

課題目標・目的及び研究成果

1. 当初の目的・目標	本事業では、乾式再処理技術で発生する廃塩から、マイナーアクチニドを回収し高速炉の燃料に用いるアクチニドリサイクル及び希土類元素等の核分裂生成物を取り除き塩の再利用を可能とするものであり、燃料の有効利用及び廃棄物の大幅な減容による環境負荷低減に資する。本法は、廃塩溶液をピリジン樹脂を用いて元素の吸着・分離を行うことにより、核分裂生成物、マイナーアクチニドが除かれたアルカリ金属塩回収及び燃料として使用可能な高純度マイナーアクチニドを回収するための廃塩からのマイナーアクチニド回収に関する研究開発である。 本事業期間中に模擬廃塩およびそれにマイナーアクチニドを加えたものを用いて核種の挙動を確認し、燃料と望まれている希土類元素を含まない高純度のマイナーアクチニドと、核分裂生成物を取り除き精製されたアルカリ塩化物塩が得られることを確認することにより、ピリジン樹脂を用いた廃塩処理の成立性を確認することが目標である。 本事業では、以下の3つの研究開発項目よりなる。 (1) 廃塩処理技術研究開発 廃塩からピリジン樹脂を用いた元素の分離により、乾式再処理の熔融塩として使用可能なアルカリ金属塩(LiCl, KCl)の精製技術に関する研究開発をおこなうものである。具体的には、模擬廃塩を作成して、廃塩に含まれるアルカリ金属、アルカリ土類元素、希土類元素のピリジン樹脂への吸着挙動及び分離挙動に関するデータを収集し、アルカリ金属塩を精製する廃塩処理工程を想定した場合での、廃塩の溶解度、ピリジン樹脂に吸着させる溶液量、塩を溶離させる液量、除染係数等の廃塩処理技術の工学的最適条件を探索するものである。 (2) マイナーアクチニド回収技術研究開発 (再委託先：原子力機構) 廃塩中に含まれるマイナーアクチニド(MA: Am, Cm)をピリジン樹脂を用いて廃塩から分離・回収するための研究開発を行うものである。 本研究開発では、MAを含む廃塩を照射済燃料から作成し、MAのピリジン樹脂への吸着及びMAと核分裂生成物等他元素との分離挙動についてデータを収集し、MA回収における最適条件の探索を行うものである。 (3) 廃塩からのマイナーアクチニド回収と廃塩処理法の工学的検討・評価 (1)の廃塩処理技術及び(2)の MA 回収技術を統合し、実規模プラント設備とした場合のシステムの検討、評価、問題点の調査等の工学的な検討を行うものである。
-------------	---

2. 研究成果	【事業項目 1】 塩酸-メタノール溶液で模擬廃塩を溶解し、ピリジン樹脂に吸着させたものを塩酸-メタノール溶液で溶離展開することにより、溶融塩の主要成分である Li, K と Sr, 希土類元素が分離できること確認した。高濃度の廃塩溶液を用いて廃塩構成元素のピリジン樹脂への吸着挙動を確認し、塩濃度で 5M 以上でピリジン樹脂への元素の吸着が生じることを確認した。なお、本試験の実施により、希土類元素のピリジン樹脂への吸着挙動が、陽イオンと錯形成する対陰イオンが同じ塩素イオンであるにもかかわらず、酸を含む塩酸溶液と酸を含まない廃塩（アルカリ金属塩化物）溶液では希土類元素の吸着挙動が大きく異なる（軽い希土類と重い希土類の分配係数が逆転する）ことを発見した。このことは、本事業においては特段大きな影響をもたらすものではないが、化学的に興味深く、また希土類元素の分離・回収への展開が考えられる。なお、本件に関する理学的な研究は本事業と乖離していくので事業内ではこれ以上の展開を図っていないが今後重希土も含めて研究を行うつもりである。 廃塩処理の処理量と操作性の観点より、廃塩水溶液をピリジン樹脂に吸着した後、塩酸-メタノール溶液で溶離展開して廃塩を生成する方法を提案した。廃塩精製試験の結果として、希土類元素の分離は可能であるが、Sr を十分に取り除くことは提案したプロセスでは困難であることが確認された。この件については、【事業項目 3】で改めて検討している。 【事業項目 2】 MA 及び廃塩構成元素の塩酸-メタノール混合溶液、塩濃度の高い水溶液での MA の吸着挙動及び廃塩を構成するその他の元素と MA の分離挙動についてデータを取得した。両溶液において MA は他の元素と比べて強く吸着することを確認した。これらの結果と【事業項目 1】の結果を踏まえ、工学的なシステムとして、廃塩水溶液(塩濃度で 5M)を着点した後、塩酸-メタノール混合溶液(濃塩酸/メタノール=3/2, 体積比)のものをを用いて高回収率(Am:99.0%, Cm:97.5%)、高純度(Am、Cm:共に 99%以上)で回収できることを確認するとともに、分離に必要な溶液量などを評価した。 【事業項目 3】 上記の項目 1, 2 の成果より、ピリジンを用いた単一の分離システムとして MA 回収に特化し、廃塩精製に関しては新たに陽イオン交換樹脂によるシステムを導入することを提案した。MA 回収は項目 2 で得られた成果及び文献による年間の廃棄物量等より実規模プラントの大きさを見積もると共にシステムの検討を行った。また、実際に運用する場合の課題についても検討を行った。実規模プラントはカラム体積 0.8m³ で高さ 2m という極めて小規模なもので済むことが確認された。 工学システムの課題については、クロマトグラフィを手法として用いるため、クロマトグラフィの課題である運転管理のための分析技術の開発も今後必要であること、湿式から乾式への転換時における塩の水和物除去欠が必要であることがわかった。後者については、現在一般に供給されている無水塩の作成方法が水和物を持った塩から水和物を除去して
----------------	---

