

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（2）

研究開発機関名：

独立行政法人 日本原子力研究開発機構

研究開発責任者

佐々木 祐二

## 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

模擬高レベル廃液からパラジウム、セシウム、ジルコニウム、セレンを抽出分離回収する技術を開発することを目的とする。溶媒抽出法を主として実施し、効率的な回収条件を探る。特にジルコニウムの高効率回収と共抽出元素との分離を目指した。加えて、大型放射光を利用する放射光 X 線吸収微細構造 (XAFS) 測定等を実施し、セレン、ジルコニウムの分離剤・分離法開発のための XAFS を用いた溶液中における溶存状態解析を行い、最適な抽出分離条件設定に役立てる。

### 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

本年度の達成目標を下の様にまとめ、実験を行った。

- ① パラジウム回収について、純度 90%の Pd を回収率 90%で得られる条件を明らかにする。
- ② セシウム回収について、クラウン化合物により純度 90%、回収率 90%以上を達成する条件を明確にする。
- ③ ジルコニウム回収について、純度 90%の Zr を回収率 90%で得られる条件を明らかにする。
- ④ 水溶液中でのセレン、ジルコニウムの溶存状態を明らかにするため、放射光を用いて、XAFS スペクトルを得る。
- ⑤ セレン抽出に関し、純度 90%回収率 90%を目標に検討する。
- ⑥ 各元素の回収結果をまとめて、プロセスフローの成立性を考慮する。

#### 2-2 成果

昨年度にそれぞれ元素の回収率 90%以上が得られる条件を示した。今年は共抽出元素を特定 (表 1) し、その相互分離できる条件を提案した。それぞれの方法として、Pd は電位規制した電解還元で Mo や Zr と分離、Mo/Cs 分離は窒素系抽出剤を利用し、Mo のみ有機相に回収、Zr はシュウ酸による逆抽出の後水酸化物沈殿させ、Mo, Te、希土類元素と分離、Pd/Mo/Se 分離には MIDOA で Pd+Mo のみ抽出する方法などである。最終的に ImPACT では、溶媒抽出法で Zr を回収すると決定した。模擬廃液からの Zr 回収について、次の条件で 90%以上回収可能であることがわかった (図 1)、有機相 (1M HDEHP/ドデカン) 4 段、水相 (模擬廃液) 3 段で (図中 times of extraction: 4, 1-3<sup>rd</sup>. の水相で平均 95.3%の Zr 回収)、90%以上の Zr を有機相に回収可能である。その他の元素に対しては Zr: 145 mM に対し、Mo: 90, Te: 5.5, Fe: 8, Ce: 24, Nd: 13, Gd: 24 mM であり、Zr 以外では、Mo や希土類元素が共抽出されていることが分かった。XAFS の解析結果から、Se(IV)が安定であること、Zr は水酸化物を伴った複核錯体を形成していることを明らかにした。

### 2-3 新たな課題など

Zr は HDEHP 抽出で、Mo とともに大量の懸濁を生成し、2 相間分配を大きく阻害することになった。その対処法（アルコール添加による水相の改質法）は当該年度で確認されたが、このような事態になると、HDEHP を利用すること自体が大きな問題である。当初、HDEHP と TODGA の比較において、TODGA の方がより希土類元素を抽出すること、市販品ではなく入手が容易でないこと、Zr 分配比や希土類元素との相互分離比は HDEHP の方が高いことなどを理由に HDEHP を選択していた。しかし、HDEHP はリン系の抽出剤に加えて上のように懸濁発生もあることから、リン系以外の焼却処分できる新しい抽出剤の利用が望まれる。

### 3. アウトリーチ活動報告

特になし。

表1 各抽出条件で共抽出される元素

元素	抽出剤	共抽出元素
Pd抽出	NTAアミド	Mo, Zr, Se
Cs抽出	DtBuDB18C6	Mo, Ag, Se, Rb
Zr抽出	HDEHP	Fe, Te, Mo, 希土類元素
Zr抽出	TODGA	希土類元素、Sr, Pd
Se抽出	PDA	Pd, Mo

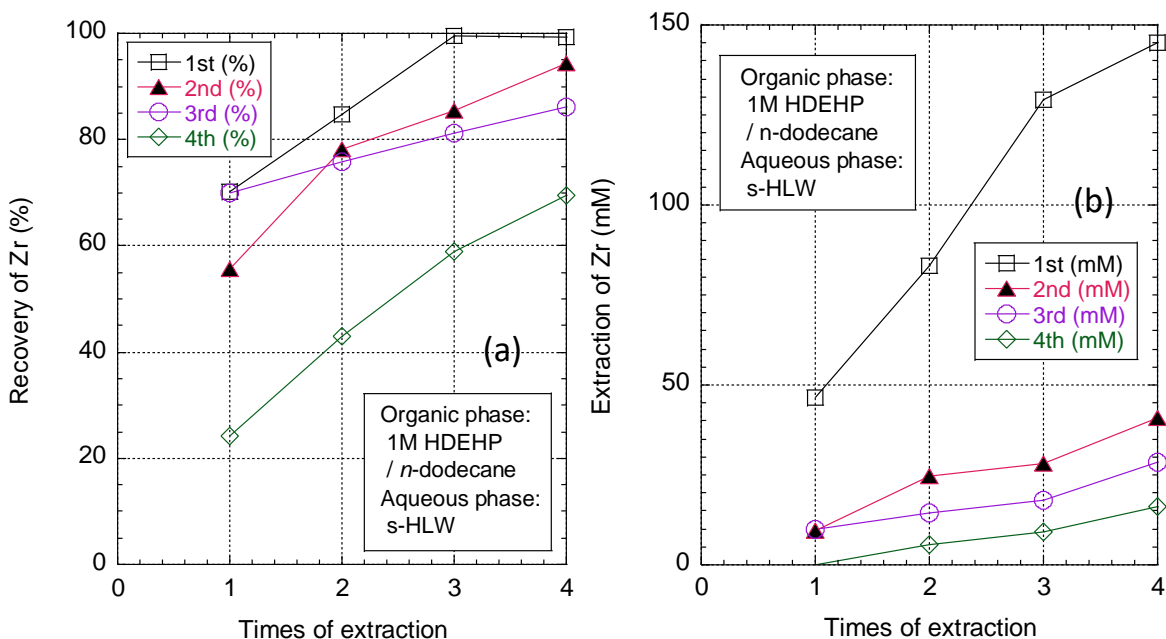


図1 多段抽出試験による Zr 回収

有機相条件： 1M HDEHP/ドデカン、水相：模擬廃液（2M 硝酸ベース）