

JNC TJ 8400 2001-056

塩廃棄物の処理に関する基礎試験（2）

（核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書）

2002年 2月

株式会社 化研

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問合せ下さい。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構 東海事業所
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,
Japan

©核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2002

2002年2月

塩廃棄物の処理に関する基礎試験(2)

(契約業務報告)

照沼 仁※ 新井 修※

要旨

乾式再処理プロセスより発生する塩廃棄物を、ガラス固化処理に適応することを目的に、高温で水蒸気と反応させ、塩素を塩化水素の形態で分離する酸化転換処理について検討した。

前年度試験より、塩化物の酸化転換処理には、酸化ホウ素添加が有効であることが確認された。一方高温処理のため、塩化物が揮発し処理系外へ移行する現象が確認された。実機への適用は、放射性核種の処理系外流出が問題となった。

本試験では、核分裂生成元素であるセシウムに重点をおき、塩化物の高効率酸化転換処理と塩化物揮発の低減を目的に試験を実施した。

試験の結果、塩化物揮発は、装荷容器の変更、ジャマ板の付加等の装置改造を行うことで減少できることが確認された。

塩化セシウム試料、および塩化ナトリウム、塩化セシウム混合試料に酸化促進剤である酸化ホウ素を添加し処理することで、100%に近いオーダーで酸化転換処理できることが確認された。またセシウム、ナトリウムは処理容器に多く残存し揮発が抑制されていることも確認した。

ハイドロソーダライトは、塩化水素を処理試料内に安定固定化する目的で用いたが、その効果は不明であり、熱分解により再び塩化物を生成することが問題となった。

本報告書は、㈱化研が核燃料サイクル開発機構の契約により実施した業務成果に関するものである。

機構担当部課室：東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部

※㈱化研 システムエンジニアリング部

February 2002

The basis examination for the processing of the salt waste (2)

Hitoshi Terunuma^{*} Osamu Arai^{*}

Abstract

Oxidation exchange treatment, chlorine is separated from salt wastes generated from dry reprocessing as a form of hydrogen chloride by a reaction between salt waste and vapor at high temperature, was investigated for the purpose of adaptation of salt waste to the glassification.

According to the last experiments, it has been clarified that the addition of boron oxide was effective to the oxidation exchange treatment of chloride. On the other hand, a phenomenon which chloride is evaporated by high temperature and effused from the treatment was occurred. Therefore, this phenomenon has been a problem for the practical adaptation.

In this study, experiments attach importance to the oxidation exchange of cesium chloride, the fission products, were performed for the purposes of effective oxidation exchange treatment of chloride and evaporation reduction of chloride.

As a result of this experiment, the evaporation reduction of chloride was confirmed by reconstructions of equipment such as a vessel for samples and a baffle plate.

It has been clarified that nearly 100% of chloride could be separated from the salt waste by oxidation exchange treatment by addition of boron oxide, the oxidation stimulator, to a specimen of cesium chloride and a mixed specimen of sodium chloride and cesium chloride. Furthermore, some amount of cesium and sodium were remained in the vessel for the treatment and the evaporation of chloride was depressed.

Hydrosodalite was applied in order to adsorb and remove hydrogen chloride from the treated specimen, however, the effects of its was unknown and there was a problem that chloride is regenerated by the thermal separation.

This work was performed by KAKEN CO. under contract with Japan Nuclear Cycle Development Agency.
JNC Liaison : Advanced Fuel Recycle Technology Division Wast Management and Fuel Cycle
Research Center Tokai Works

^{*}KAKEN CO. System Engineering Dept.

目次

| | | |
|---------|--------------|----|
| 1. | はじめに | 1 |
| 2. | 試験方法 | 1 |
| 2. 1 | 試験手順 | 1 |
| 2. 2 | 試験装置 | 2 |
| 2. 2. 1 | 水分発生部 | 2 |
| 2. 2. 2 | 処理部 | 2 |
| 2. 2. 3 | ガス捕集部 | 3 |
| 2. 3 | 試験条件 | 3 |
| 2. 3. 1 | 供試料、装荷量 | 3 |
| 2. 3. 2 | 処理温度 | 4 |
| 2. 3. 3 | 水分付加量、付加速度 | 4 |
| 2. 4 | 評価項目 | 5 |
| 2. 4. 1 | 試験運転評価 | 5 |
| 2. 4. 2 | 重量評価 | 5 |
| 2. 4. 3 | 試料および処理容器内観察 | 5 |
| 2. 4. 4 | 試料の成分含有量測定 | 5 |
| 2. 4. 5 | 試料の化学形態測定 | 5 |
| 2. 4. 6 | 吸収液捕集成分測定 | 6 |
| 2. 4. 7 | 試料成分収支評価 | 6 |
| 3. | 結果および考察 | 6 |
| 3. 1 | 試験運転評価 | 6 |
| 3. 2 | 重量評価 | 6 |
| 3. 3 | 試料および処理容器内観察 | 7 |
| 3. 4 | 試料の成分含有量測定 | 7 |
| 3. 5 | 試料の化学形態測定 | 8 |
| 3. 6 | 吸収液捕集成分測定 | 10 |
| 3. 7 | 試料成分収支評価 | 10 |
| 4. | おわりに | 11 |

図・表・写真目次

| | | |
|-------|--|----|
| 図1 | 試験装置フロー図 | 12 |
| 表1 | 主要機器一覧 | 13 |
| 図2 | 処理容器概略図 | 14 |
| 図3 | 試料装荷容器(タンマン管)内構造図 | 15 |
| 表2 | 試験条件 | 16 |
| 表3 | 試験運転状況水分付加量 | 17 |
| 図4.1 | Run No.1、2、3試料温度モニタリングデータ | 18 |
| 図4.2 | Run No.4、5試料温度モニタリングデータ | 19 |
| 図4.3 | Run No.6、7試料温度モニタリングデータ | 20 |
| 図4.4 | Run No.8、9、10試料温度モニタリングデータ | 21 |
| 図4.5 | Run No.11、12試料温度モニタリングデータ | 22 |
| 図4.6 | Run No.13試料温度モニタリングデータ | 23 |
| 図4.7 | Run No.14試料温度モニタリングデータ | 24 |
| 図4.8 | Run No.15試料温度モニタリングデータ | 25 |
| 図4.9 | Run No.16試料温度モニタリングデータ | 26 |
| 図4.10 | Run No.17、18、19試料温度モニタリングデータ | 27 |
| 図4.11 | Run No.20試料温度モニタリングデータ | 28 |
| 図4.12 | Run No.21試料温度モニタリングデータ | 29 |
| 図4.13 | Run No.22、23試料温度モニタリングデータ | 30 |
| 図4.14 | Run No.24試料温度モニタリングデータ | 31 |
| 表4 | 試料重量測定結果 | 32 |
| 表5.1 | 処理試料成分含有量測定結果 <CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件> | 33 |
| 表5.2 | 処理試料成分含有量測定結果 <NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件> | 34 |
| 表5.3 | 処理試料成分含有量測定結果 <NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件> <CsCl-H ₃ BO ₃ 試料条件> | 35 |
| 表5.4 | 処理試料成分含有量測定結果 <CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件> <NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件> | 36 |
| 表6 | タンマン管流出試料成分含有量測定結果 | 37 |
| 表7 | 試料成分含有量測定結果からの酸化物転換率評価結果 | 38 |
| 図5 | 処理温度と酸化物転換率の関係 | 39 |
| 図6 | 水分付加量と酸化物転換率の関係 | 39 |
| 図7 | 試料装荷量と酸化物転換率の関係 | 40 |
| 図8 | 水分ガス通気流量と酸化物転換率の関係 | 40 |
| 表8 | 化学形態測定結果 | 41 |
| 図9.1 | CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件Run No.2処理試料X線回折スペクトル | 42 |
| 図9.2 | CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件Run No.1処理試料X線回折スペクトル | 43 |
| 図9.3 | CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件Run No.9処理試料X線回折スペクトル | 44 |
| 図9.4 | NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件Run No.7処理試料X線回折スペクトル | 45 |

| | | |
|-------|--|----|
| 図9.5 | NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件Run No.23処理試料X線回折スペクトル | 46 |
| 図9.6 | CsCl-H ₃ BO ₃ 試料条件Run No.8発泡噴出試料X線回折スペクトル | 47 |
| 図9.7 | CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件Run No.17 試料希硫酸溶解残渣X線回折スペクトル | 48 |
| 図9.8 | CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件Run No.19処理試料X線回折スペクトル | 49 |
| 表9.1 | 吸收液捕集成分測定結果 <CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件> <NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件> | 50 |
| 表9.2 | 吸收液捕集成分測定結果 <CsCl-H ₃ BO ₃ 試料条件> <CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件> <NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件> | 51 |
| 表10 | 装荷塩化物に対する塩化水素捕集率 | 52 |
| 図10 | 試験収支評価試料分布図 | 53 |
| 図11.1 | 試料成分収支 ①CsCl-B ₂ O ₃ Cs:B=1:5条件 | 54 |
| 図11.2 | 試料成分収支 ①CsCl-B ₂ O ₃ Cs:B=1:10条件 | 55 |
| 図11.3 | 試料成分収支 ②NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ Na:Cs:B=1:2:11条件 | 56 |
| 図11.4 | 試料成分収支 ②NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ Na:Cs:B=1:2:11条件 | 59 |
| 図11.5 | 試料成分収支 ③CsCl-H ₃ BO ₃ Cs:B=1:5条件 | 60 |
| 図11.6 | 試料成分収支 ④CsCl-B ₂ O ₃ -HSL Cs:B:HSL=1:5:0.5条件 | 61 |
| 図11.7 | 試料成分収支 ⑤NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ -HSL Na:Cs:B:HSL=1:2:11:1.5条件 | 62 |
| 表11.1 | 試料収支評価結果 <①CsCl-B ₂ O ₃ Cs:B=1:5条件> <①CsCl-B ₂ O ₃ Cs:B=1:10条件> | 63 |
| 表11.2 | 試料収支評価結果 <②NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ Na:Cs:B=1:2:11条件> | 64 |
| 表11.3 | 試料収支評価結果 <②NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ Na:Cs:B=1:2:22条件> <③CsCl-H ₃ BO ₃ Cs:B=1:5条件> | 66 |
| 表11.4 | 試料収支評価結果 <④CsCl-B ₂ O ₃ -HSL Cs:B:HSL=1:5:0.5条件> <⑤NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ -HSL Na:Cs:B:HSL=1:2:11:1.5条件> | 67 |
| 写真1 | Run No.2(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 68 |
| 写真2 | Run No.2(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 68 |
| 写真3 | Run No.1(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 69 |
| 写真4 | Run No.1(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 69 |
| 写真5 | Run No.11(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 70 |
| 写真6 | Run No.11(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 70 |
| 写真7 | Run No.15(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 71 |
| 写真8 | Run No.15(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 71 |
| 写真9 | Run No.3(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 72 |
| 写真10 | Run No.3(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 72 |
| 写真11 | Run No.12(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 73 |

| | | |
|------|---|----|
| 写真12 | Run No.12(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 73 |
| 写真13 | Run No.9(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 74 |
| 写真14 | Run No.9(CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 74 |
| 写真15 | Run No.7(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 75 |
| 写真16 | Run No.7(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 75 |
| 写真17 | Run No.4(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 76 |
| 写真18 | Run No.4(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 76 |
| 写真19 | Run No.13(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 77 |
| 写真20 | Run No.13(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 77 |
| 写真21 | Run No.16(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 78 |
| 写真22 | Run No.16(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 78 |
| 写真23 | Run No.22(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 79 |
| 写真24 | Run No.22(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 79 |
| 写真25 | Run No.24(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 80 |
| 写真26 | Run No.24(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 80 |
| 写真27 | Run No.20(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 81 |
| 写真28 | Run No.20(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 81 |
| 写真29 | Run No.21(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 82 |
| 写真30 | Run No.21(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 82 |
| 写真31 | Run No.23(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 83 |
| 写真32 | Run No.23(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 83 |
| 写真33 | Run No.10(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 84 |
| 写真34 | Run No.10(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 84 |
| 写真35 | Run No.14(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 85 |
| 写真36 | Run No.14(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 85 |
| 写真37 | Run No.5(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理試料状況 | 86 |
| 写真38 | Run No.5(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 86 |
| 写真39 | Run No.6(CsCl-H ₃ BO ₃ 試料条件)処理試料状況 | 87 |
| 写真40 | Run No.6(CsCl-H ₃ BO ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 87 |
| 写真41 | Run No.6(CsCl-H ₃ BO ₃ 試料条件)発泡噴出試料状況 | 88 |
| 写真42 | Run No.8(CsCl-H ₃ BO ₃ 試料条件)処理試料状況 | 88 |
| 写真43 | Run No.8(CsCl-H ₃ BO ₃ 試料条件)処理容器上部状況 | 89 |
| 写真44 | Run No.8(CsCl-H ₃ BO ₃ 試料条件)発泡噴出試料状況 | 89 |
| 写真45 | Run No.17(CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件)処理試料状況 | 90 |
| 写真46 | Run No.17(CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件)処理容器上部状況 | 90 |
| 写真47 | Run No.19(CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件)処理試料状況 | 91 |
| 写真48 | Run No.19(CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件)処理容器上部状況 | 91 |
| 写真49 | Run No.18(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件)処理試料状況 | 92 |
| 写真50 | Run No.18(NaCl-CsCl-B ₂ O ₃ -HSL試料条件)処理容器上部状況 | 92 |

1. はじめに

乾式再処理プロセスより発生する塩廃棄物を高温状態で水蒸気と反応させ、塩素(Cl)を塩化水素(HCl)の形態で分離することにより廃棄物を酸化物へと転換しガラス固化体へ適応することを検討した。

前年度実施「塩廃棄物の処理に関する基礎試験」より水分のみで塩化物を酸化物に転換するのは困難である事が確認された。しかし、酸化ホウ素(B₂O₃)を添加することにより塩化物を酸化物転換できることが確認された。ただしいずれの試験においても溶融した塩が揮発し処理容器外、排気系に移行する現象が見られ問題となつた。実機採用時を考えるとセシウム(Cs)は使用済み燃料中の核分裂生成元素であるため、処理容器外への移行は特に問題となる。

このため本試験では塩化セシウム(CsCl)に重点をおき、塩揮発の低減と酸化物転換率の向上を目的に試験を実施した。

2. 試験方法

2.1 試験手順

溶融塩電解プロセスにより発生する塩廃棄物を模擬した塩化物を、酸化促進剤等の添加剤と共に溶融し水蒸気と反応させ、ClをHClの形態で分離し、塩化物を酸化物へと転換処理することを目的に試験を実施した。

- ① 模擬塩成分である各塩化物、添加剤、およびタンマン管を110°Cにて2時間乾燥後、デシケーター内で放冷した。
- ② タンマン管空重量を測定した。設定量の試料(塩化物、添加剤)を秤量しタンマン管に装荷した。処理温度(溶融温度)が融点以下の塩化物を含む条件では試料を乳鉢で粉碎後、タンマン管に装荷した。
- ③ 試料装荷タンマン管を処理容器に設置した。出口ガス配管にガス吸収ピンを設置した。
- ④ 乾燥したアルゴン(Ar)ガスを流量計により約30mL/minにて処理容器に通気した。処理容器は縦型管状炉にて設定条件に昇温した。
- ⑤ Arガスをマスフローコントローラにより設定流量にて水分発生器に通気した。水分発生器は設定水分発生条件(90°C)に昇温した。
- ⑥ 試料、および水分発生器が設定温度に到達したのを確認後、ガス流路を切替え、処理容器内への乾燥Arガス通気を停止し、処理容器内の試料に水分付加Arガスを通気し試験を開始した。
- ⑦ 設定時間、設定量の水分付加後、Arガス流路を水分発生器バイパスラインに切替え、水分付加を停止した。処理容器はArガス通気下にて加熱を停止し放冷した。
- ⑧ 放冷後Arガス通気を停止し処理容器を密閉。出口ガスを通気した吸収液を回収した。

- ⑨ Ar 雰囲気グローブボックス内にて処理容器を解体。処理容器内状況を観察。処理後試料を回収した。
- ⑩ 吸収液、処理試料について各種測定評価を実施した。

2. 2 試験装置

図 1 に試験装置フロー図を、表 1 に試験装置に用いた主要機器の一覧を示す。

試験装置は蒸気圧発生法による水分発生部、試料を加熱溶融し水分と反応させる処理部、試料より発生した HCl を捕集するガス捕集部より構成される。

前年度試験にて使用した試験装置の不具合点を改良し試験に用いた。

2. 2. 1 水分発生部

マントルヒータ恒温下(90°C)の純水装荷フラスコに Ar ガスをマスフローコントローラ流量制御下にて通気し水分飽和ガスを発生させた。

<水分発生条件>

水分発生温度 90°C、90°C水の飽和蒸気圧は 525.9mmHg

90°C飽和蒸気水分濃度は

$$525.9(\text{mmHg}) / 760(\text{mmHg}) \times 100 \\ = 69.2(\text{vol\%})$$

mol 濃度に換算すると

$$69.2(\text{vol\%}) / 100 / 22.4(\text{NL/mol}) \\ = 3.09E-2(\text{mol/NL})$$

2. 2. 2 処理部

図 2 に処理容器概略図を、図 3 に試料装荷容器(タンマン管)内構造図を示す。

試料を装荷したアルミナ製タンマン管を設置するインコネル製の処理容器にガス入口、出口配管を設置した。入口配管は容器内で延長しタンマン管内の溶融試料中に通気できる構造とした。また試料の温度を測定する熱電対を設置した。処理容器加熱には 1200°C昇温可能な縦型管状炉を用いた。

前年度使用処理部に以下の改良を行なった。

通気による試料の噴出対策とし装荷容器に深さのあるタンマン管を用いた。

試料と接触する部位はアルミナ製とした(通気管、熱電対保護管等)。

溶融試料ミストの発生を抑制するためタンマン管内にジャマ板を 2 段設置した。ジャマ板の設置位置はタンマン管フタより 20mm 間隔とした。

タンマン管上部に保温材を設置した。

2. 2. 3 ガス捕集部

純水装荷ガス吸収ビン 2 段、水酸化ナトリウム(NaOH)溶液装荷ガス吸収ビン 1 段を直列に配列し処理容器出口配管に設置し、試料より発生する HCl ガスを捕集した。

2. 3 試験条件

試料種類、試料装荷量、処理温度、水分付加量、水分付加速度をパラメータ条件とした。試験条件は、Run No.1 を先行実施し随時前試験結果をもとに次試験条件を決定した。

表 2 に最終的に決定した試験条件を示す。

2. 3. 1 供試料、装荷量

試料成分は、対象塩化物とし塩化ナトリウム(NaCl)、塩化セシウム(CsCl)を、酸化促進剤に酸化ホウ素(B₂O₃)、ホウ酸(H₃BO₃)を、HCl 吸収剤にハイドロソーダライト(HSL)を用いた。

HSL は気相対象の HCl 除去剤であり、本試験では溶融試料中での HCl 安定固定化を目的に使用した。

各種試料成分の組合せ 5 種、試料成分の混合比を含め以下 7 種の試料を試験に用いた。

試料装荷量は HSL 未添加条件では 25g を基本条件とし、溶融試料と水分ガスの接触反応の改善を目的とした 50g 装荷条件も実施した。HSL 添加条件は、HSL 粉末のカサ密度が小さいため、タンマン管容積の都合上 30g とした。

試料成分の融点、沸点、分解点を以下に示す。

<供試料>

- ①CsCl-B₂O₃ モル比 Cs:B=1:5, 1:10
- ②NaCl-CsCl-B₂O₃ モル比 Na:Cs:B=1:2:11, 1:2:22
- ③CsCl-H₃BO₃ モル比 Cs:B=1:5
- ④CsCl-B₂O₃-HSL モル比 Cs:B:HSL=1:5:0.5
- ⑤NaCl-CsCl-B₂O₃-HSL モル比 Na:Cs:B:HSL=1:2:11:1.5

<試料成分試薬>

NaCl 特級試薬 純度>99.5% 関東化学製
CsCl 特級試薬 純度>99.0% 和光純薬製
B₂O₃ 鹿特級試薬 純度>95.0% 関東化学製
H₃BO₃ 特級試薬 純度>99.5% 関東化学製
HSL(Na₈Al₆Si₆O₂₄(OH)₂) Lot No.KO-24-6-G 東洋電化工業製

<試料成分物性>

NaCl 融点 800°C 沸点 1413°C
CsCl 融点 645°C 沸点 1300°C
B₂O₃ 融点 450°C 沸点 1800°C

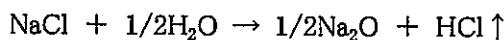
H_3BO_3 分解点 185°C

2.3.2 処理温度

処理温度は、転換生成が予想される酸化物の融点以上である事を考慮し、前試験結果をもとに 750~850°Cにて隨時決定した。

2.3.3 水分付加量、付加速度

下式の反応において、塩化物に対する水の理論当量の 10 倍付加を基本条件とし、試験結果をもとに 10~30 倍当量付加にて隨時条件決定した。



水分付加速度は水分発生器スイープガス流量 50NmL/min を基本条件とした。試料装荷量 50g 条件については試験時間短縮を目的としスイープガス流量 100NmL/min 条件も実施した。

各条件における水分付加速度、水分付加ガス流量を以下に示す。

水分付加速度は、付加ガス水分濃度 $3.09E-2mol/NL$ より、

スイープガス 50NmL/min 条件では

$$\begin{aligned} & 3.09E-2(mol/NL) \times 50(NmL/min) / 1000(NmL/NL) \\ & = \underline{1.55E-3(mol/min)} \end{aligned}$$

スイープガス 100NmL/min 条件では

$$\begin{aligned} & 3.09E-2(mol/NL) \times 100(NmL/min) / 1000(NmL/NL) \\ & = \underline{3.09E-3(mol/min)} \end{aligned}$$

水分付加ガス流量: Q は、付加ガス水分濃度 $3.09E-2mol/NL=69.2vol\%$ より

スイープガス流量 50NmL/min 条件では

$$(Q_1 - 50(NmL/min) / Q_1 \times 100 = 69.2(vol\%)$$

$$Q_1=162(NmL/min)$$

$$=\underline{0.162(NL/min)}$$

スイープガス流量 100NmL/min 条件では

$$(Q_2 - 100(NmL/min) / Q_2 \times 100 = 69.2(vol\%)$$

$$Q_2=325(NmL/min)$$

$$=\underline{0.325(NL/min)}$$

2.4 評価項目

2.4.1 試験運転評価

事前に水分発生器の模擬運転を行ない、発生水分を塩化カルシウムに捕集し重量法にて水分付加ガスの水分濃度を測定した。測定水分濃度、試験時間より実際の水分付加量を求めた。

試験中の試料温度を熱電対によりモニタリングした。

2.4.2 重量評価

試験後、タンマン管内に残存した試料(タンマン管内残留試料)、タンマン管外に流出し処理容器内に残存した試料(タンマン管外流出試料)の回収重量を測定した。

2.4.3 試料および処理容器内観

試験後の処理試料および処理容器内状況を観察し写真に記録した。

2.4.4 試料の成分含有量測定

試験後の試料を希硫酸(H_2SO_4)に溶解し、ろ過後セシウム(Cs)、ナトリウム(Na)、ホウ素(B)、塩素(Cl)濃度を測定し各成分含有量を求めた。タンマン管流出試料については処理容器材質インコネル成分ニッケル(Ni)、鉄(Fe)、クロム(Cr)濃度を追加し測定した。

処理試料の各成分量より酸化物転換率を算出した。以下に酸化物転換率計算方法を示す。

Cs は原子吸光光度法により、Na、B、Ni、Fe、Cr はプラズマ発光光度法により、Cl はイオンクロマトグラフィーにより測定した。

<酸化物転換率計算方法>

$$\text{酸化物転換率} (\%) = (b - d) / a \times 100$$

a: 装荷塩化物量(mol)

b: 処理試料 Na + Cs 量(mol)

d: 処理試料 Cl 量(mol)

<測定機器>

プラズマ発光分光分析装置 OPTIMA2000 パーキンエルマー製

原子吸光光度計 G-6000 日立製

イオンクロマトグラフ IC7000 横河製

2.4.5 試料の化学形態測定

試験後回収した試料を X 線回折装置により測定しその主要形態の確認を行った。なお転換生成した酸化物は潮解性であり分解しやすいため、不活性(Ar)雰囲気グローブボックス内で試料調製を行い真空ホルダに試料を装填し測定した。

測定件数は8件とし、他の評価結果を参考に試料選定を行なった。

<測定機器>

X線回折装置 RADSYSTEM 理学製

2.4.6 吸収液捕集成分測定

処理容器出口ガスを2段通気した吸収液(純水)について、捕集したHCl、Cs、Na、B、Cl量を測定した。HCl(酸)濃度は中和滴定法またはpH計により測定し、Cs、Na、B、Cl濃度は、2.4.4項「試料の成分含有量測定」と同様の測定装置により測定した。

<測定機器>

pH計 pH METER F-14 堀場製

自動滴定装置 COMTIT-101 平沼製

2.4.7 試料成分収支評価

タンマン管内残留成分量、吸収液捕集成分量を2.4.4項「試料の成分含有量測定」、2.4.6項「吸収液捕集成分測定」より求め試料成分収支を評価した。

Run No.23についてはタンマン管外流出成分量も含め試験総収支を評価した。

3. 結果および考察

3.1 試験運転評価

表3に試験運転状況水分付加量を示す。

図4に試験中の試料温度モニタリングデータを示す。

付加水分濃度は設定 69.2vol%に対し実測 65.1vol%を示した。このため付加水分量は設定条件より1割程度少ない量であった。

試料温度モニタリング結果より試験中の試料温度は設定温度で安定していた。

昨年度試験で試験中断の原因となった、揮発試料による配管閉塞は起こらなかった。

試験は設定条件に則した良好な安定運転で実施できた。

3.2 重量評価

表4に試料重量測定結果を示す。

CsCl-H₃BO₃試料条件(Run No.6、8)を除き、試験後も試料はタンマン管内に80%台で残存していた。またタンマン管外に流出し処理容器内に付着していた試料(タンマン管外流出試料)も数g確認された。

3. 3 試料および処理容器内観察

写真 1～50 に処理試料状況、処理容器内上部状況、発泡噴出試料状況を示す。

処理容器内上部には試料揮発物と思われる凝集付着物が確認された。この付着物は緑色であり、処理容器が腐食していた事より、容器材質インコネル成分の Ni を含有すると思われた。

①CsCl-B₂O₃ 試料条件

処理試料は B₂O₃ と Cs の酸化物と思われる透明ガラス状固化体が大部分を占めた。一部の条件(Run No.2, 1, 3)では、ガラス状固化体上部に青白色の未反応 CsCl と思われる塩凝集物が僅かに確認された。

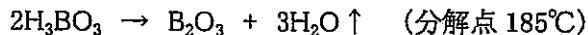
②NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件

処理試料は B₂O₃ と Na、Cs の酸化物と思われる透明ガラス状固化体が大部分を占めた。また全ての条件においてガラス状固化体上部に白色から青白色の未反応 NaCl、CsCl と思われる塩凝集物が確認された。

③CsCl-H₃BO₃ 試料条件

処理後タンマン管内に残留した試料はほとんど無く、タンマン管フタ上部に白色泡状の固化体が確認された。

これは H₃BO₃ が熱分解し、生成した H₂O により溶融試料が発泡し、ガス通気によりタンマン管外に噴出したものと思われた。以下に H₃BO₃ 熱分解反応式を示す。



④CsCl-B₂O₃-HSL 試料条件

試料前処理無し条件(Run No.8)では、タンマン管下部に HSL 粉末を含有する黒色ガラス状固化体が存在し、その上部に HSL 粉末が堆積する状態が確認された。これは試料成分が均質でなく、下部に CsCl、B₂O₃ が集中し分布していたためと考えられた。

試料を粉碎し均質混合した条件(Run No.17)では、HSL 粉末を含有する黒色の固化体であり、溶岩状に気泡を多く含有する状態であった。

⑤NaCl-CsCl-B₂O₃-HSL 試料条件

試料は粉碎し均質混合し試験に用いた。④項 CsCl-B₂O₃-HSL 試料条件の Run No.17 と同様に黒色溶岩状固化体であった。

3. 4 試料の成分含有量測定

表 5 に処理試料成分含有量測定結果を、表 6 にタンマン管流出試料成分含有量測定結果を示す。

表 7 に試料成分含有量測定結果からの酸化物転換率評価結果を、図 5～8 に処理温度、水分付加量、試料装荷量、および水分ガス通気流量と酸化物転換率の関係を示す。

CsCl-B₂O₃ 試料条件、NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件において、処理塩の Cl 成分の大きな減少が

確認された。酸化物転換率は、処理温度が低い(750°C)一部条件(Run No.2, 7)を除き、80%以上の高い数値を示した。

また CsCl-B₂O₃ 試料条件において、塩化物減少率が 100%を示した条件(Run No.15, 12, 9)は 3. 3項「試料および処理容器観察結果」にて、処理試料より未反応塩化物と思われる塩凝集物が見られなかった条件であることを確認した。

CsCl-H₃BO₃ 試料条件(Run No.6, 8)では、試験初期に試料が発泡しタンマン管外に噴出したため酸化物転換率は数%と低い値を示した。

HSL 添加試料条件(Run No.17, 19, 18)において、処理試料より、装荷量より多い Na が検出された。これは測定溶液試料調整の希硫酸溶解時に HSL 成分が溶解し、HSL(Na₈Al₆Si₆O₂₄(OH)₂) に由来する Na が混入したものと考えられた。このため HSL 添加試料条件は酸化物転換率評価が不可能であった。

タンマン管流出試料の成分含有量測定を Run No.23 について実施した結果、試料主成分は Ni と Cl であり、Na, Cs, B は極少量成分であった。これは酸化物転換により生成した HCl が処理容器上部で凝縮しインコネル材を腐食し塩化ニッケルとなり析出したと考えられた。また流出試料中の試料成分 Na, Cs, B の含量が極少量であったことより試料からの揮発量は少ないと予測された。

処理温度と酸化物転換率の関係は処理温度の上昇に伴う転換率の増加が確認された。

水分付加量と酸化物転換率の関係は、水分付加量を 10 倍当量より増加しても顕著な転換率向上は得られないことが確認された。これは 10 倍当量において転換率 80%以上と高値を示した事、付加量増加に伴う試験時間の長期化のため CsCl が揮発し酸化物転換にロスを生じる事(Run No.1, 11, 15)が原因であると考えられる。

試料装荷量と酸化物転換率の関係は、装荷量増加に伴う転換率の顕著な変化は無いものと思われた。

水分ガス通気流量と酸化物転換率の関係は、通気流量増加に伴う転換率変化の傾向的結果が得られなかった。

3. 5 試料の化学形態測定

表 8 に化学形態測定結果を、図 9 に各試料の X 線回折スペクトルを示す。

以下 8 試料について X 線回折測定を実施した。

- Run No.2 処理試料

CsCl-B₂O₃(Cs:B=1:5)試料条件、酸化物転換率(58.7%)最低条件

- Run No.1 処理試料

CsCl-B₂O₃(Cs:B=1:5)試料条件、酸化物転換率(87.2%)最高条件

- Run No.9 処理試料

CsCl-B₂O₃(Cs:B=1:10)試料条件、酸化物転換率(100%)最高条件

- Run No.7 処理試料
NaCl-CsCl-B₂O₃(Na:Cs:B=1:2:11)試料条件、酸化物転換率(59.4%)最低条件
 - Run No.23 処理試料
NaCl-CsCl-B₂O₃(Na:Cs:B=1:2:11)試料条件、酸化物転換率(92.5%)最高条件
 - Run No.8 発泡噴出試料
CsCl-H₃BO₃(Cs:B=1:5)試料条件、H₃BO₃ の熱分解により発泡しタンマン管上部に噴出した試料
 - Run No.17 試料希硫酸溶解残査
CsCl-B₂O₃-HSL(Cs:B:HSL=1:5:0.5)不均質試料条件、処理試料を成分測定のため希硫酸溶解した残査
 - Run No.19 処理試料
CsCl-B₂O₃-HSL(Cs:B:HSL=1:5:0.5)均質試料条件

① CsCl-B₂O₃ 試料条件

酸化物転換率が低い Run No.2 では CsCl が多量成分として検出された。Run No.1, 9 においても転換率高上に対応した CsCl 成分量の減少が確認された。転換生成した酸化物は非晶質成分の影響、または酸化物が非晶質と考えられ検出できなかった。

②NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件

塩化物は①項「CsCl-B₂O₃試料条件」と同様に酸化転換率の低いRun No.7では検出されたが、転換率の高いRun No.23ではCsClの痕跡程度が確認され、酸化物転換率に対応した結果であった。①項と同様に転換生成酸化物は非晶質と考えられ検出できなかった。

③CsCl-H₃BO₃試料条件

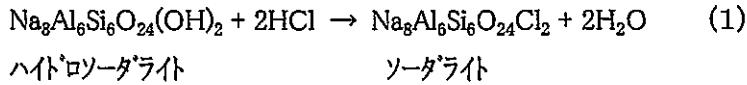
発泡噴出試料は CsCl が極多量成分とし検出された。 H_3BO_3 は熱分解したと思われ検出されなかつた。また Cs の酸化物である CsB_5O_8 が多量成分とし検出され、タンマン管外で酸化物転換が起きたと考えられた。

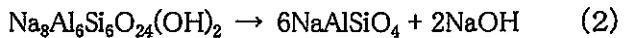
④ CsCl-B₂O₃-HSL 試料条件

Run No.17 試料希硫酸溶解残査より HSL、およびその塩素吸着形態であるソーダライトは検出されなかった。しかし HSL およびソーダライトの熱分解生成物であるネフェリンと NaCl が少量成分とし検出された。HSL は処理試料内に HCl を安定に固定化する目的で添加したが、熱分解により NaCl を生成することは問題であった。

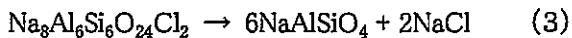
Run No.19 処理塩は、非晶質成分の影響により、CsCl と NaCl が少量成分とし検出されたのみであった。

以下に HSL と HCl の反応式(1)、HSL およびソーダライトの熱分解反応式(2)、(3)を示す。





ハイドロソーダライト ネフェリン



ソーダライト ネフェリン

3.6 吸収液捕集成分測定

表 9 に吸収液捕集成分測定結果を、表 10 に装荷塩化物に対する塩化水素捕集率を示す。

試料成分 Cs、B はほぼ全ての条件で吸収液より検出されており、微量ではあるが揮発による成分の処理容器外への移行が確認された。試料成分 Na は一部の条件を除き吸収液より検出されなかつた。これは Na が他成分と比較し、装荷量が少量であること、融点(m.p.800°C)が高いため揮発量が低い事が要因であると考えられた。

また HCl は全ての条件において検出され、塩化物の酸化物転換反応が確認された。

CsCl-B₂O₃ 試料条件、NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件において装荷塩化物に対する HCl 捕集率は 20~60%を示し、本来一致すべき酸化物転換率 60~100%とは大きな誤差を生じた。この誤差は、吸収液に捕集されなかつた HCl は処理容器インコネルの腐食に消費され、タンマン管外流出試料に Cl 成分とし存在することにより解釈できた。

3.7 試料成分収支評価

図 10 に試験収支評価試料分布図を、図 11 に試料成分収支を、表 11 に試験収支評価結果を示す。

収支評価はタンマン管内残留成分と吸収液捕集成分より評価した。Run No.23 についてはタンマン管外に流出し処理容器内に付着残存した成分(タンマン管外流出成分)を含めて試験総収支を評価した。

①CsCl-B₂O₃ 試料条件

Cs、B の総収率は 80~100%を示しどんどんがタンマン管内残留成分であった。一方 Cl は総収率 30~70%と低く、条件によるばらつきが大きかつた。タンマン管内残留成分収率が低い条件において総収率が低い傾向にあり、未評価であるタンマン管外流出塩に存在するものと考えられた。

②NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件

Run No.23 を除く条件において Na、Cs、B の総収支は 70~100%を示しどんどんがタンマン管内残留成分であった。850°C高温条件(Run No.20、21、23)においてタンマン管内残留成分を比較すると Na 対し Cs の収支が低い傾向にあった。これは CsCl は NaCl より揮発しやすいためと考えられた。Cl の総収支は 30~55%と低い数値を示した。

