

晶析工程におけるウラン結晶洗浄試験

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

2003年2月

三菱マテリアル株式会社

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒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
技術展開部 技術協力課

電話：029-282-1122(代表)
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

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)
2003

晶析工程におけるウラン結晶洗浄試験 (核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

山崎和彦* 近沢孝弘* 田巻喜久*

要 旨

晶析法は、新たな試薬を使用せずに、不純物を含む大量の U 溶液から、U のみを部分的に回収できることから、PUREX 法を基盤とする再処理技術に適合すると思われる。これまでに小規模試験を実施し、硝酸ウラニル結晶が得られることが確認されている。

これまでに行われた模擬溶解液を用いた晶析試験や、実溶解液を用いた晶析試験の結果から、FP の大半は硝酸ウラニル結晶に付着しているものと考えられる。したがって、硝酸ウラニル結晶の粒度が大きければ母液の付着量が相対的に減少し、FP の除染係数が向上することが予想される。

本試験では、結晶粒度を変化させた場合の除染係数の把握を目的として、ウラン - 模擬 FP 混合溶液を用いたウラン結晶洗浄試験を行い、硝酸ウラニル結晶の粒度の増大に伴い、模擬 FP の除染係数が向上する傾向にあることを確かめた。

本報告書は、三菱マテリアル株式会社が核燃料サイクル開発機構と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 先進再処理技術開発グループ

*三菱マテリアル株式会社

The study to wash UNH crystals in the reprocessing process
(Document Prepared by Other Institute, Based on The Contract)

Kazuhiko Yamasaki*, Takahiro Chikazawa* and Yoshihisa Tamaki*

Abstract

Crystallization procedure is considered to have an adaptability to new reprocessing process based on the PUREX process because it has an advantage in recovering rather pure uranium from contaminated uranium solution without any reagents. Up to now, a small-scale uranium test has been performed to confirm an applicability of crystallization.

We focus on the decontamination factor (DF) of FP in the crystallization procedure. Some mock experiments have been also performed and suggested that most of FP is on the surface of crystals in mother liquor. We expected that the content of the mother liquor decreases with increasing of the size of crystals. Consequently it is possible that the DF increases with increasing of the size of crystals.

In this study, we performed the experiment to estimate the DF of Ce () of various size of UNH crystals. And our expectation is confirmed.

This work was performed by Mitsubishi Materials Corporation under the contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute.

JNC Liaison : Recycle Process Technology Group, Advanced Fuel Cycle Technology Division,

Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works

* Mitsubishi Materials Corporation

目次

1. はじめに	1
1.1 研究目的	1
1.2 研究内容	1
1.3 研究期間	1
1.4 研究体制	1
2. 晶析工程におけるウラン結晶洗浄試験	2
2.1 試験の概要	2
2.2 試験方法	2
2.2.1 試験液の調製	2
2.2.2 ウラン結晶の準備	3
2.2.3 洗浄操作	3
2.2.4 評価項目	4
2.3 結果と考察	8
3. おわりに	32
4. 参考文献	33

目 次

図 2.2.3-1	硝酸ウラニル結晶スラリー攪拌装置の概略	5
図 2.2.3-2	硝酸ウラニル結晶スラリー吸引ろ過器の概略	6
図 2.2.3-3	試験の概略フロー	7
図 2.3.1-1	試験の外観 (1/2)	10
図 2.3.1-1	試験の外観 (2/2)	11
図 2.3.1-2	洗浄 2 回後の硝酸ウラニル結晶の粒度分布 (操作前: 100-300 μm)	20
図 2.3.1-3	洗浄 2 回後の硝酸ウラニル結晶の粒度分布 (操作前: 300-500 μm)	21
図 2.3.1-4	洗浄 2 回後の硝酸ウラニル結晶の粒度分布 (操作前: 500-710 μm)	22
図 2.3.1-5	洗浄 2 回後の硝酸ウラニル結晶の粒度分布 (操作前: 710-1000 μm)	23
図 2.3.1-6	硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (1/6)	24
図 2.3.1-6	硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (2/6)	25
図 2.3.1-6	硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (3/6)	26
図 2.3.1-6	硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (4/6)	27
図 2.3.1-6	硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (5/6)	28
図 2.3.1-6	硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (6/6)	29
図 2.3.1-7	除染係数 (DF) と平均粒径の関係	31

表 目 次

表 2.2.1-1	調製時の試験液等の組成	2
表 2.2.1-2	試験使用時の試験液等の組成	2
表 2.2.3-1	試験条件	4
表 2.3.1-1	試験結果のまとめ (Run1)	12
表 2.3.1-2	試験結果のまとめ (Run2)	13
表 2.3.1-3	試験結果のまとめ (Run3)	14
表 2.3.1-4	試験結果のまとめ (Run4)	15
表 2.3.1-5	試験結果のまとめ (Run5)	16
表 2.3.1-6	試験結果のまとめ (Run6)	17
表 2.3.1-7	試験結果のまとめ (Run7)	18
表 2.3.1-8	試験結果のまとめ (Run8)	19
表 2.3.1-9	除染係数評価結果のまとめ	30

1. はじめに

1.1 研究目的

先進湿式再処理法では、経済性向上及び廃棄物低減の観点から、溶解液からウランのみを部分的に回収し、溶媒抽出プロセスの処理量を削減する補完要素技術として晶析法に着目している。晶析法は温度による溶解度の違いを利用しており、新たな試薬を使用しないため、PUREX 法を基盤とする再処理プロセスに適合すると思われる。

晶析法導入再処理プロセスの実用化検討に必要なデータのうち、晶析工程におけるウラン結晶の洗浄による除染に関するデータは十分ではないため、平成 8 年度に模擬溶解液を用いた晶析試験を、平成 13 年度に実溶解液を用いた晶析試験を実施した。その結果、晶析工程で得られた硝酸ウラニル結晶の洗浄回数を増やすことにより Pu 及び FP の除染係数は向上することから、Pu 及び FP の大半は硝酸ウラニル結晶に付着しているものと考えられる。したがって、硝酸ウラニル結晶の粒度が大きければ母液の付着量が相対的に減少し、Pu 及び FP の除染係数が向上することが予想される。

本年度は、結晶粒度を変化させた場合の除染係数の把握を目的として、ウラン - 模擬 Pu 及び FP 混合溶液を用いたウラン結晶洗浄試験を行う。

1.2 研究内容

粒径を揃えたウラン結晶とウラン - 模擬 Pu 及び FP 混合溶液を用いてウラン結晶洗浄操作を行い、洗浄したウラン結晶の U 回収率、除染係数を求める。

1.3 研究期間

自 平成 14 年 10 月 10 日

至 平成 15 年 2 月 28 日

1.4 研究体制

委託者 核燃料サイクル開発機構

受託者 三菱マテリアル株式会社

2. 晶析工程におけるウラン結晶洗浄試験

2.1 試験の概要

本試験では、円環型晶析装置を用いて調製した硝酸ウラニル結晶¹⁾に対し、篩分法によって粒径を100～300 μm、300～500 μm、500～710 μm及び710～1000 μmの4種類の大きさに揃えた。次いで、それぞれの結晶を予め10℃まで冷却したウラン-模擬Pu、FPの飽和溶液を接触させ、晶析直後を模擬した。更に、この溶液をろ過して得た硝酸ウラニル結晶に、10℃における硝酸ウラニル飽和溶液を加えて洗浄した。以上の操作による物質収支、除染係数等を評価し、結晶粒径と洗浄効果の関係を検討した。

2.2 試験方法

2.2.1 試験液の調製

はじめに、硝酸ウラニルおよび模擬Pu、FPとしての硝酸セリウムを硝酸に溶解して、試験液を調製した。更に、同じウラン濃度、硝酸濃度の洗浄液を調製した。調製した試験液等の組成を表2.2.1-1に示す。

表 2.2.1-1 調製時の試験液等の組成

名称	ウラン濃度	セリウム濃度	硝酸濃度
試験液 1	200g/L	50g/L	6.6M
試験液 2		100g/L	
洗浄液			

なお、これらの溶液は、10℃で硝酸ウラニル結晶と接触した際に、新たな結晶核の発生、添加した結晶粒径の増大もしくは溶解による粒径の減少を防ぐため、10℃における飽和溶液である必要がある。これを確認するため、表2.2.1-1の組成の溶液を3℃まで冷却してウラン結晶を晶析させ、次いでこの溶液を10℃まで昇温し、攪拌しながら保持したところ、いずれの溶液についても未溶解の硝酸ウラニル結晶が残留した。従って、表2.2.1-1の組成の溶液は、10℃において過飽和濃度であり、一方この10℃で硝酸ウラニル結晶と混合状態にある溶液は飽和濃度にあると判断される。次に、2時間同温度で攪拌を続けて適宜サンプリングを行い、ウラン濃度を分析して一定であることを確認した後、ろ過して未溶解の結晶を分離した。以降の試験では、このろ液を試験液等として用いた。表2.2.1-2に、この溶液の組成をICP-AESで分析した値を記す。

表 2.2.1-2 試験使用時の試験液等の組成

名称	ウラン濃度	セリウム濃度	硝酸濃度
試験液 1	126g/L	53g/L	6.9M
試験液 2	120g/L	104g/L	7.0M
洗浄液	147g/L		7.0M

2.2.2 ウラン結晶の準備

円環型晶析装置を用いて調製した硝酸ウラニル結晶¹⁾に対し、粒径を篩分法で揃え、100～300 μm、300～500 μm、500～710 μm 及び 710～1000 μm の4種類の大きさの結晶を用意した。

2.2.3 洗浄操作

試験装置の概略を図 2.2.3-1～2 に示す。図 2.2.3-1 には、硝酸ウラニル結晶と試験液等を 10 に保ちつつ攪拌する浸漬・洗浄装置の概略を示す。ジャケット内には冷媒（60vol%エチレングリコール+40vol%水）が供給され、一定温度を保ちつつ、結晶と溶液を混合できる。図 2.2.3-2 には、浸漬・洗浄装置で生成したスラリを一定温度でろ過するろ過装置の概略を示す。同様に、ジャケット内に冷媒が供給され、一定温度を保ちつつ、結晶と溶液をろ過できる。

以下に操作の概要を記す。はじめに、表 2.2.1-2 の試験液を浸漬・洗浄装置に 50mL 張り込み、10 まで冷却した。次に、2.2.2 で準備した硝酸ウラニル結晶を、予め 10 まで冷却した後溶液中に加え、100rpm で 5 分間攪拌した。この間、容器内の温度がほぼ 10 に保たれていることを確認した。

次に、ろ過装置のジャケット部に 10 の冷媒を供給し、予め装置を冷却した。装置の表面温度が 10 以下であることを確認した後、浸漬・洗浄装置から結晶及び試験液を装置内に移し、アスピレーターで減圧ろ過した。ろ過は約 30 分間行い、3 分間にわたってろ過装置から新たなろ液の滴下が生じないことを確認した後終了した。ろ過後の溶液は母液として保管した。ろ過後の結晶は、約 1g をサンプリングした。なお、ろ過装置にはガラスフィルターが備えられており、ポアサイズは 100-160 μm であった。

更に、浸漬・洗浄装置内に、2.2.1 項で調製した洗浄液 20mL を張り込み、10 まで冷却した。この洗浄液にろ過後の結晶を加えて、100rpm で 5 分間攪拌した。その後、このスラリを再びろ過装置に移して減圧ろ過した。減圧ろ過は、結晶を試験液と混合した場合と同様に行った。ろ液は洗浄後液として保管した。この洗浄操作は 2 回行い、いずれの場合も約 1g の結晶を採取した。

なお、容器の洗浄は、操作毎に蒸留水を用いて十分に行い、特に 1 次洗浄水は保管

し、ウラン及びセリウムの洗浄水中に含まれる重量を評価した。その結果、操作毎の容器壁面への結晶等の付着によるウランのロス、結晶中に含まれるウラン重量の1%以下であることを確認した。

