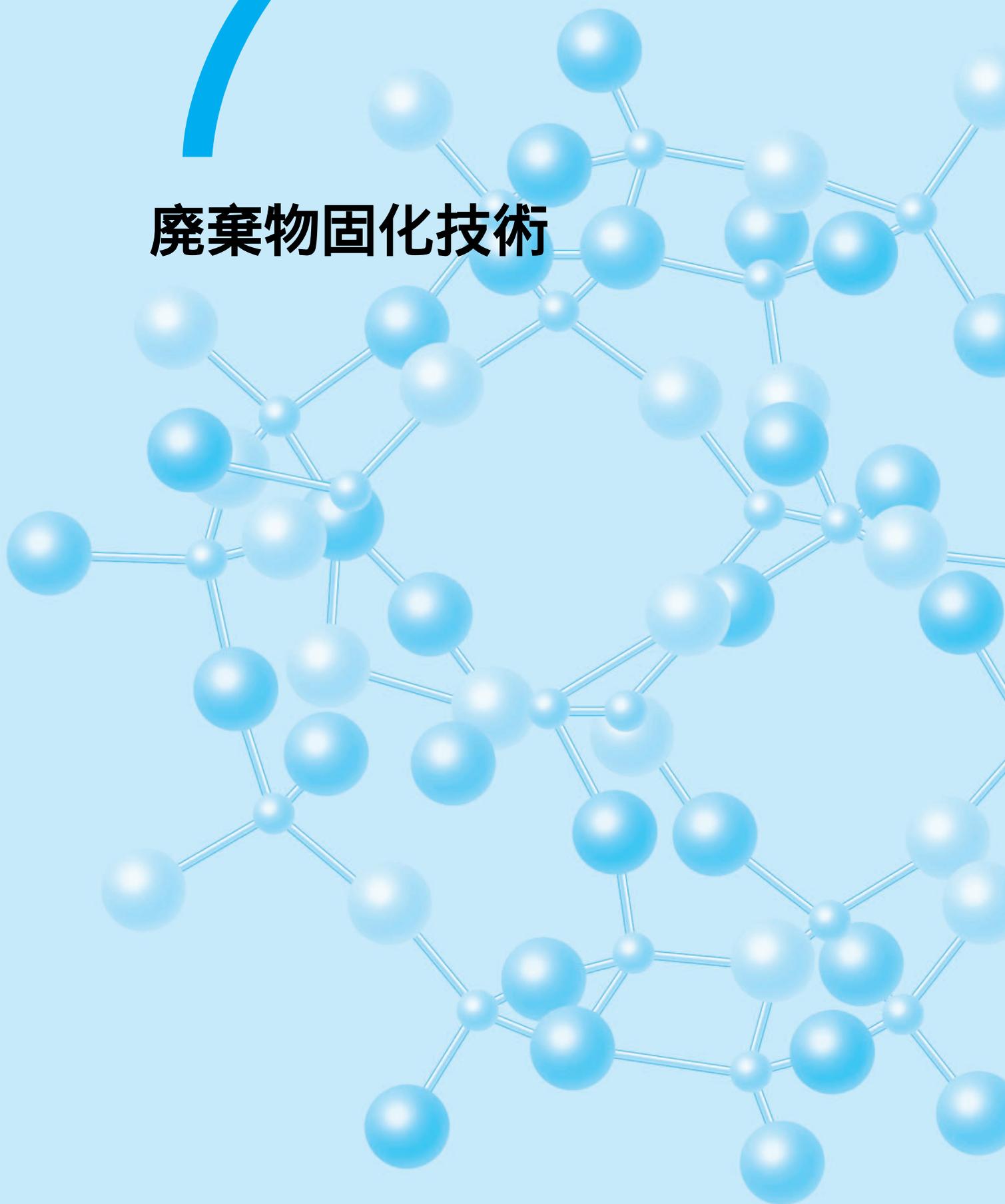


第 7 章

廃棄物固化技術



第7章 廃棄物固化技術 目次

原燃サイクル部 主任研究員 西村 友広
(現在 日本原子力発電(株)に出向中)
原燃サイクル部 主任研究員 坂村 義治

7 - 1 ガラス固化技術61
7 - 2 人工鉱物固化技術62
7 - 3 金属廃棄物の固化技術64



西村 友広(1982年入所)
軽水炉と金属燃料FBRのプラント動特性解析など原子炉の安全性に関わる研究・開発に約10年従事した後、乾式再処理に関する研究・開発に、ここ数年は乾式再処理の使用済塩の処理・固化法の研究・開発に従事している。今後、安全性と経済性に優れた原子燃料サイクルの確立に役立つ研究・開発に取り組んでいきたい。