タンマン管外流出成分を含め試験全体を評価した Run No.23 では、タンマン管外流出成分に Na、Cs が 1%以下なのに対し Cl は 26%を示した。これは塩化物の揮発物以外の Cl 成分の存在を意味し、酸化物転換により生成した HCl 由来の Cl が多量に含まれると考えられた。Cl の総収率は 94%を示し、他条件においても Cl がタンマン管外流出成分に多く含まれると考えられた。

③CsCl-H₃BO₃ 試料条件

試験初期に試料が発泡しタンマン管外に流出したため、各成分ともに総収支は数%と低い数値を示した。

④CsCl-B₂O₃-HSL 試料条件

Cs の総収率は Run No.17 で 38%、Run No.19 で 72%と低い値を示しその大部分はタンマン管内残留成分であった。これはタンマン管内残留試料(処理試料)の測定液体試料調製時に不溶解残査を除き測定したため、残査に Cs が同伴しており大きな誤差を招いたと考えられた。

HSL は酸化物転換により発生する HCl の Cl 固定化剤として添加した。吸収液捕集成分の Cl 収率は低いが HSL の効果は不明であった。

⑤NaCl-CsCl-B₂O₃-HSL 試料条件

Na の総収率は 800%を示しており、HSL の Na 成分が混入していることを意味した。

4. まとめ

本試験により得られた結果を以下にまとめる。

- ①昨年度使用した試験装置について、装荷容器を深さのあるタンマン管に変更し、ジャマ板の増設等の試料揮発低減を目的とした改良を行なった。その結果、溶融試料からの揮発を抑制することができ、揮発試料による配管閉塞が起ららず、良好な試験運転が実施できた。
- ②CsCl、NaCl-CsCl 塩化物に、B₂O₃を酸化促進剤とし添加し、処理することにより、塩化物を 100% に近いオーダーで酸化転換処理できることが確認された。また Na、Cs、B 成分は、装荷容器に多く残存することが確認され、揮発低減も確認された。
- ③転換処理した Na、Cs の酸化物の化学形態は、X 線回折では非晶質と思われ、同定することはできなかった。
- ④本試験装置において H₃BO₃を酸化促進剤に用いると、試験初期で試料が発泡し装荷容器外に噴出てしまった。しかし噴出試料の化学形態測定から酸化物 CsB₅O₈ が多量成分とし検出された。
- ⑤酸化物転換により発生する HCl を処理塩内に安定に固定化する目的でハイドロソーダライトを添加し処理したが、本評価法ではその効果は不明であり、Cl を固定化したハイドロソーダライト(ソーダライト)は熱分解により再び NaCl を生成することが問題となった。

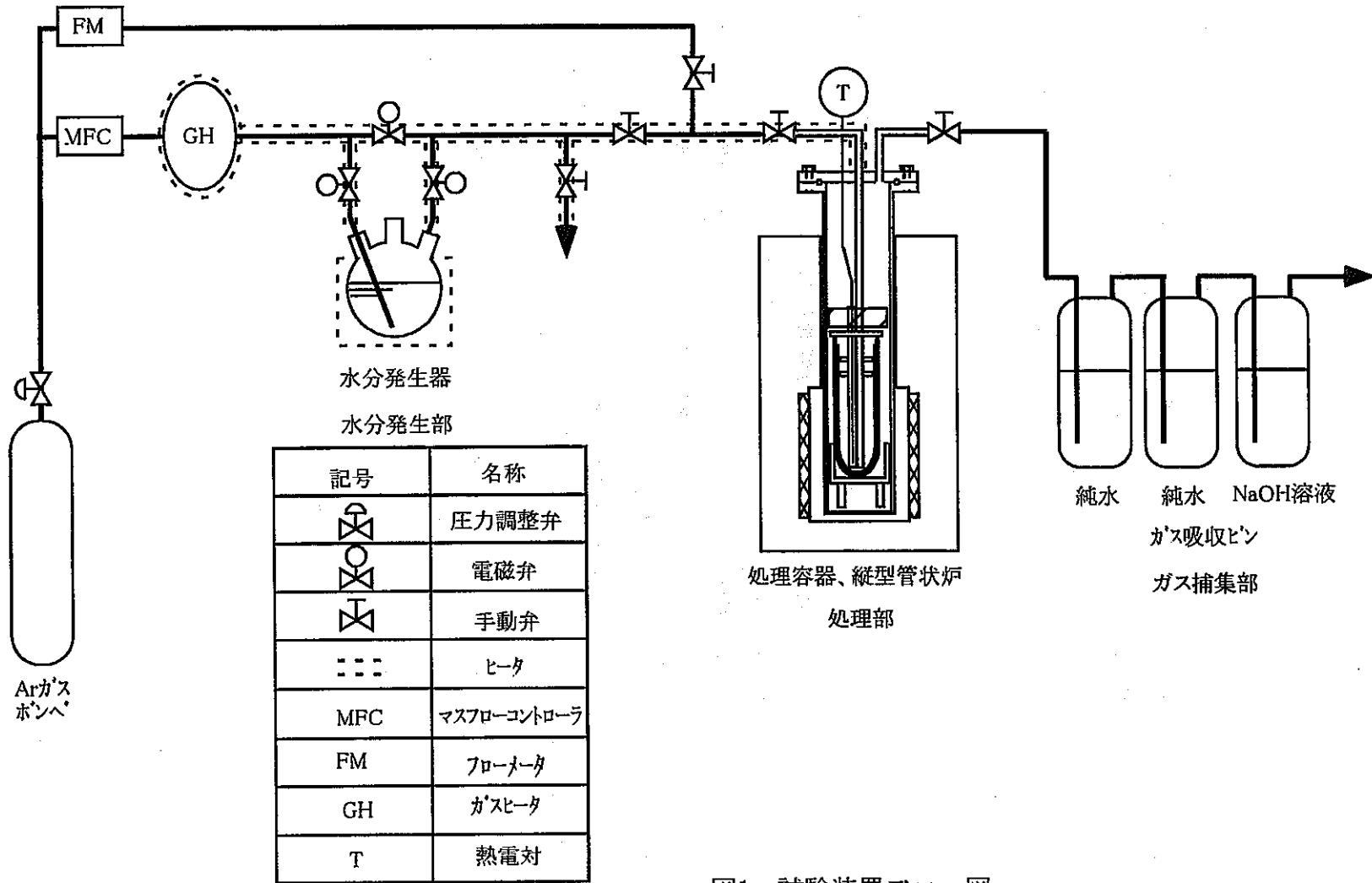


図1 試験装置フロー図

表1 主要機器一覧

| No. | 使用部位 | 品名 | メーカー・型式 | 仕様 | 数量 | 備考 |
|-----|-------|-------------|-------------------|----------------------------|----|-------------|
| 1 | 供給部 | マスフローコントローラ | リンテック製 MC-100B | Ar 250SCCM | 1 | スイープガス流量調整用 |
| 2 | | フローメータ | 東京フローメータ製 FMPX25G | Ar 300NmL/min | 1 | 昇温時処理容器通気用 |
| 3 | | ガスピーダ | | SUS304 1/4inc × 2m コイル | 1 | スイープガス予加熱用 |
| 4 | 水分発生部 | 水分発生器 | | パイレックスガラス 3L丸底フラスコ、マントルヒータ | 1 | |
| 5 | 処理部 | 処理容器 | 設計製作品 | インコネル600 | 1 | |
| 6 | | 縦型管状炉 | 設計製作品 | 最高温度1200°C、常用温度1000°C | 1 | 処理容器加熱用 |
| 7 | | 温度調節器 | 理化工業製 CB900 | | 1 | |
| 8 | | 熱電対 | サーモテックス製 | 1/8inc φ × 400mm | 1 | |
| 9 | ガス捕集部 | ガス洗浄ビン | | パイレックスガラス 250mL | 2 | 純水装荷用 |
| 10 | | ガス洗浄ビン | | パイレックスガラス 500mL | 1 | NaOH溶液装荷用 |
| 11 | その他 | リボンヒータ | テラオカ製 C型 | 100W | 4 | 配管保温加熱用 |
| 12 | | 温度調節器 | オムロン製 E5CW-Q1KJ | | 5 | |
| 13 | | 熱電対 | オムロン製 E52-CA型 | 1 φ × 200mm | 5 | |
| 14 | | ハイブリットレコーダ | チノー製 Model AH | | 1 | 試料温度モニター用 |

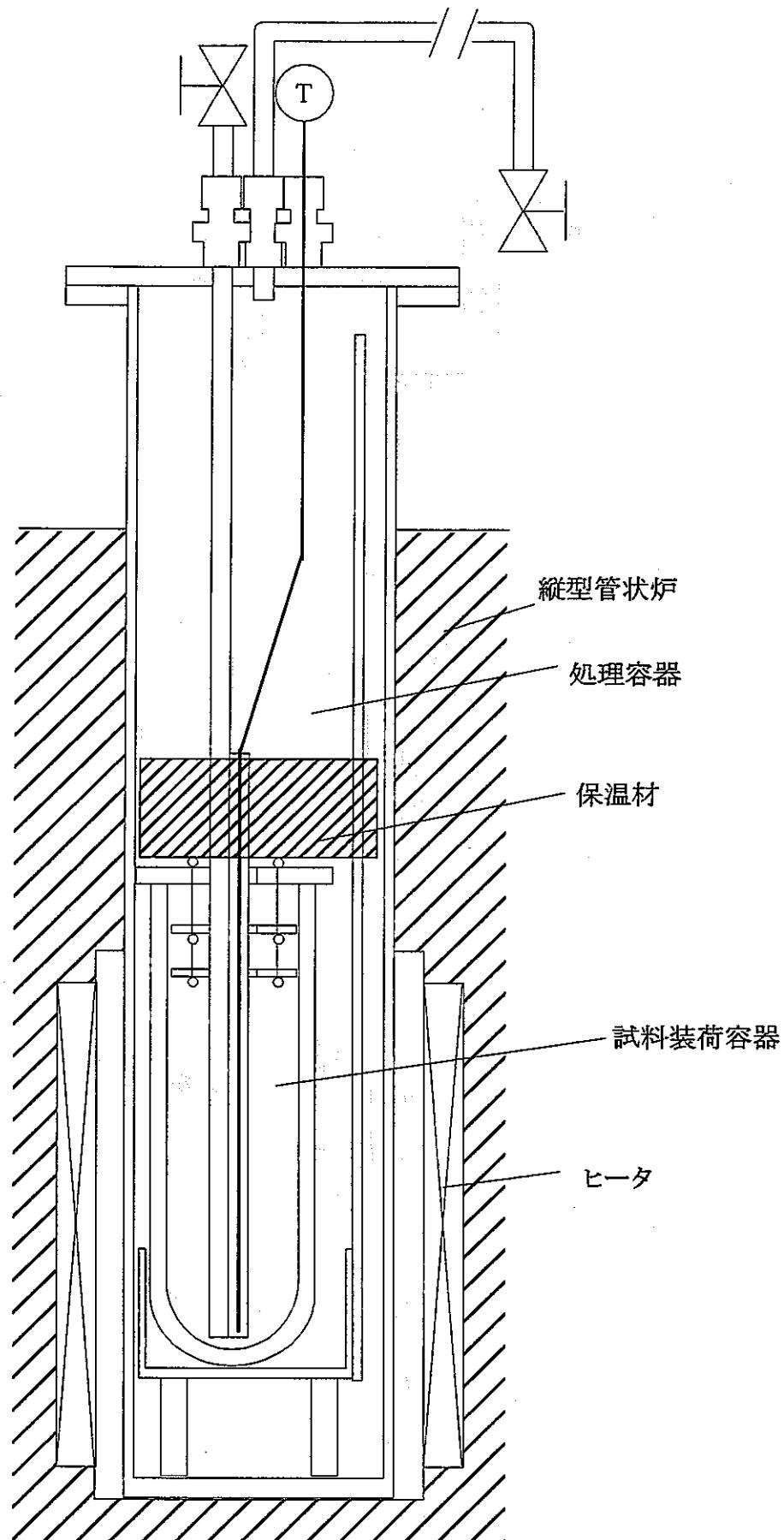
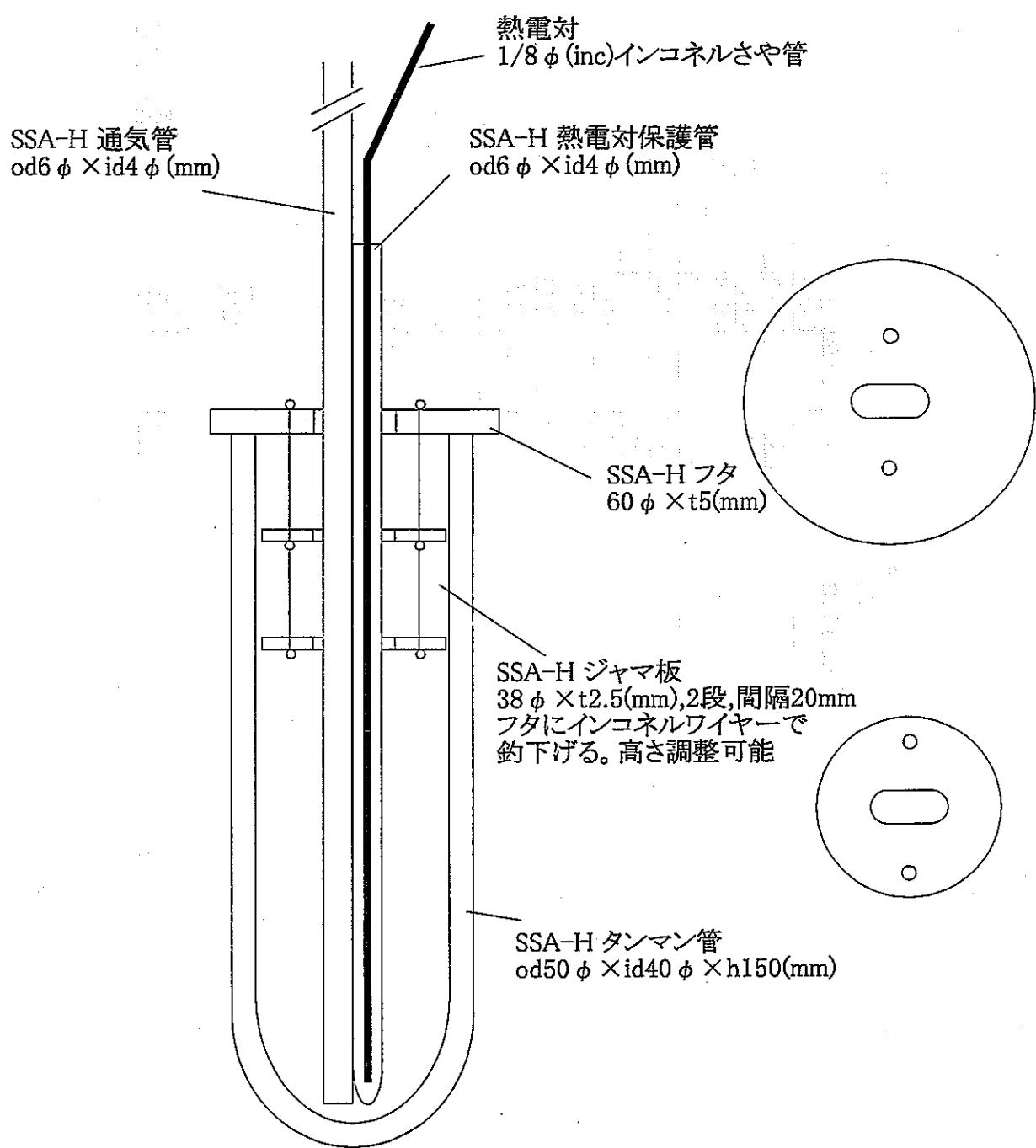


図2 处理容器概略図



* 材質: SSA-H (95.3% Al₂O₃, 2.8% SiO₂)

図3 試料装荷容器(タンマン管)内構造図

表2 試験条件

| 固定条件 | Run No. | 試料 ^{*1} | Na:Cs:B:HSL モル比 | 試料装荷 重量 (g) | 処理温度 (°C) | 水分付加量 (当量 vs.塩化物) | 通気流量 ^{*2} | | 試験時間 (min) | 備考 |
|---|---------|------------------|--------------------|-------------------|--------------|-------------------------|--------------------|-------------------|---------------|----------|
| | | | | | | | (NL/min) | (L/min at処理温度) | | |
| 水分発生条件 発生温度:90°C 付加水分濃度 :69.2vol% (3.09E-2mol/NL) | 2 | ① | 0:1:5:0 | 25 | 750 | 10 | 0.162 | 0.608 | 88 | |
| | 1 | | | 25 | 800 | 10 | 0.162 | 0.638 | 88 | |
| | 11 | | | 25 | 800 | 20 | 0.162 | 0.638 | 175 | |
| | 15 | | | 25 | 800 | 30 | 0.162 | 0.638 | 263 | |
| | 3 | | | 25 | 750 | 10 | 0.162 | 0.608 | 58 | |
| | 12 | | 0:1:10:0 | 25 | 750 | 20 | 0.162 | 0.608 | 116 | |
| | 9 | | | 25 | 800 | 10 | 0.162 | 0.638 | 58 | |
| | 7 | | | 25 | 750 | 10 | 0.162 | 0.608 | 116 | |
| | 4 | | | 25 | 800 | 10 | 0.162 | 0.638 | 116 | |
| | 13 | | | 25 | 800 | 20 | 0.162 | 0.638 | 232 | |
| | 16 | | 1:2:11:0 | 25 | 800 | 30 | 0.162 | 0.638 | 347 | |
| | 22 | | | 50 | 800 | 10 | 0.162 | 0.638 | 232 | |
| | 24 | | | 50 | 800 | 10 | 0.325 | 1.276 | 116 | |
| | 20 | | | 25 | 850 | 10 | 0.162 | 0.668 | 116 | |
| | 21 | | | 50 | 850 | 10 | 0.162 | 0.668 | 232 | |
| | 23 | | | 50 | 850 | 10 | 0.325 | 1.336 | 116 | |
| | 10 | ② | 1:2:22:0 | 25 | 750 | 10 | 0.162 | 0.608 | 78 | |
| | 14 | | | 25 | 750 | 20 | 0.162 | 0.608 | 155 | |
| | 5 | | | 25 | 800 | 10 | 0.162 | 0.638 | 78 | |
| | 6 | ③ | 0:1:5:0 | 25 | 750 | 10 | 0.162 | 0.608 | 63 | |
| | 8 | | | 25 | 800 | 10 | 0.162 | 0.638 | 63 | |
| | 17 | ④ | 0:1:5:0.5 | 30 | 800 | 10 | 0.162 | 0.638 | 44 | |
| | 19 | | | 30 | 800 | 10 | 0.162 | 0.638 | 44 | 装荷試料粉碎均質 |
| | 18 | ⑤ | 1:2:11:1.5 | 30 | 800 | 10 | 0.162 | 0.638 | 50 | 装荷試料粉碎均質 |

注) *1:試料 ①CsCl-B₂O₃、②NaCl-CsCl-B₂O₃、③CsCl-H₃BO₃、

④CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト(HSL)、⑤NaCl-CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト(HSL)

*2:通気流量 0.162NL/min 水分発生器スイープガス(Ar)流量50NmL/min

0.325NL/min 水分発生器スイープガス(Ar)流量100NmL/min

表3 試験運転状況水分付加量

| Run No. | 設定 | | | | | 実績 | | | | |
|---------|--------------|----------------------|--------------------------|----------|-------------------|---------------|----------------------|--------------------------|----------|-------------------|
| | 処理温度 (°C) | 付加水分 濃度 (vol%) | 水分付加量 (当量 vs. 塩化物) | 通気流量 | | 試験時間 (min) | 付加水分 濃度 (vol%) | 水分付加量 (当量 vs. 塩化物) | 通気流量 | |
| 1 | | | | (NL/min) | (L/min at処理温度) | | | | (NL/min) | (L/min at処理温度) |
| 800 | 69.2 | 10 | 0.162 | 0.638 | 88 | 65.1 | 9.0 | 0.143 | 0.563 | |
| 750 | | 10 | 0.162 | 0.608 | 88 | | 9.0 | 0.143 | 0.537 | |
| 750 | | 10 | 0.162 | 0.608 | 58 | | 9.1 | 0.143 | 0.537 | |
| 800 | | 10 | 0.162 | 0.638 | 116 | | 9.1 | 0.143 | 0.563 | |
| 800 | | 10 | 0.162 | 0.638 | 78 | | 9.1 | 0.143 | 0.563 | |
| 750 | | 10 | 0.162 | 0.608 | 63 | | 9.1 | 0.143 | 0.537 | |
| 750 | | 10 | 0.162 | 0.608 | 116 | | 9.1 | 0.143 | 0.537 | |
| 800 | | 10 | 0.162 | 0.638 | 63 | | 9.1 | 0.143 | 0.563 | |
| 800 | | 10 | 0.162 | 0.638 | 58 | | 9.1 | 0.143 | 0.563 | |
| 750 | | 10 | 0.162 | 0.608 | 78 | | 9.1 | 0.143 | 0.537 | |
| 800 | | 20 | 0.162 | 0.638 | 175 | | 18.2 | 0.143 | 0.563 | |
| 750 | | 20 | 0.162 | 0.608 | 116 | | 18.3 | 0.143 | 0.537 | |
| 800 | | 20 | 0.162 | 0.638 | 232 | | 18.3 | 0.143 | 0.563 | |
| 750 | | 20 | 0.162 | 0.608 | 155 | | 18.2 | 0.143 | 0.537 | |
| 800 | | 30 | 0.162 | 0.638 | 263 | | 27.2 | 0.143 | 0.563 | |
| 800 | | 30 | 0.162 | 0.638 | 347 | | 27.5 | 0.143 | 0.563 | |
| 800 | | 10 | 0.162 | 0.638 | 44 | | 9.0 | 0.143 | 0.563 | |
| 800 | | 10 | 0.162 | 0.638 | 50 | | 8.8 | 0.143 | 0.563 | |
| 800 | | 10 | 0.162 | 0.638 | 44 | | 9.0 | 0.143 | 0.563 | |
| 850 | | 10 | 0.162 | 0.668 | 116 | | 9.1 | 0.143 | 0.589 | |
| 850 | | 10 | 0.162 | 0.668 | 232 | | 9.1 | 0.143 | 0.589 | |
| 800 | | 10 | 0.162 | 0.638 | 232 | | 9.1 | 0.143 | 0.563 | |
| 850 | | 10 | 0.325 | 1.336 | 116 | | 9.1 | 0.287 | 1.179 | |
| 800 | | 10 | 0.325 | 1.276 | 116 | | 65.1 | 9.1 | 0.287 | |

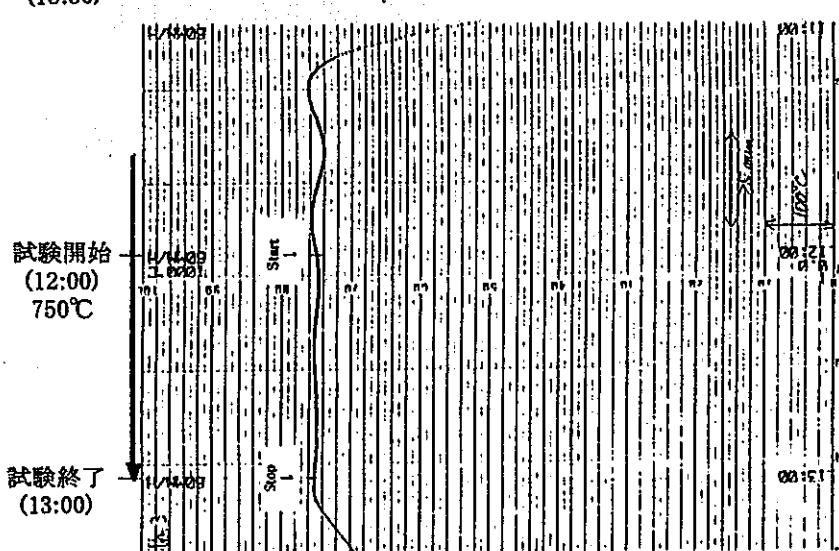
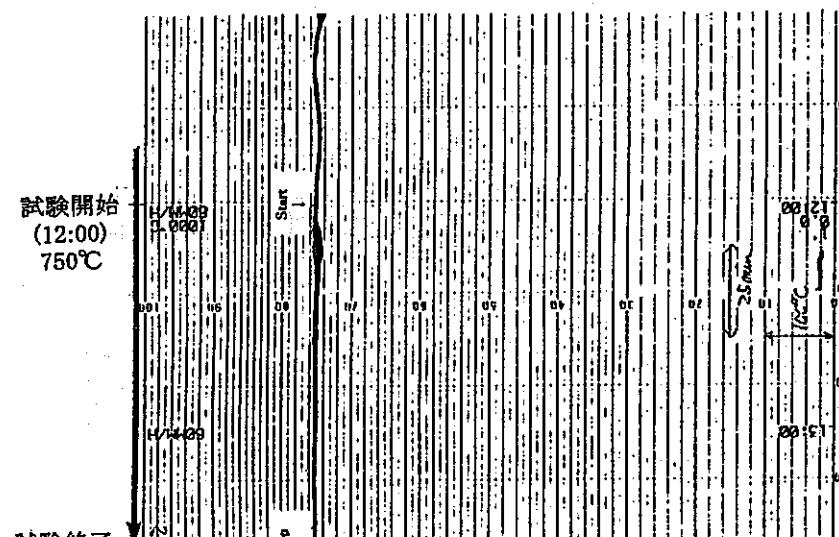
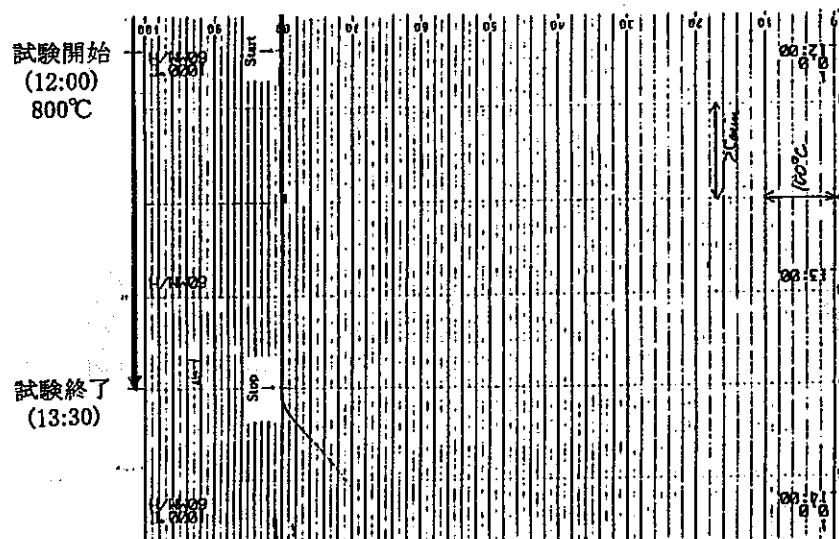


図4.1 試料温度モニタリングデータ

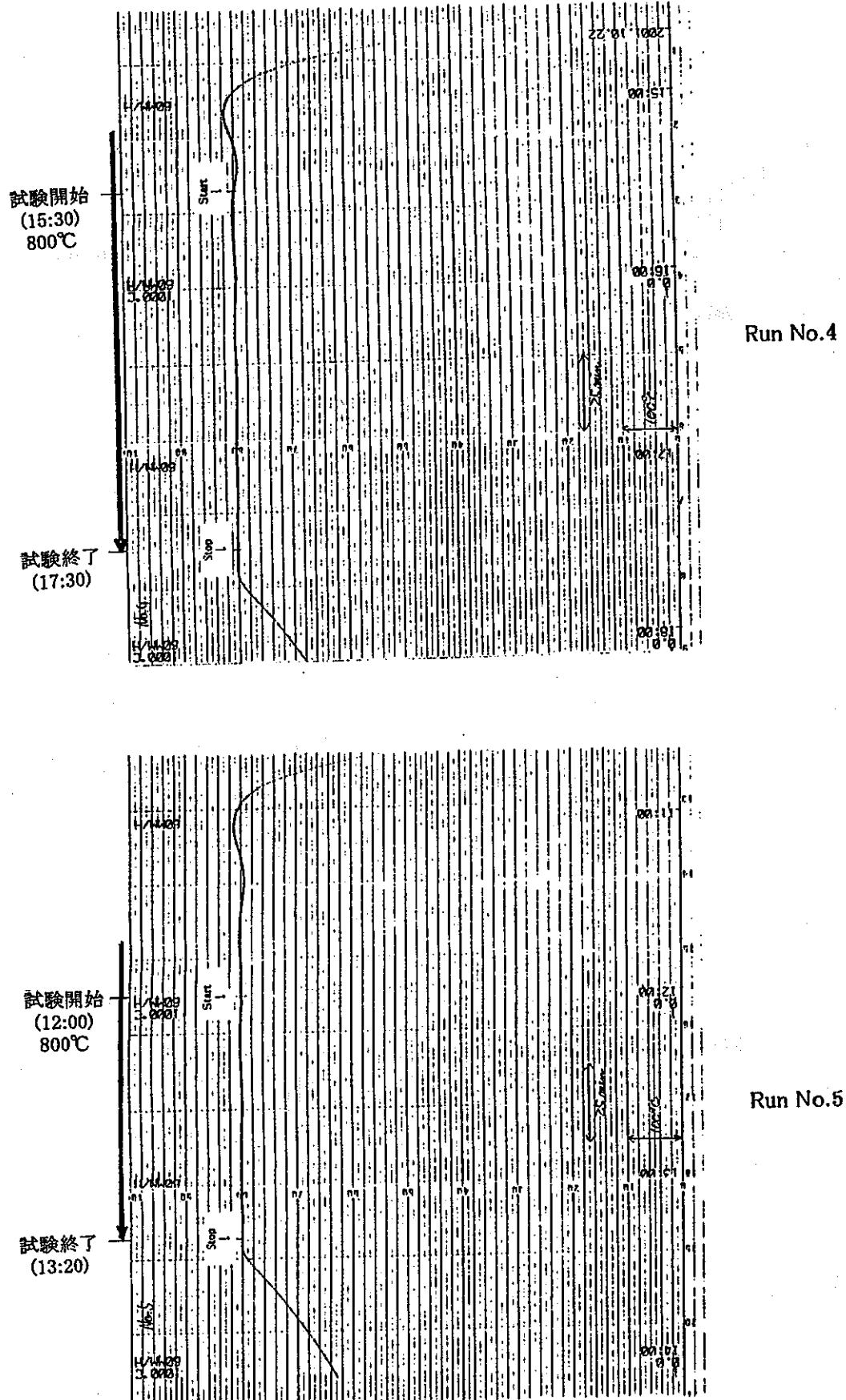


図4.2 試料温度モニタリングデータ

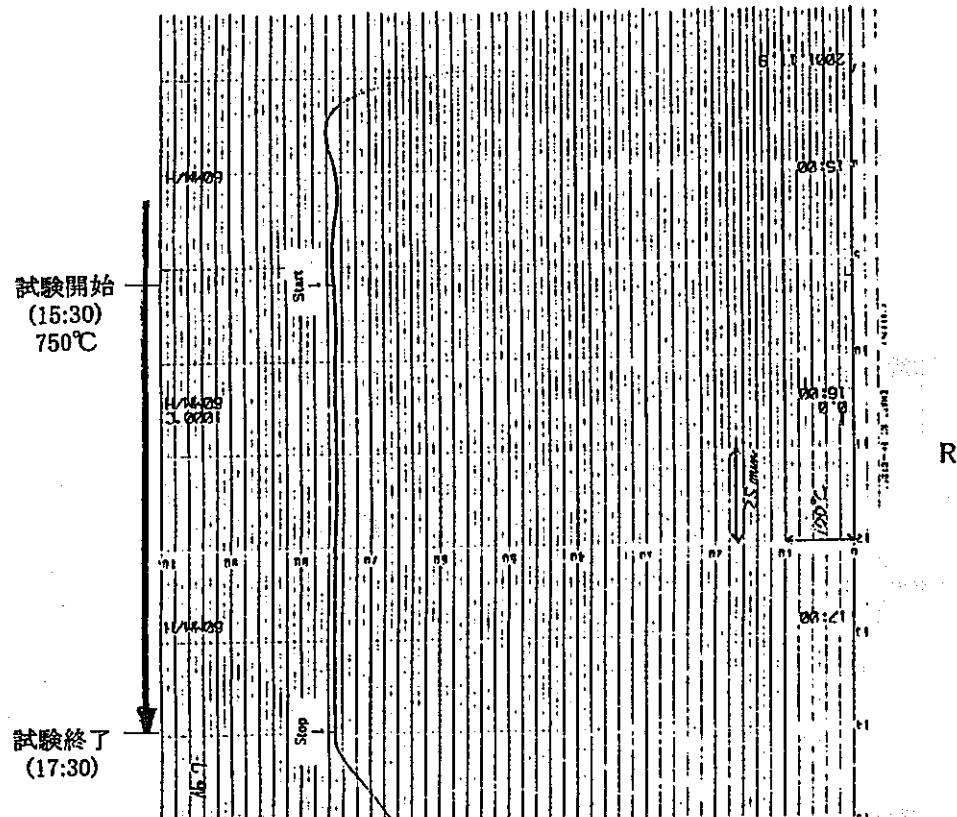
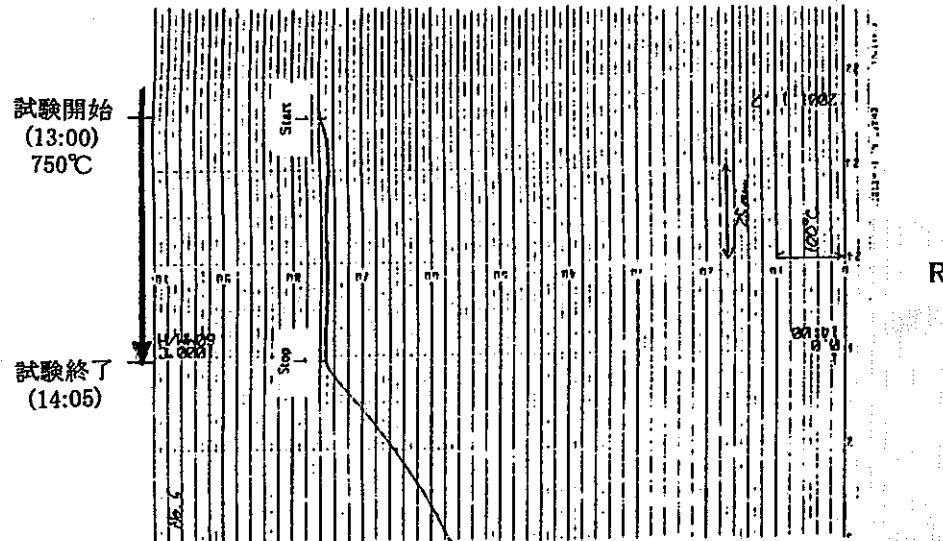
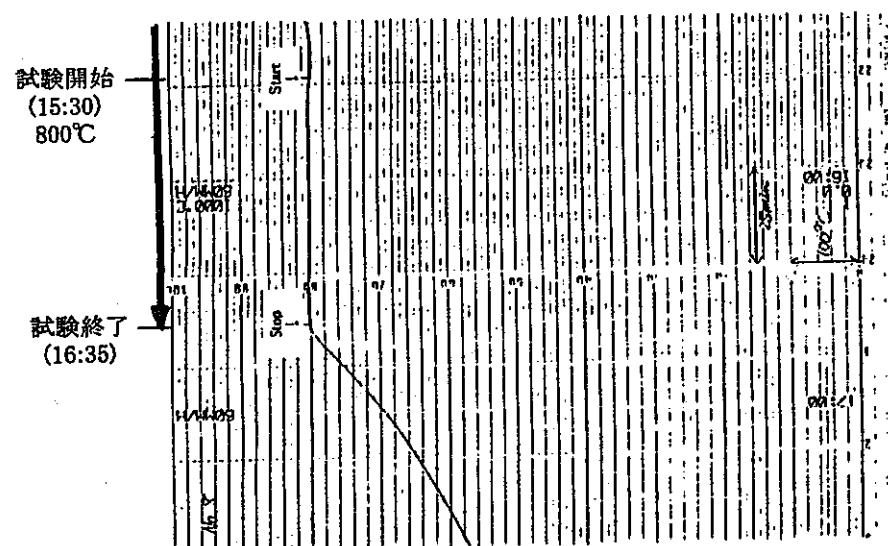
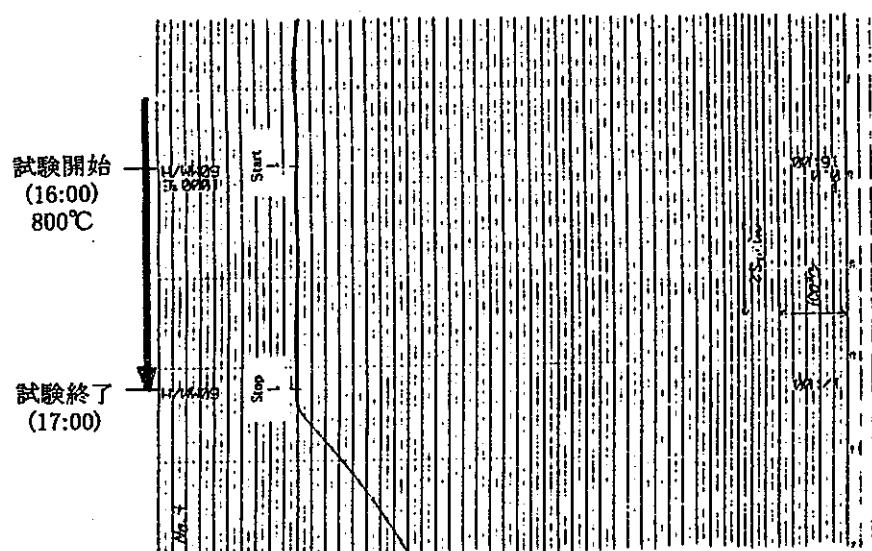


