

高硝酸ナトリウム含有廃液用低レベル放射性ガラス中の Ti, Zn, Zr の局所構造解析とその添加効果

Local Structural Analysis and Additive Effect of Ti, Zn and Zr in Low Level Radioactive Glass for Highly Concentrated Sodium Nitrate Solution

*田治見 祐里¹, 椎名 慶¹, 味村 武史², 田尻 康智², 助永 壮平³, 柴田 浩幸³, 松浦 治明¹

¹ 東京都市大学, ² 株式会社 IHI, ³ 東北大学

再処理により発生する高濃度の硝酸ナトリウムを含む放射性廃液はソーダボロシリケートガラスをベースに TiO_2 、 ZnO 、 ZrO_2 を添加することで化学的安定性の向上が見込めることが明らかとなっており、それらのうちの成分が化学的安定性の向上に大きく寄与しているのか EXAFS を用いて評価した。

キーワード： 低レベルガラス, EXAFS, チタン, 亜鉛, ジルコニウム

1. 緒言

国内の再処理施設で発生する低レベル放射性廃棄物は焼却, 圧縮, セメント固化が一般的な処分方法であり, ガラス固化はこれまで導入されていない. 比較的放射能レベルの高い低レベル放射性廃棄物に対して減容性が高く, より安定した廃棄体とするためのガラス固化技術の基盤を確立しておくことは重要である [1]. 再処理施設から出る高硝酸ナトリウム含有廃液を対象としたガラスの候補としてソーダボロシリケートを検討し, TiO_2 、 ZnO 、 ZrO_2 を添加成分として加える化学的安定性評価(PCT)試験によると, TiO_2 を添加すると溶出速度が下がり, 化学的安定性が大きく向上しているのに対し, ZrO_2 を添加するとガラスの溶出量が増え, 安定性を失う効果のあることが分かった.

本研究では, TiO_2 、 ZnO 、 ZrO_2 がそれぞれどのように化学的安定性の相違に寄与しているのかその機構を明らかにする目的で, EXAFS を用いて Ti, Zn, Zr 原子周りの局所構造解析を行った.

2. 実験

$\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{B}_2\text{O}_3 \cdot \text{CaO} \cdot \text{SiO}_2$ をベースに TiO_2 、 ZnO 、 ZrO_2 を決められた割合で添加し, 1100°C , 1h 溶融を 2 回繰り返してガラス試料を得た. これらの試料を粉砕し, PCT 試験を実施した前後の試料を高エネルギー加速器研究機構 PF の BL-27B とあいしシンクロトロン光センターの BL-5S1 で, 透過法による Zr-K, Zn-K 吸収端, 蛍光法による Ti-K 吸収端の測定を行った. cubic spline 法を用いて得られた EXAFS 振動をフーリエ変換することで構造関数を得, さらに EXAFS の式に基づき fitting により構造パラメータを導いた.

3. 結果・考察

図 1 に示したように Zn を 2.4 mol% に保ち Ti の添加量を増加させた場合, Ti 添加量に関わらず浸漬後は Ti 周りの構造が平準化するが, 浸漬前は濃度によって構造に違いがあったため, 浸漬により Ti 周りの構造に変質が起きていることがわかる. 次に同じガラスの Zn 周囲の構造に着目すると, Ti を 4.8 mol% 添加したガラスのみ浸漬前後の Zn-O 距離に変化が見られ, PCT 試験結果からもこれが Al 以外の成分に関し一番浸出率の低いガラスであった. 以上のことから浸漬後 Zn 周りの構造も変化することにより浸出量が抑制されたと考える. Zn が共存しないガラスで Ti の添加量のみを増加させた場合は, Ti を 4.8 mol% 添加したガラスの浸漬後の構造にもより低い濃度の場合と比較して変化が現れ, Zn 添加が Ti 周りの構造変化を抑制する効果のあることが分かった.

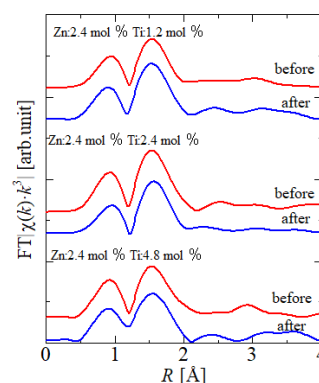


図 1 浸漬前後の Ti-O の EXAFS 構造関数

参考文献

[1] 鬼木俊郎, 鍋本豊伸, 福井寿樹, IHI 技報 Vol.56 No.4 (2016) p.66

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」の成果の一部である.

*Yuri Tajimi¹, Kei Shiina¹, Takeshi Mimura², Yasutomo Tajiri², Souhei Sukenaga³, Hiroyuki Shibata³ and Haruaki Matsuura¹

¹Tokyo City Univ., ²IHI Corp, ³Tohoku Univ.