

次世代再処理ガラス固化技術基盤研究(その2)

～高充填マトリックスの開発～

多田晴香(日本原燃), 兼平憲男(日本原燃), 矢野哲司(東工大), 松岡純(滋賀県大), 菅原透(秋田大)



1. はじめに

- 高レベル放射性廃棄物に含まれる核分裂生成物等をより多く、安定的に取り込むことができれば、ガラス固化体の**発生本数の低減**が可能となる
- ガラス固化体中の廃棄物成分の量が**2～3割増加**することにより、**約8,000～約12,000本のガラス固化体の発生本数の低減**および**最終処分場面積の縮減**が期待できる
- 従来のホウケイ酸ガラスの組成比を変更することによる**高充填化を検討**することし、目標を**廃棄物充填率***(は現行の12wt%から**20～26wt%**への増加としている) ※Na濃度を除く

2. 高充填マトリックス開発における課題

- 白金族元素の凝集・沈降の促進
⇒ガラスの電気抵抗低下などによるガラス溶融炉運転性低下
- イロ-フェーズ(YF)と呼ばれる結晶相の発生**
⇒YPIは可溶性であるため、**耐水性が低下**
⇒**マトリックス開発による対策検討**



YF主成分
・モリブデン酸塩
・クロム酸塩 等
ガラス中YFの外観

3. 高充填マトリックスの開発の概要

- 従来のホウケイ酸ガラスの組成をベースとしての組成比を変更することで高充填化を検討
- 高レベル放射性廃液に含まれる多種多様な各元素の影響を、**単純化組成(5元素)**、**簡易化組成(9元素)**及び全模擬成分を含む**模擬ガラス(30元素)**と段階的に**高充填マトリックスを探索**
- 以下の観点から候補組成の評価・探索を実施
 - YP発生の抑制
⇒**YPの主成分であるMoの溶解性の向上(モリブデン酸塩の析出抑制)**
 - 処分上の観点から必要となる耐水性
⇒**現行組成と同程度の浸出率の維持**

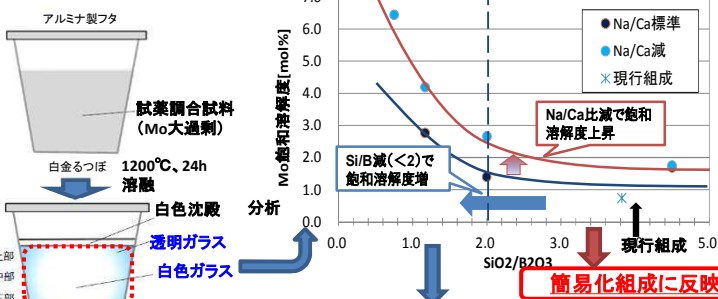
マトリックス組成	単純化組成	簡易化組成	模擬ガラス(全成分)
ガラス原料成分	Si, B, Na, Ca	Si, B, Na, Al, Ca, Li, Zn(計7元素)	全ガラス成分元素 Si, B, Na, Al, Ca, Li, Zn(計7元素)
廃棄物成分	Mo	Mo, La	全模擬廃液成分 Mo, La, Ru, Rh, Pd等(計23元素)
研究概要	単純化したマトリックスのMo飽和溶解度から、マトリックス組成の傾向を探索	浸出率を考慮しつつMoに着目したマトリックスを探索	コンビナトリアル手法による廃棄物成分を考慮してガラス化状態を調査し、マトリックス組成を探索 候補マトリックスの耐水性評価から絞込む
取得データ	・Mo飽和溶解度 ・熱力学的定式化	・ガラス化状態 ・簡易浸出率	・ガラス化状態 ・浸出率
実施機関	秋田大学	滋賀県立大学	東京工業大学 JNFL

試験結果を適宜展開・反映

4. 試験概要及び成果

4.1 単純ガラス組成でのMoO₃飽和溶解度の調査

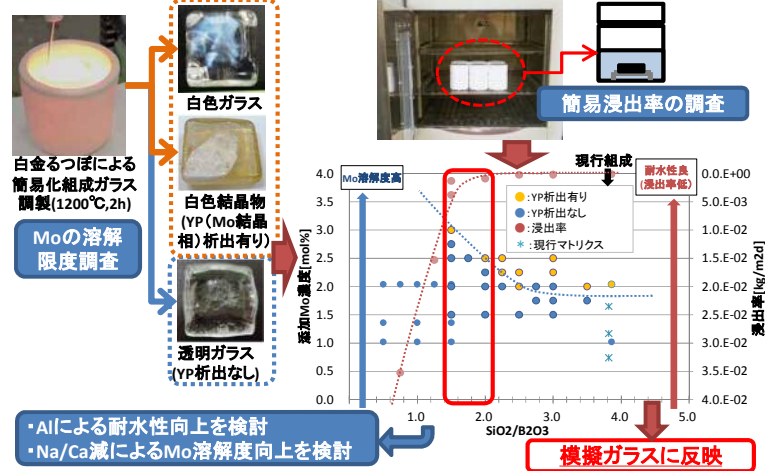
- Mo大過剰として作製したガラス状態から飽和溶解度を算出
- SiO₂/B₂O₃を現行の3.8から2以下にすることで飽和溶解度上昇**
⇒**簡易化組成に反映**
- Na₂O/CaOを現行の1/3に減少することで飽和溶解度上昇 ⇒**次年度反映**



