

## フッ化物揮発法におけるモリブデンのフッ化挙動に関する検討

Study on fluorination behavior of molybdenum compounds for fluoride volatility method

\*渡邊 大輔<sup>1</sup>、秋山 大輔<sup>1</sup>、佐藤 修彰<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東北大学

フッ化物揮発再処理法におけるモリブデンのフッ化挙動を理解するため、熱重量・示差熱分析法および X 線回折法によりモリブデン化合物のフッ化反応を調べた。フッ素雰囲気において金属 Mo、MoO<sub>2</sub>、MoO<sub>3</sub> を加熱すると、それぞれ 160 °C、160 °C、240 °C 以上で発熱反応により揮発することが分かった。

**キーワード**：再処理、フッ化物揮発法、核分裂生成物、モリブデン

### 1. 緒言

フッ化物揮発法では使用済燃料をフッ化剤と反応させ、生成したフッ化物の蒸気圧の差を利用して核燃料物質を選択的に揮発分離して回収する。モリブデンは使用済燃料に含まれる核分裂生成物元素の一つであり、六フッ化物が比較的高い蒸気圧を持ち、フッ化物揮発法では UF<sub>6</sub> とともに揮発すると考えられているため、フッ化挙動を理解するべき重要な元素である。モリブデンのフッ化挙動については、反応生成物として MoF<sub>6</sub> 等が報告されているが[1]、反応経路や反応温度は詳しく検討されていない。本研究では、モリブデン化合物のフッ化挙動について、反応経路および反応温度を熱重量・示差熱分析法 (TG-DTA) および X 線回折法 (XRD) により明らかにすることを目的とした。

### 2. 実験

アルゴン雰囲気のグローブボックス内に設置された示差熱天秤 (Rigaku Themoplus 2) を用い、フッ素雰囲気中でモリブデン化合物の TG-DTA 曲線を取得した。反応経路を検討するため、フッ化処理後の残留物を XRD により同定した。モリブデン化合物には、金属 Mo、MoO<sub>2</sub>、MoO<sub>3</sub> を用いた。各実験におけるサンプル重量は 10 mg 程度とした。キャリアガスの Ar の流量は 40 ml/min、10%F<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> の流量は 20ml/min とした。昇温速度 10 °C/min とし、常温から 500 °C まで昇温し、その際のサンプルの重量変化および熱量変化を測定した。

### 3. 結果および結論

フッ素雰囲気における金属 Mo の TG-DTA 曲線を図 1 に示す。サンプルの重量変化 ( $\Delta M$ ) は 160 °C から減少を開始し、発熱反応を伴い、最終的に -100 % となった。このことから、金属 Mo はフッ素と発熱反応し、完全に揮発することが分かった。発熱ピークは 1 つであり、重量が単調に減少したため、一段階の反応でフッ化反応が進んだと考えられる。フッ化処理を途中 (380 °C の時点) で停止し、残留物を回収して X 線回折パターンを評価したところ、金属 Mo と同定された。熱力学的検討の結果を合わせると、金属 Mo はフッ素と反応して直接 MoF<sub>6</sub> を生成して揮発したと考えられる。

一方、MoO<sub>2</sub> および MoO<sub>3</sub> については、 $\Delta M$  はそれぞれ 160 °C および 240 °C から減少を開始し、発熱反応を伴い、最終的に -100 % となった。フッ化処理途中の残留物は MoO<sub>2</sub> および MoO<sub>3</sub> と同定された。すなわち、金属 Mo の場合と同様に、MoO<sub>2</sub> および MoO<sub>3</sub> も直接フッ化揮発することが示された。揮発物は、熱力学的検討の結果から、MoF<sub>6</sub> と考えられる。

本研究により明らかにしたモリブデン化合物のフッ化挙動により、フッ化物揮発法におけるモリブデンのフッ化挙動を予測可能と考える。

### 参考文献

[1] G.H. Cady et al., Journal of the Chemical Society (1961) 1568-1574.

\*Daisuke Watanabe<sup>1</sup>, Daisuke Akiyama<sup>1</sup> and Nobuaki Sato<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Tohoku Univ.

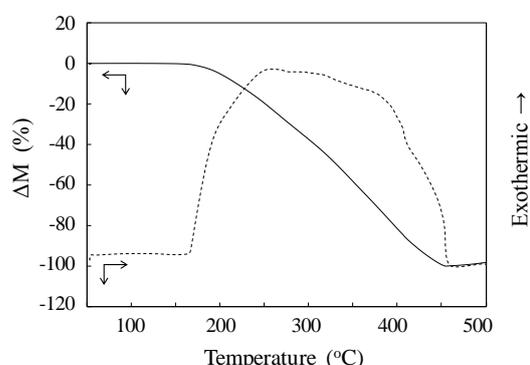


図 1 フッ素雰囲気における金属 Mo の TG-DTA 曲線 (昇温速度：10 °C/min、10%F<sub>2</sub>+N<sub>2</sub>：20ml/min、Ar：40ml/min)