



XAFS による Al 含有酸化物ガラスの構造解析

梶並 昭彦
神戸大学大学院工学研究科

キーワード : ケイ酸塩ガラス、リン酸塩ガラス、フリーズドライ法

1. 背景と研究目的

放射性廃棄物の処理において、種々の材料に固定化する方法が検討されている。廃棄物処理模擬元素イオンを Al、Si、P の酸化物から構成されるガラスを用いて固定化する。今回は、上記イオンを含有する水溶液を真空凍結乾燥させることにより、ゲル状粉末（ガラス状物質）を合成した。そのゲル内の Al の周辺構造の組成変化について XAFS 測定により検討をおこなった。

2. 実験内容

2M 硝酸アルミニウム ($\text{Al}(\text{NO}_3)_3$) 水溶液に 2M メタケイ酸ナトリウム (Na_2SiO_3) 水溶液または 2M リン酸 (H_3PO_4) 水溶液を 所定の割合で混合し、硝酸または水酸化ナトリウム溶液で 所定の pH に調整することによりゲル化した。それを真空凍結乾燥により脱水縮合し、真空加熱・洗浄し、ゲル状粉末を得た。今回は、アルミケイ酸塩ゲルおよびアルミノリン酸塩ゲルを凍結乾燥法で合成した。それらの試料の Al の K 吸収端について 真空下で全電子収量法 (TEY) 部分蛍光収量法 (PFY) により XAFS 測定を行った。

3. 結果および考察

図 1 には、Al と Si のモル比が 1 : 2、1 : 1、2 : 1 であるアルミノケイ酸ゲル（それぞれを AlSi12、AlSi11、AlSi21 と示す。）の XANES スペクトルを示した。Al12 は 1566 eV 付近に鋭いエッジが見られたが、AlSi11、AlSi21 については不明瞭になり、1568 eV 付近にブロードなピークが現れた。図 2 には Al と P のモル比が 1 : 2、1 : 1、2 : 1 であるアルミノリン酸ゲル（それぞれを AlP12、AlP11、AlP21 と示す。）の XANES スペクトルを示した。一見してアルミノケイ酸ゲルとはパターンが異なることがわかる。AlP12 において 1566 eV 付近にショルダーが見られたが、1568 eV 付近に明確なピークが見られた。AlP11、AlP21 については 1568 eV 付近にピークは減少し、1566 eV 付近のピークが顕著に現れた。アルミノケイ酸ゲルとは異なる挙動を示した。

以上より、アルミノケイ酸ゲルおよびアルミノリン酸ゲル内の Al の電子状態（周辺構造）は、組成により顕著に変化していることが明らかとなった。同ゲル内の Si、P の周辺構造は組成により顕著な変化が見られなかったことから、Al の状態変化とゲルの性質に関連があると思われる。

本測定は 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」の資金提供を受けて行われた。

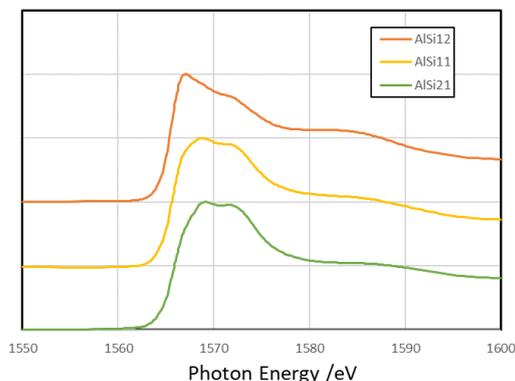


Fig.1 XANES of Aluminosilicate gel

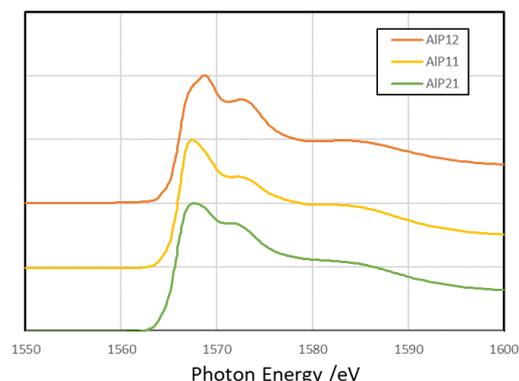


Fig.2 XANES of Aluminophosphate gel