



# XAFS による Fe 含有酸化物ガラスの構造変化に関する研究

梶並 昭彦

神戸大学大学院工学研究科

キーワード：鉄ケイ酸塩ゲル、鉄リン酸塩ゲル、フリーズドライ法  $\gamma$ 線照射

## 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。これまで、高レベル廃棄物 (HLW) 模擬元素イオンを鉄ケイ酸塩ゲル、鉄リン酸塩ゲル内に固定化する方法を開発しており、合成したゲル内の Fe の周辺構造の組成変化について FeK 吸収端の XAFS 測定により検討をおこなった。今回は、放射線への耐久性を調べるために、それぞれのゲル試料に  $\gamma$  線を照射し、照射による Fe の電子状態および周辺構造の変化について検討を行った。

## 2. 実験内容

所定量の高レベル廃棄物 (HLW) 模擬溶液を 2M 硝酸鉄 ( $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ ) 水溶液に加え、その混合溶液に 2M メタケイ酸ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ) 水溶液または 2M リン酸 ( $\text{H}_3\text{PO}_4$ ) 水溶液を所定量加えた。硝酸または水酸化ナトリウムにより pH を調整しゲルを得た。そのゲルを真空凍結乾燥法により脱水、縮合し、真空加熱、洗浄することにより、高レベル廃棄物 (HLW) 模擬元素イオンを含む鉄ケイ酸塩ゲル (FeSi ゲル) および鉄リン酸塩ゲル (FeP ゲル) をそれぞれ合成した。所定量の試料を純水に入れ、量子科学技術研究開発機構高崎量子応用研究所 Co60 照射施設において、所定期間  $\gamma$  線を試料に照射した。照射後、濾過物を乾燥後、窒化ホウ素で希釈し、加圧することにより、錠剤状試料を作製した。これらの試料の Fe の K 吸収端について透過法により BL5S1 ビームラインにて XAFS 測定を行った。

## 3. 結果および考察

図 1 には、模擬 HLW を含む Fe と Si のモル比が 2 : 1、1 : 1、1 : 2 である鉄ケイ酸塩ゲル (それぞれを HLW-FeSi21、HLW-FeSi11、HLW-FeSi12 と示した。) および模擬 HLW を含む Fe と P のモル比が 2 : 1、1 : 1 である鉄リン酸塩ゲル (それぞれを HLW-FeP21、HLW-FeP11 と示した。) の  $\gamma$  線照射前後の XANES を示した。(照射後の試料は、それぞれ GHLW-FeSi21、GHLW-FeSi11、GHLW-FeSi12、GHLW-FeP21、GHLW-FeP11 と示した。)

これらの XANES は  $\gamma$  線照射前後で顕著な変化は見られなかった。すなわち いずれの試料も  $\gamma$  線照射による鉄の酸化数などの変化は確認されなかった。また EXAFS から求めた動径構造関数においても、Fe 周辺構造はいずれも  $\gamma$  線照射前後で大きな差は見られず、 $\gamma$  線に対して構造的に安定であることが明らかとなった。前回 (実験番号：202204057) の Si、P の周辺構造の結果も合わせて検討すると、鉄ケイ酸塩ゲル、鉄リン酸塩ゲルは、 $\gamma$  線に対して構造的に安定であり、高レベル廃棄物を長期固定化するのに適した材料であることがわかった。

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。

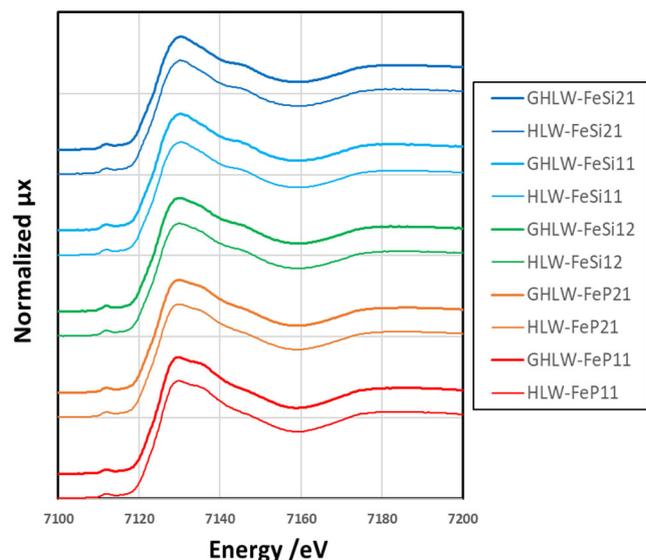


Fig.1 Variation of XANES of HLW-FeSi and HLW-FeP gels by  $\gamma$  ray irradiation.