2017年秋の大会

再処理・リサイクル部会セッション

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
～再処理・リサイクルの観点から～

Reduction and Resource Recycling of High-level Radioactive Wastes through Nuclear Transmutation -From Viewpoint of Reprocessing and Recycling-

（3）電解・化学還元によるガラス固化体溶解技術

(3) Dissolution of Vitrified Wastes through Electrochemical and Chemical Reduction

*浅野和仁[1]，金村祥平[1]，金子昌章[1]，野平俊之[2]，坂村義治[3]
[1](株)東芝，[2]京都大学，[3]電力中央研究所

1. 緒言

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た長寿命核分裂生成物(LLFP)を取り出す必要がある。LLFP はガラス網目構造中に閉じ込められていると考えられるため、(1)ガラス網目構造を分解する技術、(2)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。我々はこれらの課題を解決するために、「溶融塩を反応場＊」とした還元技術によりガラス網目構造を分解し LLFP を回収するプロセスの検討を行っている。現在想定している、溶融塩中でのガラス固化体からの LLFP 分離回収プロセスの一例を図 1 に示す。

＊：現在の地層処分環境とは異なる。

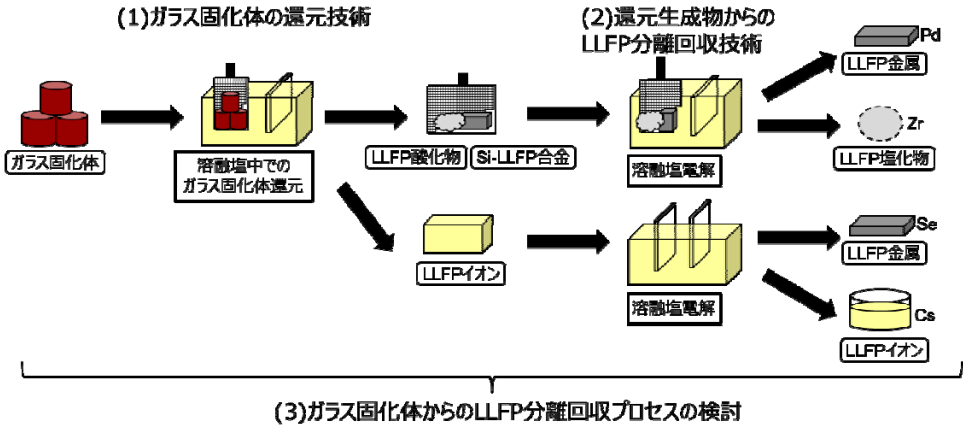

図 1. ガラス固化体からの LLFP 分離回収プロセスの一例

(1)ガラス固化体の還元技術

SiO_2、UO_2 などの酸化物を溶融塩中で電気化学的もしくは化学的に金属へ還元する技術を、ガラス固化体主成分であるホウケイ酸ガラスの網目構造の分解へ適用する。本手法で用いる溶融塩は精製により再利用が可能であるため、二次廃棄物発生量が少ない、水溶液と異なり耐放射線性が高く水素発生がないといった特長がある。

(2)還元生成物からの LLFP 分離回収技術

ガラス固化体還元処理後の LLFP は、Si-LLFP 合金、LLFP 酸化物、LLFP イオンのいずれかの形態をとるため、化学形態に応じた LLFP 分離回収技術が必要である。強還元雰囲気では Pd、Zr は Si-LLFP 合金中に、Se、Cs は LLFP イオンとして溶融塩中に存在することが予想される。Pd、Zr については、Si-LLFP 合金を陽極とした溶融塩電解により Zr を陰極上に析出させ回収、Pd は陽極残渣として回収することを検討している。

Se も同様に溶融塩電解により陽極に析出させ回収、Cs は金属熱還元、揮発分離等を組み合わせて回収することを検討している。

(3) ガラス固化体からの LLFP 分離回収プロセスの検討

ガラス固化体からの LLFP 分離回収を実現するためには、工学的に成立し、実用的なガラス固化体からの LLFP 分離回収プロセスを構築する必要がある。各工程での LLFP 分岐率、処理速度、二次廃棄物発生量を評価し、最適なプロセスフローの作成を行う。

