

## 熔融ガラス中における不溶解残渣(Mo)の挙動 Behavior of insoluble residue (Mo) in the fused glass

中田正美\*, 赤堀光雄

日本原子力研究開発機構, 〒319-1195 那珂郡東海村大字白方 2-4

Masami Nakada\* and Mitsuo Akabori

Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Oaza Shirakata, Tokai-Mura, 319-1195, Japan

### 1 はじめに

高レベル放射性廃棄物は、ガラス固化体を製作し保管されるが、高レベル放射性廃棄物中には遷移金属、ランタノイドや白金族など多くの元素が含まれている。中でも白金族や Mo はガラスに溶けにくく、ガラス固化体製作において析出してしまふ為に問題となる。特に Mo 元素に着目し、原料となる Mo の化学形や加熱温度を変えて試料を作製した。作製した試料を粉体にし、透過法や蛍光法により Mo-K 吸収端で XAFS 測定を行い、Mo の化学状態や挙動観察を行った。

### 2 実験

ガラス原料(粒径数十 $\mu\text{m}$ の粉末又は径約 2mm のビーズ)、乾燥高模擬廃液(再処理過程で発生する放射性廃液の内、放射性核種を非放射性元素や挙動が似た元素に置換えて模擬し作製した廃液を乾燥させた原料)粉末又は乾燥低模擬廃液(乾燥高模擬廃液から Mo や白金族を入れずに作製した廃液を乾燥させた原料)粉末及び Mo 原料(Mo 金属、 $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ 、 $\text{Na}_2\text{MoO}_4$ 、 $\text{CaMoO}_4$ )をアルミナ坩堝に入れ、よく混合した。それを電気炉に入れ、 $800^\circ\text{C}$ 又は $1200^\circ\text{C}$ 、3時間、空气中で加熱をした。冷却後、試料をアルミナ坩堝から取り出し、粉碎し、ポリエチレン袋に入れ、透過法 XAFS 測定用試料とした。一部は、塊のまま 7 素子 Ge 検出器を用いた蛍光法 XAFS 測定用試料とした。

### 3 結果および考察

透過法及び蛍光法 XANES 測定をした結果、ガラス原料サイズ、乾燥高模擬廃液又は低模擬廃液、Mo 原料の違いに関わらず、Mo は 6 価の $(\text{MoO}_4)^{2-}$ の化学状態で存在していることがわかった。 $800^\circ\text{C}$ 、3時間加熱して作製した試料を Mo-K 吸収端で透過法 EXAFS 測定した結果を動径分布関数で表し、図に示した。図中、赤線は原料としてガラス粉末と Mo 金属だけを混合し、作製した試料である。青線はガラス粉末、乾燥低模擬廃液及び Mo 金属を混合し、緑線はガラスビーズ、乾燥低模擬廃液及び Mo 金属を混合して作製した試料である。第一配位の Mo-O を示すピークは、ほとんど同じであり、XANES 測定をした結果と一致し、Mo は 6 価の $(\text{MoO}_4)^{2-}$ の化学状態で存在していることを示している。ガラス粉末原料を用い

た試料では、第二配位の Mo-M (陽イオン金属)を示すピークが見られた。これは、ガラス粉末と Mo 金属を用いた場合にも見られることから、ガラス中の成分である Na や Ca などと $(\text{MoO}_4)^{2-}$ が結合していることが考えられる。

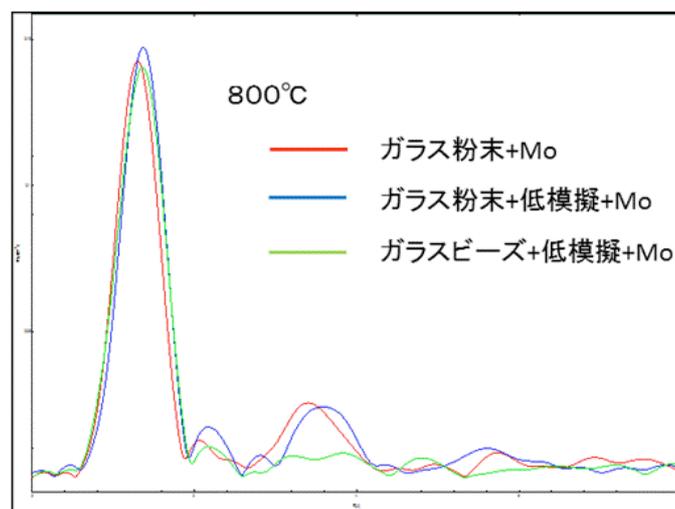


図 Mo 金属添加模擬ガラスの Mo-K 吸収端での動径分布関数

### 4 まとめ

これまで行ってきた放射光イメージング測定は、不均一な試料中でも目的元素の挙動が、その場観測できることがわかった。また、XAFS を測定することにより、目的元素の化学状態把握に有効であることがわかる。

### 謝辞

PF スタッフの方々の御協力に感謝致します。

\*nakada.masami@jaea.go.jp