

リン酸ランタン還元・共沈法による  
核種分離コールド基礎試験  
(研究報告)

1999年2月

核燃料サイクル開発機構  
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせ下さい。

〒 319-1194

茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

核燃料サイクル開発機構 東海事業所

運営管理部 技術情報室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Information Section,  
Administration Division,  
Tokai Works,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-33 Muramatu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1194  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

1999

# リン酸ランタン還元・共沈法による 核種分離コールド基礎試験

( 研 究 報 告 )

五十嵐 忠幸<sup>\*\*\*</sup>、福本 雅弘<sup>\*\*</sup>

村田 栄一<sup>\*</sup>、小林 師<sup>\*</sup>、池田 諭志<sup>\*</sup>

## 要 旨

現在、低レベル放射性廃液(以下LLLWという。)から放射性核種を分離・除去処理するために計画されている低放射性廃棄物処理技術開発施設(以下LWTFという。)でのLLLW処理プロセスとして、ヨウ素除去、脱炭酸、鉄共沈、イオン交換、ルテニウム除去の組み合わせたプロセスが採用されている。

ここで、LWTFのLLLW処理プロセスを含め、放射性核種をLLLWから除去する方法を①分離能力、②塩分解への影響、③設備への負担、④廃棄物発生量の4つの観点で比較検討した結果、鉄共沈に変わる方法として、鉄共沈で分離可能な放射性核種に対しては鉄共沈と同等の共沈率が確保でき、かつ鉄共沈では分離が不可能なSrとRuの分離が期待できる、リン酸ランタンによる還元・共沈を考えた。

リン酸ランタンによる還元・共沈法による試験は、ピーカスケールのコールド試験とし、LLLWを模擬した試料(以下模擬廃液という。)をヨウ素除去及び脱炭酸処理を行い、これに評価対象元素(以下評価元素という。)としてCo、Sr、Ru、Cs、Nd、Sm、Euの7元素を添加した試験液と、ルテニウムニトロシルニトロ錯体(400g/dm<sup>3</sup> NaNO<sub>3</sub>溶液ベース)を添加した試験液を用いた。

試験の結果、共沈を起こさなかったCs以外の評価元素の最大共沈率はCoが99.4%以上、Srが99.6%以上、Ruが97.8%(ルテニウムニトロシルニトロ錯体に対しては94.4%)、Ndが99.2%以上、Smが99.2%以上、Euが99.2%以上であった。

試験の結果より、リン酸ランタンによる還元・共沈はLLLWからの放射性核種除去に適用できる可能性があることがわかった。

---

\* 環境技術開発部 環境技術第二開発室

\*\* 環境技術開発部 地層処分開発室

\*\*\* 原子力技術株式会社

## 目 次

1. はじめに	1
2. 分離方法の調査	2
2.1 有機イオン交換	2
2.2 無機イオン交換	2
2.3 溶媒抽出	2
2.4 共沈	3
2.5 比較検討	3
3. 共沈の基本的性質	5
3.1 沈殿生成	5
3.2 沈殿状態	5
3.3 放射性物質の共沈	6
3.4 鉄共沈	6
3.5 リン酸ランタン共沈	6
4. ルテニウム錯体	7
4.1 ルテニウムニトロシルニトрат錯体	7
4.2 ルテニウムニトロシルニトロ錯体	7
4.3 ルテニウム錯体除去方法の検討	7
5. リン酸ランタン還元・共沈試験方法	9
5.1 目的	9
5.2 測定装置	9
5.3 試験液	10
5.4 試験手順	15
5.5 LLLW模擬液を使用した試験	17
5.6 ルテニウムニトロシルニトロ錯体を使用した試験	18
6. 試験結果及び考察	19
6.1 LLLW模擬液を使用した試験	19
6.2 ルテニウムニトロシルニトロ錯体を使用した試験	28

7. おわりに	30
7.1 結論	30
7.2 今後の課題	30
参考文献	31

## 図 表 一 覧

図5-1 LLLW模擬液作成方法	13
図5-2 XRD分析結果(AgCl)	14
図5-3 リン酸ランタン還元・共沈試験手順	16
図6-1 XRD分析結果(LaPO <sub>4</sub> )	21
図6-2 静置温度とルテニウム共沈率の関係	22
図6-3 還元剤添加量とルテニウム共沈率の関係	24
図6-4 静置時間とルテニウム共沈率の関係	26
図6-5 静置温度とルテニウム共沈率の関係	29
表2-1 分離方法の比較	4
表4-1 一般的な無機還元剤	8
表5-1 模擬廃液の組成	12
表5-2 LLLW模擬液中の評価元素濃度	12
表6-1 共沈剤添加量と評価元素共沈率の変化	19
表6-2 還元剤と評価元素共沈率の変化	20
表6-3 還元剤添加量と評価元素共沈率の変化	23
表6-4 静置時間と評価元素共沈率の変化	25
表6-5 各還元剤のpH調整後及びろ過後のEh (V <sub>SHE</sub> )	27
表6-6 試験液とルテニウム共沈率の変化	28

## 1. はじめに

低放射性廃棄物処理技術開発施設(以下LWTFという。)で低レベル放射性廃液(以下LLLWという。)から放射性核種を除去する上で重要となる核種はSr、Zr、Ru、Sb、I、Cs、Ce、U、Pu、Amである。現在、これらの元素を分離・除去する方法として以下の処理を組み合わせたプロセスで、LWTFの設計、建設が進められている。

### (1) ヨウ素除去処理

$IO_3^-$ を亜硫酸ナトリウムを使いI<sup>-</sup>に還元し、硝酸銀を添加することでI<sup>-</sup>をAgIとして分離・除去する。

### (2) 脱炭酸処理

UはLLLW中で炭酸ウラニルとして存在しているため、共沈では分離できない。そのため、共沈の前処理として、溶液のpHを1に調整した後、液温を80℃に保ちながらバブリングを行い炭酸イオンを除去する。

### (3) 共沈処理

硝酸第二鉄を添加し、pHを調整することにより水酸化第二鉄を沈殿として生成させて元素を分離・除去する。

### (4) イオン交換処理

共沈工程で分離・除去が困難なSr、Csをチタン酸塩、ヘキサシアノ鉄酸コバルトカリウムを主成分にしたイオン交換体を使用して分離・除去する。

これまで、上記プロセスによる試験を実施してきたが、Ruに対し十分な除去性能を確保できないことがわかっている。そのため、Ruの除去性能を向上するための新たな処理法を現状設計を活かしつつ上記プロセスに付加することが考えられている。

リン酸ランタン共沈は、鉄共沈で分離可能な放射性核種に対しては鉄共沈と同等以上の共沈率を確保でき、還元剤の添加により、鉄共沈では分離が難しいRuを共沈させることが可能である。また、鉄共沈では分離が難しいSrの分離が可能で、かつリン酸廃液にも適用できる。現在のプロセスとリン酸ランタン還元・共沈を比較すると以下のメリットがあげられる。

(1) 鉄共沈で分離が困難な、Sr及びRuの同時分離ができる。

(2) 鉄共沈よりプロセス全体が簡略化するため、廃棄物の発生量が減少する。

(3) リン酸が混入したLLLWの処理が可能である。

以上から、リン酸ランタンによる還元・共沈は、鉄共沈より設備に対する負担が軽減されることが予想される。

## 2. 分離方法の調査

溶液からの放射性核種及び元素の分離方法のうち、原子力産業及び工業界で一般的な分離方法の特徴を以下に示す。

### 2.1 有機イオン交換体<sup>12)</sup>

#### (1) 長所

イオン交換体特有なイオン収着選択性を持っているため、多様な化学的性質を持っている溶液から目的のイオンを選択分離できる。また、イオン交換体を作製する場合、粒径の統一、スキン・コア等の加工ができる。

#### (2) 短所

有機物を材料に作製しているため、イオン交換体自身が放射線に弱いものがある。そのため、有機物の分解によるガスの発生、元素の遊離等の問題が生じる可能性がある。

減容効果はあまり期待できない。

塩濃度の高い廃液処理には適さないイオン交換体が多い。

### 2.2 無機イオン交換体<sup>13)</sup>

#### (1) 長所

イオン交換体特有なイオン収着選択性を持っているため、多様な化学的性質を持っている溶液から目的のイオンを選択分離できる。また、薬品、放射線、熱に抵抗力の強いものが多い。

