



鉄リン酸ガラスに含有される模擬廃棄物周りの局所構造解析

田治見 祐里¹、松浦 治明¹、渡部 創²

1 東京都市大学、2 日本原子力研究開発機構

キーワード：鉄リン酸ガラス、高レベル放射性廃液、EXAFS、セシウム

1. 背景と研究目的

我が国の使用済燃料の再処理には、湿式法を用いた方法が導入されているが、水を使用せず放射線損傷も少ない乾式法を用いる方法も以前より注目されている。しかし、長期間の電解によって核分裂生成物が蓄積された媒体を使用済み電解質（高レベル放射性廃棄物）として排出するためには、その処理が必要となる。乾式再処理から生じる高レベル放射性廃棄物をホウケイ酸ガラスに導入しようとする、廃棄物量が多くなることが課題である。そこで別種の廃棄物固化媒体として、廃棄物の高含有が期待できる鉄リン酸ガラスに注目した。核分裂生成物の一つであるジルコニウムは元来鉄リン酸ガラスとなじみにくいとされていたが、同じ核分裂生成物であるセシウムにより化学的な安定性が高まる傾向が見られた[1]。そこで本研究ではセシウムの局所構造が組成の変化によりどのように変化するかを確認するため EXAFS 測定を実施した。

2. 実験内容

$1\text{Cr}_2\text{O}_3\text{-}3(\text{CoO})_2\text{-}4.5\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}28\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-}65\text{P}_2\text{O}_5$ (in mol%) のベースガラスに ZrO_2 2 mass%、 Cs_2O を 2, 4, 8, 16 mass%、 ZrO_2 4 mass%、 Cs_2O を 0, 2, 4, 8, 16, 25, 40 mass% 外割添加したガラスを 1300°C 、2h 攪拌熔融し、急冷・徐冷して得た。これらの試料をカプトン窓を持つワッシャーの丸孔に詰めた状態で、あいちシンクロトロン光センターBL5S1にてCsの L_{III} 吸収端を用いた透過法によるEXAFS測定を行った。一部の試料はクイックEXAFSによる測定を実施した。cubic spline法を用いて得られたEXAFS振動をフーリエ変換することで構造関数を得、さらにEXAFSの式に基づきFittingにより構造パラメータを導いた。

3. 結果および考察

図1に測定によって得られた ZrO_2 が4 mass%の場合のCs周りの構造関数のCs濃度依存性を示す。Csが添加されることで第一近傍のCs-O相関が徐々に短距離にシフトする傾向が見て取れ、またその距離のシフト効果はCs濃度16 mass%を超えると顕著になった。これは別途実施したZr吸収端の測定によるZr近傍の構造の偏倚^{へんい}に関し、16 mass%までZr-Oの距離が揺らぎ、それを超えるとZr-O距離が不変になることと対照的である。これらの事実から、ジルコニウム近傍の構造へのセシウム添加の効果には、しきいの組成濃度の存在が示唆される。

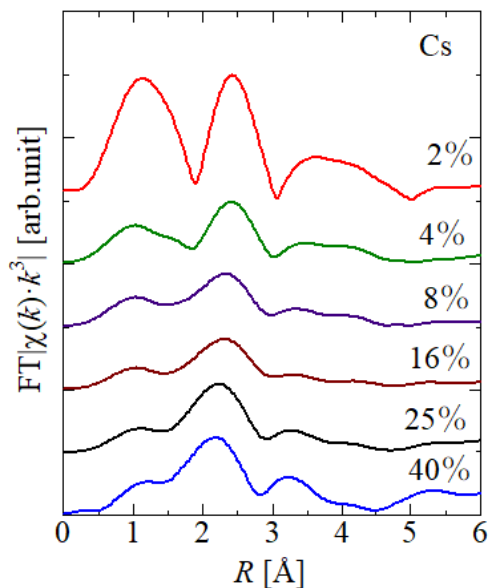


図1 セシウム重量濃度を変化させた鉄リン酸ガラス中のセシウムの構造関数
Zrは4重量%

4. 参考文献

[1] T. Yano, T. Kishi, Y. Nakata, H. Kofuji, M. Takeuchi, Proc. of ICG2015, Bangkok, 2015.