坂村 義治(1989年入所)
希土類元素、アクチノイド元素に関して、熔融LiCl-KCl共晶塩中の標準酸化還元電位の測定、液体金属中の活量係数と溶解度の測定。電解精製によるアクチノイド元素の希土類元素からの分離回収などの研究に従事。

第7章 廃棄物固化技術

乾式再処理プロセスおよび高レベル廃液の乾式分離プロセスから、希土類元素、アルカリ土類元素、アルカリ金属などの核分裂生成物が蓄積した使用済み塩と貴金属FPを含んだ金属状の廃棄物とが発生する。

使用済み塩は、地下水に容易に溶解して人間の生活環境中に到達する恐れがあるため、そのままでは処分が難しい。そこで、使用済み塩を深地層処分に適応する安定な形態の固化体にする方法として、当研究所では、

ガラス固化技術

人工鉱物固化技術(ソーダライト型固化技術)

について研究している。ガラス固化技術の研究開発の現状を7-1で、人工鉱物固化技術については7-2で述べる。

金属状の廃棄物の処理方法については、アルゴン国立研究所(ANL)において行われている「金属廃棄物」の研究開発状況を7-3で簡単に紹介する。

7-1 ガラス固化技術

現在、軽水炉使用済燃料の湿式再処理で発生する高レベル廃液は、ホウケイ酸ガラス固化体にして処分することが計画されている。乾式再処理プロセスおよび高レベル廃液の乾式分離プロセスから発生する使用済み塩も、ガラスに転換できれば同じ方法で処分することが可能となる。

7-1-1 塩化物のガラス固化法

ホウケイ酸ガラス固化体への塩素イオン許容濃度は1

重量%程度と言われている。このため当研究所では、廃棄物発生量の低減をめざし、図7-1-1に示すように、次の3ステップで塩化物をガラスに転換する方法について研究している。

電気分解の技術を適用することにより塩を塩素ガスと金属状のFPとに分解し、金属状FPは液体鉛金属中に回収する。塩素ガスは、オフガス中から深冷分離法*1により液化・回収したのち高レベル廃液の塩

*1深冷分離法：混合ガスを冷却し、そのガス中の成分を、それぞれの凝縮する温度の違いを利用して分離する方法

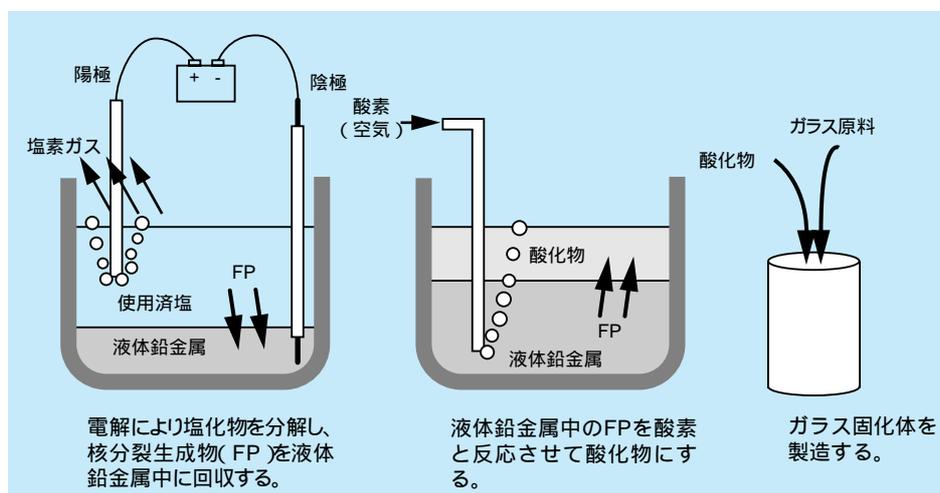


図7-1-1 使用済み塩のガラス固化の手順

化物への転換(第6章で示した塩素化工程)で再利用する。

液体鉛金属中のFPを空気中の酸素と反応させて酸化物にする。FPを除去した後の鉛はの工程に戻し、繰り返し使用する。

FPの酸化物に、ガラスの原料(二酸化ケイ素、酸化ホウ素など)を加え、高温にしてガラス化し、ガラス固化体にする。このステップは従来の湿式法再処理のガラス固化技術がそのまま適用できると考えられる。

