

フリーズドライ法による放射性廃液の低温固化に関する研究

Study of Low Temperature Solidification of Radioactive Waste Liquid

by Freeze Drying Method

*梶並 昭彦¹、渡部 創²

¹ 神戸大学工学部、² 日本原子力研究開発機構

フリーズドライ法により $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系ゲル、 $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系ゲルを低温合成した。また HLLW 模擬廃液（高レベル放射性模擬廃液）を添加したゲルも合成した。それらの溶出試験によりゲル試料の化学的安定性を調べた。また ゲル内のネットワーク構造について検討した。

キーワード：フリーズドライ法, HLLW, 高レベル放射性廃液, 固化

1. 緒言

高レベル放射性廃液のガラス固化は、現行法ではガラス成分と高レベル放射性廃液成分を混合し、 1000°C 付近まで加熱し、その熔融体を急冷して合成する。そのため、揮発性が高い成分や易分解性成分は固定化することは困難である。そこで、高レベル放射性廃液とネットワーク形成成分を含む溶液を混合し、加水分解後、真空凍結乾燥（フリーズドライ法、以下 FD 法と示す。）で水分を除去することで、高レベル放射性廃液成分を固定化するプロセスを開発した。今回は、FD 法により HLLW 模擬廃液を $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系ゲル、 $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系ゲルに固定化した。その構造、化学的安定性について検討を行った。

2. 実験方法

アルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、遷移金属イオン、希土類金属イオン、貴金属イオンなどを含む溶液を HLLW 模擬廃液として用いた。HLLW 含有 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系ゲルの調製については、所定量の HLLW 模擬廃液と 2M 硝酸アルミニウム溶液を混合した後、2M メタケイ酸ナトリウム溶液を所定量滴下した。混合物の pH が 6~7 になるように水酸化ナトリウムまたは硝酸溶液を加え、ゲル状物を得た。HLLW 含有 $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系ゲルの調製については、2M 硝酸鉄 (III) 溶液を用いて同様に調製した。得られたゲル状物を液体窒素で急冷し、真空凍結 (FD) 乾燥後、真空下で 200°C 2 時間加熱した。得られた固化物を水洗し、風乾して試料を得た。得られた試料の構造については X 線回折 (XRD)、X 線吸収端微細構造測定 (XAFS) などによって検討を行った。化学的安定性については、浸出速度試験^[1]を行った。試料組成については、SEM-EDX 分析により、また洗浄液、溶出液内の金属イオン濃度については ICP-AES 分析などにより調べた。

3. 結果および考察

XRD 測定により HLLW 含有 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系ゲル試料および HLLW 含有 $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系ゲル試料は非晶質であることが明らかとなった。また SEM-EDX によりゲル試料内に模擬 HLLW 溶液成分が確認され、ゲル試料に固定化されていることが明らかとなった。洗浄液の ICP-AES 分析より、アルカリ金属イオン以外の金属イオンは大部分が固定化されていることが明らかとなった。また 90°C 7 日間の浸出速度試験において、HLLW 模擬廃液成分の希土類金属イオン、貴金属イオンはほとんど溶出せず、ゲル試料内に安定に固定化されていることが明らかとなった。本研究は 中部電力との共同研究「フリーズドライ法を用いた放射性廃液の低温ガラス固化プロセスの創生」の一環として行われた。

参考文献

[1] ASTM C1285, ASTM International, West Conshohocken, PA, 2008.

*Akihiko Kajinami¹, Sou Watanabe²

¹Kobe Univ., ²Japan Atomic Energy Agency