2]で行った場合と連続プロセスで行った場合とで比較するとバッチプロセスと同等の塩回収率であった。

Fig.1にNaCl-2CsCl浴における沈殿物、残留物及び比較対照試料のCe-K吸収端のEXAFS構造関数を示す。EXAFS振動を比較すると沈殿物とCeOCl、残留物とCeO₂の位相が類似しており、EXAFS構造関数においても上記と類似した構造である。CeCl₃にLi₂Oを添加することでCeOClとして沈殿し、蒸留を行うことで浴が蒸発し、過剰となったLi₂OとCeOClが反応し、CeO₂が生成されると考えられる。

上記から、浴塩とCeCl₃の混合物にLi₂OをCeの物質質量に対し化学量論的に150%添加した試料を、800℃で6時間蒸留を行うことで100%近くの塩を分離した。塩回収率が高くなるほど残留物中のCeの化学状態は酸化物に近づくことが分かり、分離した塩からCeは検出されなかったことから、実廃塩の処理にも適用可能であることが示唆された。当日はLiCl-KCl浴についての結果や処理条件を換えた場合の塩回収率について紹介する予定である。

参考文献

[1] Central Research Institute of Electric Power Industry, Denchuken review No.37 (2000, in Japanese).

[2] J.Ibe et al., Atomic Energy Society of Japan 2021 Annual Meeting, 2I08, online (2021, in Japanese).

*Jun-ya Ibe¹, Mao Mitani¹, Youko Takahatake², Sou Watanabe², Masayuki Watanabe², and Haruaki Matsuura¹

¹Tokyo City University, ²Japan Atomic Energy Agency.

Table.1 Salt Collection rate in LiCl-KCl and NaCl-2CsCl baths

LiCl-KCl	塩回収率(%)	蒸留時間(h)
B150H	89.8	4
B200H	34.0	2
C200V	32.2	4
NaCl-2CsCl		
B150H	71.5	4
B200V	58.8	6
C150V	105.1	5

B...バッチ試験, C...連続試験

H...横型, V...縦型

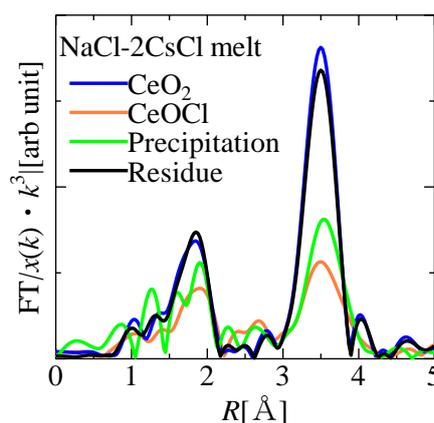


Fig.1 Structural functions of precipitates, residues and comparison samples in NaCl-2CsCl bath