#### (2) 短所

動的イオン交換は、テーリング、チャネリング等により予定のイオン交換容量の確保が難しい。

### 2.3 溶媒抽出<sup>13)</sup>

#### (1) 長所

抽出用溶媒は特異的なイオン選択性を持っているため、多様な化学的性質を持っている溶液から目的のイオンを選択分離できる。

#### (2) 短所

分離に適切な抽出条件の選定、把握及び高速抽出装置の開発が必要である。また、操作条件の変動による抽出率の低下が予想されるため、操作条件の変更が難しい。

抽出用溶媒からの抽出イオンの逆抽出、廃溶媒の処理等が必要なため、処理設備及び処理施設の負荷が大きい。



## 2.4 共沈<sup>(1)(2)(3)</sup>

### (1) 長所

沈殿生成方法、生成した沈殿の状態等の選定によって目的イオンの分離が可能である。そのため、大量の廃液、固形物や塩濃度の高い廃液の処理が可能である。

### (2) 短所

目的イオンを共沈させるための操作条件の選定、把握が必要である。また、操作条件の変動による共沈率の低下が予想されるため、操作条件の変更が難しい。

## 2.5 比較検討

各分離方法の特徴を比較検討した結果、

- (1) 大量の廃液の処理が可能
- (2) 固形物濃度や塩濃度の高い廃液の処理が可能
- (3) 分離できる放射性核種の種類が多い

といった特徴を有する共沈処理が適当であり、これを改善することでさらなる高度化が可能であると考えた。

分離方法を比較検討した結果を表2-1に示す。

表2-1 分離方法の比較

	分離能力	塩分解 <sup>*</sup> への影響	設備への負担	廃棄物発生量
有機イオン交換	◎ (DF>10 <sup>3</sup> )	○	△	×
無期イオン交換	◎ (DF>10 <sup>3</sup> )	○	△	×
溶媒抽出	○ (DF>10 <sup>3</sup> )	△	×	△
共沈	○ (DF>10 <sup>3</sup> )	△	○	○

◎問題なし ○問題がある可能性少 △問題がある可能性大 ×問題あり

#### 比較方法

##### 1) 分離能力

除染係数 (DF) を比較した。

##### 2) 塩分解<sup>\*</sup>への影響

処理工程を終了した処理済液中に、塩分解に影響を与える元素(陰イオン、夾雑物等)が残存する可能性を比較した。

##### 3) 設備への負担

処理工程を実現するために必要な設備、スペース等を想定して比較した。

##### 4) 廃棄物発生量

処理工程から発生する廃棄物(二次廃棄物も含む)の量及びその廃棄物の減容効果等を想定して比較した。

※ 塩分解とは、LLLWから放射性核種を分離した後の硝酸ナトリウム溶液を、硝酸及び水酸化ナトリウムに分解して再利用するプロセスを指している。

### 3. 共沈の基本的性質

#### 3.1 沈殿生成<sup>4)</sup>

ある化合物のイオン強度の積がその溶解度積定数を越え、沈殿が生じはじめると、核と呼ばれる多数の小さな粒子が生成される。最初に生じたこれら粒子の上に沈殿がつづいて起こり、そのため粒子は大きく成長して溶液から沈降する。沈殿の生成過程において可溶性の物質またはイオンが沈殿と共に沈降することを共沈という。

共沈は、不純物が沈殿の結晶格子の中に実際に入り込む混晶、イオンが凝集の過程で沈殿物に引き寄せられる吸着、沈殿が沈降した後に不純物が沈積する後沈に大きくわけられる。

#### 3.3.1 沈殿生成条件

R. A. ディー Jr. らによると、粒子の凝集は粒子表面の電気二重層の電位分布、粒子のブラウン運動、攪拌等による乱流変動、ファン・デル・ワールスの力、粒子表面の水和によって支配され、吸着による共沈は、粒子表面への特異吸着、または電気二重層への吸着により支配されるとしている。<sup>4)</sup>

このことより、液中には正イオンあるいは負イオンを核とした電荷を帯びた原子または分子の集合体であるクライスターイオンの生成が考えられ、これが共沈に関係していると思われる。よって、沈殿物粒子の核の形成速度が関係してくる。つまり、沈殿物粒子の核を形成するときに見える電気二重層の状態が共沈に影響を及ぼすと考えられる。また、沈殿の粒度分布、核の形成とその核の成長という現象の相対的な速度に左右される。これらより以下の項目を操作条件としてあげることができる。

- (1) 沈殿剤濃度
- (2) 沈殿剤添加速度
- (3) 沈殿形成温度
- (4) 熟成時間
- (5) pH(水素イオン濃度)
- (6) 溶液中の濃度分布

#### 3.2 沈殿状態<sup>4)</sup>

##### (1) 結晶性沈殿

粒子が小さいときに不純物を吸着し、粒子が成長する過程で、不純物は結晶の中に閉じこめられる。この場合は、固体が不純物を取り囲んで生成したため吸蔵と呼ばれ、沈殿を洗浄しても不純物は除去できない。

##### (2) 凝乳状沈殿

初期の粒子に不純物は吸着されるが、粒子は大きく成長しないため、コロイ

ド状物質が凝結して生じた凝乳状の塊として沈殿する。ここで、粒子は大きな格子構造を形成しようとしないうえ、多種のイオンを閉じこめる吸蔵は起こらない。ただし、コロイド周辺の水のジャケットを共有することでゆるんだ塊を形成することがある。また、沈殿が微細な粒子でできているため、これら粒子の表面に吸着されている不純物は、洗浄により除去できる。

### (3) ゼラチン状沈殿

初期粒子の大きさは、凝乳状沈殿よりはるかに小さい。そのため、沈殿は溶液にさらされている表面積がきわめて大きく、熟成により多量の水及び広範囲の多種イオンの吸着が起こる。凝集した初期粒子は安易に大きな結晶に成長しないため、不純物は吸蔵ではなく、小さな粒子の表面に吸着されて保有される。

## 3.3 放射性物質の共沈<sup>1)</sup>

廃液中に含まれる放射性物質の重量は極めて小さいので、沈殿剤を加えて除去しようとしても完全には除去できない。これは、放射性物質が容器の表面に吸着されたり、ラジオコロイドになったりして、通常用いられる濃度範囲(常用量)のイオンとは多くの点で全く異なる行動を示すからである。このような行動を防ぐため、放射性物質の安定同位体を担体として適当量加えると、放射性物質は担体と同じ行動をする。通常、共沈は目的の放射性物質と違う安定同位体を用いることが多いが、放射性物質と同じ安定同位体である担体を沈殿させることにより、担体が放射性物質を誘って沈殿させる手法もあり、これを同位体担体による共沈という。

## 3.4 鉄共沈<sup>2)</sup>

イオン状態で存在する放射性核種は、主として水酸化第二鉄粒子の表面に吸着されると考えられるため、固体粒子に吸着する陽イオン量は特異吸着層及びそれより外側の拡散二重層の状態によって左右される。そのため、水酸化第二鉄粒子の界面電位の変化によって放射性核種の共沈率は変化すると考えられる。ここで、水酸化第二鉄の水中における電荷状態はわずかに解離する数種のヒドロキソ鉄(Ⅲ)イオンの生成量(pHによって支配される)に依存する。すなわち、溶液のpHの変化によって生成するヒドロキソ鉄(Ⅲ)イオンが粒子の表面に吸着し、粒子は正または負に電荷する。純粋中であれば、 $\text{Fe}(\text{OH})_2^+$ 及び $\text{Fe}(\text{OH})_3^+$ の両錯イオンが等量を示す点はpH=8.5である。

## 3.5 リン酸ランタン共沈<sup>3)</sup>

再処理工場から発生するリン酸廃液を使用した試験の結果よりPu(DF $\geq 10^4$ )<sup>4)</sup>、3.53mol/dm<sup>3</sup> NaNO<sub>3</sub>溶液に<sup>241</sup>Am及び<sup>85</sup>Srを添加した試験の結果よりAm(DF $\geq 10^3$ )<sup>5)</sup>、Sr(DF $\geq 10^2$ )<sup>6)</sup>の共沈率が報告されている。ただし、水酸化ランタンはSrを共沈で分離できない。

リン酸ランタンは結晶質であるLaPO<sub>4</sub>及びLa<sub>4</sub>(P<sub>2</sub>O<sub>7</sub>)<sub>3</sub>として沈殿を形成する。

