

課題番号 : 2021A-E04
利用課題名 (日本語) : 模擬放射性廃棄物固化ガラス中の元素の化学状態と崩壊熱による加温の影響調査
Program Title (English) : Investigation on the chemical states of elements in nuclear-waste glasses and the effects of temperature due to decay heat
利用者名(日本語) : 矢野哲司¹⁾, 岸 哲生¹⁾, 富田夏奈¹⁾, 黒田健太¹⁾, 廣田 翔¹⁾, 齋藤瑞登¹⁾, 角野裕之¹⁾, 毛利恵聖久¹⁾, 松村大樹²⁾
Username (English) : Tetsuji Yano¹⁾, Tetsuo Kishi¹⁾, Kana Tomita¹⁾, Kenta Kuroda¹⁾, Kakeru Hirota¹⁾, Mizuto Saito¹⁾, Hiroyuki Kadono¹⁾, Enoku Mouri¹⁾, Daiju Matsumura²⁾
所属名(日本語) : 1) 東京工業大学物質理工学院, 2) 日本原子力研究機構
Affiliation (English) : 1) Tokyo Institute of Technology, 2) JAEA
キーワード : 模擬放射性廃棄物固化ガラス, 崩壊熱, XAFS, シリケートガラス

1. 概要 (Summary)

ガラス材料は高レベル放射性廃棄物元素を固化するためのマトリックスとして、充填性能、化学的耐久性および放射性廃棄物元素が発する崩壊熱による長期間加熱に対する熱的安定性においても高い性能が求められている。ガラスは本来、熔融急冷法によって作製され、凍結された構造を有していることから、ガラスの熱に対する状態変化を総括的に理解するためには様々な温度下に置かれたガラスについては、内包されている元素の局所構造を検出し、加温条件に対するガラス中の(模擬)放射性元素の化学状態を知る基礎的知見が必要である。本研究では、放射性廃棄物ガラスであるボロシリケートガラスを含めた種々のシリケートガラスや、マイナーアクチノイドなどの長寿命で高い崩壊熱を発する元素の固定化に適するように開発している新規ガラスマトリックスを対象に、構成、内包している種々の元素の局所構造をXAFS測定によって調査するとともに、開発を進めている高温XAFS測定の実験を開始して高温データの収集し、室温環境下との状態の違いや変化を含む情報を得た。

2. 実験(目的,方法)(Experimental)

本実験のXAFS測定はすべて、放射光科学研究施設BL14B1を用いて行なった。試料には、Ni, Mo, Zr, Sr, Nd, La イオンを添加した種々のシリケートガラス(アルカリ/アルカリ土類アルミノシリケート, アルカリボロシリケートなど)と、長寿命放射性元素固定化用新規マトリックスガラス(SrO-Al₂O₃-ZrO₂系ガラス)を用意した。シリケートガラスは通常の熔融急冷法で、

新規マトリックスガラスは気中熔融法により作製した。これらのうち、MgO-Al₂O₃-SiO₂ガラス、Na₂O-B₂O₃-SiO₂ガラスについては、Ni K-edge 高温 XAFS 測定を実施し、最高温度 1400°C までの高温融液の状態の測定を行うことができた。そのほかの試料についても試料で透過法を用いた。

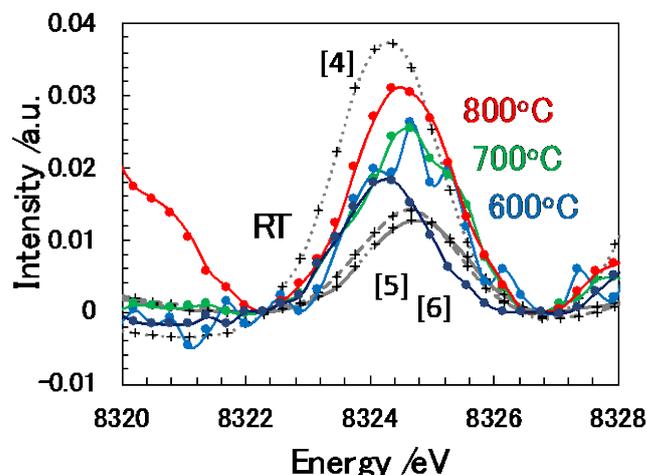


図1 ボロシリケートガラスについて測定した高温 Ni K-edge XAFS 測定結果。Pre-edge 部分のスペクトルの温度依存性を示す。実線はサンプルのスペクトルを、破線・鎖線は4,5,6 配位の Ni を含む標準資料の室温スペクトルを示す。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

図1に高温XAFS測定により得たボロシリケートガラス中のNi²⁺ K-edgeのPre-edgeピークを示す。[4],[5],[6]は各配位数にあるNi²⁺標準試料から得たスペクトルである。温度の上昇とともに、Pre-edgeピークは強度を増加させ

