

評価の詳細

研究開発課題名（研究機関名）：

抽出クロマトグラフィ法によるMA回収技術の開発

（独立行政法人日本原子力研究開発機構）

機関名：日本原子力研究開発機構

代表者氏名：駒 義和

機関名：国立大学法人東京工業大学

代表者氏名：竹下健二

研究期間及び予算額：平成18年度～平成21年度（4年計画） 810,975千円

平成18年度 147,016千円

平成19年度 245,177千円

平成20年度 256,747千円

平成21年度 162,036千円

項目	内容
1. 目的・目標	<p>(達成目標)</p> <p>マイナーアクチニド (MA) のアメリシウム (Am) 及びキュリウム (Cm) を高レベル放射性廃液から回収することを目的として、抽出クロマトグラフィ法による工学規模での基本性能の実証を行う。本課題の達成目標は、分離性能、安全性、計装・制御、遠隔運転保守に係わる次の項目である。</p> <p>分離性能 Am と Cm の回収率 99.9%以上、100 の除染係数を達成し、製品として硝酸溶液を得る。このために有望な抽出剤を選定する。</p> <p>安全性 異常時を含めて火災・爆発を防止する。</p> <p>計装・制御 運転制御を自動化する。</p> <p>遠隔運転保守 交換を可能とする。</p> <p>(卓越性)</p> <p>抽出クロマトグラフィ法は、MA 回収における研究開発の主流である溶媒抽出法に対して、主要機器が簡素であることなどによる経済的な利点が期待される。また、技術的には、分析などに利用される高い分離性能とともに、溶媒抽出に対して抽出剤と希釈剤の相溶性の問題がないことからプロセス構築における自由度の高さが期待される。</p> <p>工学規模を目指した開発は国際的にも我が国が唯一取り組んでおり、実現できれば世界的競争力のある技術を確立することとなる。</p> <p>(全体計画)</p> <p>目標を達成するための課題は主に次の 2 点に集約される。</p> <p>抽出剤の選定 抽出クロマトグラフィ法は数多くの抽出剤を利用できるので、候補となる選択肢が多い。また、比較すべき観点も分離性能のみならず耐久性、使用後の処理など多岐にわたる。</p> <p>溶媒抽出との違い 現行の再処理技術は溶媒抽出法を前提として確立されており、安全性、計装制御、遠隔運転保守などは新たに概念を構築しなければなら</p>

	<p>らない。</p> <p>これらを念頭に置き研究開発計画を立案した。工学規模に係わる検討は、実用規模の処理量の4分の1(750 L/d)を達成する装置を製作して試験に供した。</p> <p>(計画の変更)</p> <p>検討対象の抽出剤として5種(CMPO、TODGA、HDEHP、2種のR-BTP)を計画していた。R-BTPを1種に限定し、TRPENを候補に加えて検討した。</p> <p>また、放射線による水素発生の収率について、報告されている値の引用ではなく、γ線照射の実験により求めた。</p>
<p>2. 研究成果</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 成果 ・ 副次的な成果 ・ 論文、特許等 	<p>【プロセス開発】</p> <p>高レベル放射性廃液からのAmとCm回収について、2種のシステム(2段階もしくは1段階分離)、5種の吸着材(CMPO、TODGA、HDEHP、R-BTP、TRPEN)を候補として、3つの観点(分離回収、安全、再利用・廃棄物処理)に基づき実験データを求めて比較評価した。</p> <p>分離回収に関しては、バッチ法吸着試験、カラム法分離実験などを行い、吸着分離係数、回収率や除染係数などを求めた。安全に関しては、硝酸や放射線による性能の劣化、熱による分解反応を調べた。再利用・廃棄物処理に関しては、抽出剤の損失と回収、劣化物等の分解を調べた。</p> <p>比較評価により、Am-Cm-希土類元素回収とAm-Cm/希土類元素分離から成る2サイクルのシステムにおいてTODGAとR-BTP吸着材を用いることが良いとの結果を得た。実験室でのカラム試験により、AmとCmの回収率>95%、テクネチウム(Tc)を除く核分裂生成物の除染係数>100を得た。これらの結果をもとに、工学規模の設備では、目標とする回収率99.9%、除染係数100を達成する可能性があることを示した。また、実験データから、火災・爆発安全が確保されること、分離回収操作を繰り返し行えることを確認し、使用済み吸着材の処理方法を取りまとめた。</p> <p>分離のための種々の化合物を上記のような広範な観点から比較評価する試みは初めてであると思われ、得られた結果のみならず、その手法も価値が高いものと考えられる。</p> <p>【要素機器開発】</p> <p>抽出クロマトグラフィの主たる機器である分離塔が備えるべき分離回収、安全、遠隔操作性を達成する基本構造を確立するため、工学規模の試験装置を製作し、試験を行い検討した。内径20cm及び48cm、有効高さ65cmの分離塔を備える要素試験装置を製作して試験に供した。</p> <p>分離性能に関して、分離塔内の流速が径方向について一様であり、カラムとしての性能が実験規模のカラムと同等であることを明らかにした。安定な分離のために重要な温度について、放射性同位体からの崩壊熱は、移動相を介して系外に排出でき、影響を与えないことを確認した。また、2サイクルのフローシートに基づき、模擬廃液を用いた繰り返し分離試験を行い、抽出剤について一定の条件(水への溶</p>