## 4. ルテニウム錯体

ルテニウムは溶液中では種々の化学形態で存在するといわれており、特に硝酸溶液中では複雑なニトロシル系錯体を形成する。ここで、硝酸及び亜硝酸のみを含む水溶液では、 $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{OH}^-$ 、 $\text{H}_2\text{O}$ がルテニウム錯体の配位子となるため、これらの配位子を考慮したうえで、再処理工程で生成すると考えられるルテニウムニトロシルニトрат錯体及びルテニウムニトロシルニトロ錯体の特性を調査した。そして、調査結果をふまえ、除去が難しいといわれているルテニウム錯体の除去方法を検討した。

### 4.1 ルテニウムニトロシルニトрат錯体<sup>10)</sup>

ルテニウムのニトロシル化合物であるニトрат錯体は、 $\text{RuO}_4$ またはRu-Alloyを窒素酸化物及び硝酸で処理することにより調製される。希硝酸中では、初期にニトロ錯体が形成されるが、濃硝酸中で沸騰されることにより、ニトрат錯体に変換される。トリニトрат錯体及び低ニトрат錯体の混合物は、減圧下の蒸発濃縮により、この溶液から分離できる。水中または、希硝酸溶液中では、トリニトрат錯体はジまたはモノニトрат錯体へ測定可能なスピードで加水分解する。これらのニトрат錯体は温希酸中で $\text{NO}$ - $\text{NO}_2$ 混合物等により置換することが可能である。

### 4.2 ルテニウムニトロシルニトロ錯体<sup>10)</sup>

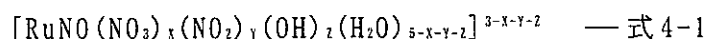
ルテニウムのニトロシル化合物であるジニトロ錯体は希温酸中で安定に形成される。そのため、2つのニトロ基はpH7以下で $\text{NaNO}_2$ により誘導できる。ニトロ錯体はニトрат錯体より安定で、いったん生成されると分解することが難しいが、pH11以上のアルカリ溶液中で沸騰させたときは全てのニトロ基がはじき出され、ニトロシルルテニウム水酸化物が形成される。

### 4.3 ルテニウム錯体除去方法の検討<sup>10)</sup>

ルテニウムは、LLLW中で存在していると言われる錯体の中で特にルテニウムニトロシルニトロ錯体が含まれているために共沈率が低下すると考えている。そこで、ニトロ基を酸化または還元することが考えられるが、酸化は揮発性の $\text{RuO}_4$ を生成してしまうため、ニトロ基を還元しルテニウムを除去することが適切であると考えられる。

ニトロ基の還元を考えたとき、酸性条件では $\text{H}^+$ が反応にさらに関与し、アミノ基が生成される可能性がある。また、アルカリ条件では $\text{OH}^-$ が反応に関与し、ニトロシル基の縮合が起こる可能性がある。そのため、ニトロ基をニトロシルまたは $\text{N}$ に還元するためには、中性域が適していると考えられる。ただし、ルテニウム錯体は酸性でCationic Formが、アルカリ性でAnionic Formが、弱酸性、中性及び弱アルカリ性ではCationic Form、Neutral Form、Anionic Formの混合が支

配すると考えられるため、還元剤添加方法、pH調整、静置時間等の操作方法にはじゅうぶんな注意が必要である。参考にルテニウムニトロシル系錯体の一般式を式4-1に記載しておく。



ニトロ基を還元するための還元剤は、表4-1に記載してある無機還元剤から、危険性、塩分解に影響を与えるイオンの残存する可能性等を考慮し、鉄粉(Fe)、硝酸ヒドロキシルアミン(HAN)、水素化リチウムアルミニウム(LiAlH<sub>4</sub>)の3種を選定した。

表4-1 一般的な無機還元剤

還元剤	化学式	問題点
亜鉛粉	Zn	自然発火性
鉄粉	Fe	アルカリ性で還元力低下
すず	Sn	毒性
白金	Pt	高価、粉末状物は引火性
金属ナトリウム	Na	空気中で急速に酸化
Raneyニッケル		自然発火性
ヒドラジン	H <sub>2</sub> NNH <sub>2</sub>	ニトロ基の分解時にアジ化水素を発生
硝酸ヒドロキシルアミン(HAN)	NH <sub>2</sub> (OH)HNO <sub>3</sub>	熱分解によりアミノ基が生成
チオ硫酸ナトリウム	Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	酸性で硫黄が分離し亜硫酸根を生成
水素化ホウ素ナトリウム	NaBH <sub>4</sub>	水と反応して水素ガスを発生、引火性
水素化ナトリウムアルミニウム	NaAlH <sub>4</sub>	水に接触すると発火の危険性
水素化リチウムアルミニウム	LiAlH <sub>4</sub>	水と反応して水素ガスを発生、引火性

## 5. リン酸ランタン還元・共沈試験方法

LLLWからの放射性核種除去に、リン酸ランタンによる還元・共沈が適用できる可能性及び基本的な操作条件を把握するため、共沈剤添加量、還元剤の種類、還元剤添加量及び静置時間をパラメータとしてLLLW模擬液を用いた試験を実施した。ここで、ルテニウム錯体は分析方法が確立されていないため、LLLW模擬液中ではルテニウム錯体の形態が特定できない。そのため、ルテニウムについては、再処理工程で生成すると考えられるルテニウムニトロシルニトロ錯体でルテニウムの形態を代表させ、このルテニウムニトロシルニトロ錯体溶液を用いた試験を追加した。

本試験での室温は23℃であった。

試験の結果にある共沈率は式5-1を使用して計算した。

$$\text{共沈率(\%)} = \frac{(\text{試験液中の元素濃度} - \text{吸引ろ過液中の元素濃度})}{\text{試験液中の元素濃度}} \times 100 \quad \text{—式5-1}$$

### 5.1 目的

LLLWからの放射性核種除去に、リン酸ランタンによる還元・共沈が適用できる可能性を判断すると同時に、基本的な操作条件を把握する。

### 5.2 測定装置

#### (1) pH

横河電機株式会社製 Model pH81 電極 K9220YA

分解能 : 0.01pH

再現性 :  $\pm 0.01\text{pH} \pm 1\text{digit}$  (pHメータ本体のみ)

#### (2) Eh(酸化還元電位)

ORP計 横河電機株式会社製 Model pH82 電極 K9220YL

分解能 : 1mV

再現性 :  $\pm 1\text{mV} \pm 1\text{digit}$  (pHメータ本体のみ)

ORP計の vs. SHEへの換算は式5-2を参照

参照電極 : Ag/AgCl (3.3mol/dm<sup>3</sup> KCl溶液)

$$E(V_{\text{SHE}}) = E(V_{\text{Ag/AgCl}}) + 0.202 \quad \text{—式5-2}$$

#### (3) 元素濃度

##### ① 誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-AES)

セイコー電子工業株式会社製 SPS-7000A

逆線分散 : 0.227nm/mm (270nm)

波長停止再現性 :  $\pm 0.001\text{nm}$

② 原子吸光フレイム分光光度計

株式会社島津製作所製 AA-670

炎の種類 : AIR-C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>

1%吸収濃度 : 0.4mg/dm<sup>3</sup>

(4) 結晶分析

X線回折システム(XRD)

日本電子株式会社製 JDX-8030W

ターゲット : Cu

ステップ角度 : 0.020°

管電圧 : 40kV

管電流 : 30mA

発散スリット : 1°

受光スリット : 0.2mm

散乱スリット : 1°

測角精度 : ±0.01°(2θ)

シンチレータ : NaI(Tl) 25.4mmφ × 3mmt

エネルギー分解能 : 55%以下

計数率計直線性 : ±0.5%以内(フルスケール)

計数率計精度 : ±0.5%以内

5.3 試験液

試験液はLLLW模擬液及びルテニウムニトロシルニトロ錯体溶液の2種類を作製した。

(1) LLLW模擬液

LLLWの共沈処理では、ヨウ素は除去できないため、ヨウ素除去処理は必要である。また、共沈処理の前処理である脱炭酸処理も必要である。そのため、LLLW模擬液に添加する評価元素は、LLLWをヨウ素除去及び脱炭酸処理した後の液に残存している放射性核種を考慮して決定した。

添加量に関しては、本試験はコールド試験であり、LLLWと同等の濃度領域に設定することは化学分析の定量下限値等の関係から評価が困難になるため、化学分析可能な濃度とした。