上記操作の概略は、図 2.2.3-3 に試験フローとして示した。また、ここでの試験条件を表 2.2.3-1 に示す。

表 2.2.3-1 試験条件

試験 No.	試験液組成	ウラン結晶の粒度分布
Run 1	試験液 1 ・ウラン濃度 : 126g/L ・セリウム濃度 : 53g/L	100 ~ 300 μm
Run 2		300 ~ 500 μm
Run 3		500 ~ 710 μm
Run 4		710 ~ 1000 μm
Run 5	試験液 2 ・ウラン濃度 : 120g/L ・セリウム濃度 : 104g/L	100 ~ 300 μm
Run 6		300 ~ 500 μm
Run 7		500 ~ 710 μm
Run 8		710 ~ 1000 μm

2.2.4 評価項目

本試験では、以下の項目を評価した。

試験液中のウラン、模擬 FP 元素（セリウム）濃度、硝酸濃度

洗浄液中のウラン濃度、硝酸濃度

洗浄操作後のウラン結晶量

洗浄操作後のウラン結晶の粒度分布

洗浄前及び洗浄後のウラン結晶の顕微鏡写真

洗浄前及び洗浄後の結晶中のウラン濃度並びに母液及び洗浄後液中のウラン濃度（ウラン物質収支）

洗浄前及び洗浄後の結晶中の模擬 FP 元素濃度並びに母液及び洗浄後液中の模擬 FP 元素濃度（模擬 FP 元素物質収支）

母液及び洗浄液中の硝酸濃度

元素濃度の定量には ICP-AES を用い、酸濃度の定量には中和滴定法を用いた。また、結晶の顕微鏡写真は、光学顕微鏡を用いて撮影した。粒度分布の評価は、篩分法を用いて行った。

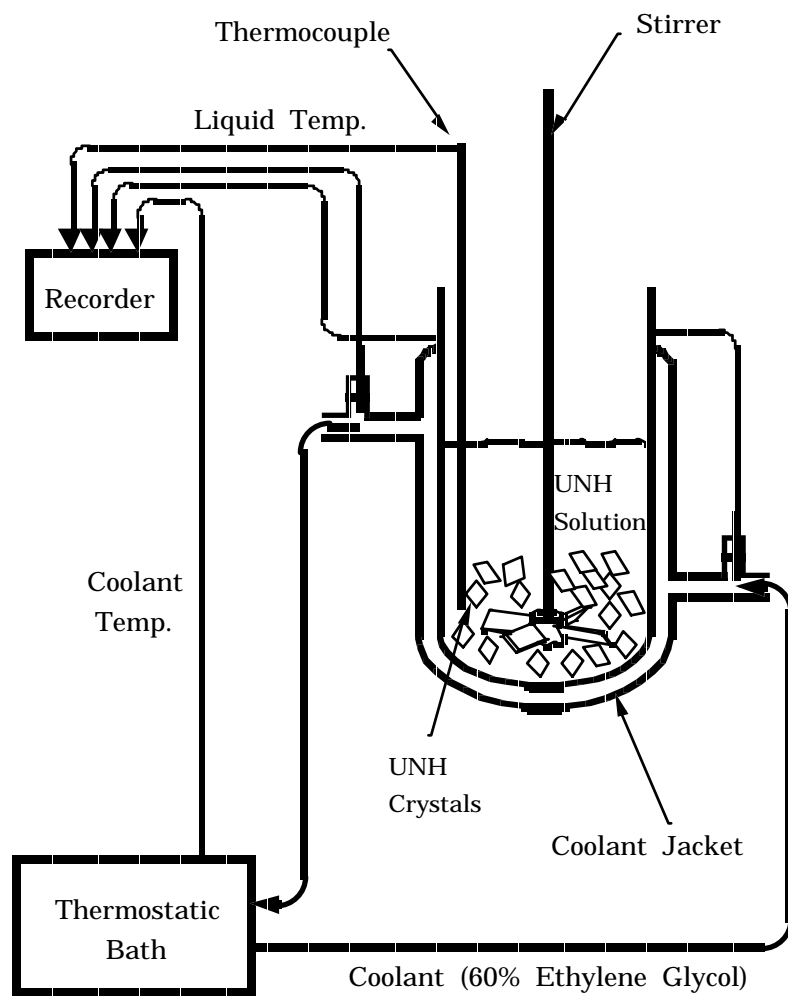


図 2.2.3-1 浸漬・洗浄装置の概略

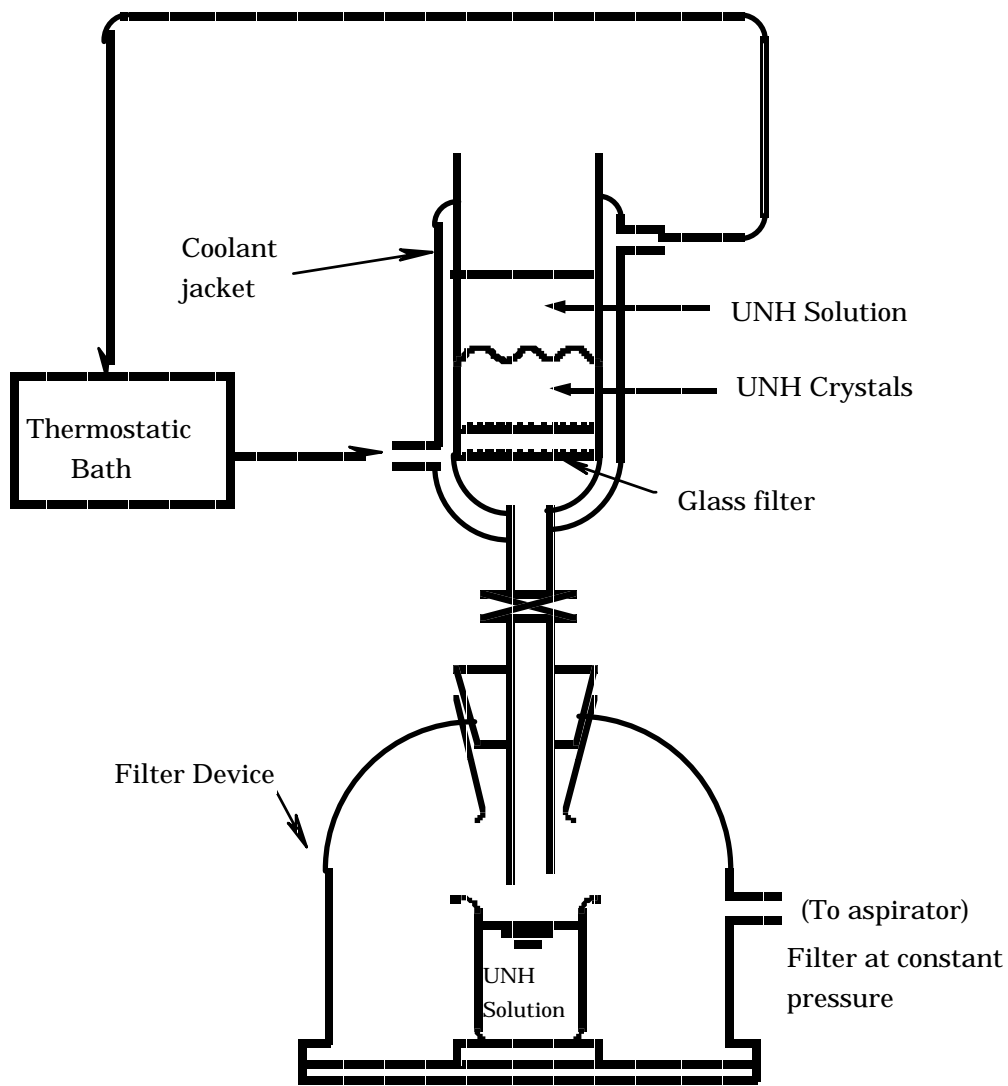


図 2.2.3-2 ろ過装置の概略

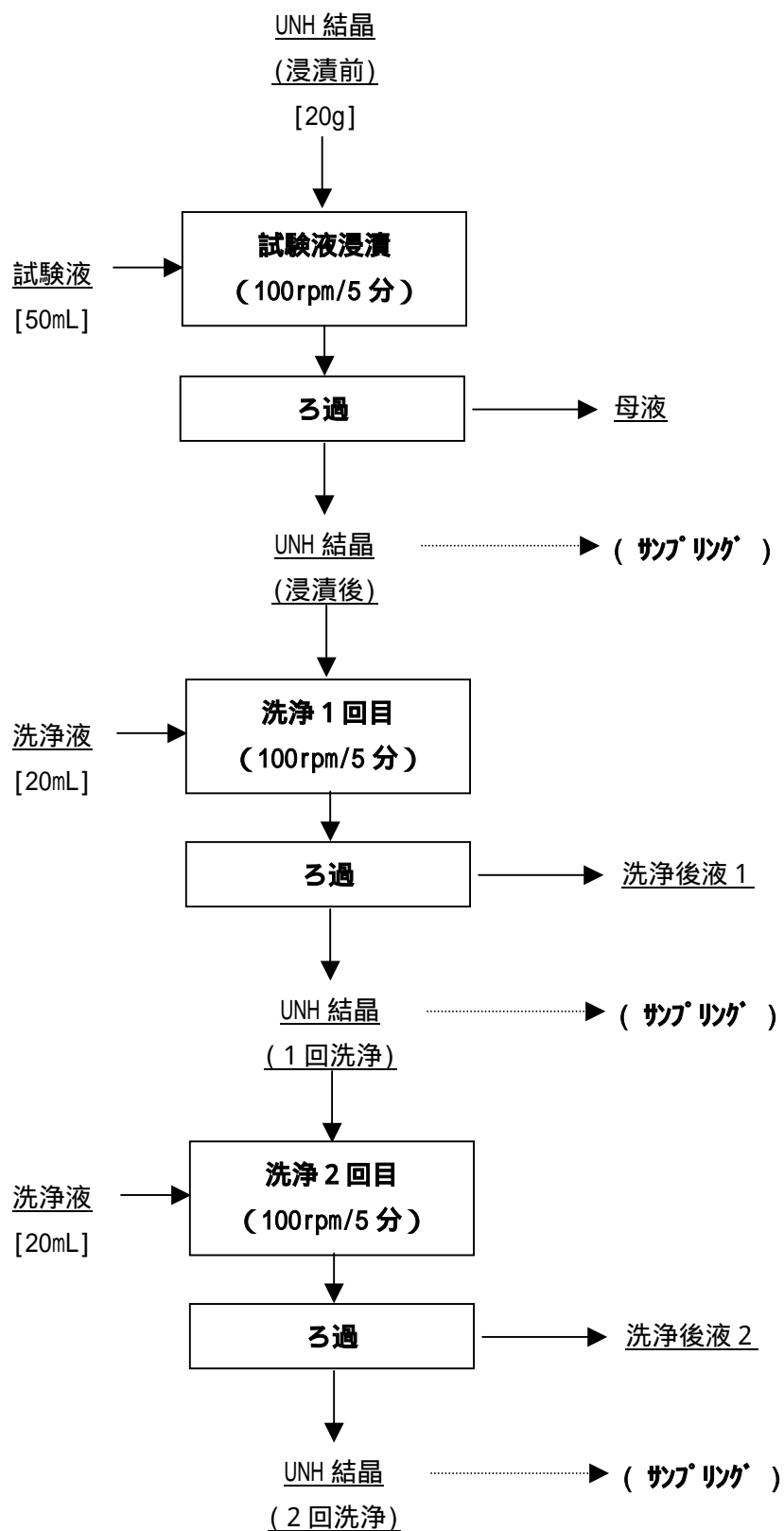


図 2.2.3-3 試験の概略フロー

2.3 結果と考察

本試験における外観を図 2.3.1-1 に、Run 1 ~ 8 における試験結果の詳細を表 2.3.1-1 ~ 8 に示す。各操作で加えたウラン及びセリウムの操作後の回収率は、いずれも $100 \pm 20\%$ 程度の範囲にあることから、試験結果は概ね妥当であるといえる。

次に、洗浄後の粒度分布を図 2.3.1-2 ~ 5 に、洗浄前後の硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真を図 2.3.1-6 に示す。これより、試験液への浸漬・洗浄操作後では、操作前の粒度範囲より小さい結晶が生じており、操作前の粒径が大きいほど、操作前より小粒径の結晶が生じる割合が多いことが分かる。その原因として、

