

放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究

(45)供給ガラス微粒化による仮焼層反応の促進

Basic research programs of vitrification technology for waste volume reduction

(45) Facilitation of cold-cap reaction by powderization of feed glass

*宇留賀 和義¹, 塚田 毅志¹, 宇佐見 剛¹

¹電力中央研究所

小型ガラス溶融炉を用いた連続供給試験において、供給するガラスをビーズ状でなく微粉末にすることで、イエローフェーズ(YP)の生成が抑制できることを確認した。仮焼層において、YPの主成分であるMoは、アルカリ土類等との固相塩を形成し、ガラス粒と均一に混合された状態であった。

キーワード：高レベル放射性廃棄物，ガラス固化，イエローフェーズ，小型炉，スラリー

1. 緒言

高レベル放射性ガラス固化体中の廃棄物割合を増加させるには、ガラスに難溶であるモリブデン(Mo)をYPとして析出させず、溶融処理においてガラスへ溶解させる技術の開発が重要である。本研究では、小型ガラス溶融炉を用いた連続供給試験において、六ヶ所再処理工場で使用される粒径2 mm程度のビーズ状ガラスの代わりに、より粒径の小さな粉末状のガラスを供給する試験を実施した。これは、ガラスと廃液成分との接触界面を増加させることで、仮焼層におけるMo等のガラスへの溶解促進を目的としたものである。ガラス微粒化の効果を確認するため、溶融炉から流下したガラスに含まれるYP量を定量すると共に、供給試験時に形成した仮焼層を採取して、電子顕微鏡による断面分析(SEM-EDS)を行った。また、溶融炉の運転制御性全般に関するガラスビーズと粉末ガラスの差異についても評価した。

2. 試験方法

使用したガラス溶融炉は、ガラス溶融部の大きさが15×15×深さ20 cmで、ジュール加熱式である。供給したガラスは、六ヶ所再処理工場で使用されるガラスと同組成であり、粒径を250-500, 125-250, 63-125, 63 μm以下の4種類にふるいで分級し、各粒径ごと試験に供した。廃液としては、実廃液の組成を試薬で模擬したものを使用した。ただし、白金族元素はFe, Co, Niで代替した。粉末ガラスおよび廃液は、それぞれ個々に定量フィードした後、溶融炉に投入する直前で両者を混合した。供給量は、廃棄物充填率(Naを除く)が25 wt%、ガラス固化体の作製速度が7.2時間で1.5 kgとなるように調整した。溶融ガラスの中心部温度は1100-1200℃とした。効果の比較のため、通常ガラスビーズの供給試験も合わせて実施した。

3. 試験結果および考察

供給ガラスの粒径と流下ガラス中のYP量(水溶性Mo量)の関係を図1に示す。微粒化に伴いYP量は減少する傾向が見られ、特に粒径125 μm以下において、ガラスビーズを用いた場合の平均YP量よりも小さい値となった。採取した仮焼層の断面の元素分布を図2に示す。ガラスビーズを用いた場合、下部の溶融ガラス層と上部の仮焼層との界面に、Mo濃度の高い層が観察された。簡易定量分析により、この部分の組成はYPの主成分であるNa₂MoO₄であった。Na₂MoO₄は融点が687℃と低いため、液相となって凝集したと考えられる。一方、粒径63 μm以下の粉末ガラスの仮焼層では、ガラスビーズの場合のようなMoの凝集は見られなかった。Moは、当初の想定と異なり、仮焼層でのガラスへの溶解は見られなかったものの、Ba等のアルカリ土類元素または希土類元素と塩を形成し、ガラスの粒界におおよそ均一に分布していた。これらの塩は融点が高いために固相状態で仮焼層中に分散したといえる。粉末ガラスにおいてNa₂MoO₄が形成しなかった理由は、廃液中のNaの大部分がMoと反応する前にガラスへ溶解したことが考えられる。結果的に、ガラスの微粒化により、Naの溶解が促進されたことがMoの分散化につながり、Moのガラスへの溶解が促進してYPの生成抑制につながったと考えられる。この他、粉末ガラスの方が仮焼層全体のガラスへの溶け込み速度が増加したことから、固化体製造速度を向上する方策としても微粒化は有効と考えられる。また、微粒化によりフィード時の定量性やハンドリング性が低下する現象が見られた。今後、供給前に廃液と粉末ガラスをあらかじめ混合し、スラリーとして供給するなど、これら課題の対策を検討する計画である。

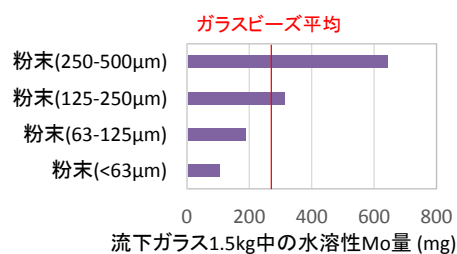


図1 ガラス粒径とYP量の関係

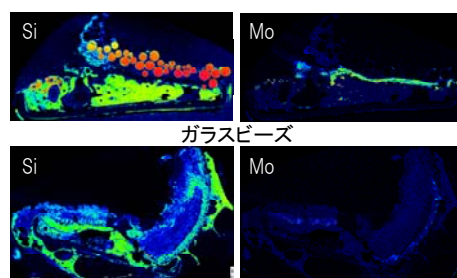


図2 仮焼層断面のSiとMoの分布

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「平成29年度放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究」の成果の一部である。

* Kazuyoshi Uruga¹, Takeshi Tsukada¹, Tsuyoshi Usami¹

¹Central Research Institute of Electric Power Industry