

放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究
(130) モリブデン酸ジルコニウムを出発物質とした実験による Y P 発生機構の検討(4)

Basic Research Programs of Vitrification Technology for Waste Volume Reduction

(130) Examination of YP formation mechanisms by experiments using zirconium molybdate as a starting material (4)

*岡本 芳浩¹, 永井 崇之¹, 勝岡 菜々子¹, 秋山 大輔², 桐島 陽²
¹原子力機構, ²東北大学

モリブデン酸ジルコニウムを出発物質とした様々な条件下の加熱処理試料の XAFS 分析を行い、モリブデン酸カルシウムの生成状況を比較した。

キーワード：ガラス固化, イエローフェーズ, 放射光 XAFS, モリブデン酸塩

1. 緒言 我々は、高レベル放射性廃液（HAW）のガラス固化処理における課題の1つであるイエローフェーズ（YP）の発生機構を解明するため、HAW 中で生成されるモリブデン酸ジルコニウム（ $\text{Zr}(\text{MoO}_4)_2$ ）を出発物質とした加熱処理試験を行ってきた。これまでに、 400°C で SrMoO_4 が生成すること[1]、加熱温度上昇とともに BaMoO_4 さらに CaMoO_4 の順に変化すること[2]、Na 元素が CaMoO_4 生成へ及ぼす影響[3]を報告した。本研究では、 $\text{Zr}(\text{MoO}_4)_2$ が出発物質に共存した場合のガラス固化試料への影響を調べた。

2. 実験 試料は、原料ガラスと模擬廃液の組み合わせに、(試験試料 1) $\text{Zr}(\text{MoO}_4)_2$ と NaNO_3 を添加したケース、(試験試料 2) $\text{ZrO}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 及び NaNO_3 を添加したケースの2種類とした。添加する NaNO_3 量を調整することで、双方ともに同量の Na、Zr 及び Mo 量を含む組成とした。YP を調査対象とするため、実質的な廃棄物成分充填率を 38.3wt%、酸化物換算の Mo 量を過剰な 9.87wt%とした。これら2試料に対して、Ca, Zr 及び Mo 元素の K 吸収端 XAFS 測定及び Mo 元素のイメージング XAFS を実施した。

3. 結果 試験試料はホウケイ酸ガラスへの Mo 元素の溶解度を大きく超えていることから、ともにモリブデン酸塩とみられる凝集が確認されたが、イメージング観察の結果、析出状態には大きな違いが認められた。試験試料1では数百 μm にも及ぶ大きな凝集体が、試験試料2では 100 μm 未満の小規模な凝集体が観察された。Mo 元素の EXAFS 解析(図1)及び Ca 元素の XANES 解析の結果、試験試料1の凝集体が CaMoO_4 を主成分とすることが確認された。一方で、小規模の凝集体のみが確認された試験試料2において、試験試料1と同程度あるいはそれを上回る量の CaMoO_4 の存在を示唆する結果が得られた。

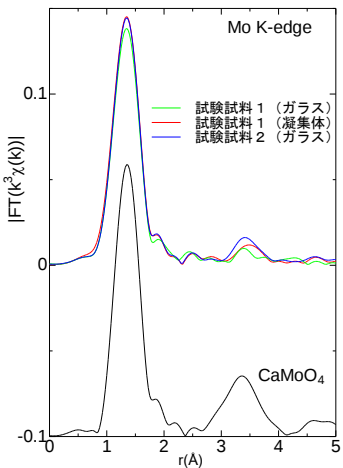


図1 模擬ガラス試料の Mo 元素K 吸収端 EXAFS による動径分布関数

参考文献

[1] 越野, 他, 原子力学会「2022 年秋の大会」1B04
[2] 永井, 他, 原子力学会「2023 年秋の大会」1E12
[3] 岡本, 他, 原子力学会「2024 年春の年会」1B05

本報告は、経済産業省資源エネルギー庁から受託した「令和5年度放射性廃棄物の減容化へに向けたガラス固化技術の基盤研究事業」(課題番号 JPJ010599) の成果を含む。また、放射光 XAFS 測定は、高エネルギー加速器研究機構・放射光実験施設共同利用実験課題 2023G067 において実施された。

*Yoshihiro Okamoto¹, Takayuki Nagai¹, Nanako Katsuoka¹, Daisuke Akiyama² and Akira Kirishima²

¹JAEA, ²Tohoku University