

ウラン含有模擬廃棄物ガラスの評価研究

永井崇之^a, 秋山大輔^b, 桐島 陽^b, 勝岡菜々子^a, 岡本芳浩^c, 佐藤修彰^d^a 日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所, ^b 東北大学多元物質科学研究所^c 日本原子力研究開発機構物質科学研究センター, ^d 東北大学原子炉廃止措置基盤研究センター

異なる組成のホウケイ酸ガラス粉末へウラン(U)化合物を添加し、溶融雰囲気等の作製条件を変えて U 含有ガラスを作製した。これら U 含有ガラス中の U 化学状態を XAFS 測定により評価した。

【研究目的】

使用済核燃料の再処理から発生する高レベル放射性廃液は、ホウケイ酸ガラス原料と混合溶融され、製造したガラス固化体は地層処分される。ガラス固化体の品質は、非放射性物質を用いて作製した模擬廃棄物ガラスを対象に機械的強度、化学的耐久性、ガラス構造解析等の評価が進められている。本研究は、実固化体に U が含まれることから、固化体用ガラス原料 PF798 組成を参考に U 含有ガラスを作製し、ガラス原料組成や作製条件によるガラス中の U 化学状態への影響把握を目的に実施した。

【実施内容】

U 含有ガラス作製に供したガラス原料は、PF798 組成へ Na₂O を加えた N10-798 や、N10-798 組成から Li₂O, CaO, ZnO 等を除いて調製した複数の組成 (Li,Ca,Zn,Al-free, 等) であり、U 化合物は、U₃O₈ と NaNO₃ から合成した Na₂U₂O₇ を用いた。作製手順は、ガラス原料と Na₂U₂O₇ を混合して黒鉛パンに入れ、Ar ガスを掃気しながら昇温して 1150°C で Ar-10vol.%H₂ 混合ガスに切り替え 4 h 保持し、冷却後に U 含有ガラス塊を回収した。次に、N10-798 や、N10-798 組成から CaO 又は ZnO を除いたガラス原料と Na₂U₂O₇ を混合して、Ar ガスを掃気しながら 1150°C まで昇温して 2 h 保持し、冷却後に U 含有ガラス塊を回収した。

作製した U 含有ガラス塊を対象に、U の L₃ 吸収端を XAFS 測定した (KEK・PF 課題番号 2021G600)。その結果、Ar-10vol.%H₂ 混合ガス雰囲気で作製したガラス中の U は、ガラス原料に関係なく 4 価状態であることを確認した (図参照)。また、Ar ガス雰囲気で作製したガラス中の U は 6 価状態に近いものの、蛍光法で XAFS 測定すると黒鉛パンに接したガラス表層の U が還元されており、ガラス原料組成による差が見られた。そこで、ZnO を含む U 含有ガラス中の Zn やガラス原料中の Si の K 吸収端を XAFS 測定した結果、ガラス中の ZnO 濃度によって Zn や Si の XANES スペクトル形状が変化することを確認した。

【代表的な研究成果】

日本原子力学会 2023 年春の年会において、異なる組成のガラス原料を用いて U 含有ガラスを溶融作製した結果、ガラス原料中の ZnO が U の化学状態に影響する可能性があることを報告した。

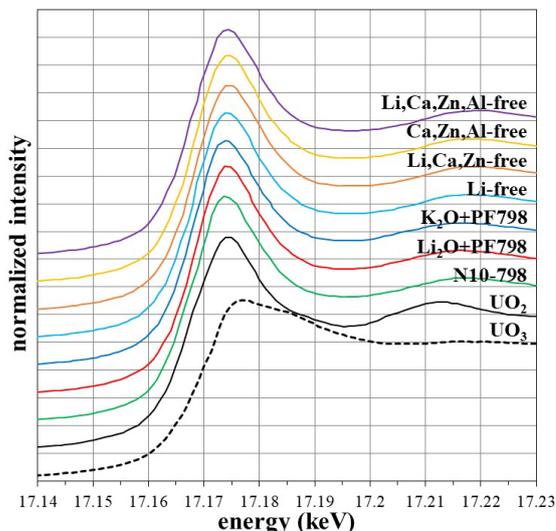


図 Ar-H₂ ガス雰囲気作製の U 含有ガラス中の U の L₃ 吸収端 XANES スペクトル