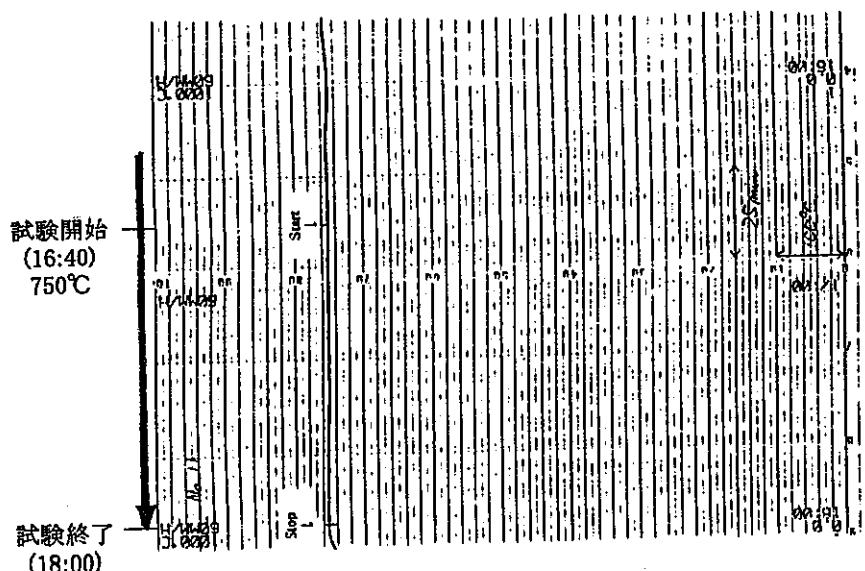
図4.3 試料温度モニタリングデータ



Run No.8



Run No.9



Run No.10

図4.4 試料温度モニタリングデータ

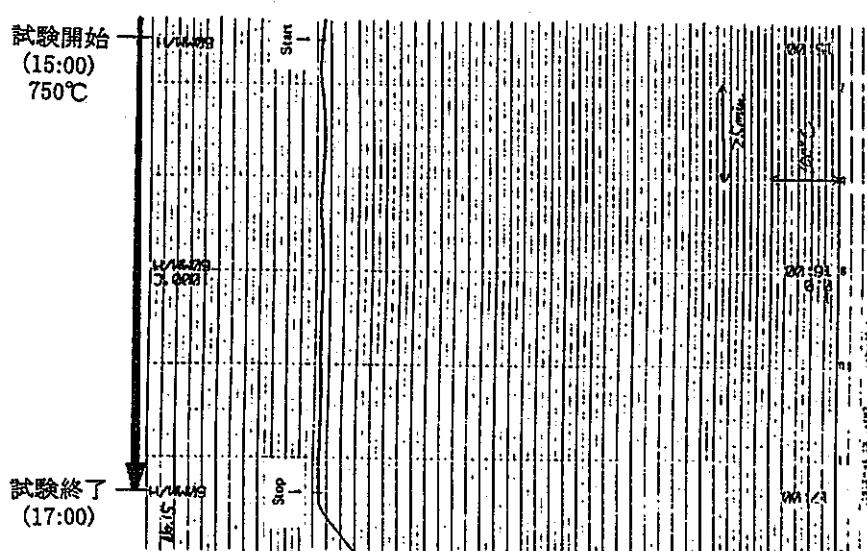
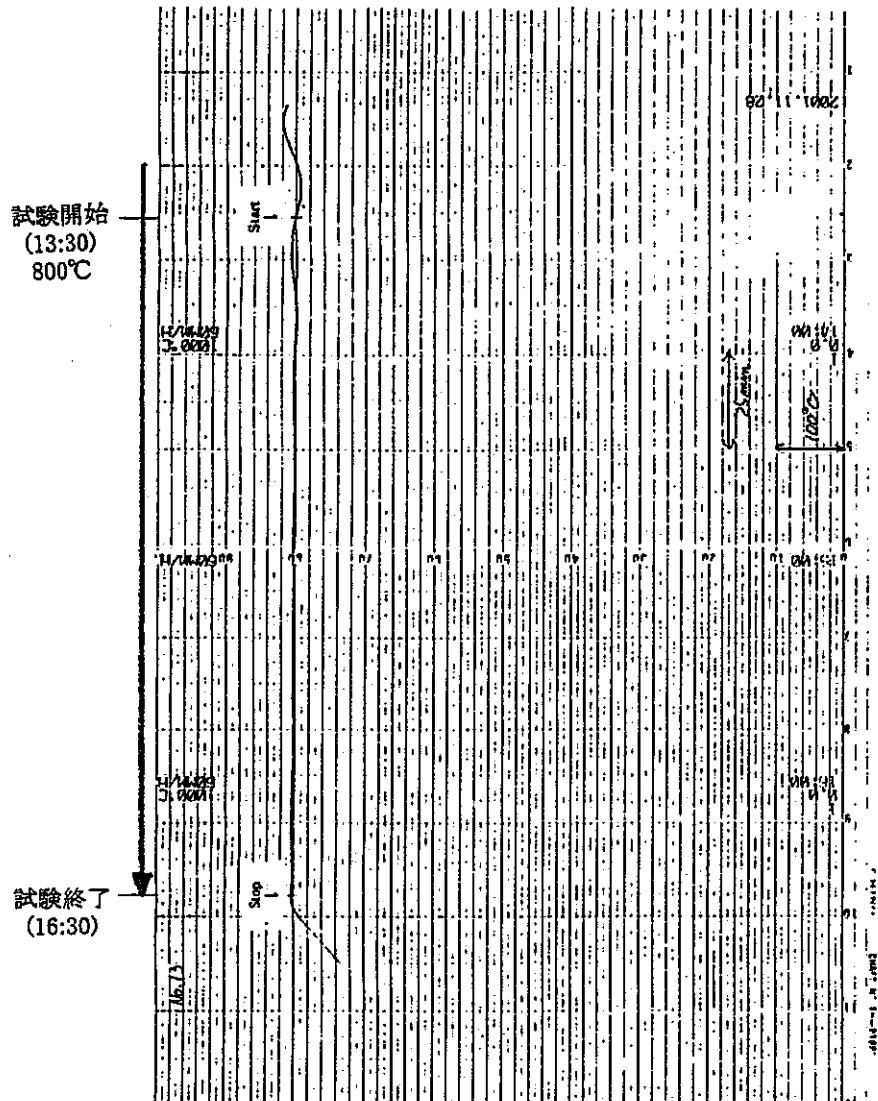


