

高機能性キセロゲルによる原子力レアメタルの選択的分離法の開発

(受託者) 国立大学法人東北大学

(研究代表者) 三村均 大学院工学研究科

(再委託先) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、株式会社スリー・アール

(研究開発期間) 平成22年度～24年度

1. 研究開発の背景とねらい

特殊鋼の添加材、電子材料や環境対応素材として先端技術産業分野で幅広く利用されているレアメタルや白金族元素の多くは海外からの輸入に依存している。また、それらは特定地域に偏在し希薄であるうえに、経済的に高純度化が難しいものも含まれるため安定供給が望まれている。資源量の制約に起因する供給面での課題がある中、原子炉内の核エネルギーで創生する使用済燃料中にはレアメタル及び白金族元素などの希少元素が比較的高濃度で含まれており（原子力レアメタル）、新たな国内鉱脈としての価値は極めて大きい。一方で、これらは高レベル廃液処理時の、不溶解残渣やスラッジ状沈殿物として操作上大きな問題も抱えている。

本研究は、放射性廃棄物処分の大幅な削減、核不拡散性の向上、有用元素（発熱元素、白金族元素等）の有効利用、分離システムのコンパクト化を目指し、高機能性キセロゲルによる有用元素の精密分離技術の確立により、経済性、効率性、社会的受容性を向上できる先進的な高度核種分離プロセス（図1）を構築する。さらに、核エネルギーで創生する希少元素を含む国内鉱脈と位置づけ、生成する希少元素（原子力レアメタル）の精密分離及び利用を推進することを目的としている。

本研究では、高レベル廃液中に含まれる希少元素として、発熱元素（Cs）、白金族元素（Pd, Ru, Rh）及びオキソ酸イオン（Zr, Mo, Se, Te, Tc）を対象としている。発熱元素（Cs）の精密分離・回収プロセス構築では、Csに選択性の高いAWP内包キセロゲル吸着剤を調製し、キャラクタリゼーションを行うとともに、模擬高レベル廃液（JAEA, 28成分系廃液）及び実溶解液を用いてCsの吸着分離特性を解明し、Cs/Rb/Agの精密分離を行う。白金族元素（Pd, Ru, Rh）の精密分離・回収プロセス構築では、Pdに選択性の高い不溶性フェロシアン化物（KCuFC）内包キセロゲル吸着剤を新規な同時合成手法（in-vitro 合成法）により調製し、キャラクタリゼーションを行うとともに、模擬高レベル廃液（JAEA, 28成分系廃液）及び実溶解液を用いて吸着分離特性を解明し、Pd/Ru/Rhの精密分離を行う。オキソ酸イオン（Zr, Mo, Se, Te, Tc）の精密分離・回収プロセス構築では、Mo、Tcに選択性の高いLIX63, MIDOA, TOA内包キセロゲルを調製し、キャラクタリゼーションを行うとともに、模擬高レベル廃液（JAEA, 28成分系廃液）及び実溶解液を用いて各金属イオンの精密分離を行う。原子炉内で生成されたこれらの11元素（Cs, Rb, Ag, Pd, Ru, Rh, Zr, Mo, Se, Te, Tc）の比放射能に関して解析コード（ORIGEN）を用いて試算す

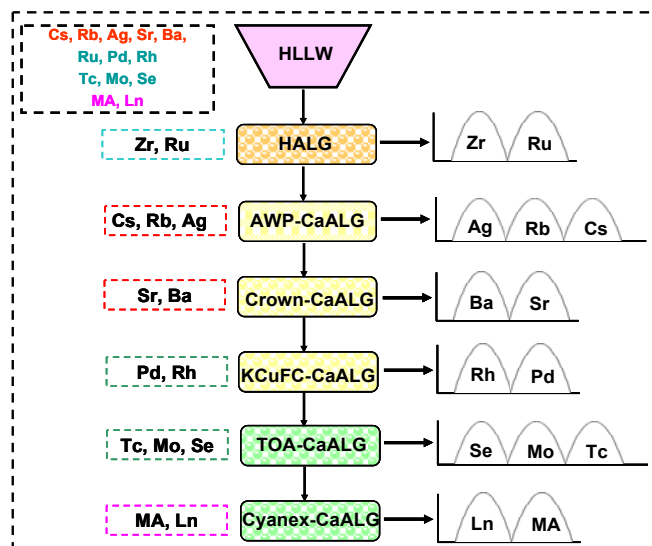


図1 高機能性キセロゲル吸着剤による高レベル廃液の希少元素の精密分離システム

2.2 白金族元素 (Pd, Ru, Rh) の精密分離・回収及び利用

Pd選択性の高いKCuFC-キセロゲル吸着剤を合成し、本吸着剤のキャラクタリゼーション(表面観察(図5)、組成分析)を行った。3元素(Pd, Ru, Rh)の単純系及び混合系のバッチ吸着特性(吸着速度、分配係数(図6))を調べ、Kdの序列は、Pd>>Ru, Rhであり、Pdの極めて高い選択性を確認した。混合イオンのKCuFC-キセロゲル吸着剤カラムの溶離クロマトグラフィを実施し、Pdと他の元素との良好な分離が実証された(図7)。