解度)を満足すれば定常的な分離回収操作の繰り返しが可能であることを確認した。

安全性に関して、放射線により生成する水素の収率を実験により求め、生成する気体は移動相を介して系外に排出でき、分離塔内に蓄積しないことを明らかにした。異常時の挙動に関して、移動相が停止すると分離塔内の温度が上昇するとともに、放射線分解により生成する気体が蓄積していくこと、移動相の流れが復旧するといずれも解消されていくことを、試験及び計算による解析によって明らかにした。また、移動相が停止する要因である固体不純物の蓄積の挙動を調べ、これを防止する方策を取りまとめた。

工学規模装置について、分離性能を達成するのみならず、安全性に関して従来の安全審査指針に沿った対策(異常な温度上昇を防止するための閉塞防止と、水素の滞留防止対策の確立)を講ずることができることを明らかにした。後者は、溶媒抽出と異なる原理に基づくプロセスの工学的成立性を格段に高めるものである。

【遠隔運転保守技術の開発】

遠隔操作に関しては、最も頻繁な操作が必要である吸着材の交換について、交換の方法としてスラリー移送法を選定、これに適した装置の構造を決定し、試験によりその操作が実用的であることを明らかにした。また、工学規模システムにおいて必要となるメンテナンスについて、その内容及び頻度を整理し、遠隔操作が必要となる作業を抽出した。異常時に必要となる遠隔運転保守について、閉塞、分離性能の低下、破損・漏えい及び火災・爆発の4つの事象を対象に検討し、各機器及び施設に必要となる設備を整理した。

計装・制御方法に関しては、定常運転維持のための制御項目、異常検知のための監視項目、ステップ移行の条件となる計測項目を検討・抽出し、その結果を基にMA回収工程の運転のフローを得た。

工学規模装置を検討する基盤となる遠隔運転と計装・制御の方法をまとめることができた。

【工学規模機器開発】

分離性能、安全性及び遠隔操作性能を評価するために工学規模試験装置を製作した。装置は、吸着材の交換や分離塔の交換などを想定した機構を備え、これを用いて試験を実施した。

分離性能については、カラム性能として理論段数を評価し所定の分離性能が担保されることを確認した。安全性に関しては、異常時の対応に関し、カラムの閉塞に係わる緊急な吸着材の抜き出し、内圧上昇防止機能等を評価した。遠隔操作性能については、定常運転時における分離塔の交換を含めた吸着材の充填・抜き出し性、フィルター等消耗品類の交換性等を評価した。

