ガラス固化体の高品質化・発生量低減の為の白金族回収プロセスの開発 (21)模擬高レベル廃液構成主要元素のホウケイ酸ガラス相内への拡散・溶解現象解析

Development of Recovery of Platinum-group Metals from HLLW for Stable Production and Volume Reduction of Homogeneous Vitrified Object

(21) Analysis of diffusion and solubility behavior of major simulated high-level liquid waste components into borosilicate glass

*中野 義夫[1], 西川 真[1], 川合 康太[1], 竹下 健二[1]

[1]東京工業大学大学院

模擬高レベル廃液(sHLLW)のガラス固化体形成過程に係わる諸現象の解明は、ガラス溶融炉の制御・操作を行う上で重要な課題である。ここでは、①廃液を構成している金属硝酸塩の熱分解/ガラス化反応、②これら各種元素およびホウケイ酸ガラス構成元素の sHLLW 相/ガラス相間物質移動（拡散/溶解）、③仮焼層内流動・層構造形成を速度論の観点から評価した。

キーワード：模擬高レベル廃液、ホウケイ酸ガラス、拡散/溶解、熱分解/ガラス化反応・物質移動

1. 緒言　仮焼層内諸現象の理解と解明は高レベル廃液ガラス固化体システムの開発にとって必要不欠である。本研究では、模擬高レベル廃棄物の熱分解逐次反応、廃棄物構成元素のホウケイ酸ガラス相内への拡散/溶解およびガラス化反応からなる一連の仮焼層内諸現象のダイナミックス[1]を系統的に把握することを試みた。

2. 実験　熱重量分析(TG)、反応に伴う発生気体分析(MS)測定装置および小型炉と光学系からなる高温観察装置システムを用いて、sHLLW/ホウケイ酸ガラスの昇温に伴う相変化、相挙動、熱分解反応/ガラス化反応挙動の把握と解析を行った。

3. 結論　分解 sHLLW のホウケイ酸ガラス（組成-mol%: 61.3SiO2, 16.0B2O3, 3.85Al2O3, 3.96Na2O, 4.16CaO, 2.87ZnO, 7.79Li2O）相内拡散/溶解 vs 反応温度マップを図 1 に示す。700℃以下の温度域では sHLLW 主要元素である Na のガラス相内拡散が進行する。それに伴い、ガラス相内の Ca はガラス相表面に拡散、sHLLW 中の Mo と反応、CaMoO4 相を形成する。CaMoO4/ガラス相の非相溶性により、CaMoO4 相分離が起こる。700℃以上では、白金族元素以外の元素はガラス相に取り込まれ溶解する。未分解 sHLLW は、昇温に伴い溶融ガラス相内でさらなる反応が進行、主に NO・O2 の発生に伴う気泡相の形成により仮焼層は膨張、このことが、熱移動に著しく影響する。

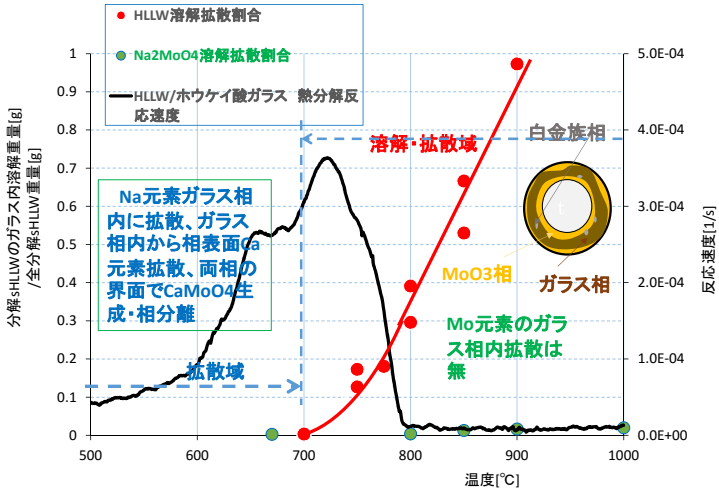

図 1　昇温過程における高模擬廃棄液(sHLLW)成分のホウケイ酸ガラス内拡散・溶解挙動

4. 謝辞

本研究は文部科学省、原子力システム研究開発事業により東京工業大学が実施した研究の一部である。

参考文献

[1] 中野義夫、西川真、川合康太、竹下健二、日本原子力学会 2015 年秋の大会、F45, P229

*Yoshio NAKANO[1], Makoto NISHIKAWA[1], Kota KAWAI[1], Kenji TAKESHITA[1]

[1]Tokyo Institute of Technology