当研究所は、ステップとに関して、液体鉛金属を陰極にした模擬使用済み塩の電解実験ならびに液体鉛金属中の模擬FPの酸化実験を、住友金属鉱山(株)との共同研究で行い、電解で液体鉛金属中に金属状態で模擬FPを回収できること、800で液体鉛金属中に酸素を吹き込むことにより鉛を酸化させずに模擬FPだけを酸化物にできることを確認した。

7-1-2 乾式プロセスへの適用

本ガラス固化技術から発生する塩素ガスのリサイクルの観点から、第6章で述べた高レベル廃液の乾式分離プロセス(塩素化工程で塩素ガスを使用)と組み合わせることの一貫したプロセスとなる。第6章で示した乾式分離プロセスフローシートの「使用済み塩処理」工程が上述のの工程に相当する。

高レベル廃液の乾式分離プロセスから発生する全ての

廃棄物をガラス固化体にした場合のガラス固化体の組成を表7-1-1に示す。この表には比較のため核燃料サイクル開発機構のガラス固化体の標準化学組成を併記したが、乾式分離プロセスの浴塩の成分であるLi、Kの廃棄量は多くなく、湿式再処理のガラス固化体の技術が適用できるものと考えられる。

今後の課題としては、

高レベル廃液の乾式分離プロセスからガラス固化体製造までの通しの試験

ガラス組成の最適化

オフガス処理も含めた工学規模装置の開発

などがあげられる。

表7-1-1 高レベル廃液の乾式分離プロセスから発生するガラス固化体の組成の推定値(単位:重量%)

	高レベル廃液の乾式分離からのガラス固化体	TVFガラス固化体の標準化学組成 ^{*1}
廃棄物 FP等	~ 15	15.0
Na ₂ O	3.4	10.0
Li ₂ O	1.2 ^{*2}	-
K ₂ O	0.6	-
ガラス原料		
SiO ₂	未定 ^{*3}	46.7
B ₂ O ₃	未定 ^{*3}	14.3
Al ₂ O ₃	未定 ^{*3}	5.0
Li ₂ O	未定 ^{*3}	3.0 ^{*2}
CaO	未定 ^{*3}	3.0
ZnO	未定 ^{*3}	3.0
合計	100.0	100.0

*1 動燃技報No. 100, pp. 215-233(1996)

*2 核燃料サイクル開発機構のTVFガラス固化体にはガラス原料として3.0重量%添加されている。

*3 ガラス原料の添加割合はガラス組成の最適化検討を経て決定される。

7-2 人工鉱物固化技術

7-1で述べた使用済み塩のガラス固化技術は、湿式法再処理のガラス固化体の処分に関する研究成果がそのまま利用できるという利点がある。しかし、塩素ガスなどの化学的に活性な副生成物が発生するため、耐腐食性を考えた設備にしなければならないという欠点がある。

そこで、当研究所は、塩素ガスなどが発生しない固化法の研究開発にも着手した。塩素ガスが発生しない固化法として、アルゴン国立研究所(ANL)では、使用済み塩をゼオライトの中に取り込み、それを低融点のガラスで固めたガラス結合セラミックスの研究開発を行っている。当研究所は、天然鉱物のソーダライト(sodalite)が

3次元かご構造中に塩化物を安定に保持していることに着目し、ソーダライト型の人工鉱物にする技術(以下ソーダライト型固化と呼ぶ)の研究開発を進めている。以下に当研究所で実施しているソーダライト型固化に関する技術開発の現状について述べる。

7-2-1 ソーダライト型固化体の合成試験

ソーダライトは、ネフェリンセン長岩などナトリウムに富む深成岩中に産出し、その理想化学組成はNa₆[(AlO₂)₆(SiO₂)₆]・2NaClで表され、図7-2-1に示すよう

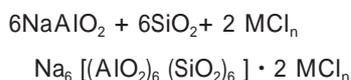
にアルミニウムとケイ素が酸素を共有して結合した3次元のかご構造内にナトリウムイオンと塩素イオンが入った立方晶系の鉱物である。ソーダライト型固化体は、3次元かご構造内のナトリウムイオンが核分裂生成物のイオンで置き代わったものである。

ソーダライトの合成法として種々の方法が研究されているが、当研究所では、

水を使用しない乾式の合成法であること

合成時にガスや水などの二次廃棄物が発生しないこと

の2つを条件に合成法の調査・検討を行い、アルミン酸ナトリウム(NaAlO_2)、二酸化ケイ酸(SiO_2) および使用済塩の混合物を900 程度までの高温にして合成する方法を選定した。下記に合成反応の化学式を示す。