図4.5 試料温度モニタリングデータ

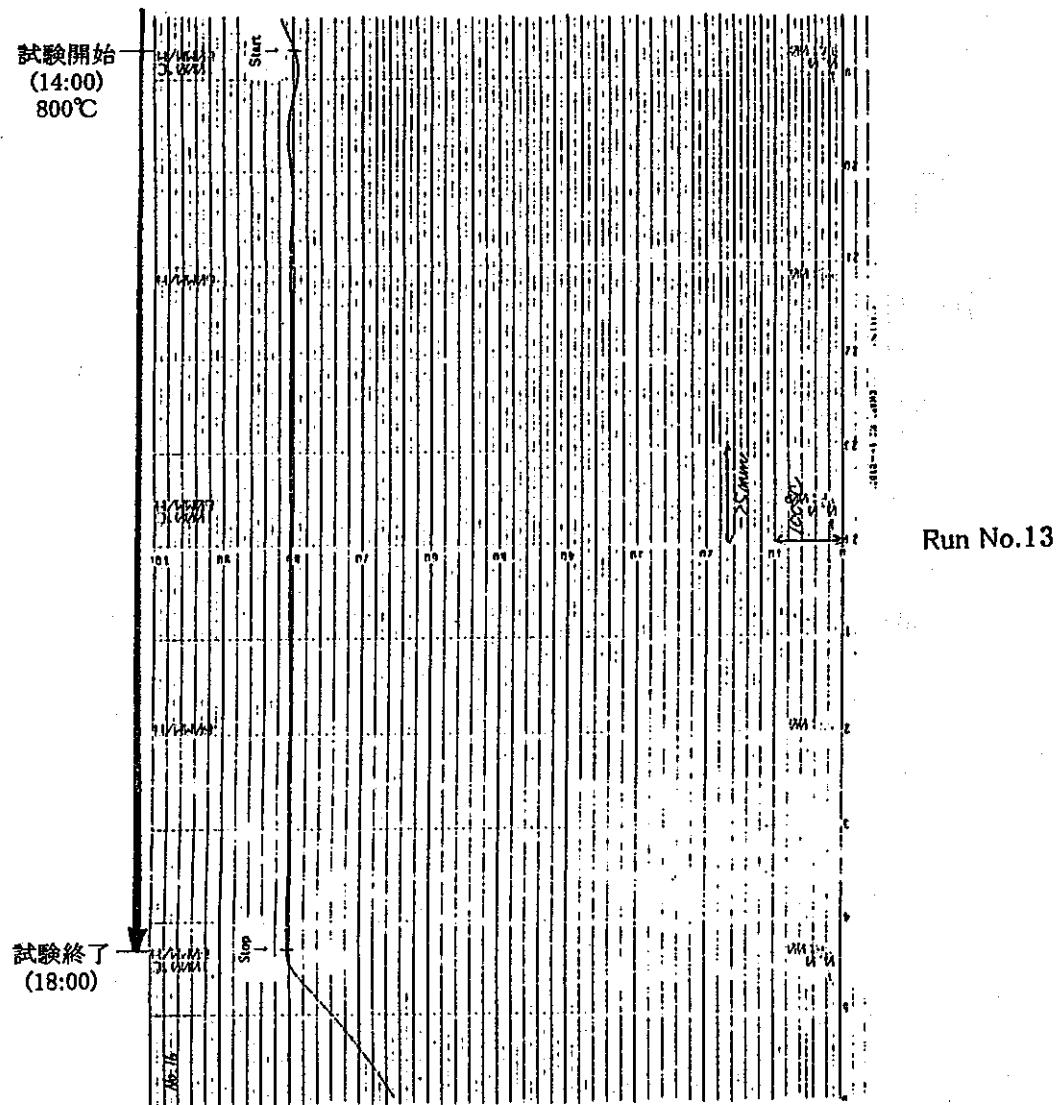


図4.6 試料温度モニタリングデータ

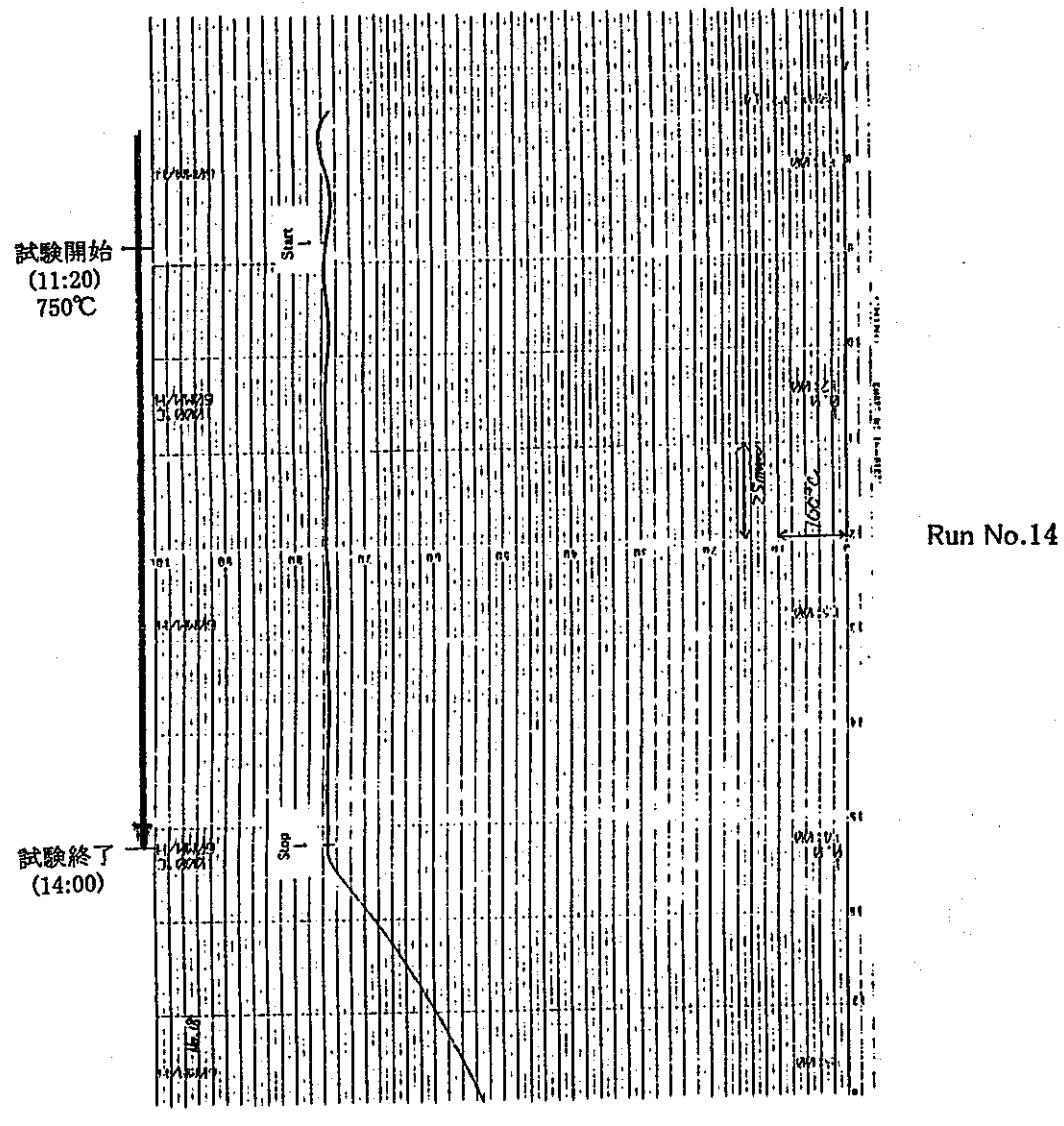


図4.7 試料温度モニタリングデータ

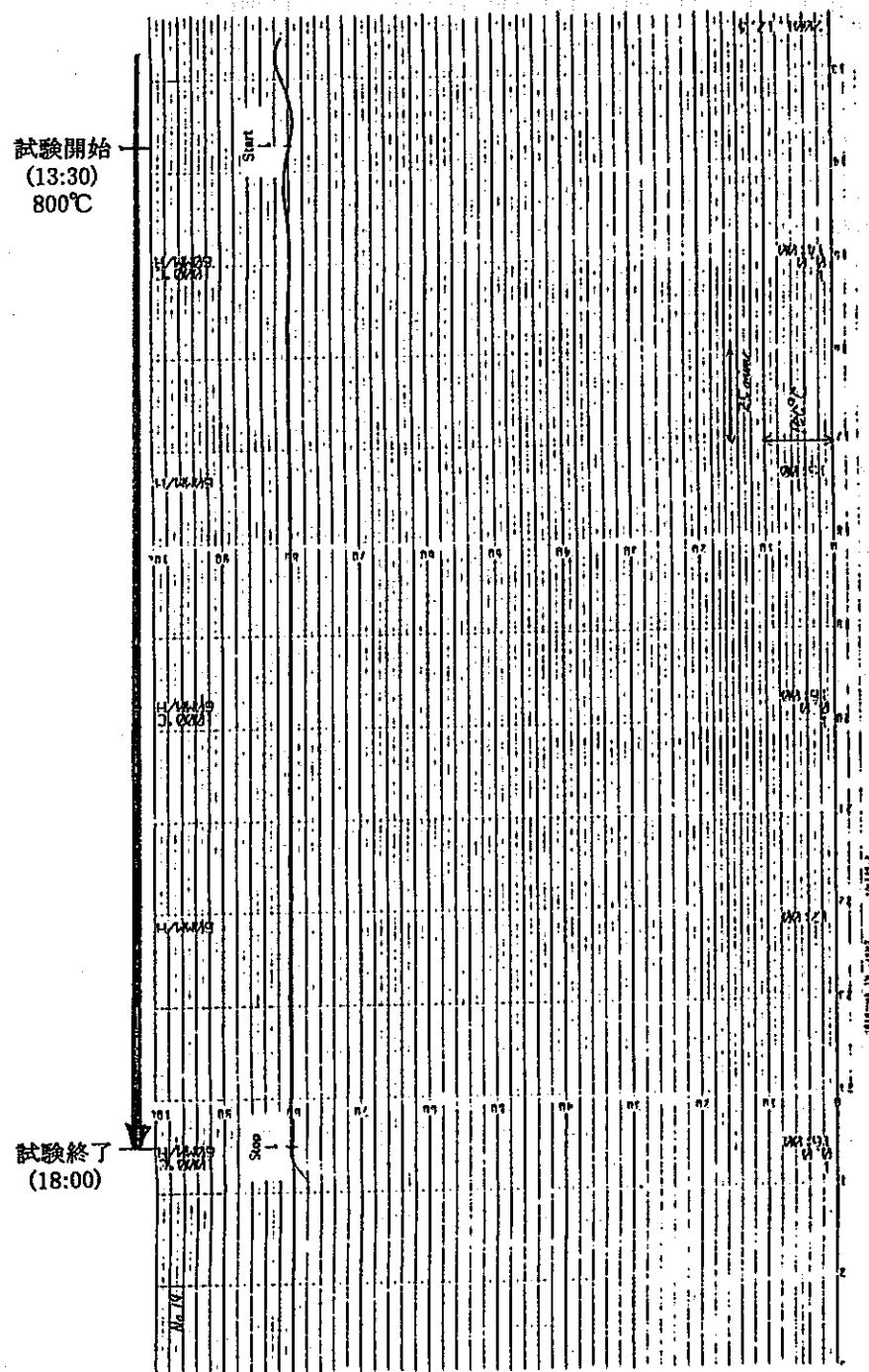


図4.8 試料温度モニタリングデータ

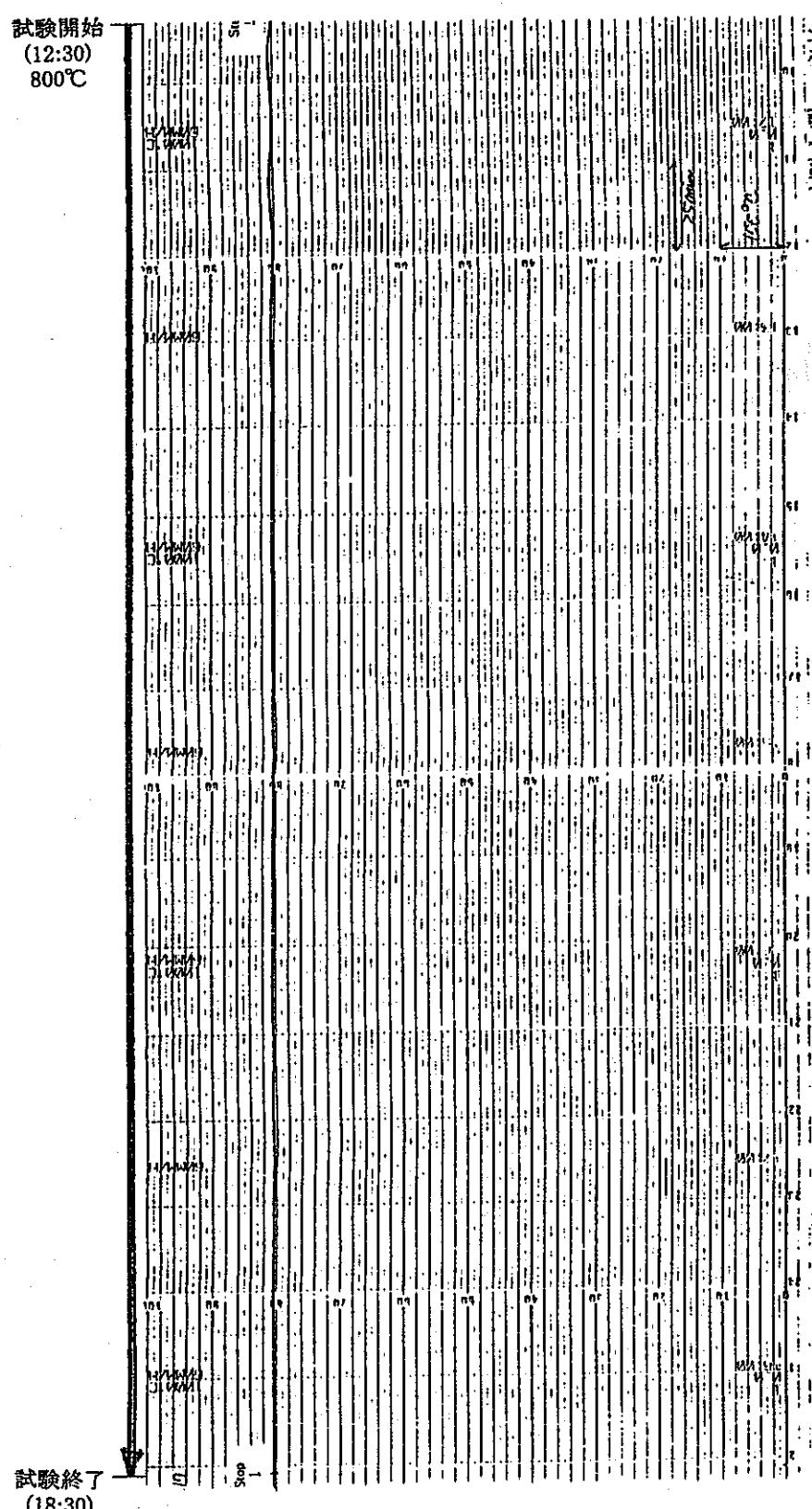


図4.9 試料温度モニタリングデータ

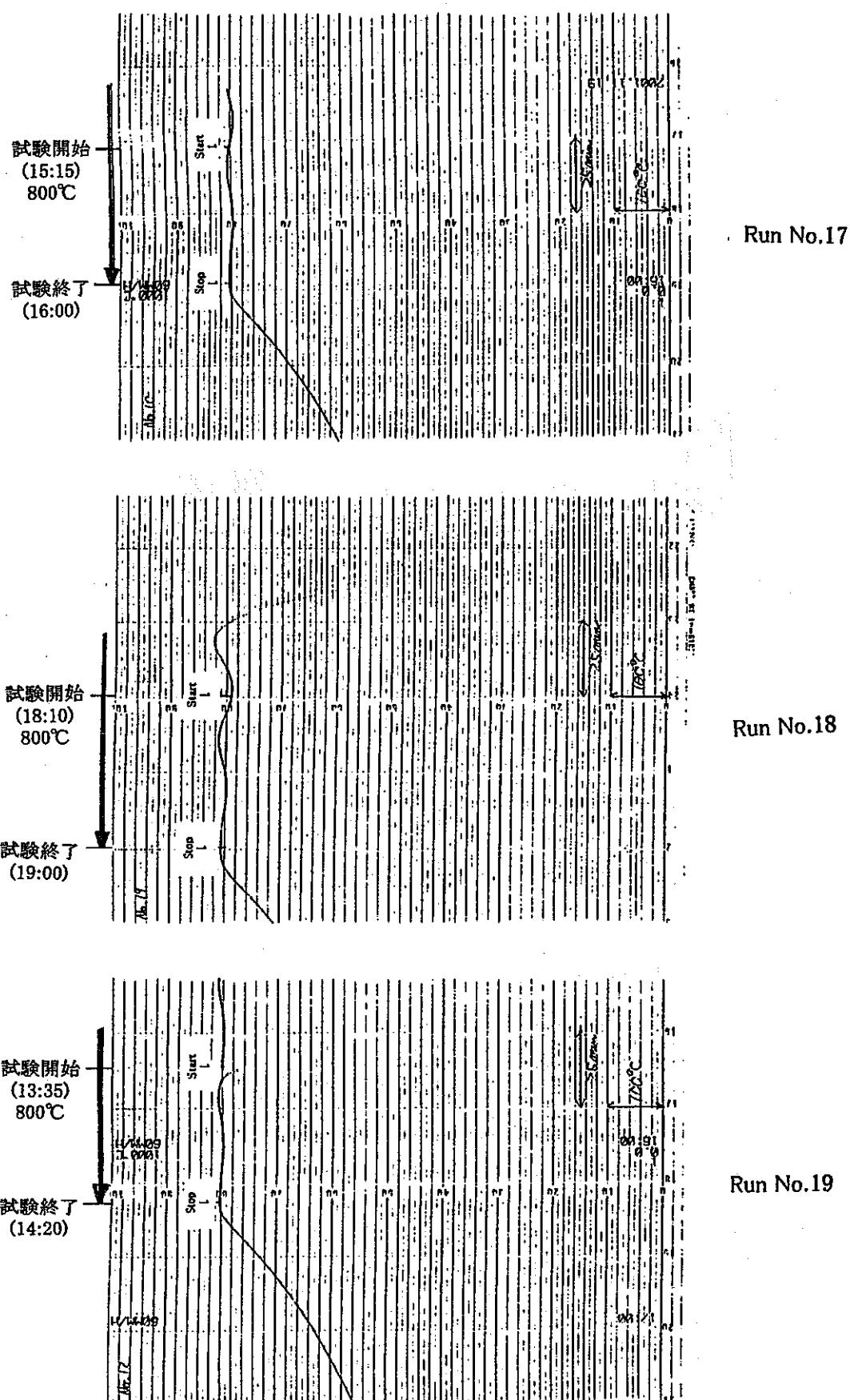


図4.10 試料温度モニタリングデータ

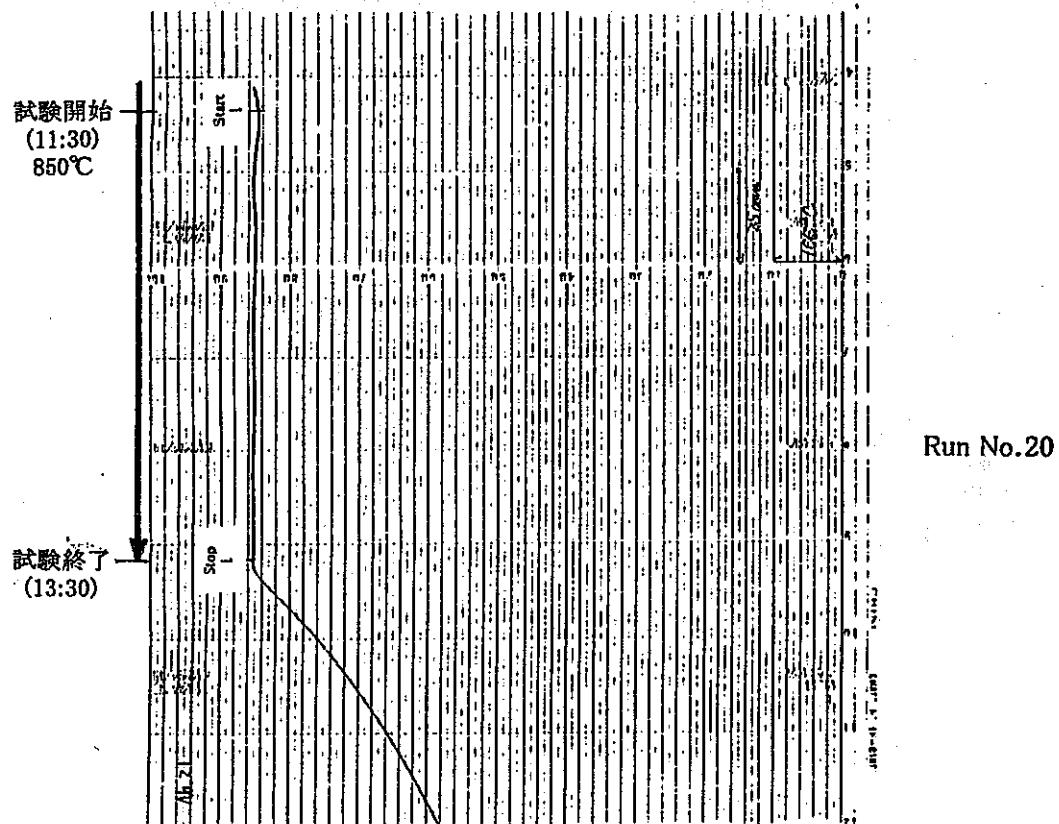


図4.11 試料温度モニタリングデータ

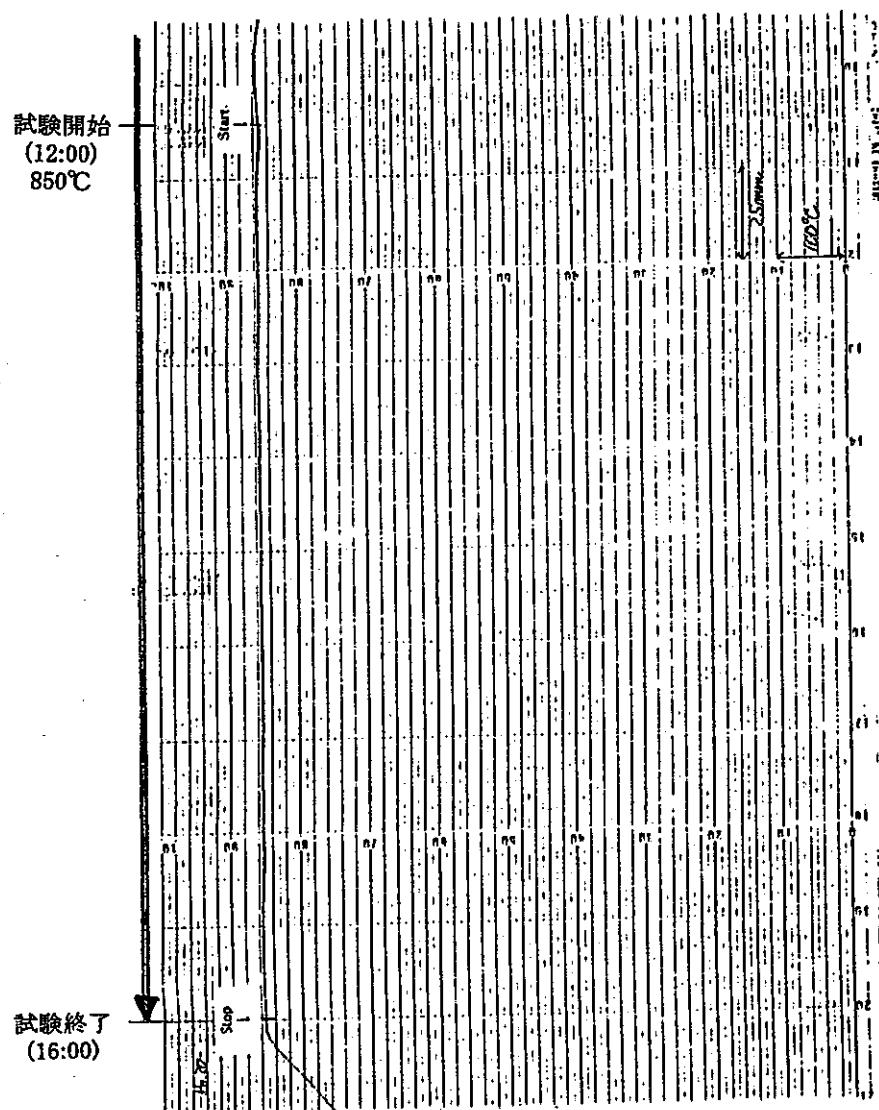


図4.12 試料温度モニタリングデータ

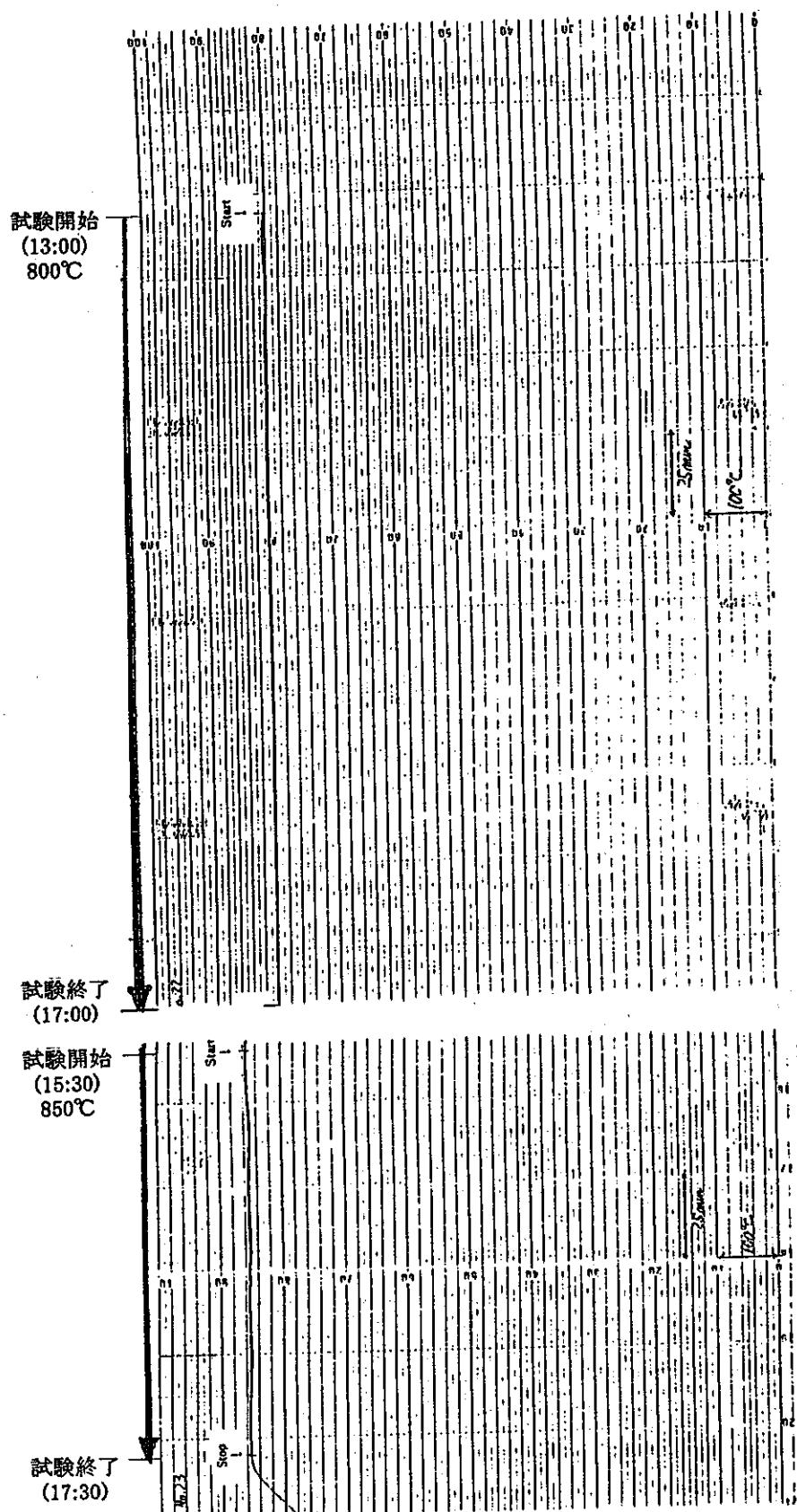


図4.13 試料温度モニタリングデータ

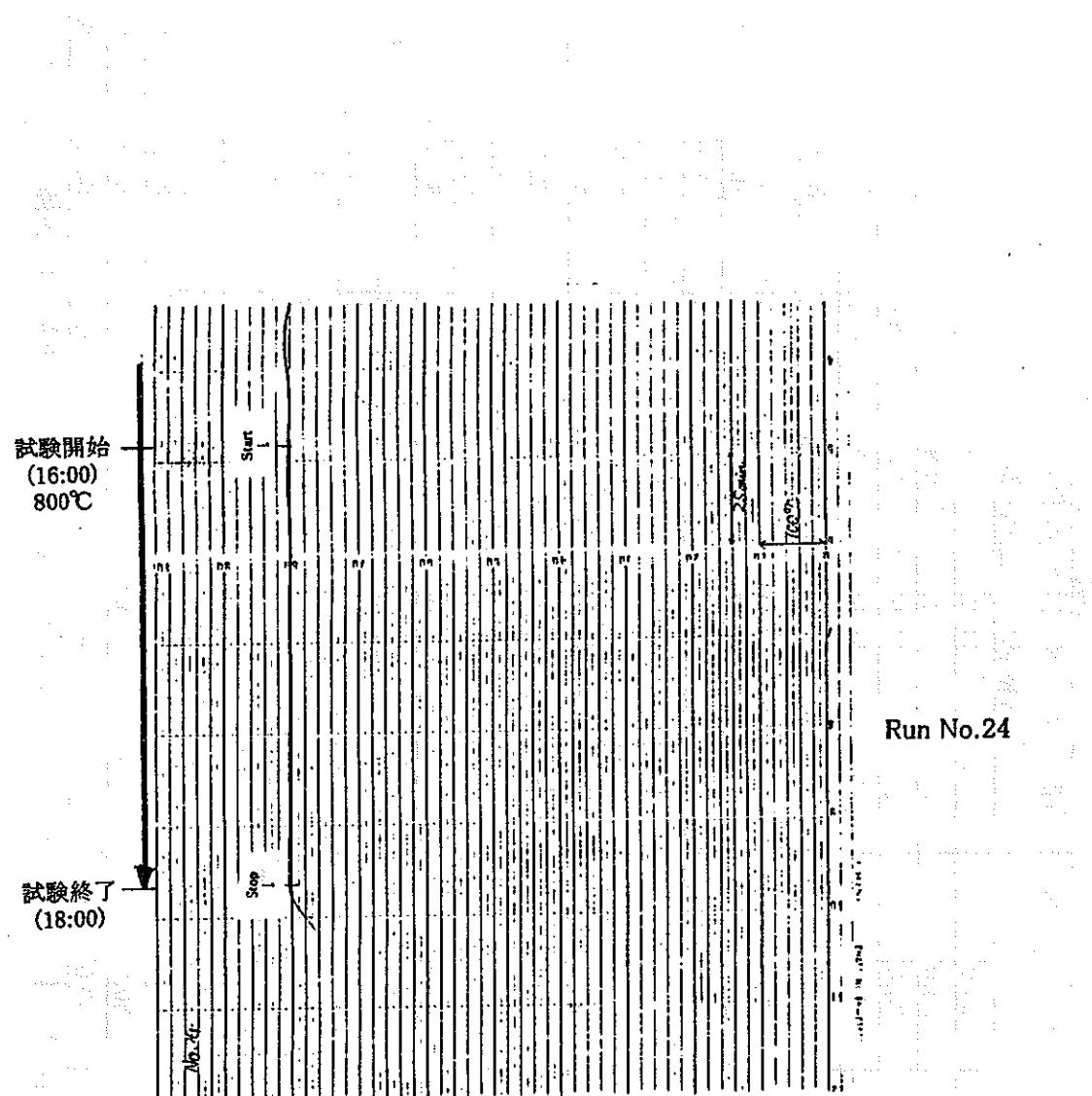


図4.14 試料温度モニタリングデータ

表4 試料重量測定結果

| Run No. | 装荷量(g) | | | | | | 試験後回収量(g) | | | タンマン管内 残留率 ^{*1} (%) | 試料 回収率 ^{*2} (%) |
|---------|--------|------|-------------------------------|--------------------------------|------|------|-----------|----------------|----------------|------------------------------------|--------------------------------|
| | NaCl | CsCl | B ₂ O ₃ | H ₃ BO ₃ | 小計 | HSL | 合計 | タンマン管内 残留試料 | タンマン管外 流出試料 | 合計 | |
| 1 | - | 12.3 | 12.7 | - | 25.0 | - | 25.0 | 20.8 | 2.0 | 22.8 | 83.2 |
| 2 | - | 12.3 | 12.7 | - | 25.0 | - | 25.0 | 22.1 | 0.8 | 22.9 | 88.4 |
| 3 | - | 8.15 | 16.9 | - | 25.0 | - | 25.0 | 22.0 | 1.6 | 23.6 | 88.0 |
| 4 | 1.88 | 10.8 | 12.3 | - | 25.0 | - | 25.0 | 20.5 | 3.2 | 23.7 | 82.0 |
| 5 | 1.26 | 7.25 | 16.5 | - | 25.0 | - | 25.0 | 21.1 | 2.0 | 23.1 | 84.4 |
| 6 | - | 8.81 | - | 16.2 | 25.0 | - | 25.0 | 1.2 | 8.0 | 9.2 | 4.8 |
| 7 | 1.88 | 10.8 | 12.3 | - | 25.0 | - | 25.0 | 20.0 | 3.4 | 23.4 | 80.0 |
| 8 | - | 8.81 | - | 16.2 | 25.0 | - | 25.0 | 0.8 | 8.6 | 9.4 | 3.2 |
| 9 | - | 8.15 | 16.9 | - | 25.0 | - | 25.0 | 22.2 | 1.9 | 24.1 | 88.8 |
| 10 | 1.26 | 7.25 | 16.5 | - | 25.0 | - | 25.0 | 20.9 | 2.3 | 23.2 | 83.6 |
| 11 | - | 12.3 | 12.7 | - | 25.0 | - | 25.0 | 20.5 | 3.6 | 24.1 | 82.0 |
| 12 | - | 8.15 | 16.9 | - | 25.0 | - | 25.0 | 21.7 | 2.2 | 23.9 | 86.8 |
| 13 | 1.88 | 10.8 | 12.3 | - | 25.0 | - | 25.0 | 21.2 | 4.5 | 25.7 | 84.8 |
| 14 | 1.26 | 7.25 | 16.5 | - | 25.0 | - | 25.0 | 20.3 | 3.1 | 23.4 | 81.2 |
| 15 | - | 12.3 | 12.7 | - | 25.0 | - | 25.0 | 21.0 | 4.2 | 25.2 | 84.0 |
| 16 | 1.88 | 10.8 | 12.3 | - | 25.0 | - | 25.0 | 21.7 | 5.2 | 26.9 | 86.8 |
| 17 | - | 6.15 | 6.35 | - | 12.5 | 17.0 | 29.5 | 25.9 | 0.2 | 26.1 | 87.7 |
| 18 | 0.81 | 4.64 | 5.28 | - | 10.7 | 19.3 | 30.0 | 25.3 | 0.3 | 25.6 | 84.3 |
| 19 | - | 6.15 | 6.35 | - | 12.5 | 17.0 | 29.5 | 23.3 | 0.2 | 23.5 | 78.9 |
| 20 | 1.88 | 10.8 | 12.3 | - | 25.0 | - | 25.0 | 21.8 | 3.1 | 24.9 | 87.2 |
| 21 | 3.76 | 21.6 | 24.6 | - | 50.0 | - | 50.0 | 44.2 | 6.8 | 51.0 | 88.4 |
| 22 | 3.76 | 21.6 | 24.6 | - | 50.0 | - | 50.0 | 43.8 | 8.0 | 51.8 | 87.6 |
| 23 | 3.76 | 21.6 | 24.6 | - | 50.0 | - | 50.0 | 44.0 | 4.8 | 48.8 | 88.0 |
| 24 | 3.76 | 21.6 | 24.6 | - | 50.0 | - | 50.0 | 44.0 | 5.7 | 49.7 | 88.0 |
| | | | | | | | | | | | 99.4 |

注) *1、2:タンマン管内残留率、試料回収率は塩化物からの酸化物転換による質量変化は考慮せず重量により評価

表5.1 処理試料成分含有量測定結果

<①CsCl-B₂O₃ Cs:B=1:5条件>

| Run No. | 成分 | 処理前 ^{*1} | | | 処理後(タンマン管内残留試料) | | | |
|---------|----|-------------------|------|----------|-----------------|--------------|--------|-----------|
| | | 含有率 (wt%) | 装荷量 | | 含有率 (wt%) | 試料回収量 (g) | 成分量 | |
| | | | (g) | (mol) | | | (g) | (mol) |
| 2 | Cs | 38.7 | 9.67 | 7.30E-02 | 43.9 | 22.1 | 9.70 | 7.32E-02 |
| | B | 15.8 | 3.95 | 3.65E-01 | 17.4 | | 3.83 | 3.55E-01 |
| | Cl | 10.3 | 2.59 | 7.30E-02 | 4.87 | | 1.08 | 3.03E-02 |
| 1 | Cs | 38.7 | 9.68 | 7.30E-02 | 44.5 | 20.8 | 9.26 | 6.99E-02 |
| | B | 15.8 | 3.95 | 3.65E-01 | 17.3 | | 3.59 | 3.32E-01 |
| | Cl | 10.4 | 2.59 | 7.30E-02 | 1.05 | | 0.22 | 6.18E-03 |
| 11 | Cs | 38.7 | 9.68 | 7.30E-02 | 40.6 | 20.5 | 8.32 | 6.28E-02 |
| | B | 15.8 | 3.95 | 3.65E-01 | 17.6 | | 3.61 | 3.34E-01 |
| | Cl | 10.4 | 2.59 | 7.30E-02 | 0.21 | | 0.04 | 1.21E-03 |
| 15 | Cs | 38.7 | 9.67 | 7.30E-02 | 38.8 | 21.0 | 8.15 | 6.15E-02 |
| | B | 15.8 | 3.95 | 3.65E-01 | 15.1 | | 3.18 | 2.94E-01 |
| | Cl | 10.4 | 2.59 | 7.30E-02 | <0.01 | | <0.002 | <5.70E-05 |

<①CsCl-B₂O₃ Cs:B=1:10条件>

| Run No. | 成分 | 処理前 ^{*1} | | | 処理後(タンマン管内残留試料) | | | |
|---------|----|-------------------|------|----------|-----------------|--------------|--------|-----------|
| | | 含有率 (wt%) | 装荷量 | | 含有率 (wt%) | 試料回収量 (g) | 成分量 | |
| | | | (g) | (mol) | | | (g) | (mol) |
| 3 | Cs | 25.6 | 6.41 | 4.84E-02 | 27.8 | 22.0 | 6.12 | 4.62E-02 |
| | B | 20.9 | 5.23 | 4.84E-01 | 22.9 | | 5.03 | 4.66E-01 |
| | Cl | 6.86 | 1.72 | 4.84E-02 | 0.10 | | 0.02 | 6.05E-04 |
| 12 | Cs | 25.6 | 6.41 | 4.84E-02 | 28.6 | 21.7 | 6.20 | 4.68E-02 |
| | B | 20.9 | 5.23 | 4.84E-01 | 20.1 | | 4.37 | 4.04E-01 |
| | Cl | 6.9 | 1.72 | 4.84E-02 | <0.01 | | <0.002 | <6.96E-05 |
| 9 | Cs | 25.6 | 6.41 | 4.84E-02 | 29.0 | 22.2 | 6.44 | 4.86E-02 |
| | B | 20.9 | 5.23 | 4.84E-01 | 18.9 | | 4.19 | 3.88E-01 |
| | Cl | 6.86 | 1.72 | 4.84E-02 | <0.01 | | <0.003 | <7.83E-05 |

注) * 1:処理前含有量は装荷重量より算出

表5.2 处理試料成分含有量測定結果

<②NaCl-CsCl-B₂O₃ Na:Cs:B=1:2:11条件>

| Run No. | 成分 | 処理前 ^{*1} | | 処理後(タンマン管内残留試料) | | | | |
|---------|----|-------------------|-------|-----------------|--------------|--------------|-------|----------|
| | | 含有率 (wt%) | 装荷量 | | 含有率 (wt%) | 試料回収量 (g) | 成分量 | |
| | | | (g) | (mol) | | | (g) | (mol) |
| 7 | Na | 2.95 | 0.74 | 3.21E-02 | 2.77 | 20.0 | 0.55 | 2.41E-02 |
| | Cs | 34.0 | 8.51 | 6.43E-02 | 37.6 | | 7.52 | 5.68E-02 |
| | B | 15.3 | 3.82 | 3.53E-01 | 13.1 | | 2.62 | 2.43E-01 |
| | Cl | 13.7 | 3.42 | 9.64E-02 | 4.19 | | 0.84 | 2.36E-02 |
| 4 | Na | 2.96 | 0.74 | 3.22E-02 | 3.29 | 22.5 | 0.74 | 3.22E-02 |
| | Cs | 34.1 | 8.52 | 6.43E-02 | 37.6 | | 8.46 | 6.38E-02 |
| | B | 15.3 | 3.82 | 3.53E-01 | 17.2 | | 3.86 | 3.58E-01 |
| | Cl | 13.7 | 3.42 | 9.64E-02 | 3.11 | | 0.70 | 1.97E-02 |
| 13 | Na | 2.95 | 0.74 | 3.21E-02 | 2.93 | 21.2 | 0.62 | 2.70E-02 |
| | Cs | 34.1 | 8.52 | 6.43E-02 | 37.0 | | 7.84 | 5.92E-02 |
| | B | 15.3 | 3.82 | 3.53E-01 | 13.6 | | 2.88 | 2.66E-01 |
| | Cl | 13.66 | 3.42 | 9.64E-02 | 1.39 | | 0.30 | 8.33E-03 |
| 16 | Na | 2.96 | 0.74 | 3.22E-02 | 3.03 | 21.7 | 0.66 | 2.86E-02 |
| | Cs | 34.1 | 8.51 | 6.43E-02 | 39.1 | | 8.48 | 6.40E-02 |
| | B | 15.3 | 3.82 | 3.53E-01 | 14.3 | | 3.11 | 2.87E-01 |
| | Cl | 13.67 | 3.42 | 9.64E-02 | 0.77 | | 0.17 | 4.69E-03 |
| 22 | Na | 5.91 | 1.48 | 6.43E-02 | 3.36 | 43.8 | 1.47 | 6.39E-02 |
| | Cs | 68.1 | 17.03 | 1.29E-01 | 38.3 | | 16.79 | 1.27E-01 |
| | B | 30.6 | 7.64 | 7.07E-01 | 15.4 | | 6.73 | 6.23E-01 |
| | Cl | 27.3 | 6.83 | 1.93E-01 | 2.44 | | 1.07 | 3.02E-02 |
| 24 | Na | 5.91 | 1.48 | 6.43E-02 | 3.31 | 44.0 | 1.46 | 6.33E-02 |
| | Cs | 68.1 | 17.03 | 1.29E-01 | 37.9 | | 16.66 | 1.26E-01 |
| | B | 30.6 | 7.64 | 7.07E-01 | 16.0 | | 7.03 | 6.50E-01 |
| | Cl | 27.3 | 6.83 | 1.93E-01 | 2.67 | | 1.18 | 3.32E-02 |
| 20 | Na | 2.96 | 0.74 | 3.22E-02 | 3.52 | 21.8 | 0.77 | 3.34E-02 |
| | Cs | 34.1 | 8.52 | 6.43E-02 | 36.9 | | 8.05 | 6.08E-02 |
| | B | 15.3 | 3.82 | 3.53E-01 | 16.2 | | 3.52 | 3.26E-01 |
| | Cl | 13.7 | 3.42 | 9.64E-02 | 2.65 | | 0.58 | 1.63E-02 |
| 21 | Na | 5.91 | 1.48 | 6.43E-02 | 3.44 | 44.2 | 1.52 | 6.61E-02 |
| | Cs | 68.1 | 17.03 | 1.29E-01 | 34.8 | | 15.40 | 1.16E-01 |
| | B | 30.6 | 7.64 | 7.07E-01 | 16.8 | | 7.42 | 6.86E-01 |
| | Cl | 27.3 | 6.83 | 1.93E-01 | 2.10 | | 0.93 | 2.62E-02 |
| 23 | Na | 5.91 | 1.48 | 6.43E-02 | 3.34 | 44.0 | 1.47 | 6.40E-02 |
| | Cs | 68.1 | 17.03 | 1.29E-01 | 39.6 | | 17.44 | 1.32E-01 |
| | B | 30.6 | 7.64 | 7.07E-01 | 16.1 | | 7.10 | 6.56E-01 |
| | Cl | 27.3 | 6.83 | 1.93E-01 | 1.39 | | 0.61 | 1.73E-02 |

注) *1:処理前含有量は装荷重量より算出

表5.3 処理試料成分含有量測定結果

<②NaCl-CsCl-B₂O₃ Na:Cs:B=1:2:22条件>

| Run No. | 成分 | 処理前 ^{*1} | | | 処理後(タンマン管内残留試料) | | |
|---------|----|-------------------|------|----------|-----------------|--------------|------------------|
| | | 含有率 (wt%) | 装荷量 | | 含有率 (wt%) | 試料回収量 (g) | 成分量 (g) |
| | | | (g) | (mol) | | | (mol) |
| 10 | Na | 1.98 | 0.49 | 2.15E-02 | 2.08 | 20.9 | 0.43 1.89E-02 |
| | Cs | 22.8 | 5.71 | 4.31E-02 | 24.3 | | 5.08 3.83E-02 |
| | B | 20.5 | 5.12 | 4.74E-01 | 20.9 | | 4.36 4.03E-01 |
| | Cl | 9.15 | 2.29 | 6.46E-02 | 0.79 | | 0.17 4.67E-03 |
| 14 | Na | 1.98 | 0.50 | 2.15E-02 | 2.30 | 20.3 | 0.47 2.03E-02 |
| | Cs | 22.8 | 5.71 | 4.31E-02 | 25.0 | | 5.08 3.83E-02 |
| | B | 20.5 | 5.12 | 4.74E-01 | 20.3 | | 4.12 3.82E-01 |
| | Cl | 9.16 | 2.29 | 6.46E-02 | <0.01 | | <0.002 <5.96E-05 |
| 5 | Na | 1.98 | 0.50 | 2.15E-02 | 2.01 | 21.1 | 0.42 1.85E-02 |
| | Cs | 22.8 | 5.71 | 4.31E-02 | 24.2 | | 5.10 3.85E-02 |
| | B | 20.5 | 5.12 | 4.74E-01 | 19.9 | | 4.19 3.88E-01 |
| | Cl | 9.16 | 2.29 | 6.46E-02 | 0.56 | | 0.12 3.33E-03 |

<③CsCl-H₃BO₃ Cs:B=1:5条件>

| Run No. | 成分 | 処理前 ^{*1} | | | 処理後(タンマン管内残留試料) | | |
|---------|----|-------------------|------|----------|-----------------|--------------|----------------|
| | | 含有率 (wt%) | 装荷量 | | 含有率 (wt%) | 試料回収量 (g) | 成分量 (g) |
| | | | (g) | (mol) | | | (mol) |
| 6 | Cs | 27.7 | 6.94 | 5.23E-02 | 35.3 | 1.2 | 0.42 3.20E-03 |
| | B | 11.3 | 2.83 | 2.62E-01 | 13.4 | | 0.16 1.49E-02 |
| | Cl | 7.42 | 1.86 | 5.23E-02 | 1.92 | | 0.02 6.50E-04 |
| 8 | Cs | 27.7 | 6.94 | 5.24E-02 | 37.6 | 0.8 | 0.30 2.27E-03 |
| | B | 11.3 | 2.83 | 2.62E-01 | 12.4 | | 0.10 9.17E-03 |
| | Cl | 7.42 | 1.86 | 5.24E-02 | 0.45 | | 0.004 1.02E-04 |

注) *1:処理前含有量は装荷重量より算出

表5.4 处理試料成分含有量測定結果

<④CsCl-B₂O₃-HSL Cs:B:HSL=1:5:0.5条件>

| Run No. | 成分 | 処理前 ^{*1} | | | 処理後(タンマン管内残留試料) | | |
|---------|----|-------------------|------|----------|-----------------|----------------------------|------------------|
| | | 含有率 (wt%) | 装荷量 | | 含有率 (wt%) | 試料回収量 ^{*2} (g) | 成分量 (g) (mol) |
| | | | (g) | (mol) | | | |
| 17 | Na | 0.00 | 0.00 | 0.00E+00 | 13.78 | (25.9) | 2.21 9.59E-02 |
| | Cs | 19.3 | 4.84 | 3.65E-02 | 11.4 | | 1.83 1.38E-02 |
| | B | 7.9 | 1.97 | 1.83E-01 | 10.2 | | 1.64 1.51E-01 |
| | Cl | 5.2 | 1.29 | 3.65E-02 | 6.93 | | 1.11 3.13E-02 |
| 19 | Na | 0.00 | 0.00 | 0.00E+00 | 9.24 | (23.3) | 1.94 8.43E-02 |
| | Cs | 19.3 | 4.84 | 3.65E-02 | 16.5 | | 3.47 2.62E-02 |
| | B | 7.9 | 1.97 | 1.83E-01 | 8.3 | | 1.74 1.61E-01 |
| | Cl | 5.2 | 1.29 | 3.65E-02 | 3.30 | | 0.69 1.95E-02 |

<⑤NaCl-CsCl-B₂O₃-HSL Na:Cs:B:HSL=1:2:11:1.5条件>

| Run No. | 成分 | 処理前 ^{*1} | | | 処理後(タンマン管内残留試料) | | |
|---------|----|-------------------|------|----------|-----------------|----------------------------|------------------|
| | | 含有率 (wt%) | 装荷量 | | 含有率 (wt%) | 試料回収量 ^{*2} (g) | 成分量 (g) (mol) |
| | | | (g) | (mol) | | | |
| 18 | Na | 1.27 | 0.32 | 1.38E-02 | 10.22 | (25.3) | 2.56 1.11E-01 |
| | Cs | 14.6 | 3.65 | 2.76E-02 | 13.4 | | 3.37 2.54E-02 |
| | B | 6.6 | 1.64 | 1.52E-01 | 5.8 | | 1.45 1.34E-01 |
| | Cl | 5.86 | 1.47 | 4.14E-02 | 4.55 | | 1.14 3.22E-02 |

注) *1:処理前含有量は装荷重量より算出

*2:試料回収量 カッコ内 HSLを含む試料回収量、カッコ無し 分析対象試料量(希硫酸溶解量)

表6 タンマン管流出試料成分含有量測定結果

| Run No. | 成分 | 含有率 (wt%) | 試料 回収量 (g) | 成分量 | |
|---------|-----|--------------|------------------|-------|----------|
| | | | | (g) | (mol) |
| 23 | Ni | 30.0 | 4.8 | 1.44 | 2.46E-02 |
| | Fe | 3.5 | | 0.17 | 3.03E-03 |
| | Cr | 4.3 | | 0.20 | 3.93E-03 |
| | Na | 0.03 | | 0.001 | 5.80E-05 |
| | Cs | 1.3 | | 0.06 | 4.88E-04 |
| | B | 0.38 | | 0.02 | 1.68E-03 |
| | Cl | 37.0 | | 1.78 | 5.01E-02 |
| | SS* | 6.3 | | 0.30 | - |

注) *SS:試料を希硫酸に加熱溶解した時の不溶解残査

表7 試料成分含有量測定からの酸化物転換率評価結果

| Run No. | 試験条件 | | | | 装荷 塩化物量 :a (mol) | 処理試料 | | | 塩化物 減少率 :(1-d/a)×100 (%) | 生成 酸化物量 :b-d (mol) | 酸化物 転換率 :(b-d)/a×100 (%) | 酸化物/B モル比 :(b-d)/c |
|---------|---------------------------|--------------|--------------------|--------------------------|---------------------------|------------------------|-------------------|--------------------|-----------------------------------|-----------------------------|-----------------------------------|--------------------------|
| | 試料* Na:Cs:B:HSL モル比 | 処理温度 (°C) | 水分 付加量 (倍当量) | 水分ガス 通気流量 (NL/min) | | Na量+Cs量 :b (mol) | B量 :c (mol) | Cl量 :d (mol) | | | | |
| 2 | ① 0:1:5:0 | 750 | 10 | 0.162 | 7.30E-02 | 7.32E-02 | 3.55E-01 | 3.03E-02 | 58.4 | 4.28E-02 | 58.7 | 0.12 |
| 1 | | 800 | 10 | | 7.30E-02 | 6.99E-02 | 3.32E-01 | 6.18E-03 | 91.5 | 6.37E-02 | 87.2 | 0.19 |
| 11 | | 800 | 20 | | 7.30E-02 | 6.28E-02 | 3.34E-01 | 1.21E-03 | 98.3 | 6.16E-02 | 84.3 | 0.18 |
| 15 | | 800 | 30 | | 7.30E-02 | 6.15E-02 | 2.94E-01 | 0 | 100.0 | 6.15E-02 | 84.2 | 0.21 |
| 3 | | 750 | 10 | | 4.84E-02 | 4.62E-02 | 4.66E-01 | 6.05E-04 | 98.7 | 4.56E-02 | 94.2 | 0.10 |
| 12 | | 750 | 20 | | 4.84E-02 | 4.68E-02 | 4.04E-01 | 0 | 100.0 | 4.68E-02 | 96.7 | 0.12 |
| 9 | | 800 | 10 | | 4.84E-02 | 4.86E-02 | 3.88E-01 | 0 | 100.0 | 4.86E-02 | 100.4 | 0.13 |
| 7 | | 750 | 10 | | 9.64E-02 | 8.09E-02 | 2.43E-01 | 2.36E-02 | 75.5 | 5.73E-02 | 59.4 | 0.24 |
| 4 | | 800 | 10 | | 9.64E-02 | 9.61E-02 | 3.58E-01 | 1.97E-02 | 79.5 | 7.63E-02 | 79.2 | 0.21 |
| 13 | | 800 | 20 | | 9.64E-02 | 8.62E-02 | 2.66E-01 | 8.33E-03 | 91.4 | 7.79E-02 | 80.8 | 0.29 |
| 16 | ② 1:2:11:0 | 800 | 30 | | 9.64E-02 | 9.26E-02 | 2.87E-01 | 4.69E-03 | 95.1 | 8.80E-02 | 91.2 | 0.31 |
| 22 | | 800 | 10 | | 1.93E-01 | 1.91E-01 | 6.23E-01 | 3.02E-02 | 84.3 | 1.60E-01 | 83.2 | 0.26 |
| 24 | | 800 | 10 | | 1.93E-01 | 1.89E-01 | 6.50E-01 | 3.32E-02 | 82.8 | 1.56E-01 | 80.9 | 0.24 |
| 20 | | 850 | 10 | | 9.64E-02 | 9.41E-02 | 3.26E-01 | 1.63E-02 | 83.1 | 7.79E-02 | 80.8 | 0.24 |
| 21 | | 850 | 10 | | 1.93E-01 | 1.82E-01 | 6.86E-01 | 2.62E-02 | 86.4 | 1.56E-01 | 81.0 | 0.23 |
| 23 | | 850 | 10 | | 1.93E-01 | 1.96E-01 | 6.56E-01 | 1.73E-02 | 91.0 | 1.78E-01 | 92.5 | 0.27 |
| 10 | | 750 | 10 | 0.325 | 6.46E-02 | 5.73E-02 | 4.03E-01 | 4.67E-03 | 92.8 | 5.26E-02 | 81.4 | 0.13 |
| 14 | | 750 | 20 | | 6.46E-02 | 5.86E-02 | 3.82E-01 | 0 | 100.0 | 5.86E-02 | 90.7 | 0.15 |
| 5 | | 800 | 10 | | 6.46E-02 | 5.70E-02 | 3.88E-01 | 3.33E-03 | 94.8 | 5.37E-02 | 83.1 | 0.14 |
| 6 | | 750 | 10 | | 5.24E-02 | 3.20E-03 | 1.49E-02 | 6.50E-04 | 98.8 | 2.55E-03 | 4.9 | 0.17 |
| 8 | | 800 | 10 | | 5.24E-02 | 2.27E-03 | 9.17E-03 | 1.02E-04 | 99.8 | 2.17E-03 | 4.1 | 0.24 |
| 17 | | 800 | 10 | | 3.65E-02 | 1.10E-01 | 1.51E-01 | 3.13E-02 | 14.3 | 7.84E-02 | 214.8 | 0.52 |
| 19 | | 800 | 10 | | 3.65E-02 | 1.11E-01 | 1.61E-01 | 1.95E-02 | 46.5 | 9.10E-02 | 249.2 | 0.57 |
| 18 | | 800 | 10 | | 4.14E-02 | 1.37E-01 | 1.34E-01 | 3.22E-02 | 22.2 | 1.05E-01 | 253.1 | 0.78 |

注) * :試料 ①CsCl-B₂O₃、②NaCl-CsCl-B₂O₃、③CsCl-H₃BO₃④CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト(HSL)、⑤NaCl-CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト(HSL)

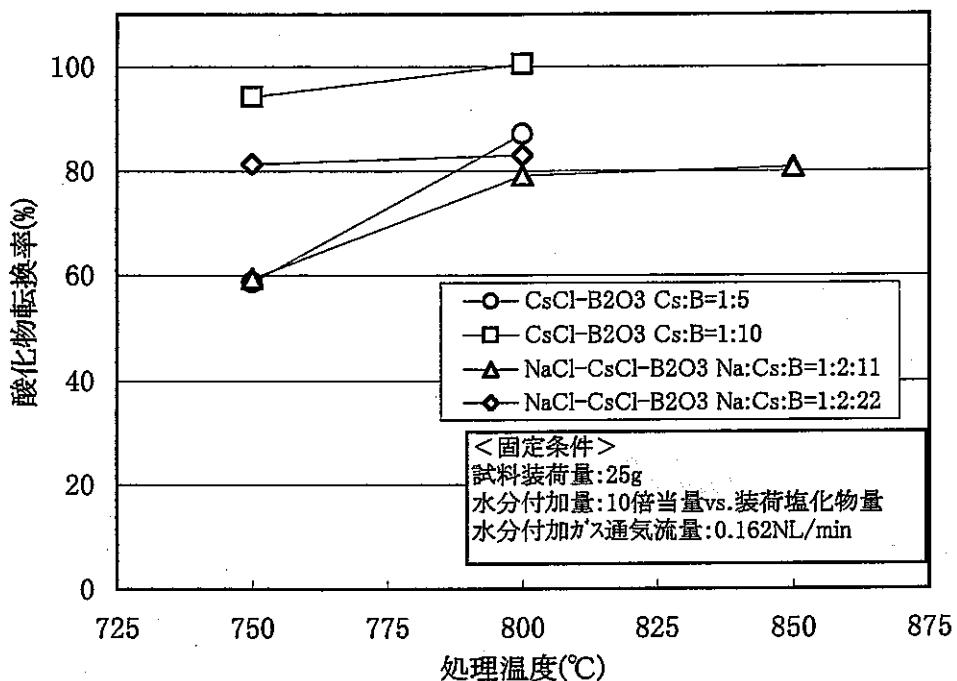


図5 処理温度と酸化物転換率の関係

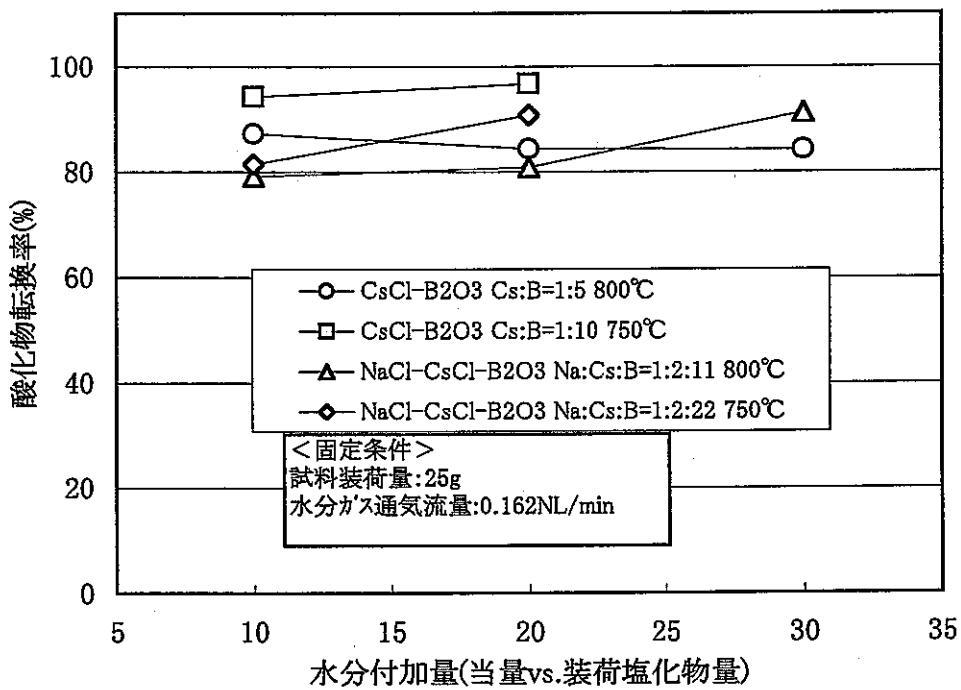


図6 水分付加量と酸化物転換率の関係

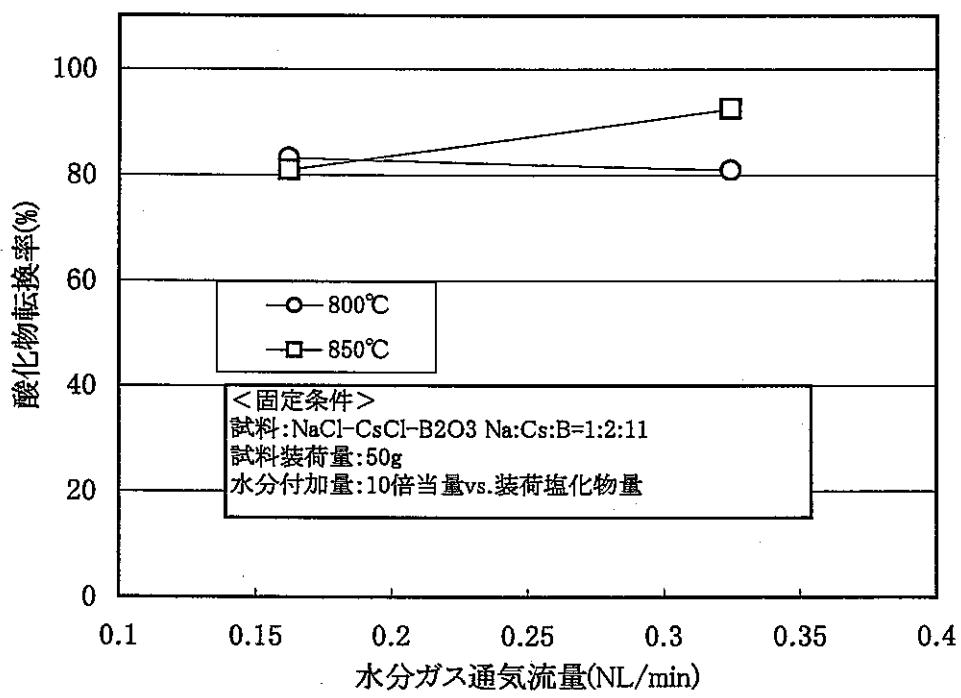
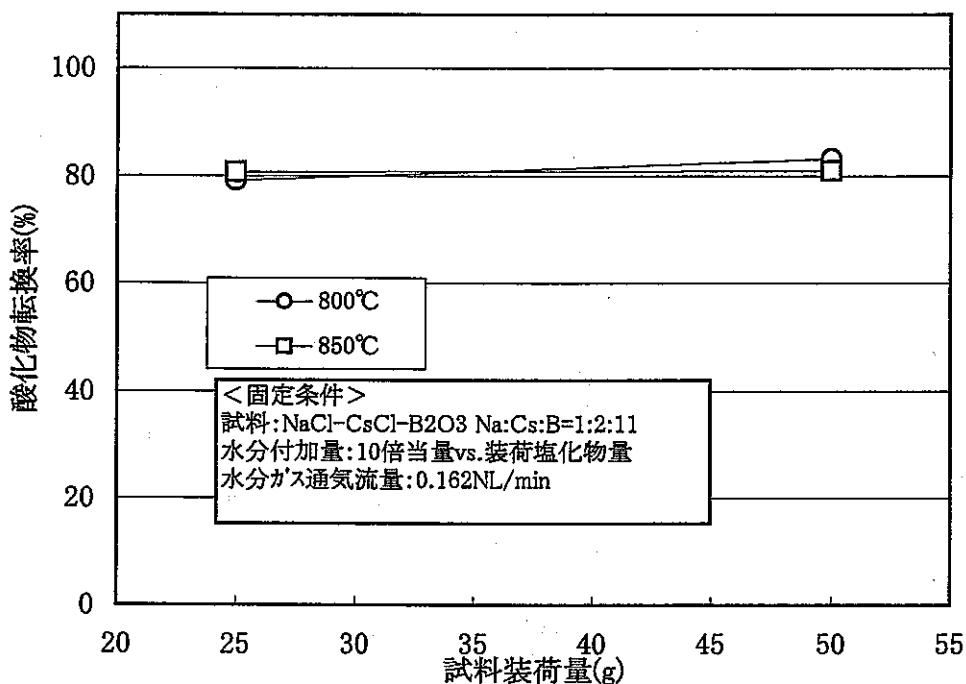