以上から、模擬廃液をヨウ素除去及び脱炭酸処理した液に、評価元素としてCo、Sr、Ru、Cs、Nd、Sm、Euを添加して試験液とした。ここで、Nd、Sm、EuはU、Pu、Amの模擬として、CoはLWTFで設計している処理プロセスで除去対象としていない放射性核種であるが、LLLWに存在し、除去できないと塩分解に影響を与える核種であるために選定した。

ルテニウム錯体は、市販されているエヌ・イー ケムキャット株式会社製 RuNO(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>2</sub>溶液を、模擬廃液をヨウ素除去及び脱炭酸処理した後の液に添加し、NaOH溶液でpHを7に調製してニトラト錯体が弱いものを非晶質である



$\text{RuNO}(\text{OH})_3$ として沈殿させ、沈殿物をろ過後、他の評価元素を添加し、硝酸でpHを1に調製したものを試験液とした。

表5-1に模擬廃液の組成を示す。

表5-2にLLLW模擬液中の評価元素濃度を示す。

図5-1にLLLW模擬液作製方法のフロー図を示す。

沈殿が生成するとは考えにくい脱炭酸処理中に沈殿が生成した。この沈殿はXRD分析の結果、 $\text{AgCl}$ であることがわかった。図5-2にXRD分析結果を示す。

以下に沈殿が生成した過程に関する考察を示す。

模擬廃液の成分として存在しない $\text{Cl}^-$ イオンが混入した原因は、試験液中に $\text{K}^+$ イオンの存在が確認できたため、pH計等のガラス電極であると考えられる。ガラス電極は電極内部液と測定溶液の電位差を測定するため、 $\text{KCl}$ 溶液は液絡部を介して測定溶液と電氣的に接触させる必要がある。そのため、 $\text{KCl}$ 溶液が液中に浸出し、液中に残存している $\text{Ag}^+$ イオンと反応することにより $\text{AgCl}$ 沈殿を生成してしまうことになる。ちなみに、 $\text{KCl}$ 溶液補給形での $\text{KCl}$ 溶液消費量は $3 \times 10^{-3} \text{dm}^3/\text{d}$ 以下( $0.1 \text{kg}/\text{cm}^2$ 加圧)である。

## (2) ルテニウムニトロシルニトロ錯体溶液

$\text{RuNO}(\text{NO}_2)_3(\text{H}_2\text{O})_3$ 溶液(Rose Red Solution)に $\text{NaNO}_2$ をルテニウム量の6倍mol添加し、 $55 \pm 5^\circ\text{C}$ に維持しながら1時間攪拌し、室温に自然冷却した後、沈殿物をろ過した。このろ液を $400 \text{g}/\text{dm}^3$   $\text{NaNO}_3$ 溶液に添加し、pHを1に調整したものを試験液とした。

ろ液であるルテニウムニトロシルニトロ錯体(Yellow Solution)はpHを7に調整しても、沈殿の生成はみられなかった。

試験液中のルテニウム濃度は $225 \text{mg}/\text{dm}^3$ であった。

表5-1 模擬廃液の組成

成分	濃度	成分	濃度	成分	濃度
NaNO <sub>3</sub>	233g/dm <sup>3</sup>	B	86mg/dm <sup>3</sup>	Zn	16mg/dm <sup>3</sup>
NaNO <sub>2</sub>	44g/dm <sup>3</sup>	Mg	116mg/dm <sup>3</sup>	Sr	5mg/dm <sup>3</sup>
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	88g/dm <sup>3</sup>	Al	110mg/dm <sup>3</sup>	Zr	5mg/dm <sup>3</sup>
NaOH	45g/dm <sup>3</sup>	Si	235mg/dm <sup>3</sup>	Nb	5mg/dm <sup>3</sup>
		Ca	33mg/dm <sup>3</sup>	Ru	5mg/dm <sup>3</sup>
		Ti	9mg/dm <sup>3</sup>	I	150mg/dm <sup>3</sup>
		V	10mg/dm <sup>3</sup>	Cs	5mg/dm <sup>3</sup>
		Cr	24mg/dm <sup>3</sup>	Ce	5mg/dm <sup>3</sup>
		Mn	61mg/dm <sup>3</sup>	Nd	5mg/dm <sup>3</sup>
		Fe	448mg/dm <sup>3</sup>	Sm	5mg/dm <sup>3</sup>
		Co	5mg/dm <sup>3</sup>	Eu	5mg/dm <sup>3</sup>
		Ni	72mg/dm <sup>3</sup>	TBP	20mg/dm <sup>3</sup>
		Cu	12mg/dm <sup>3</sup>	消泡剤*	1000mg/dm <sup>3</sup>

\* 栗田工業製「クリレス S-115」

表5-2 LLLW模擬液中の評価元素濃度

Co	Sr	Ru	Cs	Nd	Sm	Eu
84mg/dm <sup>3</sup>	152mg/dm <sup>3</sup>	231mg/dm <sup>3</sup>	158mg/dm <sup>3</sup>	128mg/dm <sup>3</sup>	136mg/dm <sup>3</sup>	133mg/dm <sup>3</sup>

模擬廃液

pH=14

↓

UFろ過

分画分子量300000のカーボン母体酸化ジルコニウム膜(フランス

↓

TECH-SEP社製「カーボセップ膜 M9」)を使用

ヨウ素除去

pH=10に調整 62wt% HNO<sub>3</sub>添加速度 6.0×10<sup>-2</sup>dm<sup>3</sup>/dm<sup>3</sup>-廃液・h

AgNO<sub>3</sub>添加 添加量 0.4g/dm<sup>3</sup>-廃液

5min攪拌

pH=7に調整 62wt% HNO<sub>3</sub>添加速度 6.0×10<sup>-2</sup>dm<sup>3</sup>/dm<sup>3</sup>-廃液・h

Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>添加 添加量 6g-Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>/dm<sup>3</sup>-廃液 (80g-Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>/dm<sup>3</sup>水溶液を使用)

4h攪拌

↓

UFろ過

分画分子量6000のポリスルホン系UF膜(旭化成工業製「SIP-0013」)を使用

↓

脱炭酸

pH=1に調整 62wt% HNO<sub>3</sub>添加速度 6.0×10<sup>-2</sup>dm<sup>3</sup>/dm<sup>3</sup>-廃液・h

バブリング (2.5dm<sup>3</sup>-air/dm<sup>3</sup>-廃液・min) + 加温 (80℃) 2h保持

↓

吸引ろ過

0.45μmのガラスフィルターを使用

↓

ルテニウム錯体添加

RuNO(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>2</sub>溶液を使用

↓

RuNO(OH)<sub>3</sub>沈殿物生成

pH=7に調整 10mol/dm<sup>3</sup> NaOH溶液添加

↓

吸引ろ過

0.45μmのガラスフィルターを使用

↓

Co、Sr、Cs、Nd、Sm、Eu添加 (硝酸塩を使用)