ここで、 MCl_n は使用済塩を表す。現在、所内研究として実施している、模擬使用済塩を用いたソーダライト型固化体試験片の合成試験の手順は、3種類の原料(アルミン酸ナトリウム、二酸化ケイ酸、および模擬使用済塩)をメノウ乳鉢で十分に粉碎、混合し、約300MPaの力をかけてペレット状にした後、電気炉で900 程度までの高温にしてソーダライト化させる単純で簡単なものである。

加熱温度、加熱時間などをいろいろと変えて作製した

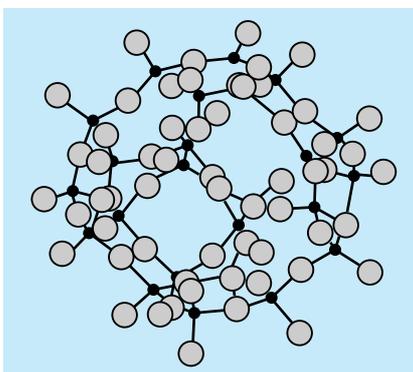


図7-2-1 ソーダライトの3次元かご構造

試験片に含まれるソーダライトの量を粉末X線回折(XRD)分析で調べるとともに、浸出試験で試験片の浸出率を測定することにより、耐浸出性に優れたソーダライト型固化体の合成条件の把握を行っている。これまでの合成試験の結果から、ソーダライトの量が多く、かつ耐浸出性の低下をもたらすネフェリンと呼ばれる鉱物の量が少ない最適な合成条件(加熱温度と加熱時間)は、850 で約8時間であるとの見通しを得ている。廃棄物固化体の性能評価で最も重要なものの一つである耐浸出性については、短時間浸出試験の結果の一例を、ガラス固化体および米国ANLで研究開発中のゼオライトの浸出率データと比較して図7-2-2に示す。この図から、ソーダライト型固化体はゼオライトや湿式法再処理のガラス固化体と同等以上の耐浸出性を持つという見通しを得た。

7-2-2 ソーダライト型固化体開発の今後の課題

ソーダライト型固化体開発の今後の課題としては、ネフェリンなどの不純物がほとんどなく、耐浸出性に優れた固化体の合成条件の見極めがある。耐浸出性については、長期浸出試験による浸出メカニズムの同定と長期浸出率の取得がある。また、ガラス固化体(直径約0.4m、長さ約1.3m)並みの大きな固化体の製造技術の開発も必要である。

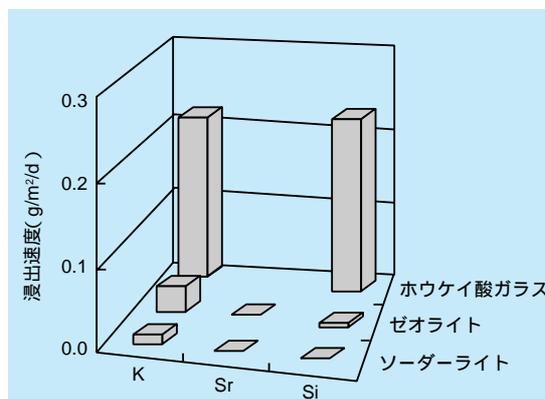


図7-2-2 固化体の浸出速度の比較

7 - 3 金属廃棄物の固化技術

乾式再処理プロセスの電解槽の陽極溶解バスケット中に被覆管ハル、燃料成分のジルコニウム、および貴(金属としてより安定)な金属FP(ルテニウム、パラジウム、テクネチウムなど)が不溶解物として残る。

ANLでは、これらを溶解炉で溶かし、鋳型に流し込んで固め、金属廃棄物固化体にして処理・処分することを考えている。金属廃棄物固化体の組成はステンレス鋼とジルコニウムの合金に貴な金属FPを最大で4%入れたものが検討されている。ステンレス鋼は被覆管ハルや使用済みの集合体部材などから供給し、ジルコニウムはFBR金属燃料の再処理では燃料成分の不溶解物から、

軽水炉燃料の再処理ではジルカロイ被覆管ハルから供給される。

ANLではこれまでに数10g規模～数kg規模の溶解炉を用いた試験片の作製、作製した試験片の金属学的研究、腐食試験、強度試験などを実施している。

金属廃棄物の固化体開発に関する今後の課題として、処分概念の検討があげられる。金属廃棄物固化体の特徴の一つとして、放射能強度が50年程度で3桁程度低下することがあげられており、金属廃棄物固化体の処分方策として、例えば、一時貯蔵してから処分する方法などが考えられる。