

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：溶融塩中における電解還元・化学還元を用いたガラス固化

体からの LLFP 回収プロセスの開発(2)

研究開発機関名：(株)東芝

研究開発責任者

浅野 和仁

# 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

核変換技術による高レベル廃棄物の大幅な低減・資源化を目指す際に、ガラス固化体中に閉じ込められている長寿命核分裂生成物(LLFP: Pd, Cs, Se, Zr)を取出す必要がある。LLFPはガラス固化体主成分である二酸化ケイ素( $\text{SiO}_2$ )のSi-O網目構造中に閉じ込められていると考えられるため、LLFPを効率的に取り出すためには、(1)Si-O網目構造を溶解/分解する技術、(2)溶解/分解生成物からLLFPを回収する技術、(3)工学的に成立させるためのプロセス設計、に関する研究開発が必要である。本研究ではこれらの課題を解決するために、(1)ガラス固化体の還元技術の開発、(2)還元生成物からのLLFP回収技術の開発、(3)ガラス固化体からのLLFP分離回収プロセスの検討、を行う。

今年度における研究目標を下記に示す。

### (1) ガラス固化体の還元技術

LLFP含有ガラスの化学還元により $\text{SiO}_2$ 還元率90%以上を達成する。

### (2) 還元生成物からのLLFP分離回収技術

LLFP含有ガラスの化学還元試験により得られた還元生成物の溶解試験を行い、LLFP成分の溶解挙動を把握する。

### (3) ガラス固化体からのLLFP分離回収プロセスの検討

LLFP分離回収プロセスフロー図作成のため、基礎データを中間整備する。

## 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

#### (1) ガラス固化体の還元技術

熔融 $\text{CaCl}_2$ 中でCa還元試験を行い、 $850^\circ\text{C}$ にてLLFP含有ガラスに含まれる $\text{SiO}_2$ を金属に還元可能なことを確認した。XRD、ICP-AES等を用いた分析により $\text{SiO}_2$ 還元率97.8wt%を確認し、目標90wt%以上を達成した。

#### (2) 還元生成物からのLLFP分離回収技術

金属Caを用いてLLFP含有ガラスを化学還元処理することで、難溶解性元素であるZrを1M-HClへ酸溶解可能な化学形態へ変換できることを試験により確認した。

#### (3) ガラス固化体からのLLFP分離回収プロセスの検討

ガラス固化体の化学還元試験、還元生成物からのLLFP分離回収試験から得られたデータを用いて、ガラス固化体からのLLFP分離回収プロセスフロー案、主要核種の移行率、概算物質収支を整備した。

### 2-2 成果

熔融 $\text{CaCl}_2$ 中でのLLFP含有ガラスのCa還元により、ガラス主成分であるSiが金属(Ca-Si合金など)にまで還元可能なことをXRD分析により確認した(図2.2.1)。また、LLFP成分の中で最も還元されにくいZrも還元可能なことが推定された。XRD、ICP-AES分析等により、LLFP含有ガラス中の $\text{SiO}_2$ が97.8wt%還元されたことを確認した。化学還元時のLLFP挙動に関しては、Cs、Seはほぼ全量が熔融塩中へ溶出、Zr、Pdは固体として残存することを確認した。また、Zrは化学還元処理を施すことで、1M-HClに溶解できることを明らかにした。

これらの試験結果から、LLFP (Pd, Cs, Se, Zr ) とガラス成分の分離回収プロセスフロー案を作成した(図 2.2.2 参照)。

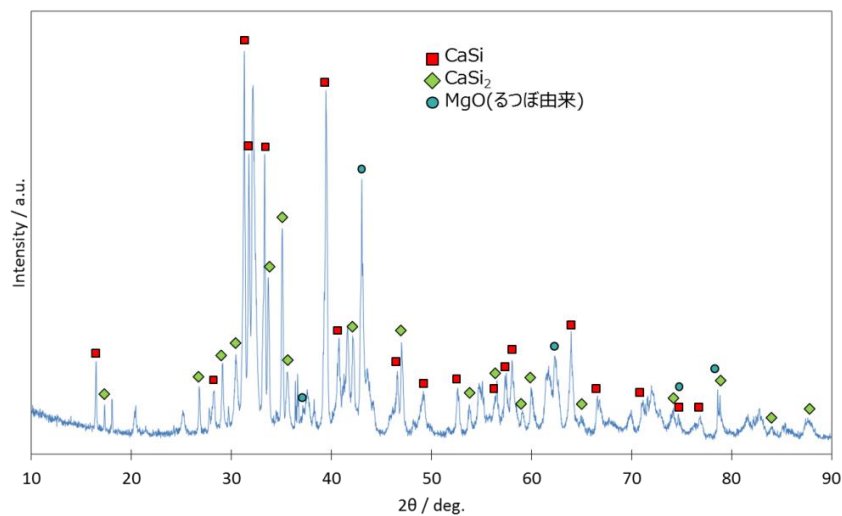


図 2.2.1 還元生成物の XRD 分析結果

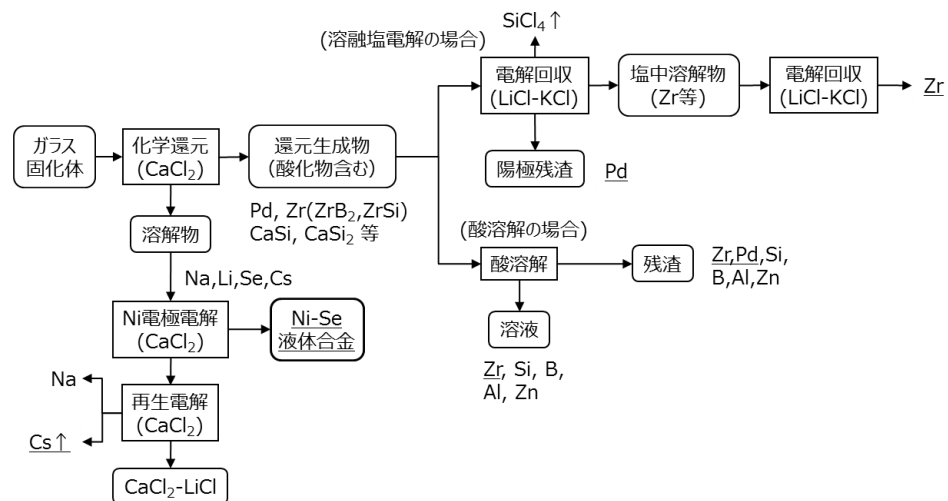


図 2.2.2 ガラス固化体からの LLFP 分離回収プロセスフロー案

### 2-3 新たな課題など

LLFP 含有ガラスの化学還元によりガラス成分を金属にまで還元でき、Cs、Se を熔融塩中に、Pd、Zr を固体として回収可能なことを確認した。しかしながら、実ガラス固化体中には様々な元素が含まれており、これら元素の相互作用により還元挙動が異なることが予想されるため、対象となっている LLFP 元素以外の元素挙動を精査する必要がある。

## 3. アウトリーチ活動報告

特記事項なし