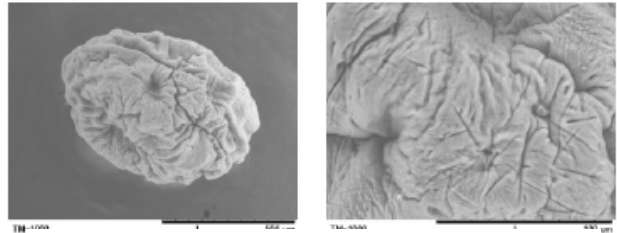


図5 KCuFC-キセロゲル吸着剤表面のSEM像

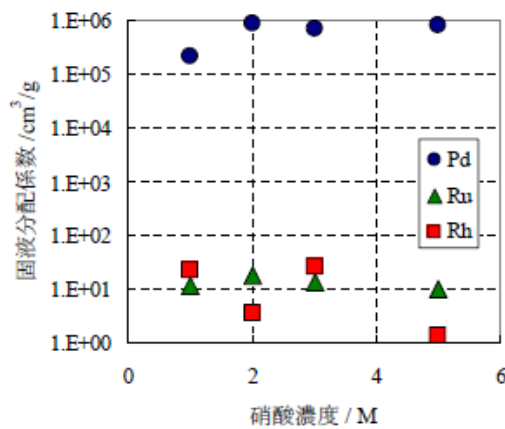


図6 KCuFC-キセロゲル吸着剤表面のSEM像

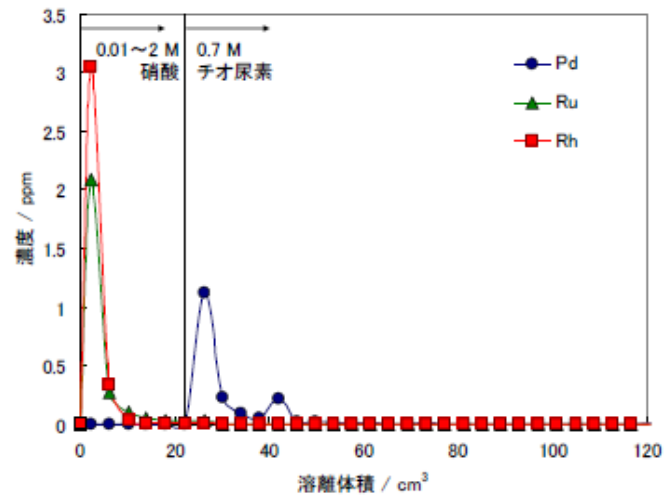


図7 KCuFC-キセロゲル吸着剤カラムによるPdの選択的分離

2.3 オキソ酸イオン (Zr, Mo, Se, Te, Tc) の精密分離・回収及び利用

オキソ酸イオン (Mo, Se, Te, Tc) 選択性の高いLIX63、MIDO A及びTOAを内包したキセロゲル吸着剤を合成し、吸着剤のキャラクタリゼーション(表面観察(図8)、組成分析)を行った。5元素(Zr, Mo, Se, Te, Tc)の単純系及び混合系のバッチ吸着特性(吸着速度、分配係数)を評

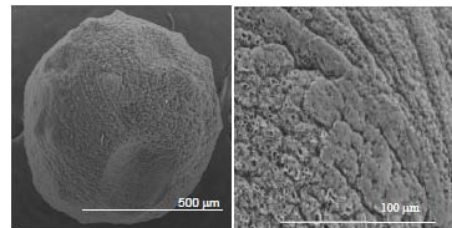


図8 MIDO A-キセロゲル表面のSEM像

価し、LIX63-キセロゲル吸着剤はMoに対して高い選択性を示し、MIDO AおよびTOA-キセロゲル吸着剤はRe (Tcの代替元素) 及びTcに高い選択性を有することを確認した。これらの基礎的な分配特性を基に、充填カラムによる溶離クロマトグラフィ分離を実施し、MoおよびReが効率的に溶離できることを確認した(図9、図10)。さらに模擬廃液からのバッチ吸着特性を評価するとともに、組成分析及び吸着特性に影響を与える元素の評価を行った。

2.4 分離プロセスの経済性、効率性及び社会的受容性の評価

11 元素 (Cs, Rb, Ag, Pd, Ru, Rh, Zr, Mo, Se, Te, Tc) の原子炉内での生成量に関する解析コード (ORIGEN) を用いた試算、及び国内及び海外市場における 11 元素に関する需給状況の推定を行っ

