

ボロシリケートガラスへの高レベル模擬放射性廃棄物の 高充填溶解挙動の評価

Evaluation of vitrification and dissolution of simulated high-level radioactive wastes in borosilicate glasses with high-loading capacity

*矢野 哲司¹、宮脇 拓洋¹、松本 慎太郎¹、松下 伸広¹、岸 哲生¹、三浦 吉幸²、兼平 憲男² (¹東京工業大学、²日本原燃)

使用済み核燃料の再処理から生じる高レベル放射性廃棄物を高充填に固定化するボロシリケートガラスの開発に向けたガラス化および放射性廃棄物溶解挙動について報告する。ガラス化過程の評価及び冷却後のガラス状態に関する種々の評価結果およびコンビナトリアル手法によるガラス組成探索について得られた研究成果を総括的に述べる。

キーワード：放射性廃棄物固化体、ボロシリケートガラス、ガラス化、廃棄物充填、コンビナトリアル手法

1. 緒言

原子力発電所使用済み核燃料の再処理より生じる高レベル放射性廃棄物の固定化にガラス材料が用いられている。放射性廃棄物を内包したガラス固化体は、冷却期間を経て地層処分される予定であるが、長期安定性（閉じ込め）とともに、処分場の確保のため、廃棄物量に関する充填性能についても優れたガラスを開発する必要がある。この研究は、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」によって行われた研究の一部であり、本講演では、ガラスへの高レベル放射性廃棄物元素の溶解挙動に関する調査研究および新規ガラス組成の高速探索のために開発したスラリー技術をベースとしたコンビナトリアル手法に関する研究成果を示す。

2. 実験

2-1. 溶解挙動のその場観察

模擬高レベル放射性廃液と組成の異なるボロシリケートガラスとを混合乾燥させて溶解挙動の観察のための原料とし、円筒状透明シリカガラス容器の中に充填し、高温加熱炉を備えた X 線 CT 装置で加熱過程の内部構造を 2 分毎に撮影した。昇温速度は 10K/min である。同時に途中急冷試料も作製し、内部構造の組成分布を μ -XRF により評価した。

2-2. コンビナトリアル手法による組成探索

コンビナトリアル手法では、組成の異なるガラス粉をスラリー化し、ディスペンサを利用して異なるガラス組成のスラリーを系統的にその比率を変えて混合し、最後に模擬放射性廃棄物を加え乾燥させた。ガラス化は 1200°C 2h とし、-1K/min で定速冷却し試料を得た。

3. 結果

X 線 CT 測定より、ガラス化過程で形成される仮焼層中で生じる気相生成とその閉じ込めに至る過程は、ガラス組成のわずかな違いによって挙動が異なることが明らかとなった。急冷試料の観察評価から、ガラスの熔融過程と模擬放射性廃棄物成分の取り込みに成分毎に違いがあり、特に Mo 成分とガラス融液の分布の乖離が生じている領域があることが分かった。Mo 取込みとイエローフェーズ生成との関係からは、仮焼層で Mo 成分をガラス内に取り込むプロセスと取り込まれない成分の輸送過程が重要であることが分かった。

コンビナトリアル手法によるガラス固化体の評価では、系統的な組成変化に対し熱力学計算により想定された充填予測範囲も含め対象とした組成範囲のガラスは YP を生成することなくほぼ全ての成分を取り込み、ガラス化することが分かった。これらを総合すると、YP 生成には仮焼層の制御が最も重要な要素のひとつであり、仮焼層内および仮焼層下部の気泡輸送・排出プロセスが重要と考えられる。講演ではこれらの詳細データを示す。

* Tetsuji Yano¹, Takuhiro Miyawaki¹, Shintaro Matsumoto¹, Nobuhiro Matsushita¹, Tetsuo Kishi¹, Yoshiyuki Miura², Norio Kanehira² (¹Tokyo Institute of Technology, ²Japan Nuclear Fuel Limited)