表8 化学形態測定結果

①CsCl-B₂O₃試料条件

| 試料 | Run No.2 処理試料 酸化物転換率58.7% | Run No.1 処理試料 酸化物転換率87.2% | Run No.9 処理試料 酸化物転換率100% |
|----------|---------------------------------|---------------------------------|--------------------------------|
| CsCl | +++ | + | - |
| Cs、Bの酸化物 | - | - | - |

②NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件

| 試料 | Run No.7 処理試料 酸化物転換率59.4% | Run No.23 処理試料 酸化物転換率92.5% |
|-------------|---------------------------------|----------------------------------|
| NaCl | + | - |
| CsCl | +++ | Tr. |
| Na、Cs、Bの酸化物 | - | - |

③CsCl-H₃BO₃試料条件

| 試料 | Run No.8 発泡噴出試料 |
|---------------------------------|--------------------|
| CsCl | ++++ |
| H ₃ BO ₃ | - |
| CsB ₅ O ₈ | +++ |

④CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト(HSL)試料条件

| 試料 | Run No.17 試料希硫酸溶解残渣 | Run No.19 処理試料 |
|---|------------------------|-------------------|
| CsCl | - | + |
| Cs、Bの酸化物 | - | - |
| ハイドロソーダライト Na ₈ Al ₆ Si ₆ O ₂₄ (OH) ₂ | - | - |
| ソーダライト Na ₈ Al ₆ Si ₆ O ₂₄ Cl ₂ | - | - |
| ネフェリン NaAlSiO ₄ | + | - |
| Na _{0.61} Al _{4.70} Si _{7.32} O ₂₀ (OH) ₄ | + | - |
| Al ₂ SiO ₅ | - | Tr.(?) |
| NaCl | + | + |

注)++++:非常に多い +++:多い ++:中程度 +:少量 Tr.:痕跡程度

?:微弱回折線検出 -:不検出

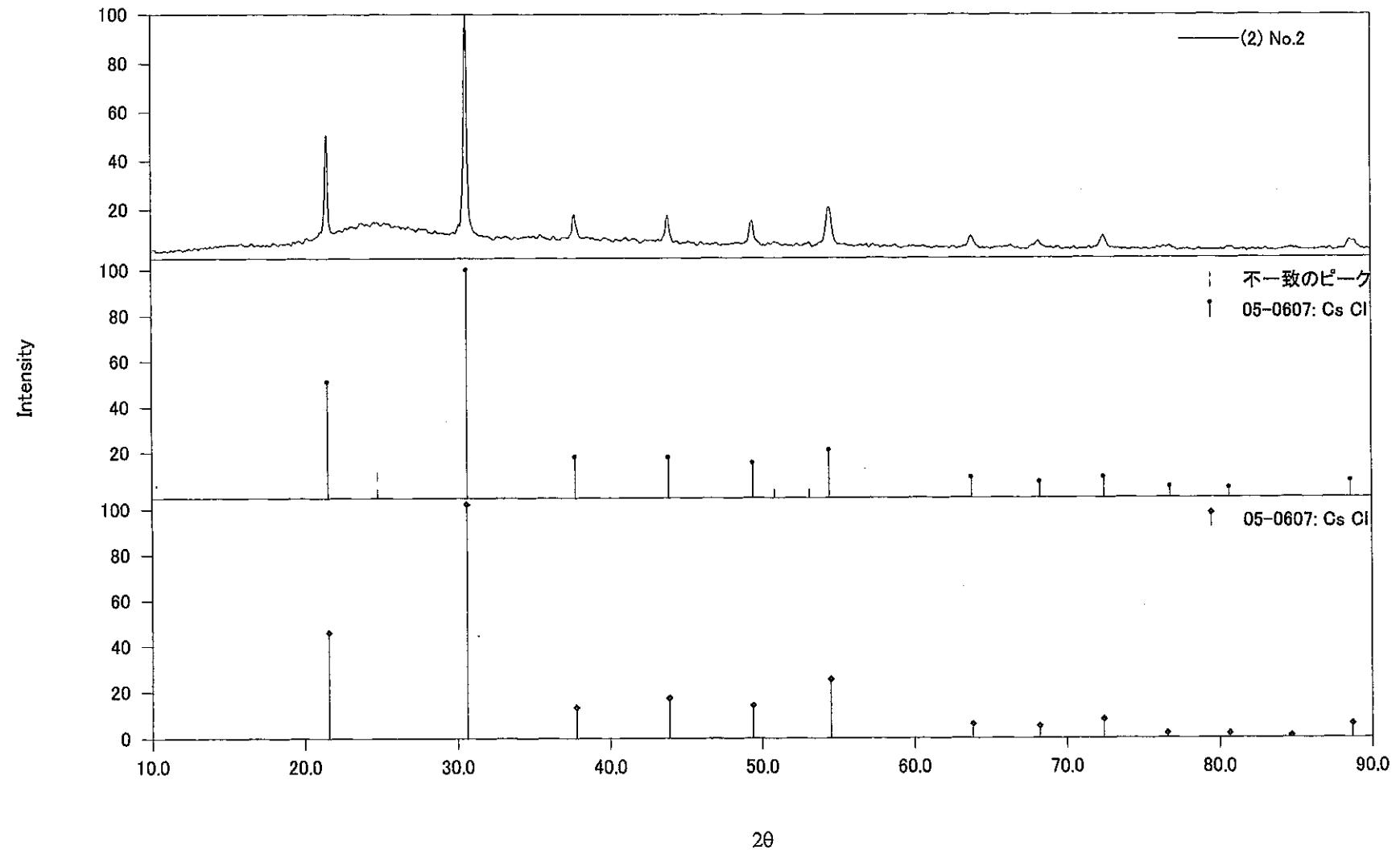
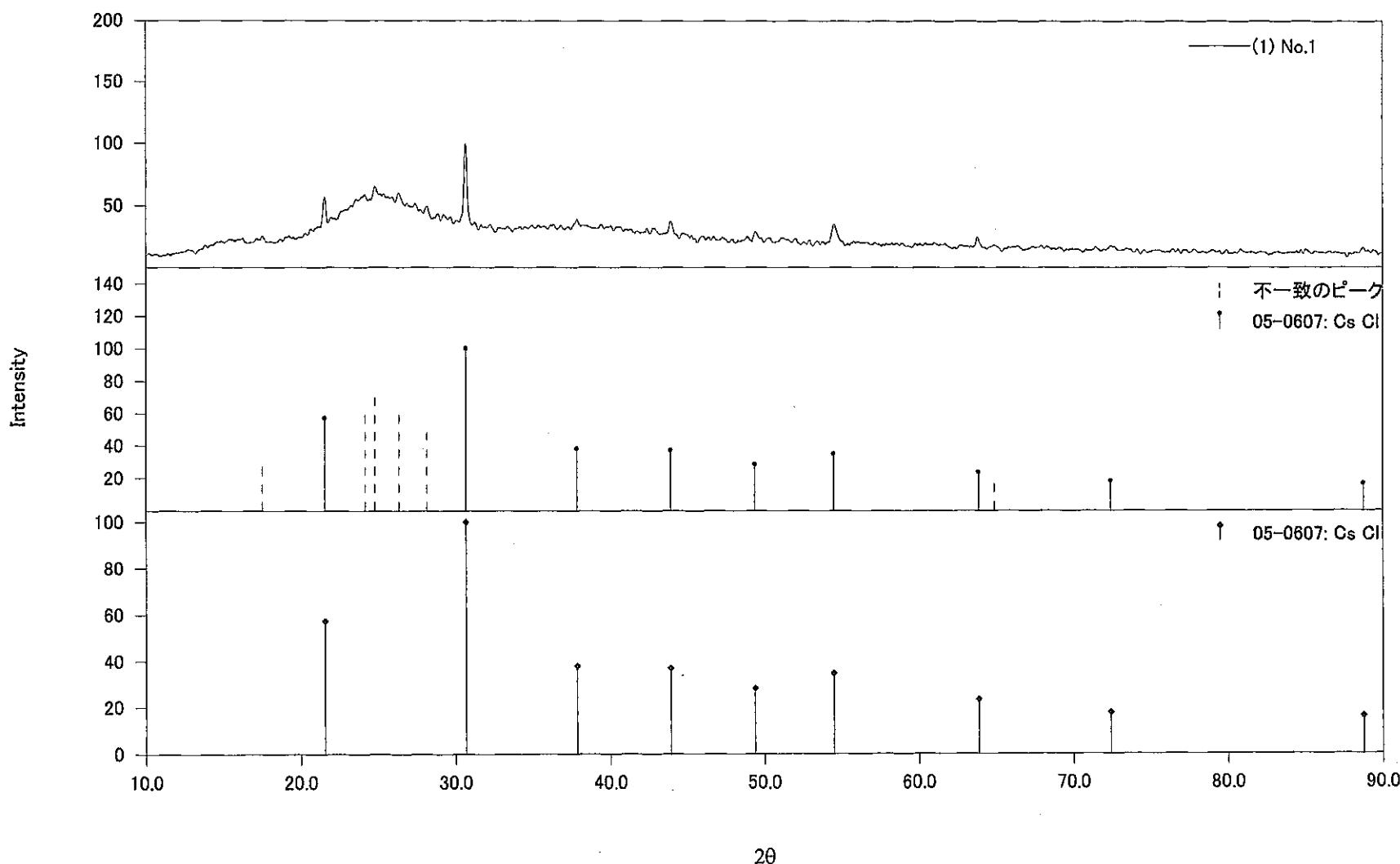


図9.1 CsCl-B₂O₃試料条件Run No.2処理試料X線回折スペクトル



20

図9.2 CsCl-B₂O₃試料条件Run No.1処理試料X線回折スペクトル

Intensity (Counts)

-44-

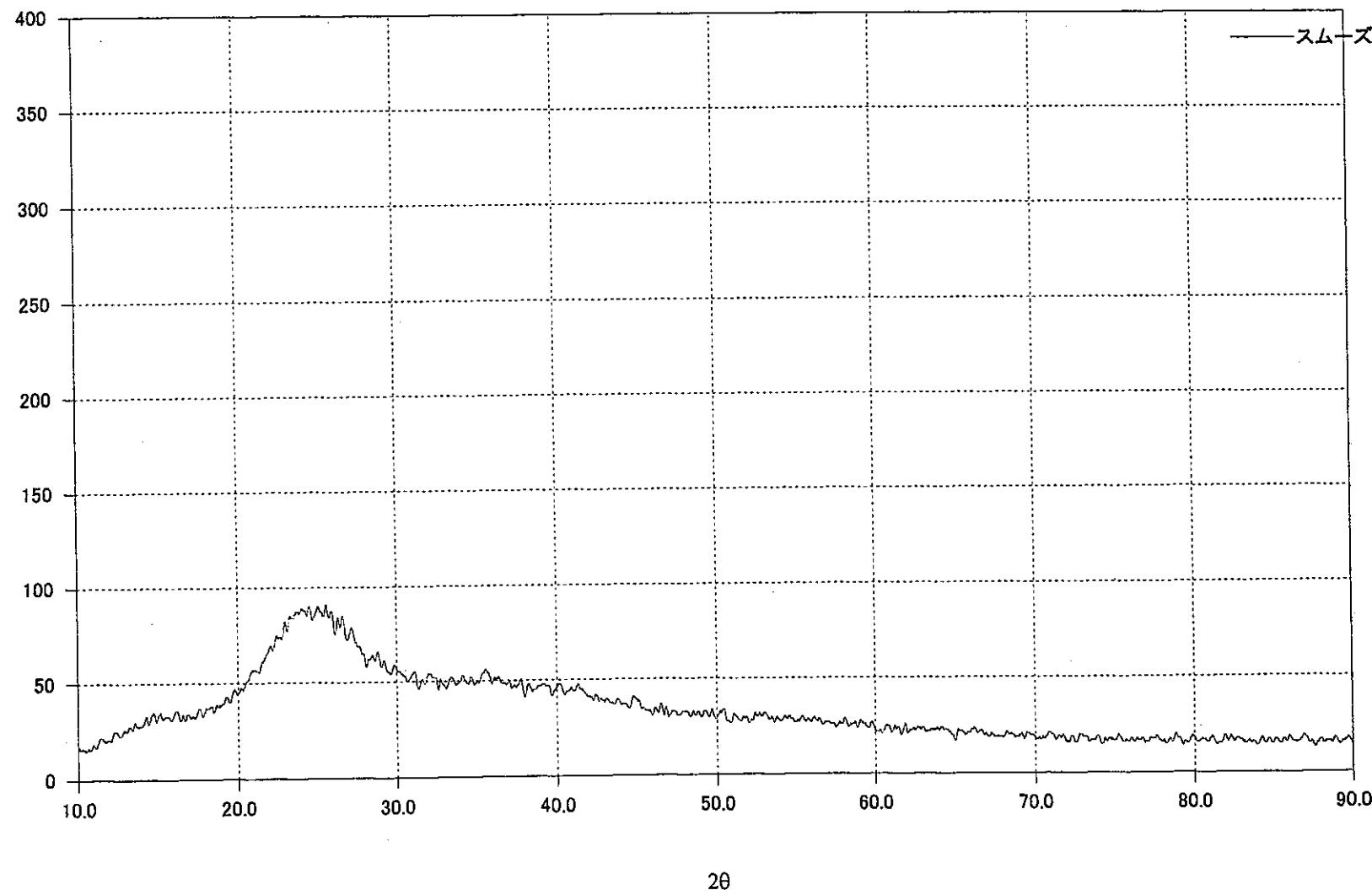


図9.3 CsCl-B₂O₃試料条件Run No.9処理試料X線回折スペクトル

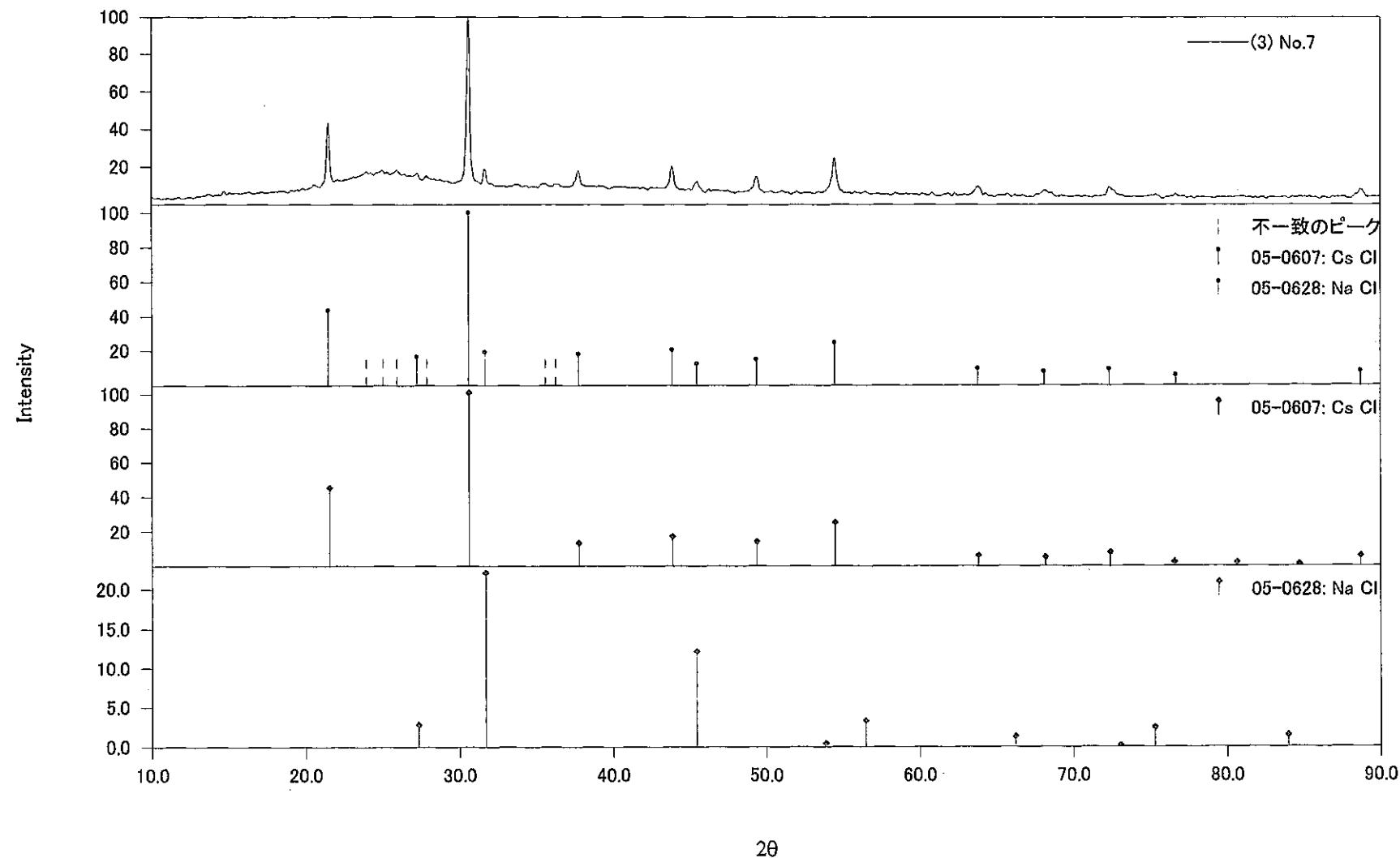


図9.4 NaCl-CsCl- B_2O_3 試料条件Run No.7処理試料X線回折スペクトル

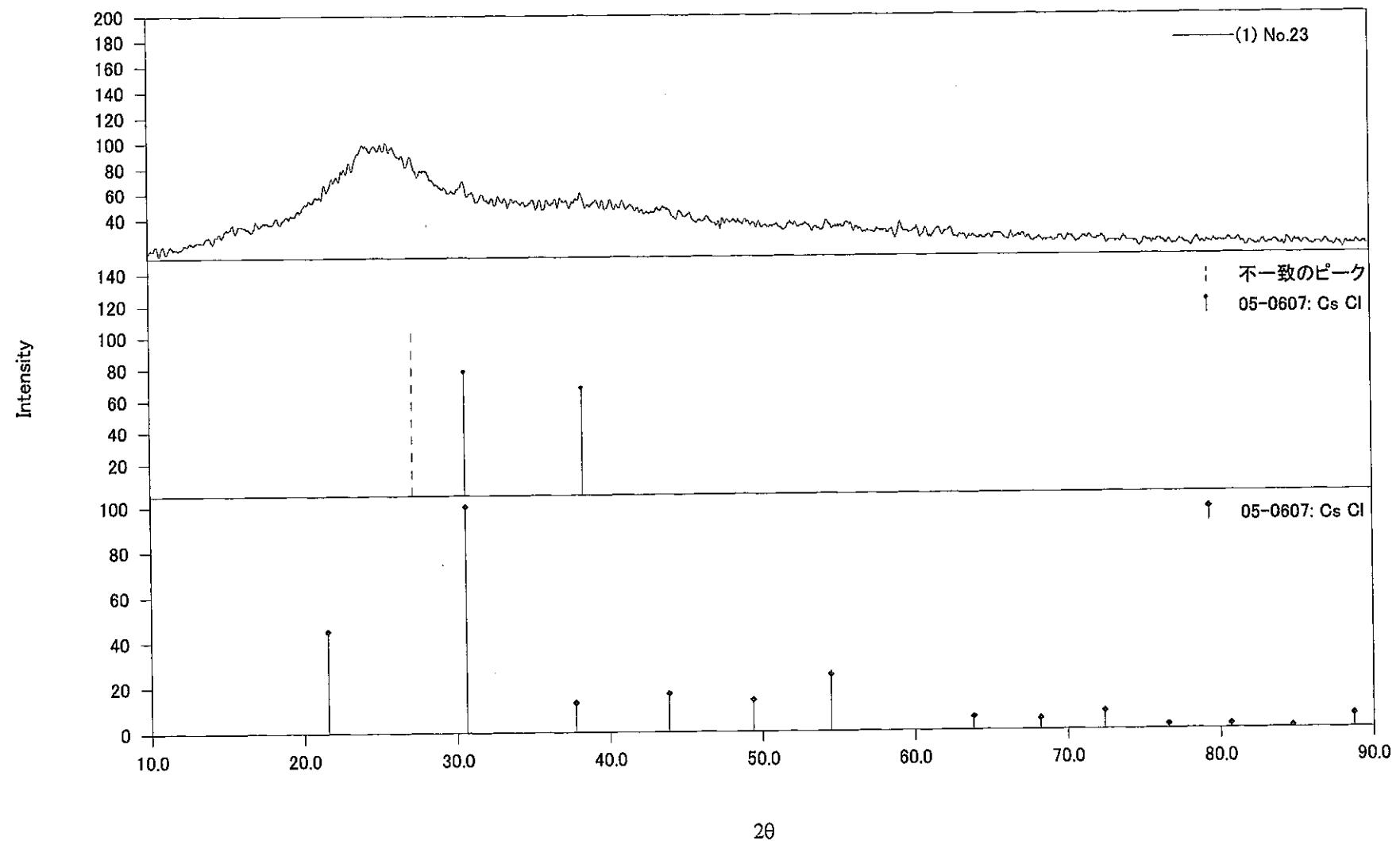


図9.5 NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件Run No.23処理試料X線回折スペクトル

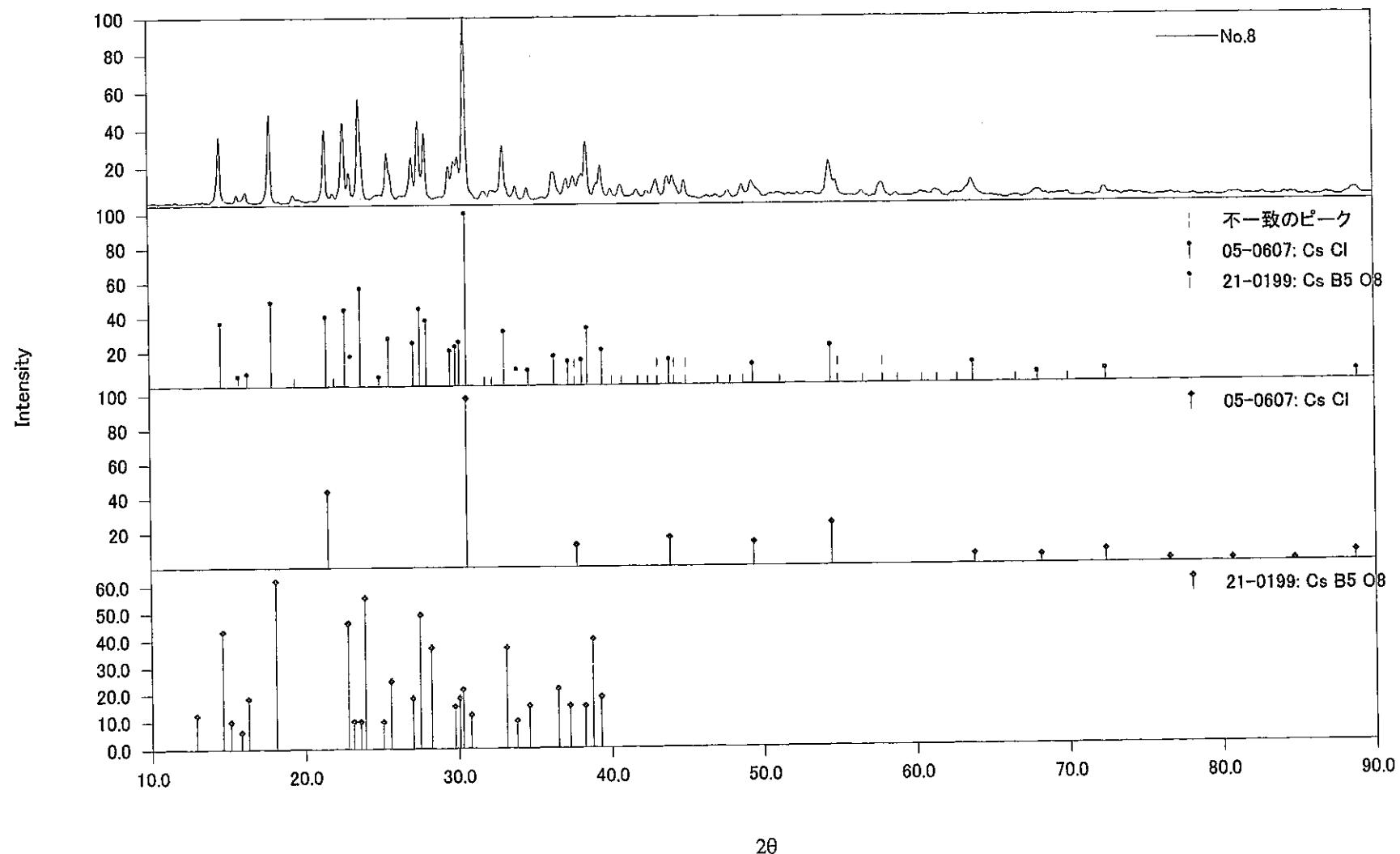


図9.6 CsCl-H₃BO₃試料条件Run No.8発泡噴出試料X線回折スペクトル

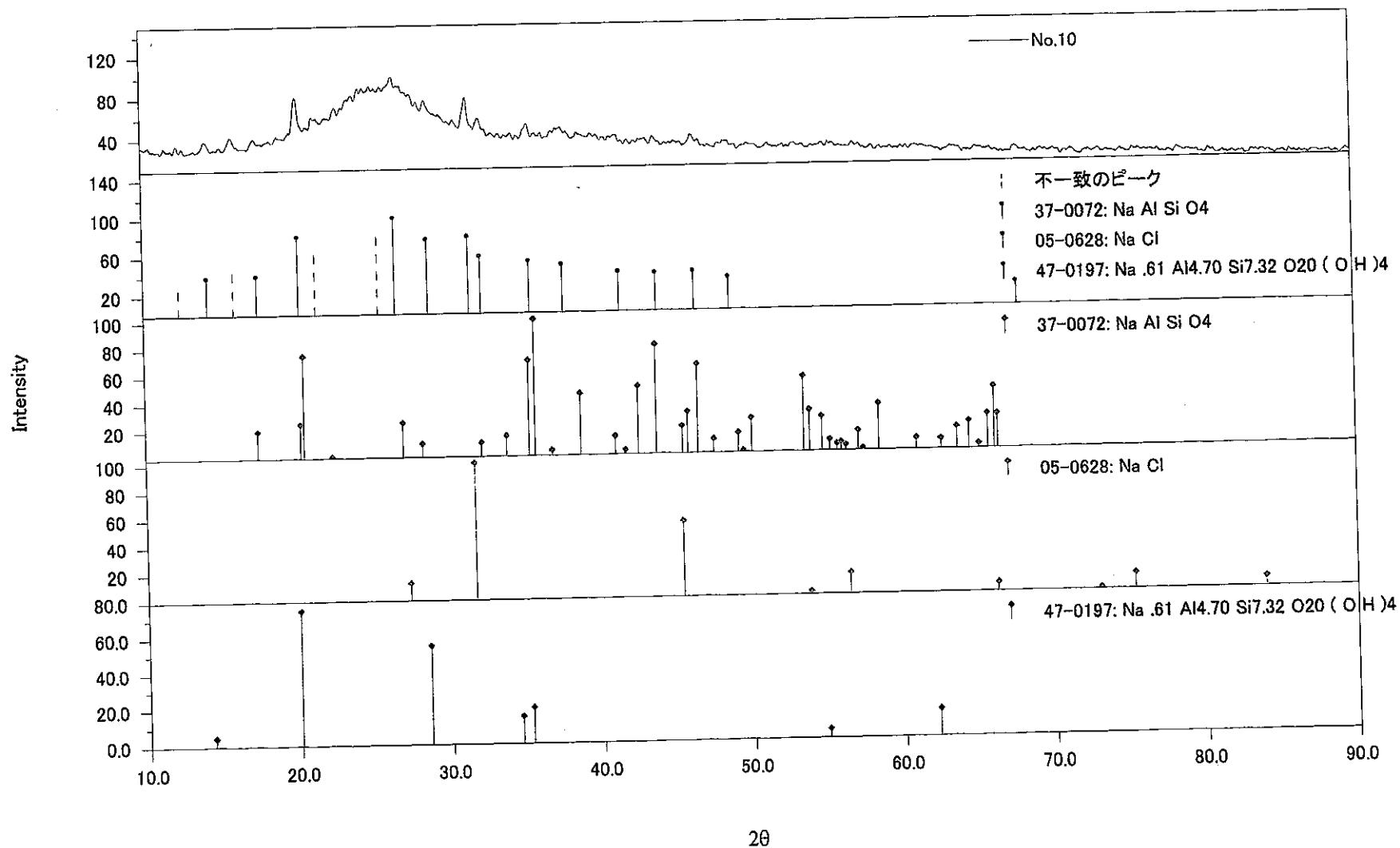


図9.7 CsCl-B₂O₃-HSL試料条件Run No.17試料希硫酸溶解残渣X線回折スペクトル

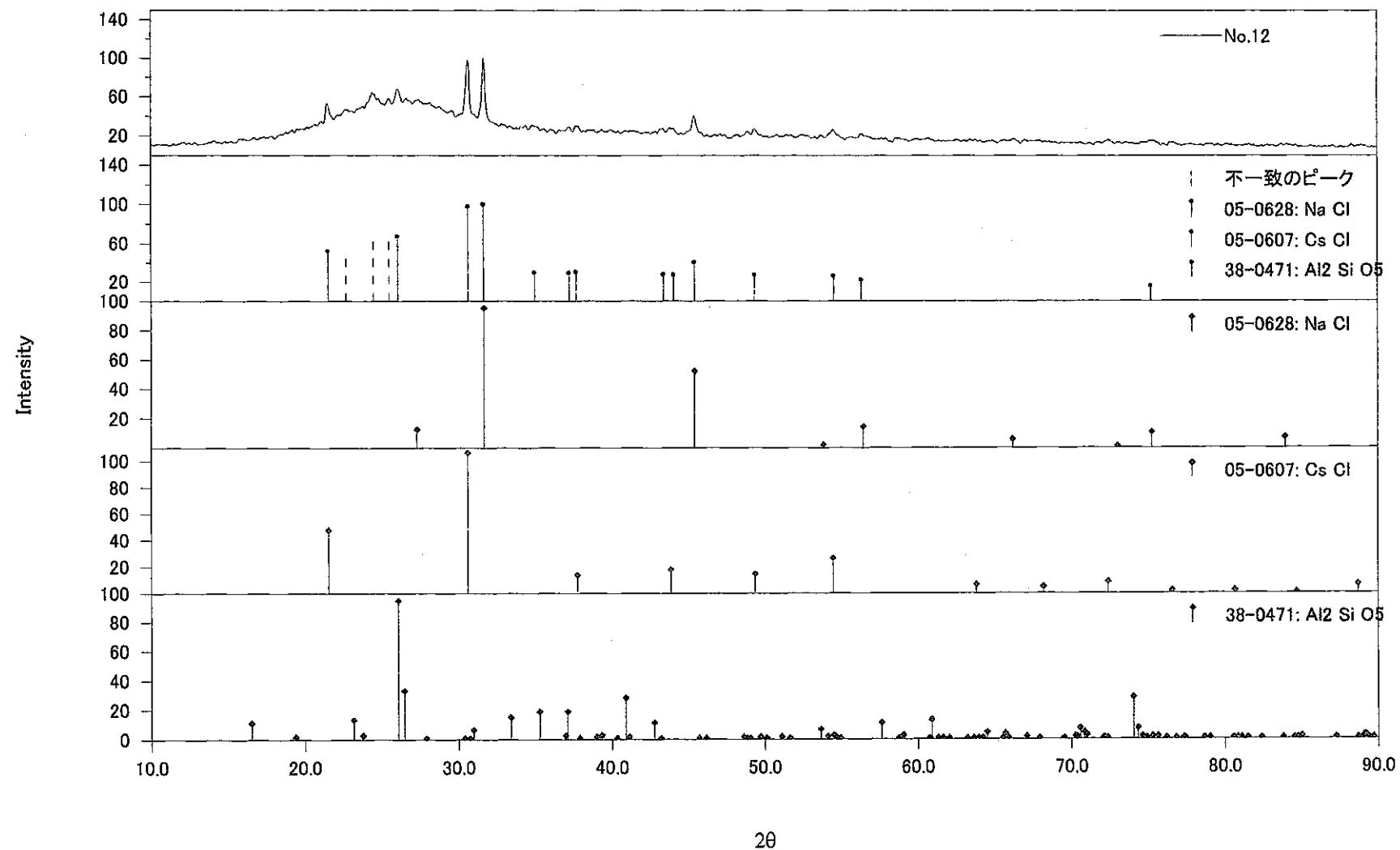


図9.8 CsCl-B₂O₃-HSL試料条件Run No.19処理試料X線回折スペクトル

表9.1 吸收液捕集成分測定結果

<①CsCl-B₂O₃ Cs:B=1:5条件>

| Run No. | HCl (mol) | Cl | | Cs | | B | |
|---------|-----------|----------|----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| | | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) |
| 2 | 2.08E-02 | 7.59E-01 | 2.14E-02 | <1.25E-04 | <9.43E-07 | <1.25E-04 | <1.16E-05 |
| 1 | 2.89E-02 | 1.05E+00 | 2.96E-02 | 3.78E-03 | 2.855E-05 | 3.10E-04 | 2.87E-05 |
| 11 | 2.00E-02 | 7.33E-01 | 2.07E-02 | 3.78E-03 | 2.849E-05 | 4.33E-04 | 4.01E-05 |
| 15 | 2.06E-02 | 8.01E-01 | 2.26E-02 | 3.13E-03 | 2.358E-05 | 2.55E-04 | 2.36E-05 |

<①CsCl-B₂O₃ Cs:B=1:10条件>

| Run No. | HCl (mol) | Cl | | Cs | | B | |
|---------|-----------|----------|----------|----------|-----------|----------|----------|
| | | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) |
| 3 | 2.09E-02 | 7.30E-01 | 2.06E-02 | 3.02E-03 | 2.275E-05 | 6.35E-04 | 5.88E-05 |
| 12 | 1.85E-02 | 8.62E-01 | 2.43E-02 | 3.35E-04 | 2.528E-06 | 8.63E-04 | 7.98E-05 |
| 9 | 2.90E-02 | 1.20E+00 | 3.37E-02 | 5.17E-04 | 3.90E-06 | 1.43E-04 | 1.32E-05 |

