

プログラム名：核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化

PM名：藤田 玲子

プロジェクト名：分離回収技術開発

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平 成 2 8 年 度

研究開発課題名：

「分相・フッ素化技術を用いたガラス固化体からの LLFP 回収」

研究開発機関名：

国立大学法人福井大学

研究開発責任者

米沢 晋

I 当該年度における計画と成果

1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

ガラス固化体の還元溶融・分相処理実験を行い、Bi-Pd メタル中への Se の吸収を抑制することのできる処理条件を明らかにする。還元溶融と分相処理を連続的に行うプロセスでガラス固化体を処理し、表面に Cs、Se が濃集した酸化物粒子を生成させる。この粒子を水処理し、液中に Cs、Se を抽出し、Zr を酸化物粒子に残留させる。

【テーマ③】メタルへのセレン吸収の抑制

熱処理条件と Se 移行率とを比較し、Bi-Pd メタルへの Se 移行率が 10%以下となるような条件を明らかにする。

【テーマ④】メタル相への Pd 回収と酸化物結晶相中 Cs, Se, Zr の分離

還元溶融・分相の連続プロセスでガラス固化体を処理し、生成した Bi-Pd メタル相中に Pd を 90% 以上回収する。一方、Cs、Se、Zr を酸化物結晶相に移行させるとともに、これら LLFP が表面に濃集した酸化物結晶粒子を生成させる。この粒子を水処理し、Cs と Se をそれぞれ 90%以上液相へ移行させ、Zr を 90%以上固相へ移行させることを目指す。

2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

2-1 進捗状況

テーマ③では、メタルへのセレン吸収を抑制する因子として、メタル中パラジウムの含有量に着目した。セレンを含むホウケイ酸ガラス中において、組成の異なるパラジウム-ビスマス合金（メタル）を加熱し、メタルへのセレン吸収挙動を調べた。SEM-EDS によって、加熱後のメタル表面および断面におけるセレンの分布を観察した。メタルへのセレン吸収機構を明らかにするため、熱力学計算でパラジウム-ビスマス-セレンの三元系状態図を作成し、安定相を調べた。オージェ電子分光分析によって、メタル産物表面における成分の化学状態を評価し、メタルへのセレン吸収挙動との関連を調べた。

テーマ④では、JST 試供の高模擬ガラスの溶融・滴下実験を行った。ガラス融液滴下装置の諸条件（反応容器の構成、滴下ノズルの加熱条件、滴下物を粒子化するための機構）を変化させ、酸化物粒子が生成する条件を調べた。この粒子産物を水処理し、液相中のセシウム、セレン、ジルコニウムを分析した。また、上記の溶融・滴下実験で生成したメタルに含まれるパラジウムを分析した。

2-2 成果

メタルへのセレン吸収を抑制する因子を調査したところ、メタル中パラジウムの量が増加するにしたがって、メタル-ガラス間の濡れ性が低下することが分かった。その結果、ガラスからメタルへ吸着されるセレンの量が減少する。このことから、メタル中パラジウムの量を増加させることで、メタルへのセレン吸収を抑制することができることが分かった。この知見をもとに、JST 試供の高模擬ガラスを熱処理したところ、メタルへのセレンの移行率を 10%以下にすることができた。

ガラス融液滴下装置の諸条件（反応容器の構成、滴下ノズルの加熱条件、滴下物を粒子化するための機構）を制御することで、粒径 2~5mm の酸化物粒子を回収することができた。JST 試供の高模擬ガ

ラスを用いて溶融・滴下実験を行い、酸化物粒子を得た。この粒子断面を観察したところ、表面にナトリウムが濃縮していることを確認した。この粒子産物を水処理することによって、90%のセシウム、99%以上のセレンを液相へ移行させ、96%のジルコニウムを固相に残留させることができた。熱処理において、99%以上のパラジウムをメタルへと回収できることも確認しており、当該年度の目標を達成することができた。本年度の目標と成果を下表にまとめる。

| 研究開発課題及び項目 | 達成目標 | 成果 |
|------------------------|---------------------|--------------------|
| 【テーマ③】 | | |
| メタルへのセレン吸収の抑制 | Pd の 90%以上をメタル相へ回収 | Pd の 99%以上をメタル相へ回収 |
| | Cs, Se の 90%以上を水へ回収 | Cs の 90%を水へ回収 |
| 【テーマ④】 | | |
| メタル相への Pd 回収と | Zr の 90%以上を酸化物相へ移行 | Se の 99%を水へ回収 |
| 酸化物結晶相中 Cs, Se, Zr の分離 | | Zr の 96%を酸化物相へ移行 |

2-3 新たな課題など

今回は、メタルの組成に着目して、メタルへのセレン吸収の抑制効果を調べた。ただし、熱処理時の雰囲気やガラス組成など、メタルへのセレン吸収に影響を及ぼす要因は他にも考えられる。この点を明らかにすることが今後の課題である。そのために、原子吸光光度法や ICP 発光分析における共存成分の干渉、JST 高模擬ガラスのサンプル誤差が及ぼす分析結果への影響を調べ、それを元に分析精度の向上を図ることも考えている。

3. アウトリーチ活動報告

展示会や説明会において、ImPACT プログラム-核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化の概要を紹介するとともに、本研究の成果を公表した。具体的には、イノベーション・ジャパン-大学見本市 2016 (2016 年 8 月 25 日、26 日)、JST 新技術説明会 (2016 年 8 月 30 日) である。