

モリブデン含有白金族合金の硝酸溶解性評価

Evaluation of solubility of molybdenum containing platinum group alloys in nitric acid

*山崎 晃也¹, 千葉 紗香¹, 松浦 治明¹, 佐藤 勇¹, 多田 晴香²

¹ 東京都市大学, ² 株式会社 IHI

抄録 高レベル放射性廃液に含まれるファイン合金 (Mo-Ru-Rh-Pd-Tc) の硝酸溶液への溶解挙動を検討するために、各種硝酸濃度における Mo の溶解試験を行った残りの粉末に対して XRD 測定、溶解液に対しては ICP-OES 測定を実施した。XRD より 1.0 ~1.5 M 硝酸に一旦溶解し析出した物質は一部が Mo(CO)₆ になっている可能性が示唆される。

キーワード : 高レベル放射性廃液, モリブデン, 広域 X 線微細構造, X 線回折, ICP 発光分光分析

1. 緒言

高レベル放射性廃液は、高レベル濃縮廃液・不溶解残渣廃液・アルカリ濃縮廃液の3種類の硝酸溶液を混合させたものであり、ガラス原料と共に熔融させガラス固化することで地層処分へ供される。不溶解残渣廃液に含まれる金属は合金の形で存在しており、硝酸等の条件によっては溶解挙動が組成によって変化することもあり、ガラス化反応にも影響する可能性がある。また、将来的に使用済燃料が高燃焼度化されることによって、この合金組成も変動する可能性がある。このようにガラス挙動に影響を及ぼすと考えられる合金の溶解挙動に関する知見は多くない。そこで、合金の組成変動に伴う高レベル放射性廃液への溶解挙動を評価するため、合金の構成成分の中でも硝酸に溶解しやすい Mo に着目して、溶解度の測定及び溶解挙動の硝酸濃度依存性を観察した。

2. 実験

硝酸濃度は文献調査等[1]を参照し、1.0~2.0M とした。溶解試験ではビーカーに攪拌子と秤量した Mo を投じ、各濃度に調製した硝酸を添加し、連続して攪拌した。数日ごとに上澄み溶液を 2 ml ずつ採取し、これを遠心分離器で液相と固相に分け、液相の上澄み溶液を 1 ml 採取した。これらの試料は高エネルギー加速器機構の BL27B ビームラインにて SDD 検出器を用いた蛍光法による EXAFS 測定 (Mo-K 吸収端) を行った。芝浦工業大学 ICP-OES 分析を行い、Mo 濃度を測定した。また不溶解残渣の溶解性評価のための試料では溶解試験後の Mo の溶け残りの粉末を使用して SEM 観察、XRD 及び TG-DTA にて測定を行い、その試料も同ビームライン及び条件で測定に供した。

3. 結果と考察

図 1 に各硝酸濃度における液相試料に対する ICP-OES 測定で得られた Mo 濃度の時間変化を示す。また、図 2 に各濃度で溶解し残った粉末(固相試料)を対象とした XRD ピークパターンを示す。1.0 M 及び 2.0 M 硝酸の場合、Mo 濃度は時間の経過とともに低下するが、1.5 M 硝酸では Mo 濃度にあまり変化が見られなかった(溶解開始後ただちに析出物が発生した)。XRD では 0.2 M 硝酸の場合、未溶解の Mo 粉末と同様であり、溶け残りを検出したものと考えられ、低濃度硝酸では溶解は抑制されることが示されている。1.0 M~1.5 M 硝酸での残りの物質は低角側に他と異なるピークがあり、これは Mo(CO)₆ と構造が類似しているものと推測される。当日の発表では、残留物に対する EXAFS による評価結果も報告する予定である。

謝辞 本報告は、経済産業省資源エネルギー庁「令和3年度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事業 (JPJ010599)」の成果の一部である

参考文献

[1] JAEA-Review 再処理プロセス・化学ハンドブック 第2版 2008-037 p.220

*Koya Yamazaki¹, Sayaka Chiba¹, Isamu Sato¹ Haruaki Matsuura¹ Haruka Tada²

¹Tokyo City Univ., ²IHI Corporation.

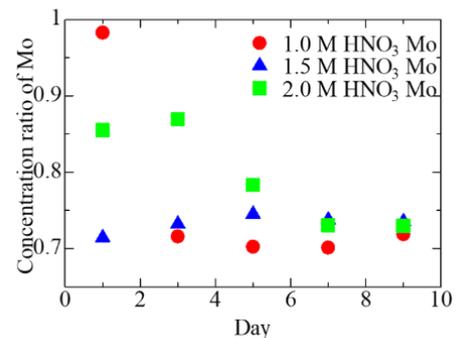


図 1 各硝酸濃度溶液に溶解させた Mo の濃度の経時変化 (Mo が全溶解した場合を 1 とする)

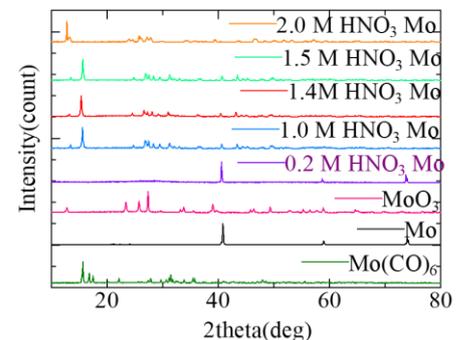


図 2 各硝酸濃度で溶解させた残留物と Mo を含む既知試薬の X 線回折パターン