

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 28 年度

研究開発課題名：

「溶融塩抽出法を利用したガラス固化体溶解技術の

フィージビリティ検討 (2)」

研究開発機関名：

国立大学法人京都大学

研究開発責任者

上原 章寛

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

本 ImPACT 藤田プログラムの掲げる「核変換による高レベル放射性廃棄物(HLW)の大幅な低減・資源化」では、HLW に含まれる 100 万年以上の半減期を持つ長寿命核分裂生成物(LLFP)である Se-79, Zr-93, Pd-107, Cs-135 といった 4 核種を選定し、これらを短寿命もしくは安定な核種に核変換する技術を開発することにより HLW の大幅な低減・資源化を目指している。本研究では加熱溶融したガラス固化体に対してハロゲン化物系溶融塩を接触させることによってガラスマトリックスからの長寿命核分裂生成物(LLFP)の直接抽出分離を目指す。具体的には、溶融ガラスと溶融塩が分相する系を見出すと共に、LLFP 抽出分離に対する選択性の発現と本技術で分離可能な核種の見極めることを目的とする。

A) 溶融ガラスと溶融塩が分相する系の見出し

B) LLFP 抽出分離に対する選択性の発現と本技術で分離可能な核種の見極め

C) 抽出速度(各融体中での物質移動)

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

溶融塩とガラスビーズとの反応性についてアルゴン雰囲気グローブボックスにて検討を行った結果、以下の知見を得た。塩化物溶融塩において特に Li を含む溶融塩を用いた時ガラスビーズとの反応性が高くなり、さらにフッ化物を添加することによりガラスとの反応が促進された。この時、Li はガラスビーズを構成するカチオンとイオン交換し、フッ化物イオンはガラスの構造を破壊する働きをすることが示唆された。溶融塩相と接触させた後のガラスの特性について調査した。その結果、ガラス相中の成分の溶出が溶融塩相と接触させた後、酸水溶液と接触させることによって加速されることが分かった。

溶融塩と模擬 PF を含むガラスとの反応性についてアルゴン雰囲気グローブボックスにて検討を行った結果、以下の知見を得た。溶融塩の種類によってガラス相に含まれる模擬 FP 元素の溶出率は異なり、LiCl 及び LiCl-CaCl₂ 溶融塩を用いた時、Pd, Se の高い溶出率を得た(図 1)、ガラス相は Ca₂SiO₄ を形成していることを確認した(図 2)。また、同溶融塩と接触させたガラス相に酸水溶液を接触させることにより、ガラス相からの模擬 FP の溶出を加速することができた。ガラス中の模擬 PF は基本的に酸化物イオンで取り込まれていることが多いため、酸素と化合物を形成しやすい MgCl₂ を投入することで、模擬 FP 酸化物を還元することによって溶融塩相に溶出できることを示唆した。

2-2 成果

本研究で目的とする溶融塩を用いたガラス固化体からの LLFP 直接抽出分離技術開発のためには、第一にガラスと溶融塩が分相する系を見出す必要がある。平成 28 年度は塩化物やフッ化物等のハロゲン化物系溶融塩のガラスとの分相状態を明らかにした。500℃から 700℃までの温度領域および最長 24 時間の浸漬実験においてガラスとの反応性を調査したところ、LiCl を含む溶融塩(LiCl 及び LiCl-CaCl₂)、高温条件及び長時間放置したほどガラス相からの溶出率が高いことが分かった。また、塩化物溶融塩にフッ化物を添加したとき、ガラスと強く反応していることも確認した。次いで LLFP 模擬物質等を含む

模擬ガラス固化体―塩間における各模擬核種の分配試験についても実施したところ、650℃において $\text{LiCl}\cdot\text{CaCl}_2$ 及び $\text{LiCl}\cdot\text{MgCl}_2$ の溶融塩を用いた時ガラス相からの模擬 FP 元素（Pd、Se）が最も良好に溶出することが分かった。

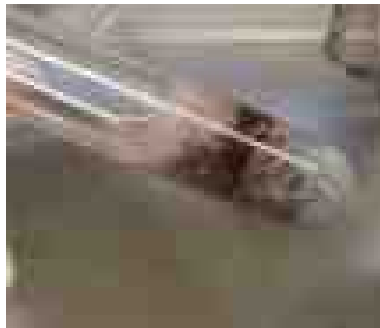


図 1. $\text{LiCl}\cdot\text{CaCl}_2$ と模擬 FP を含むガラスと接触させたときの様子
（650℃ 上部が溶融塩相、下部がガラス相）

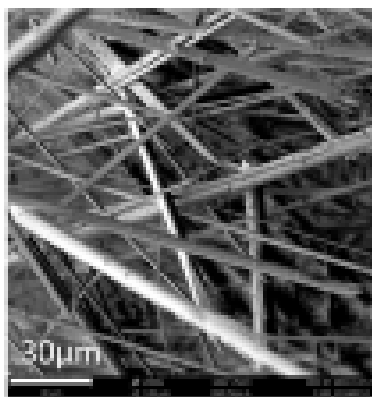


図 2. $\text{LiCl}\cdot\text{CaCl}_2$ 溶融塩と接触させた後の模擬 FP を含むガラス相の SEM 画像

2・3 新たな課題など

様々な溶融塩の中から模擬 FP を溶出させやすい溶融塩として LiCl 、 $\text{LiCl}\cdot\text{CaCl}_2$ 、 $\text{LiCl}\cdot\text{MgCl}_2$ が提案された。これらの溶融塩を用いることによって、ガラスの成分を分解し、模擬 FP 元素を溶出させることが可能になる。なお、本事業においては実験条件としてなるべく低温、650℃の実験条件を採用したが、温度を高温 800℃にすることによって溶出が加速されることが予測される。安全性は確保しながらも、より高温での高溶出率の実現が課題である。

3. アウトリーチ活動報告

なし