- ・溶解によって粒子径が減少する。
- ・複数の結晶の凝集で形成された結晶粒が、浸漬・洗浄操作によって複数の結晶粒に分かれる。

などが挙げられる。

更に、除染係数 (DF) の評価結果のまとめを表 2.3.1-9 に、本試験において評価した DF と平均粒径の関係を図 2.3.1-7 に示す。ここでは、除染係数として、式(1)~(2)を定義した。

$$\text{洗浄 1 回あたりの DF} = \frac{\text{洗浄後結晶の Ce/U}}{\text{洗浄前結晶の Ce/U}} \quad \dots (1)$$

$$\text{操作全体の DF} = \frac{\text{2 回目洗浄後結晶の Ce/U}}{\text{試験液浸漬後結晶の Ce/U}} \quad \dots (2)$$

また、平均粒径として、

洗浄操作前の粒度分布の中央値

洗浄操作後の粒度分布の重量平均値

を併記した。いずれもの平均粒径の場合も、平均粒径の増大 (比表面積の減少) に伴い、DF が増大する傾向が見られた。

本試験で評価される DF は、結晶表面への溶液付着量と、洗浄による除染効果と関係する。まず、結晶の比表面積 (= 表面積 / 体積) は、結晶形状が球形であるとみなすと(3)式のようなになる。

$$\text{比表面積} = 4\pi r^2 \bigg/ \left(\frac{4}{3}\pi r^3 \right) = 3/r \quad \dots (3)$$

(r : 半径)

更に、以下の仮定が成立していた場合、

- ・浸漬・洗浄操作によって、結晶表面の付着溶液と周囲の試験液・洗浄液中の Ce 濃度が均一になる。
- ・ろ過後の結晶において、単位面積あたりに付着する溶液量が粒径によらず一定になる。

DF は比表面積に反比例することになる。これは、(3)式より DF と平均粒径が比例関係

にあることを意味する。図 2.3.1-7 中に、 の平均粒径で最大粒径の結晶における DF の測定値を基準とし、上記の仮定から比表面積より計算した DF を示した。実際に測定された DF は、平均粒径との間に比例関係を示さず、計算値よりも高い値を示した。

このように、DF が平均粒径と比例しない理由として、以下が挙げられる。

- ・ ケーキ構成粒子の粒径の減少は、結晶間の間隙を狭くすることから、例えば結晶間にブリッジを形成した液滴が吸引されるなどの効果により、単位面積あたりの付着液量を減らす効果があることが推測される。また、実際に粒径とケーキ中残留液量が反比例することも経験上考えにくい。この効果は、粒径減少時に DF を増大させる。
- ・ ケーキ構成粒子の粒径の減少は、単位体積のケーキ中に含まれる粒子の総表面積の増大をもたらす。この結果、洗浄液と結晶表面の液交換に要する時間が増大する可能性がある。この効果は、粒径減少時に DF を減少させる。

今回得られた DF と平均粒径の関係は、上記のような効果が複合的に寄与することでもたらされたものと推測される。いずれにせよ、粒径の増大が単位重量あたりの母液の付着量を減少させ、FP の DF を向上に寄与することを確認した。

なお、洗浄液と結晶表面の液交換が十分行われているとすると、DF は洗浄液と残留母液の体積比であることから、単位重量あたりの硝酸ウラニル結晶への母液付着量を見積もることができる。おおよそ 20g の結晶に対し、洗浄液を 20mL 加えていることから、DF20 では残留液量は 1mL、DF10 では同 2mL であることが推測される。従って、ろ過後の硝酸ウラニル結晶において、0.05 ~ 0.10mL/g 程度の母液付着量があるものと考えられる。



(1) 洗淨液及び結晶張り込み時



(2) 洗淨操作

図 2.3.1-1 試験の外観 (1/2)



(3) 洗淨液及び結晶のろ過器への張り込み

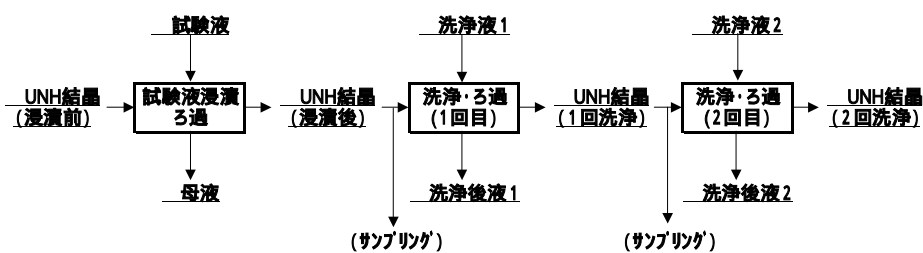


(4) ろ過操作

図 2.3.1-1 試験の外観 (2/2)

表 2.3.1-1 試験結果のまとめ (Run1)

Run1	
条件	UNH結晶粒径: 100-300 μm 試験液中模擬FP濃度: 53g-Ce/L



概略の試験フロー

元素濃度分析値				
番号	試料名	液量(mL)	濃度	
			g-U/L	mg-Ce/L
	試験液	50.0	126	53*
	洗浄液1	20.0	147	
	洗浄液2	20.0	147	
	母液	46.7	128	51*
	洗浄後液1	19.8	160	3521
	洗浄後液2	19.5	157	332
番号	試料名	重量(g)	mg-U/g	μg-Ce/g
	結晶(浸漬前)	20.0	441	
	結晶(試験液浸漬後)	20.5	415	3623
	結晶(1回目洗浄後)	18.3	421	352
	結晶(2回目洗浄後)	18.0	431	37

除染係数		Ce/U	Ce-DF	Ce-DF
番号	試料名	濃度比	(各回***)	(全体****)
	結晶(試験液浸漬後)	8.7E-03		
	結晶(1回目洗浄後)	8.4E-04	10	
	結晶(2回目洗浄後)	8.7E-05	10	100

酸濃度分析値			
番号	試料名	液量(mL)	濃度
			mol/L
	試験液	50.0	6.9
	洗浄液1	20.0	7.0
	洗浄液2	20.0	7.0
	母液	46.7	6.9
	洗浄後液1	19.8	6.9
	洗浄後液2	19.5	6.9

各操作の物質収支				
分類	試料名	g-U	mg-Ce	
試験液浸漬	入		6.3	2650
		合計	15.1	2650
	出		6.0	2382
		合計	14.5	2456
	回収率 (%)		96	93
	洗浄 (1回目)	入		2.9
合計			11.0	69
出			3.2	70
		合計	10.9	76
回収率 (%)		99	110	
洗浄 (2回目)		入		2.9
	合計		10.2	6.1
	出		3.1	6.5
		合計	10.9	7.2
	回収率 (%)		107	118

*単位: g/L

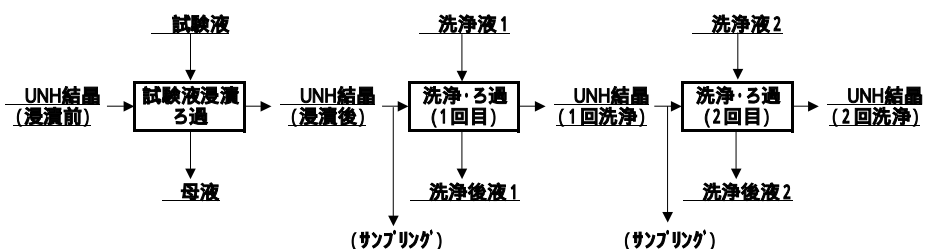
**分析に約1g-UNH使用

***洗浄操作各回における除染係数(DF)

****洗浄操作2回分の除染係数(DF)

表 2.3.1-2 試験結果のまとめ (Run2)

Run2	
条件	UNH結晶粒径: 300-500 μm 試験液中模擬FP濃度: 53g-Ce/L



概略の試験フロー

元素濃度分析値				
番号	試料名	液量(mL)	濃度	
			g-U/L	mg-Ce/L
	試験液	50.0	126	53
	洗浄液1	20.0	147	
	洗浄液2	20.0	147	
	母液	48.7	130	50
	洗浄後液1	19.8	154	2662
	洗浄後液2	19.9	156	159
番号	試料名	重量(g)	mg-U/g	μg-Ce/g
	結晶(浸漬前)	20.0	441	
	結晶(試験液浸漬後)	20.5	455	2477
	結晶(1回目洗浄後)	18.3	441	164
	結晶(2回目洗浄後)	16.1	453	12

除染係数			
番号	試料名	Ce/U 濃度比	Ce-DF (各回***) Ce-DF (全体****)
	結晶(試験液浸漬後)	5.4E-03	
	結晶(1回目洗浄後)	3.7E-04	15
	結晶(2回目洗浄後)	2.7E-05	14

酸濃度分析値			
番号	試料名	液量(mL)	濃度
			mol/L
	試験液	50.0	6.9
	洗浄液1	20.0	7.0
	洗浄液2	20.0	7.0
	母液	48.7	7.0
	洗浄後液1	19.8	7.0
	洗浄後液2	19.9	7.0

各操作の物質収支				
	分類	試料名	g-U	mg-Ce
試験液浸漬	入		6.3	2650
			8.8	
		合計	15.1	2650
	出		6.3	2435
			9.3	51
		合計	15.6	2486
回収率 (%)			103	94
洗浄(1回目)	分類	試料名	g-U	mg-Ce
	入		2.9	
		**	8.9	47
	合計	11.8	47	
	出		3.0	53
合計		8.1	3	
回収率 (%)			94	119
洗浄(2回目)	分類	試料名	g-U	mg-Ce
	入		2.9	
		**	7.6	2.8
	合計	10.5	2.8	
	出		3.1	3.2
合計		7.3	0.2	
回収率 (%)			99	121

*単位: g/L

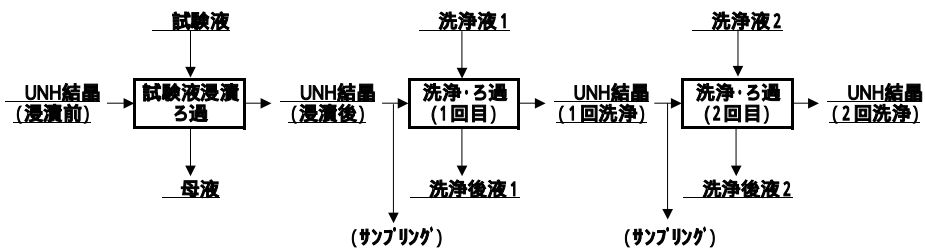
**分析に約1g-UNH使用

***洗浄操作各回における除染係数(DF)

****洗浄操作2回分の除染係数(DF)

表 2.3.1-3 試験結果のまとめ (Run3)

Run3	
条件	UNH結晶粒径: 500-710 μm 試験液中模擬FP濃度: 53g-Ce/L



概略の試験フロー

濃度分析値				
番号	試料名	液量(mL)	濃度	
			g-U/L	mg-Ce/L
	試験液	50.0	126	53
	洗浄液1	20.0	147	
	洗浄液2	20.0	147	
	母液	48.0	125	52
	洗浄後液1	19.9	143	1791
	洗浄後液2	20.0	148	78
番号	試料名	重量(g)	mg-U/g	μg-Ce/g
	結晶(浸漬前)	20.0	441	
	結晶(試験液浸漬後)	20.8	438	1878
	結晶(1回目洗浄後)	18.9	428	94
	結晶(2回目洗浄後)	16.8	434	5

除染係数			
番号	試料名	Ce/U 濃度比	Ce-DF (各回***) Ce-DF (全体****)
	結晶(試験液浸漬後)	4.3E-03	
	結晶(1回目洗浄後)	2.2E-04	20
	結晶(2回目洗浄後)	1.2E-05	18

酸濃度分析値			
番号	試料名	液量(mL)	濃度
			mol/L
	試験液	50.0	6.9
	洗浄液1	20.0	7.0
	洗浄液2	20.0	7.0
	母液	48.0	6.9
	洗浄後液1	19.9	7.0
	洗浄後液2	20.0	7.1

