

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 (LLFP 分離回収技術)

(1)塩化物溶融塩による模擬核種の溶出挙動

Reduction and Resource Recycling of High-level Radioactive Wastes through Nuclear Transmutation
(LLFP separation)

(1)Extraction Behavior of Simulated Fission Products by Chloride Molten Salts

*上原章寛¹, 鷹尾康一朗², 芝原雄司¹

¹京都大学, ²東京工業大学

アルカリ及びアルカリ土類塩化物溶融塩と模擬 LLFP を含むガラスを高温にて接触させ、模擬 LLFP の溶融塩相への溶出挙動を調べた。アルカリカチオンあるいはアルカリ土類カチオンの種類に依存して模擬 LLFP の溶出量が異なった。

キーワード: ImPACT, 核変換, ガラス固化体, 抽出, 溶融塩

1. 緒言

原子力システムにおける使用済み核燃料再処理を行った後に発生する高レベル放射性廃棄物 (HLW) の処分方法として、そのガラス固化体を 300m 以深に地層処分する方針が検討されている。しかし、HLW のガラス固化体中には半減期の長い核種が含まれていることから、処分後の安全性に対する不安の払拭が処分場選定における大きな課題として残されている。近年、HLW に含まれる 100 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 の 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ことにより HLW の大幅な低減・資源化を目指した研究がはじめられた。本研究では、HLW が安定に封止された既存のガラス固化体から上記 LLFP 4 核種を分離・回収するため、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 LLFP 直接抽出分離の可能性について検討した(*現在の地層処分環境とは異なる反応場条件)。

2. 実験

高模擬ガラス (IHI 製, 5523N17, ガラス主成分として Na, Si, B, Ca, Al, Zn, Li, HLW 模擬核種成分として Se, Rb, Sr, Y, Zr, Mo, Mn, Ru, Rh, Pd, Ag, Sn, Te, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, その他成分として P, Cr, Fe, Ni を含む) 1g と、アルカリ塩化物及びアルカリ土類塩化物溶融塩 (LiCl, LiCl-KCl, LiCl-CaCl₂, NaCl-KCl, NaCl-KCl-CaCl₂, NaCl-KCl-MgCl₂) 2g を 12 時間、650°C にて接触し、溶融塩相とガラス相を分取、溶融塩相を酸にて溶解し、ICP-AES により、溶出した模擬成分の溶出率を見積もった。溶融塩実験は酸素及び水分が 1ppm 以下に制御された電気炉付きグローブボックス内で行った。

3. 結果と考察

LiCl 及び LiCl-CaCl₂ 溶融塩を用いた時、Pd 及び Se の溶出を観測した。LiCl-CaCl₂ を用いた時ガラス相の主成分は Ca₂SiO₄ で LiCl を用いた時、主成分は Li₄SiO₄ でありガラス相の主成分と溶融塩が反応していることが分かった。一方、NaCl-KCl では金属元素の溶出はほとんど観測されず、ガラス相成分との反応も観察されなかった。模擬ガラスに及ぼすアルカリ土類金属イオンの影響を調査するために、NaCl-KCl 系 (模擬 FP が溶出しない塩) に MgCl₂ 及び CaCl₂ を添加した。MgCl₂ 及び CaCl₂ が 50 wt% で模擬ガラス中から Pd 及び Rh の溶出を観察した。特に 50 wt% MgCl₂ の添加による寄与が大きかった。アルカリ金属とアルカリ土類金属と比較すると、塩化物よりも酸化物が安定な序列は Mg > Ca > Sr > Li > Ba > Na > K > Cs である。CaO はある程度は溶解するが (Ca²⁺ と O²⁻ が塩中に共存)、MgO は溶解度がかなり低く、結果として、ガラス成分の Na₂O、B₂O₃ の酸素が Ca²⁺、Mg²⁺ の添加によってスカベンジされガラスの構造が破壊されているためであると予測された。

付記: 本研究は、総合科学技術・イノベーション会議が主導する革新的研究開発プログラム (ImPACT) の一環として実施したものです。

* Akihiro Uehara¹, Koichiro Takao², Yuji Shibahara¹

¹Research Reactor Institute, Kyoto Univ. ²Laboratory for Advanced Nuclear Energy, TokyoTech.