

夾雜元素の混入が鉄リン酸ガラスの固化体形成に及ぼす影響の検討

Study on the performance of nuclides contamination in the iron phosphate glass

*毛利 雅裕¹, 茶木 孝仁¹, 新井 剛², 佐藤 史紀³, 斎藤 恭央³

¹芝浦工業大学大学院, ²芝浦工業大学, ³日本原子力研究開発機構

抄録：使用済み核燃料再処理施設から発生する低レベル放射性廃液の固化処理方法として、廃液成分中に含まれるリンを固化体骨格に利用可能な鉄リン酸ガラスに着目した。本研究では、廃液中に含まれる核分裂生成物や腐食生成物の内、Pd 及び Mo が固化体形成に及ぼす影響を検討して明らかにした。

キーワード：鉄リン酸ガラス, 放射性廃棄物, 夾雜元素, 溶融ガラス化

1. 緒言

使用済み核燃料再処理で用いられる溶媒抽出剤のリン酸トリプチル(TBP)の再生には、炭酸ソーダ溶液や苛性ソーダ溶液を用いるため、リン酸塩やナトリウム塩等を多含する放射性廃液が発生する。そのためセメント固化法でこの廃液を処理する場合、リン酸塩やナトリウム塩によりセメント凝固反応が阻害され、廃棄物充填率の低下が懸念される。そこで筆者らは、本廃液に含有するリンを固化体骨格として利用可能な鉄リン酸ガラスによるガラス固化処理法について検討を重ねている。既往の研究成果より、鉄リン酸ガラスは Na を高充填可能であることが明らかとなった^[1]。しかし、廃液に含まれる種々の核分裂生成物や腐食生成物等(以下、夾雜元素)が固化体形成に及ぼす影響についての検討は未だ不十分である。本発表では、低レベル放射性廃液に含有する夾雜元素が鉄リン酸ガラス固化体の形成に及ぼす影響について詳密に検討した。

2. 実験方法

鉄リン酸ガラスの作製には、酸化鉄、りん酸二水素アンモニウム、硝酸ナトリウムを用いた。また、夾雜元素には、高レベル放射性廃液のガラス固化で影響を及ぼすことが明らかとなっている Mo 及び Pd を選定した^[2]。これらを mol 比で Fe : P : Na : M(夾雜元素) = 1.0 : 1.5 : 1.0 : 0.01-0.1 となるようにメノウ乳鉢で十分に混合した。混合粉末(約 10 g)をアルミナ坩堝(容量: 20 cm³)に移し入れ、マッフル炉にて昇温速度 5 °C·min⁻¹で 1100 °C まで加熱後、3 時間保持し室温で放冷することにより夾雜元素を含む鉄リン酸ガラス(固化体試料)を得た。以下、作製した固化体試料に添加した夾雜元素の Fe に対する mol 比率で M_0.1 等と略記する。得られた固化体試料は、粉碎後、X 線回折装置(XRD)を用いて XRD 分析を行い、検出された結晶ピークは統合粉末 X 線解析ソフトウェア(PDXL)を用いて同定を行った。

3. 実験結果と考察

Fig.1 に Pd_0.01-0.1 及び Mo_0.01-0.1 の XRD 分析結果を示す。Fig.1 より、Pd を添加した固化体試料では鉄リン酸ガラス構成元素由来の結晶($\text{Fe}_2\text{Na}_3(\text{PO}_4)_3$)及び夾雜元素由来の結晶(Pd)が検出された。Pd の熱的挙動として、熱分解が開始されてから、800 °C 付近までに PdO に酸化され、その後 1000 °C までの加熱で金属 Pd に還元されることが報告されている^[3]。本試験でも Pd は溶融ガラス中に金属として存在し、急冷後もその形態で残存したものと考えられる。 $\text{Fe}_2\text{Na}_3(\text{PO}_4)_3$ については、生成された各夾雜元素由来の結晶が溶融ガラス中で他の構成元素の核形成を促進したため、急冷時に析出したと考えられる。また、Pd_0.01 は非晶質を示すハローパターンが確認されているため、ガラス化していると考えられる。一方、Mo を添加した固化体試料では何れも結晶ピークが検出されたが、結晶ピークを同定することが出来なかった。Mo を添加したホウケイ酸ガラスにおいて、Mo 由来の結晶の析出が報告されている^[2]。そのため、鉄リン酸ガラスにおいても同様の結晶が析出した可能性が示唆された。本会では、鉄リン酸ガラスの固化体形成に影響を及ぼした Pd 及び Mo に対し、結晶の生成を抑制する元素の調査を行ったので報告する。

4. 参考文献

- [1] 茶木孝仁ら：日本原子力学会 2016 年 秋の大会 予稿集 1F-14, (2016)
- [2] 次世代燃料サイクルのための高レベル廃液調整技術開発：
<https://www.jst.go.jp/nrd/result/h23/pdf/p13.pdf>
- [3] 株式会社 リガク熱分析事業部：“TG-DTA 測定データ集, (2010)

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「平成 29 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。

*Masahiro Mouri¹, Takahito Chaki¹, Tsuyoshi Arai², Fuminori Sato³, Yasuo Saito³

¹Shibaura Institute of Technology Graduate school, ²Shibaura Institute of Technology, ³Japan Atomic Energy Agency

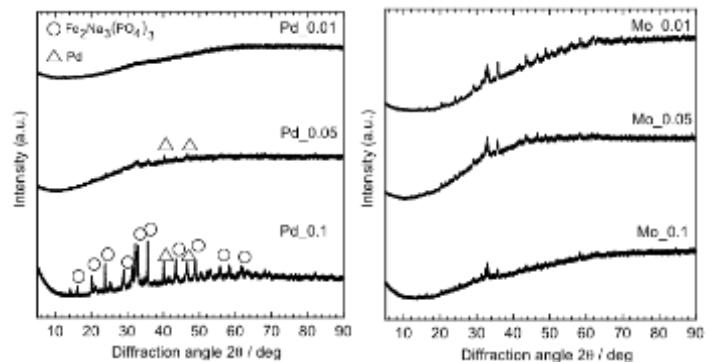


Fig.1 XRD pattern of Pd_0.01-0.1 and Mo_0.01-0.1