# LLFP 分離回収を目的とした溶融塩中における模擬ガラス固化体の電解還元

Electrochemical reduction of simulated vitrified waste glass in molten salt

for separation and recovery of LLFPs

\*片所優宇美<sup>1</sup>,安田幸司<sup>2,3</sup>,野平俊之<sup>1</sup>

1京都大学エネルギー理工学研究所,2京都大学環境安全保健機構,

3京都大学大学院エネルギー科学研究科

原子力発電に伴い発生したガラス固化体の新規な処理・減容技術の構築を目指し、溶融 CaCl<sub>2</sub> 中で、ガラス固化体を模擬したガラスの電解還元を行った。ガラス成分の約半分を占める SiO<sub>2</sub> が Si へと還元され、 LLFP 元素のうち Cs は溶融塩中へ溶解し、Pd と Zr は固体中に残存することが確認された。 キーワード:溶融塩電解、ガラス固化体、LLFP 元素

#### 1. 緒言

ガラス固化体中の長寿命核分裂生成物(LLFP)を分離回収し、核変換 技術により短寿命核種や安定同位体核種とすることで放射性廃棄物を 低減・資源化するフィージビリティ検討が提案されている。筆者らは、 ガラス固化体中の LLFP を分離回収する方法として、「溶融 CaCl<sub>2</sub>中の 電解還元\*」を提案している[1]。今回は、放射性廃棄物を模擬した「模 擬ガラス固化体」の電解還元を行い、LLFP 元素(Pd, Zr, Cs, Se)の挙動の 検討を行った。(\*現在の地層処分環境とは異なる反応場条件)

## 2. 実験方法

実験は Ar 雰囲気下の溶融 CaCl<sub>2</sub>中(1103 K)で行った。定電位電解には、 小型るつぼ電極(アルミナ管径  $\phi$  8 mm×5 mm、底板 厚さ 0.5 mm のグラ ファイト板)を用いた。模擬ガラス固化体(SiO<sub>2</sub> 49wt%, SeO<sub>2</sub> 0.02wt%, ZrO<sub>2</sub> 1.13wt%, PdO 0.37 wt%, Cs<sub>2</sub>O 0.71 wt%, 他の酸化物 48.8wt%)粉末 と CaCl<sub>2</sub>の混合粉末から作製したペレットを、小型るつぼ内に入れ、定 電位電解を行った。電解後は、電極の縦断面を切断し、マイクロスコー プで観察を行った。切断後に HCl 洗浄を行い、XRD 分析を行った。ま た、同条件で未洗浄のものを(5M HCl + 5M HNO<sub>3</sub>)溶液に溶解させ、 ICP-AES/MS による分析を行った。さらに、実験後の塩を採取し、HNO<sub>3</sub> 溶液へ溶解させ、ICP-AES/MS により分析を行った。

#### 3. 結果と考察

図1に、溶融塩に浸漬のみ行った後の小型るつぼの断面写真(左)と、 0.6 V (vs. Ca<sup>2+</sup>/Ca)で電解還元を行った後の小型るつぼの断面写真(右)を 示す。電解還元を行うと、ガラスは黒色に変化した。図2に示す XRD パターンから、主成分である SiO<sub>2</sub>が還元され Si が生成したことが確認 された。また、他元素と Si の合金やホウ化物のピークも確認された。 表1に ICP-AES/MS の結果の一部を示す。Na や Li と同様、Cs は溶融 塩へ溶出しており、溶融塩浸漬後の固体や電解後の固体からは、ほとん ど検出されなかった。また、Pd と Zr は、固体試料中に残存しているこ とが確認された。Se に関しては、他の含有元素と比較して含有率が低 く、有意な結果が得られなかった。

# 4. 結論

溶融 CaCl<sub>2</sub>中で模擬ガラス固化体の電解還元を行い、還元時の Cs、Pd、Zr の挙動を明らかにした。当日は、封入電極を用いた電流-電位曲線や、さらに詳細な分析結果についても報告する予定である。

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。

#### 参考文献

[1] Y. Katasho, X. Yang, K. Yasuda, T. Nohira, J. Electrochem. Soc., 163 (2016) D622–D627.

\*Yumi Katasho<sup>1</sup>, Kouji Yasuda<sup>2,3</sup> and Toshiyuki Nohira<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institute of Advanced Energy, Kyoto Univ., <sup>2</sup>Agency for Health, Safety and Environment, Kyoto Univ., <sup>3</sup>Graduate School of Energy Science, Kyoto Univ.



図1 小型るつぼ断面写真. (左)浸漬の み. (右)0.6 V vs. Ca<sup>2+</sup>/Ca 定電位電解.



### 図 2 模擬ガラス固化体の還元物の XRD パターン(0.6 V vs.Ca<sup>2+</sup>/Ca, 2 h).

表 1 ICP-AES/MS の結果.

	検出率(%)		
元素	溶融塩	固体試料 浸漬、2h	固体試料 0.6 V、2h
Si	8.31	2.07	11.4
Na	90.3	0.310	0.460
В	14.9	28.6	57.8
Al	8.42	57.0	72.1
Zn	0.127	2.40	30.0
Li	58.9	ND	ND
Zr	1.93	40.2	55.9
Cs	66	1.9	0.65
Pd	8.3	48	56
Se	10	300	30