

## 不溶解残渣模擬合金の硝酸溶解挙動評価

Evaluation of nitric acid dissolution behavior of insoluble residue simulated alloys

\*千葉 紗香<sup>1</sup>, 山崎 晃也<sup>1</sup>, 松浦 治明<sup>1</sup>, 佐藤 勇<sup>1</sup>, 多田 晴香<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東京都市大学, <sup>2</sup> 株式会社 IHI

不溶解残渣中の白金族合金の硝酸への溶解挙動を検討するため、白金族合金を構成する成分のうち、特に最も硝酸に溶解しやすい Mo 及び合金と同様の結晶構造を持つとされる Ru に着目した。金属 Mo および Ru 単体粉末、アーク溶解後破砕した模擬合金をそれぞれ硝酸へ溶解し、不溶解物及び上澄み溶解液に対して各種定性定量分析を行った。

**キーワード**：不溶解残渣, XRD, EXAFS, XANES

### 1. 緒言

高レベル廃液内に含まれる不溶解残渣廃液には Ru-Rh-Pd-Mo-Tc の合金が存在している[1]。この合金は燃料燃焼度の変化に伴い組成が変動すると考えられているが、それに伴う高レベル廃液中での溶解挙動については未だ解明されていない。不溶解残渣中の合金はガラス熔融炉内でプロセス制御に悪影響を及ぼす可能性があるため、その評価を行うためにも前段階である溶解工程での白金族合金（特に問題視されているうへ化学的挙動のわかりにくい Ru）の溶解挙動を解明しておく必要がある。そこで本研究では Mo、Ru 及び Ru-Rh-Pd-Mo の 4 元系の模擬合金を種々の濃度の硝酸に溶解し、それぞれの挙動を比較することで白金族合金の溶解挙動を解明することを目的として試験を行った。

### 2. 実験

ビーカーに攪拌子及び試薬を入れ硝酸を注ぎ、スターラーを用いて攪拌しながら 240 時間溶解試験を行った。なお試験は 1.0 M、1.5 M に調整した硝酸 50 ml に対し Mo 金属粉末各 1.0 g を添加し、7.0 M に調整した硝酸 25 ml に対し Ru 金属粉末及び模擬合金粉末各 0.5 g を添加した計 4 条件実施した。その後、240 時間経過時に採取した上澄み溶解液に対し各種定性定量分析を、風乾させた不溶解物に対し各種定量分析を行った。

### 3. 結果・考察

ICP-OES 及び原子吸光光度法により試験終了時の上澄み溶解液内 Mo、Ru 濃度をそれぞれ測定し、全溶解に対する割合を求めた。また ICP-OES の結果より求めた Mo の溶解濃度割合を図 1 にまとめた。図 1 より、硝酸濃度 1.0M に Mo 単体を溶解させた場合は平衡状態に達するのに 150 時間程要したが、硝酸濃度 1.5M に Mo を溶解させた場合及び、硝酸濃度 7.0M に合金を溶解させた場合は 36 時間程度で平衡状態となっていた。試験終了時の 240 時間時点での溶解割合から、硝酸 7M で溶解させた合金は含有する Mo の 10 % ほどしか解けない結果であり、Mo の単体金属である粉末と比べて明らかに低い量しか溶解しなかった。また、Mo 単体も硝酸溶液の濃度で傾向が異なり、硝酸濃度 1.5M ではほぼ全量溶解したが、1M では時間経過とともに Mo の溶解量が低下し、一度溶解した Mo が再析出している傾向が得られた。

サンプルの外観や不溶解物の分析結果によると、Mo 単体では、硝酸溶液の濃度にかかわらず不溶解物が酸化物として確認され、硝酸溶液 1.0 M の場合には色の異なる沈殿物の発生がみられた。こと一方で、合金では溶解の前後で顕著な変化が見られなかったことから合金として存在することで Mo の溶解度が低下していると推測される。これは、合金の結晶構造が Ru と同様の六方最密構造の中に他元素が入りこんでいる入れ子状であるため硝酸に溶けにくくなっているためだと考えられる。合金の Mo 近傍局所構造が溶解前後で変化していないことから Mo が元の構造から抜けだしていないことが伺える。

また、Ru 単体と合金の溶解試験の結果を、原子吸光分析の結果より求めた Ru の濃度と溶解割合を表 1 にまとめた。表 1 より Ru の溶解濃度割合は Ru 金属粉末が 0.05% ほど、合金の場合含有する Ru の 0.15 % ほどであることが確認できた。すなわち、Ru はほとんど溶解しないが、合金に含まれると単体よりわずかに溶解度が上昇することが判明した。その原因については試験回数を増やす等、今後考察を進める予定である。

**謝辞** 本報告は、経済産業省資源エネルギー庁「令和 4 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] 塚田毅志 「PUREX 再処理条件下における高燃焼度 UO<sub>2</sub> 燃料及び MOX 燃料溶解特性」 電力中央研究所報告書 T97082

\* Sayaka Chiba<sup>1</sup>, Koya Yamazaki<sup>1</sup>, Haruaki Matsuura<sup>1</sup>, Isamu Sato<sup>1</sup> and Haruka Tada<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Tokyo City Univ., <sup>2</sup> IHI Corporation

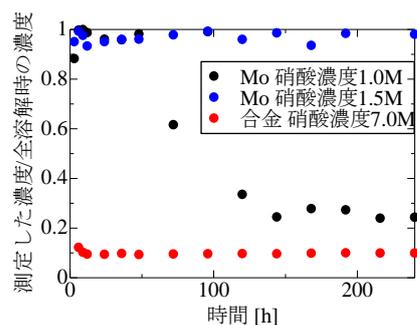


図 1 全溶解に対する Mo 溶解濃度割合

表 2 Ru 濃度と全溶解に対する溶解濃度割合

	Ru	合金
濃度 [ppm]	11.3	17.7
測定した濃度/ 全溶解時の濃度	0.00057	0.00161