実体をもって工学規模装置の基本的構造を示すことができた。

【事業全体】を通して

工学規模における抽出クロマトグラフィ法のMA分離性能、安全性、計装制御性、及び遠隔運転保守性に関わる基本性能を総合的に評価した。

MA分離性能に関しては、TODGA吸着材とR-BTP吸着材による

2 サイクルフローシートが最良であり、99.9%の回収率と100の除染係数を達成する可能性があることを示した。工学規模のシステムに不可欠である、移動相の制御、繰り返しの操作、遠隔操作への対応についても目標を達成した。

安全性に関しては、吸着材を原因とした火災、並びに水素を原因とした爆発を防止する方策を取りまとめることができ、目標を達成した。

計装・制御に関しては、分離回収と吸着材の交換に関する計装・制御の方法を明らかにし、設備の計装配置を取りまとめることができ、目標を達成した。

遠隔運転保守に関しては、吸着材の交換方法を確立し、最適な分離塔の構造を決定するとともに、吸着材の交換頻度が工学的に実現しうることを見出すなど所定の成果をあげ、目標を達成した。

すべての業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

【得られた成果の外部発表】

(論文)

- (1) “Chromatography Column System With Controlled Flow and Temperature for Engineering Scale Application”, 渡部創, 後藤一郎, 佐野雄一, 駒義和, Journal of Engineering for Gas Turbines and Power, 132(10), 102903 (2010).

(国際会議)

- (2) “Adsorbents Development for Extraction Chromatography on Am and Cm Separation”, 駒義和 他, GLOBAL 2009, 9月6～11日, 2009, Paris, France (2009).
- (3) “Chromatography column system with controlled flow and temperature for engineering scale application”, 渡部創 他, International Conference on Nuclear Engineering (ICONE17), 7月12～16日, 2009, Brussels, Belgium (2009).
- (4) “Recent Progress on R&D of Innovative Extractants and Adsorbents for Partitioning of Minor Actinides at JAEA”, 木村貴海, 森田泰治, 駒義和, Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Tenth Information Exchange Meeting, 10月6～10日, 2008, 水戸 (2008).
- (5) “Extraction Chromatography for Am and Cm Recovery in Engineering Scale”, 駒義和 他, ATALANTE 2008, 5月19～23日, 2008, Montpellier, France (2008).

(上記の他に、年内に2件を予定)

(国内会議)

- (6) 日本原子力学会, 春の年会及び秋の大会にて12件(他に、次回秋の大会にて2件を予定)

<p>3. 事後評価</p> <ul style="list-style-type: none"> • 研究開発の成果 • 技術の卓越性 • 成果の発展性 	<p>【研究開発の成果】</p> <ul style="list-style-type: none"> • 目標の MA 回収率 99.9%以上、Tc を除く核分裂生成物の除染係数 100 以上を達成する可能性を示しており、相応の成果を挙げたと評価しうる。 <p>【技術の卓越性】</p> <ul style="list-style-type: none"> • 放射線の影響として、ガンマ線による水素発生 G 値が測定され、発生した水素による抽出クロマト装置への影響も検討されていることは評価される。 • 世界的にもこれという MA 回収技術が開発されていない状況において、抽出クロマトグラフィ法は、達成できれば、溶媒抽出法に比べてメリットの大きい方法であり、一つの選択肢として期待される。 <p>【成果の発展性】</p> <ul style="list-style-type: none"> • プロセス開発と機器開発について、それぞれ一定の成果が得られている。抽出クロマトグラフィ法の性能と限界をさらに明確にすることによって、それに適した利用法へ展開できる可能性がある。
<p>4. その他</p>	<ul style="list-style-type: none"> • 今後、必要な MA 回収率を明確にした上で、その確保と経済性とが両立する最適なプロセスフローシートを構築するとともに、代替技術である溶媒抽出法に対する抽出クロマトグラフィ法の優位性を確認していく必要がある。