

プログラム名：核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化

PM名：藤田玲子

プロジェクト名：分離回収技術開発

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平成27年度

研究開発課題名：

ガラスの分相によるガラス固化体溶解技術のフィージビリティ研究

研究開発機関名：

東京大学

研究開発責任者

井上 博之

# I 当該年度における計画と成果

## 1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

長い期間にわたり高レベル放射性廃棄物を安定に保存するために開発されたガラス固化体は、化学的耐久性が高く、また、機械的特性にも優れている。本研究は、このガラス固化体を再融解して、新たなガラスを作製し、熱処理により相分離を起こさせて、熱水などを用いて溶出させることを目標とした。本研究では、この新たに作製するガラスの分相や化学的耐久性や Se, Zr, Pd, Cs などの元素の分布状態を調査し、基礎的データを収集する。平成 27 年度における研究は、模擬ガラス固化体を始めとして、類似のガラス組成において、ガラス成分を調整して、熔融して作製したガラスの分相挙動と、その熱水への溶解特性を調べることにした。これらの得られるデータを基にして、ガラス固化体から作製する改質したガラスの処理工程を設計する。

## 2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

### 2-1 進捗状況

#### 2-1-1 既存の $10\text{Na}_2\text{O} \cdot 50\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 40\text{SiO}_2$ のガラスの分相

混合した原料を熔融して、流し出して板状の  $10\text{Na}_2\text{O} \cdot 50\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 40\text{SiO}_2$  (wt%) のガラスを得た。得られたガラスを管状電気炉で、所定の温度で、24 時間熱処理をした。熱処理後、 $90^\circ\text{C}$  の蒸留水に浸漬し、取り出して乾燥して、重量を測定した。

作製したガラスは、無色透明であり、熱処理によって白色不透明になった。この試料を  $90^\circ\text{C}$  の蒸留水による溶出処理によって 56% の重量減少が観察された。 $\text{SiO}_2$  相と  $\text{Na}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3$  相に 2 相に分離し、溶出によって  $\text{SiO}_2$  相だけが残るとすると、重量減少率は、60% となる。本実験の結果は、56% であり、分相組成の違いや本実験の精度を考えると、上記 2 相に分離し、溶出した結果と考えられる。また、図 1 に示した溶出後の SEM 観察結果は、これまでのこのガラスの分相の報告[1]の観察と極めて類似しており、本研究の実験手法・装置ともに問題がないものと考えられた。

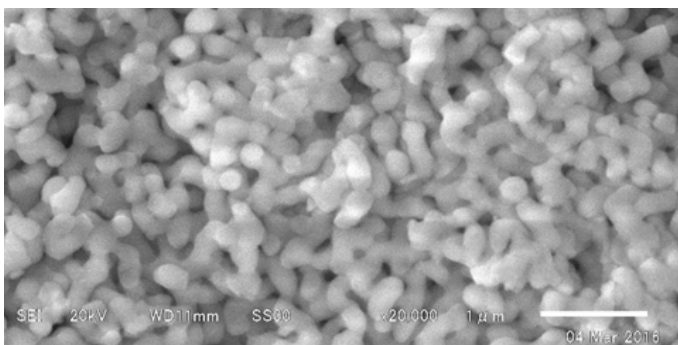


図 1 24 時間  $600^\circ\text{C}$  で熱処理し、 $90^\circ\text{C}$  で溶出後の  $10\text{Na}_2\text{O} \cdot 50\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 40\text{SiO}_2$  ガラス

[1] M. Uo, Y. Yamashika, K. Morita, I. Karube, A. Makishima, “Phase separation of halogen-containing sodium borosilicate glasses”, Journal of the Ceramic Society of Japan, **100**[1] (1992) 17-21.

#### 2-1-2 $10\text{Na}_2\text{O} \cdot 50\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 40\text{SiO}_2$ のガラスへの添加成分の効果

10Na<sub>2</sub>O・50B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>・40 SiO<sub>2</sub> (wt%)にガラス固化体の成分から主要な成分を各々1成分 (Li<sub>2</sub>O, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaO, ZrO<sub>2</sub>, PdO, Cs<sub>2</sub>O, CeO<sub>2</sub>, ZnO) を選び、4成分とした8種類のガラスを作製した。得られたガラスを管状電気炉で、所定の温度で熱処理をした。熱処理後、24時間 90°C の蒸留水に浸漬し、取り出して乾燥して、重量減少率を計測した。

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 添加ガラスは、熱処理温度を 580°C とし、熱処理を行い、溶出実験を行った。溶出による重量減少率は 50% 程度であった。CaO 添加ガラスでは、熱処理温度を 640°C とし、失透したため、溶出実験を行った。溶出による重量減少率は、CaO の添加量の増加にともなって、減少することがわかった。CaO を含有するガラスを除き、ここでの 4 成分ガラスでは、熱水により約 50% の重量減少率を確認できた。

### 2-1-3 多成分からなるガラスの分相特性

ガラス固化体の主要な成分から、Na<sub>2</sub>O-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-CaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZnO-Li<sub>2</sub>O-ZrO<sub>2</sub> 系の 8 成分ガラスを作製した。

分相は熱処理後の試料の失透から確認できた。

## 2-2 成果

今年度の成果は、(1) 既存の Na<sub>2</sub>O・B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>・SiO<sub>2</sub> の 3 成分ガラスで、熱処理による分相と熱水による溶出を確認することができた。その重量減少率は、50% を超えていることから、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 相をほとんど溶出できているものと考えられた。(2) この 3 成分ガラスに 1 成分を加えたガラスを作製し、その分相現象を確認し、熱水により溶出ができることを確認した。ただ、CaO を添加した場合だけ、他のガラス同様に熱処理で失透したが、熱水により溶出される量は大きく減少した。(3) ガラス固化体の主要な 8 成分からなるガラスを作製し、その分相を確認した。その溶出による重量減少率は、最大で 11% と大きく減少することがわかった。

### 2-3 新たな課題など

模擬ガラス固化体に分相をおこさせて、溶出処理により、ガラスの成分が溶出できることを確認できたが、ガラスの構成成分数の増加にともなって、溶出による重量減少率が減少することがわかった。この多成分化による溶出による重量減少率の減少の要因を解明し、新たに対策を行う必要があることがわかった。

## 3. アウトリーチ活動報告

なし。