次世代再処理ガラス固化技術基盤研究 (31) 廃棄物含有鉄リン酸ガラスの放射光 XAFS による局所構造解析

Basic research programs for the next generation vitrification technology

(31) Local structure analysis of iron phosphate glass containing high-level waste simulant using synchrotron radiation based XAFS

*岡本 芳浩¹, 塩飽 秀啓¹, 永井 崇之¹, 小林 秀和¹, 捧 賢一¹, 畠山 清司² ¹原子力機構, ²(株)E&E テクノサービス

高レベル廃液組成を模擬した廃液成分を含有した鉄リン酸ガラスにおける、FP 元素の局所構造および化学状態について、放射光 XAFS を用いて調べた。IP ガラスフリットの組成および廃液成分の含有率による、各元素の局所構造の変化について、XAFS データの解析から評価した。

キーワード:ガラス固化、鉄リン酸ガラス、XAFS、放射光

1. 緒言

高レベル廃液ガラス固化の高度化の一環として、現行のホウケイ酸ガラス(BS ガラス)の代替マトリックスの適応 性調査を進めており、鉄リン酸ガラス(IP ガラス)に着目している。我々は、鉄リン酸ガラスに、高レベル廃液組成を 模擬した廃液(模擬廃液)を含有させた試験試料について、様々な挙動や性質を調べている(前報の(30))。本報では、 それらの試料について、放射光 XAFS 分析を行い、ガラス中における FP 元素の局所構造および化学状態を評価した。

2. 試験

放射光 XAFS 分析試料は、前報(30)の試験試料と共通で、IP ガラスフリットと模擬廃液の混合物(ガラス重量:200 g)を電気炉内で1150°C で2h 溶融した後、黒鉛ルツボに流し込み、徐冷固化したものを、厚さ0.5mm および1.0mm の板状に切り出して使用した。放射光 XAFS 実験は、高エネルギー加速器研究機構放射光実験施設のBL-27B および大 型放射光施設 SPring-8 の BL11XU において、透過法および蛍光法のレイアウトを用いて実施した。測定対象元素は、 Fe、Zr、Mo、Ru、Rh、Pd、Ce とし、吸収端のエネルギーにより2つのビームラインを使い分けた。また、いくつかの 試料と元素については、位置分解能を備えたイメージング XAFS 分析^{III}測定を実施した。

3. 結果·考察

ガラス中に含まれる廃液由来のZr、Mo及びRuのEXAFS 関数をフーリエ変換して得られた動径構造関数を図1に示す。Zrについては、Zr-O相関に相当する第1ピークがほとんど変化していないことから、Zr周りの局所構造が廃棄

物含有率に影響されないことを示している。 Moでは、Mo-O 相関に相当する第1ピーク以降に目立ったピークは観察されなかったこと から、Moがガラス相に溶解していることを示唆している。Ruについては、30FeP-5Wでは、 Ru-O 相関以外にピークが認められないこと、 XRD 及び SEM/EDS 分析の結果ともあわせて、Ruがガラス相に溶解している可能性がある。ただし、廃棄物含有率が高くなると溶解度を超えた Ruが、RuO2として析出したとみられる。



図1 廃棄物を含有させた鉄リン酸ガラス試料の Zr、Mo 及び Ru の K 吸収端 EXAFS による動径構造関数 | FT (k³_χ(k)) |

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「平成27年度次世代再処理ガラス固化技術基盤研究事業」の成果の一部である。本研究に おける放射光実験は、大型放射光施設 SPring-8利用実験課題 2015B3504 および 2016A3504、高エネルギー加速器研究機構(KEK)放 射光実験施設(PF)共同利用実験課題 2016G064 によって行われた。

参考文献

[1] 岡本ほか、原子力学会 2016 春の大会、1G14

^{*}Yoshihiro Okamoto¹, Hideaki Shiwaku¹, Takayuki Nagai¹, Hidekazu Kobayashi¹, Kenichi Sasage¹ and Kiyoshi Hatakeyama² ¹Japan Atomic Energy Agency, ²E&E Techno Service Co. Ltd.