	作成する手法が主流であることがわかり、その手法がそのまま適応できると考えている。 廃塩を精製し、再利用するという観点からはピリジン樹脂だけでは Cs と Li, K との分離が困難であること、Sr の除去が不十分であることが【事業項目 1】で明らかとなったので、Cs, Sr が分離できる方法として陽イオン交換樹脂を用いる方法を提案した。陽イオン交換樹脂による廃塩精製システムについては小規模な確認試験を行った。確認試験のクロマトグラムより Sr は Li 及び K からほぼ完全に分離できることが確認でき、Cs についても Li とはほぼ完全に分離でき、K とも大きな分離が確認でき、条件を最適化することで Cs も廃塩から除去できることを見出した。 結論として、ピリジン樹脂による MA 回収と陽イオン交換による手法を組み合わせることにより、乾式再処理で発生する廃塩を精製し、再利用できることを示すことができた。 【事業全体】 乾式再処理で発生する廃塩を溶解し、ピリジン樹脂と陽イオン交換樹脂を通すことにより、MA 回収と廃塩精製が可能であり、非常に小規模で簡便なシステムで成り立つことを示した。これにより、熔融塩に用いる塩の再処理を可能とし、乾式再処理における大きな問題の一つを取り除くことができることを示した。 また、MA 回収については、希土類元素をはじめ他の元素を含まない高純度なものを回収できることを示した。 【得られた成果の外部発表】 (論文発表、特許、データベース化、表彰、受賞、口頭発表、その他) 学会発表 (1)鈴木達也、田中真以子、小山真一：「乾式再処理廃塩からのマイナーアクチニド回収に関する研究開発(1)全体概要」 日本原子力学会「2008年春の年会」 (2)田中真以子、鈴木達也、小山真一：「乾式再処理廃塩からのマイナーアクチニド回収に関する研究開発(2)塩酸－メタノール溶液中によるアルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類元素の振る舞い」 日本原子力学会「2008年春の年会」 (3)鈴木達也、田中真以子、小山真一：「乾式再処理廃塩からのマイナーアクチニド回収に関する研究開発(3)アルカリ金属塩化物水溶液中の元素吸着挙動」 日本原子力学会「2008 日本原子力学会秋の大会」 (4)鈴木達也、田中真以子、小山真一：「アルカリ金属塩化物水溶液中での f-元素の 3 級ピリジン樹脂への吸着挙動」 日本放射化学会「2008 日本放射化学会年会・第 52 回放射化学討論会」 (5)田中 真以子、小山 真一、鈴木 達也：「イオン交換による乾式再処理廃塩精製技術」 イオン交換学会「2008イオン交換研究会」
--	---

	国際会議 (1) T. Suzuki, M. Tanaka, S. Koyama: Research and development on purification of spent molten salt waste by ion exchange technique, 10th Information exchange meeting on actinide and fission product partitioning and transmutation, Tokai, Japan, 2008 (2) T. Suzuki, M. Tanaka, S. Koyama: Research and development on purification method of spent molten salt with recovery of minor-actinide, International workshop for Asian nuclear prospect, Kobe, Japan, 2008 予定 鈴木達也、田中真以子、小山真一：「乾式再処理廃塩からのマイナーアクチニド回収に関する研究開発(4)ピリジン樹脂によるマイナーアクチニド回収と陽イオン交換による廃塩精製」日本原子力学会「2009 日本原子力学会秋の大会」
--	---