

使用済核燃料の鉛ホウ酸ガラスによる直接ガラス固化システムにおける分相を利用した資源回収可能性の検討

Resource retrievability using phase separation in the direct vitrification system of used nuclear fuel with lead borate glass

*築山 直生¹, 澤田 佳代¹, 榎田 洋一¹

¹名古屋大学

Nd₂O₃を含む鉛ホウ酸ガラスに B₂O₃を加えて、1000°Cで3時間加熱することで分相させた。分相によって鉛ホウ酸ガラスの硝酸に対する溶出性が向上することを確認できた。

キーワード：鉛ホウ酸ガラス、分相、ガラス固化

1. 緒言

使用済核燃料の直接ガラス固化法として、90年代に米国にて鉛ホウ酸ガラスによるガラス材料酸化溶解システム(GMODS)が提案された^[1]。この方法は、金属被覆管ごと剪断燃料をガラスに溶解した後、SiO₂の添加による組成調整によって生成固化体に耐水性を付加することが可能である。一方、エネルギー資源に乏しい我国では、将来を見据えて廃棄体からの資源回収性についても考慮する必要があると考える。本研究ではガラスの分相現象を利用し、鉛ホウ酸ガラスを用いて作製した固化体からの資源回収可能性を示すことを目的とした。

2. 実験方法

ガラス試料、61 wt% PbO - 10 B₂O₃ - 24 SiO₂ - 5 Nd₂O₃ 粉末 10 g に B₂O₃ (富士フィルム和光純薬工業) 1.5 g を加え、マッフル炉で 1000°C、3 時間加熱を行った後、室温で急冷し、分相ガラスを得た。それぞれの相の組成を求めるため、試料の一部を濃硝酸で溶解し、ICP-AES (島津, ICPE-9000) を用いて濃度測定を行った。酸による浸出性については、るつぼごと分相ガラスを切断機で縦に 2 分割し、これを PFA 容器内で 1 mol dm⁻³ 硝酸に室温で 18 時間浸漬することで硝酸に溶解した元素濃度を測定した。なお、浸漬後、容器内には未溶解ガラスの付着したるつぼ以外に白色沈殿が存在したため、この沈殿物をアルカリ融解により溶液化した後、ICP-AES による成分分析を行った。

3. 結果と考察

図 1 に示すように、分相処理後の試料は白濁した上相と透明な下相の二つに分離した。表 1 に上・下相の組成を示す。Pb は下相、B は上相での含有率が高かった。分相剤として加えた B₂O₃ の融体と鉛ホウ酸ガラスの比重差が大きいため、対流が不十分で局所的な分相に留まったと考えられる。

一方、図 2 にネオジウムとガラス全体の硝酸での溶出割合を示す。分相していない鉛ホウ酸ガラスでは溶出割合が 60% 程であったのに対して、分相処理を施すことで溶出割合の向上が確認され、80% 以上となった。この残りの 20% には少量の未溶解ガラスと白色沈殿が含まれ、白色沈殿の分析結果より、45% が Si すなわち酸化物換算では SiO₂ が 99% であることが確認された。鉛の含まれていないホウ酸ガラスについても B₂O₃ 等で組成調整して分相させた試料を酸で浸出すると易溶性のホウ酸相が溶け出し、SiO₂ の骨格が残ることが知られている^[2]。本結果より、鉛ホウ酸ガラスについても分相と酸浸出により資源回収が可能であることが明らかとなった。

4. 結論

B₂O₃を加え 1000°Cで3時間加熱することで分相させた鉛ホウ酸ガラスは、分相していないガラスに比べて溶出性が向上することを確認できた。

参考文献

- [1] C. W. Forsberg *et al.*, Oak Ridge National Laboratory, CONF-941207-18(1994).
 [2] K. Uruga *et al.*, Journal of Nuclear Science and Technology, **45**, 889-898(2008).



図 1 分相ガラス試料の断面

表 1 組成

	酸化物含有率 [wt%]			
	PbO	B ₂ O ₃	SiO ₂	Nd ₂ O ₃
上相	54	25	18	3
下相	60	19	18	3

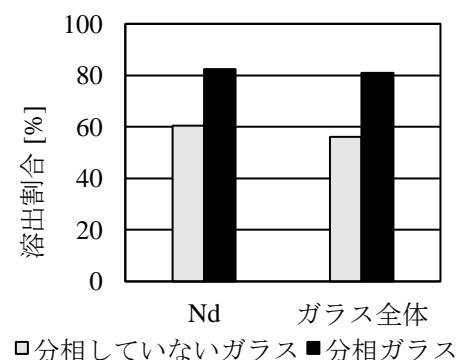


図 2 分相による溶出性の向上

*Naoki Tsukiyama¹, Kayo Sawada¹ and Youichi Enokida¹

¹Nagoya Univ.