↓

pH=1に調整

62wt% HNO<sub>3</sub>添加

図5-1 LLLW模擬液作製方法

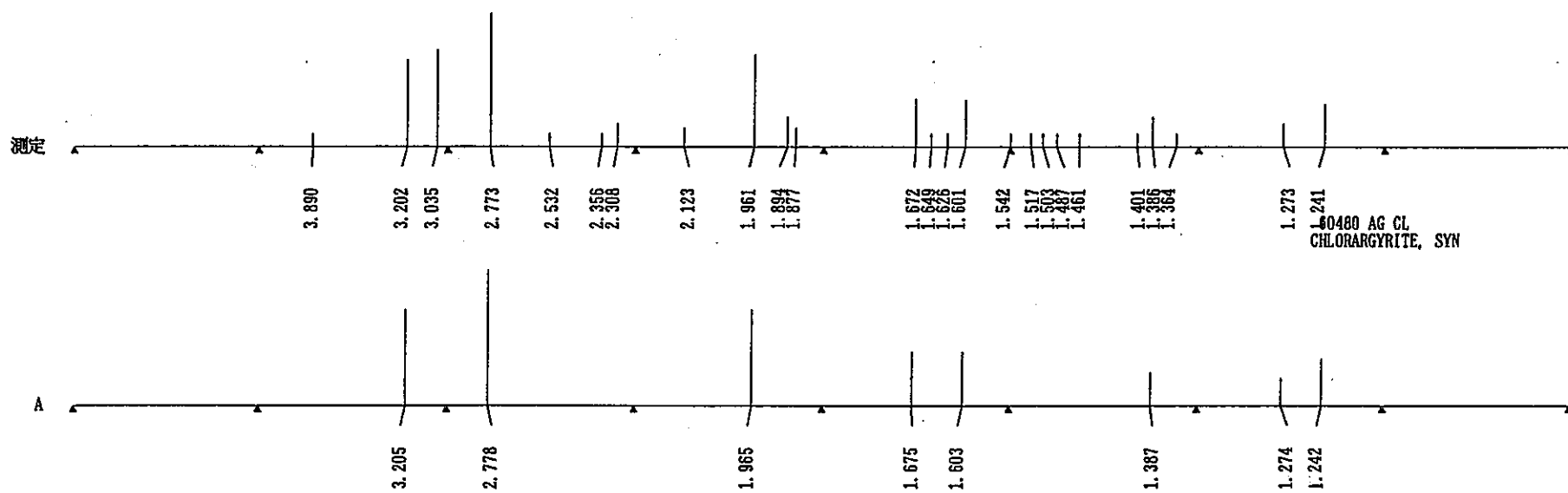
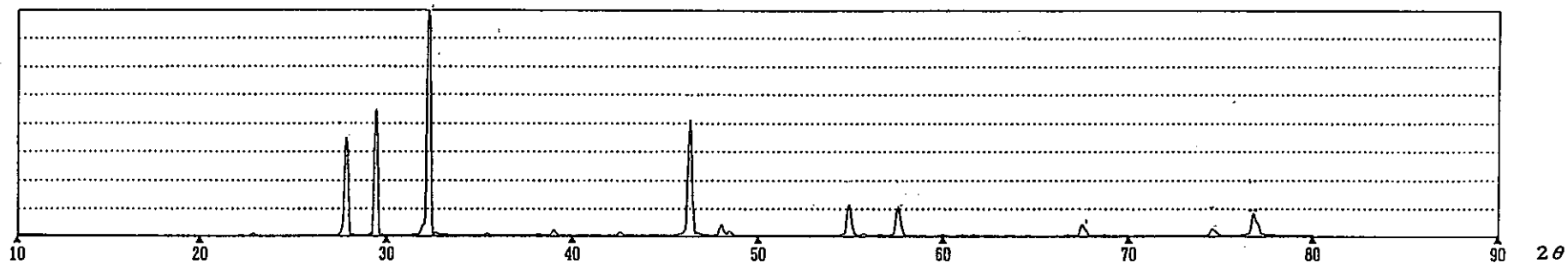


图 5-2 XRD分析結果 (AgCl)

#### 5.4 試験手順

試験液 $0.2\text{dm}^3$ をメスシリンダーで採取した後ガラスビーカに移し、マグネチックスターラで試験液を攪拌しながら、電子上皿天秤で採取したリン酸、還元剤及び硝酸ランタンを試験液に順番に添加した。

pH調整は、マグネチックスターラで試験液を攪拌しながら、水酸化ナトリウム $1\text{mol}$ を電子上皿天秤で採取したものを蒸留水 $0.1\text{dm}^3$ に溶解した $10\text{mol}/\text{dm}^3$  NaOH溶液を、マイクロピペットで試験液に滴下する方法で行った。

静置温度の調整で $70^\circ\text{C}$ は、水を循環させることによりセンサー感応で水温を調節できるヒータ式加温装置で水温を $70^\circ\text{C}$ に調整したウォーターバスに、試験液の入っているガラスビーカを浸漬することにより行った。

図5-3にリン酸ランタン還元・共沈試験手順のフロー図を示す。

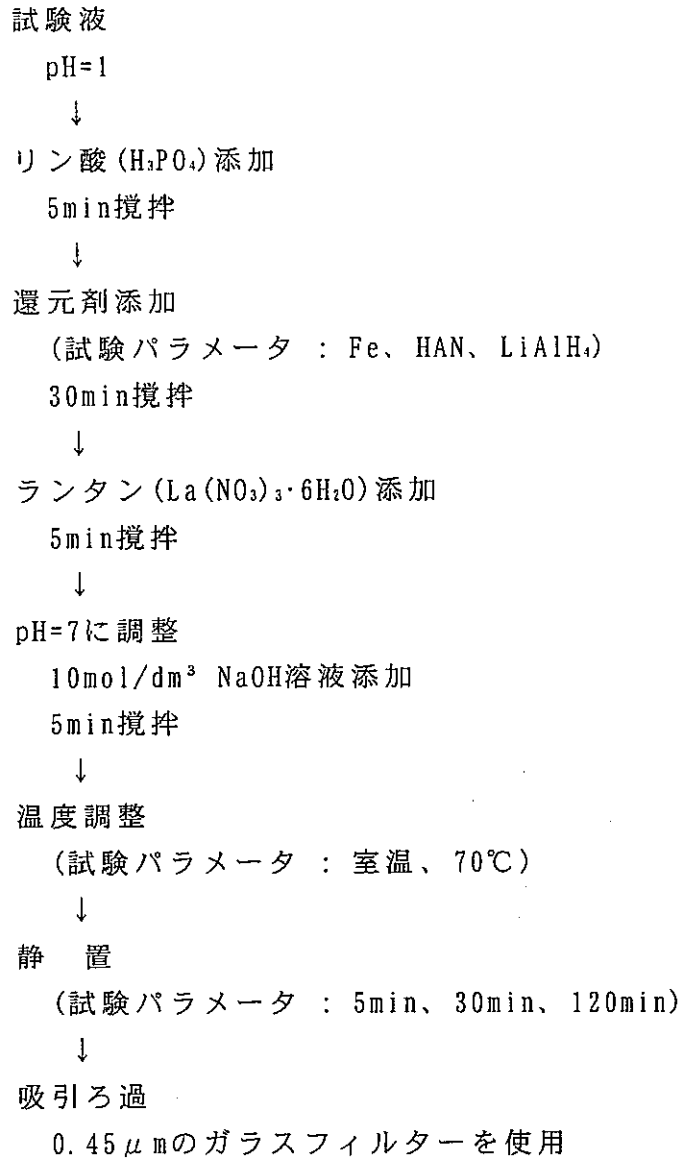


図5-3 リン酸ランタン還元・共沈試験手順

## 5.5 LLLW模擬液を使用した試験

還元剤の添加量は、LLLWをヨウ素除去及び脱炭酸処理した後の液中に残存している亜硫酸量より決定した。ここで、残存亜硝酸量は過去の調査及びホット試験及びコールド試験の分析結果より $0.3\text{g}/\text{dm}^3$ であることがわかっているため、残存亜硝酸量を $6.52 \times 10^{-3}\text{mol}/\text{dm}^3$ とし、還元剤の添加量は残存亜硝酸の何倍molに相当するかで評価した。

## 5.5.1 共沈剤添加量の比較

リン酸ランタン還元・共沈試験を実施するにあたり、ランタン添加量の把握を行った。

## 試験条件

還元剤：なし

リン酸添加量：ランタン添加量の5倍mol

ランタン添加量： $3.6 \times 10^{-3}\text{mol}/\text{dm}^3$ 、 $3.6 \times 10^{-2}\text{mol}/\text{dm}^3$

静置時間：120min

静置温度：室温、 $70^\circ\text{C}$

## 5.5.2 還元剤の比較

ルテニウム錯体の除去に最適な還元剤を選定するため、3種類の還元剤を用いた試験を実施した。

還元剤の添加量は残存亜硝酸の5倍molに設定したが、水素化リチウムアルミニウム1分子は化学量論的に考えると最大4個の $\text{H}^+$ が還元消費されるため、水素化リチウムアルミニウム添加量は残存亜硝酸量の2.5倍molとした。

## 試験条件

還元剤：鉄粉 (Fe)

30% 硝酸ヒドロキシルアミン溶液 (HAN =  $\text{NH}_2(\text{OH})\text{HNO}_2$ )

水素化リチウムアルミニウム ( $\text{LiAlH}_4$ )

還元剤添加量：Fe、HAN =  $3.3 \times 10^{-3}\text{mol}/\text{dm}^3$  (残存亜硝酸量の5倍mol)

$\text{LiAlH}_4$  =  $1.65 \times 10^{-2}\text{mol}/\text{dm}^3$  (残存亜硝酸量の2.5倍mol)

リン酸添加量：ランタン添加量の5倍mol

ランタン添加量： $3.6 \times 10^{-2}\text{mol}/\text{dm}^3$

静置時間：120min

静置温度：室温、 $70^\circ\text{C}$

## 5.5.3 還元剤添加量の比較

還元剤の添加量に対するルテニウム錯体の共沈率を把握するため鉄粉及び水素化リチウムアルミニウムを用いて試験を実施した。

## 試験条件

還元剤 : 鉄粉 (Fe)

