

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 9 年 度

研究開発課題名：

フッ化法によるLLFP分離回収システムの構築

研究開発機関名：

株式会社日立製作所

研究開発責任者

可児 祐子

# 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

本研究開発は、高レベル放射性廃液からの長寿命核分裂生成物(LLFP)の分離回収に対して、フッ化法の適用により分離対象となる4元素(Zr,Pd,Cs,Se)を90%以上の高回収率で分離する、経済性の高いLLFP分離回収技術を開発することを目的とする。

平成29年度では、提案するLLFP分離回収システムの概念検討のまとめと、模擬高レベル廃液からのZr回収プロセスの成立性を評価する。

## 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

#### (1)LLFP分離回収システムの概念検討

本研究開発で提案するLLFP分離回収システムの概略図を図1に示す。提案システムでは、高レベル放射性廃液を固体化した後、高レベル放射性廃液に含まれていた元素をフッ素ガスと反応させてフッ化物に転換し、フッ化物の蒸気圧差を利用して対象4元素を分離回収する。

平成29年度は、前年度までに実施したLLFP分離回収システムの概念検討に関し、物質収支評価をまとめた。具体的には、対象4元素および主要核分裂生成物の物量と組成、システムで使用するガスや試薬の物量、発生する廃棄物の形態と物量を評価し、対象4元素の回収率90%以上を実現する分離回収システム概念を構築した。

#### (2)高レベル廃液(HLLW)沈殿物からのZr回収

LLFP分離回収システムの代替フローとして、高レベル廃液に含まれる不溶解残さや、高レベル廃液の濃縮・脱硝で生成する沈殿物からZrをフッ化回収するプロセスの成立性を評価し、Zr回収率90%以上が達成できるプロセス条件を検討した。

##### ① 沈殿物の把握

高レベル廃液に含まれる不溶解残さ、脱硝操作等により生成する沈殿物の組成や性状を、既往知見の調査および模擬高レベル廃液を用いた試験により検討した。沈殿生成条件と生成する沈殿物の組成や性状との関係を試験により調査した。

##### ② Zr回収試験

模擬高レベル廃液から生成したZrを含む沈殿物をフッ素ガスと反応させてフッ化物に変換し、Zrを分離回収する試験を実施し、Zrの回収率と純度を分析評価した。

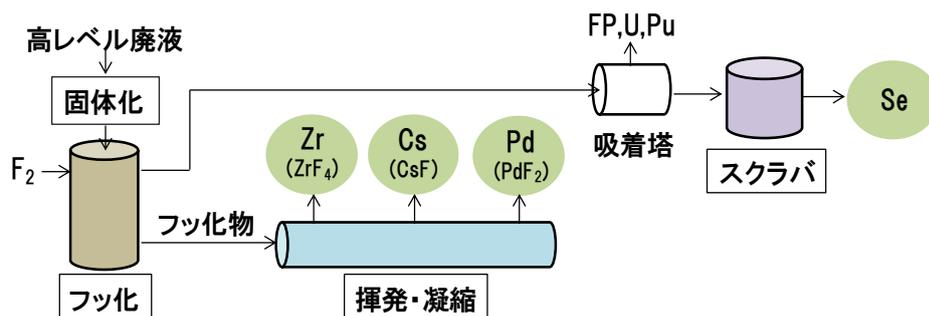


図1 提案する LLFP 分離回収システムの概略図

## 2-2 成果

### (1) LLFP 分離回収システムの概念検討

分離回収システムの各工程における対象 4 元素および主要核分裂生成物の物量と化学組成、各工程で使用するガスや試薬の物量を評価し、マスバランスシートにまとめた。フッ化工程に関しては、設定した温度条件の妥当性を検討するため、対象 4 元素の単体、酸化物、フッ化物の熱力学データ(ギブズ自由エネルギー)の温度依存性を調査し、酸素ポテンシャルとフッ素ポテンシャルをパラメータとした化学ポテンシャル図を作成した(図 2)。フッ化工程で想定される酸素/フッ素ポテンシャルと温度条件(500~1500K)ではフッ化物が安定であり、設定したプロセス温度条件が妥当であることが示された。揮発・凝縮工程に関しては、昨年度実施した分離基礎試験で複合化合物の生成が示唆されたことに関し、熱力学検討により複合化合物は Cs と Zr を含むフッ化物であると評価した。