各操作の物質収支				
	分類	試料名	g-U	mg-Ce
試験液浸漬	入		6.3	2650
			8.8	
		合計	15.1	2650
	出		6.0	2496
			9.1	39
		合計	15.1	2535
回収率 (%)			100	96
洗浄 (1回目)	分類	試料名	g-U	mg-Ce
	入		2.9	
		**	8.7	36
		合計	11.6	36
	出		2.8	36
		8.1	2	
合計		10.9	37	
回収率 (%)			94	103
洗浄 (2回目)	分類	試料名	g-U	mg-Ce
	入		2.9	
		**	7.7	1.7
		合計	10.6	1.7
	出		3.0	1.6
		7.3	0.1	
合計		10.3	1.6	
回収率 (%)			97	94

*単位: g/L

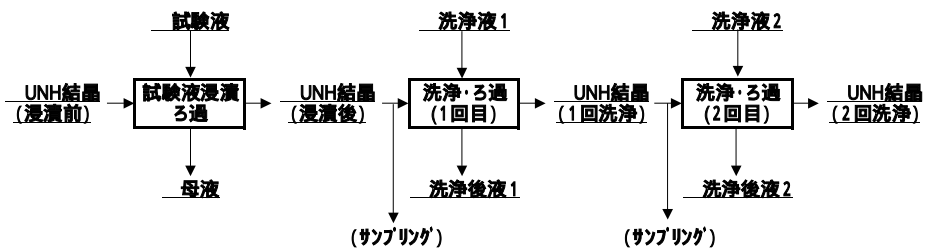
**分析に約1g-UNH使用

***洗浄操作各回における除染係数 (DF)

****洗浄操作2回分の除染係数 (DF)

表 2.3.1-4 試験結果のまとめ (Run4)

Run4	
条件	UNH結晶粒径:710-1000 μm 試験液中模擬FP濃度:53g-Ce/L



概略の試験フロー

濃度分析値				
番号	試料名	液量(mL)	濃度	
			g-U/L	mg-Ce/L
	試験液	50.0	126	53
	洗浄液1	20.0	147	
	洗浄液2	20.0	147	
	母液	48.0	127	55
	洗浄後液1	19.8	151	1212
	洗浄後液2	19.8	153.3	52
番号	試料名	重量(g)	mg-U/g	μg-Ce/g
	結晶(浸漬前)	20.0	441	
	結晶(試験液浸漬後)	20.8	446	1202
	結晶(1回目洗浄後)	18.9	448	55
	結晶(2回目洗浄後)	17.0	440	2

除染係数			
番号	試料名	Ce/U 濃度比	Ce-DF (各回***) Ce-DF (全体****)
	結晶(試験液浸漬後)	2.7E-03	
	結晶(1回目洗浄後)	1.2E-04	22
	結晶(2回目洗浄後)	5.5E-06	23 510

酸濃度分析値			
番号	試料名	液量(mL)	濃度
			mol/L
	試験液	50.0	6.9
	洗浄液1	20.0	7.0
	洗浄液2	20.0	7.0
	母液	48.0	7.0
	洗浄後液1	19.8	7.0
	洗浄後液2	19.8	7.1

各操作の物質収支				
	分類	試料名	g-U	mg-Ce
試験液浸漬	入		6.3	2650
			8.8	
		合計	15.1	2650
	出		6.1	2640
			9.3	25
		合計	15.4	2665
	回収率 (%)		102	101
洗浄(1回目)	入		2.9	
		**	8.8	23
	合計	11.7	23	
	出		3.0	24
			8.5	1
		合計	11.5	25
	回収率 (%)		98	109
洗浄(2回目)	入		2.9	
		**	8.0	1.0
	合計	10.9	1.0	
	出		3.0	1.0
			7.5	0.0
		合計	10.5	1.1
	回収率 (%)		96	110

*単位: g/L

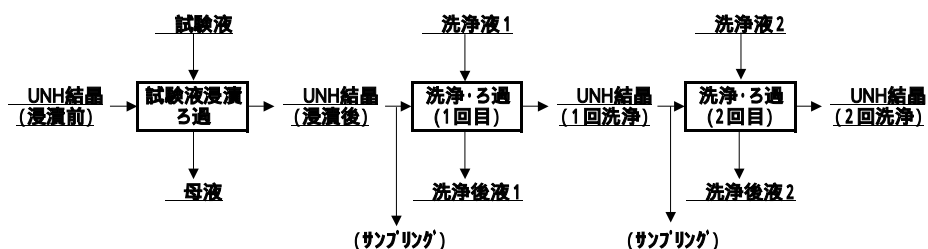
**分析に約1g-UNH使用

***洗浄操作各回における除染係数(DF)

****洗浄操作2回分の除染係数(DF)

表 2.3.1-5 試験結果のまとめ (Run5)

Run5	
条件	UNH結晶粒径: 100-300 μm 試験液中模擬FP濃度: 104g-Ce/L



概略の試験フロー

濃度分析値				
番号	試料名	液量(mL)	濃度	
			g-U/L	mg-Ce/L
	試験液	50.0	120	104*
	洗浄液1	20.0	147	
	洗浄液2	20.0	147	
	母液	48.4	125	100*
	洗浄後液1	19.3	159	7260
	洗浄後液2	19.5	158	756
番号	試料名	重量(g)	mg-U/g	μg-Ce/g
	結晶 (浸漬前)	20.0	441	
	結晶 (試験液浸漬後)	23.0	386	8100
	結晶 (1回目洗浄後)	21.0	425	864
	結晶 (2回目洗浄後)	19.7	376	84

除染係数				
番号	試料名	Ce/U 濃度比	Ce-DF (各回**)	Ce-DF (全体****)
	結晶 (試験液浸漬後)	2.1E-02		
	結晶 (1回目洗浄後)	2.0E-03	10	
	結晶 (2回目洗浄後)	2.2E-04	9	90

酸濃度分析値			
番号	試料名	液量(mL)	濃度
			mol/L
	試験液	50.0	7.0
	洗浄液1	20.0	7.0
	洗浄液2	20.0	7.0
	母液	48.4	7.1
	洗浄後液1	19.3	7.0
	洗浄後液2	19.5	7.1

各操作の物質収支				
	分類	試料名	g-U	mg-Ce
試験液浸漬	入		6.0	5200
			8.8	
		合計	14.8	5200
	出		6.1	4840
			8.9	186
		合計	15.0	5026
回収率 (%)			101	97
洗浄 (1回目)	分類	試料名	g-U	mg-Ce
	入		2.9	
		**	8.5	174
	合計	11.4	174	
	出		3.1	140
合計		8.9	18	
回収率 (%)			105	91
洗浄 (2回目)	分類	試料名	g-U	mg-Ce
	入		2.9	
		**	8.5	17.3
	合計	11.4	17.3	
	出		3.1	14.7
合計		7.4	1.7	
回収率 (%)			92	95

*単位: g/L

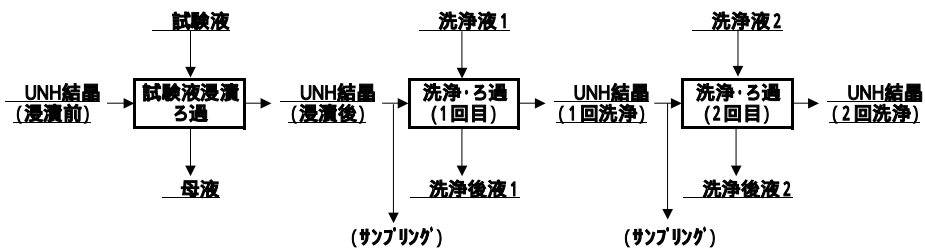
**分析に約1g-UNH使用

***洗浄操作各回における除染係数 (DF)

****洗浄操作2回分の除染係数 (DF)

表 2.3.1-6 試験結果のまとめ (Run6)

Run6	
条件	UNH結晶粒径: 300-500 μm
	試験液中模擬FP濃度: 104g-Ce/L



概略の試験フロー

濃度分析値				
番号	試料名	液量(mL)	濃度	
			g-U/L	mg-Ce/L
	試験液	50.0	120	104*
	洗浄液1	20.0	147	
	洗浄液2	20.0	147	
	母液	48.5	125	105*
	洗浄後液1	19.8	154	4795
	洗浄後液2	20.0	157	278
番号	試料名	重量(g)	mg-U/g	μg-Ce/g
	結晶(浸漬前)	20.0	441	
	結晶(試験液浸漬後)	20.7	442	5740
	結晶(1回目洗浄後)	18.8	461	350
	結晶(2回目洗浄後)	16.7	456	22

除染係数				
番号	試料名	Ce/U 濃度比	Ce-DF (各回**)	Ce-DF (全体****)
	結晶(試験液浸漬後)	1.3E-02		
	結晶(1回目洗浄後)	7.6E-04	17	
	結晶(2回目洗浄後)	4.9E-05	15	260

酸濃度分析値			
番号	試料名	液量(mL)	濃度
			mol/L
	試験液	50.0	7.0
	洗浄液1	20.0	7.0
	洗浄液2	20.0	7.0
	母液	48.5	7.1
	洗浄後液1	19.8	6.9
	洗浄後液2	20.0	6.9

各操作の物質収支				
	分類	試料名	g-U	mg-Ce
試験液浸漬	入		6.0	5200
			8.8	
		合計	14.8	5200
	出		6.1	5093
			9.2	119
		合計	15.3	5211
回収率 (%)			103	100
洗浄 (1回目)	入		2.9	
		**	8.7	110
		合計	11.6	110
	出		3.0	95
			8.7	7
		合計	11.7	102
回収率 (%)			101	93
洗浄 (2回目)	入		2.9	
		**	8.2	6.2
		合計	11.1	6.2
	出		3.1	5.6
			7.6	0.4
		合計	10.7	5.9
回収率 (%)			96	95

*単位: g/L

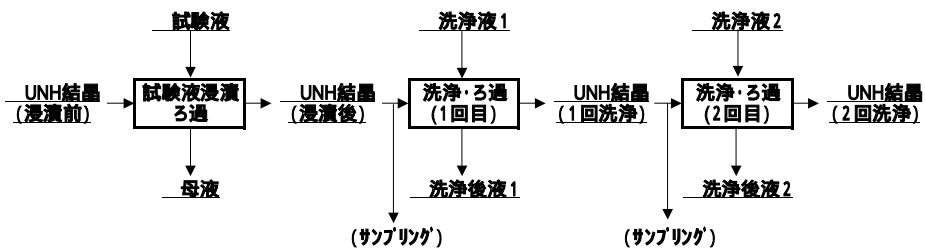
**分析に約1g-UNH使用

***洗浄操作各回における除染係数 (DF)

****洗浄操作2回分の除染係数 (DF)

表 2.3.1-7 試験結果のまとめ (Run7)

Run7	
条件	UNH結晶粒径: 500-710 μm 試験液中模擬FP濃度: 104g-Ce/L



概略の試験フロー

濃度分析値				
番号	試料名	液量(mL)	濃度	
			g-U/L	mg-Ce/L
	試験液	50.0	120	104*
	洗浄液1	20.0	147	
	洗浄液2	20.0	147	
	母液	48.0	124	105*
	洗浄後液1	19.5	149	3266
	洗浄後液2	19.8	153	169
番号	試料名	重量(g)	mg-U/g	μg-Ce/g
	結晶(浸漬前)	20.0	441	
	結晶(試験液浸漬後)	20.7	443	3360
	結晶(1回目洗浄後)	19.1	491	185
	結晶(2回目洗浄後)	17.0	442	9

除染係数				
番号	試料名	Ce/U 濃度比	Ce-DF (各回**)	Ce-DF (全体****)
	結晶(試験液浸漬後)	7.6E-03		
	結晶(1回目洗浄後)	3.8E-04	20	
	結晶(2回目洗浄後)	1.9E-05	19	380

