

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：

高レベル廃液からの電解法と溶媒抽出法を用いた

長寿命核種の分離回収技術の開発（1）

研究開発機関名：

東芝エネルギーシステムズ株式会社

研究開発責任者

浅野和仁

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

一連の試験及びプロセスシミュレーションにより得られたプロセスの性能評価を指針として、合理的な処理プロセスの選定を行う。電解条件の最適化により Pd 回収技術の開発を行う。再生・再利用を考慮した工程を適用して Cs の回収技術の開発を行う。高い回収率を得るためにミキサセトラなどを想定した抽出工程を確立し、処理プロセスの検討へ反映し、Zr 回収技術の開発を行う。電解析出物からの Pd と Se の分離方法の検討を行い、Se 回収技術の開発を行う。提示プロセスに適用した分離回収対象元素の金属転換工程を提示する。プロセス成立性の検討および提案プロセスの性能評価については、不純物元素を考慮した候補処理プロセスの物質収支解析を行うことにより、高い分離回収率や高い純度となるプロセスを示す。

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

遮蔽軽減のための前段での高線量核種の除去、後段での核種の移行挙動への影響などを考慮して、シンプルでコンパクトとなる合理的な処理プロセスを選定した。Pd 回収技術の開発では、電解析出物中の純度の検討を行い、電解手法の最適化の検討を行った。また、工業的な電解の検討として定電位電解と定電流電解を実施した。Cs 回収技術の開発では、バッチ法、カラム法の適用性、天然ゼオライト以外の吸着材について検討した。Zr 回収技術の開発では、ミキサセトラでの多段抽出などを考慮した抽出・逆抽出試験を実施した。Se 回収技術の開発では、Pd と Se が同時に電解回収されるため、両元素の相互分離方法について検討した。ImPACT プロジェクトで検討されている偶奇分離に適合するために金属転換工程を提示した。さらに、候補プロセスによる一連の試験及びプロセスシミュレーションを実施し、一連の試験から得られる物質収支を評価し、プロセスシミュレーションで、ImPACT プロジェクトで検討が進められているアウトプットに求められる分離回収率、回収物純度に応じたプロセスの提示ができるよう検討を行った。

2-2 成果

合理的な処理プロセスの選定において、Pd、Se を分離可能な電解工程、高線量の Cs を分離する吸着工程、放射線劣化の影響を受けにくくするため後段とした溶媒抽出工程の順とし、シンプルでコンパクトなプロセスとした(図 1)。

Pd 回収技術の開発では、陰極電位 0.2V (vs. Ag/AgCl)以下にすることで、模擬高レベル廃液中の Ag、Pd と Se が電極に還元析出する。析出速度の観点から、0.2V より 0V の方が早いため、Pd 回収に適した条件となることが明らかとなった。0.4V では Ag のみが析出するため、事前に 0.4V で電解することで Pd 回収物の純度を高くする工程の構築も可能である。さらに、定電位及び定電流での電解試験を実施し、どちらでも電解制御が可能であり、工業的にも電解システムを組むことが可能である知見を得た。Cs 回収技術の開発では、模擬高レベル廃液を用いた天然モルデナイトと人工モルデナイトによる吸着性能評価を行い、天然モルデナイトで高い吸着性能を示した。吸着容量の差に起因する結果となっていると考えられる。また、5M (mol/dm³) ギ酸アンモニウムにより吸着された Cs が 90%以上

分離することが明らかとなった。想定される高レベル廃液の総処理量からバッチ法による処理を選定した。Zr 回収技術の開発では、TODGA（テトラオクチルジグリコールアミド）と HDEHP（りん酸水素ビス（2-エチルヘキシル））のうち、選択性の観点から HDEHP を選択した。また、高い回収率を達成するための抽出容量を考慮した工程の構築により、Zr を 90%以上抽出することを可能とした。Se 回収技術の開発では、Se キャリア法や Pd 回収電位より低い-0.2V 以下で電解するなどの方法でより高い回収率が得られる。Pd と Se の相互分離方法について検討し、酸化雰囲気加熱することで、Pd は固体として残り、Se は酸化物となり気化分離可能なことを確認した。分離回収物の金属転換技術の開発では、Pd、Se は水溶液中での電解で金属として回収する方法、Cs や Zr は熔融カルシウム塩中の電解還元で金属として回収する方法を提示した。

プロセス成立性の検討および提案プロセスの性能評価では、一連の試験を実施して物質収支を取得し、分離回収率として、Pd80%、Se37%、Cs95%、Zr100%を得た。また、これまで取得した基礎データを基にプロセスシミュレーションを実施し、高い分離回収率や高い純度となるプロセスを検討した。

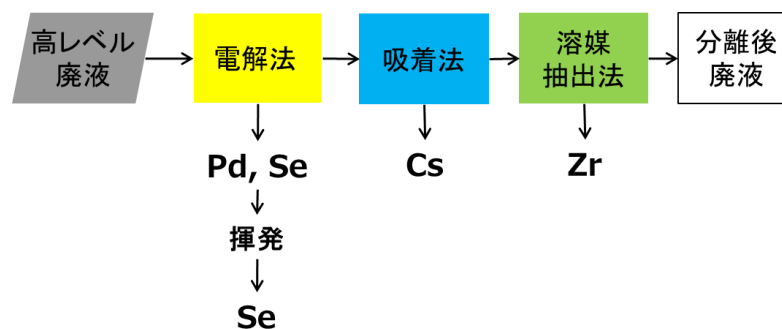


図1 シンプルでコンパクトとなる合理的なプロセス

2-3 新たな課題など

電解装置をスケールアップする際に、電極を最大限に利用できていないことにより回収率が低下する結果が得られたため、電極が有効利用されるように交互に電極を設置するなどの電解装置の設計が課題となった。モルデナイトからの Cs 回収が可能で、再生できる目処が得られた。二次廃棄物量を最少化するために、再生したモルデナイトの性能劣化状況を把握して、繰り返し利用回数を評価することが課題となった。溶媒抽出の際、抽出容量の超過による第三相の形成を抑制することが重要となり、第三相の形成を抑制できる最適条件の設定や抽出剤の再選定も考慮することにより、二次廃棄物量の少ない工程を構築することが課題となった。Se の回収率の向上のために卑な電位での電解回収が有効であるが、卑電位での電解の場合は、水素発生による妨害、電流効率の低下が課題となった。廃棄物処分方法の評価、偶奇分離の効率、核変換の効率などの後段へ受け渡すための必要なスペックが明らかとなった際、廃棄物量や二次廃棄物を最適化できる詳細プロセスの選定が課題となる。

3. アウトリーチ活動報告

特記事項なし