水素化リチウムアルミニウム ( $\text{LiAlH}_4$ )

還元剤添加量 : Fe =  $6.6 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$  (残存亜硝酸量の10倍mol)

$\text{LiAlH}_4$  =  $3.3 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$  (残存亜硝酸量の5倍mol)

リン酸添加量 : ランタン添加量の5倍mol

ランタン添加量 :  $3.6 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$

静置時間 : 120min

静置温度 : 室温(鉄粉のみ)、70℃

## 5.5.4 静置時間の比較

静置時間に対する評価元素の共沈率を把握するため、上記試験でルテニウム錯体の共沈率が高い鉄粉を用いて試験を実施した。

## 試験条件

還元剤 : 鉄粉 (Fe)

還元剤添加量 : Fe =  $3.3 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$  (残存亜硝酸量の5倍mol)

リン酸添加量 : ランタン添加量の5倍mol

ランタン添加量 :  $3.6 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$

静置時間 : 5min、30min

静置温度 : 室温、70℃

## 5.6 ルテニウムニトロシルニトロ錯体を使用した試験

LLLWからのルテニウム共沈率低下の原因と思われるルテニウムニトロシルニトロ錯体に対するリン酸ランタンによる還元・共沈の効果を確認するため、図5-2に示すフロー図に従い試験を実施した。

## 試験条件

試験条件はLLLW模擬液を使用した試験で得た結果をもとに決定した。ここで、試験液中の亜硝酸量は最大 $0.6 \text{g/dm}^3$ であるため、還元剤である鉄粉の添加量は最低でも試験液中の亜硝酸量の5倍molとなる。

還元剤 : 鉄粉 (Fe)

還元剤添加量 : Fe =  $6.6 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$

リン酸添加量 : ランタン添加量の5倍mol

ランタン添加量 :  $3.6 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$

静置時間 : 120min

静置温度 : 室温、70℃



## 6. 試験結果及び考察

### 6.1 LLLW模擬液を使用した試験

本試験方法では、Csの分離は不可能であった。そのため、試験結果及び考察でのCsの評価は行っていない。

#### 6.1.1 共沈剤添加量の比較

##### (1) 結果

表6-1に共沈剤添加量と評価元素共沈率の変化を示す。

##### (2) 考察

ランタン添加量が $3.6 \times 10^{-3} \text{mol/dm}^3$ ではCo、Srが有意値で検出されたが、ランタン添加量が $3.6 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$ では検出下限値( $0.5 \text{mg/dm}^3$ )以下であった。そのため、還元・共沈によるルテニウム錯体除去試験でのランタン添加量はSrの約20倍molに相当する $3.6 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$ とした。

表6-1 共沈剤添加量と評価元素共沈率の変化

ランタン添加量	静置温度	Co	Sr	Ru	Nd	Sm	Eu
$3.6 \times 10^{-3} \text{mol/dm}^3$	室温	98.2%	82.2%	44.9%	$\geq 99.2\%$	$\geq 99.2\%$	$\geq 99.2\%$
	70℃	99.4%	92.7%	53.0%	$\geq 99.2\%$	$\geq 99.2\%$	$\geq 99.2\%$
$3.6 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$	室温	$\geq 99.4\%$	$\geq 99.6\%$	20.4%	$\geq 99.2\%$	$\geq 99.2\%$	$\geq 99.2\%$
	70℃	$\geq 99.4\%$	$\geq 99.6\%$	40.8%	$\geq 99.2\%$	$\geq 99.2\%$	$\geq 99.2\%$

## 6.1.2 還元剤の比較

## (1) 結果

表6-2に還元剤と評価元素共沈率の変化を示す。

図6-1に沈殿のXRD分析結果を、図6-2に静置温度とルテニウム共沈率の関係を示す。

## (2) 考察

ルテニウム錯体の共沈率を3種類の還元剤で比較した結果、HANが約70%、水素化リチウムアルミニウムが約80%、鉄粉が約90%であった。ここで、HANは分解等により、NO<sub>x</sub>ガスの発生、アミノ基、ニトロ基等の生成が起り、廃液組成や処理に影響を与える可能性が考えられ、かつ共沈率も低いため、還元剤の候補から除外することとした。

また、図5-3の静置温度と共沈率を比較すると、室温より70℃のほうが共沈率が高いことがわかった。これは、下記のことから原因である可能性が高いと考えている。

- ① 溶液系は温度が高くなれば電気抵抗が低くなるため、ルテニウム錯体の還元反応が促進した。または、イオンの泳動速度が上昇し、ルテニウムを吸着及び吸蔵により共沈する速度が増加した。
- ② 溶液の対流が起り、ルテニウムを吸着及び吸蔵により共沈する速度が増加した。
- ③ ルテニウム錯体は高温で加水分解を起こす。この加水分解生成物は重合して沈殿するため、ルテニウム錯体の加水分解が共沈率の増加につながった。

表6-2 還元剤と評価元素共沈率の変化

還元剤添加量	静置温度	Co	Sr	Ru	Nd	Sm	Eu
HAN 3.3×10 <sup>-2</sup> mol/dm <sup>3</sup>	室温	≧99.4%	≧99.6%	70.1%	≧99.2%	≧99.2%	≧99.2%
	70℃	≧99.4%	≧99.6%	72.7%	≧99.2%	≧99.2%	≧99.2%
LiAlH <sub>4</sub> 1.65×10 <sup>-2</sup> mol/dm <sup>3</sup>	室温	≧99.4%	≧99.6%	77.9%	≧99.2%	≧99.2%	≧99.2%
	70℃	≧99.4%	≧99.6%	80.5%	≧99.2%	≧99.2%	≧99.2%
Fe 3.3×10 <sup>-2</sup> mol/dm <sup>3</sup>	室温	≧99.4%	99.6%	95.2%	≧99.2%	≧99.2%	≧99.2%
	70℃	≧99.4%	≧99.6%	96.8%	≧99.2%	≧99.2%	≧99.2%