酸濃度分析値			
番号	試料名	液量(mL)	濃度
			mol/L
	試験液	50.0	7.0
	洗浄液1	20.0	7.0
	洗浄液2	20.0	7.0
	母液	48.0	7.1
	洗浄後液1	19.5	7.0
	洗浄後液2	19.8	7.1

各操作の物質収支				
	分類	試料名	g-U	mg-Ce
試験液浸漬	入		6.0	5200
			8.8	
		合計	14.8	5200
	出		6.0	5040
			9.2	70
		合計	15.2	5110
回収率 (%)			103	98
洗浄(1回目)	入		2.9	
		**	8.7	65
		合計	11.6	65
	出		2.9	64
			9.4	4
		合計	12.3	67
回収率 (%)			106	103
洗浄(2回目)	入		2.9	
		**	8.9	3.3
		合計	11.8	3.3
	出		3.0	3.4
			7.5	0.1
		合計	10.5	3.5
回収率 (%)			89	106

*単位: g/L

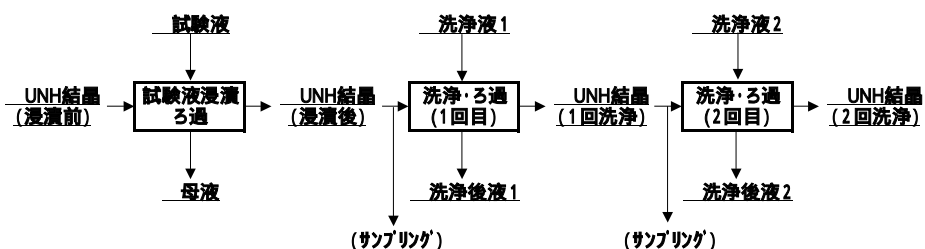
**分析に約1g-UNH使用

***洗浄操作各回における除染係数(DF)

****洗浄操作2回分の除染係数(DF)

表 2.3.1-8 試験結果のまとめ (Run8)

Run8	
条件	UNH結晶粒径:710-1000 μm 試験液中模擬FP濃度:104g-Ce/L



概略の試験フロー

濃度分析値				
番号	試料名	液量(mL)	濃度	
			g-U/L	mg-Ce/L
	試験液	50.0	120	104*
	洗浄液1	20.0	147	
	洗浄液2	20.0	147	
	母液	48.7	122	105*
	洗浄後液1	19.5	158	2530
	洗浄後液2	19.5	154	101
番号	試料名	重量(g)	mg-U/g	μg-Ce/g
	結晶(浸漬前)	20.0	441	
	結晶(試験液浸漬後)	20.7	452	2440
	結晶(1回目洗浄後)	18.8	447	105
	結晶(2回目洗浄後)	17.0	446	5

除染係数				
番号	試料名	Ce/U 濃度比	Ce-DF (各回**)	Ce-DF (全体****)
	結晶(試験液浸漬後)	5.4E-03		
	結晶(1回目洗浄後)	2.3E-04	23	
	結晶(2回目洗浄後)	1.1E-05	21	480

酸濃度分析値			
番号	試料名	液量(mL)	濃度
			mol/L
	試験液	50.0	7.0
	洗浄液1	20.0	7.0
	洗浄液2	20.0	7.0
	母液	48.7	7.0
	洗浄後液1	19.5	6.9
	洗浄後液2	19.5	7.0

各操作の物質収支					
試験液浸漬	分類	試料名	g-U	mg-Ce	
	入			6.0	5200
			8.8		
		合計	14.8	5200	
出				5.9	5114
				9.3	51
		合計	15.2	5165	
回収率 (%)			103	99	
洗浄(1回目)	分類	試料名	g-U	mg-Ce	
	入		2.9		
		**	8.9	47	
		合計	11.8	47	
	出		3.1	49	
		合計	8.4	2	
回収率 (%)			97	109	
洗浄(2回目)	分類	試料名	g-U	mg-Ce	
	入		2.9		
		**	8.0	1.9	
		合計	10.9	1.9	
	出		3.0	2.0	
		合計	7.6	0.1	
回収率 (%)			106	2.1	
回収率 (%)			97	111	

*単位:g/L

**分析に約1g-UNH使用

***洗浄操作各回における除染係数(DF)

****洗浄操作2回分の除染係数(DF)

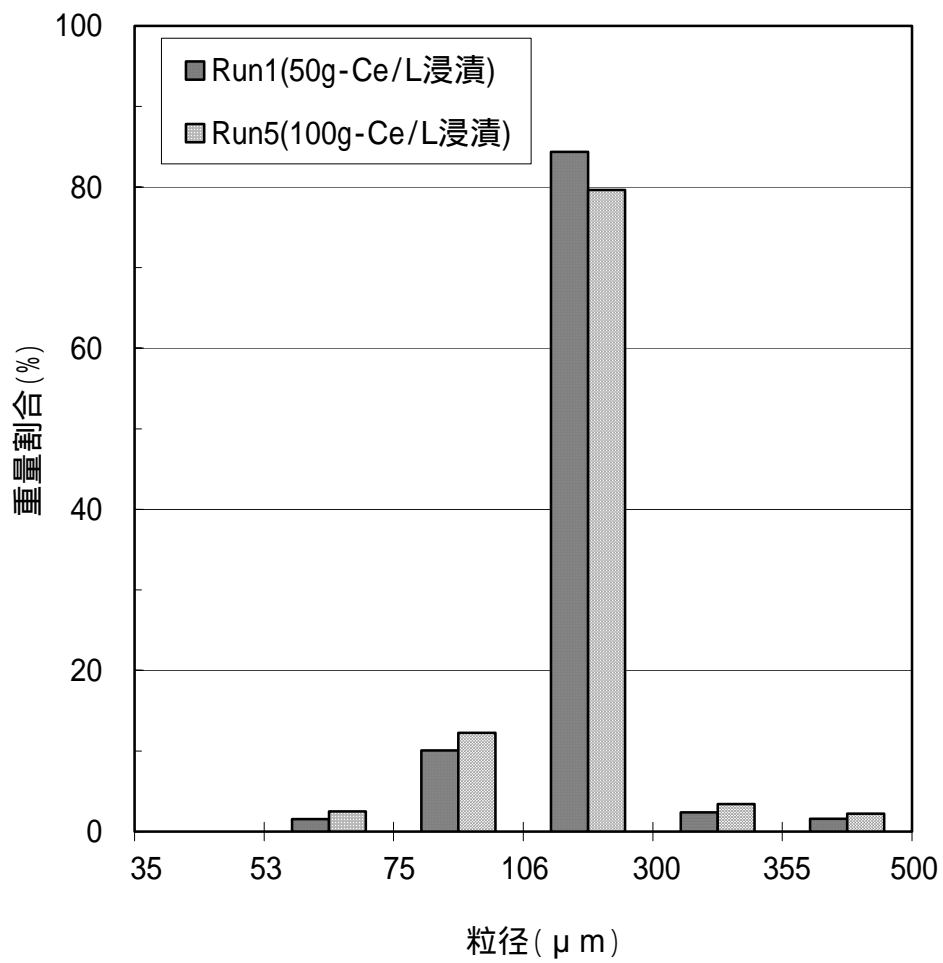


図 2.3.1-2 洗浄 2 回後の硝酸ウラニル結晶の粒度分布
(操作前 : 100-300 μm)

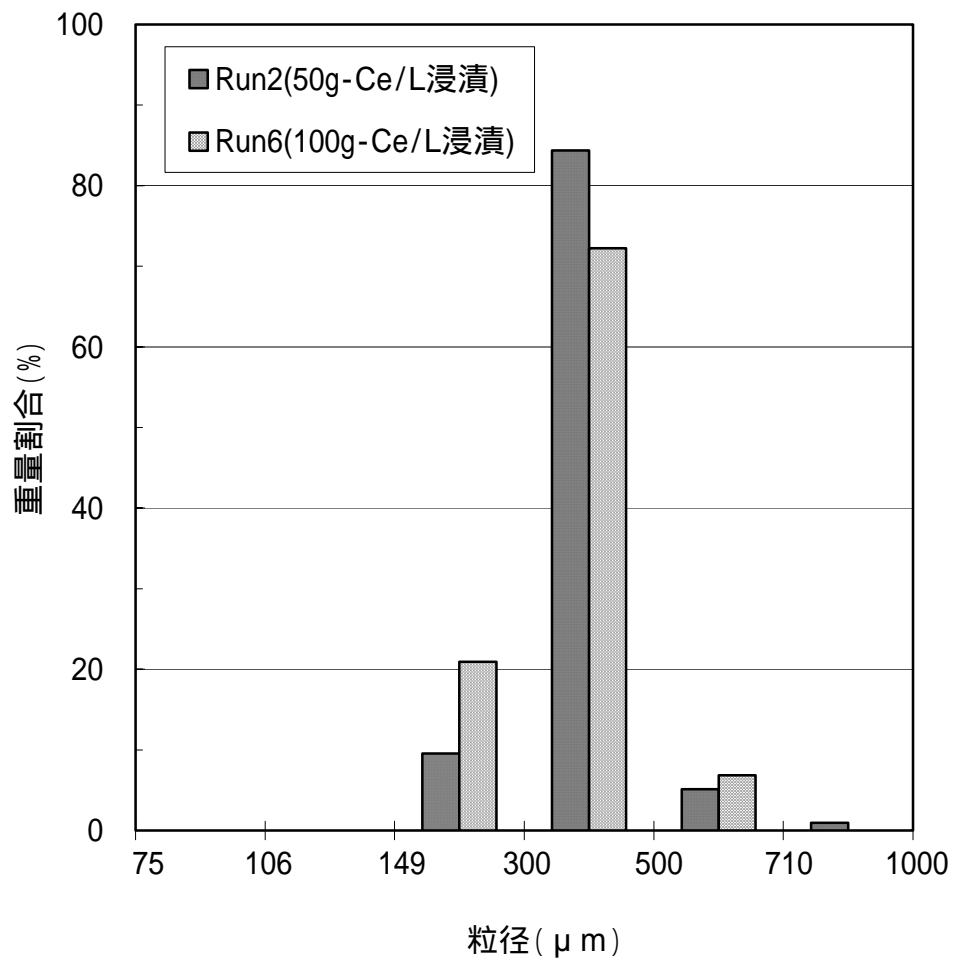


図 2.3.1-3 洗浄 2 回後の硝酸ウラニル結晶の粒度分布
(操作前 : 300-500 μm)

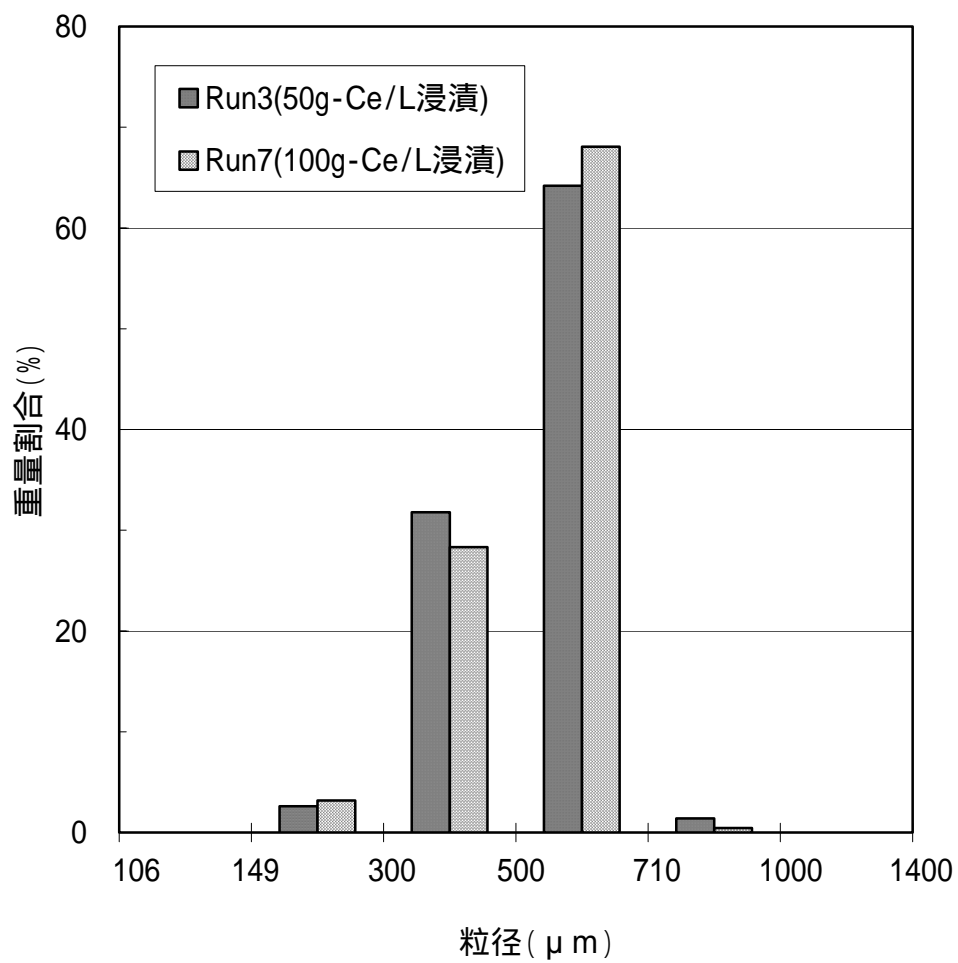


図 2.3.1-4 洗浄 2 回後の硝酸ウラニル結晶の粒度分布
(操作前 : 500-710 μm)

