

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 (70)高レベル廃棄物吸着ガラスのガラス固化特性

Basic research programs of vitrification technology for waste volume reduction

(70) Vitrification property of HLW adsorption glass

*小藤 博英¹, 宮崎 康典¹, 渡部 創¹, 後藤 一郎¹, 大山 孝一¹, 竹内 正行¹

¹日本原子力研究開発機構

抽出クロマトグラフィによる MA 分離操作において, HDEHP 含浸吸着材による Mo, Zr の事前除去を検討している。HDEHP 吸着材を用いる場合, 吸着材の膨潤によるカラムの圧力損失上昇が課題となっていたが, 大粒径の多孔質シリカ担体の使用によりカラム内圧制御の見通しを得た。本研究ではこのようなシリカ粒子を担体とした使用済吸着材のガラス化及びガラス固化体の化学的安定性に与える影響を評価した。

キーワード: 抽出クロマトグラフィ, マイナーアクチニド, 吸着材, ガラス固化

1. 緒言

高レベル放射性廃液からマイナーアクチニド(MA)を分離する手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], カラムには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用いている。本手法では抽出剤の希釈剤が不要であることや, 抽出剤の保持担体である多孔質シリカをガラス固化原料の一部として利用できることにより, 溶媒抽出法に比して 2 次廃棄物の発生量の低減が期待される。実際のカラム操作においては, 希土類(RE)や MA を回収するための CMPO (n-octyl(phenyl)-N,N-diisobutyl carbamoylmethylphosphine oxide)含浸吸着材に廃液中の Mo や Zr が優先的に吸着し, 他の廃棄物元素の吸着分離を阻害することから, これらの元素に選択的吸着性を有する HDEHP (di-(2-ethylhexyl) phosphoric acid) を含浸させた吸着材による事前除去を検討している。この場合, 吸着材の膨潤によるカラムの圧力損失増大が顕著であるため, 大粒径で空隙率が高い多孔質シリカ担体の採用を検討しているものの, シリカ粒径増大によるガラス化溶解への影響が懸念されることから, 本研究において大粒径多孔質シリカを調製し, カラム操作後のガラス化状況を評価した。

2. 実験

噴霧乾燥法及び液柱振動切断法にて粒径がそれぞれ約 60 μ m 及び約 2mm の多孔質シリカ粒子を製造し, これらを担体とした HDEHP 吸着材を調製した。模擬高レベル放射性廃液に約 3 時間浸漬した後, 溶離, 洗浄, 乾燥させて模擬使用済吸着材 (Mo, Zr は残留) を得た。600 $^{\circ}$ C での無機化の後, B₂O₃ や Na₂O 等の酸化物を添加し, 標準的なガラス原料組成とした。約 1200 $^{\circ}$ C でガラス化溶解した後, 得られたガラス試料の XRD による結晶発生状況の確認及び元素の規格化浸出速度評価による化学的安定性評価を行った。

3. 結果と考察

図 1 に示した様に, 粒径 2mm のガラス化試料では, 粒径 60 μ m のガラス化試料に比して不均質であり, ガラス試料にはクラックが生じた。規格化浸出速度については, 粒径 2mm の試料ではクラックが無いものとして評価したところ, 各元素の規格化浸出速度は増大したものの, 標準試料と遜色ない安定性を示した。XRD 分析では双方に Mo や Zr のリン酸塩結晶が検出されたが, これらは不溶性であり化学的安定性への影響は限定的である。従って, ガラス化溶解前に粉碎等により細粒化を十分行うことにより安定なガラス試料が得られると見込まれる。

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, Yasunori Miyazaki¹, Sou Watanabe¹, Ichiro Goto¹, Koichi Ohyama¹, Masayuki Takeuchi¹

¹Japan Atomic Energy Agency

※本研究は, 経済産業省資源エネルギー庁「平成 29,30 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」の成果の一部である。

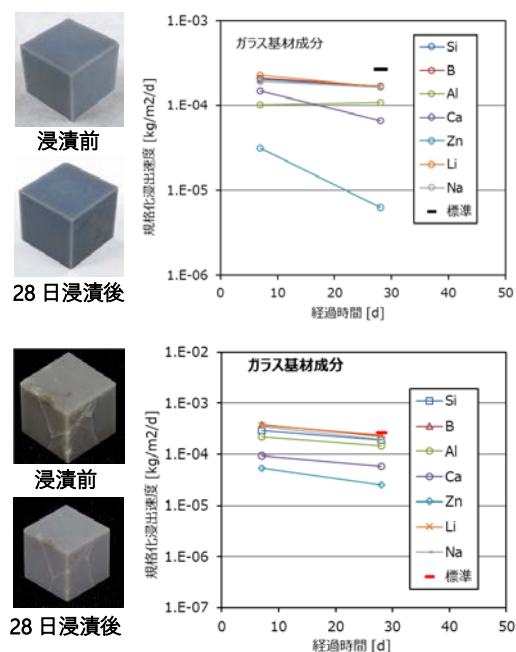


図1 ガラス固化試料の浸出試験結果
上: 粒径 50 μ m 程度の多孔質シリカ使用
下: 粒径 2mm 程度の多孔質シリカ使用