<②NaCl-CsCl-B₂O₃ Na:Cs:B=1:2:11条件>

| Run No. | HCl (mol) | Cl | | Na | | Cs | | B | |
|---------|-----------|----------|----------|-----------|-----------|----------|----------|----------|----------|
| | | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) |
| 7 | 1.91E-02 | 6.30E-01 | 1.78E-02 | <1.25E-04 | <5.44E-06 | 7.25E-04 | 5.47E-06 | 2.73E-04 | 2.52E-05 |
| 4 | 2.18E-02 | 8.00E-01 | 2.26E-02 | 3.27E-04 | 1.42E-05 | 4.38E-03 | 3.30E-05 | 2.50E-04 | 2.31E-05 |
| 13 | 2.36E-02 | 9.41E-01 | 2.65E-02 | <1.25E-04 | <5.44E-06 | 2.94E-03 | 2.22E-05 | 2.94E-04 | 2.72E-05 |
| 16 | 2.27E-02 | 8.87E-01 | 2.50E-02 | <1.25E-04 | <5.44E-06 | 1.69E-03 | 1.28E-05 | 3.92E-04 | 3.62E-05 |
| 22 | 5.60E-02 | 2.20E+00 | 6.21E-02 | <1.25E-04 | <5.44E-06 | 1.34E-03 | 1.01E-05 | 5.54E-04 | 5.13E-05 |
| 24 | 6.60E-02 | 2.59E+00 | 7.32E-02 | 2.52E-04 | 1.10E-05 | 4.70E-03 | 3.54E-05 | 5.98E-03 | 5.53E-04 |
| 20 | 3.15E-02 | 1.20E+00 | 3.38E-02 | 1.38E-04 | 5.99E-06 | 3.42E-03 | 2.58E-05 | 2.05E-04 | 1.90E-05 |
| 21 | 7.26E-02 | 2.83E+00 | 7.99E-02 | <1.25E-04 | <5.44E-06 | 2.05E-03 | 1.54E-05 | 5.36E-04 | 4.95E-05 |
| 23 | 1.01E-01 | 4.03E+00 | 1.14E-01 | 1.54E-04 | 6.70E-06 | 1.66E-02 | 1.25E-04 | 6.68E-04 | 6.18E-05 |

<②NaCl-CsCl-B₂O₃ Na:Cs:B=1:2:22条件>

| Run No. | HCl (mol) | Cl | | Na | | Cs | | B | |
|---------|-----------|----------|----------|-----------|-----------|----------|----------|----------|----------|
| | | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) |
| 10 | 2.06E-02 | 7.57E-01 | 2.14E-02 | 2.26E-03 | 9.82E-05 | 1.20E-03 | 9.02E-06 | 1.68E-03 | 1.55E-04 |
| 14 | 2.42E-02 | 9.69E-01 | 2.73E-02 | <1.25E-04 | <5.44E-06 | 1.66E-03 | 1.25E-05 | 1.56E-03 | 1.44E-04 |
| 5 | 3.06E-02 | 1.04E+00 | 2.92E-02 | <1.25E-04 | <5.44E-06 | 6.20E-04 | 4.68E-06 | 3.68E-04 | 3.40E-05 |

表9.2 吸収液捕集成分測定結果

<③CsCl-H₃BO₃ Cs:B=1:5条件>

| Run No. | HCl* (mol) | Cl | | Cs | | B | |
|---------|------------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|
| | | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) |
| 6 | 2.25E-03 | 8.66E-02 | 2.44E-03 | 2.05E-04 | 1.55E-06 | 3.31E-03 | 3.06E-04 |
| 8 | 1.65E-03 | 8.06E-02 | 2.27E-03 | 1.55E-04 | 1.17E-06 | 3.44E-04 | 3.18E-05 |

<④CsCl-B₂O₃-HSL Cs:B:HSL=1:5:0.5条件>

| Run No. | HCl* (mol) | Cl | | Na | | Cs | | B | |
|---------|------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|----------|----------|
| | | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) |
| 17 | 1.68E-06 | <1.75E-04 | <4.94E-06 | <1.75E-04 | <7.61E-06 | <1.75E-04 | <1.32E-06 | 7.84E-04 | 7.25E-05 |
| 19 | 3.15E-04 | 1.85E-02 | 5.21E-04 | 3.93E-04 | 1.71E-05 | 2.62E-03 | 1.98E-05 | 2.98E-03 | 2.76E-04 |

<⑤NaCl-CsCl-B₂O₃-HSL Na:Cs:B:HSL=1:2:11:1.5条件>

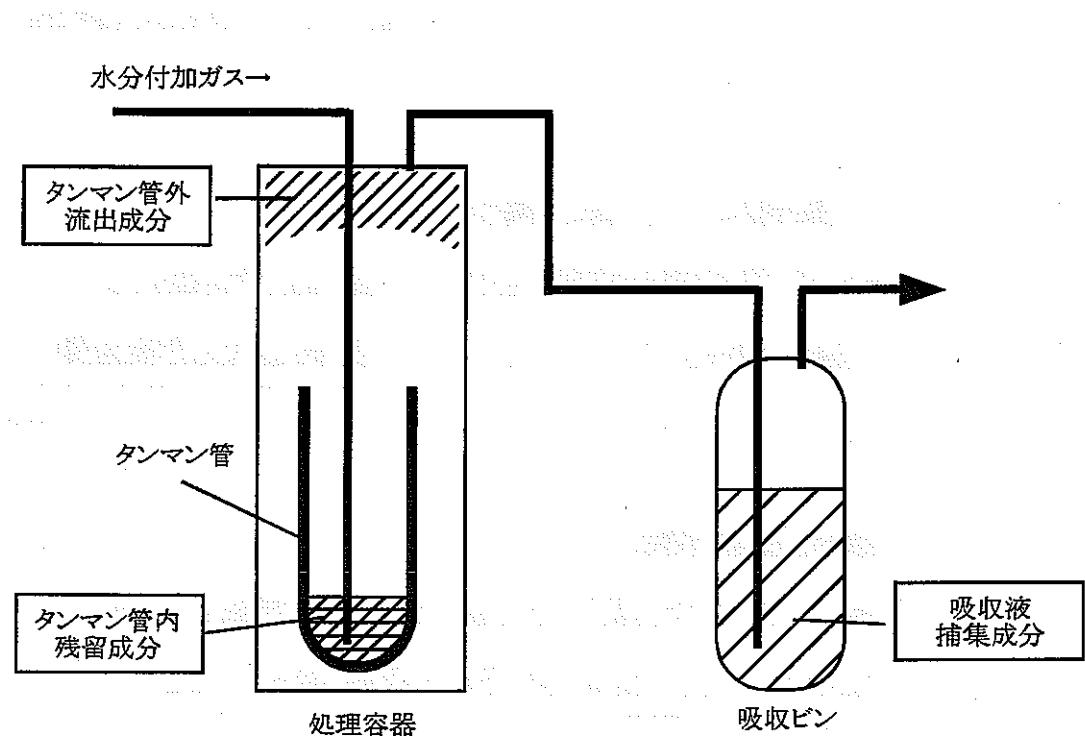
| Run No. | HCl* (mol) | Cl | | Na | | Cs | | B | |
|---------|------------|----------|----------|-----------|-----------|----------|----------|----------|----------|
| | | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) | (g) | (mol) |
| 18 | 3.96E-04 | 1.81E-02 | 5.10E-04 | <1.25E-04 | <5.44E-06 | 1.31E-03 | 9.89E-06 | 1.32E-03 | 1.22E-04 |

注) :HSL添加条件(Run No.17、19、18) HCL量は低濃度のためpHより算出

表10 装荷塩化物に対する塩化水素捕集率

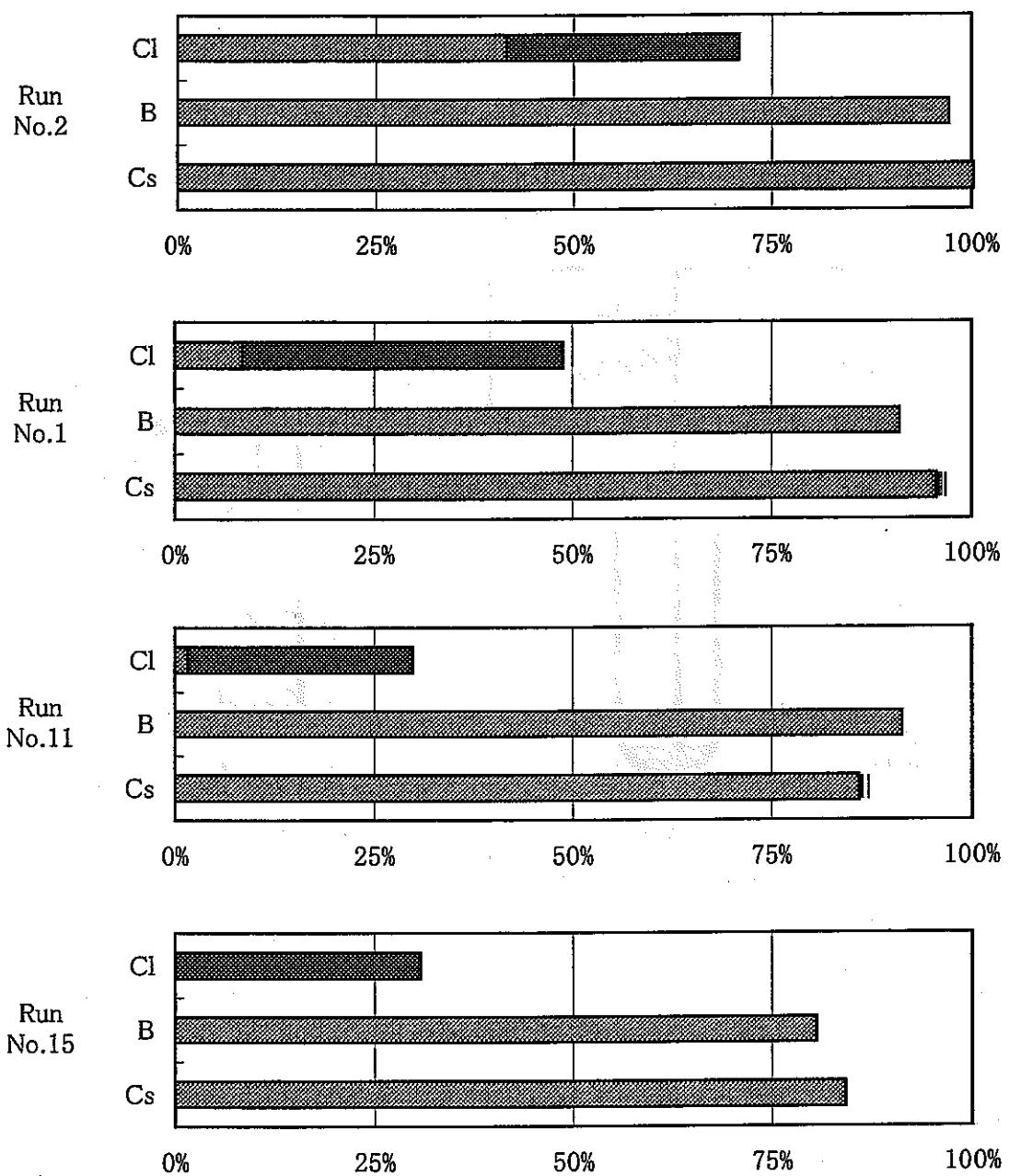
| Run No. | 試験条件 | | | | 装荷 塩化物量 (mol) | HCl捕集量 (mol) | HCl捕集率 vs. 塩化物 (%) |
|---------|---------------------------------------|--------------|--------------------|--------------------------|------------------|-----------------|--------------------------|
| | 試料 [*] Na:Cs:B:HSL モル比 | 処理温度 (°C) | 水分 付加量 (倍当量) | 水分ガス 通気流量 (NL/min) | | | |
| 2 | ① 0:1:5:0 | 750 | 10 | 0.162 | 7.30E-02 | 2.08E-02 | 28.5 |
| 1 | | 800 | 10 | | 7.30E-02 | 2.89E-02 | 39.6 |
| 11 | | 800 | 20 | | 7.30E-02 | 2.00E-02 | 27.3 |
| 15 | | 800 | 30 | | 7.30E-02 | 2.06E-02 | 28.3 |
| 3 | | 750 | 10 | | 4.84E-02 | 2.09E-02 | 43.2 |
| 12 | | 750 | 20 | | 4.84E-02 | 1.85E-02 | 38.2 |
| 9 | | 800 | 10 | | 4.84E-02 | 2.90E-02 | 59.9 |
| 7 | ② 1:2:11:0 | 750 | 10 | 0.325 | 9.64E-02 | 1.91E-02 | 19.8 |
| 4 | | 800 | 10 | | 9.64E-02 | 2.18E-02 | 22.7 |
| 13 | | 800 | 20 | | 9.64E-02 | 2.36E-02 | 24.5 |
| 16 | | 800 | 30 | | 9.64E-02 | 2.27E-02 | 23.5 |
| 22 | | 800 | 10 | | 1.93E-01 | 5.60E-02 | 29.0 |
| 24 | | 800 | 10 | | 1.93E-01 | 6.60E-02 | 34.2 |
| 20 | | 850 | 10 | | 9.64E-02 | 3.15E-02 | 32.7 |
| 21 | ③ 0:1:5:0 | 850 | 10 | 0.162 | 1.93E-01 | 7.26E-02 | 37.6 |
| 23 | | 850 | 10 | | 1.93E-01 | 1.01E-01 | 52.2 |
| 10 | ④ 1:2:22:0 | 750 | 10 | 0.162 | 6.46E-02 | 2.06E-02 | 32.0 |
| 14 | | 750 | 20 | | 6.46E-02 | 2.42E-02 | 37.4 |
| 5 | | 800 | 10 | | 6.46E-02 | 3.06E-02 | 47.3 |
| 6 | ⑤ 1:2:11:1.5 | 750 | 10 | 0.162 | 5.24E-02 | 2.25E-03 | 4.3 |
| 8 | | 800 | 10 | | 5.24E-02 | 1.65E-03 | 3.2 |
| 17 | ⑥ 0:1:5:0.5 | 800 | 10 | 0.162 | 3.65E-02 | 1.68E-06 | 0.005 |
| 19 | | 800 | 10 | | 3.65E-02 | 4.41E-04 | 1.2 |
| 18 | | 800 | 10 | | 4.14E-02 | 3.96E-04 | 1.0 |

注) * : 試料 ①CsCl-B₂O₃②NaCl-CsCl-B₂O₃③CsCl-H₃BO₃④CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト(HSL)⑤NaCl-CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト(HSL)



タンマン管内残留成分：タンマン管内に残存した試料成分
 タンマン管外流出成分：揮発によりタンマン管外に流出し処理容器内に析出した試料成分
 吸収液捕集成分：ガスおよびミスト形態で吸収液に捕集された試料成分

図10 試験収支評価試料分布図



[Hatched Bar] : タンマン管内残留成分
 [Solid Black Bar] : 吸収液捕集成分

図11.1 試料成分收支
 ①CsCl-B₂O₃ Cs:B=1:5条件

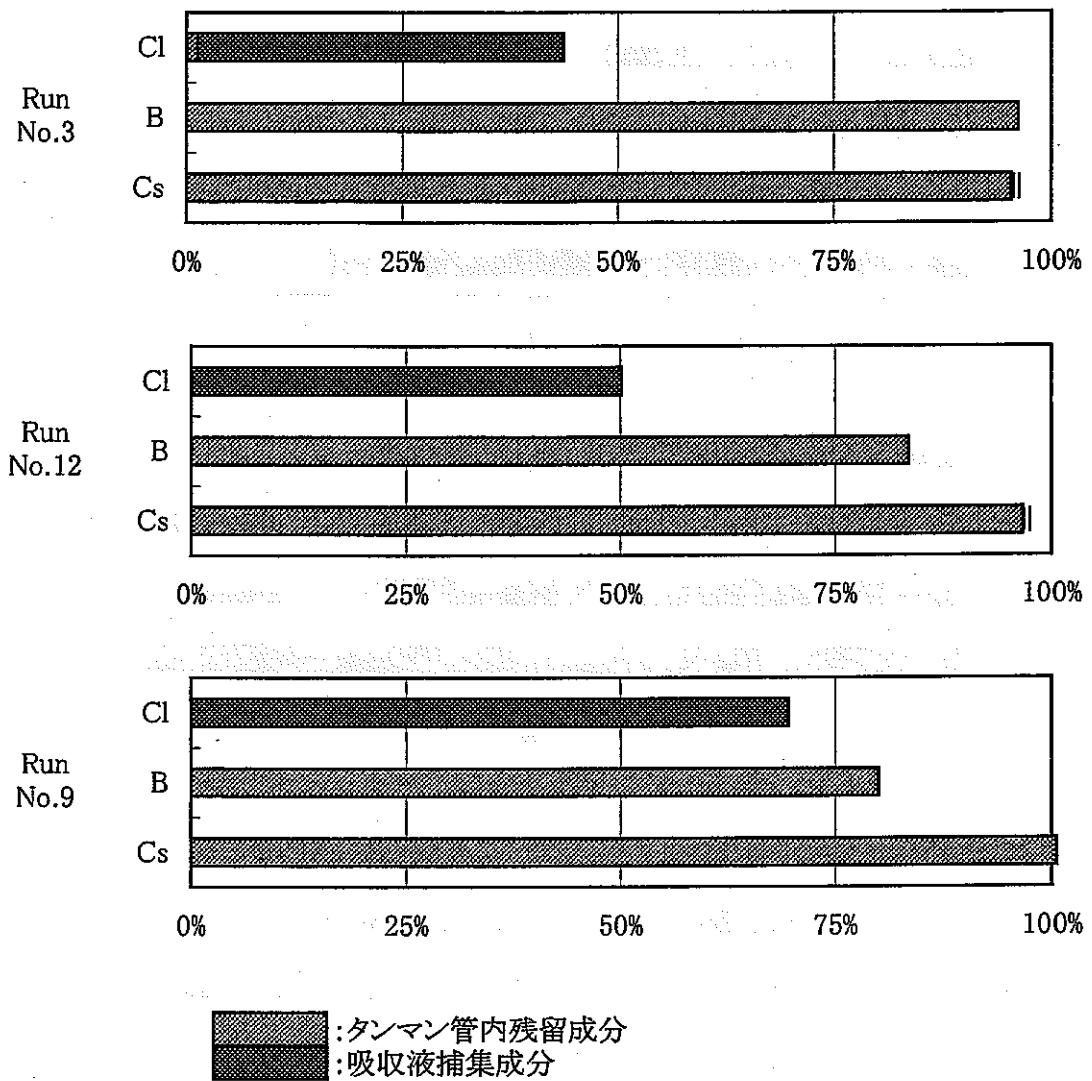
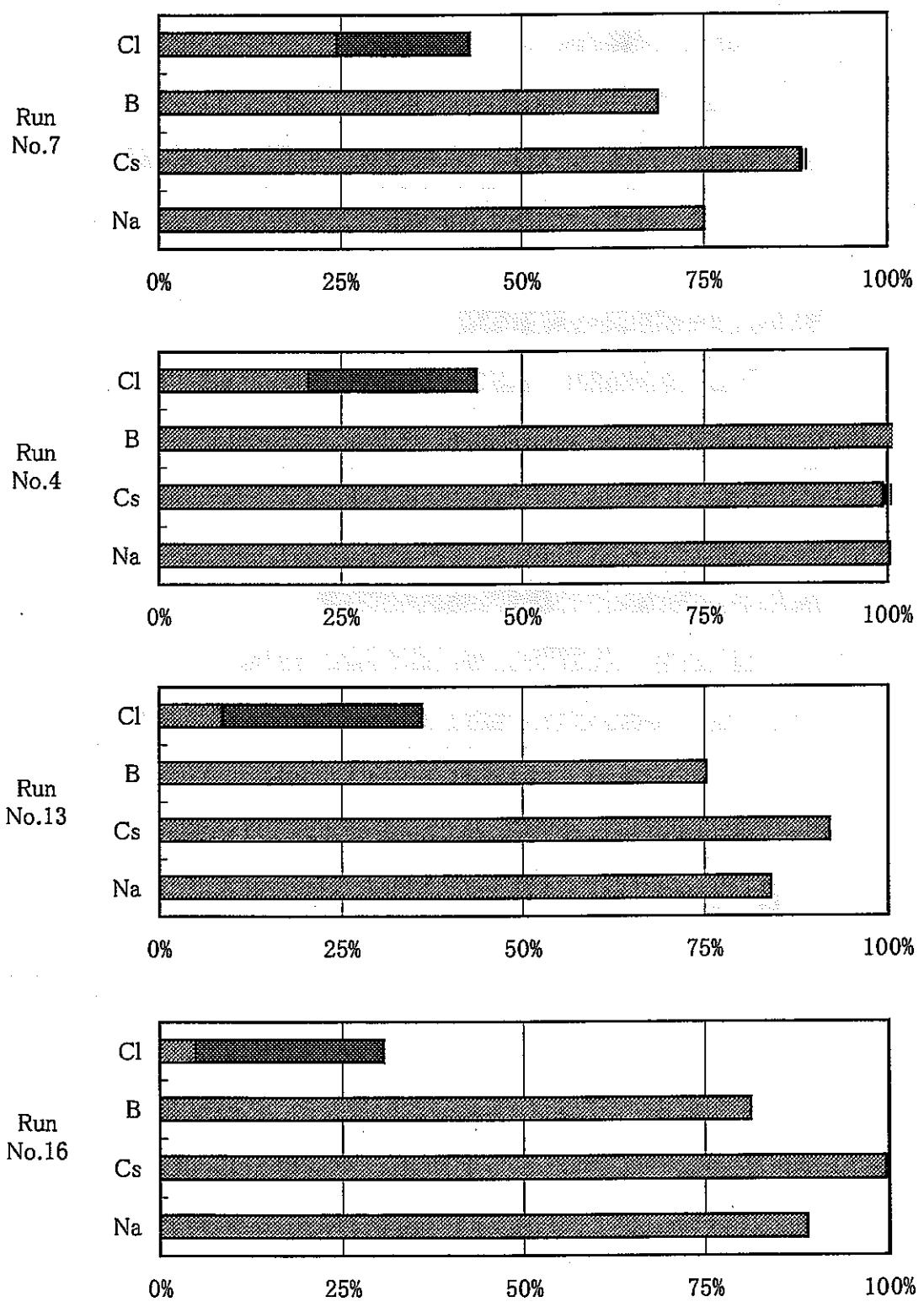


図11.2 試料成分収支
①CsCl-B₂O₃ Cs:B=1:10条件



■ : タンマン管内残留成分
■ : 吸収液捕集成分

図11.3.1 試料成分収支
②NaCl-CsCl-B₂O₃ Na:Cs:B=1:2:11条件

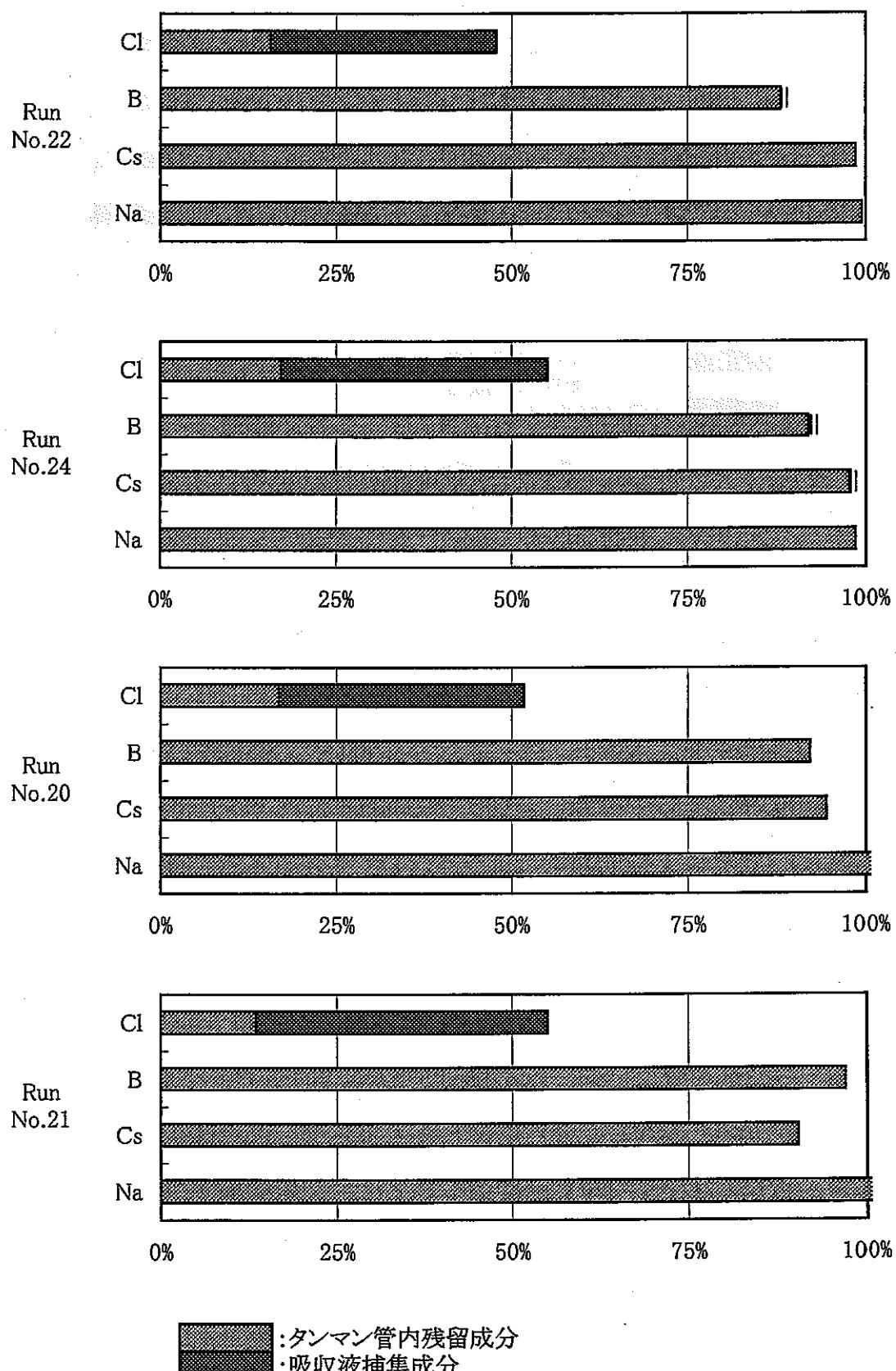
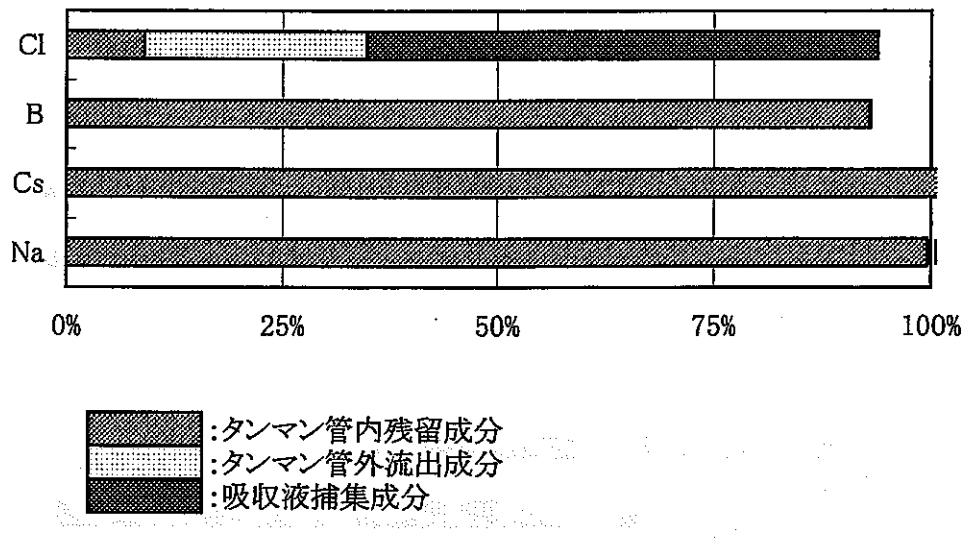


図11.3.2 試料成分收支
②NaCl-CsCl-B₂O₃ Na:Cs:B=1:2:11条件

Run
No.23



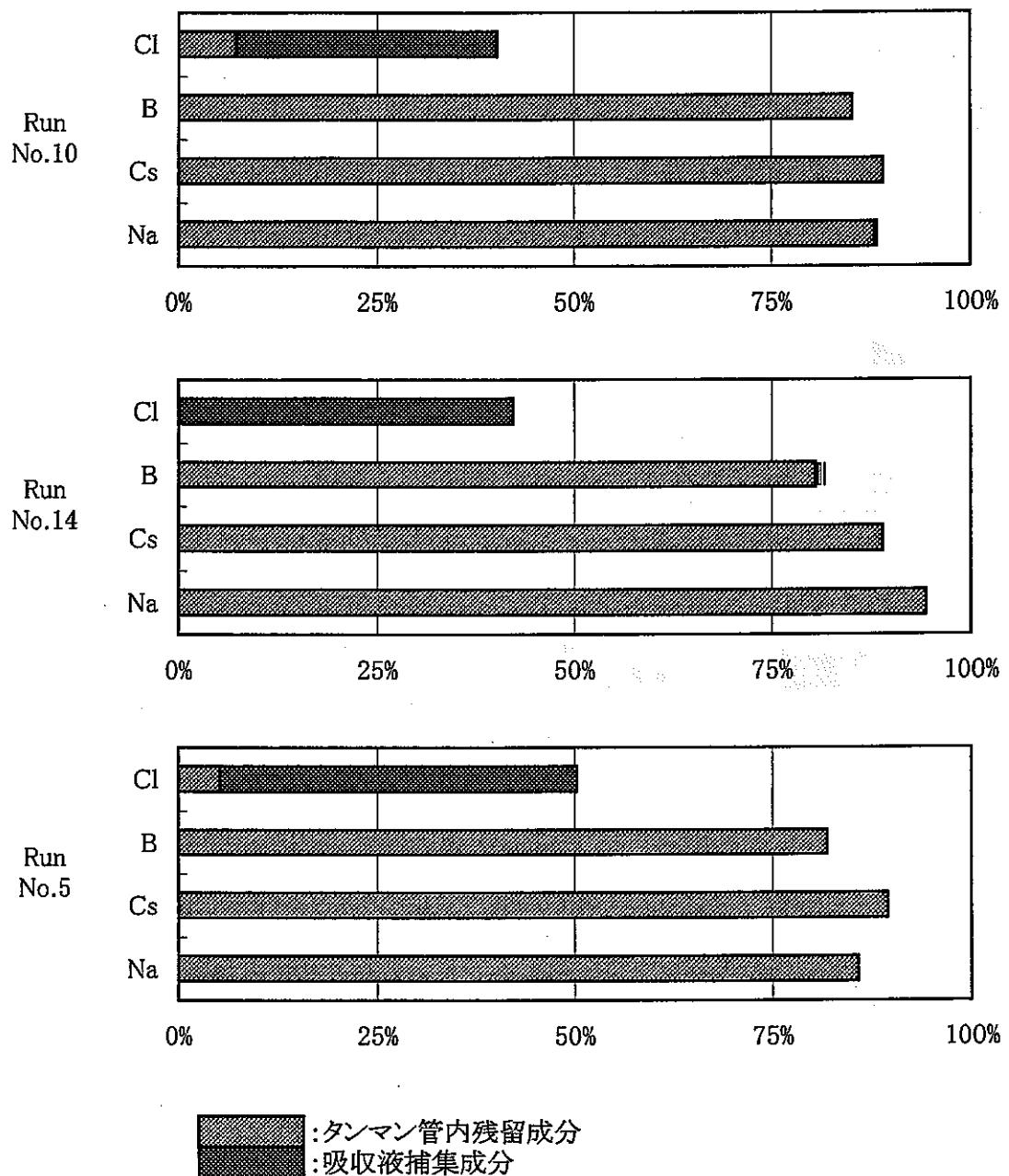


図11.4 試料成分物質収支
②NaCl-CsCl-B₂O₃ Na:Cs:B=1:2:22条件

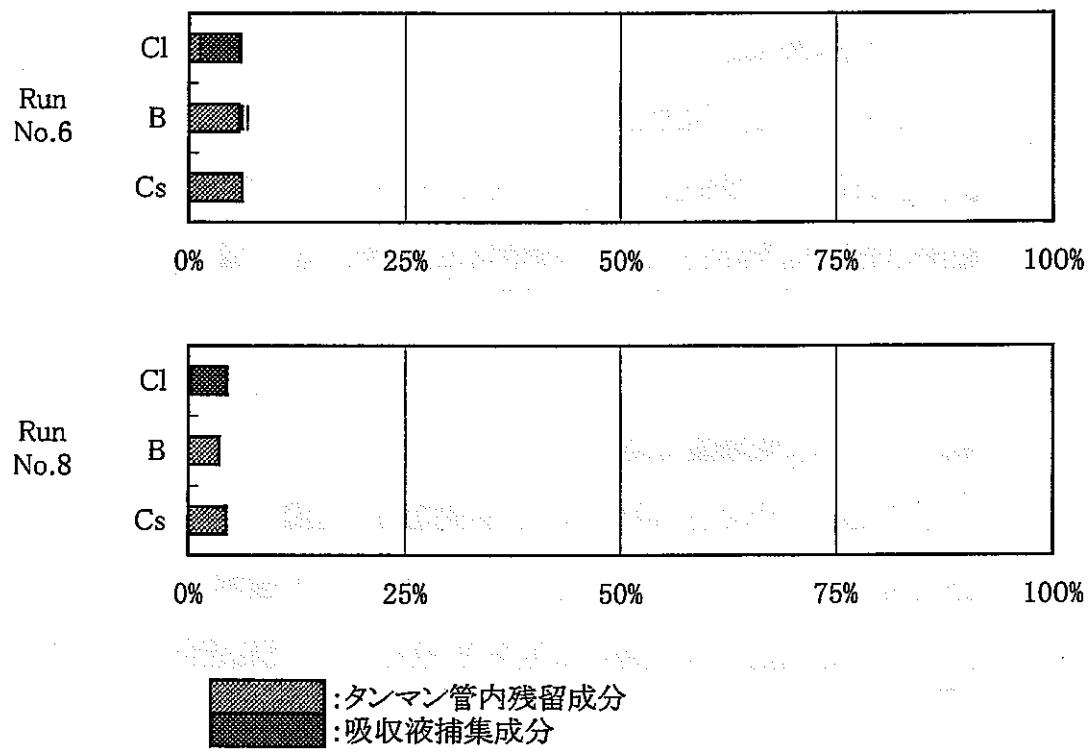
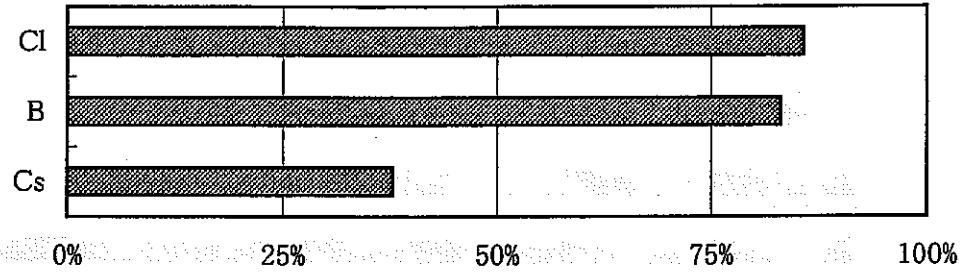
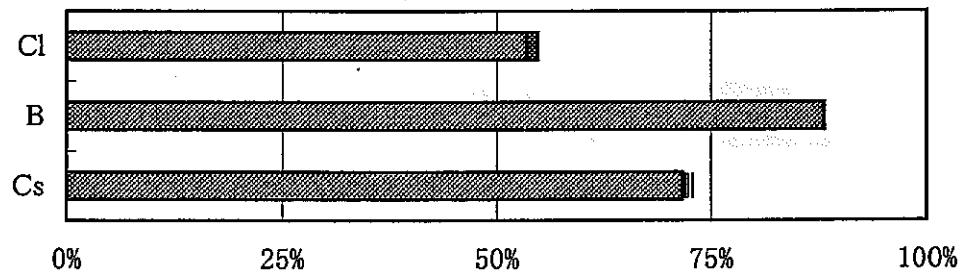


図11.5 試料成分物質收支
③ $\text{CsCl}-\text{H}_3\text{BO}_3$ Cs:B=1:5条件

Run
No.17



Run
No.19



:タンマン管内残留成分
:吸収液捕集成分

図11.6 試料成分物質収支
④CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト(HSL) Cs:B:HSL=1:5:0.5条件

