

# MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発

## (3) 模擬 HLW 仮焼体のミクロ組成

Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology

### (3) Micro-size Composition in the Simulated HLW Calcine

\*鈴木晶大、大内敦、松島健一、水迫文樹

NFD

顆粒体の一様性確保の基礎となるミクロな相分離及び結晶成長について、模擬廃液の仮焼体を詳細分析してまとめた。仮焼体の元素分布は、主に Na, Ce, Mo, Sr, Pd に代表される 5 つの領域の脱硝に伴う化学反応や熱拡散で理解でき、仮焼温度の高温化に伴って、領域の重なりや結晶成長が見られた。

**キーワード**：柔軟な廃棄物管理、環境負荷低減、HLW 顆粒体、ミクロ組成、硝酸塩仮焼体

#### 1. 緒言

柔軟な廃棄物管理法における顆粒体製造温度は、アクチニドの脱硝、顆粒体の再溶解性確保、貯蔵時の NOx 発生防止などの観点から 300~900°C を想定している。高レベル廃液をこれらの温度で仮焼するとさまざまな析出物や化合物が発生し、冷却後の固相は成分の異なる複数の領域に分離する。これらの領域には発熱元素が偏在すると考えられ、各領域の熱伝導率や密度に応じて除熱性も異なり、各領域の融点やサイズに応じて局所溶融を発生することが懸念される。柔軟な廃棄物管理法の実用化開発では、ロータリーキルンにより温度や回転数をパラメータとして各領域を混合し、マクロな熱的一様性の確保を目指す。パラメータ選定にあたり各領域の組成や結晶粒の成長などのミクロ挙動を把握しておく必要がある。本発表では、模擬廃液を各種温度で仮焼し、生成する領域の SEM-EDS 観察を行って元素偏在を観察した。

#### 2. 模擬廃液仮焼体における元素偏在

仮焼体の元素分布は、主に Na, Ce, Mo, Sr, Pd に代表される 5 つの領域の脱硝に伴う化学反応や熱拡散によって理解することができ、仮焼温度の高温化に伴って、領域の重なりや結晶成長が見られた。各領域の変化の概要を図 1 に示す。顆粒体の主成分である Na を含む領域は点在しておらず、800°C までの高温状態で硝酸塩による液相を保つと考えられる。なお、Na を含む領域は、700°C 以上で一部が Mo との化合物を生じて著しい粒成長を生じるが、900°C で分解してすべて固体の酸化物に変わる。Ce を中心とする領域は、各元素の硝酸塩から酸化物への変化によって、Nd, Fe, La, Cs が凝集したものであり、温度に応じて Mo 領域からの Zr 凝集や Sr 領域の吸収を発生し、700°C 以上では大きな粒成長が見られる。

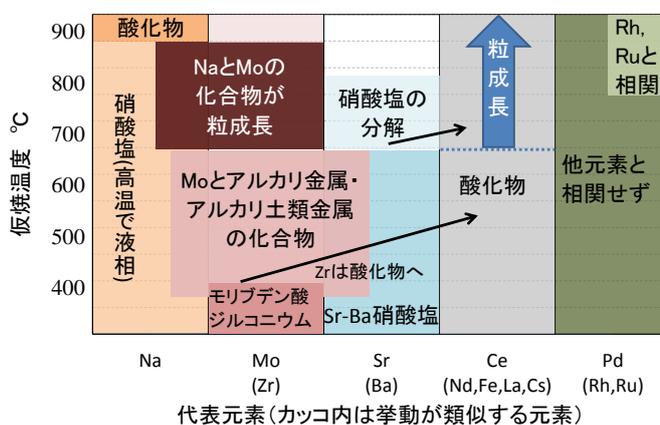


図 1 各種仮焼温度におけるミクロ領域の組成変化

#### 3. 顆粒体製造における熱的一様性確保

アクチニドを含む希土類の発熱元素は概ね

Ce と同様の変化を見せると考えられ、Ce 領域での粒成長が顕著になる 700°C 以上ではミクロ発熱源の成長が生じる可能性がある。このため、熱的一様性確保のためには、低温焼成あるいは降温後粉砕混合が必要となる。一方、熱伝導率を支配して熱的一様性のスケールを決定する Na 領域は、Ce 領域の成長に伴う共晶硝酸塩成分の酸化物への変化、モリブデン酸ジルコニウムの分解、及び、モリブデン酸ナトリウムの成長により融点や熱伝導率を変化させることが示唆される。

**参考文献** [1]鈴木ら、日本原子力学会 2017 年春の年会、1L01

本報告は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、日本核燃料開発株式会社 が実施した平成 28 年度「MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発」の成果です。

\* Akihiro Suzuki, Atsushi Ohuchi, Kenichi Matsushima, Fumiki Mizusako (NFD)