



溶融ガラス中パラジウムの挙動解明

加藤 瑞希¹, 千葉 紗香¹, 佐藤 勇¹, 多田 晴香², 松浦 治明¹

¹ 東京都市大学, ² 株式会社 IHI

キーワード：ファイン, 高レベル放射性廃棄物, ガラス固化体, パラジウム

1. 背景と研究目的

使用済み核燃料の再処理工程において、発生した3種の廃液（高レベル濃縮廃液・不溶解残渣廃液・アルカリ濃縮廃液）を混合した高レベル廃液は、ホウケイ酸ガラスとともにガラス溶融炉に供給され、ガラス固化体を作製している。今後、燃料の仕様・照射条件の変化に伴う廃液組成等の変化が予測されるため、これに向けたガラス固化体製造プロセスには柔軟な対応が必要である。この条件変化は不溶解残渣に多く含まれる白金族合金の組成にも影響を与え、ガラス溶融炉内でのイエローフェーズと呼ばれるモリブデン酸塩等の分相の発生、ルテニウムの蒸発挙動等に影響が出る可能性がある。しかし、ホウケイ酸ガラス、廃液及び白金族合金を加熱した際の Mo、Ru、Rh 及び Pd 原子の局所構造に関する知見は多くない。そこで白金族合金、廃液及びガラスと加熱した際の原子の局所構造を明らかにすることにより、合金の酸化蒸発挙動の把握のため、ガラス溶融炉の上部と中心部を模擬した加熱処理を行い、合金の構造変化に関する知見を得ることを試みた。

2. 実験内容

白金族合金組成は予備検討を元に選定した。合金は、単体金属の混合粉を圧粉体とし、アーク溶解法（Ar 雰囲気）にて合金化したものを使用した。以下 Mo:20, Ru:60, Rh:10, Pd:10 wt% の組成比の合金試料を R6-3 と示す。また、合金、ガラス及び廃液成分乾燥物の加熱試験は、プラチナ製のボートを使用して廃液成分乾燥物とガラスビーズの比率を 2:8 になるように秤量し、廃液成分乾固物の上にバルク状合金を乗せ、ガラスビーズをかぶせるように保持し、真空加熱炉を用いて Ar+Air による酸素濃度 5% 到達温度 1150°C、酸素濃度 20% 到達温度 900°C、それぞれ昇温速度 10°C/min、等温保持時間 3 時間の条件にて供されたものである。作製した試料のガラス化が成功しているかの確認として加熱後の試料に対してバルク状態であいちシンクロトロン光センター、BL11S2 にて Pd-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. 結果および考察

図 1 及び図 2 に今回の測定で得られた Pd 近傍に関する XAFS 分析の結果を示す。EXAFS 構造関数に関して、酸素濃度 20% 到達温度 900°C 試料では金属の Pd と似た局所構造を確認した。しかし酸素濃度 5% 到達温度 1150°C 試料では有意な局所構造を確認することができなかった。しかし XANES スペクトルより 1150°C 試料は 900°C 試料に近い吸収スペクトルの形状を示しており、900°C 試料と同様に金属の Pd に近い構造であると考えられる。

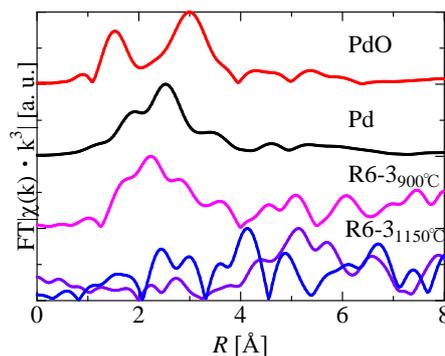


図 1 ガラス、合金及び廃液と加熱した Pd 近傍の EXAFS 構造関数

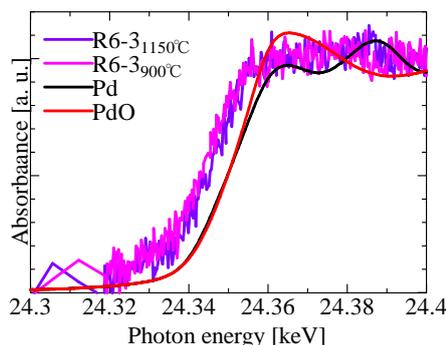


図 2 ガラス、合金及び廃液と加熱した Pd 近傍の XANES スペクトル

謝辞 本報告は、経済産業省資源エネルギー庁「令和 5、6 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(JPJ010599)」の成果の一部である。