

## 4. 金属燃料・乾式リサイクル技術

### 実高レベル廃液による脱硝・塩素化技術の実証

#### 背 景

使用済み酸化燃料の Purex 法による再処理では、極めて長い半減期を有するマイナーアクチノイド元素 (MA: Np(ネプツニウム)、Am(アメリシウム)および Cm(キュリウム)の総称) を含む高レベル放射性廃液が発生し、ガラス固化体として地層処分される。この高レベル廃液から MA を分離・回収することにより、超長期に渡る安全評価の不確実性を低減し、更には発熱性であるこれらの元素を除去することで地層処分に対する負荷を低減する可能性がひらけると言われている。

当所では金属燃料高速炉・乾式再処理の開発の一環として、高レベル廃液から乾式法で MA を含むアクチノイド元素を分離し、金属燃料サイクルに導入する技術の開発を進めている。硝酸溶液である高レベル廃液を乾式法で処理するためには、脱硝により酸化物に転換し、更に塩化物に転換する必要がある(これらの脱硝・塩素化をまとめて前処理工程と称する)。前処理工程に関してはこれまでに模擬高レベル廃液を用いた技術開発を実施しており、本方法が実際の高レベル廃液にも適用可能であり、前処理工程が成立することを確認する必要がある。

#### 目 的

実際の使用済み酸化燃料を Purex 法により再処理して得た実高レベル廃液を用いて脱硝・塩素化の連続試験を行い、前処理工程の成立性を確認する。また、データの不足しているプルトニウム(Pu)、MA、テクネチウム(Tc)を含む各元素の前処理工程での挙動を明らかにする。

#### 主な成果

PWR 使用済み酸化燃料を Purex 法により再処理して約 520g の実高レベル廃液を得た。ウラン(U) 8400  $\mu$ g/g、Pu+MA 600  $\mu$ g/g、核分裂生成物(FP) 2000  $\mu$ g/g(そのうち希土類 FP 870  $\mu$ g/g)を含む高レベル廃液を使用して前処理工程の連続試験を実施し、以下の結果を得た。

(1) 高レベル廃液を 100°C 付近で加熱濃縮した後、500°C で 84.5 時間の脱硝を行った。その結果得られた脱硝物(図 1)は、ステンレス製のつぼとの反応は認められず、ほぼ全量を回収できた。

次に、この脱硝物を 650°C の LiCl-KCl 熔融塩中で 32.2 時間塩素ガスと反応させ、反応後の回収塩(図 2)の一部を水に溶解して分析した。その結果、表 1 に示すようにアクチノイド元素は大部分が塩化物に転換されていることが確認された。なお、1~5%程度が非水溶性成分として検出されたが、これらが未反応物であるか、あるいは不純物の影響等による分析誤差であるかは不明であり、更なる検討が必要である。

(2) Tc は前処理工程ではほとんど揮発せず、多くが熔融塩中の非水溶性成分に転換されることがはじめて明らかになった。一方、希土類 FP、アルカリ土類 FP、アルカリ金属 FP はほぼ全量が塩化物に、貴金属 FP は大半が金属と思われる非水溶性成分となり、これまでの予想と一致した。遷移金属 FP およびその他の FP については、揮発分の回収が困難であったためマスバランスが悪いが、予想 1) と一致する挙動である(表 1)。

以上により、本前処理工程の成立性が確認された。

#### 今後の展開

今回の試験で得られた塩素化回収物から液体カドミウムへの還元抽出を実施し、乾式法による高レベル廃液からのアクチノイド元素の分離・回収を実証する。なお、還元抽出試験自体は終了しており、現在は分析待ちの状態である。

主 担 当 者 原子力技術研究所 次世代サイクル領域 主任研究員 魚住 浩一

関連報告書 「実高レベル廃液による脱硝・塩素化技術の実証」 電力中央研究所報告: L07011 (2008 年 6 月)

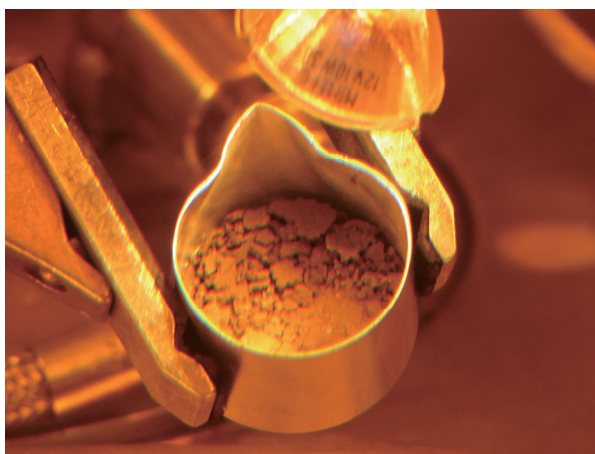


図 1 実高レベル廃液の脱硝物

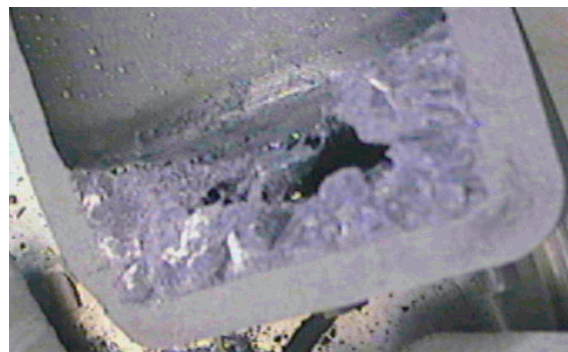


図 2 実高レベル廃液の塩素化後の回収塩

表 1 使用した高レベル廃液中の存在量に対する各元素(元素群)の検出割合

検出箇所 元素(群)	濃縮時 <sup>*3</sup> の 蒸発成分の 凝集液	脱硝時 の 揮発物 <sup>*4</sup>	塩素化 時の 揮発物 <sup>*4</sup>	塩素化回収塩中 の水溶性成分 (塩化物)	塩素化回収塩中の 非水溶性成分 (酸化物、金属等)	合計
U	0.0%	0.0%	0.0%	110.0%	3.1%	113%
Np	0.0%	0.0%	0.0%	104.1%	5.3%	109%
Pu	0.0%	0.0%	0.0%	94.4%	5.0%	99%
Am	0.0%	0.0%	0.0%	111.4%	1.5%	113%
Cm	0.0%	0.0%	0.0%	103.4%	1.2%	105%
Tc	0.0%	0.0%	0.6%	16.2%	65.7%	82%
希土類 FP	0.0%	0.0%	0.1%	99.5%	1.0%	101%
アルカリ土類 FP	0.0%	0.0%	4.0%	95.0%	10.5%	110%
アルカリ金属 FP	0.0%	0.0%	1.9%	104.0%	2.0%	108%
遷移金属 FP <sup>*1</sup>	0.0%	0.0%	20.4%	16.0%	4.4%	44%
貴金属 FP	0.0%	0.1%	0.0%	21.7%	106.0%	128%
その他の FP <sup>*2</sup>	0.0%	0.0%	6.9%	3.2%	12.0%	22%

\*1 : Tc を除く。

\*2 : Sn、Sb、Te。なお、Cd はホットセルの汚染による影響が大きいため本表には含めず。

\*3 : 高レベル廃液の減容のため、脱硝に先立って大半の水分を蒸発させる工程。

\*4 : 装置上の問題により揮発物の全量回収が困難であったため、これらの値は低めに見積もられていることになる。