

V 添加熔融ホウケイ酸ガラス中の模擬廃棄物 Mo 及び Zr 周りの局所的な構造

Local Structure of Simulated Radioactive Wastes around Mo and Zr in Molten Borosilicate Glasses Including Vanadium

*椎名 慶¹, 田治見 祐里¹, 内山 孝文¹, 柿原 敏明², 川島 英典², 松浦 治明¹

¹東京都市大学, ²株式会社 IHI

ガラス固化体中に晶出しがちなイエローフェーズの発生を抑制する V 添加ホウケイ酸ガラスの最適な組成を探索する目的で、Si/B 比及びアルカリ含有量を変化させて基準ガラスと比較し、温度による構造の変化を EXAFS 解析により調査した。

キーワード: ホウケイ酸ガラス, バナジウム, イエローフェーズ, 広域 X 線吸収微細構造

1. 緒言

現在日本において、高レベル放射性廃液はガラスと混合して熔融させ、ガラス固化体として地層処分する方針である。その際に用いられるガラスとしてホウケイ酸ガラスが検討されている。さらにガラス固化体中の廃棄物充填率を増加させる技術が望まれており、その場合には、Mo 酸塩がイエローフェーズ (YP) として晶出し、ガラスの均質性に影響を与える可能性がある。そこで、高充填化した場合の YP の発生を抑制する V 添加ホウケイ酸ガラス^[1,2]の最適な組成比を調査する目的で、Si/B 比及びアルカリ含有量を変化させ EXAFS 解析により模擬廃棄物元素の局所的な構造の変化を評価した。

2. 実験

全模擬廃液成分が含まれる Si/B 比の異なる 2 種のガラス試料及びアルカリ含有量の異なる 2 種のガラス試料 1 g をそれぞれ粉碎し、0.5 mm の窪みをもつアルミナ板に下部から 8 割程度均等に充填した。これにアルミナの平板を合わせて一組とし、アルミナセルに封入しネジで固定した。EXAFS 測定は高エネルギー加速研究機構、PF の BL-27B にて、透過法による Mo-K 吸収端および Zr-K 吸収端を用いて行った。熔融状態での EXAFS 振動を測定するために、電気炉内にアルミナセルを設置し 1200°C まで昇温、その後 800°C、室温に降温してそれぞれ測定した。

3. 結果・考察

高温での熔融状態と室温での固化状態を比較して Mo-O 間の距離の変化が小さいガラスは局所構造的には安定したガラスであると判断できる。図 1 より、Si/B 比 2.0 のガラスは 800°C において Mo-O 間の距離が短距離側に大きく変化している。一方 Si/B 比 3.0 のガラスは Si/B 比 2.0 のガラスより高温熔融時から室温に至るまで温度依存性が小さく、アルカリ含有量 0.27 mol% のガラスはアルカリ含有量 0.23 mol% のガラスと比較して温度依存性が小さいことが確認できた。

以上のような傾向は Mo-O 配位数を 4 に固定し得られた Mo-O 原子間距離の値にも表れていた。このことから熔融状態のガラスの局所的な構造を評価することで、最適なガラスを探索するための指針が得られることが明らかとなった。

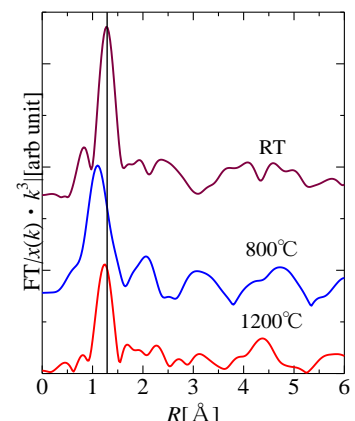


図 1 Si/B 比 2.0 のガラスの室温 800°C、1200°C における構造関数 (Mo-K edge)

参考文献

- [1] 鍋本豊伸、鬼木俊郎、熔融塩および高温化学、59、20-24、2016
 [2] 川島英典、橋本拓、柿原敏明、福井寿樹、原子力学会秋の大会 2016, 1E03

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事業」の成果の一部である。また、高エネルギー加速器研究機構の研究課題 2015G566 によって得られた成果である。

*Kei Shiina¹, Yuri Tajimi¹, Takafumi Uchiyama¹, Toshiaki Kakihara², Hidenori Kawashima², and Haruaki Matsuura¹

¹ Tokyo City University, ² IHI Corporation