ガラス固化体の高品質化・発生量低減のための白金族元素回収プロセスの開発 (23)システム評価

Development of Recovery Process of Platinum-group Metals from HLLW for Stable Production and Volume Reduction of Homogeneous Vitrified Object

(23) Evaluation of Separation System

*竹下 健二 ¹、中野 義夫 ¹、稲葉 優介 ¹、高橋 秀治 ¹、針貝 美樹 ¹、 尾上 順 ²、渡邊 真太 ²、菖蒲 康夫 ³、天本 一平 ³、大西 貴志 ³ ¹東京工業大学、 ²名古屋大学、 ³日本原子力研究開発機構

HLLW からの白金族元素、Mo の分離システム開発の研究成果を総括し、分離システムの成立性を評価した。 キーワード:放射性廃棄物処理、白金族元素回収、Mo 回収 #52.7516

1. 研究目的

図1のように HLLW からの白金族元素、Mo の分離システムの成立性を明らかにし、以下の目標を達成する。①フェロシアン化アルミニウムをセラミックス担体に含浸した無機吸着剤を開発して HLLW からの Mo と白金族元素の一括回収法(HLLW のこれら元素の濃度を 50%以下)を確立する。②白金族元素と Mo を低減した HLLW を使ったガラス固化体製造と HLLW の高充填化を達成する。③白金族元素と Mo の個別分離技術を開発して、Ru や Rh など有価金属の一般産業へのリサイクルを可能にし、核廃棄物中の有価物利用の道を開く。

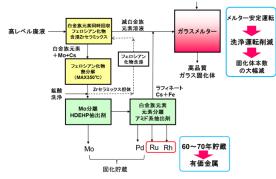


図1 HLLWからの白金族元素、Mo回収システム

2. 各目標に対する研究成果

① Mo、白金族元素一括回収用無機吸着剤の開発 コールド試験において白金族元素、Moに対する高い選択吸着能を示したフェロシアン化アルミニウムを用いて、実高レベル廃液中のPd、Ru、Rh、Moの吸着試

験を実施した。**表 1** に示すように実高レベル廃液中の Pd、Mo は選択的に吸着でき、フェロシアン化アルミニウムで実高レベル廃液中の白金族元素及び Mo 濃度を半分以下に低減できることがわかった。更に MA(Am)は希土類元素と同様吸着されず、白金族元素及び Mo に対する高い選択吸着性が示された。Ru 吸着能の低下については、高放射線下での Ru 化学種の変化を検討する必要がある。

試料溶液	Pd	Ru	Rh	Мо	La	Sm	Am	AI
	吸着率[%]							[mg/L]
ホット試験 試料	97	8	6	83	n.a	n.a	n.a	75
26成分系 模擬廃液 (1000倍希釈)	99	46	1	98	n.a	n.a	-	89

表1 実高レベル廃液試験(ホット試験)と模擬HLLW試験の比較

- ② 模擬HLLWを用いたガラス固化体の作製と高充填化 ガラス成分組成の異なるホウケイ酸ガラス相への HLLW構成元素の拡散/溶解挙動を調べた結果、Moはガラス相内に拡散されにくく、ガラス相から拡散するCa とガラス外でCaMoO4を生成し、CaMoO4がガラス相と相分離を定量評価した。均質なガラス製造にはMoの高度分離が不可欠である。またフェロシアン化アルミニウム由来のAlの濃度が高くなるとガラス相の流動性が低下し、模擬HLLW構成元素のガラス相内への溶解・拡散が起こり難くなることが分かった。HLLWへのAl 混入を抑制することによりガラスへのHLLWの高充填化が可能になる。
- ③ Mo、白金族元素の個別回収技術開発 HDEHP抽出剤により白金族元素、Mo等を含む硝酸溶液からMoを高選択抽出できることを明らかにした。更にPd、Ru及びRhの硝酸溶液系での化学種の同定、及びアミド系、スルフィド系抽出剤による白金族元素の抽出試験を行い、白金族元素を相互分離するための抽出・溶離条件を調べた。チオグリコールアミドによりPdが選択的に抽出され、アミン系抽出剤とチオグリコールアミドの混合溶液によりRhを、高濃度チオグリコールアミドでRuがそれぞれ抽出できることが分かった。またチオ尿素により各金属の溶離が可能であった。白金族元素の相互分離回収に必要な抽出プロセスの構成を提示した。

3. HLLWからの白金族元素、Moの分離システムの評価

以上の研究成果を踏まえて、Mo、白金族元素の同時吸着プロセス、熱分解プロセス、Mo,白金族元素の相互分離プロセスの物質収支を評価し、提案分離システム規模を評価した。HLLWでMo沈殿率を75%と想定した場合の物質収支を計算した。ガラス固化施設に送られるHLLW中のMo濃度は約23%に、白金族元素の濃度は約24%に低下した。分離システムの導入によって、HLLW中のMo、白金族元素濃度を50%以下にするという目標が達成できる見通しが得られた。

謝辞:本研究は、文部科学省「原子力システム研究開発事業」の助成により行われた。

^{*}Kenji Takeshita¹, Yoshio Nakano¹, Yusuke Inaba¹, Hideharu Takahashi¹, Miki Harigai¹, Jun Onoe², Shinta Watanabe², Yasuo Ayame³, Ippei Amamoto³, Takashi Ohnishi³ (¹Tokyo Institute of Technology, ²Nagoya University, ³Japan Atomic Energy Agency)