

不溶解残渣に関する基礎試験等の調査結果

1. 文献、特性等の調査

(1) 文献調査、データ整理

①JAEA 東海再処理工場における調査

- ・ 不溶解残渣廃液（以下、「FINE 廃液」という。）、酸回収廃液、溶媒洗浄廃液などを混合したのち、蒸発濃縮して高レベル廃液として貯留。
- ・ 蒸発缶及び高レベル廃液貯槽における廃液を $7\mu\text{m}$ のろ紙で分離し、付着したものを不溶解残渣として、ろ液とは別々に成分分析した結果、FINE 廃液中の残渣（以下、「FINE 残渣」という。）の主たる成分は Zr、Mo（モリブデン酸ジルコニウム）であり、白金族元素割合はろ液と同等か半分以下である。

②JAEA（旧原研）における調査

- ・ FINE 残渣の粒子径は、 $1\mu\text{m}$ 以下の非常に細かいものが多い。溶解処理後約 3 時間経過した時点での FINE 残渣の粒径は、レーザー光散乱法によれば平均約 $0.1\mu\text{m}$ であり、一晩放置後は大半が凝集し、 $3\mu\text{m}$ 以上の粒子を形成している。
- ・ 凝集した粒子を溶液から分離・乾燥し、走査型電子顕微鏡で観察すると $5\sim 50\mu\text{m}$ となる。
- ・ FINE 残渣の内 $60\sim 80\%$ は、難溶性合金であり、その量は燃焼度と共に増加している。その元素構成は、以下の通りである。

Mo	Tc	Ru	Rh	Pd
約 20%	0.5~5%	50~60%	約 10%	約 10%

③六ヶ所再処理工場における調査（データ整理）

- ・ 六ヶ所再処理工場の FINE 廃液（: 9 バッチ目受入時）の分析結果から、以下が主な成分濃度（元素濃度）であり、東海再処理工場の不溶解成分とは異なり、FINE 残渣中の白金族濃度は高く、Zr 濃度が低い傾向がある。

	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Zr
溶液 + 不溶解成分	<input type="text"/>					
不溶解成分						

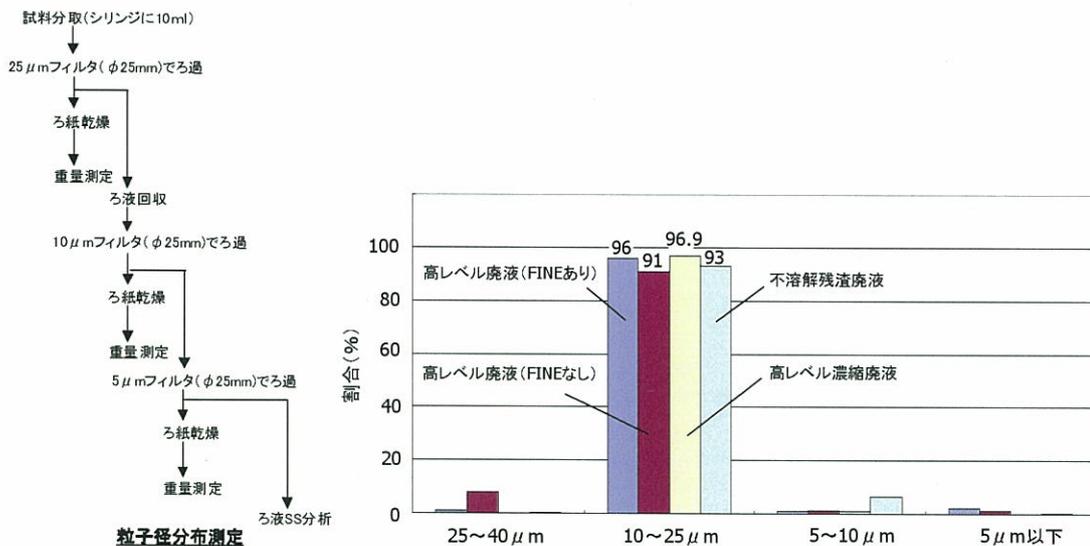
- ・ 粒径については、 $40\mu\text{m}$ 以下であることが分かっているが、分布データはない。