Run
No.19

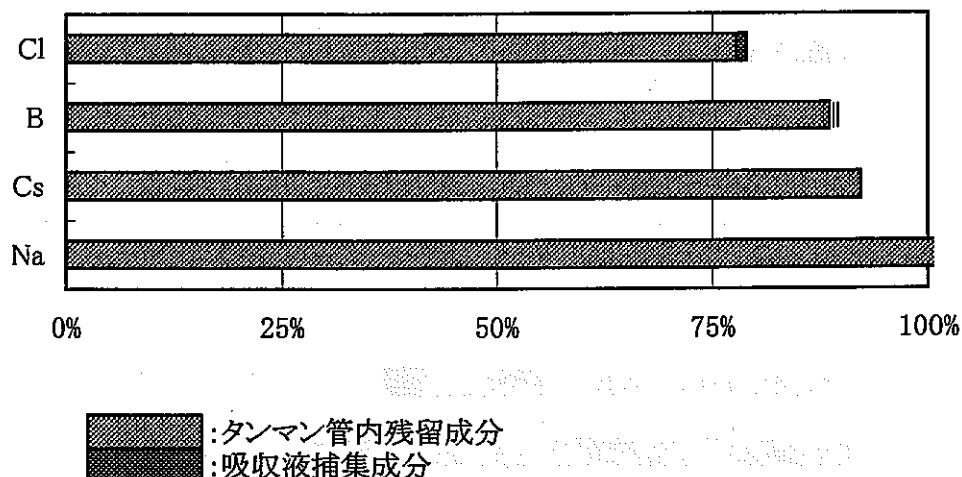


図11.7 試料成分物質収支
⑤NaCl-CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト(HSL) Na:Cs:B:HSL=1:2:11:1.5条件

表11.1 試験収支評価結果

<①CsCl-B₂O₃ Cs:B=1:5条件>

| Run No. | 試験条件 | | | 成分 | 装荷量 (mol) | タンマン管内残留量 | | タンマン管外流出量 | | 吸収液捕集量 | | 計 | |
|---------|--------------|----------------|----------------------|----|--------------|-----------|--------|-----------|-----------|--------|----------|-------|--------|
| | 処理温度 (°C) | 水分付加量 (倍当量) | 水分ガス通気流量 (NL/min) | | | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) |
| 2 | 750 | 10 | 0.162 | Cs | 7.30E-02 | 7.32E-02 | 100.2 | | <9.43E-07 | 0 | 7.32E-02 | 100.2 | |
| | | | | B | 3.65E-01 | 3.55E-01 | 97.2 | | <1.16E-05 | 0 | 3.55E-01 | 97.2 | |
| | | | | Cl | 7.30E-02 | 3.03E-02 | 41.6 | | 2.14E-02 | 29.3 | 5.18E-02 | 70.9 | |
| 1 | 800 | 10 | 0.162 | Cs | 7.30E-02 | 6.99E-02 | 95.7 | | 2.85E-05 | 0.04 | 6.99E-02 | 95.7 | |
| | | | | B | 3.65E-01 | 3.32E-01 | 91.0 | | 2.87E-05 | 0.01 | 3.32E-01 | 91.0 | |
| | | | | Cl | 7.30E-02 | 6.18E-03 | 8.5 | | 2.96E-02 | 40.5 | 3.57E-02 | 48.9 | |
| 11 | 800 | 20 | 0.162 | Cs | 7.30E-02 | 6.28E-02 | 86.0 | | 2.85E-05 | 0.04 | 6.28E-02 | 86.0 | |
| | | | | B | 3.65E-01 | 3.34E-01 | 91.4 | | 4.01E-05 | 0.01 | 3.34E-01 | 91.4 | |
| | | | | Cl | 7.30E-02 | 1.21E-03 | 1.7 | | 2.07E-02 | 28.3 | 2.19E-02 | 30.0 | |
| 15 | 800 | 30 | 0.162 | Cs | 7.30E-02 | 6.15E-02 | 84.2 | | 2.36E-05 | 0.03 | 6.15E-02 | 84.3 | |
| | | | | B | 3.65E-01 | 2.94E-01 | 80.6 | | 2.36E-05 | 0.01 | 2.94E-01 | 80.6 | |
| | | | | Cl | 7.30E-02 | <5.70E-05 | 0 | | 2.26E-02 | 31.0 | 2.26E-02 | 31.0 | |

<①CsCl-B₂O₃ Cs:B=1:10条件>

| Run No. | 試験条件 | | | 成分 | 装荷量 (mol) | タンマン管内残留量 | | タンマン管外流出量 | | 吸収液捕集量 | | 計 | |
|---------|--------------|----------------|----------------------|----|--------------|-----------|--------|-----------|----------|--------|----------|-------|--------|
| | 処理温度 (°C) | 水分付加量 (倍当量) | 水分ガス通気流量 (NL/min) | | | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) |
| 3 | 750 | 10 | 0.162 | Cs | 4.84E-02 | 4.62E-02 | 95.5 | | 2.28E-05 | 0.05 | 4.62E-02 | 95.5 | |
| | | | | B | 4.84E-01 | 4.66E-01 | 96.2 | | 5.88E-05 | 0.01 | 4.66E-01 | 96.2 | |
| | | | | Cl | 4.84E-02 | 6.05E-04 | 1.3 | | 2.06E-02 | 42.6 | 2.12E-02 | 43.8 | |
| 12 | 750 | 20 | 0.162 | Cs | 4.84E-02 | 4.68E-02 | 96.7 | | 2.53E-06 | 0.01 | 4.68E-02 | 96.7 | |
| | | | | B | 4.84E-01 | 4.04E-01 | 83.5 | | 7.98E-05 | 0.02 | 4.04E-01 | 83.6 | |
| | | | | Cl | 4.84E-02 | <6.96E-05 | 0 | | 2.43E-02 | 50.2 | 2.43E-02 | 50.2 | |
| 9 | 800 | 10 | 0.162 | Cs | 4.84E-02 | 4.86E-02 | 100.4 | | 3.90E-06 | 0.01 | 4.86E-02 | 100.4 | |
| | | | | B | 4.84E-01 | 3.88E-01 | 80.1 | | 1.32E-05 | 0.003 | 3.88E-01 | 80.1 | |
| | | | | Cl | 4.84E-02 | <7.83E-05 | 0 | | 3.37E-02 | 69.7 | 3.37E-02 | 69.7 | |

表11.2.1 試験収支評価結果

<②NaCl-CsCl-B₂O₃ Na:Cs:B=1:2:11条件>

| Run No. | 試験条件 | | | 成分 | 装荷量 (mol) | タンマン管内残留量 | | タンマン管外流出量 | | 吸収液捕集量 | | 計 | |
|---------|--------------|----------------|----------------------|----|--------------|-----------|--------|-----------|--------|----------|--------|-------|--------|
| | 処理温度 (°C) | 水分付加量 (倍当量) | 水分ガス通気流量 (NL/min) | | | (mol) | 収率 (%) | (mol) | 収率 (%) | (mol) | 収率 (%) | (mol) | 収率 (%) |
| 7 | 750 | 10 | 0.162 | Na | 3.21E-02 | 2.41E-02 | 75.1 | <5.44E-06 | 0 | 2.41E-02 | 75.1 | | |
| | | | | Cs | 6.43E-02 | 5.68E-02 | 88.3 | 5.47E-06 | 0.01 | 5.68E-02 | 88.3 | | |
| | | | | B | 3.53E-01 | 2.43E-01 | 68.7 | 2.52E-05 | 0.01 | 2.43E-01 | 68.7 | | |
| | | | | Cl | 9.64E-02 | 2.36E-02 | 24.5 | 1.78E-02 | 18.4 | 4.14E-02 | 42.9 | | |
| 4 | 800 | 10 | 0.162 | Na | 3.22E-02 | 3.22E-02 | 100.2 | 1.42E-05 | 0.04 | 3.22E-02 | 100.3 | | |
| | | | | Cs | 6.43E-02 | 6.38E-02 | 99.3 | 3.30E-05 | 0.1 | 6.39E-02 | 99.4 | | |
| | | | | B | 3.53E-01 | 3.58E-01 | 101.1 | 2.31E-05 | 0.01 | 3.58E-01 | 101.1 | | |
| | | | | Cl | 9.64E-02 | 1.97E-02 | 20.5 | 2.26E-02 | 23.4 | 4.23E-02 | 43.9 | | |
| 13 | 800 | 20 | 0.162 | Na | 3.21E-02 | 2.70E-02 | 84.1 | <5.44E-06 | 0 | 2.70E-02 | 84.1 | | |
| | | | | Cs | 6.43E-02 | 5.92E-02 | 92.1 | 2.22E-05 | 0.03 | 5.92E-02 | 92.1 | | |
| | | | | B | 3.53E-01 | 2.66E-01 | 75.3 | 2.72E-05 | 0.01 | 2.66E-01 | 75.3 | | |
| | | | | Cl | 9.64E-02 | 8.33E-03 | 8.6 | 2.65E-02 | 27.5 | 3.49E-02 | 36.2 | | |
| 16 | 800 | 30 | 0.162 | Na | 3.22E-02 | 2.86E-02 | 89.0 | <5.44E-06 | 0 | 2.86E-02 | 89.0 | | |
| | | | | Cs | 6.43E-02 | 6.40E-02 | 99.6 | 1.28E-05 | 0.02 | 6.40E-02 | 99.6 | | |
| | | | | B | 3.53E-01 | 2.87E-01 | 81.3 | 3.62E-05 | 0.01 | 2.87E-01 | 81.3 | | |
| | | | | Cl | 9.64E-02 | 4.69E-03 | 4.9 | 2.50E-02 | 26.0 | 2.97E-02 | 30.8 | | |
| 22 | 800 | 10 | 0.162 | Na | 6.43E-02 | 6.39E-02 | 99.5 | <5.44E-06 | 0 | 6.39E-02 | 99.5 | | |
| | | | | Cs | 1.29E-01 | 1.27E-01 | 98.6 | 1.01E-05 | 0.01 | 1.27E-01 | 98.6 | | |
| | | | | B | 7.07E-01 | 6.23E-01 | 88.1 | 5.13E-05 | 0.01 | 6.23E-01 | 88.1 | | |
| | | | | Cl | 1.93E-01 | 3.02E-02 | 15.7 | 6.21E-02 | 32.2 | 9.23E-02 | 47.9 | | |
| 24 | 800 | 10 | 0.325 | Na | 6.43E-02 | 6.33E-02 | 98.6 | 1.10E-05 | 0.02 | 6.34E-02 | 98.6 | | |
| | | | | Cs | 1.29E-01 | 1.26E-01 | 97.8 | 3.54E-05 | 0.0 | 1.26E-01 | 97.9 | | |
| | | | | B | 7.07E-01 | 6.50E-01 | 92.0 | 5.53E-04 | 0.1 | 6.51E-01 | 92.0 | | |
| | | | | Cl | 1.93E-01 | 3.32E-02 | 17.2 | 7.32E-02 | 38.0 | 1.06E-01 | 55.2 | | |

表11.2.2 試験収支評価結果

<②NaCl-CsCl-B₂O₃ Na:Cs:B=1:2:11条件>

| Run No. | 試験条件 | | | 成分 | 装荷量 (mol) | タンマン管内残留量 | | タンマン管外流出量 | | 吸収液捕集量 | | 計 (mol) | 収率 (%) |
|---------|--------------|----------------|----------------------|----|--------------|-----------|-------|-----------|------|-----------|------|------------|--------|
| | 処理温度 (°C) | 水分付加量 (倍当量) | 水分ガス通気流量 (NL/min) | | | (mol) | (%) | (mol) | (%) | (mol) | (%) | | |
| 20 | 850 | 10 | 0.162 | Na | 3.22E-02 | 3.34E-02 | 103.7 | | | 5.99E-06 | 0.02 | 3.34E-02 | 103.7 |
| | | | | Cs | 6.43E-02 | 6.08E-02 | 94.6 | | | 2.58E-05 | 0.04 | 6.08E-02 | 94.6 |
| | | | | B | 3.53E-01 | 3.26E-01 | 92.2 | | | 1.90E-05 | 0.01 | 3.26E-01 | 92.2 |
| | | | | Cl | 9.64E-02 | 1.63E-02 | 16.9 | | | 3.38E-02 | 35.0 | 5.00E-02 | 51.9 |
| 21 | 850 | 10 | 0.162 | Na | 6.43E-02 | 6.61E-02 | 102.9 | | | <5.44E-06 | 0 | 6.61E-02 | 102.9 |
| | | | | Cs | 1.29E-01 | 1.16E-01 | 90.4 | | | 1.54E-05 | 0.01 | 1.16E-01 | 90.4 |
| | | | | B | 7.07E-01 | 6.86E-01 | 97.0 | | | 4.95E-05 | 0.01 | 6.86E-01 | 97.1 |
| | | | | Cl | 1.93E-01 | 2.62E-02 | 13.6 | | | 7.99E-02 | 41.5 | 1.06E-01 | 55.1 |
| 23 | 850 | 10 | 0.325 | Na | 6.43E-02 | 6.40E-02 | 99.5 | 5.80E-05 | 0.1 | 6.70E-06 | 0.01 | 6.40E-02 | 99.6 |
| | | | | Cs | 1.29E-01 | 1.32E-01 | 102.4 | 4.88E-04 | 0.4 | 1.25E-04 | 0.1 | 1.32E-01 | 102.9 |
| | | | | B | 7.07E-01 | 6.56E-01 | 92.8 | 1.68E-03 | 0.2 | 6.18E-05 | 0.01 | 6.58E-01 | 93.1 |
| | | | | Cl | 1.93E-01 | 1.73E-02 | 9.0 | 5.01E-02 | 26.0 | 1.14E-01 | 58.9 | 1.81E-01 | 93.9 |

表11.3 試験収支評価結果

<②NaCl-CsCl-B₂O₃ Na:Cs:B=1:2:22条件>

| Run No. | 試験条件 | | | 成分 | 装荷量 (mol) | タンマン管内残留量 | | タンマン管外流出量 | | 吸収液捕集量 | | 計 | |
|---------|--------------|----------------|----------------------|----|--------------|-----------|--------|-----------|--------|-----------|--------|----------|--------|
| | 処理温度 (°C) | 水分付加量 (倍当量) | 水分ガス通気流量 (NL/min) | | | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) |
| 10 | 750 | 10 | 0.162 | Na | 2.15E-02 | 1.89E-02 | 87.9 | | | 9.82E-05 | 0.5 | 1.90E-02 | 88.4 |
| | | | | Cs | 4.31E-02 | 3.83E-02 | 89.0 | | | 9.02E-06 | 0.02 | 3.84E-02 | 89.1 |
| | | | | B | 4.74E-01 | 4.03E-01 | 85.2 | | | 1.55E-04 | 0.03 | 4.04E-01 | 85.2 |
| | | | | Cl | 6.46E-02 | 4.67E-03 | 7.2 | | | 2.14E-02 | 33.1 | 2.60E-02 | 40.3 |
| 14 | 750 | 20 | 0.162 | Na | 2.15E-02 | 2.03E-02 | 94.3 | | | <5.44E-06 | 0 | 2.03E-02 | 94.3 |
| | | | | Cs | 4.31E-02 | 3.83E-02 | 88.9 | | | 1.25E-05 | 0.03 | 3.83E-02 | 89.0 |
| | | | | B | 4.74E-01 | 3.82E-01 | 80.5 | | | 1.44E-04 | 0.03 | 3.82E-01 | 80.6 |
| | | | | Cl | 6.46E-02 | <5.96E-05 | 0 | | | 2.73E-02 | 42.3 | 2.73E-02 | 42.3 |
| 5 | 800 | 10 | 0.162 | Na | 2.15E-02 | 1.85E-02 | 85.8 | | | <5.44E-06 | 0 | 1.85E-02 | 85.8 |
| | | | | Cs | 4.31E-02 | 3.85E-02 | 89.5 | | | 4.68E-06 | 0.01 | 3.85E-02 | 89.5 |
| | | | | B | 4.74E-01 | 3.88E-01 | 81.8 | | | 3.40E-05 | 0.01 | 3.88E-01 | 81.9 |
| | | | | Cl | 6.46E-02 | 3.33E-03 | 5.2 | | | 2.92E-02 | 45.2 | 3.26E-02 | 50.4 |

<③CsCl-H₃BO₃ Cs:B=1:5条件>

| Run No. | 試験条件 | | | 成分 | 装荷量 (mol) | タンマン管内残留量 | | タンマン管外流出量 | | 吸収液捕集量 | | 計 | |
|---------|--------------|----------------|----------------------|----|--------------|-----------|--------|-----------|--------|----------|--------|----------|--------|
| | 処理温度 (°C) | 水分付加量 (倍当量) | 水分ガス通気流量 (NL/min) | | | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) |
| 6 | 750 | 10 | 0.162 | Cs | 5.23E-02 | 3.20E-03 | 6.1 | | | 1.55E-06 | 0.003 | 3.20E-03 | 6.1 |
| | | | | B | 2.62E-01 | 1.49E-02 | 5.7 | | | 3.06E-04 | 0.1 | 1.52E-02 | 5.8 |
| | | | | Cl | 5.23E-02 | 6.50E-04 | 1.2 | | | 2.44E-03 | 4.7 | 3.09E-03 | 5.9 |
| 8 | 800 | 10 | 0.162 | Cs | 5.24E-02 | 2.27E-03 | 4.3 | | | 1.17E-06 | 0.002 | 2.27E-03 | 4.3 |
| | | | | B | 2.62E-01 | 9.17E-03 | 3.5 | | | 3.18E-05 | 0.01 | 9.20E-03 | 3.5 |
| | | | | Cl | 5.24E-02 | 1.02E-04 | 0.2 | | | 2.27E-03 | 4.3 | 2.38E-03 | 4.5 |

表11.4 試験収支評価結果

<④CsCl-B₂O₃-HSL Cs:B:HSL=1:5:0.5条件>

| Run No. | 試験条件 | | | 成分 | 装荷量 (mol) | タンマン管内残留量 | | タンマン管外流出量 | | 吸収液捕集量 | | 計 | |
|---------|--------------|----------------|----------------------|----|--------------|-----------|--------|-----------|--------|-----------|--------|----------|--------|
| | 処理温度 (°C) | 水分付加量 (倍当量) | 水分ガス通気流量 (NL/min) | | | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) |
| 17 | 800 | 10 | 0.162 | Na | 0 | 9.59E-02 | - | | | <7.61E-06 | - | 9.59E-02 | - |
| | | | | Cs | 3.65E-02 | 1.38E-02 | 37.8 | | | <1.32E-06 | 0 | 1.38E-02 | 37.8 |
| | | | | B | 1.83E-01 | 1.51E-01 | 83.0 | | | 7.25E-05 | 0.04 | 1.52E-01 | 83.0 |
| | | | | Cl | 3.65E-02 | 3.13E-02 | 85.7 | | | <4.94E-06 | 0 | 3.13E-02 | 85.7 |
| 19 | 800 | 10 | 0.162 | Na | 0 | 8.43E-02 | - | | | 1.71E-05 | - | 8.43E-02 | - |
| | | | | Cs | 3.65E-02 | 2.62E-02 | 71.7 | | | 1.98E-05 | 0.1 | 2.62E-02 | 71.7 |
| | | | | B | 1.83E-01 | 1.61E-01 | 87.9 | | | 2.76E-04 | 0.2 | 1.61E-01 | 88.1 |
| | | | | Cl | 3.65E-02 | 1.95E-02 | 53.5 | | | 5.21E-04 | 1.4 | 2.00E-02 | 54.9 |

<⑤NaCl-CsCl-B₂O₃-HSL Na:Cs:B:HSL=1:2:11:1.5条件>

| Run No. | 試験条件 | | | 成分 | 装荷量 (mol) | タンマン管内残留量 | | タンマン管外流出量 | | 吸収液捕集量 | | 計 | |
|---------|--------------|----------------|----------------------|----|--------------|-----------|--------|-----------|--------|-----------|--------|----------|--------|
| | 処理温度 (°C) | 水分付加量 (倍当量) | 水分ガス通気流量 (NL/min) | | | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) | (mol) | 收率 (%) |
| 18 | 800 | 10 | 0.162 | Na | 1.38E-02 | 1.11E-01 | 808.5 | | | <5.44E-06 | 0 | 1.11E-01 | 808.5 |
| | | | | Cs | 2.76E-02 | 2.54E-02 | 92.1 | | | 9.89E-06 | 0.04 | 2.54E-02 | 92.1 |
| | | | | B | 1.52E-01 | 1.34E-01 | 88.5 | | | 1.22E-04 | 0.1 | 1.34E-01 | 88.6 |
| | | | | Cl | 4.14E-02 | 3.22E-02 | 77.8 | | | 5.10E-04 | 1.2 | 3.27E-02 | 79.0 |

