

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 (71) 模擬廃棄物含有リン添加ホウケイ酸ガラスの作製及び特性評価

Basic research programs of vitrification technology for waste volume reduction

(71) Preparation and characterization of simulated waste borosilicate glasses including phosphorus

*永井 崇之¹, 捧 賢一¹, 猪瀬 毅彦², 佐藤 誠一², 畠山 清司³

¹JAEA, ²検査開発, ³E&E テクノサービス

P添加ガラス原料に模擬廃液を混合溶解して模擬廃棄物ガラスを作製し、浸出試験による長期化学的安定性を評価した結果、Mo溶出を抑える効果があることを確認した。また、ガラス徐冷時の結晶化挙動等々を評価した結果、P添加ガラスの結晶化挙動は現行ガラス組成と同等であることを確認した。

キーワード: ガラス固化, ホウケイ酸ガラス, リン添加模擬廃棄物ガラス, 浸出試験

1. 緒言 現行ガラス原料のマトリックス改良として、P₂O₅を添加した効果を評価した。予め調製したP添加ガラス原料へ模擬廃液を混合溶解して模擬廃棄物ガラスを作製し、既存のガラス固化体中の核種浸出挙動^[1]を参考に、浸出試験による長期化学的安定性、溶解からの徐冷条件による結晶化挙動等々を評価した。

2. 実験 Si/B比やP₂O₅添加量をパラメータに、粉末試薬(SiO₂, H₃BO₃, Na₂CO₃, Na₂HPO₄等)を1150°Cで溶解し、表1に示すP添加ガラス原料D2-N4, 比較原料D2-N4及び現行組成PF798-N4を調製した。カレット状に粉碎したガラス原料へNaを除く廃棄物成分が26wt%(酸化物換算)となるよう模擬廃液を混合し脱硝した後、1150°Cで2.5 h溶解して模擬廃棄物ガラスを作製した。浸出試験は、作製した模擬廃棄物ガラスを用いて表2に示すMCC-1及びPCT-A法で実施し、浸出液のpH変化や溶出元素濃度を評価した。結晶化挙動試験は、表1のガラス原料と模擬廃液乾固物を模擬廃棄物ガラス組成となるよう混合し、Ptライニング坩堝に入れて加熱溶解後、急冷と徐冷の2条件で冷却した試料をXRD等で評価した。急冷試料は1200°Cの熔融状態から室温環境に取り出し、徐冷試料は1200°Cから1°C/minで降温冷却した。

表1 ガラス原料組成 (wt%)

	D2-N4	D1-N4	PF798-N4
SiO ₂	46.30	47.31	59.78
B ₂ O ₃	23.17	23.66	18.23
P ₂ O ₅	1.73	—	—
Al ₂ O ₃	13.24	13.47	6.43
CaO	3.84	3.84	3.84
ZnO	3.84	3.84	3.84
Li ₂ O	3.84	3.84	3.84
Na ₂ O	4.04	4.04	4.04

表2 浸出試験条件

	Stage-I	Stage-II	Stage-III
方法	MCC-1 10mm 立方体	PCT-A 75-150µm 粉	PCT-A 75-150µm 粉
期間	~4 日	~147 日	~91 日
浸出液 (設定値)	KCl-KOH (pH=9)	KCl (pH=7)	KCl-KOH (pH=11)
S/V 比	10 m ⁻¹	10000 m ⁻¹	10000 m ⁻¹
温度	90±2°C	90±2°C	90±2°C

3. 結果 浸出試験の結果、いずれの Stage も試験後の浸出液の pH に変化はなかった。浸出液への元素の溶出状況は、P 添加ガラス原料 D2-N4 から作製した模擬廃棄物ガラスが、固化体の浸出初期に相当する Stage-I で他試料より高い Si, Na, B, Mo 等の溶出量を示した。一方、処分後に一定期間が経過し固化体表面の Si-OH 層形成等が予想される Stage-II や Stage-III では、この模擬廃棄物ガラスからの Si, Na, B の溶出量は他試料より高いものの、Mo の溶出量は低い値を示した。このことから、P 添加ガラス原料を用いて作製したガラス固化体は、処分環境で Mo 溶出を抑制する効果が期待できる。また、結晶化挙動試験の結果、P 添加ガラスと現行組成における結晶化物生成に差は見られず、P 添加ガラスの特性は現行組成と同等と考えられる。

参考文献 [1] A. Jiricka, J. D. Vienna, P. Hrma, D. M. Strachan, *Journal of Non-crystalline solids*, **292** (2001) 25-43.

本報告は、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」の成果の一部である。

* Takayuki Nagai¹, Kennichi Sasage¹, Takehiko Inose², Seiichi Sato² and Kiyoshi Hatakeyama³

¹JAEA, ²Inspection Development Co., ³E&E Techno Service Co.