



高硝酸ナトリウム廃液対象候補材料ガラス中 模擬廃棄物周りの局所構造解析

田治見 祐里、椎名 慶、松浦 治明
東京都市大学

キーワード：硝酸ナトリウム、低レベル放射性廃棄物、EXAFS、亜鉛、チタン

1. 背景と研究目的

国内の再処理施設で発生する低レベル廃棄物は焼却、圧縮、セメント固化が一般的であり、ガラス固化は導入されていない。比較的放射能レベルの高い低レベル廃棄物に対して減容性が高く、より安定した廃棄体とするためのガラス固化技術の基盤を確立することは重要である [1]。再処理施設から出る高硝酸 Na 廃液を対象としたガラスとしてソーダボロシリケートを候補として検討し、TiO₂、ZnO、ZrO₂ 添加によりいずれかの成分が化学的安定性を向上させることを確認できた。化学的耐久性試験を行ったところ TiO₂ を添加させると溶出速度が下がり、化学的安定性が大きく向上しているのに対し、ZrO₂ を添加させるとガラスの溶出量が増え、ガラス構造を不安定にさせる効果をもたらすことが予想される。

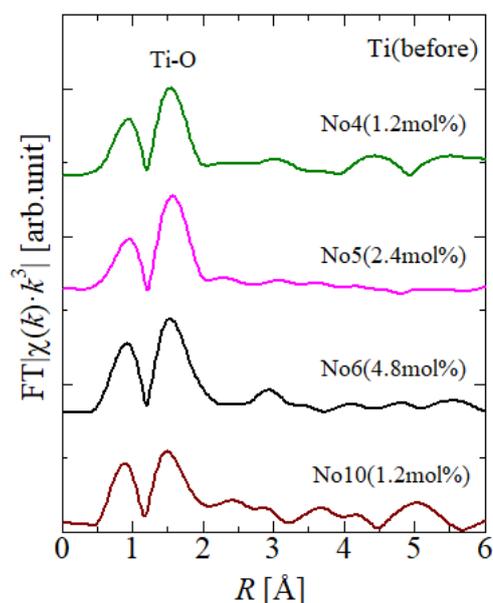
本研究では、TiO₂、ZnO、ZrO₂ の内どの成分が化学的安定性向上に寄与しているのか明らかにする目的で、EXAFS を用いて Ti、Zn 原子周りの局所構造解析を行った。

2. 実験内容

Na₂O-Al₂O₃-B₂O₃-CaO-SiO₂ をベースに TiO₂、ZnO、ZrO₂ を決められた割合で添加し、1100°C、1h 熔融を 2 回繰り返して得た。これらの試料をカプトン窓を持つワッシャーの丸孔に詰めた状態で、あいちシンクロトロン光センター BL5S1 にて Zn の K 吸収端を用いた透過法、そして Ti の K 吸収端を用いた蛍光法による EXAFS 測定を行った。一部の試料はクイック EXAFS による測定を実施した。cubic spline 法を用いて得られた EXAFS 振動をフーリエ変換することで構造関数を得、さらに EXAFS の式に基づき Fitting により構造パラメータを導いた。

3. 結果および考察

図 1 に測定によって得られた TiO₂ 含有量の異なるガラス (No.4-6)、および ZrO₂ も 1.2mol% さらに添加されたガラス (No.10) の Ti 周りの構造関数を示す。添加された Ti が 2.4mol% を超えて 4.8mol% になると第一近傍の Ti-O 相関が短距離にシフトし、ZrO₂ が添加されるとさらに短距離にシフトしており、この事実は ZrO₂ 添加により化学的安定性が阻害される事実と符合する。またそれらのガラスの浸漬試験後の試料の測定結果は Ti-O 距離の濃度依存性が消失し、第二近傍の相関が表れているという事実は、Ti の添加が化学的安定性に寄与する機構の解明に役立て得る。



4. 参考文献

[1] 鬼木俊郎, 鍋本豊伸, 福井寿樹, 「原子力施設より発生する低レベル放射性廃棄物のガラス固化技術」 IHI 技報 Vol.56 No.4 (2016)

図 1 チタンモル濃度を変化させたソーダボロシリケート中のチタンの構造関数 No.10 のガラスの Zr は 1.2mol%