また、LLFP 分離回収システムから発生する廃棄物の化学形態を調査し、上述の物量評価に基づき年間の廃棄物発生量を試算した。

### (2) 高レベル廃液(HLLW)沈殿物からの Zr 回収

#### ① 沈殿物の把握

高レベル廃液の脱硝等により生成する沈殿物の生成条件と組成に関する既往知見を調査した。調査結果に基づき、脱硝およびモリブデン酸添加の 2 条件で模擬高レベル廃液からの沈殿生成試験を実施し、Zr 沈殿率の時間変化、および回収した沈殿物の組成と各元素の回収率を評価した。脱硝条件としては硝酸に対して当量以上のギ酸を添加すること、モリブデン酸添加条件(図 3)としては Zr に対して 3 倍当量以上のモリブデンを添加することで、目標の Zr 回収率を達成できることを見出した。

#### ② Zr 回収試験

上記沈殿生成試験で回収した沈殿物のフッ化試験を実施し、フッ化温度と反応生成物の組成、および各元素の回収率との関係性を評価した。フッ化温度 300℃以下で目標 Zr 回収率を達成できることを見出した。

上記①、②の試験結果に基づいて、高レベル廃液より生成する沈殿物から Zr をフッ化回収するプロセス条件を設定して物質収支を評価した結果、Zr 回収率は目標(90%以上)を達成できる見通しを得た。

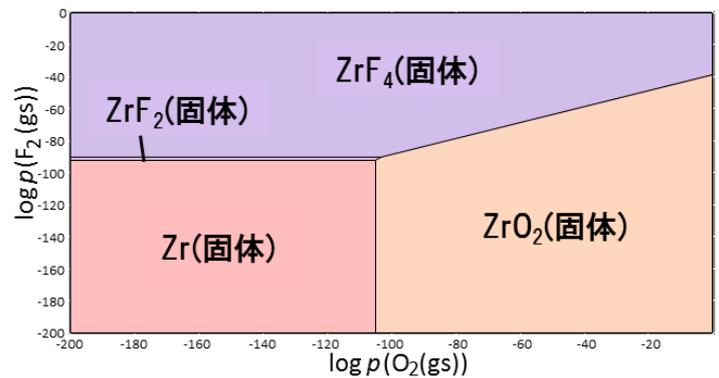


図2 Zrの化学ポテンシャル図(500K)

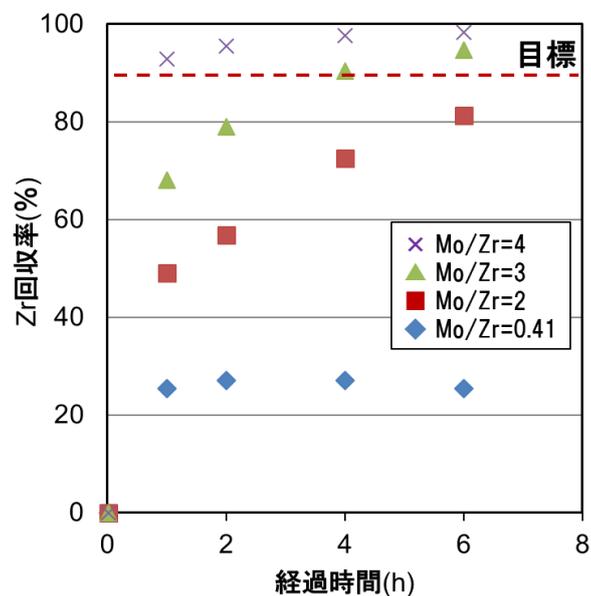


図3 モリブデン酸添加条件におけるZr回収率の時間変化

### 2-3 新たな課題など

HLLW 沈殿物からのZr回収に関し、Zr回収率は目標(90%以上)を達成できたが、Zr回収率が高いと沈殿に同伴する元素の種類と量が増加し純度が低下する、トレードオフの関係があることがわかった。同伴元素はフッ化物が不揮発性のものと揮発性のものがあり、Zr純度の向上策として不揮発性の元素は沈殿生成の段階で、揮発性の元素はフッ化の段階でそれぞれ分離することが考えられる。偶奇分離で求められるZrの純度に応じて同伴元素の分離方法を検討する必要がある。

### 3. アウトリーチ活動報告

特記事項なし