

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：

高温電気化学法等によるガラス固化体の溶解技術の

フイージビリティ検討

研究開発機関名：

同志社大学

研究開発責任者

後藤 琢也

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

ガラス固化体の分離回収技術に必要不可欠となるガラス固化体を溶解する技術に資する新規手法のフィージビリティ検討を行う。特に本提案プロジェクトでは、新規手法としてガラス固化体と熔融塩を混合溶解し、電気化学的手法と化学的手法を適宜組み合わせ、目的に応じた元素の溶解および回収の可能性について、そのフィージビリティを検討する。具体的には、①課題1：熔融塩とガラスを混合し、低温でガラスを溶かすことができる熔融塩の探査を行う。さらに、②課題2：実際に選定した熔融塩を用いて、電気化学的・化学的手法を組み合わせた新たな FP 分離・回収法の可能性について実際に試験を行う。以上の検討を通じて、③課題3低温でガラス固化体の溶解が可能な熔融塩組成の提案、さらに熱力学的な観点から目的元素の抽出を合理的に行える方法を提供する。熱力学からのフィージビリティを明らかにすることを研究開発目標とする。

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

本研究開発課題に対して、課題1から課題3を設定し、2-2の成果に記載する通り、概ね当初目標通りの成果が得られた。特に、当初課題であるガラス固化体の溶解という課題に新たに、ガラス固化体を溶解せず、LLFP 元素のみを溶出させた後に、これを電解回収する分離・回収法の可能性についても実施検討することが加わった。

課題1の「熔融塩候補の決定」については、完全にシリケートガラスを溶解する塩として、KF 単塩を 700°C でシリケートガラス：KF = 1 : 1 (モル比) が、一方、熔融塩組成：CaCl₂ (48 mol%) - NaCl (52mol%) (600°C) を用いることで LLFP 成分を熔融塩中に溶出させることが可能であることを明らかにした。

課題2の「熔融塩中での溶解・回収に必要な LLFP の平衡論的データ取得」として、模擬ガラスに含まれる Pd, Se, Ce, Sr, Zr, B の CaCl₂ (48 mol%) - NaCl (52mol%) 中への溶解度として、SiO₂ は 1.0 mol% 未満、Pd, Se, Ce, Sr の 4 元素については 90% 以上、Zr については 60% であることを明らかにした。LLFP の平衡電極電位は、KF (51 mol%) - LiF (49mol%) 中で $Zr^{4+} + 4e^{-} \rightarrow Zr$: (0.49 V vs. K⁺/K)、 $B^{3+} + 3e^{-} \rightarrow B$: (1 V vs. K⁺/K) $Si^{4+} + 4e^{-} \rightarrow Si$: (1.8 V vs. K⁺/K) であることを明らかにした。

課題3の「電解試験および塩基度調整による シリコンおよび LLFP 元素の分離・回収可能性について検討」については、電解試験を行い、KF-ボロシリケートガラス (ガラス固化体) からの金属 Si の電解回収、および B と Zr の分離回収できることを明らかにした。さらに、CaCl₂ (48 mol%) - NaCl (52mol%) に模擬ガラス固体を 12 時間以上浸漬させることで、Pd, Se, Ce, の 3 元素については 90% 以上溶出し、模擬ガラスは、LLFP が抜けたボロシリケートガラスの状態に保てることを明らかにした。また、Zr についても 1 回の回収で 60% 溶出するので、この操作を 3 回繰り返せば、90% 以上溶出することを明らかにした。

これらの検討から、600°C で LLFP を含むガラス固化体を CaCl₂ (48 mol%) - NaCl (52mol%) に浸漬させることで、LLFP 元素を熔融塩相に移行させ、イオンの状態で熔融塩中に存在する LLFP 元素を電解により、分離・回収できる新たな溶解技術を提案できた。

以上のことから、平成 28 年度の新規なガラス固化体からの分離・回収のフィージビリティが示せた。

2-2 成果

以下の平成 28 年度の成果をまとめる。

H28年度の成果

- ガラス固化体と溶融塩を混合溶融し、電気化学的手法と化学的手法を適宜組み合わせ、目的に応じた元素の溶解および回収の可能性を検討を行った。

期間/ マイルストーン	4月～7月	8月～3月
検討課題	・溶融塩候補の決定	・溶融塩の決定 ・シリコン回収 ・LLFPの電気化学的回収と溶解沈殿回収の2種類の方法を組み合わせた新たな方法を提案
【1】溶融塩の探査	LLFPのみを溶出できる塩 NaCl-CaCl_2 模擬ガラスを完全に溶かすことが出来る塩: KF	
【2】溶融塩中での溶解・回収に必要なLLFPの平衡論的データ(熱力学データ)取得		→溶融塩の決定、BとZr分離回収の可能性 ○ボロシリケートガラスからのシリコン分離・回収の実施 →シリコンのみ回収可能
【3】電解試験および塩基度調整によるシリコンおよびLLFP元素の分離・回収可能性について検討		○溶融 NaCl-CaCl_2 に模擬ガラスを浸漬させることで、LLFPとSi, Al, Oのマトリックス成分を固体として分離・回収できた。 ○LLFPの電気化学的回収と溶解沈殿回収の2種類の方法を組み合わせた新たな方法を提案ができた。

2-3 新たな課題など

平成 28 年度に溶融塩中において、模擬ガラスから Pd, Cs, Se については 90%以上溶融塩相に抽出できた。一方、Zr については 60%程度にとどまった。また、いずれも溶融塩相に存在する各種のイオン濃度は、希薄であることも明らかにした。このことから、高温溶融塩中に希薄に溶解した LLFP 成分の電気化学挙動についての基礎的データを取得し、模擬ガラスに含まれる希薄なイオンから回収可能なイオン濃度を明らかにすることが新たな課題として抽出できた。また、Zr については、Zr を選択的に抽出可能な浴の選定についても行う必要があることが新たな課題として抽出できた。

3. アウトリーチ活動報告

なし。