

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 9 年 度

研究開発課題名：

熔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：

東芝エネルギーシステムズ株式会社

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(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

- ・模擬ガラス固化体を対象とした化学還元試験により SiO_2 還元率99%以上の達成。

(2) 還元生成物からのLLFP分離回収技術

- ・熔融塩中でのイオン、もしくは酸溶解可能な化学種としてLLFP回収率99%以上の達成。

(3) ガラス固化体からのLLFP分離回収プロセスの検討

- ・模擬ガラス固化体を対象とした電解還元・化学還元技術、及びLLFP分離回収技術の試験データの整備。
- ・ガラス固化体還元技術の選定。
- ・還元生成物からのLLFP分離回収技術の選定。
- ・LLFP元素、他の主要元素の移行挙動評価
- ・模擬ガラス固化体からLLFPを熔融塩中でのイオン、もしくは酸溶解可能な化学種として99%以上回収可能なプロセスフローの作成。
- ・上記プロセスフローを用いた模擬ガラス固化体からのLLFP分離回収試験の実施、及び処理速度、二次廃棄物量の評価。

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

850℃の熔融 CaCl_2 中で模擬ガラス固化体のCa還元試験を実施。XRD分析により、還元後の固体サンプルはCa-Si合金が主成分であり SiO_2 が含まれないこと、Cs、Seが99wt%以上熔融塩中へ溶出することを確認した。

(2) 還元生成物からのLLFP分離回収技術

上記還元後の固体サンプルから、2M- HNO_3 を用いて、難溶解性元素であるZrを89.3wt%、Pdを93.6wt%溶解可能なことを確認。溶解残渣もアルカリ融解・酸溶解により全量溶解できることを確認。

(3) ガラス固化体からのLLFP分離回収プロセスの検討

模擬ガラス固化体を出発物質とした化学還元/熔融塩電解試験を行い、Cs、Se、Pd、Zr をそれぞれ粗分離可能な見通しを得た。これらの実験データを基に、ガラス固化体からの LLFP 分離回収プロセスフロー、主要核種の移行率、マテリアルバランスを評価した。

2-2 成果

850°Cの熔融CaCl₂中での模擬ガラス固化体のCa還元により、ガラス主成分であるSiO₂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)。この時の各元素の移行挙動を図2.2.2に示す。Ca還元によりCs、Seが99wt%以上熔融塩中に溶出すること、Zr、Pdの大部分が固体として残存することを確認した。固体として残存したZr、Pdは2M-HNO₃により、室温にてそれぞれ89.3wt%、93.6wt%を溶解できた。溶解残渣もアルカリ融解・酸溶解により全量溶解できるため、さらなる分離回収のためには別途研究されている湿式処理工程へ導入する。

還元生成物を陽極とし、450°Cの熔融LiCl-KCl中にて2.5V vs. Li⁺/Liで電解した際の塩中Pd、Zr重量変化を図2.2.3に示す。Pd重量の重量増加は確認できないこと、Zr重量が増加していることより、Pdは溶解せず、Zrは塩中に溶出することを確認した。溶出したZrを陰極で析出させることで、Pdを陽極残渣合金として、Zrを陰極析出物として分離回収可能な目処を得た。図2.2.4に分離回収プロセスフローを示す。

