

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 (102) 模擬ガラス中に析出したモリブデン酸塩のマイクロ XAFS 分析

Basic Research Programs of Vitrification Technology for Waste Volume Reduction

(102) Micro XAFS Analysis of Molybdate Aggregated in Simulated Waste Glass

*岡本 芳浩¹, 永井 崇之¹, 佐藤 誠一², 猪瀬 毅彦², 畠山 清司³, 谷田 肇¹

¹JAEA, ²検査開発, ³E&E

攪拌操作をしないことホウケイ酸ガラス中に析出したモリブデン酸塩の、放射光マイクロ XAFS 分析を実施した。モリブデン酸塩を構成するカチオンは、主にカルシウムだが、同じアルカリ土類元素であるストロンチウム、バリウムの塩が共存し、さらにいくつかの元素の酸化物によって構成されていることが分かった。

キーワード：ガラス固化、放射光、モリブデン酸塩、マイクロ XAFS

1. 緒言 高レベル放射性廃液のガラス固化処理におけるモリブデン酸塩結晶の析出、すなわちイエローフェーズ（以下、YP）の抑制は、ガラス固化体の健全に保つために重要である。本研究では、人工的に発生させたホウケイ酸ガラス中のモリブデン酸塩を対象に、サイズを $1\ \mu\text{m}$ 四方に集光したビームを使用し、放射光マイクロ XAFS 分析を実施したので報告する。

2. 実験 マイクロ XAFS 測定では、熔融時に攪拌操作を行わないことで、モリブデン酸塩凝集を発生させた試料を調製して、凝集領域とガラス領域を分析対象とした。測定試料は、原料ガラスとして PF798 を、廃液成分として高燃焼度を模擬した廃液（白金族元素を含まない）を使用した。マイクロ XAFS 実験は、大型放射光実験施設 SPring-8 の BL22XU ビームラインにおいて、KB ミラーを使用して、約 $1\ \mu\text{m}$ 四方のマイクロビームを作り出して Mo 元素を対象に透過法にて実施した。また、凝集領域のモリブデン酸塩のカチオン種を特定するために、マクロサイズのビームを使用して、Ca, Mn, Fe, Co, Ni, Zn, Rb, Sr, Y, Zr, Ba, Nd, Gd 等の元素の XAFS 測定を実施した。

3. 結論 図 1 は、析出したモリブデン酸塩の拡大写真とラインスキャンによる透過 X 線強度、さらに各測定点の Mo 元素 K 吸収端 EXAFS による $|FT|$ である。ガラス領域に対して凝集領域では、透過 X 線が強弱を繰り返し、 $|FT|$ にモリブデン酸塩結晶の存在を示唆する第 2 ピークが出現した。これらの $|FT|$ は CaMoO_4 と似ているが、完全には一致しなかった。カチオン種を対象とした XAFS 分析の結果、Ca と同族の Sr 及び Ba がモリブデン酸塩として共存していることが明らかになった。ガラス領域と凝集領域の間で化学形や化学状態が違う元素が認められたが、多くの場合は当該元素の酸化物であった。酸化還元状態に領域間で違いがあり、たとえば、Mn は、ガラス領域では 2 価であるのに対して、凝集領域では 3 価であった。

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。

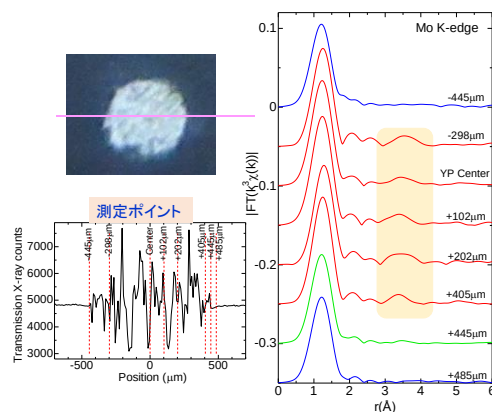


図1 対象試料拡大写真(左上)、ラインスキャンによる透過 X 線強度(左下)と各測定点のマイクロビームによる Mo 元素 K 吸収端 EXAFS 動径構造関数

*Yoshihiro Okamoto¹, Takayuki Nagai¹, Seiichi Sato², Takehiko Inose², Kiyoshi Hatakeyama³ and Hajime Tanida¹

¹JAEA, ²Inspection Development, ³E&E