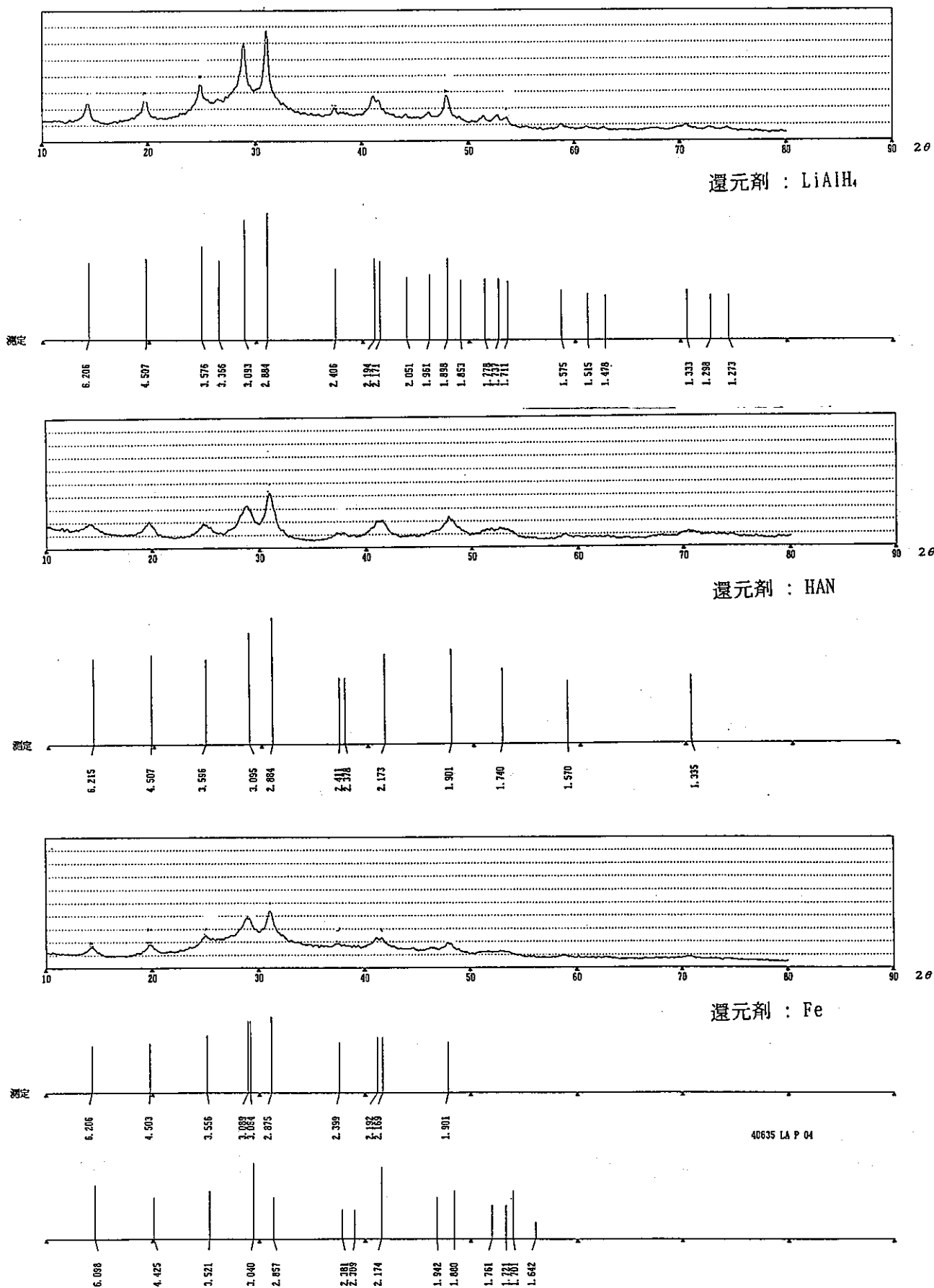
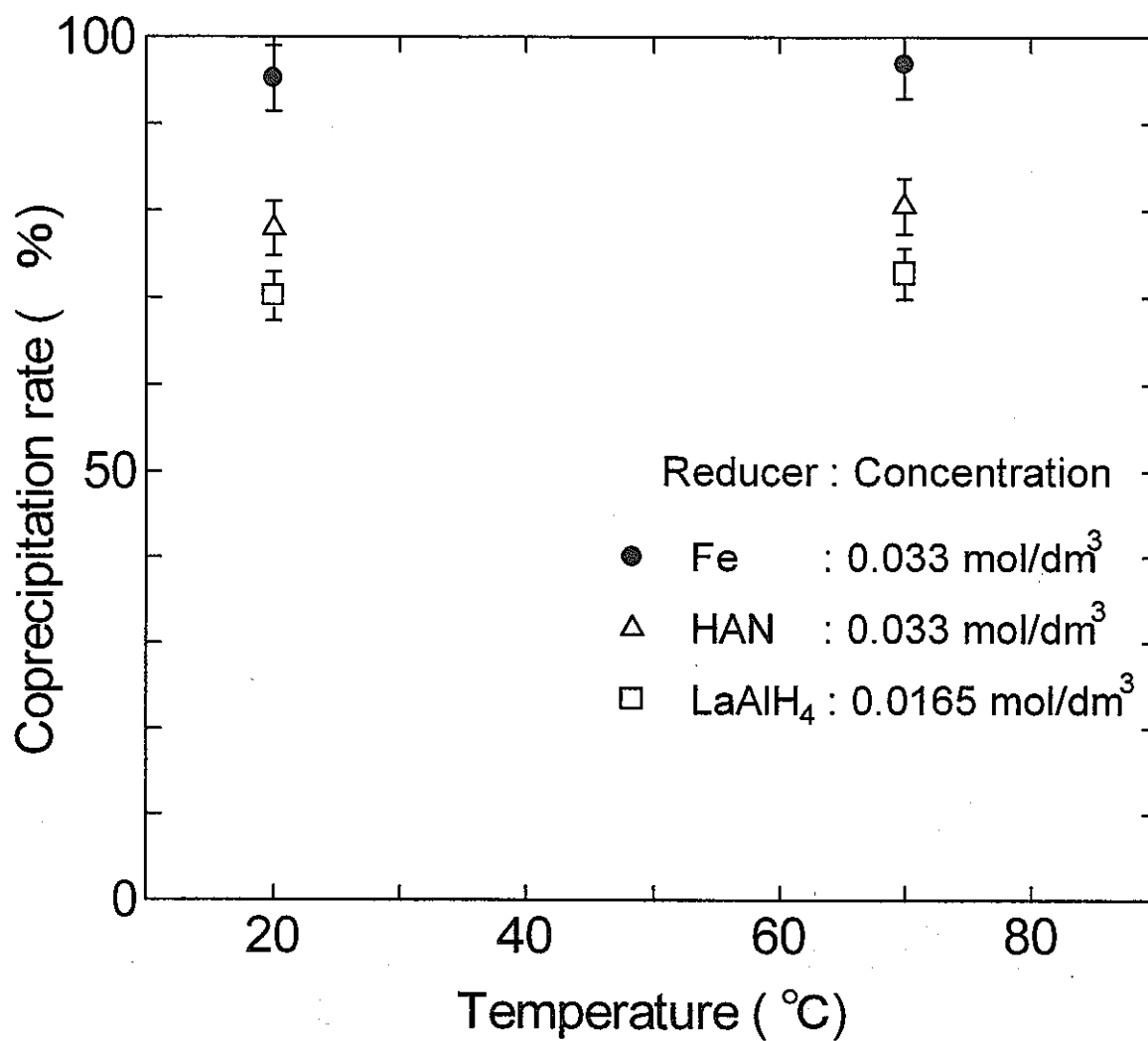


図6-1 XRD分析結果 (LaPO<sub>4</sub>)



Ru : 231 mg/dm<sup>3</sup>, pH 7  
settling time : 120 min

図 6-2 静置温度とルテニウム共沈率の関係

## 6.1.3 還元剤添加量の比較

## (1) 結果

表6-3に還元剤添加量と評価元素共沈率の変化を示す。

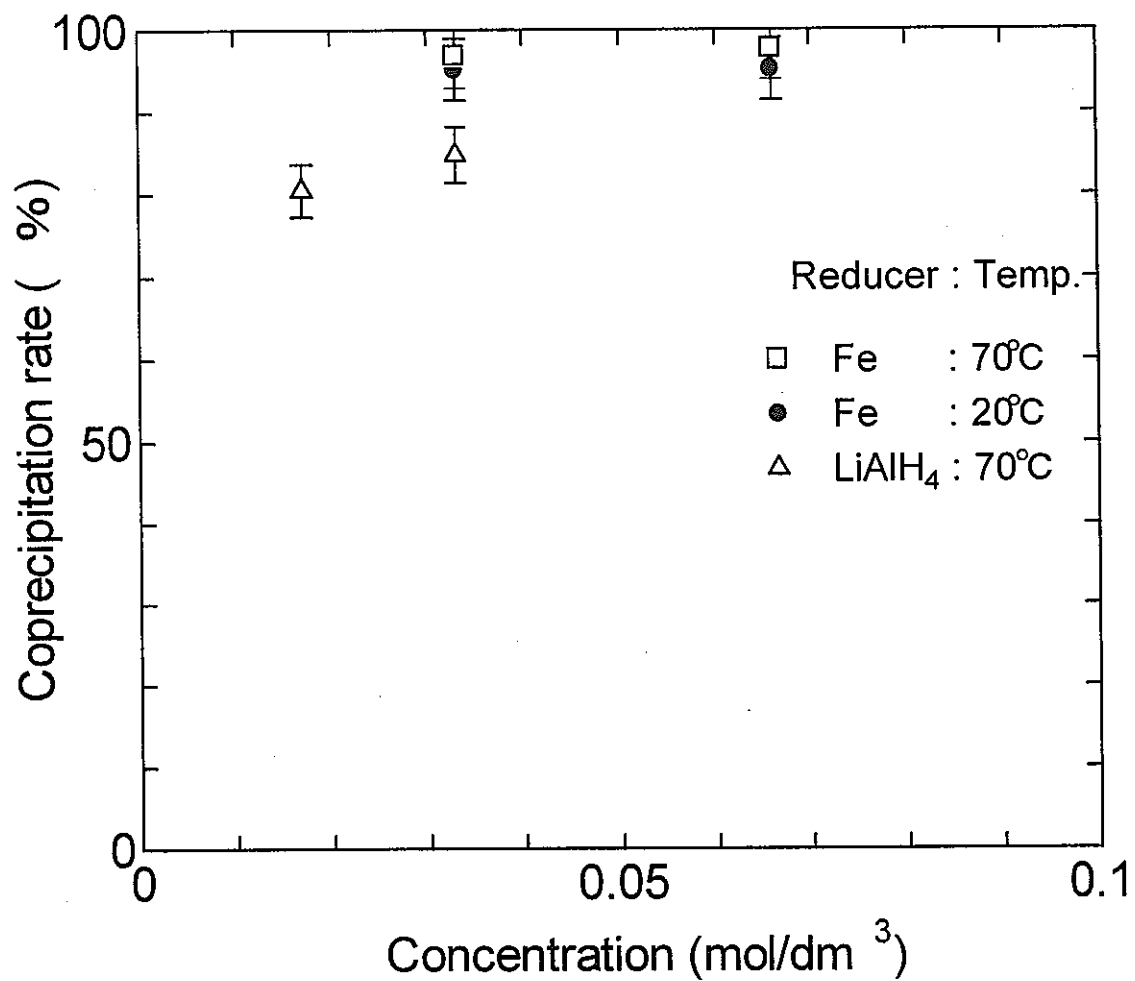
図6-3に還元剤添加量とルテニウム共沈率の関係を示す。

## (2) 考察

水素化リチウムアルミニウムは、還元剤添加量が増加すればルテニウム錯体の共沈率は増加することがわかった。しかし、還元剤添加量で比較すると、水素化リチウムアルミニウムより鉄粉がルテニウム錯体の還元に適しているといえる。