(2) 六ヶ所再処理工場における分析結果

不溶解残渣の組成・性状を確認するため、六ヶ所再処理工場の分析施設において、不溶解残渣の分析・試験を実施した。

①不溶解残渣の粒子径分布

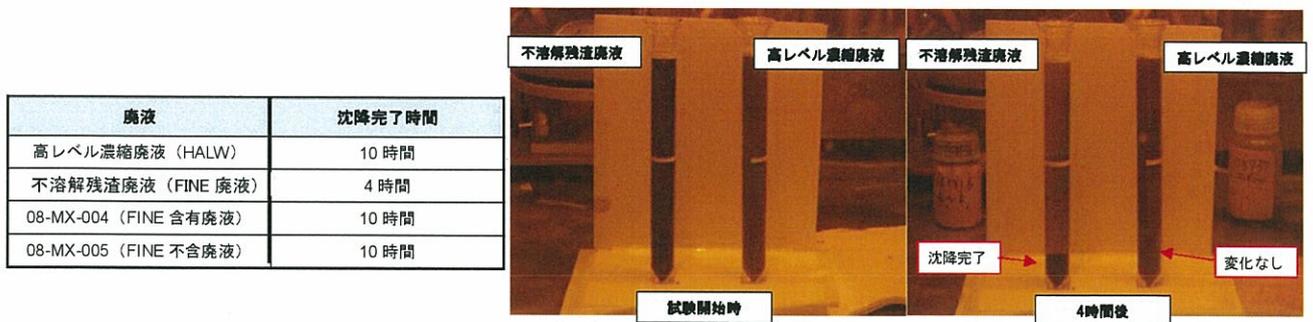
- ・ メッシュ数の異なるフィルタを準備して、FINE 残渣と高レベル濃縮廃液（以下、「HALW」という。）中の沈殿物の粒径分布について調査した。
- ・ FINE 残渣、HALW 沈殿物、高レベル廃液の沈殿物の粒子径は、ほぼ 10～25 μm であり、大きな相違がないことが分かった（図－1 参照）。
- ・ 但し、沈降時間よりストークスの式に基づき、粒子径を算定すると 4～5 μm 程度となることから、10 μm 以下の粒子が凝集することで、10 μm フィルタに回収されている可能性がある。



図－1 粒子径分布測定方法と測定結果

②不溶解成分の沈降速度評価

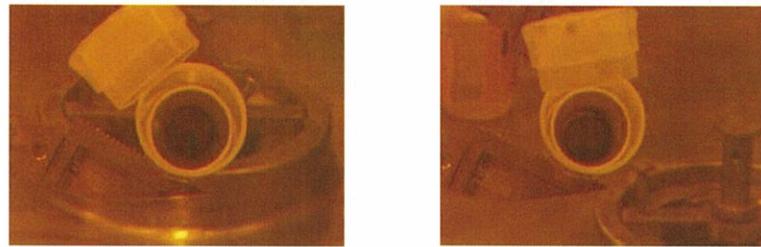
- ・ FINE 廃液、HALW 及び高レベル廃液を振とう後、静置することで、各廃液の不溶解成分や沈殿物の沈降速度を比較し、粒径分布データなどから総合的に不溶解成分の密度を推定した。
- ・ FINE 廃液中の FINE 残渣の沈降速度が速いことが分かった（図－2 参照）。 粒径分布結果と合わせて考えると FINE 残渣の密度は高いと推測される。



図－２ 不溶解成分の沈降速度試験方法と測定結果

③不溶解残渣の仮焼物の評価

- ・ FINE 廃液、HALW を仮焼した場合の仮焼物の外観観察を行った。
- ・ 仮焼物の外観上は大きな差異は観察されなかった (図－ 3 参照)。



(高レベル濃縮廃液を仮焼した後の状態) (不溶解残渣廃液を仮焼した後の状態)

図－ 3 不溶解成分仮焼後の外観観察

④不溶解残渣の組成分析

- ・ FINE 廃液及び HALW 中の不溶解成分の組成分析を行った (表－ 1 参照)。
- ・ HALW 中の不溶解成分は Zr と Mo が約 85%程度を占めており、白金族元素は 8%程度と低い。
- ・ 一方、FINE 廃液中の不溶解成分は Zr と Mo が約 32%程度であり、白金族元素が約 60%程度を占めており、白金族元素の割合が高い。