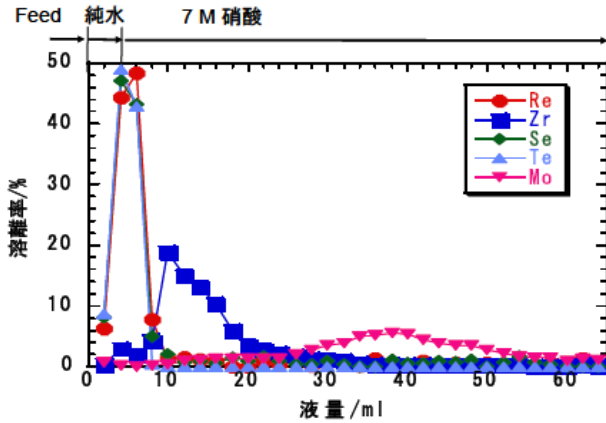


図9 LIX63-キセロゲル吸着剤カラムによる Mo の選択的分離

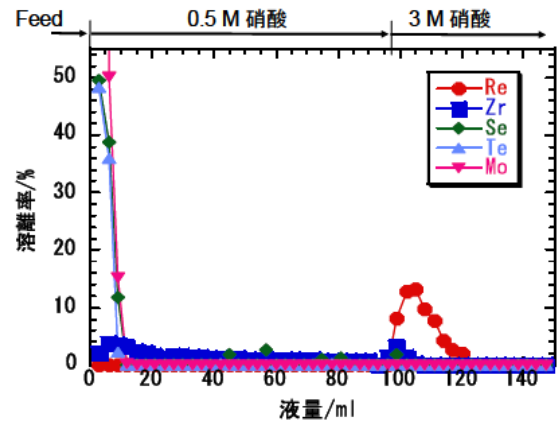


図10 TOA-キセロゲル吸着剤カラムによる Re の選択的分離

た。また、精密分離の基礎データ及び公開文献を調査し、11元素の分離特性（回収率、除染係数）の推定を行った。さらに精密分離・回収された白金族元素（Pd, Ru, Rh）の利用に関する事例検討を行い、分離・回収事業が経済的に成立可能となる要件（比放射能（図11）、分離費用）を試算した。

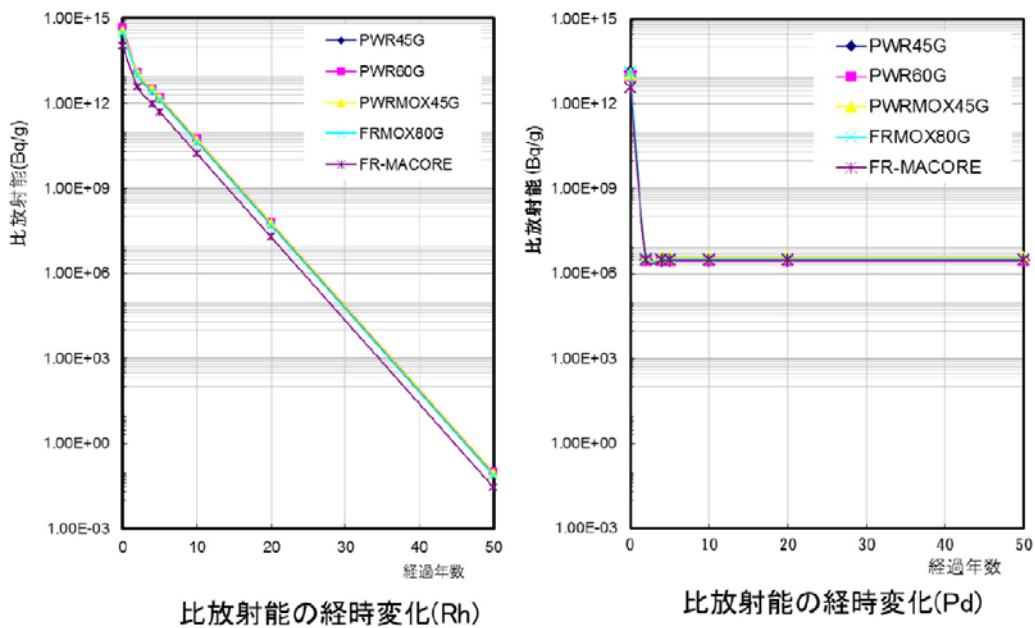


図11 比放射能の経時変化 (Rh, Pd)

3. 今後の展望

高機能性キセロゲル吸着剤を合成し、分配特性および模擬廃液のクロマトグラフィ分離特性の評価から AWP-キセロゲルによる Cs の選択的分離、KCuFC-キセロゲルによる Pd の選択的分離、LIX63-キセロゲルによる Mo の選択的分離、TOA および MIDOA-キセロゲルによる Re の選択的分離が確認された。発熱元素、白金族元素およびオキソ酸イオン同士の分離特性をさらに向上させ、実溶解液からの選択的分離を実証する。回収した希少元素の固定化法、高純度回収法を高度化させると共に、各要素技術をシステム化し、先進的な高度核種分離プロセスを構築する。