

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 (72) 模擬廃棄物含有リン添加ホウケイ酸ガラスの局所構造解析

Basic research programs of vitrification technology for waste volume reduction

(72) Local structure analysis of simulated waste borosilicate glassed including phosphorus

*岡本 芳浩¹, 塩飽 秀啓¹, 捧 賢一¹, 永井 崇之¹

¹原子力機構

P 添加ガラス原料に模擬廃液を混合溶融したガラス固化試料を調製し、放射光による X 線吸収微細構造を利用した局所構造解析を実施した。廃棄物充填量の増加により酸化性が高まり、P 添加量を増やすと還元性が高まって相殺されることが明らかになった。

キーワード：ガラス固化，ホウケイ酸ガラス，X 線吸収微細構造，放射光

1. 緒言 現行のガラス原料マトリックスの改良として、P₂O₅を添加したガラス固化試料を調製し、その構成元素の局所構造解析を放射光 XAFS 及びイメージング XAFS を駆使して行った。

2. 実験 Si/B 比や P₂O₅添加量をパラメータとした特性評価（前講演(71)）で使用された試料を、XAFS 実験の対象とした。試料は、X 線吸収端のエネルギーに対応させるよう、厚さ 1 mm 及び 2 mm の板状に切り出したものを用いた。放射光実験は、大型放射光施設 SPring-8 の BL22XU 及び高エネルギー加速器研究機構放射光実験施設 BL-27B において、Mn、Fe、Zn、Sr、Zr、Mo、Ru、Pd、Ce 及び Nd を対象に XAFS 測定を、Zr、Mo、Ru、Rh 及び Pd を対象にイメージング XAFS 測定を実施した。

3. 結果 これまでの XAFS 分析[1]から、P 添加により還元性が高まることが分かっている。それに引き続き実施した系統的な XAFS 分析の中で、Rh 及び Ce は、P 添加量及び廃棄物充填量のいずれにおいても、明確な酸化還元変化を示した。Rh では、P 添加により RhO₂ の割合が減り、Rh 金属が増加した。Ce はホウケイ酸ガラス中では 3 価と 4 価が混在するが、P 添加より 3 価の割合が高くなった。一方で、廃棄物充填量を増やすと 4 価の割合が高くなる。図 1 に、それらの値の変化を示すが、P 添加量による還元性、廃棄物充填量による酸化性が、D1-N4-26W 試料（リン添加無しの廃棄物 26wt%）と D2-N4-30W 試料（リン添加の廃棄物 30wt%）の間でほぼ相殺されていることが分かる。

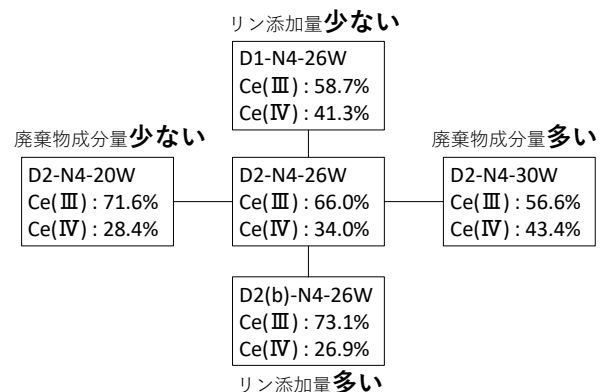


図 1 模擬廃棄物含有リン添加ホウケイ酸ガラス試料中 Ce 元素の酸化還元状態変化

Zn 及び Zr は、廃棄物充填量により局所構造秩序の上昇を示したが、P 添加量による変化は認められなかった。残りの Fe、Sr、Mo、Ru、Pd 及び Nd は、P 添加量

及び廃棄物充填量のいずれにおいても明瞭な変化を認めなかった。イメージング XAFS 分析の結果では、P 添加による還元性から、Rh の化学形が金属である割合が増えた結果、従来の強い Ru-Rh 相関（酸化物由来）に加えて、Rh-Pd 相関（金属由来）が、これらの元素の分布において認められるようになった。

参考文献 [1] 岡本ら、日本原子力学会 2018 年秋の大会 2G19（2018 年 9 月、岡山大学）

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。

*Yoshihiro Okamoto¹, Hideaki Shiwaku¹, Kennichi Ssasage¹ and Takayuki Nagai¹JAEA