

プログラム名：核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化

PM名：藤田 玲子

プロジェクト名：分離回収技術開発

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平 成 2 8 年 度

研究開発課題名：

固体抽出剤を用いた高レベル放射性廃棄物からの LLFP の分離

研究開発機関名：

国立大学法人長岡技術科学大学

研究開発責任者

鈴木 達也

I 当該年度における計画と成果

1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

我々の研究グループは、固体抽出剤を用いて、使用済み燃料に含まれる種々元素の分離研究を行い、種々元素の分離を実現してきた。そこで、保有する固体抽出剤の合成及び元素分離技術に基づき、PM が掲げる 4 元素 (Pd, Cs, Se, Zr) をクロマトグラフィにより回収目標 90%以上で分離・回収する技術を工業的にも経済的にも成り立ちうるものとして確立するのが目的である。実施する内容は「陽イオン交換を用いたグループ分離と液性転換技術の開発」、「各元素の分離技術」「分離システムの工学検討および最適化」に分けることが出来、平成 28 年度は、陽イオン交換を用いたグループ分離・液性転換技術と陰イオン交換樹脂を用いた各元素の分離技術の研究を行い、高レベル廃液からの対象 4 元素の分離スキームを明確にし、回収率 90%以上を達成する。

また、不溶解残渣等の溶解法の見通しを得る。

2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

2-1 進捗状況

対象 4 元素のみの試料を用いた陽イオン交換によるグループ分離および液性転換技術の開発を行い、4 元素の分離が可能であることを示した。続いて模擬高レベル廃液を用いて分離操作を行い、随伴する元素を確認するとともに、随伴する元素の分離を含む分離スキームを提案した。この提案した分離法に基づき、ピリジン型陰イオン交換樹脂を用いた分離法を実施し、随伴元素の分離試験を行った。更に、得られたデータに基づき、陽イオン交換を用いた粗分離にフィードバックさせ、より簡潔なシステムを提案した。

不溶解残渣の溶解法に関しては、模擬高レベル廃液で発生した不溶解残渣を用い、硫酸、カルバミン酸アンモニウム、水酸化ナトリウムを用いて試験を行い、それぞれ不溶解残渣の溶解が可能であることを確認し、特に水酸化ナトリウム水溶液を用いるのが適当であることを見出した。

2-2 成果

陽イオン交換と陰イオン交換を組み合わせることにより、対象とする 4 元素を効率よく且つ簡便に分離する方法を提案した。提案したプロセスを図 2-2.1 に示す。このプロセスでは、高レベル廃液をピリジン型陰イオン交換樹脂に通すことにより、Pd を回収する。続いて、溶離したよう液を陽イオン交換樹脂に通し、まずは吸着しない Se を取り出し、2M 塩酸で Cs を洗い出し、最後にシュウ酸で Zr を溶離する手法である。溶離した Se と Cs については、随伴する元素が含まれているので次の工程で精製を行う。この手順に基づき、試験を行い、プロセス 1 の Pd 回収では、Pd が樹脂に完全に吸着することを確認すると共にその他の元素は全て溶離することを確認した。用いたピリジン型陰イオン交換樹脂は炭素、水素、酸素と窒素のみから構成される CHON 樹脂であるため、吸着させた Pd は燃焼により高純度回収が可能となる。この結果から、Pd に関しては純度はほぼ 100%で 100%の回収が期待できる。次のプロセス 2 に於いて、分離結果として図 2-2.2 のような結果が得られた。プロセス 2①では、Se が 100%回収することが出来ている。②では Cs が 97%であり、ほぼ 100%回収できたと考えている。①と②には、まだ多くの元素が含まれているので精製する必要がある。精製については今後の課題であるが、Se に

については、酸濃度でピリジン型陰イオン交換樹脂への吸着特性が変わることを見出しており、条件の最適化による精製を目指している。Csはクラウンエーテルで分離できることが期待されており、ピリジン型陰イオン交換樹脂と組み合わせることによってより効率よく分離できると考えている。Zrについては③では他の元素を含まず、Zrのみの純度がほぼ100%のものを得ることが出来ている。ただし、③における回収率は42%であり、改善の余地がある。Zrの残りは①でSeと共に溶出しており、これはMoと共存して対イオンを形成しているものがイオン交換樹脂に吸着しないための結果であると考えている。いずれにしても、結果をまとめると、対象とする元素を分離するプロセスを提案し、Pdは純度ほぼ100%で回収率も100%で回収できることを確認した。SeとCsについては精製が必要だが、回収率ほぼ100%で回収でき、Zrは回収率は40%程度と低いが、ほぼ100%の高純度で回収できることを確認した。

