

次世代再処理ガラス固化技術基盤研究 (37)MA 吸着材特性およびガラス化の評価

Basic research programs for the next generation vitrification technology

(37)Evaluation of MA adsorbent characteristics and its vitrification behavior

*小藤 博英¹, 渡部 創¹, 後藤 一郎¹, 折内 章男¹, 竹内 正行¹, 小林 秀和¹, 捧 賢一¹

¹日本原子力研究開発機構

マイナーアクチニド(MA)等の分離法として開発を進めている抽出クロマトグラフィにおいて使用する抽出剤含浸吸着材の特性評価及び模擬高放射性廃液元素の吸脱着を行った使用済吸着材のガラス固化体原料としての利用可能性を評価するためのガラス化試験及び化学的安定性の評価を行った。

キーワード: 抽出クロマトグラフィ, マイナーアクチニド, ガラス化

1. 緒言

使用済燃料再処理における高放射性廃液からマイナーアクチニド(MA)を分離除去することにより、高レベル廃棄物(HLW)の取り扱いや処分環境への負荷の低減が期待できる。分離された MA は消滅処理、個別管理、固化処分などいくつかの処置が考えられる。この MA 分離法の一つとして抽出クロマトグラフィ法が研究されており^[1]、廃棄物核種に対して選択的吸着性を有する抽出剤を含浸させた多孔質シリカ粒子をカラムに充填し、クロマトグラフィ操作により目的の元素を分離する。本手法では抽出剤の希釈剤が不要であるため溶媒抽出法に比して 2 次廃棄物の発生量が少ないことや抽出剤の保持担体として多孔質シリカを用いるため、ガラス固化体の原料の一部として利用できること等が期待される。

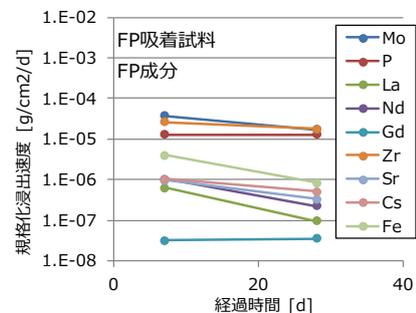
本研究では高放射性廃液中の希土類(RE)や MA を回収するための抽出剤として利用されている CMPO (n-octyl(phenyl)-N,N-diisobutyl carbamoylmethylphosphine oxide)を用いた吸着材の加熱分解特性評価、溶融ガラス化、ガラス固化試料の特性評価を行い、ガラス固化原料としての利用可能性を検討した。

2. 実験

多孔質シリカ粒子にスチレンジビニルベンゼンポリマーを塗布し、CMPO を含浸させて吸着材とした。模擬高放射性廃液中の諸元素を吸着させた試料と、吸着元素を溶離させた試料及びこれに模擬 MA として Eu を吸着させた吸着材を試料として調製した。有機物成分の分解や可燃性ガスの発生は TPD/MS 及び TG/DTA により評価し、600°C で無機化を行うこととした。吸着材中の有機物成分以外を SiO₂ と仮定して修飾酸化物 (B₂O₃, Na₂O, Al₂O₃, 等) の添加量を決定した。空気雰囲気においてアルミナルツボ中で昇温し、1150~1200°C でガラス化溶融を行った。黒鉛モールドに流下した後、徐冷炉で冷却固化し、試料の断面を SEM/EDS で、結晶生成状況を XRD でそれぞれ分析した。また、1 辺 10mm の立方体に切り出し、MCC-1 法に準拠した浸水試験で元素の浸出性を評価した。

3. 結果と考察

有機物の熱分解による可燃性ガスの発生及び燃焼は約 600°C までで終了しており、当該温度で無機化することにより引火点や発火点が低い熱分解ガスがガラス化工程に与える影響を排除できる。次に、酸化物を添加してガラス化した試料は若干の XRD 結晶ピークが観察され、また微量の白金族析出物が認められたものの、概ね良好にガラス化していると判断できる。模擬 FP 吸着試料ではガラス化溶融時の粘度が高く、均質性の低下や部分的に気泡の包含が認められたが、添加する酸化物の Na₂O 濃度を若干高くすることによりこれらは改善された。いずれの試料もガラス中に抽出剤成分に由来するリンが残存するが、本実験条件の濃度範囲では分相には至らず、ガラス特性への顕著な影響はみられなかった。元素の浸出特性もガラス材料元素 (右図)、模擬廃棄物元素ともに優れており、使用済吸着材がガラス固化体原料として利用できる可能性が示された。



参考文献

[1] Sou Watanabe et al., "Extraction Chromatography Experiments on Repeated Operation using Engineering Scale Column System", Energy Procedia 7 (2011) 449-453.

*Hirohide Kofuji¹, Sou Watanabe¹, Ichiro Goto¹, Akio Oriuchi¹, Masayuki¹ Takeuchi, Hidekazu¹ Kobayashi, Kenichi¹ Sasage

¹Japan Atomic Energy Agency

※本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「平成 26~28 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。