

乾式再処理から発生する使用済塩精製プロセスの開発

背景

金属電解法再処理工程では、使用済燃料を電氣的に熔融塩中へ溶解し、同時に、ウラン、プルトニウム及びアクチニドを電解精製により回収し、使用済燃料に含まれる核分裂生成物(FP)の大部分は熔融塩中に残留する。廃棄物量低減の観点からは、熔融塩中に残留する FP を除去し、精製された塩を再利用することが望ましい。当所の提案している乾式再処理プロセス¹では、熔融塩中に残留する FP をゼオライト 4A²に吸着させることにより除去することとしているが、実験結果に基づいた十分なプロセス評価は行われていなかった。

目的

熔融塩中における、ゼオライト 4A に対する FP 元素の吸着特性に関する基礎的なデータを取得し、吸着量を評価できる吸着式を作成する。平衡論的な観点からプロセスが十分に成立することを確認するために、得られた結果を用い塩精製プロセスの除染性能や廃棄物量の評価を行う。

主な成果

1. 基礎データの取得と吸着モデル式の評価

- (1) LiCl-KCl共晶塩中に単一のFP元素のみが存在する場合は、単位セル当たりのゼオライト(ゼオライト中のSiの12mol当たり)には、最大で約11当量のFP元素が吸着できることが確認できた(図1～3の単一試験の結果)。また、異なる価数をとる2種類のFP元素が共存する場合は、3価数をとる元素に関しては、他の元素の影響をそれほど受けない(図1)が、1価(図2)と2価(図3)をとる元素は、他の価数をとる元素の影響を受け、吸着量の減少が見られる。
- (2) 単一FP元素試験の結果にラングミュア型吸着式³を適用し、実験値とよく一致することが示された(図1～3の実線)。異なる価数のFP元素が共存する場合は、3価をとる元素に関しては、単一元素の場合と同じ式が適用可能である(図1)が、1価(図2)と2価(図3)をとる元素に関しては、単一の場合(実線)と、他の価数をとる元素と共存している場合(点線と波線)に分けて吸着式を作成した。

2. プロセス成立性の評価

- (1) 得られた吸着式(平衡曲線)を用いた階段作図により、塩精製工程に向流多段操作を採用したプロセスを評価した。処理する塩に対し3割(重量率)程度のゼオライトを用い、3段の向流多段操作を行うことにより、所定の除染性能(98%除去)が得られることが明らかとなった。
- (2) 塩精製工程からは、FPを吸着したゼオライトが発生し、高温処理によりソーダライトへ転換させて人工鉱物固化体として処分する予定である⁴。カラムなどにゼオライトを充填し固定層吸着操作を行うことにより、電解槽から排出される塩中FP濃度と平衡関係にあるゼオライトが廃棄物となる。この場合、1セル当たり約11当量(重量率で約22wt%)のFPが含有でき、ソーダライトに転換してもFP含有率は10wt%以上であり、従来の高レベルガラス固化体(FP含有率10～13wt%)と比べて遜色のないことが明らかになった。
以上により、本プロセスが廃棄物発生量の観点からも有効なものであることが実験データに基づいて示された。

今後の展開

カラムにゼオライトを充填させた試験を行い、塩精製プロセスの実証を行う。

主 担 当 者 原子力技術研究所 次世代サイクル領域 上席研究員 塚田 毅志

関連報告書「使用済塩中FP元素のゼオライトへの吸着特性」電力中央研究所研究報告:L04009(2005年3月)

2. 金属燃料・乾式リサイクル技術

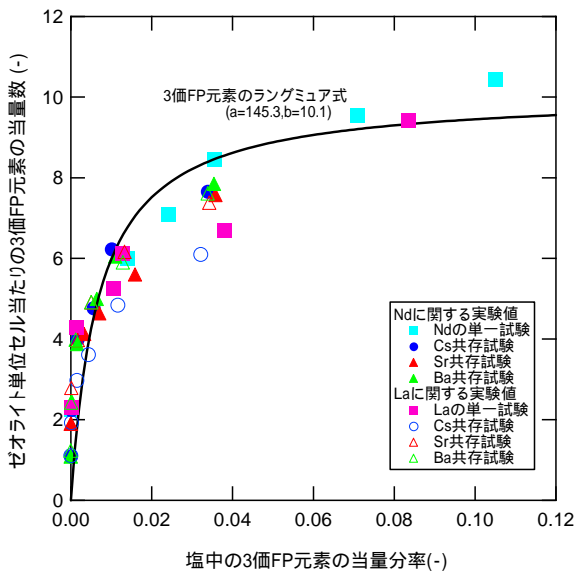


図 13 価をとる元素の吸着特性とラングミュア式との比較 (単一試験と、1 価及び 2 価共存試験の結果)

