

高レベル放射性廃棄物作製時における不溶解残渣（白金族合金）の蒸発挙動に関する研究

Oxidation and Vaporization Behaviors of Insoluble Residue (noble metal precipitation) during Fabrication of High Level Radioactive Wastes

*服部 亮平¹, 新田 旭¹, 佐藤 勇¹, 松浦 治明¹, 多田 晴香²

¹東京都市大学, ²株式会社 IHI

高レベル放射性廃棄物をガラス固化する際には、白金族元素はガラスへの溶解度が低く、一部の元素ではメルト内で蒸発挙動を示しオフガスへ移行することが知られている。このため、本研究ではガラス固化時の温度領域における白金族元素の蒸発挙動を混合粉の形態にて TG-DTA を用いて評価した。

キーワード：核分裂生成物，不溶解残渣，ガラス固化，蒸発挙動

1. 緒言

ガラス固化体作製時にメルトへ投入される高レベル廃液は、不溶解残渣が含まれている。不溶解残渣は再処理工程中の硝酸溶液に溶解せずに残る合金形態のものであり、その主な成分は白金族元素である⁽¹⁾。ガラス固化体作製時において、白金族元素はメルト内の温度及び酸素分圧に依存して、蒸発を経て組成が変化し得る可能性がある。本研究では、軽水炉燃料（低燃焼度及び高燃焼度）及びプルサーマル燃料で発生すると考えられる不溶解残渣の白金族合金について、模擬物質の作製及びその熱物性評価を行う。

2. 実験方法

Mo、Ru、Rh 及び Pd の粉末（純度 99.9%）を秤量のうえ、防湿容器に入れ均一混合し、ダイス（Φ6.9）を用いてプレス成型にて 200MPa で圧粉体を得た。次に圧粉体を等方性カーボンるつぼに入れ、高周波加熱炉を用いて、Ar 雰囲気中で 2200℃まで昇温することで熔融させた。

これに引き続き、1000℃まで降温し、その温度で 10 分間保持し、当該温度での安定相とした。作製した合金試料に対して X 線回折（XRD）測定を行い、XRD パターンを得た。一方で、Mo、Ru、Rh、Pd 及び Re の混合粉及び各元素原料粉に対して空気雰囲気にて、昇温速度 10℃/min、到達温度 900℃の条件で TG-DTA 分析を行った。なお、TG-DTA 分析前後の試料に対して XRD 測定を行い、その結晶構造の変化を評価した。

3. 結果と考察

作製した合金試料に対する XRD では、不溶解残渣中の白金族合金にて観察された XRD パターン⁽²⁾と比較したところ、同相（最密六方晶）を持つことが観察された。

一方、混合粉及び原料粉に対する TG-DTA 分析では、加熱試験後混合粉の XRD パターン（図 1）において、Mo、Ru 及び Pd の酸化物を検出した。また加熱試験で得られた混合粉の重量変化を詳細に検討するため、単体分析結果を整え、試験結果と比較したところ（図 2）、Mo 及び Re の酸化・蒸発による重量変化が混合粉の結果に寄与していると考えられ、Ru 及び Pd の酸化も、高温領域で僅かに重量変化に影響することが示唆される。また、これら結果は XRD での同定結果と一致を得た。

図 2 の混合粉と Re に対する分析結果の比較では、混合粉のほうが低い温度で蒸発を開始していることが分かる。この原因として、試料の形状等の状態が起因していることが考えられる。今後の試験では、合金の粉末試料に対して同様の TG-DTA 分析を行い、検討する。また、合金試料の形状を整え、表面積と酸化膜成長速度の評価及び限界酸化膜厚さと揮発挙動の関係性について検討する。

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「平成 31 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。

参考文献

(1) H. Kleykamp, *J. Nucl. Mater.* 130 (1985) 426-433.

(2) J. O. A. Paschoal, *Metallkd.* 74 (1983) 652-664.

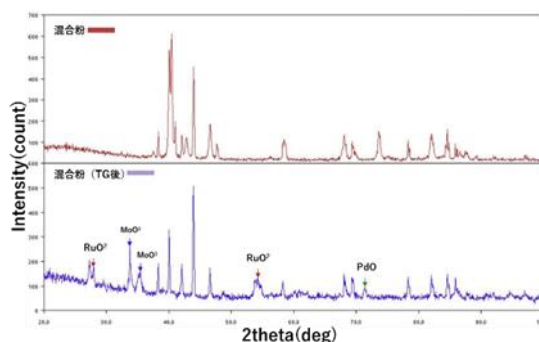


図 1 混合粉に対する XRD パターン(TG 前後)

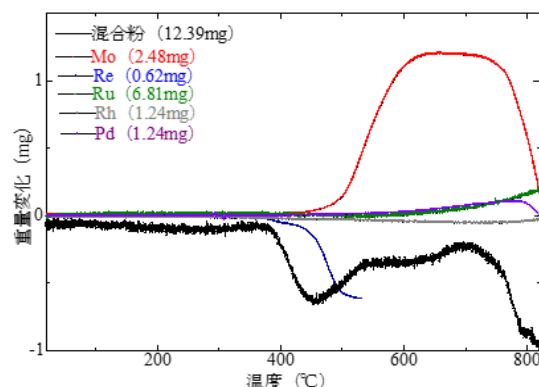


図 2 混合粉と配合元素の重量変化比較

*Ryohei Hattori¹, Asahi Nitta¹, Isamu Sato¹, Haruaki Matuura¹ and Haruka Tada²

¹Tokyo City University., ²IHI Corporation .