本発表ではこれらのうち、溶融塩を反応場としたガラス固化体の化学還元技術について報告する。

2. 溶融塩を反応場としたガラス固化体の化学還元技術

2-1. 試験方法

ガラス固化体の化学還元技術成立性を確認するために、ホウケイ酸ガラスに PdO:0.77wt%、Cs_2O:0.84wt%、SeO_2:0.05wt%、ZrO_2:1.3wt%を添加した LLFP 含有ガラスを試作し、これを用いた化学還元試験を行った。還元剤には金属 Ca、溶融塩には $CaCl_2$ を用いた。金属 Ca 量は LLFP 含有ガラスに含まれる CaO 以外の酸化物の還元反応に対し 2 倍モルとした。これらと LLFP 含有ガラスを MgO るつぼに装荷し、Ar 雰囲気下のグローブボックス内に設置した電気炉を用い 850℃で 3 時間保持した。

2-2. 結果と考察

化学還元試験後に得られた還元生成物の XRD 分析結果を図 2 に示す。2 倍モルの金属 Ca を添加した時に得られる還元生成物の主成分は CaSi、$CaSi_2$ といった Si-Ca 合金であることを明らかにした。また、XRD、ICP-AES 分析等により LLFP 含有ガラス中の SiO_2 の 97.8wt%が金属にまで還元されていることを確認した。LLFP の挙動は、溶融塩に LLFP 含有ガラスを浸漬した場合は Cs、Se の溶融塩中への溶出率は Cs:8.3wt%、Se:0wt%であったが、化学還元を行った場合は Cs、Se は全量が溶融塩中へ溶出することを確認した。これは、化学還元によりガラス構造が分解され閉じ込められていた LLFP が溶出しやすくなったためと考えられる。また、Pd は金属、Zr は金属あるいは Zr 化合物として還元生成物中に残留することを確認した(図 3)。

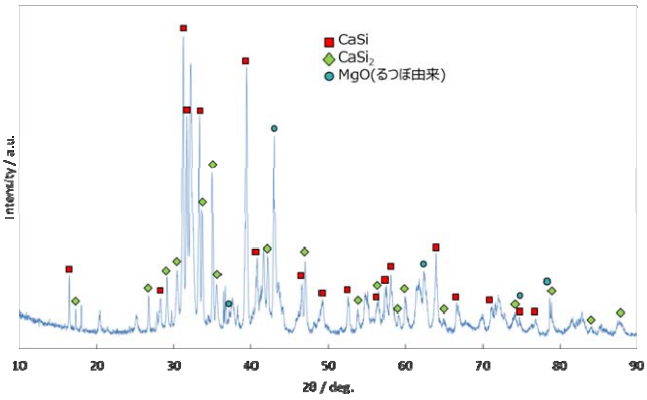

図 2. 還元生成物の XRD 分析結果

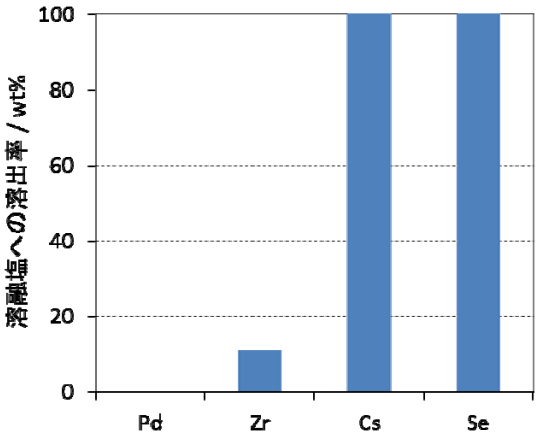

図 3. 化学還元後の LLFP の溶融塩への溶出率

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推進プログラム(ImPACT)の一環として実施したものです。

*Kazuhito Asano[1], Shohei Kanamura[1], Masaaki Kaneko[1], Toshiyuki Nohira[2] and Yoshiharu Sakamura[3]

[1]Toshiba Corp., [2]Kyoto University, [3]CRIEPI