表-1 不溶解成分の組成分析

不溶解残渣廃液中の不溶解成分組成

高レベル濃縮廃液中の不溶解成分組成

不溶解成分濃度 (g/L)					不溶解成分濃度 (g/L)				
測定元素	含有量 (g/g)	不溶解成分中の各元素濃度 (g/L)	割合 (%)	割合 (%)※	測定元素	含有量 (g/g)	不溶解成分中の各元素濃度 (g/L)	割合 (%)	割合 (%)※
P			—	—	P			—	—
Fe			0.5	0.7	Fe			0.1	0.3
Sr			—	—	Sr			—	—
Zr			4.8	7.4	Zr			8.9	18.8
Mo			15.9	24.5	Mo			31.5	66.8
Tc			5.1	7.9	Tc			—	—
Ru			27.7	42.7	Ru			2.6	5.5
Rh			4.6	7.0	Rh			—	—
Pd			6.4	9.9	Pd			1.2	2.5
Ba			—	—	Ba			2.9	6.1

※検出された元素の割合の合計が100%になるように換算した値

- ・国内外で調査された金属六方晶もしくは難溶性金属の化学組成と当社の不溶解残渣廃液中の不溶解成分は良く一致しており、粒子径分布、沈降試験結果から総合的に判断すると六ヶ所再処理工場の不溶解残渣は金属であると推測される。

	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd
旧原研での調査 (金属六方晶)	約 20%	0.5~5%	50~60%	約 10%	約 10%
当社不溶解残渣	24.5%	7.9%	42.7%	7.0%	9.9%

(3) FINE 廃液の東海への移送・形態分析の実施

- ・六ヶ所再処理工場では、FINE 残渣の化学形態を分析できないことから、FINE 残渣を JAEA に移送し、形態分析を実施した。

① CPF での分析

- ・ FINE 廃液中の不溶解成分の化学形態を明らかにするため、X線回折 (XRD)、X線マイクロアナライザー (EPMA) を実施した。
- ・ FINE 残渣の XRD 分析の結果から、Mo、Ru を主成分とした合金およびモリブデン酸ジルコニウムなどの混合物であることが確認された。
- ・ 文献によれば、不溶解残渣は Tc を含めた Ru-Mo-Pd-Rh-Tc の 5 元系合金からなることが報告されているが、データベースに既知データがないため、特定はできなかった。
- ・ Tc は EPMA においても感度が低いためは検出されなかった。

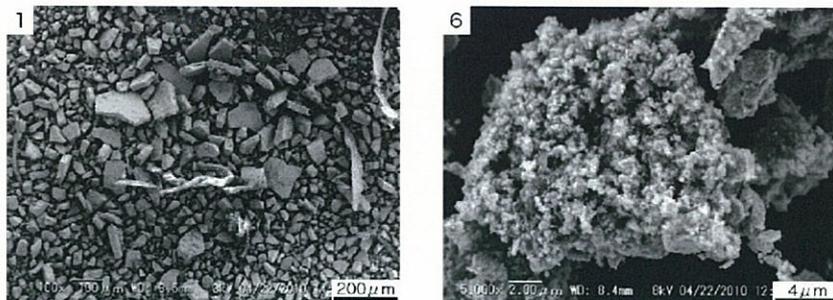
②NUCEF での分析

- Mo、Ru を主成分とした合金について、さらに詳細な形態分析を実施するため、FINE 残渣をシュウ酸及び硝酸で洗浄し、FINE 残渣中から上記合金のみを分離した。
- 分離した合金を CPF で分析すると共に、NUCEF に移送し、詳細に形態分析を実施した。
- 湿式分析により、合金の化学組成を分析したところ、以下の組成であった。

元素	Mo	Tc	Ru	Pd	Rh
濃度[wt%]	23.2	6.9	48.6	12.8	8.5

※シュウ酸溶解後残渣の分析結果から、微量元素（5%以下）、Zrを除いた補正值

- 合金の XRD 分析の結果から、Ru·Mo·Pd·Rh·Tc 合金であることが確認された。
- また、合金の粒子径は数 nm～数 μ m 程度の粒子であることが確認された（図-4 参照）。



(拡大)

図-4 不溶解残渣中の合金観察