

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 YP 発生機構の検討

Examination of YP formation mechanisms by experiments
using zirconium molybdate as a starting material

*越野 陽也¹, 秋山 大輔¹, 永井 崇之², 岡本 芳浩², 桐島 陽¹

¹東北大学, ²JAEA

モリブデン酸ジルコニウム、硝酸ナトリウム、および硝酸ストロンチウムを出発物質とした加熱処理を様々な温度・時間条件下で行い、XRD 分析および XAFS 分析を用いてイエローフェーズの主成分となるモリブデン酸塩の発生機構を検討した。

キーワード：ガラス固化、イエローフェーズ、モリブデン酸ジルコニウム

- 緒言** 高レベル放射性廃液のガラス固化時に問題となるイエローフェーズ（以下 YP）を構成するモリブデン（Mo）は、廃液中に溶解して存在しているものと、不溶性のモリブデン酸ジルコニウムとして沈澱しているものがある。本研究では、YP の主成分であるモリブデン酸ナトリウム（ Na_2MoO_4 ）およびモリブデン酸ストロンチウム（ SrMoO_4 ）が、加熱時に廃液組成から生成する機構について検討した。
- 実験** 2 成分系と 3 成分系での実験を行った。廃液組成を参考にして、2 成分系についてはモリブデン酸ジルコニウムと硝酸ナトリウムを混合し Mo:Na が 1:9 となるようにし、モリブデン酸ジルコニウムと硝酸ストロンチウムも同様に Mo:Sr が 1:0.24 となるように混合した。3 成分系については、Mo:Na:Sr が 1:9:1 および 1:1:1 となるようそれぞれ混合した。それぞれの試料を大気雰囲気下で複数の条件下での加熱処理を施した後に XRD、SEM-EDX による分析を行った。また、一部試料については XAFS 分析を行った。
- 結果** 2 成分系の XRD 分析結果からは、加熱温度の上昇に伴い Na_2MoO_4 と SrMoO_4 が生成する状況が確認でき、 SrMoO_4 は Na_2MoO_4 よりも低い温度（約 400℃）で生成することがわかった。図 1, 2 は Mo:Sr = 1:0.24 及び Mo:Na:Sr = 1:1:1 で混合した試料を 400, 600, 800℃で 2 時間加熱処理した後の XRD 分析結果である。図 1 では 400℃時点で SrMoO_4 は確認されていないのに対して、図 2 では確認されることから、 NaNO_3 の共存によって SrMoO_4 の生成温度が低下することが明らかとなった。この生成温度の低下は XAFS による分析でも確認することができた。さらに、 Na_2MoO_4 は 2 成分系においては約 500℃で生成することが確認されたが、図 2 の 3 成分系では 600, 800℃共に生成しなかった。したがって、試料中に含まれる Mo は約 400℃で SrMoO_4 を形成した後に、 Na_2MoO_4 の生成温度に達しても SrMoO_4 として存在し続けることがわかった。

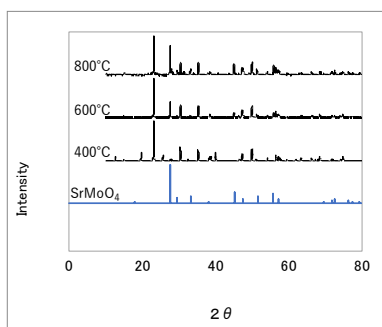


図 1. Mo : Sr = 1 : 0.24 試料の加熱温度と XRD 分析結果

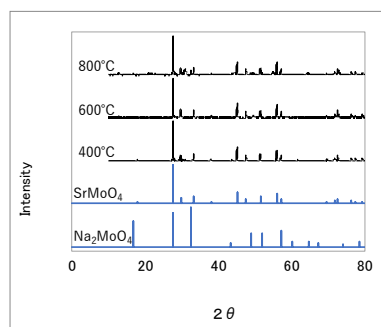


図 2. Mo : Na : Sr = 1 : 1 : 1 試料の加熱温度と XRD 分析結果

本報告には、経済産業省資源エネルギー庁から受託した「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基盤研究事業（JPJ010599）」の成果が含まれている。

*Haruya Koshino¹, Daisuke Akiyama¹, Takayuki Nagai², Yoshihiro Okamoto² and Akira Kirishima¹

¹Tohoku Univ., ²JAEA