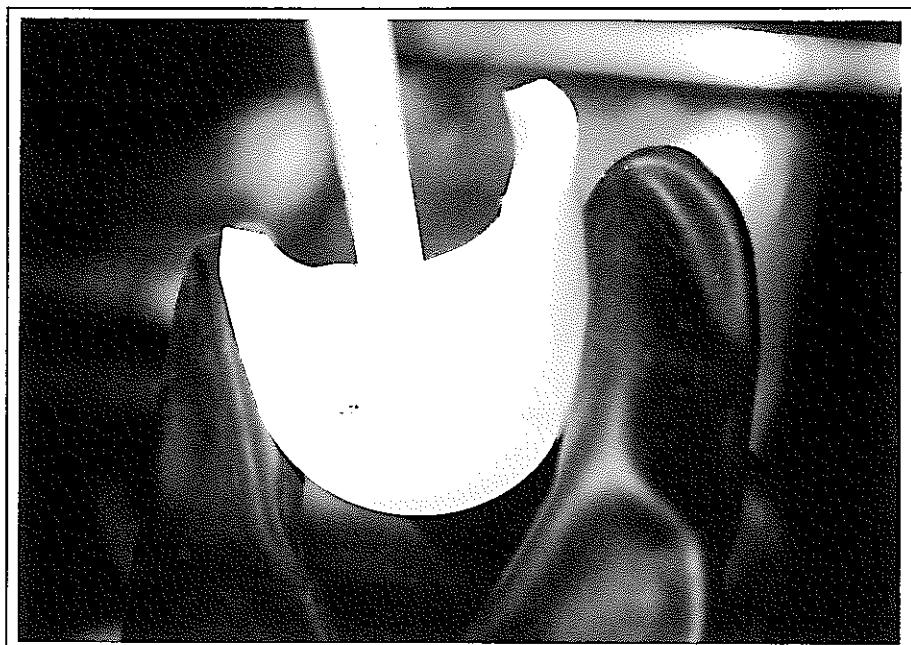


写真 1 Run No.2(CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況

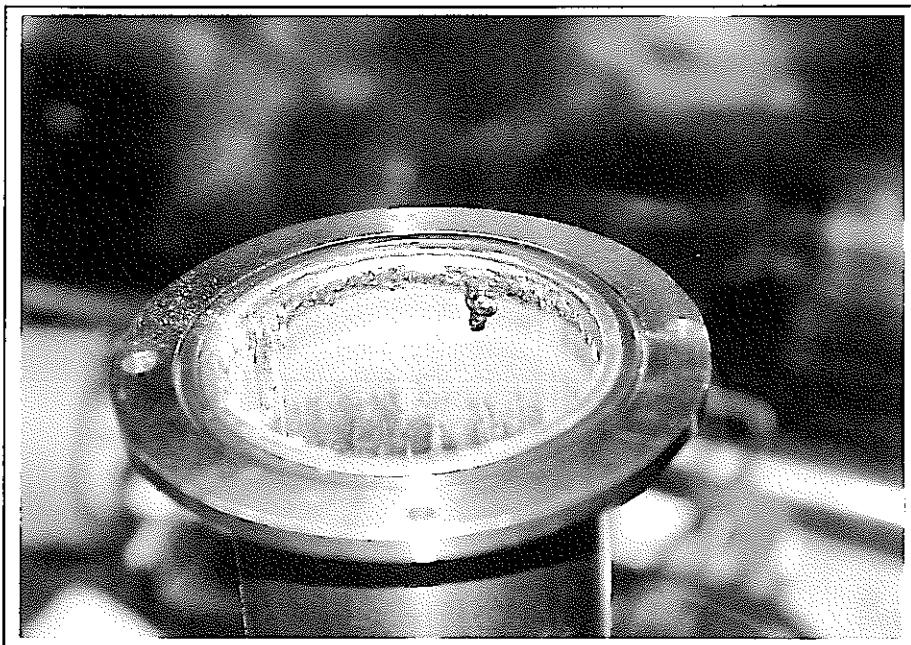


写真 2 Run No.2(CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

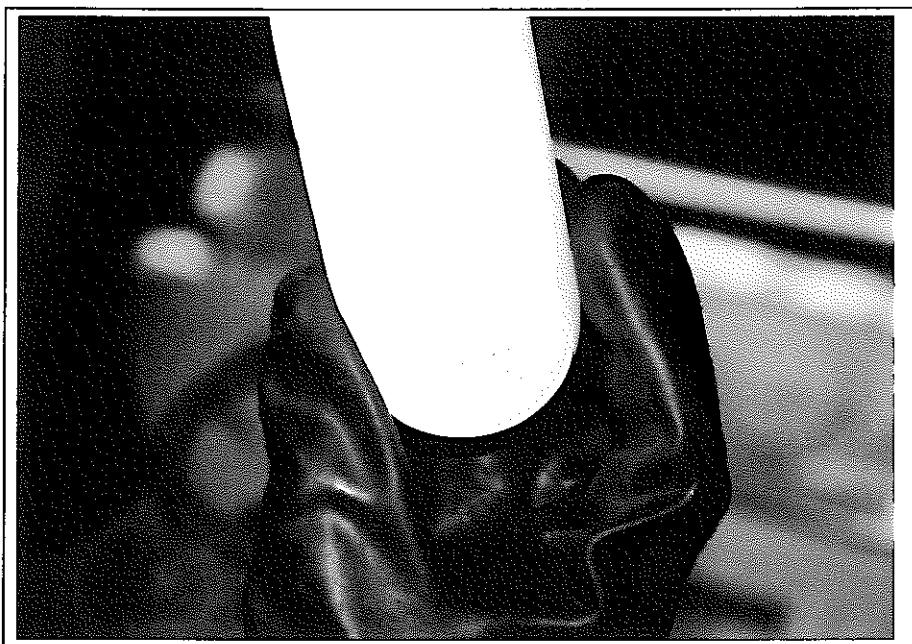


写真3 Run No.1(CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況

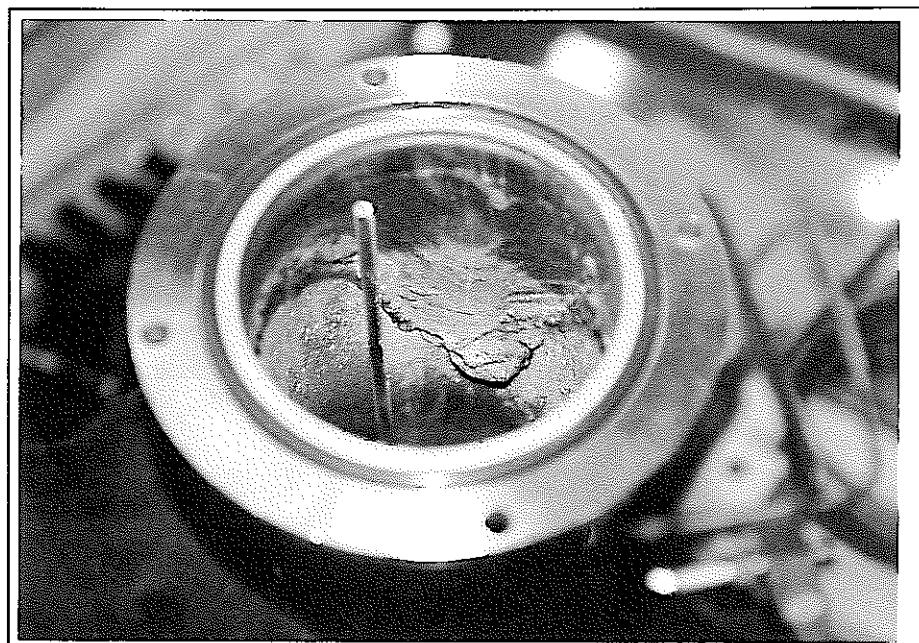


写真4 Run No.1(CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

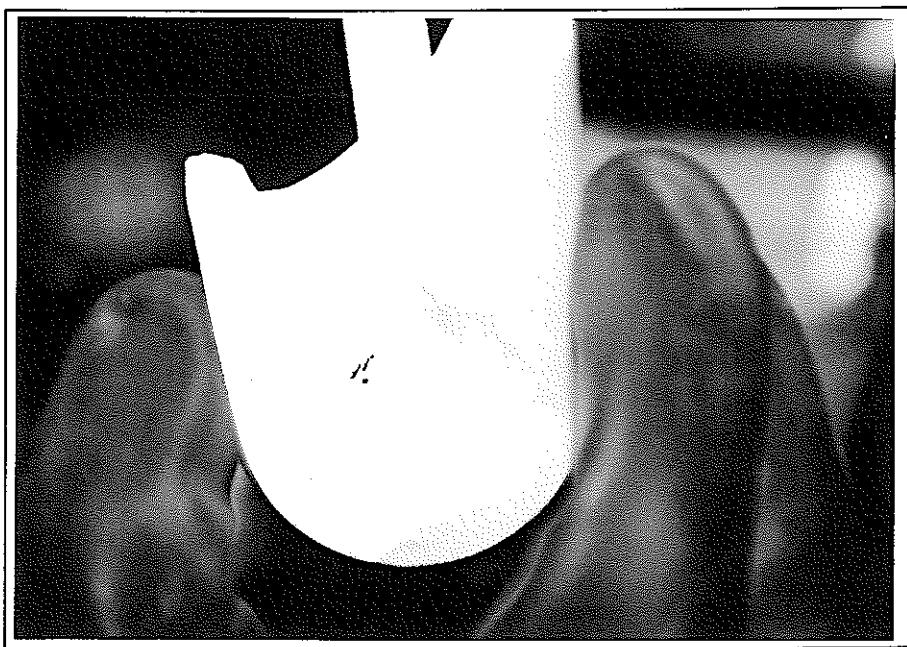


写真 5 Run No.11(CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況



写真 6 Run No.11(CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

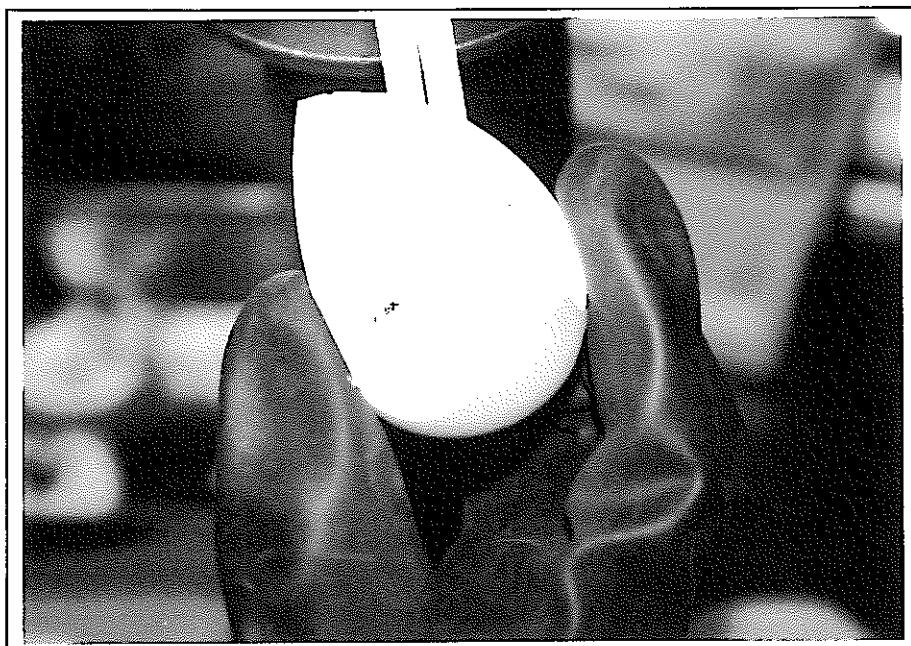


写真 7 Run No.15(CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況



写真 8 Run No.15(CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

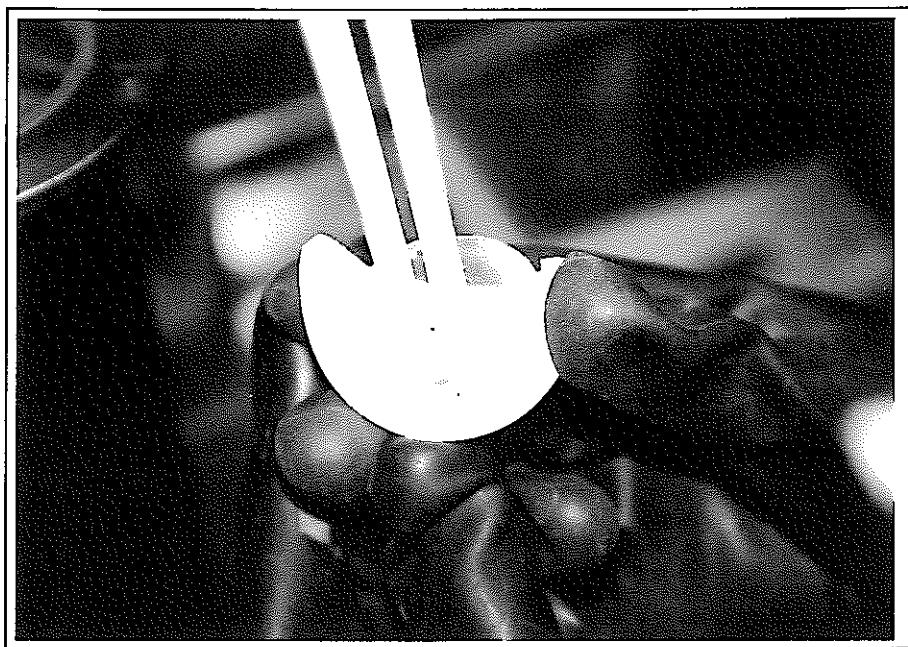


写真 9 Run No.3(CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況



写真 10 Run No.3(CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

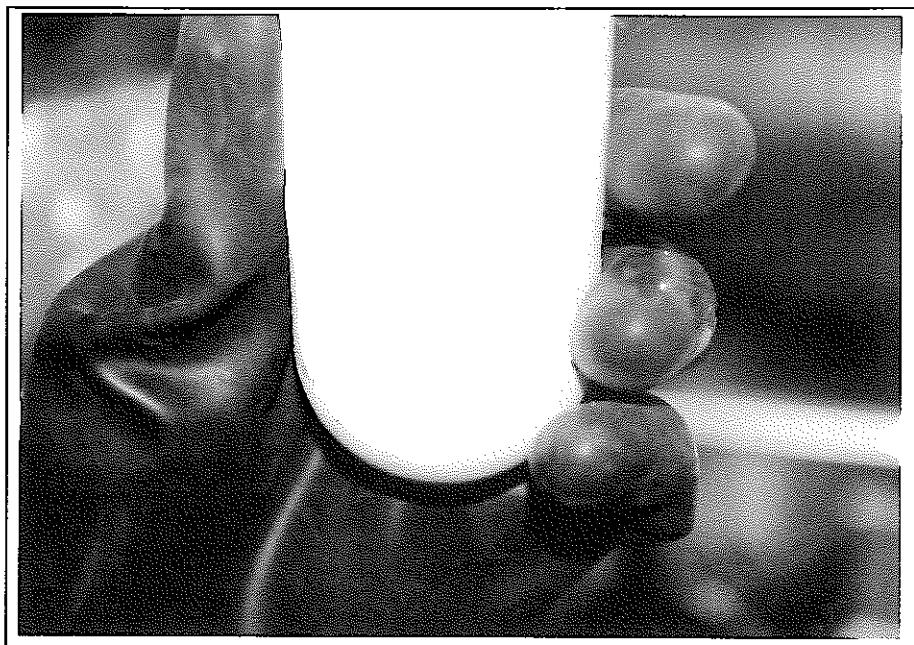


写真 11 Run No.12(CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況



写真 12 Run No.12(CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

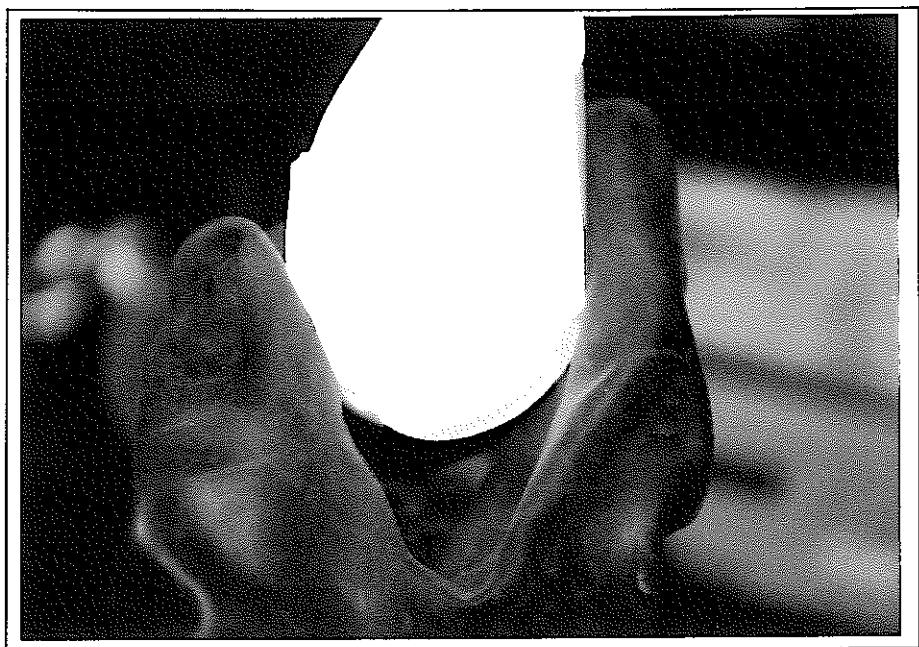


写真 13 Run No.9(CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況



写真 14 Run No.9(CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

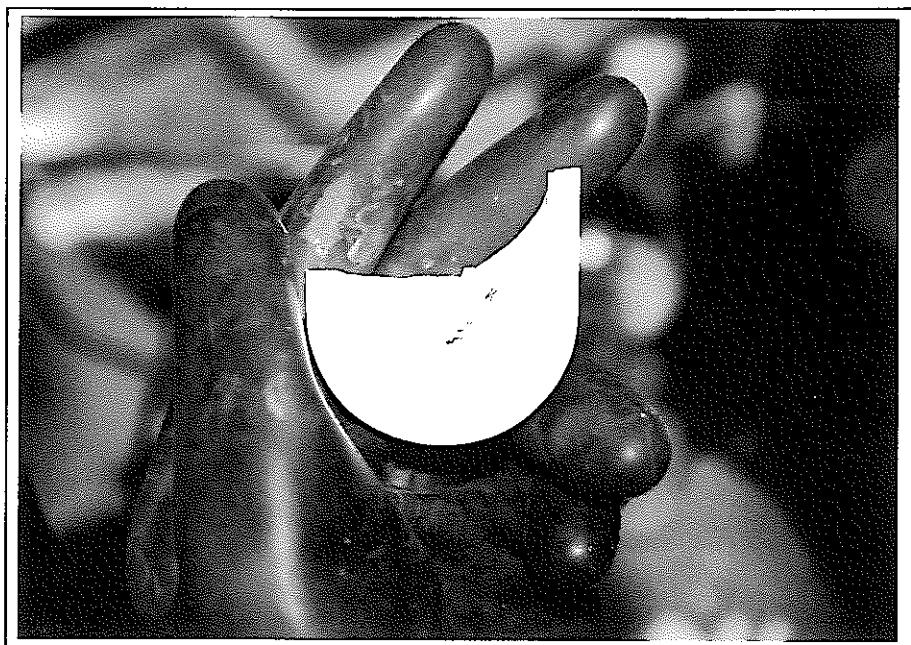


写真 15 Run No.7(NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件)処理試料状況



写真 16 Run No.7(NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件)処理容器上部状況

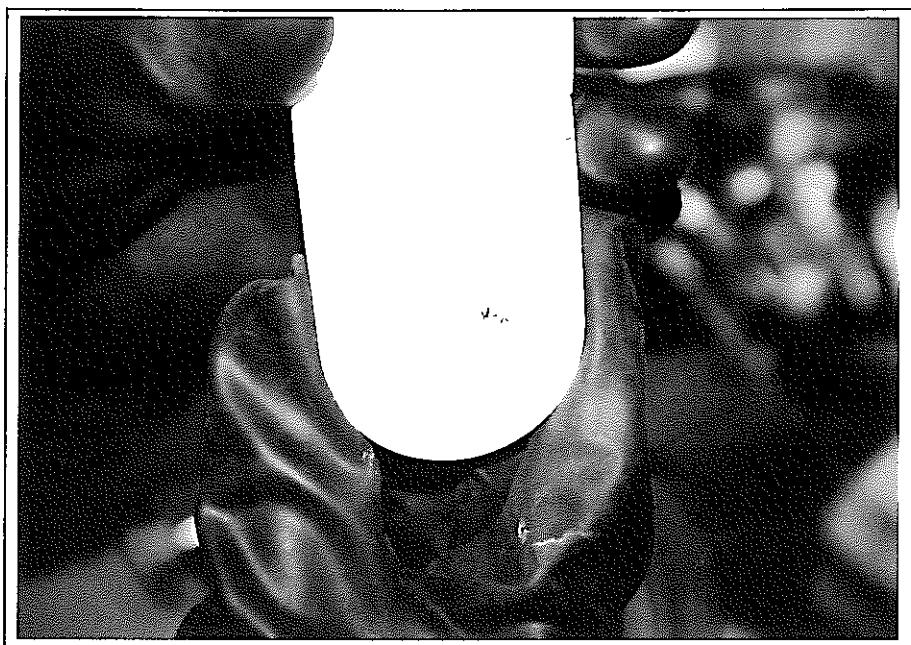


写真 17 Run No.4(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況



写真 18 Run No.4(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

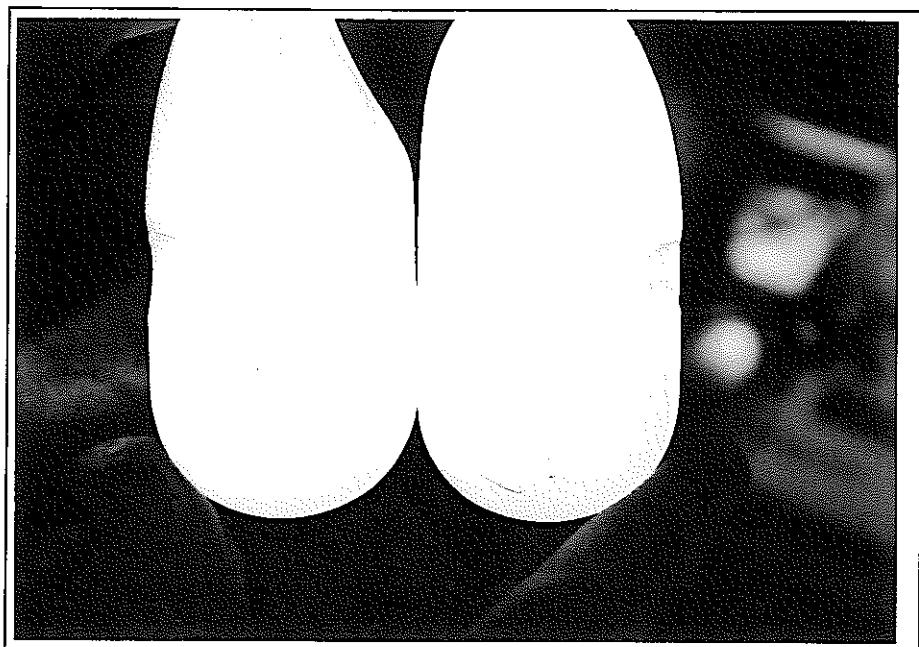


写真 19 Run No.13(NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件)処理試料状況



写真 20 Run No.13(NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件)処理容器上部状況



写真 21 Run No.16(NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件)処理試料状況



写真 22 Run No.16(NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件)処理容器上部状況



写真 23 Run No.22(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況



写真 24 Run No.22(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

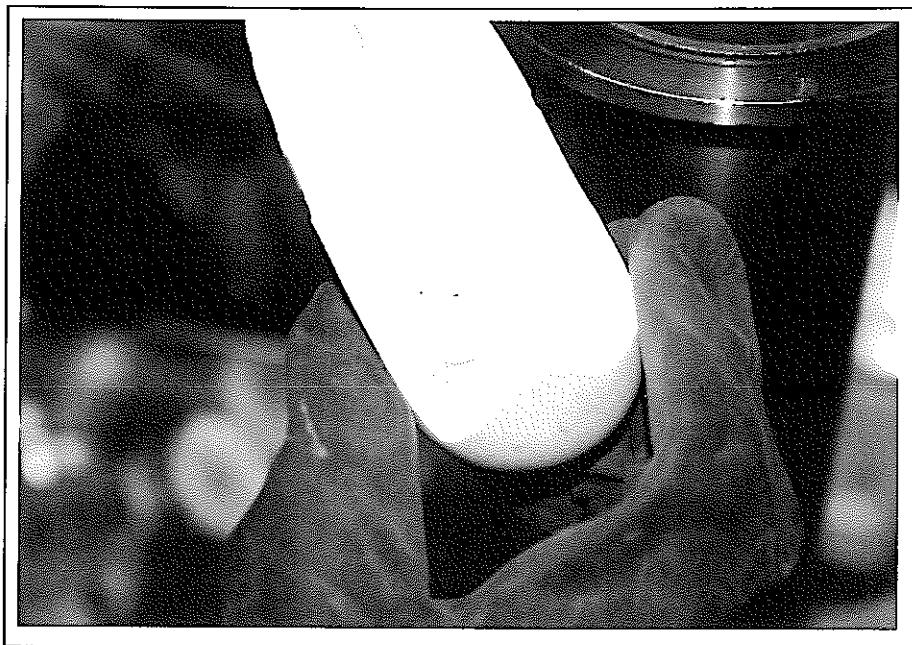


写真 25 Run No.24(NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件)処理試料状況



写真 26 Run No.24(NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件)処理容器上部状況

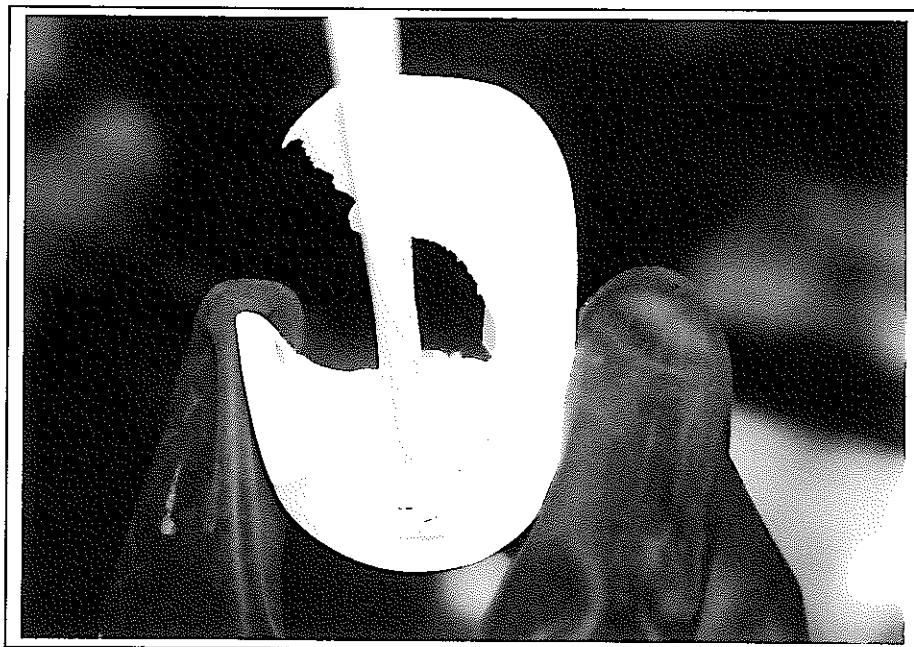


写真 27 Run No.20(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況

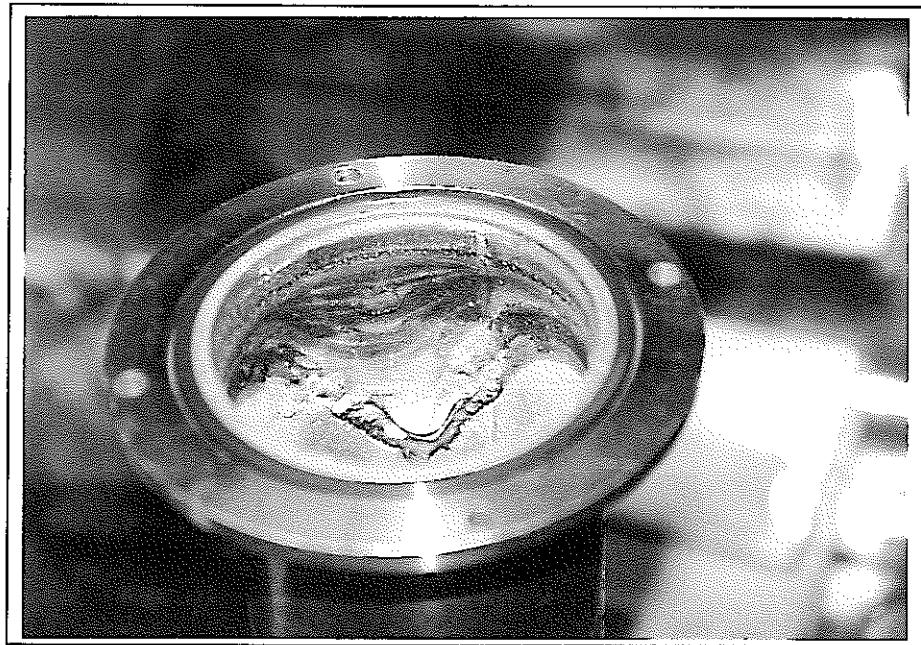


写真 28 Run No.20(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

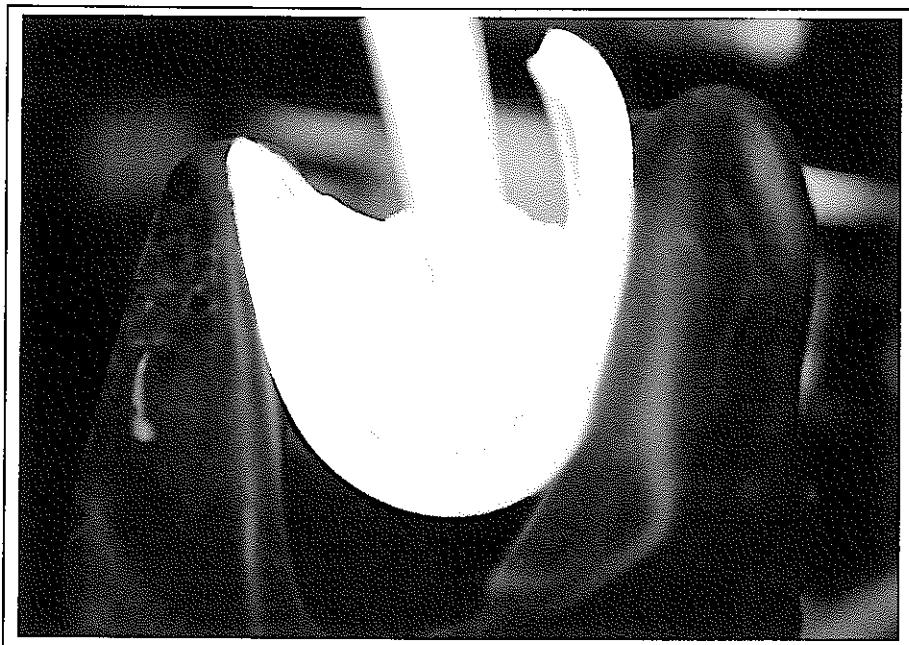


写真 29 Run No.21(NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件)処理試料状況



写真 30 Run No.21(NaCl-CsCl-B₂O₃ 試料条件)処理容器上部状況

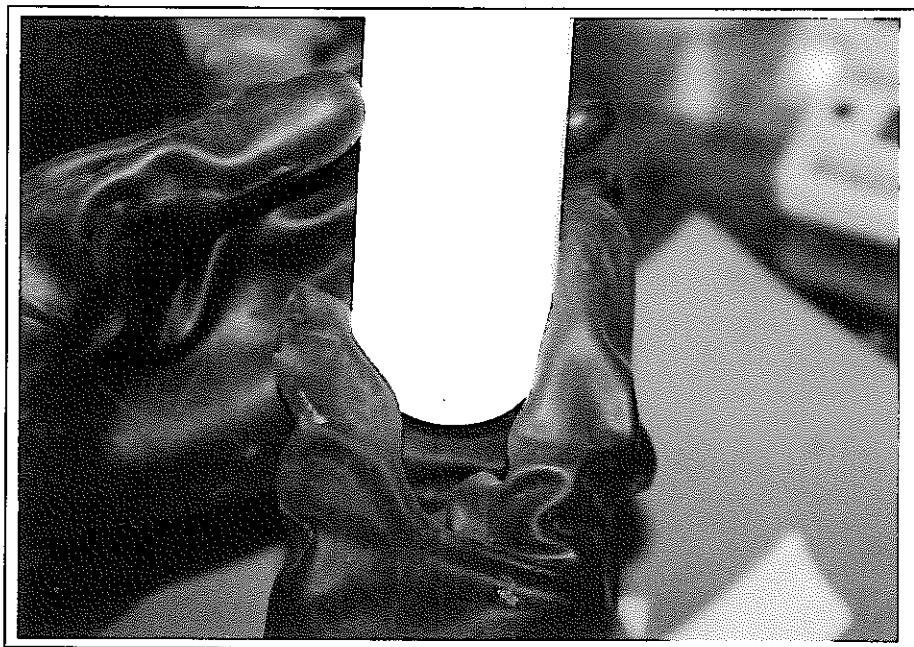


写真 31 Run No.23(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況

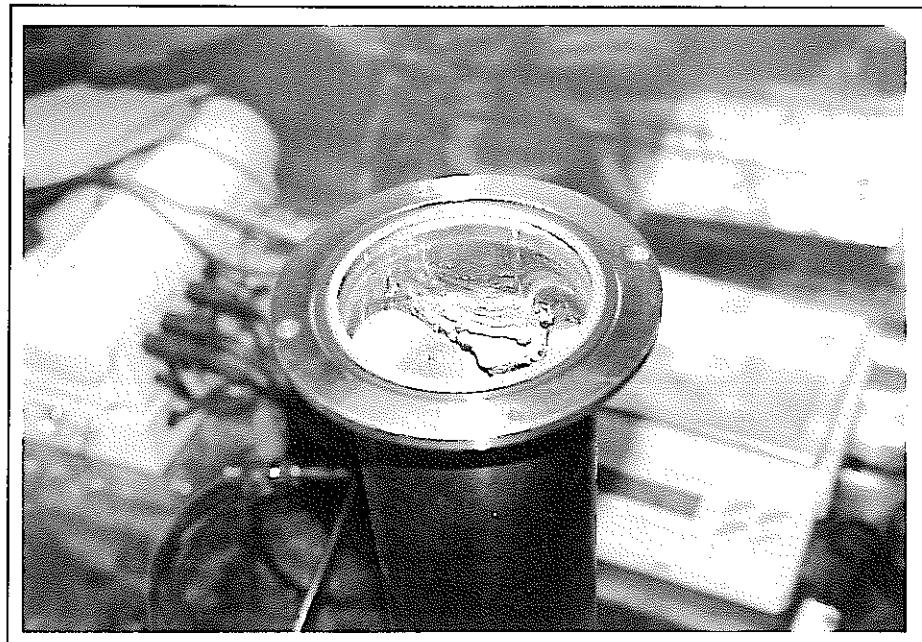


写真 32 Run No.23(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

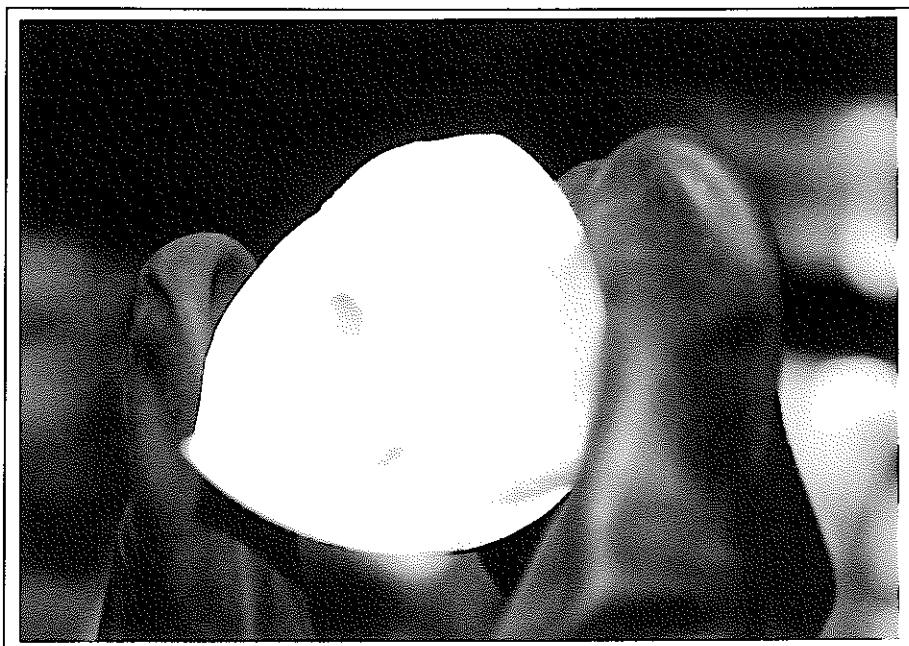


写真 33 Run No.10(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況



写真 34 Run No.10(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

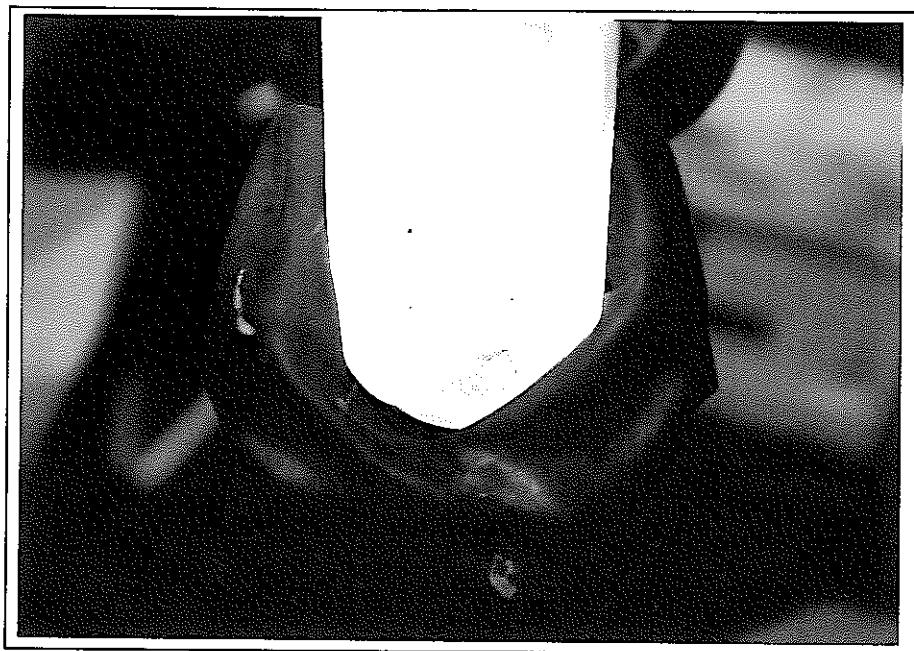


写真 35 Run No.14(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況



写真 36 Run No.14(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

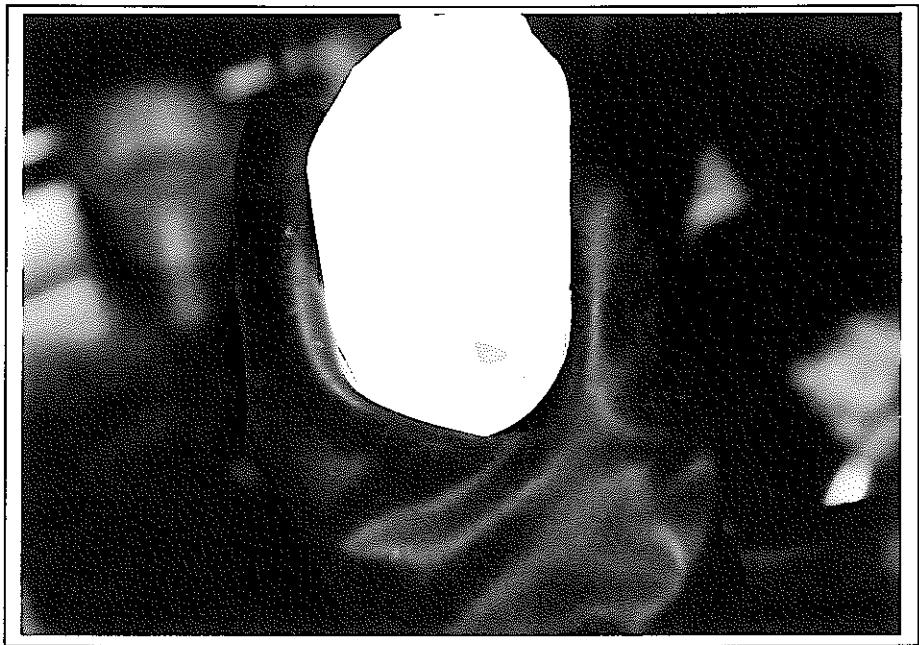


写真 37 Run No.5(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理試料状況



写真 38 Run No.5(NaCl-CsCl-B₂O₃試料条件)処理容器上部状況

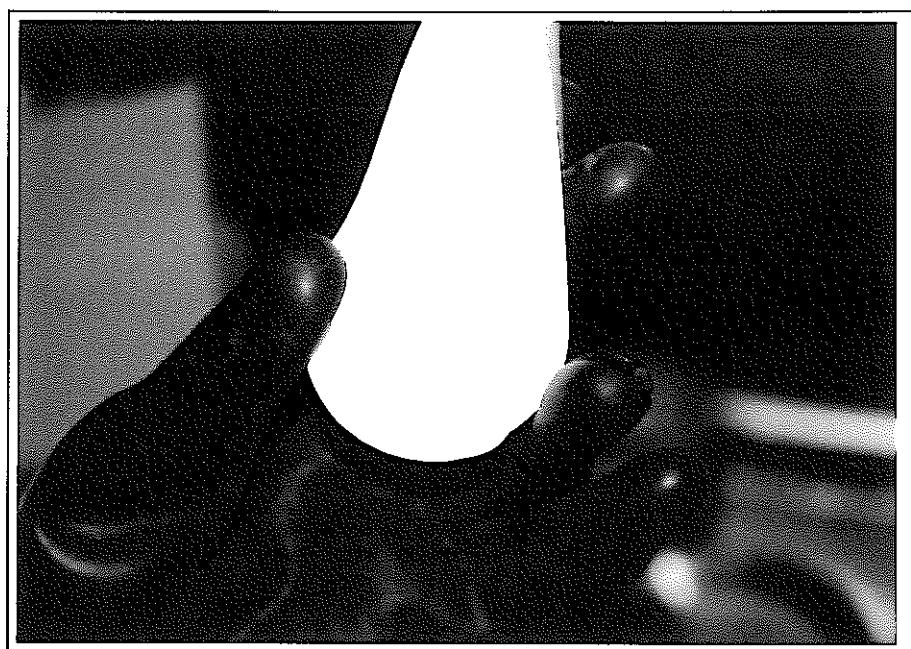


写真 39 Run No.6(CsCl-H₃BO₃試料条件)処理試料状況



写真 40 Run No.6(CsCl-H₃BO₃試料条件)処理容器上部状況

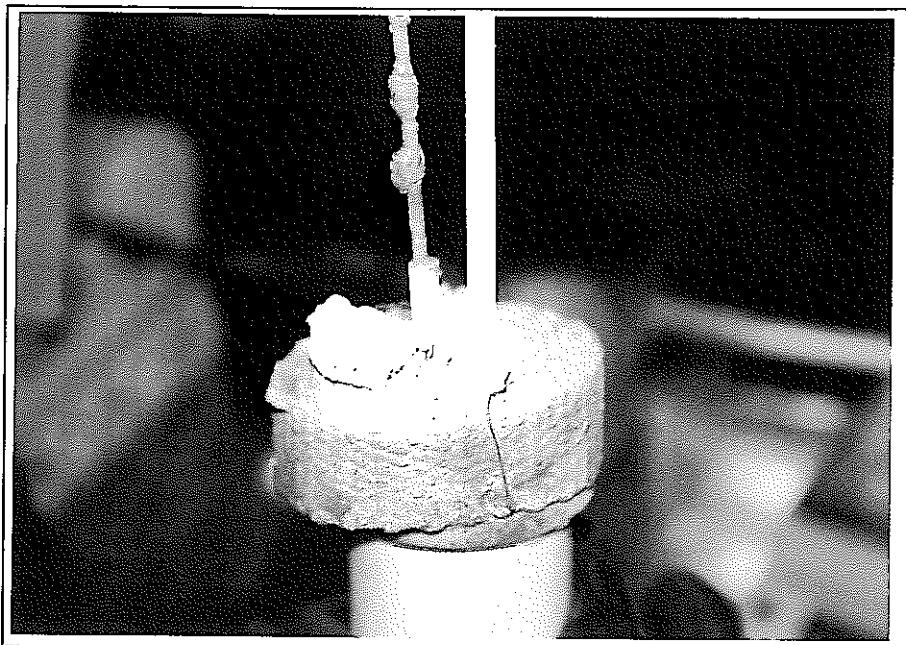


写真 41 Run No.6(CsCl-H₃BO₃試料条件)発泡噴出試料状況



写真 42 Run No.8(CsCl-H₃BO₃試料条件)処理試料状況



写真 43 Run No.8(CsCl-H₃BO₃ 試料条件)処理容器上部状況

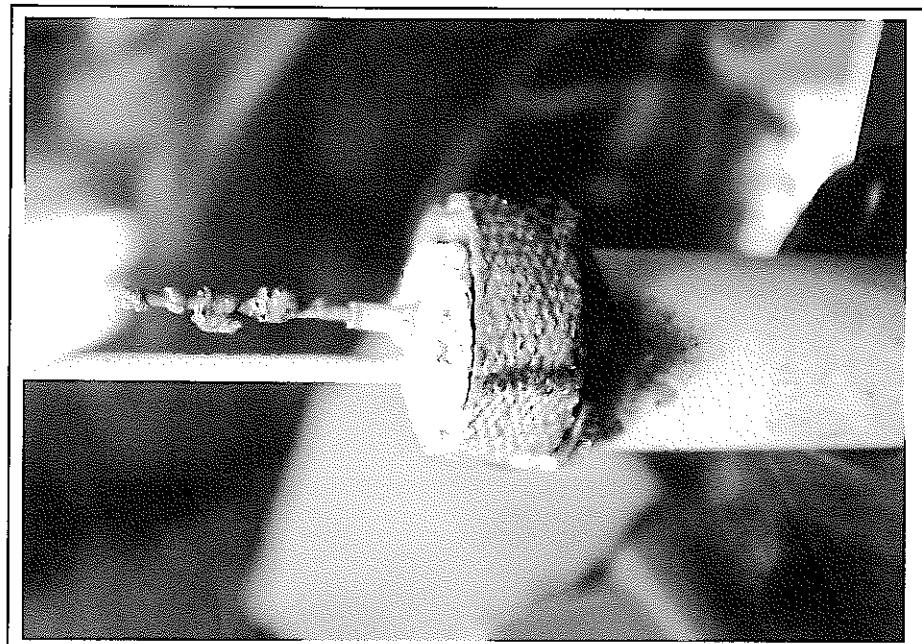


写真 44 Run No.8(CsCl-H₃BO₃ 試料条件)発泡試料状況



写真 45 Run No.17(CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト試料条件)処理試料状況



写真 46 Run No.17(CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト試料条件)処理容器上部状況



写真 47 Run No.19(CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト試料条件)処理試料状況



写真 48 Run No.19(CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト試料条件)処理容器上部状況

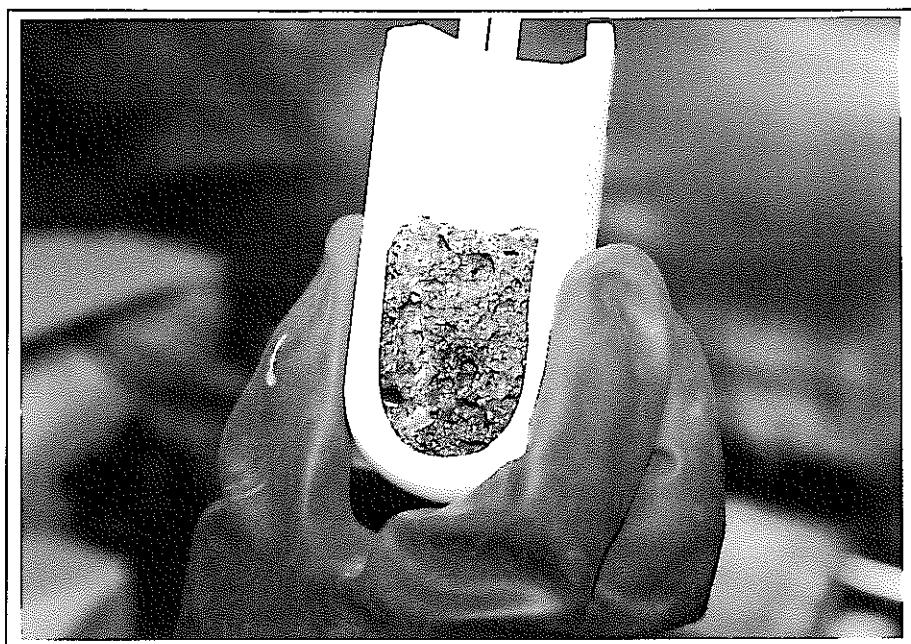


写真 49 Run No.18(NaCl-CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト試料条件)処理試料状況

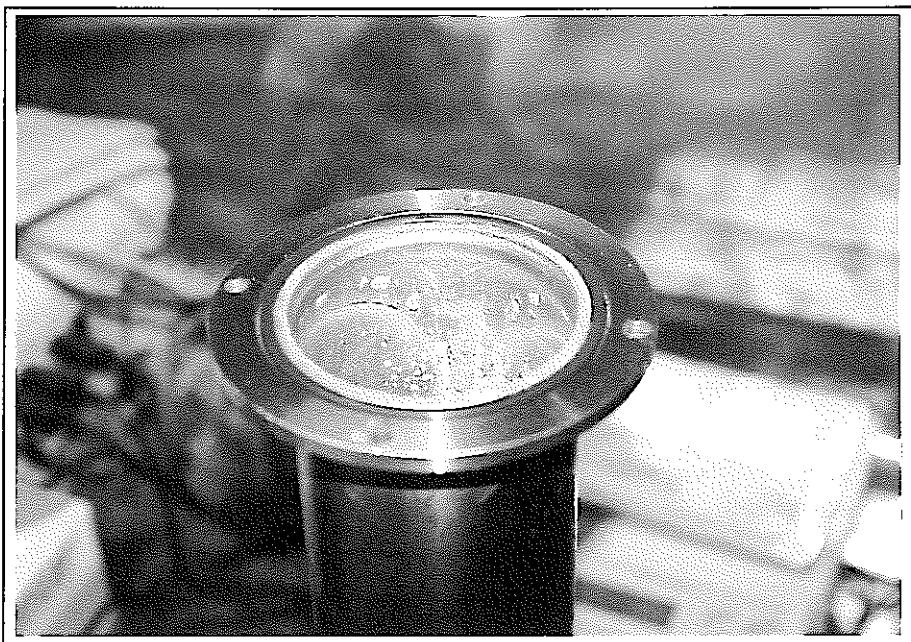


写真 50 Run No.18(NaCl-CsCl-B₂O₃-ハイドロソーダライト試料条件)処理容器上部状況

参考文献

E.M.Levin, C.R.Robbins, H.F.McMurde : Phase Diagrams for Ceramists, vol.1, The American Ceramic Society, pp.87～93 (1964)

E.M.Levin, C.R.Robbins, H.F.McMurde : Phase Diagrams for Ceramists, vol.3, The American Ceramic Society, P.80 (1964)

Y.Ikeda, et al:Conversion Reactions of Metal Chlorides into Oxides with Boric Acid, J. Nucl. Sci. Technol., vol.32, No.11, pp1138～1145(1995)

新井修, 照沼仁:塩廃棄物の処理に関する基礎試験, 機構技術資料, JNC TJ8400 2001-004, (2001)

鈴木憲司, 他:ハイドロソーダライトを用いた塩化水素高温除去, 工業材料, Vol.46, No.3, pp.69～71(1998)