

 MLF Experimental Report	提出日 Date of Report 2013.03.29
課題番号 Project No. 2012PM0011 実験課題名 Title of experiment 熔融スラグの粘性特性を理解するための内部構造測定 実験責任者名 Name of principal investigator 中塩 信行 所属 Affiliation 原子力機構 原子力科学研究所	装置責任者 Name of responsible person 石垣 徹 装置名 Name of Instrument/(BL No.) iMATERIA(BL 20) 実施日 Date of Experiment 2013.03.06-2013.03.07

試料、実験方法、利用の結果得られた主なデータ、考察、結論等を、記述して下さい。(適宜、図表添付のこと)
 Please report your samples, experimental method and results, discussion and conclusions. Please add figures and tables for better explanation.

1. 試料 Name of sample(s) and chemical formula, or compositions including physical form. 熔融スラグ(CaO-SiO ₂ -Fe ₂ O ₃ 、塩基度(CaO/SiO ₂)=0.5、粉末状、作成条件:1500°Cで4時間加熱後急冷) (1) CSF_10_0.5_Air: Fe ₂ O ₃ 濃度 10mol%、大気雰囲気熔融(基準スラグ) (2) CSF_5_0.5_Air: Fe ₂ O ₃ 濃度 5mol%、大気雰囲気熔融 (3) CSF_20_0.5_Air: Fe ₂ O ₃ 濃度 20mol%、大気雰囲気熔融 (4) CSF_10_0.5_Ar: Fe ₂ O ₃ 濃度 10mol%、Ar 雰囲気熔融 (5) CSF_10_0.5_Ar1%H ₂ : Fe ₂ O ₃ 濃度 10mol%、Ar+1%H ₂ 雰囲気熔融 (6) CSF_10_0.5_Ar1%O ₂ : Fe ₂ O ₃ 濃度 10mol%、Ar+1%O ₂ 雰囲気熔融 (7) CSF_10_0.5_Air_RT(900): (1)の基準スラグと同じものを耐熱試料セル(Pt製)に封入し、室温と900°Cで測定

2. 実験方法及び結果 (実験がうまくいかなかった場合、その理由を記述してください。) Experimental method and results. If you failed to conduct experiment as planned, please describe reasons. 国内の研究所等から発生する低レベルの無機固体放射性廃棄物の減容処理方法として、プラズマを熱源とした熔融処理がある。廃棄物スラグ組成とその粘性の温度変化はプラズマ熔融炉のスラグ排出工程におけるキーパラメータであり、その特性を理解することは、非常に重要である。これまでに、廃棄物等の情報に基づいて廃棄物スラグの組成範囲を推定し、温度変化に対する粘性変化の特性を測定してきた。その結果、最も大きな範囲で変動すると考えられる酸化鉄の量を変化させた組成のスラグにおいて、融点付近での粘性特性の顕著な違いが見られることがわかった。そこで、廃棄物スラグの熔融状態における中性子による全散乱測定を行い、融点付近のスラグ中の原子配列、同時に析出してきた結晶の構造を測定することを目的としている。 しかしながら、iMATERIA では熔融状態での測定に困難が伴うため、熔融スラグを急速に冷却することで熔融状態の構造を保持した試料を作成し、原子配列及び内部構造を測定することとした。まず、酸化鉄濃度等を変化させたスラグ試料について室温での測定を行い、構造の違いを測定した。また、ガラス転移点以上の温度に加熱すると、スラグの構造の緩和が生じたり、物質移動が生ずる結晶の成長が観測できると考えられる。そこで、熔融状態のスラグ測定の前段階として、スラグ試料を900°Cまで加熱して測定を行った。
--

2. 実験方法及び結果(つづき) Experimental method and results (continued)

実験結果)

1) 室温測定結果

図1に酸化鉄濃度 5mol%–20mol%の試料の回折強度を示す。酸化鉄濃度が 5mol%–10mol%の試料は回折ピークのない非晶質であり似たパターンを示しているが、酸化鉄濃度による若干の構造の違いがみられる。一方、酸化鉄濃度 20mol%では、回折ピークを示しており結晶性の物質であった。

また、組成は同じであるが、大気雰囲気とアルゴン雰囲気それぞれ溶融した試料を比較したところ、非晶質の似たパターンであるが若干の違いがみられた(図2)。同じ組成でアルゴン雰囲気に水素及び酸素を1%添加したスラグのパターンについては、水素添加スラグに殆ど変化が無かったのに対して、酸素添加スラグでは若干の違いが見られた。