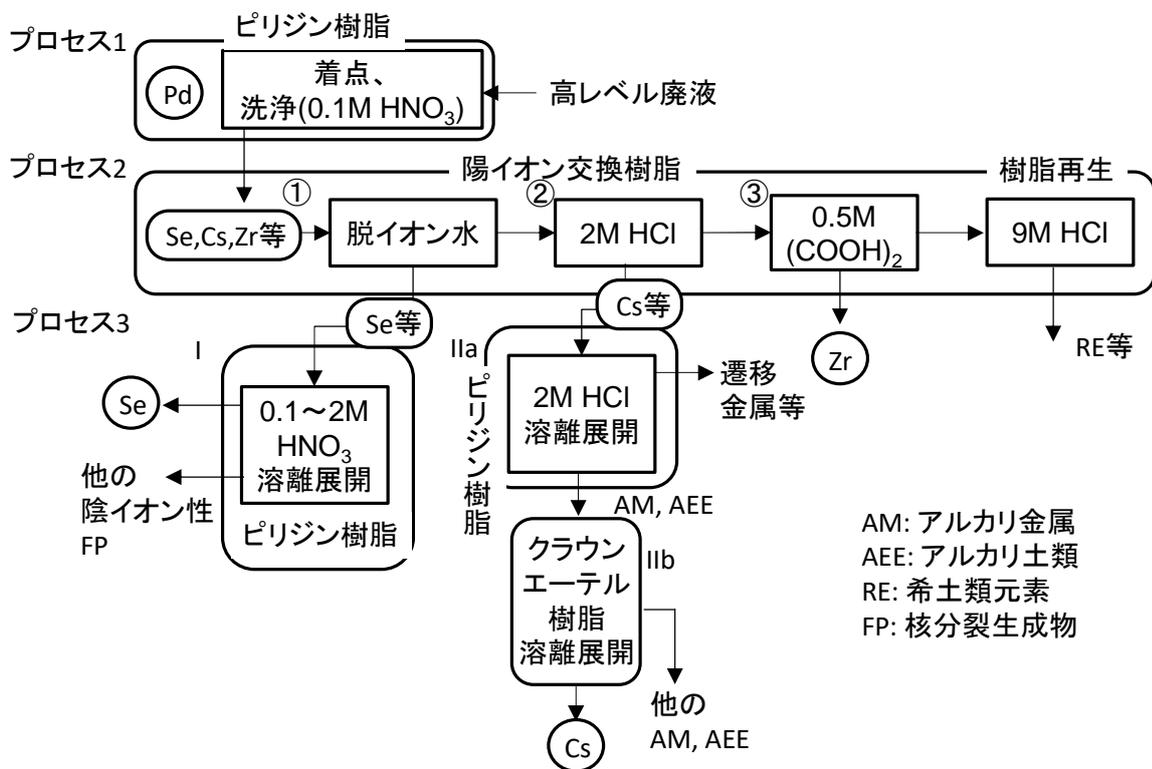


図 2-2.1 分離プロセス図

また、不溶解残の溶解についても調査し、1M 水酸化ナトリウム溶液を用いることにより、溶解できる可能性を見出した。

2-3 新たな課題など

溶液中で Mo と共に振舞う Zr の分離回収法が課題となる。

3. アウトリーチ活動報告

特にアウトリーチ活動は実施していない。

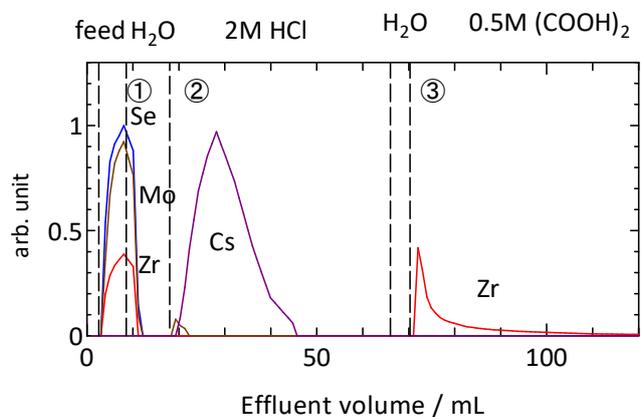


図 2-2.2 プロセス 2 の分離結果