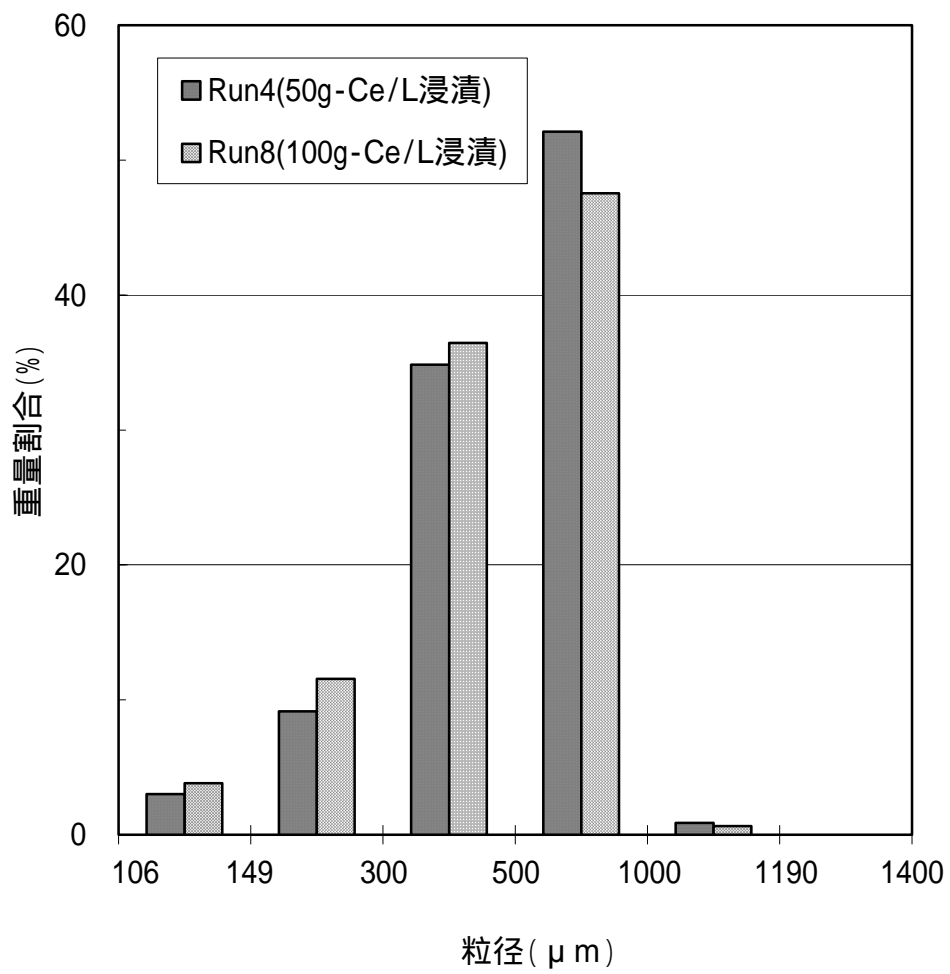
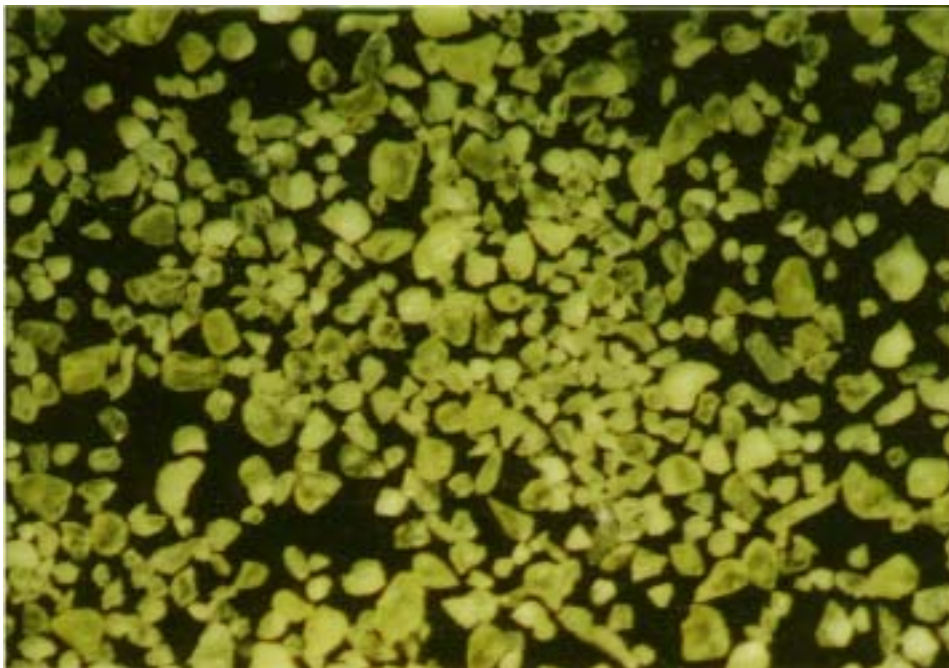
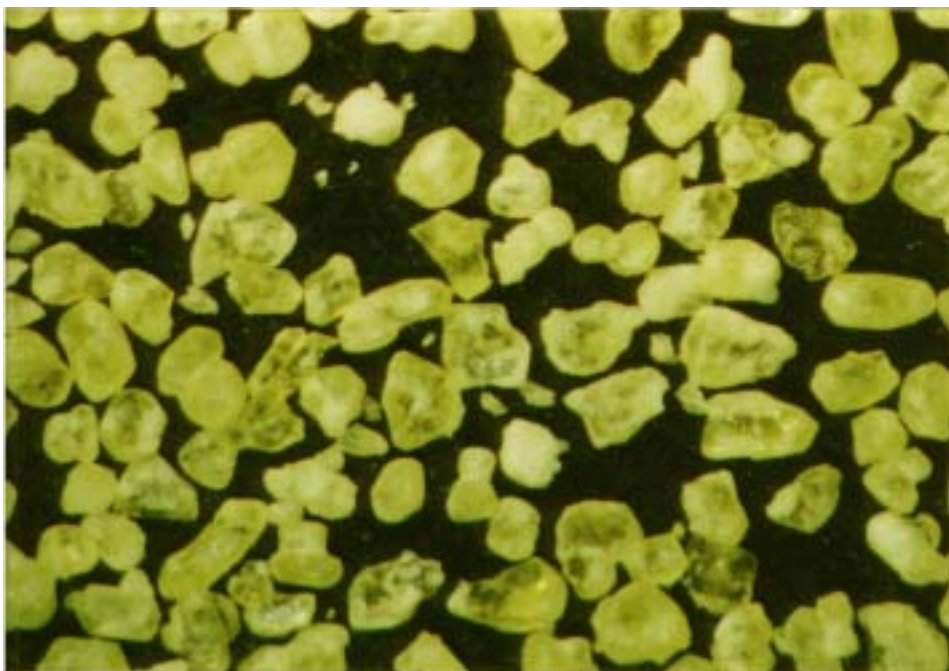


図 2.3.1-5 洗浄 2 回後の硝酸ウラニル結晶の粒度分布
(操作前 : 710-1000 μm)



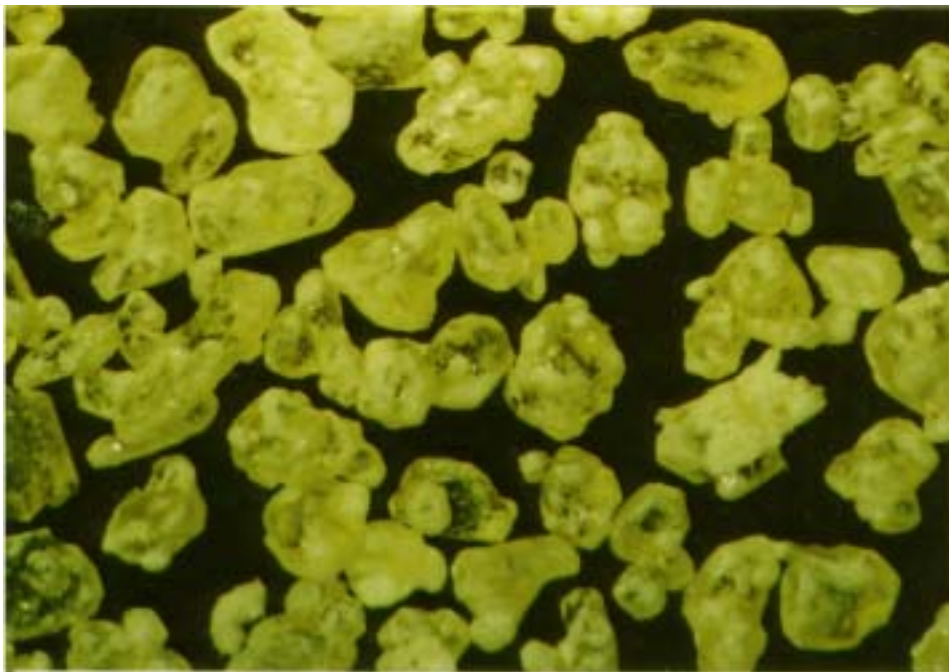
(1) 篩分時 (100 ~ 300 μm)



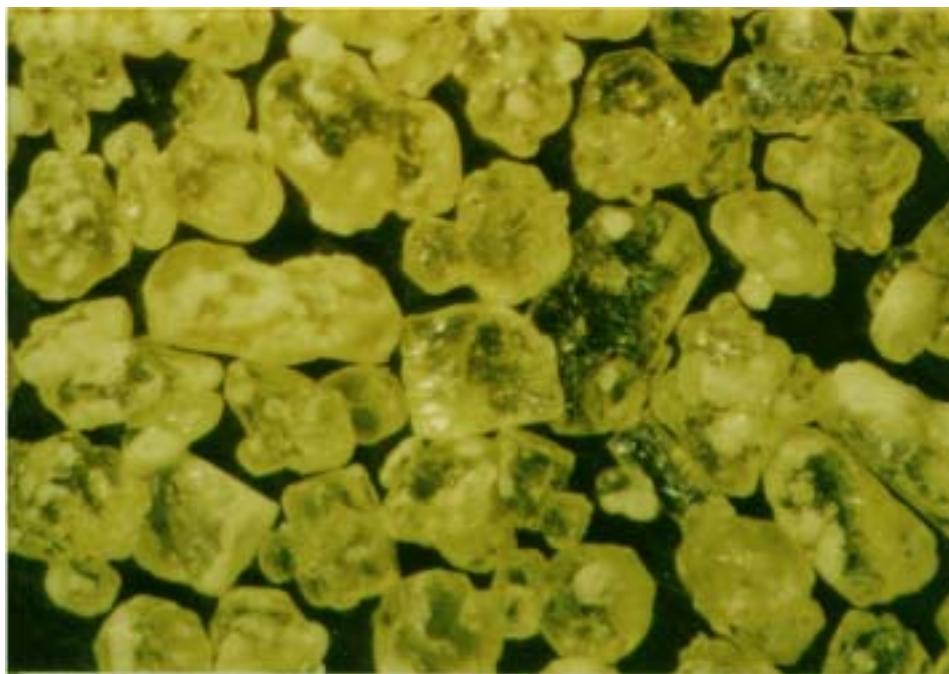
(2) 篩分時 (300 ~ 500 μm)



