

ガラス溶融過程でのバブリングによる模擬廃棄物ガラスの比較

Comparison of simulated waste glass by the purging of air or Ar gas in the glass melting process

*永井崇之¹, 小林秀和¹, 岡本芳浩¹, 関 克巳², 小林博美², 本間将啓², 畠山清司²

¹原子力機構, ²(株)E&E テクノサービス

溶融ガラス組成の均一化等を目的にバブリングが検討されていることから, 溶融した模擬廃棄物ガラスを対象に空気や Ar ガスをバブリングしながら流下し, 流下ガラスの Si-O 架橋構造等の変化を確認した.

キーワード: ガラス固化, 模擬廃棄物ガラス, バブリング, ラマン分光測定, 放射光 XAFS 測定

1. 緒言 ガラス溶融炉に供給した廃液とガラス原料を均一に混合する手段として, 溶融ガラス中へのガスバブリングによる攪拌操作が有効と考えられる. 本研究は, ガスバブリングによる流下ガラスの Si-O 架橋構造や含有元素の原子価状態への影響を明らかにするため, ガラス溶融炉開発^[1]で製造した模擬廃棄物ガラスカレットをピーカスケールの溶融炉^[2]で溶融し, バブリングしながら流下したガラス試料をラマン分光及び放射光 XAFS 測定^[3]により評価した.

2. 実験 模擬廃棄物ガラスカレット 1.0 kg を, 金属製溶融炉 (内径 120 mm, 逆円錐炉底 (斜度 60°), ノズル内径 10 mm) に装荷し, 外部ヒータで加熱溶融した. 炉内温度 1050~1150°C に 2.0 h かけて昇温し, 炉内下部へ Al₂O₃ バブリング管を浸漬して乾燥空気または Ar ガスを供給しながら 2.5 h 保持した. その後, 流下ノズルを加熱し, 黒鉛容器 (内径 30 mm) に溶融ガラスを流下して徐冷した. 比較試料にバブリング無の条件でも試料を作製した. 徐冷した円柱状ガラスを板状に加工し, ラマン分光測定により Si-O 架橋構造等, 放射光 XAFS 測定により Ce 原子価等を評価した.

3. 結果 ラマン分光測定の結果, バブリングによって Si-O 架橋構造の 1000~1050 cm⁻¹ ピーク (Q³構造) 増加が観察され, Ar ガスは乾燥空気より Q³構造が増加した (図 1). 一方, Mo-O 構造の 900 cm⁻¹ ピークを確認すると, バブリングによる相違は見られず, バブリングによる溶融ガラスからの Mo 成分揮発量は少ないと判断される. 次に, XAFS 測定の結果, Ce-L₃ 吸収端 XANES スペクトルも, バブリングによって 5.725 keV の Ce^(III)ピーク高さが増加し, Ce^(IV)から Ce^(III)への還元が進行し, 特に Ar ガスで還元反応の進行を確認した (図 2). また, Mo-K 吸収端を測定したところ, バブリングによるスペクトルに違いはなく, Mo は安定状態にあると考えられる.

4. 結言 溶融した模擬廃棄物ガラスを Ar ガスでバブリングすると, Si-O 架橋構造はガラス原料に近い非架橋酸素数の少ない構造が増え, 複数の原子価を取り得る Ce 等の溶存種が還元されることを明らかにした.

参考文献

[1] 山中, 他, 原子力学会 2010 年春の年会, K54.

[2] 守川, 他, 原子力学会 2008 年秋の大会, O36.

[3] 永井, 他, 原子力学会 2014 年秋の大会, G28.

XAFS 測定は, KEK 物質構造科学研究所・放射光共同利用実験(課題番号 2015G063)にて実施した.

*Takayuki Nagai¹, Hidekazu Kobayashi¹, Yoshihiro Okamoto¹, Katsumi Seki², Hiromi Kobayashi², Masanobu Homma², Kiyoshi Hatakeyama²

¹Japan Atomic Energy Agency, ²E&E Techno Service Co. Ltd.

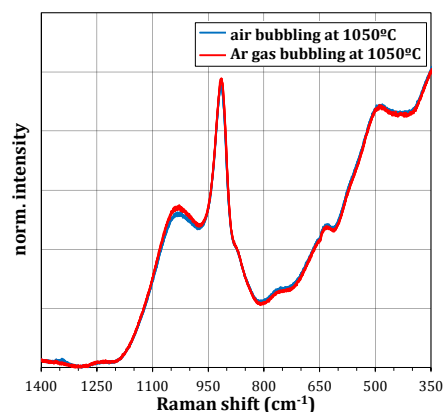


図 1 流下ガラスのラマンスペクトル

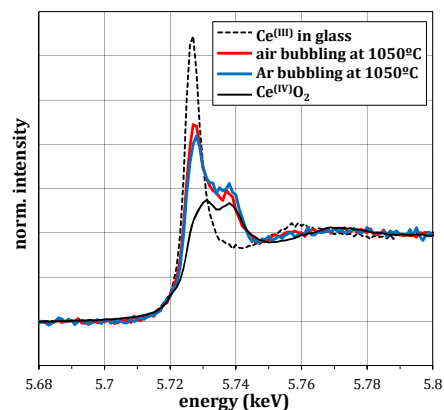


図 2 Ce-L₃ 吸収端 XANES スペクトル