

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 (90) 加熱処理後の模擬高レベル廃液成分の XAFS 分析

Basic research programs of vitrification technology for waste volume reduction

(90) X-ray absorption analysis for each element in simulated high-level liquid waste after heating treatment

*岡本 芳浩¹, 永井 崇之¹, 谷田 肇¹, 秋山 大輔², 越野 陽也², 桐島 陽²

¹JAEA, ²東北大

ガラス固化処理時に廃液成分がどのようにガラスに取り込まれるかを明らかにするために、模擬廃液を加熱処理した試料の放射光 XAFS 分析を実施した。模擬廃液のみを加熱処理した場合、ガラスと混ぜて加熱処理した場合の2通りを対象とし、それらの違いについても調べた。

キーワード: ガラス固化, XAFS, ホウケイ酸ガラス, 高レベル廃液, 放射光

1. 緒言 ガラス固化処理は、廃液成分と原料ガラスの反応が基本であり、ガラスと反応する前の廃液成分の化学形や原料ガラスとの反応温度を知ることが重要となる。我々は、これまで最終形態であるガラス固化試料を対象に放射光 XAFS 分析を進めてきた。本研究では、それをガラス固化体製造プロセスに踏み込み、廃液成分がどのような化学状態をとり、どのようにガラスと混じり、取り込まれていくのかを明らかにすることを目的に分析を実施した。

2. 実験 本研究では、高燃焼度を想定した模擬廃液を使用し、廃液のみを加熱した試料と原料ガラス粉末（10wt%Na₂O 含有）と混合して加熱した試料の2種類を調製した。両者を比較することで、ガラスと反応する温度の特定が可能になるほか、ガラス固化製造プロセスへ供給する廃液の前処理に関する参考情報も取得できる。加熱処理は、300、500、600、700、800℃の5条件で、O₂ガスを掃気しながら2時間保持とし、計10試料を用意した。これらの試料中の、Mn, Fe, Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Cs, Ba, Ce, Nd, Gd を対象として XAFS 測定を実施した。放射光実験は、高エネルギー加速器研究機構放射光実験施設 BL-27B において実施した。

3. 結果と考察 300℃の加熱処理では、脱硝が進んでおらず、多くの元素は硝酸塩の化学形を示した。500℃加熱処理では、脱硝がほぼ終わり、全てにおいて酸化物であったが、当該元素の単純な酸化物であるものと、そうでは無いものに分かれた。この段階で、すでに他の元素と反応が進んでいることが示唆された。たとえば、Ru は、原料ガラスと混ぜて加熱すると必ず RuO₂ になるが、廃液のみ加熱すると RuO₂ 以外の酸化物になることが分かった。ランタノイド元素の中では、Nd のみが当該酸化物である Nd₂O₃ にならないことが分かった。図1に、Zr 元素の EXAFS データ解析から得られた Zr-O 間距離の変化を示す。700℃付近で Zr-O 間距離が変化していることから、この温度域でガラスと反応して取り込まれたことが明らかになった。引き続き、このように廃液成分の化学状態の変化、ガラスに取り込まれる温度領域を明らかにする。

本報告は、経済産業省資源エネルギー庁「令和2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。

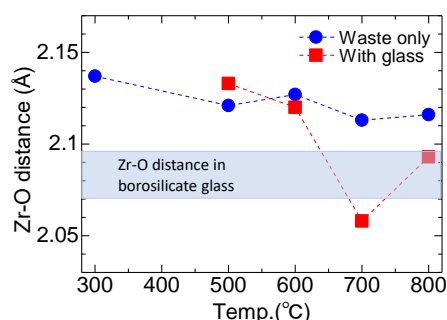


図1 模擬廃液加熱処理試料中の Zr-O 間距離の処理温度による変化

*Yoshihiro Okamoto¹, Takayuki Nagai¹, Hajime Tanida¹, Daisuke Akiyama², Haruya Koshino², and Akira Kirishima²

¹JAEA, ²Tohoku Univ.