図 2.3.1-6 硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (1/6)



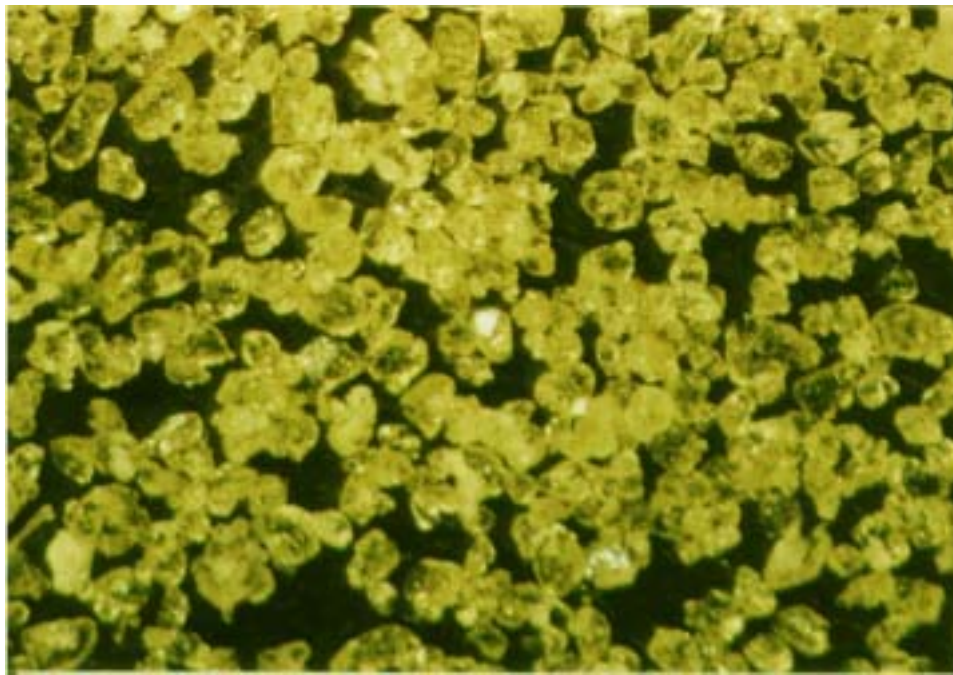
(3) 篩分時 (500 ~ 710 μm)




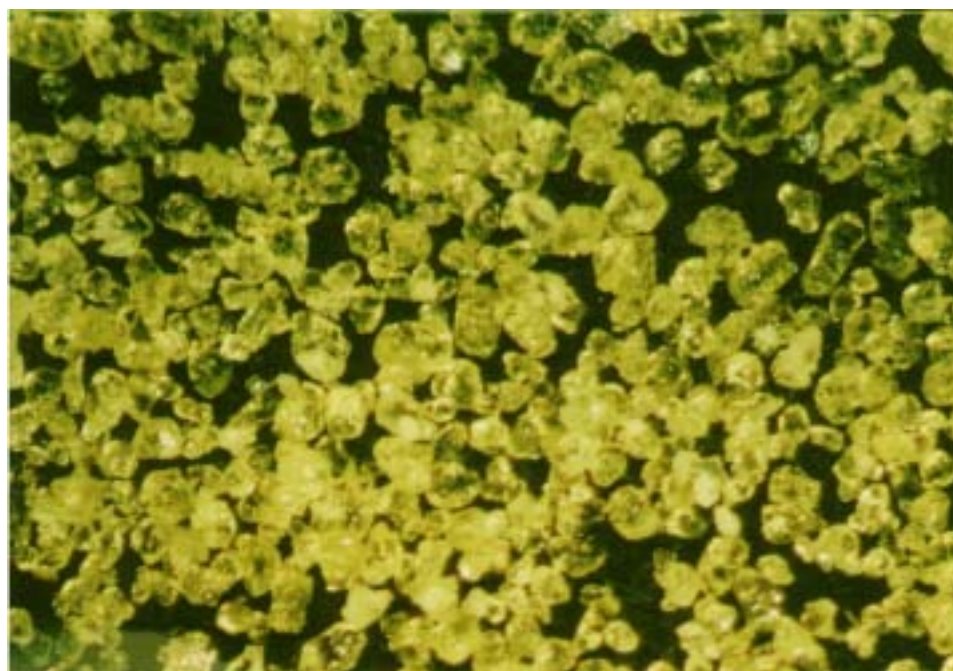
(4) 篩分時 (710 ~ 1000 μm)



図 2.3.1-6 硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (2/6)



(5) Run1 (100 ~ 300 μm 、50gCe/L 浸漬) 
1mm




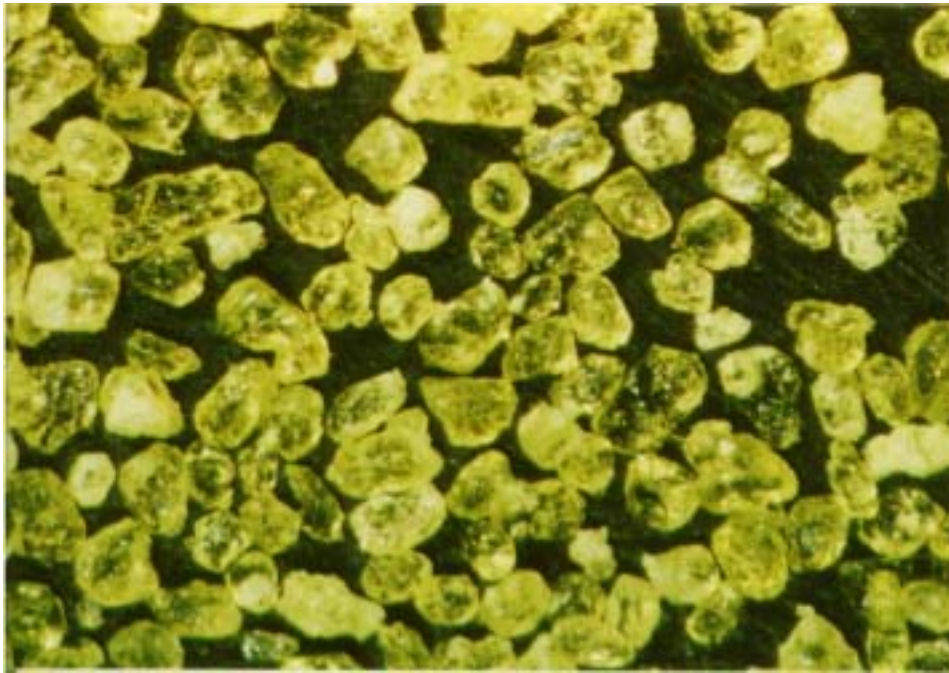
(6) Run5 (100 ~ 300 μm 、100gCe/L 浸漬) 
1mm

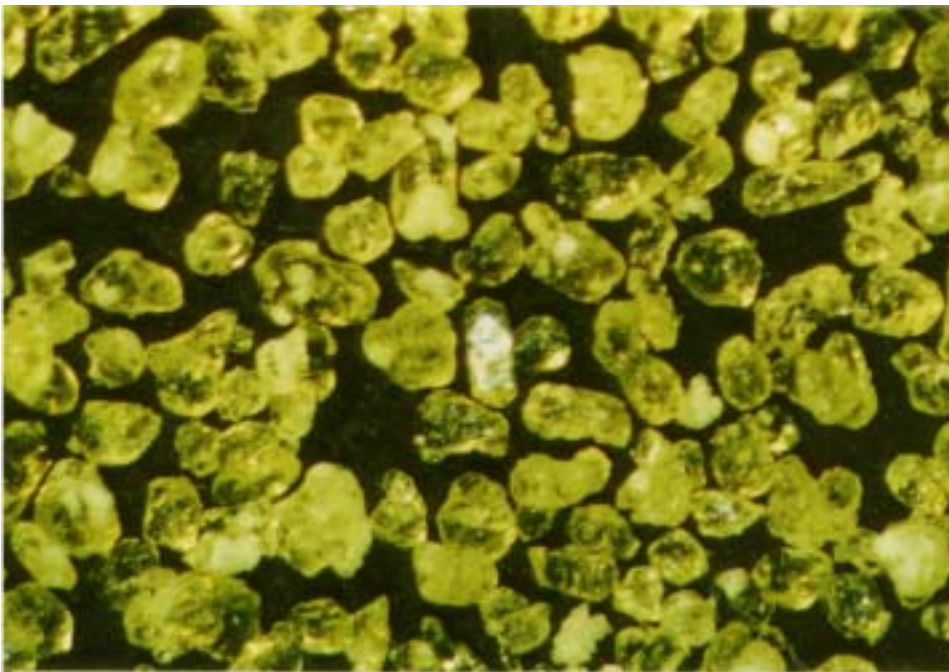
図 2.3.1-6 硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (3/6)



(7) Run2 (300 ~ 500 μm 、50gCe/L 浸漬)



1mm

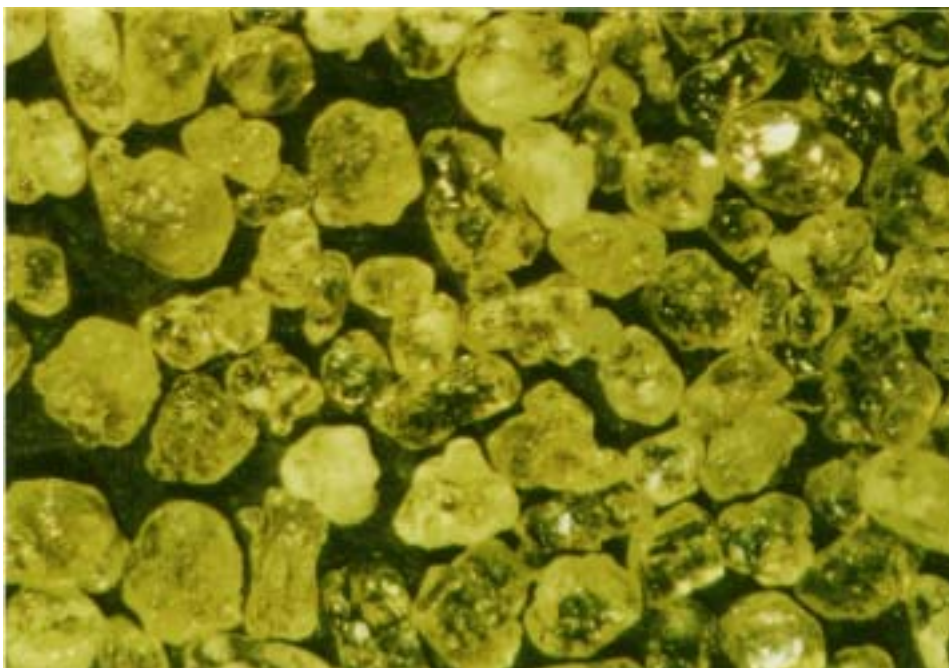


(8) Run6 (300 ~ 500 μm 、100gCe/L 浸漬)

