

低レベル放射性廃液に対する鉄リン酸ガラス固化体の化学的安定性と耐久性評価

Durable evaluation and chemical stability of the iron phosphate vitrified solids for low level radioactive waste

*毛利 雅裕¹, 新井 剛², 佐藤 史紀³, 齋藤 恭央³

¹ 芝浦工業大学大学院, ² 芝浦工業大学, ³ 日本原子力研究開発機構

抄録：鉄リン酸ガラス(mol 比 Fe : P : Na = 1.0 : 1.6 : 1.5)によるリン酸廃液のガラス固化体を作製し、冷却速度が化学的安定性に及ぼす影響について詳細に検討した。

キーワード：鉄リン酸ガラス、ガラス固化、低レベル放射性廃棄物

1. 緒言

使用済燃料の再処理に伴い発生する劣化溶媒(リン酸ジブチル：DBP)の再生には、炭酸ソーダ溶液や苛性ソーダ溶液を用いるため、リン酸塩やナトリウム塩等を多含する放射性廃液(リン酸廃液)が発生する。従来のセメント固化法で本廃液を処理する場合、リン酸塩やナトリウム塩によりセメント凝固反応が阻害され、廃棄物充填率の低下及び固化体の安定性の低下が懸念される。そこで筆者らは、本廃液に多含するリン酸塩をガラスの固化体骨格として利用可能な鉄リン酸ガラスの検討を重ねている。既往の研究成果より、鉄リン酸ガラスの組成を Fe : P : Na = 1.0 : 1.6 : 1.5 (mol 比)とすることで、廃棄物を高充填できることが明らかとなった^[1]。しかし、この高充填化による化学的安定性への影響は未検討である。また、実プロセスにおいて熔融ガラスはキャニスターへの充填が検討されているが、多量の熔融ガラスを固化する際、降温速度の低下に伴う結晶化が懸念される。本発表では、模擬廃液を用いて熔融ガラス化試験を行い、急冷した試料と降温速度を低下させた試料を作製し、冷却速度が化学的安定性に及ぼす影響について検討した。

2. 実験方法

本試験では、リン酸廃液を模擬した混合廃液を作製後、熔融ガラス化試験を行った^[1]。模擬廃液中に含まれる Na の mol 量に対し、Fe : P : Na = 1.0 : 1.6 : 1.5 となるように、試薬(酸化鉄及びりん酸二水素アンモニウム)を添加することで組成を調整した。鉄リン酸ガラスは 1100 °C で 4 時間加熱することで熔融後に自然放冷したものを急冷試料、熔融後に降温速度を一定(1.0 °C・min⁻¹)にして作製したものを徐冷試料とした。両試料は SEM 及び EDS で均質性を評価後、PCT-B に準拠した浸出試験を行い化学的安定性の比較を行った。

3. 実験結果と考察

Fig. 1 に急冷試料と徐冷試料の外観写真及び XRD 分析結果を示す。Fig. 1 の外観写真より、何れの試料においても黒色の外観が観察された。また、XRD 分析結果にて、急冷試料では非晶質を示すハローパターンが見られたためガラス化したと考えられる。しかし、徐冷試料では結晶ピークが検出されたため、1.0 °C・min⁻¹ の降温速度ではガラス化が困難であることが明らかとなった。また、徐冷試料を粉砕した際、試料表面の黒色の層が剥離し、内部には茶褐色を呈する層の存在が観察された。Fig. 2 に SEM 及び EDS を用いた黒色の表面層と茶褐色の層の観察結果を示す。Fig. 2 の元素マッピングの結果から、降温速度を低下したことに伴い生じた黒色の表面層に Fe と O が偏析しているため、Fe の酸化物かつ黒色の外観を有する Fe₃O₄ の化合物であると考えられる^[2]。これは試料表面の Na と P が揮発したことに伴い、残存した Fe が茶褐色の層を覆うように Fe₃O₄ の層を形成したためと考えられる^[3]。一方、茶褐色の層には Fe, P, Na, O が均一に分布されていることから、XRD 分析結果で確認された Fe₂Na₃(PO₄)₃ の結晶を多く含む層が生成されたと推察される。本会では、熔融ガラスを徐冷したことに伴い生じた Fe₂Na₃(PO₄)₃ を多く含む層の化学的安定性評価を行い、冷却速度の違いにより生成された結晶が化学的安定性に及ぼす影響について検討したので報告する。

4. 参考文献

[1] 佐藤史紀：日本原子力学会 2017 年 秋の大会 予稿集, 2A-06 (2017).

[2] 中原勝儼：無機化合物・錯体辞典, 講談社, p. 228 (1997).

[3] 梶山正孝：金属材料の高温酸化とその対策, Vol. 10, No. 9 (1959).

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「平成 30 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」の研究結果の一部である。

*Masahiro Mouri¹, Tsuyoshi Arai², Fuminori Sato³, Yasuo Saito³

¹ Shibaura Institute of Technology Graduate school, ² Shibaura Institute of Technology, ³ Japan Atomic Energy Agency

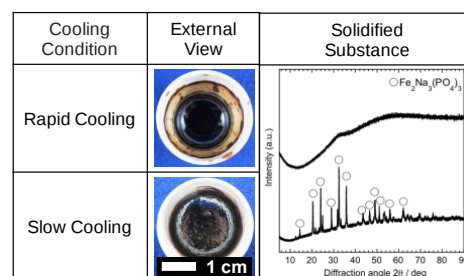


Fig. 1 Appearance and XRD pattern of these samples

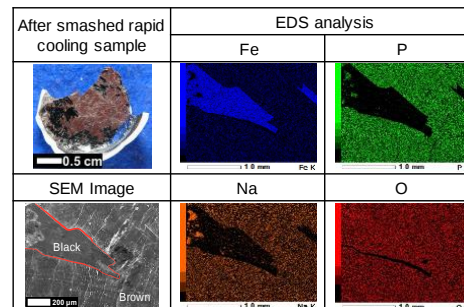


Fig. 2 The result of the SEM and EDS