

V₂O₅ を含む模擬放射性廃棄物ガラスの MoO₃ 溶解度と耐水性

MoO₃ solubility and durability of simulated radioactive waste glass containing V₂O₅

*永田 峰奈子¹, 菅原 透¹, 大平 俊明¹

¹秋田大学大学院 理工学研究科

ガラス固化体を安全に地層処分するために、分相を抑制する高い MoO₃ 溶解度と耐水性を両立するガラスが必要である。本研究では V₂O₅ の添加がガラス固化体の MoO₃ 溶解度と耐水性に与える影響を検討した。

キーワード：高レベル放射性廃棄物，ガラス固化体，モリブデン，分相，耐水性試験

1. 緒言

高レベル廃液に含まれている核分裂生成物のモリブデンはケイ酸塩ガラスに対する溶解度が低いため、廃液の充填率が高くなるにつれてガラス固化体中で分相しやすくなる。ガラス固化体を安全に地層処分するためには、分相を抑制する高い MoO₃ 溶解度と耐水性を両立するガラスが必要である。これまでに 6 成分系 (SiO₂-B₂O₃-Al₂O₃-CaO-Na₂O-MoO₃) に V₂O₅ を添加することでガラス中の CaMoO₃ の結晶化が抑制され、また耐水性も向上することが報告されている¹⁾。本研究では日本で使用が想定されている 8 成分系 (SiO₂-B₂O₃-Al₂O₃-ZnO-CaO-Na₂O-Li₂O-MoO₃) のガラス組成に V₂O₅ を添加した時の分相抑制効果と耐水性を調べた。

2. 実験方法

基本組成 (19A2) を 45.77 SiO₂-17.71 B₂O₃-2.73 Al₂O₃-2.05 ZnO-18.43 Na₂O-7.18 Li₂O-6.14 CaO (mol%) とし、V₂O₅ を添加した組成 (21E)、V₂O₅ を添加、B₂O₃ を増加した組成 (21E2) に対して相平衡実験を行なった。各酸化物を所定の組成となるように秤量し、それぞれに MoO₃ を 13mol% 添加して混合した。白金ルツボに入れた試料を 1200°C または 1000°C で 24 時間保持したのち取り出して急冷し、EPMA, XRF, ICP-AES で分析した。耐水性試験は 19A2, 21E, 21E2 および模擬ビーズに MoO₃ を 2 mol% 添加したガラスに対して行なった。超純水を pH9 に調整し 90°C に昇温した後、粒径 40~75 μm のガラス粉末を投入し、2,4,6,8,24,30,48 時間後に浸出液を採取した。

3. 結果と考察

相平衡実験後に試料を急冷すると、ケイ酸塩メルトは白色ガラス、モリブデン酸塩メルトは沈殿物として確認でき、全ての試料でケイ酸塩メルトとモリブデン酸塩メルトの分相を生じた。EPMA によるガラスの表面観察では、高温下でケイ酸塩メルトに溶解していたモリブデンが冷却時に再分相したことで生じた球状粒子が

確認された。21E2 では 1200°C、1000°C 共に基本組成 (19A2) の約 1.5 倍の MoO₃ 溶解度が得られ、モリブデン酸塩メルト量の減少も確認された。V₂O₅ 添加ガラスではガラス中の Na イオンが VO₄ ユニットに対して MoO₄²⁻ よりも優先的に配位し、Na₂MoO₄ が抑制されたと考えられる²⁾。今後、耐水性試験を行なったガラスについて、ICP-AES を用いた浸出液の測定と熱力学的評価を行う予定である。

Table 1. Results of MoO₃ solubility in silicate melt and mass balance calculation

Sample	Temperature(°C)	MoO ₃ in silicate melt (wt%)
19A2	1200	9.59
21E		11.93
21E2		17.41
19A2	1000	5.78
21E2		9.58

参考文献

[1] Lian et al. (2020) *Mater. Res. Express* 7, 045201, [2] Suzuki et al. (2018) *Phys. Chem. Glasses B*, 59, 181-192,

*Minako Nagata¹, Toru Sugawara¹ and Toshiaki Ohira¹

¹Graduate School of Engineering Science, Akita University