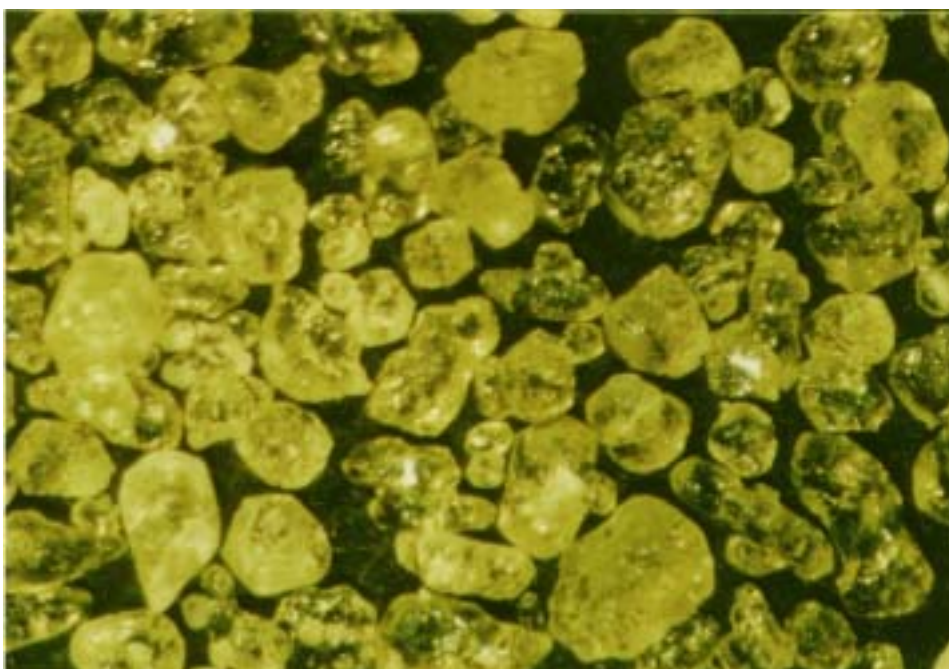


1mm

図 2.3.1-6 硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (4/6)



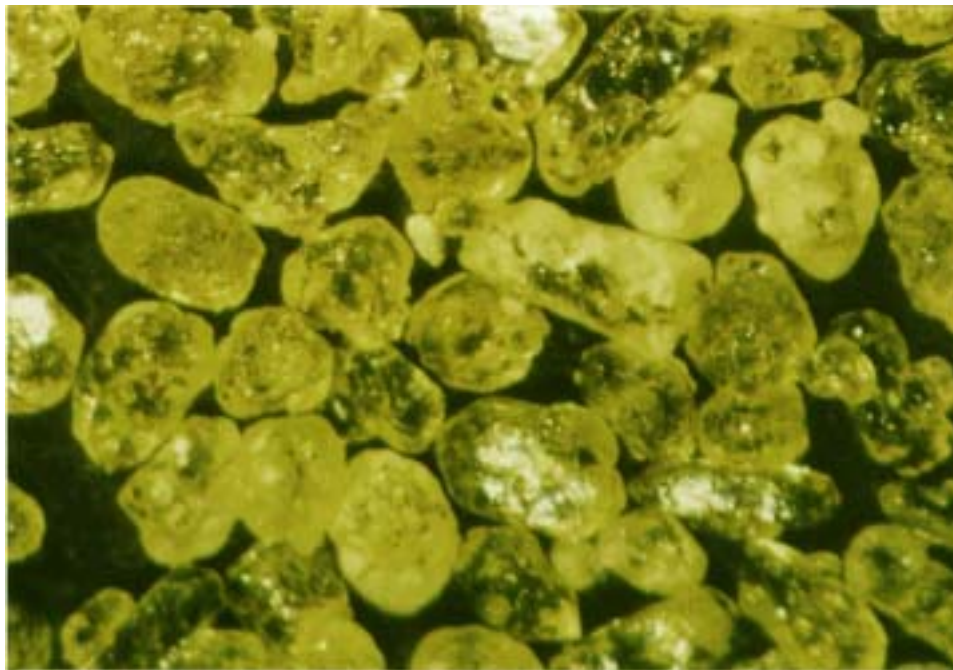
(9) Run3 (500 ~ 710 μm 、50gCe/L 浸漬)




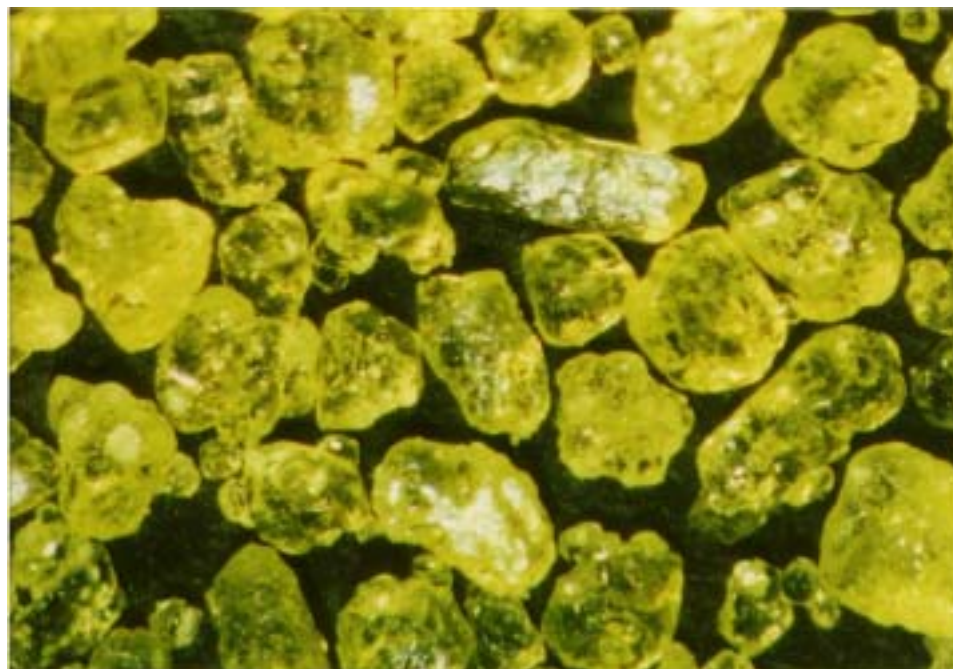
(1 0) Run7 (500 ~ 710 μm 、100gCe/L 浸漬)



図 2.3.1-6 硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (5/6)



(1 1) Run4 (710 ~ 1000 μm 、50gCe/L 浸漬)  1mm




(1 2) Run8 (710 ~ 1000 μm 、100gCe/L 浸漬)  1mm

図 2.3.1-6 硝酸ウラニル結晶の顕微鏡写真 (6/6)

表 2.3.1-9 除染係数 (DF) 評価結果のまとめ

粒度分布 (μm)	洗浄 回数	試験液 1		試験液 2		平均 粒径 [*]	平均 粒径 ^{**}	S/V 比 ^{***}	DF	
		Ce/U	DF	Ce/U	DF				平均値	想定値 ^{****}
100-300	0	8.0×10^{-3}	-	2.1×10^{-2}	-	200	200	4.3	10	6.3
	1	8.0×10^{-4}	10	2.0×10^{-3}	10					
	2	8.3×10^{-5}	10	2.2×10^{-4}	9					
300-500	0	5.4×10^{-3}	-	1.3×10^{-2}	-	400	390	2.1	16	12
	1	3.7×10^{-4}	15	7.6×10^{-4}	17					
	2	2.7×10^{-5}	14	4.9×10^{-5}	15					
500-700	0	4.3×10^{-3}	-	7.6×10^{-3}	-	600	540	1.4	20	17
	1	2.2×10^{-4}	20	3.8×10^{-4}	20					
	2	1.2×10^{-5}	18	1.9×10^{-5}	19					
700-1000	0	2.7×10^{-3}	-	5.4×10^{-3}	-	850	700	1	22	22
	1	1.2×10^{-4}	22	2.3×10^{-4}	23					
	2	5.5×10^{-6}	23	1.1×10^{-5}	21					

* 粒度分布 (洗浄前) の中央値

** 粒度分布 (洗浄後評価した値) の重量平均値

*** 平均粒径における比表面積 (単位体積中に含まれる粒子の全表面積、S/V) について、700-1000 μm における値を 1 としたもの。ただし、平均粒径として、粒度分布の重量平均値を用いた。

**** 700-1000 μm における DF を 22 とし、これを S/V 比で除した値。ただし、平均粒径として、粒度分布の重量平均値を用いた。

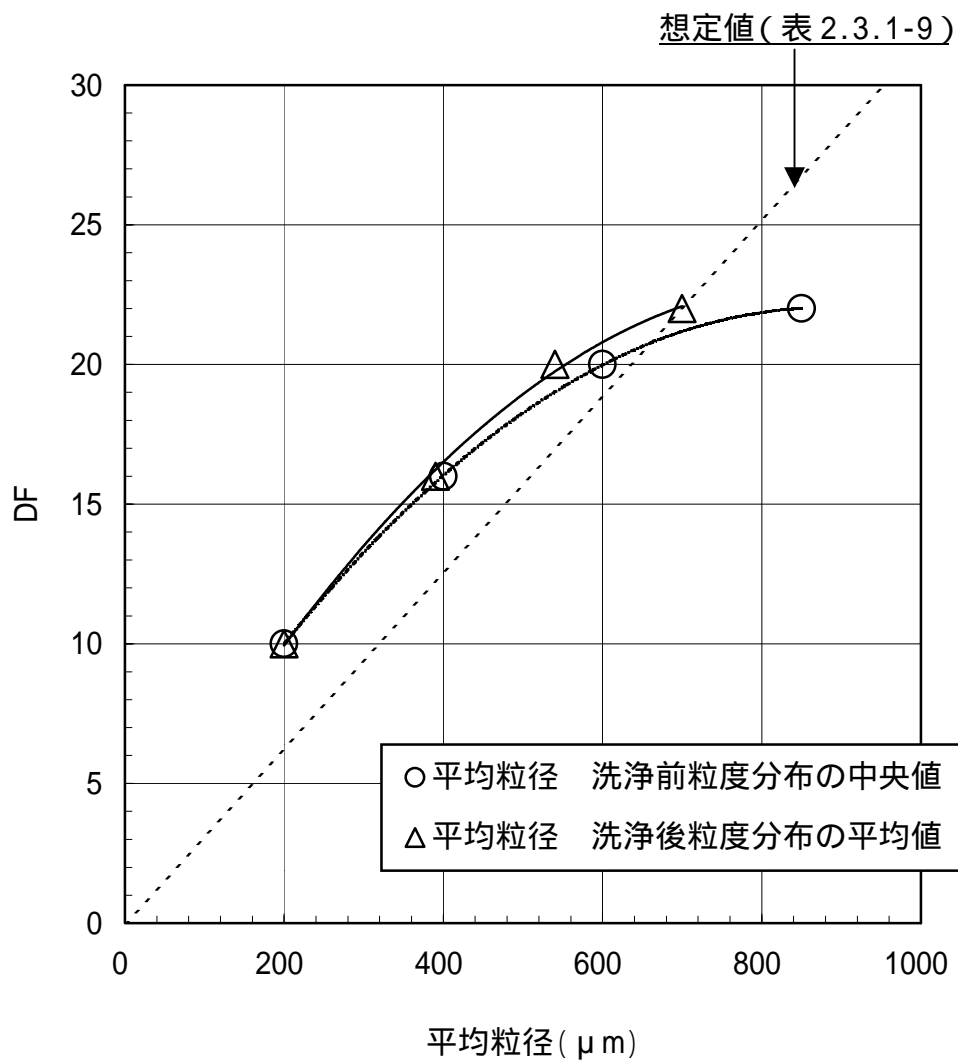


図 2.3.1-7 除染係数 (DF) と平均粒径の関係

3. おわりに

本試験では、先進湿式再処理法における晶析プロセス開発に資することを目的に、硝酸ウラニル結晶の洗浄試験を行い、結晶粒度を変化させた場合の除染係数の評価を行った。その結果、結晶粒度の増大に伴い、除染係数が増加する傾向にあることを確かめた。除染係数は、結晶の単位重量あたりの付着液量に反比例すると考えられることから、平均粒径の増大は比表面積の減少を伴うため、妥当な結果と考えられる。なお、単位面積あたりの付着液量は、平均粒径の減少に伴い減少する傾向にあることが示唆された。

4. 参考文献

- 1) 矢野 肇、他：” 晶析法における U 結晶の析出挙動把握試験 ”、JNC ZJ8400 2000-062(2000)