実験結果をFACTSageへ組み込む
(SiO₂-MoO₃ 融体間の熱力学的相互作用の最適化)
他元素(希土類)の影響を評価

4.2 簡易化組成におけるMoO₃溶解度/耐水性の調査

- Moの溶解度と耐水性、両方の観点から調査を実施
- 単純化組成と同様にSiO₂/B₂O₃は2以下で溶解度上昇**
- 耐水性はSiO₂/B₂O₃を1.5以下で急激に低下**
⇒**組成の候補範囲としては1.5 < SiO₂/B₂O₃ < 2**
⇒**模擬ガラスとしてのガラス化状態・耐水性による組成を探索に反映**

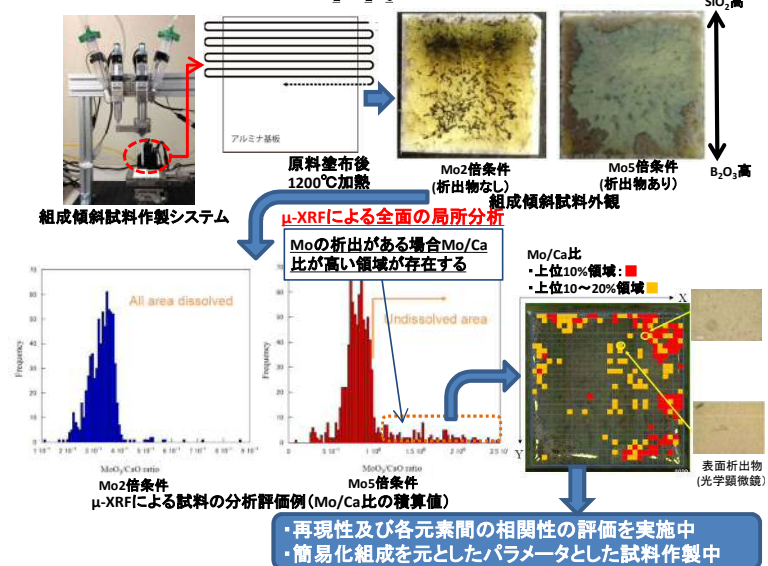


Alによる耐水性向上を検討
Na/Ca減によるMo溶解度向上を検討

模擬ガラスに反映

4.3 コンビナトリアル手法による模擬ガラスのガラス化範囲の探索

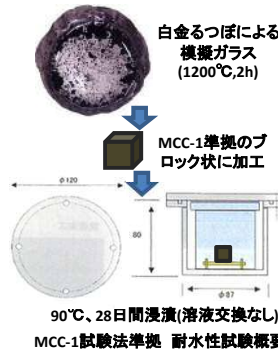
- コンビナトリアル手法による組成傾斜をもつ模擬ガラス試料から、組成変動による各構成元素間の相関性を評価し、高充填マトリックスを探索
- 簡易化組成による成果を元に、SiO₂/B₂O₃変化影響を検討中



再現性及び各元素間の相関性の評価を実施中
簡易化組成を元としたパラメータとした試料作製中

4.4 候補マトリックスの耐水性評価

- 耐水性の観点から各研究より得られた候補マトリックスの絞り込みを実施
- 本年度は簡易化組成から得られた候補マトリックスを対象に実施予定



酸化物(wt%)	対象マトリックス(一部)		
	現行組成	S104C (Si/B減)	S106C (Si/B減, Al増)
SiO ₂ /B ₂ O ₃ *	3.8	1.8	1.8
SiO ₂	50.9	32.4	29.8
B ₂ O ₃	15.4	21.4	19.7
Na ₂ O	6.6	9.3	9.2
CaO	3.2	2.4	2.3
Al ₂ O ₃	5.4	3.9	8.5
ZnO	3.2	2.4	2.3
Li ₂ O	3.2	2.4	2.3
廃棄物成分	12.0	26.0	26.0
合計	100.0	100.0	100.0

簡易化組成の結果等を元にSiO₂/B₂O₃比減及びAl添加の影響を評価
耐水性試験の結果から候補マトリックスを選定し、次年度においてその他基本物性(粘性等)を取得、評価

5. まとめ

- 単純化・簡易化組成においてSiO₂/B₂O₃を現行の3.8から1.5～2にすることで耐水性を保ったままMoの溶解度が向上する傾向が得られた
- 得られた結果を元に全廃棄物成分を含む模擬ガラスのガラス化状態・耐水性を評価し、高充填マトリックスとしての候補組成を選定する