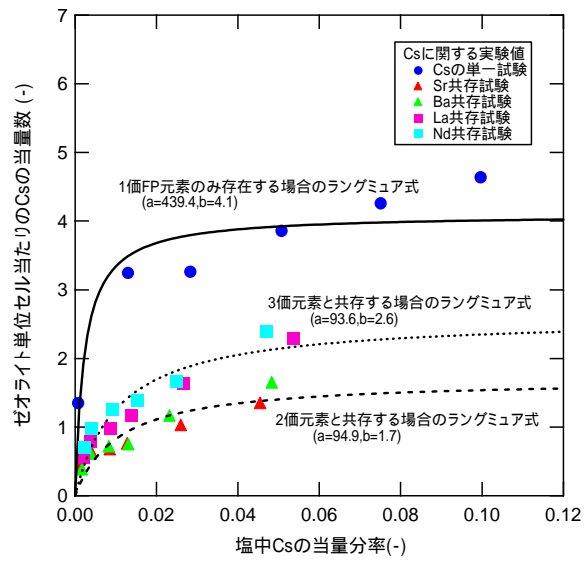


図 2 1 価をとる元素(Cs)の吸着特性とラングミュア式との比較 (単一試験と、2 価及び 3 価共存試験の結果)

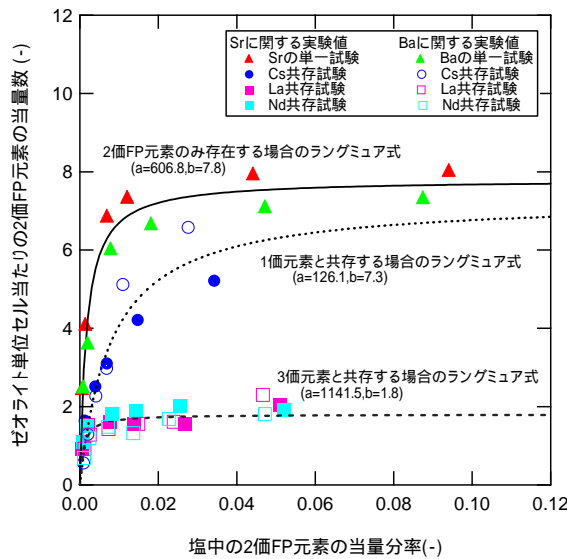


図 3 2 価をとる元素の吸着特性とラングミュア式との比較 (単一試験と、1 価及び 3 価共存試験の結果)

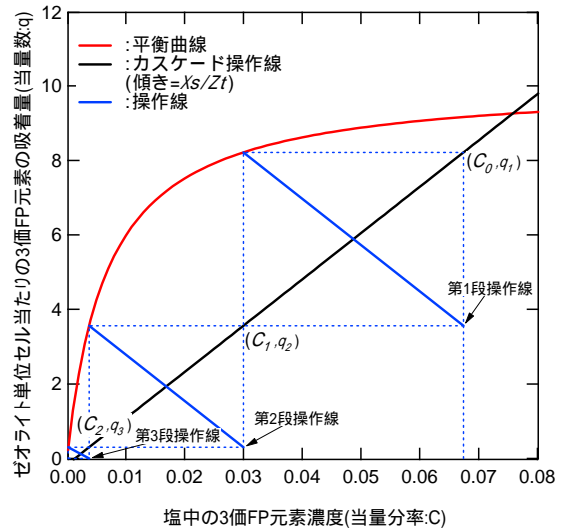
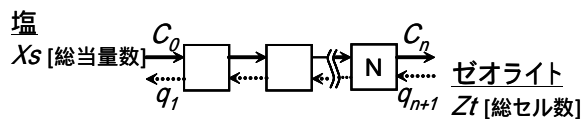


図 4 塩精製工程を想定した平衡曲線と操作線 (3 価の FP 元素のみの場合)

*1 核燃料サイクル開発機構、日本原子力発電株式会社”高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究-フェーズ 中間報告書”、JNC TN1440 2004 004、(2004)

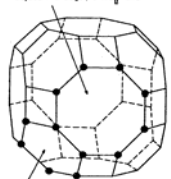
*2 ゼオライト4A(無水)の分子式は $\text{Na}_{12}[(\text{AlO}_2)_{12}(\text{SiO}_2)_{12}]$ であり、右図に示す様に編み目構造をしている。

*3 吸着量は圧力または濃度の増加とともにある一定値に近づく吸着特性を示す単分子層吸着に適用される吸着等温線。

$$q = \frac{abC}{1+aC} \quad q: \text{吸着量}, a: \text{定数}, b: \text{飽和吸着量}, C: \text{平衡濃度}$$

*4 天然ソーダライトは $\text{Na}_6(\text{AlSi}_4\text{O}_{16})_2\text{NaCl}$ の構造を取る安定鉱物であり、NaをFP元素へ置き換えたものを廃棄物固化体とする。ゼオライトの高温処理により、ソーダライトへ転換できるが、結晶構造が変化するため単位Si当たりのFP量は減少する。

O_4 ring connecting a cage with adjacent a cage; a Na_2 site



O_6 ring connecting a cage with β cage; a Na_2 site