

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

Study on evaporation behavior of undissolved residue (platinum group elements) during production of the 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, 川島 英典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ター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みの形態にて 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ター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、白金族元素はメルター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金属相について、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°C まで昇温することで熔融させた。

これに引き続き、1000°C 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 の混合粉に対して、空気雰囲気において、昇温速度 10°C/min、到達温度 900°C 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して得られた XRD パターン（図 1）は、同組成を持つ XRD パターンの文献値⁽²⁾と同様であった。この結果より、得られた合金試料は文献における ε 相（最密六方晶）と同じ結晶構造を持つことが示唆され、試料作製方法の妥当性が確認できた。

混合粉の TG-DTA 試験では試験後の XRD 分析において、Mo 酸化物の存在が明らかになった。また、TG-DTA 分析（図 2）での各屈曲が構成金属の酸化、還元、蒸発に伴うものであることが熱力学平衡計算コード（FactSage）で確認された。ここで得られた TG カーブは、互いの反応が複雑に積算された形となっており、反応速度論も関連していると考えられる。今後は、各反応を理解するため単独元素の結果とあわせて、挙動の解明を進めていく。

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. O. Paschoal, R. Pejsa and F. Thommler, *J. Nucl. Mater.* 130 (1985) 426-433.
 (2) J. O. A. Paschoal, H. Kleykamp and F. Z. Thümmel, *Metallkd.* 74 (1983) 652-664.

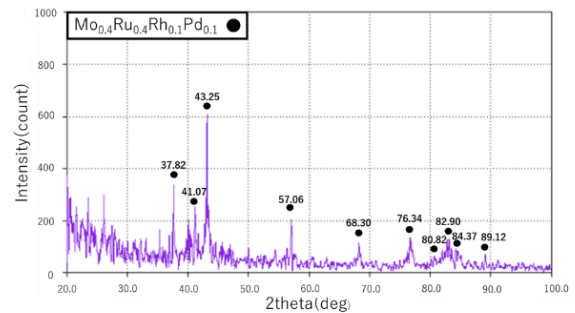


図1 合金試料XRDパターン

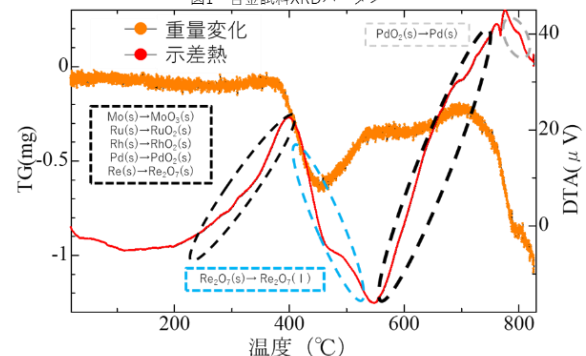


図2 混合粉TG-DTA

*Ryohei Hattori¹, Asahi Nitta¹, Isamu Sato¹, Haruaki Matuura¹, Haruka Tada² and Hidenori Kawashima²

¹Tokyo City University, ²IHI Corporation.