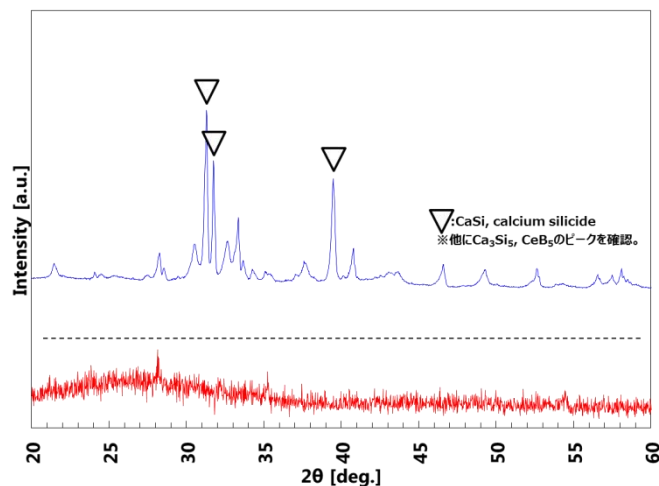


図 2.2.1 還元生成物の XRD 分析結果

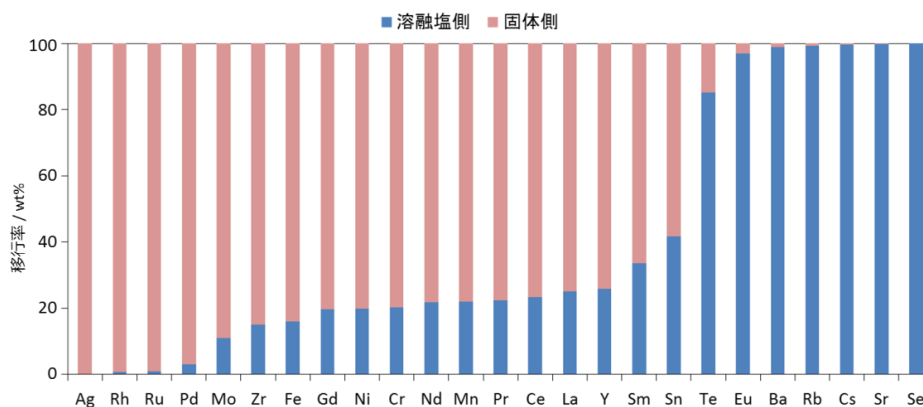


図 2.2.2 CaCl₂中でのCa還元時の各元素の移行挙動(850°C)

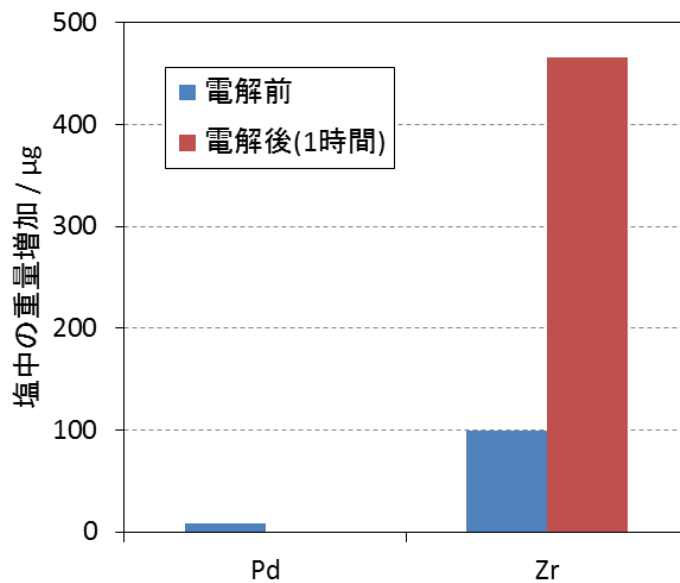


図 2.2.3 還元生成物の電解試験結果(LiCl-KCl, 450°C)

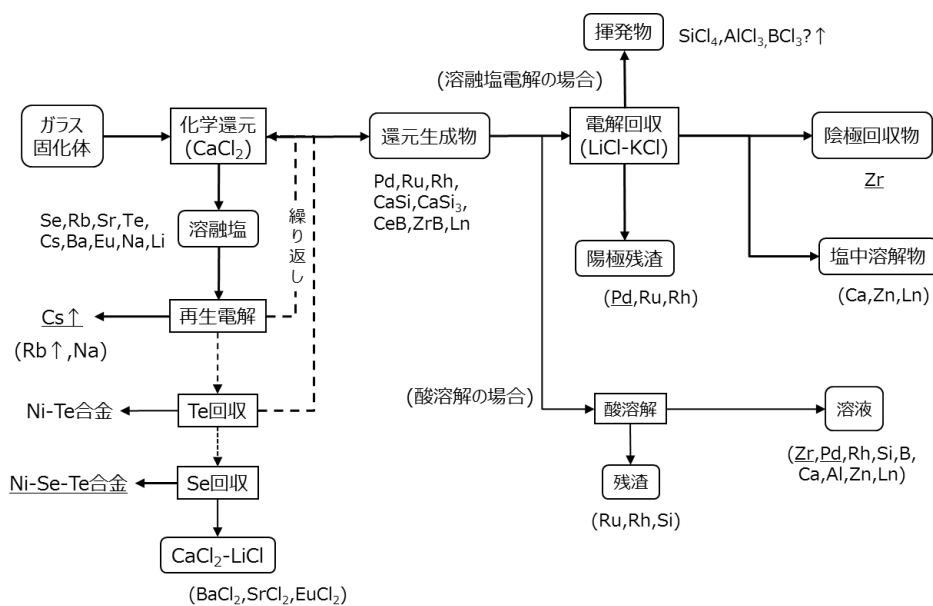


図 2.2.4 ガラス固化体からの LLFP 分離回収プロセスフロー

2-3 新たな課題など

化学還元で発生する CaO の再生工程に時間を要すること、再生効率が悪いことが明らかになったため、電解還元と化学還元の中間的性質を持つ OS(Ono-Suzuki)法を今後検討予定。

3. アウトリーチ活動報告

特記事項なし