これらの回折パターンについては現在詳細な解析を行っている。

2) 高温での回折強度の変化

溶融状態のスラグの測定を行う前段階として、iMATERIA に電気炉(V 炉)及び耐熱試料セル(試料部 Pt、上蓋 Ti)を設置して、1)で用いたスラグ試料(酸化鉄濃度 10mol%)を室温と900°Cで測定を行い、構造変化を調べた。

これまでに、iMATERIA で耐熱試料セルを用いた実績がなかったため、中性子散乱実験に先立ってスラグ試料を封入した試料セルを電気炉で加熱し、試料及びセルの状態、セルのシール性の加熱確認試験を行った。加熱後、スラグ試料の一部に固着化は見られたものの、試料セルの健全性は保たれていたため、そのまま iMATERIA で使用した。

試料セルに封入したスラグ試料を室温で測定した結果を図3に示す。図中にはブランクの試料セルを室温で測定したデータも載せている。試料セルであるPtの回折ピーク以外は図1と同様の非晶質のパターンを示すと思われたが、結晶性物質の回折ピークが見られた。加熱確認試験によって、スラグ試料(非晶質)の結晶化がおきたものと考えられる。スラグ試料の一部固着化という現象が結晶化に結びつく可能性を低く見ていたのは反省すべき点である。図4に、図3の試料を900°Cまで加熱して測定した結果と室温測定の結果の比較を示す。加熱することによって、回折ピーク強度の変化とピーク位置のシフトが観察された。

セル(Pt)からの強い回折があっても、試料の回折パターンの温度変化は観察できたので、高温試験における耐熱試料セルの使用には目処がついたと言える。

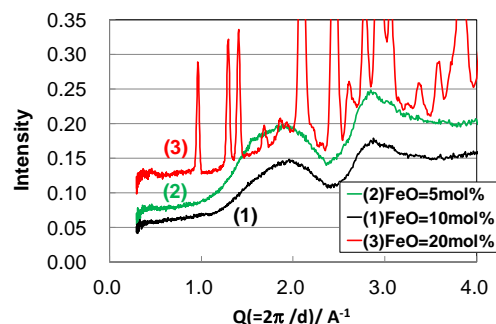


図1 酸化濃度の違う試料の中性子回折強度

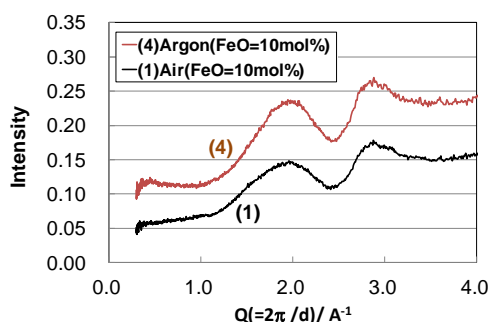


図2 溶融雰囲気の異なる試料の中性子回折強度

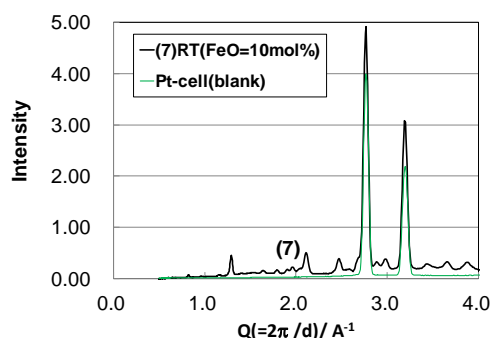


図3 耐熱試料セルを用いたスラグ試料の中性子回折強度の室温測定結果

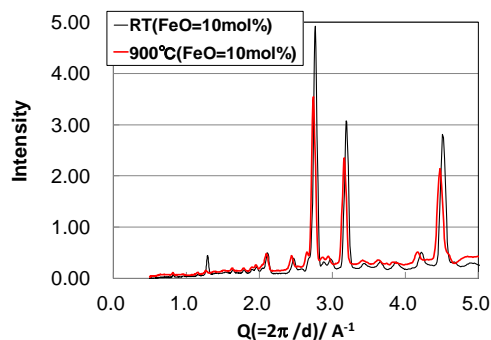


図4 測定温度の違いによる中性子回折強度の変化

