

高レベル放射性廃物中の不溶解残渣（白金族合金）の構造解析

Structural analyses of insoluble residue (noble metal precipitation) in high-level radioactive liquid waste

*坂下 航輝¹, 松浦 治明¹, 田中 征志朗¹, 佐藤 勇¹, 多田 晴香²

¹ 東京都市大学, ² 株式会社 IHI

高レベル放射性廃液に含まれる白金族元素は合金の形態で含まれており、合金の組成や構造によって、高レベル放射性廃液を処理するためのガラス化反応に影響を及ぼすと考えられる。このため、本研究では白金族元素の合金を作製し、合金の模擬性、化学形態及び構造に関する情報を得るため、EXAFS 測定を用いて Mo、Ru、Rh 及び Pd 原子周辺の原子の存在状態を評価した。

キーワード：高レベル放射性廃棄物、核分裂生成物、不溶解残渣、ガラス固化、X線吸収微細構造

1. 緒言

高レベル放射性廃液中に含有される不溶解残渣（白金族合金）は、ガラス固化の際に、ガラス熔融炉内で、オフガス系への移行による配管の閉塞や白金族合金の凝集・沈降によるガラス流下性の悪化など、種々の問題を引き起こす可能性がある。我々の研究チームでは、ここまで将来的に発生する可能性のある高燃焼度化燃料及び MOX 燃料に含まれる白金族合金の組成検討、及びこれら合金の酸化蒸発挙動を調査することで、白金族合金がガラス固化時にどのような影響を及ぼすか検討した。ここでは、複数の手法で作製した白金族合金（模擬ファイン相）を対象とした EXAFS 構造解析を系統的に実施し、白金族合金中の Mo、Ru、Rh 及び Pd 原子の局所構造を明らかにすることにより、合金の結晶構造に関する知見を得ることを目的とした。

2. 実験方法

白金族合金組成は高燃焼度燃料ベースで酸化蒸発挙動の影響が出やすい Mo をパラメータにし、文献調査等[1]により決定した。合金作製では定量混合粉を圧粉体とし、アーク溶解法（Ar 雰囲気）にて合金化、エポキシ樹脂に埋め込み研磨した。以下、合金試料を Arc①、Arc②及び Arc③と示す（組成は Fig.1(a)に示す）。これら試料は高エネルギー加速器研究機構、BL27 にて Mo-K、Ru-K 吸収端について SSD 検出器を用いた蛍光法による EXAFS 測定を実施した。

3. 結果と考察

各種測定試料の XRD、EXAFS 測定の結果を Fig.1(a, b)に示す。合金試料の XRD 測定 Fig.1(a)を見ると、リファレンスデータの金属のピークに対して Arc①及び②の結晶構造パターンは良い一致を見た。一方、Arc③の結晶構造パターンは若干、低角側にピークがシフトした。以上の結果から、Mo の割合が増すにつれて、結晶構造が変化するという Mo の依存性が確認された。合金試料の EXAFS 構造関数 Fig.1(b)では、Mo 金属単体に見られるその第一近傍の Mo-Mo 相関を示す 2.5Å 付近のピークが認められた。しかし、Mo の割合が高い Arc③のピークの大きさは他のピークより小さく、これは六方最密構造である合金が Mo の割合が高いことで歪み、ピークが小さくブロードになったと考えられる。Ru 近傍の EXAFS 構造関数は、Ru 金属単体との比較によりその第一近傍の Ru-Ru 相関を示す 2.4Å 付近のピークが合金 3 試料とも認められた。よって、Ru 近傍の EXAFS 構造関数は変化せず、Ru 配置における影響が少ないことを示唆している。今後は、合金の断面に着目し、板状試料を作製し、それらを用いた酸化・蒸発試験を行い、これらの挙動におけるメカニズムに資する情報を取得する。

本研究は、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。

参考文献

(1) 服部 亮平 他 日本原子力学会「2020 年秋の大会」2B16

*Koki Sakashita¹, Haruaki Matuura¹, Seishiro Tanaka¹, Isamu Sato¹ and Haruka Tada² ¹Tokyo City University., ²IHI Corporation .

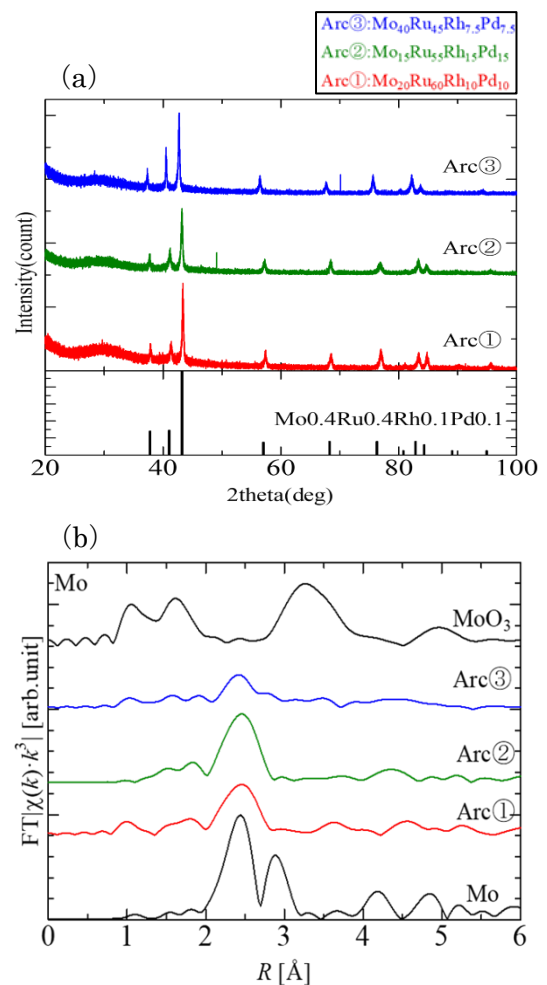


Fig.1 合金試料に対する(a)XRD
スペクトル(b)EXAFS 構造関数