表6-3 還元剤添加量と評価元素共沈率の変化

還元剤添加量	静置温度	Co	Sr	Ru	Nd	Sm	Eu
LiAlH <sub>4</sub>							
1.65×10 <sup>-2</sup> mol/dm <sup>3</sup>	70℃	≥99.4%	≥99.6%	80.5%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%
3.3×10 <sup>-2</sup> mol/dm <sup>3</sup>	70℃	≥99.4%	≥99.6%	84.8%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%
Fe							
3.3×10 <sup>-2</sup> mol/dm <sup>3</sup>	室温	≥99.4%	99.6%	95.2%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%
	70℃	≥99.4%	≥99.6%	96.8%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%
6.6×10 <sup>-2</sup> mol/dm <sup>3</sup>	室温	≥99.4%	≥99.6%	95.2%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%
	70℃	≥99.4%	≥99.6%	97.8%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%



Ru : 231 mg/dm<sup>3</sup>, pH 7  
settling time : 120 min

図6-3 還元剤添加量とルテニウム共沈率の関係

## 6.1.4 静置時間の比較

## (1) 結果

表6-4に静置時間と評価元素共沈率の変化を示す。

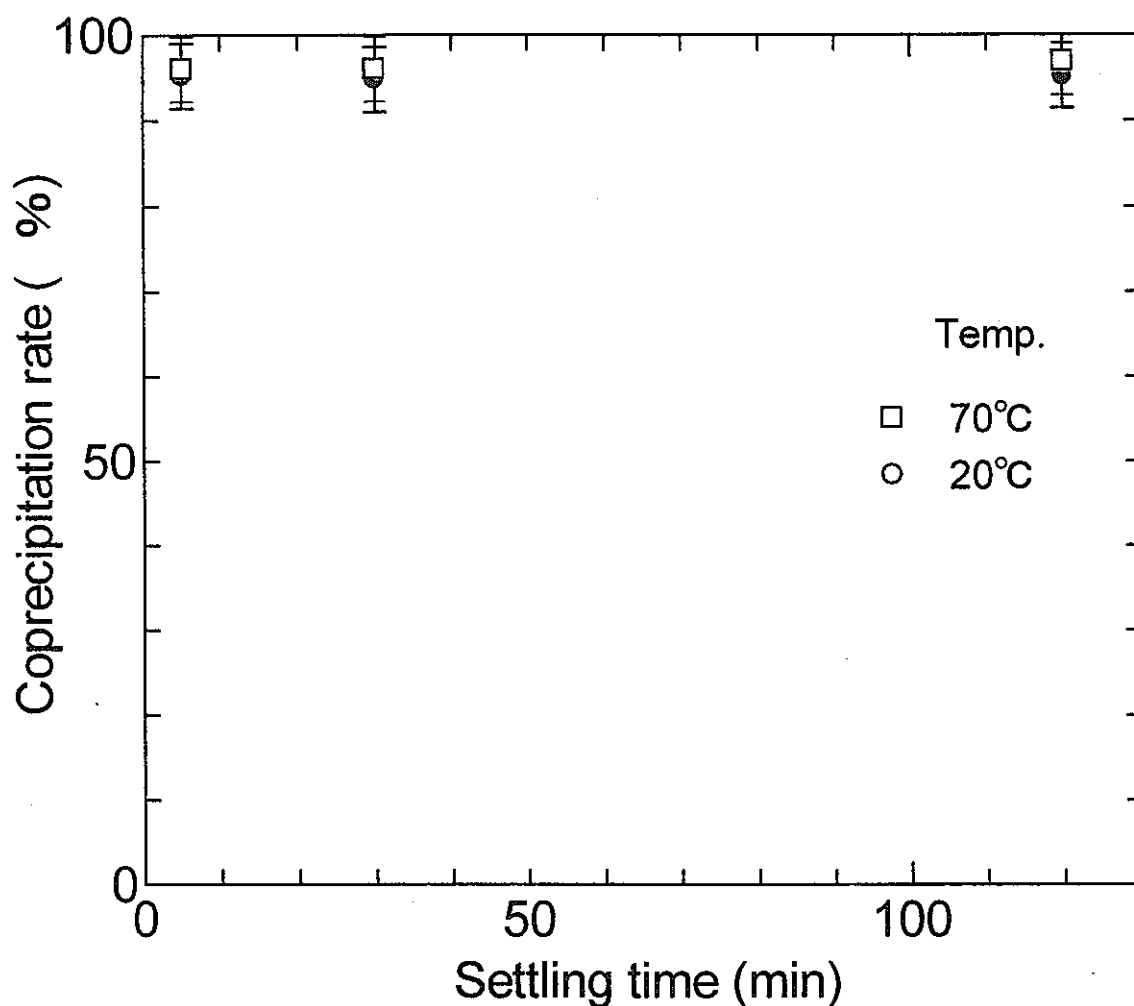
図6-4に静置時間とルテニウム共沈率の関係を示す。

## (2) 考察

ルテニウム錯体の共沈率と静置時間の関係に顕著な差はみられなかったが、評価元素全体の共沈率を考慮すると、静置時間120分、静置温度70℃が処理条件としては好ましい。

表6-4 静置時間と評価元素共沈率の変化

静置時間	静置温度	Co	Sr	Ru	Nd	Sm	Eu
5min	室温	≥99.4%	99.5%	95.2%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%
	70℃	≥99.4%	99.6%	96.0%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%
30min	室温	≥99.4%	99.5%	94.8%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%
	70℃	≥99.4%	≥99.6%	96.0%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%
120min	室温	≥99.4%	99.6%	95.2%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%
	70℃	≥99.4%	≥99.6%	96.8%	≥99.2%	≥99.2%	≥99.2%



Ru : 231 mg/dm<sup>3</sup> , pH 7  
reducer : Fe  
concentration : 0.033 mol/dm<sup>3</sup>

図6-4 静置時間とルテニウム共沈率の関係



## 6.1.5 本試験によるEhの変化

本試験では、還元剤添加後共沈剤を添加しpHを7に調整、静置後ろ過を実施したが、pHを調整した後のEhがルテニウム錯体の共沈率に関係してくると考えられるため、表6-5に還元剤量 $3.3 \times 10^{-3} \text{mol/dm}^3$  (残存亜硝酸量の5倍mol)における各還元剤のpH調整後及びろ過後のEh ( $V_{\text{SHE}}$ )を示す。

表6-5より、鉄粉の還元力が他の還元剤より強いことがわかった。ここで、鉄粉は各パラメータに対するEhの変化はみられなかった。

鉄粉は液中に溶解することで還元剤として作用する。そのため、鉄粉が存在すれば還元力が持続することが推定できる。本試験は大気中で実施しているため、ろ過により鉄粉が除去されればEhは上昇する。これらのことより、静置中のEhがルテニウム錯体の共沈率に関係すると考えられる。

表6-5 各還元剤のpH調整後及びろ過後のEh ( $V_{\text{SHE}}$ )

	HAN	LiAlH <sub>4</sub>	Fe
pH調整後	0.15V	0.17V	0.00V
ろ過後	0.07V	0.26V	0.16V

## 6.2 ルテニウムニトロシルニトロ錯体を使用した試験

## (1) 結果

表6-6に試験液とルテニウム共沈率の変化を示す。

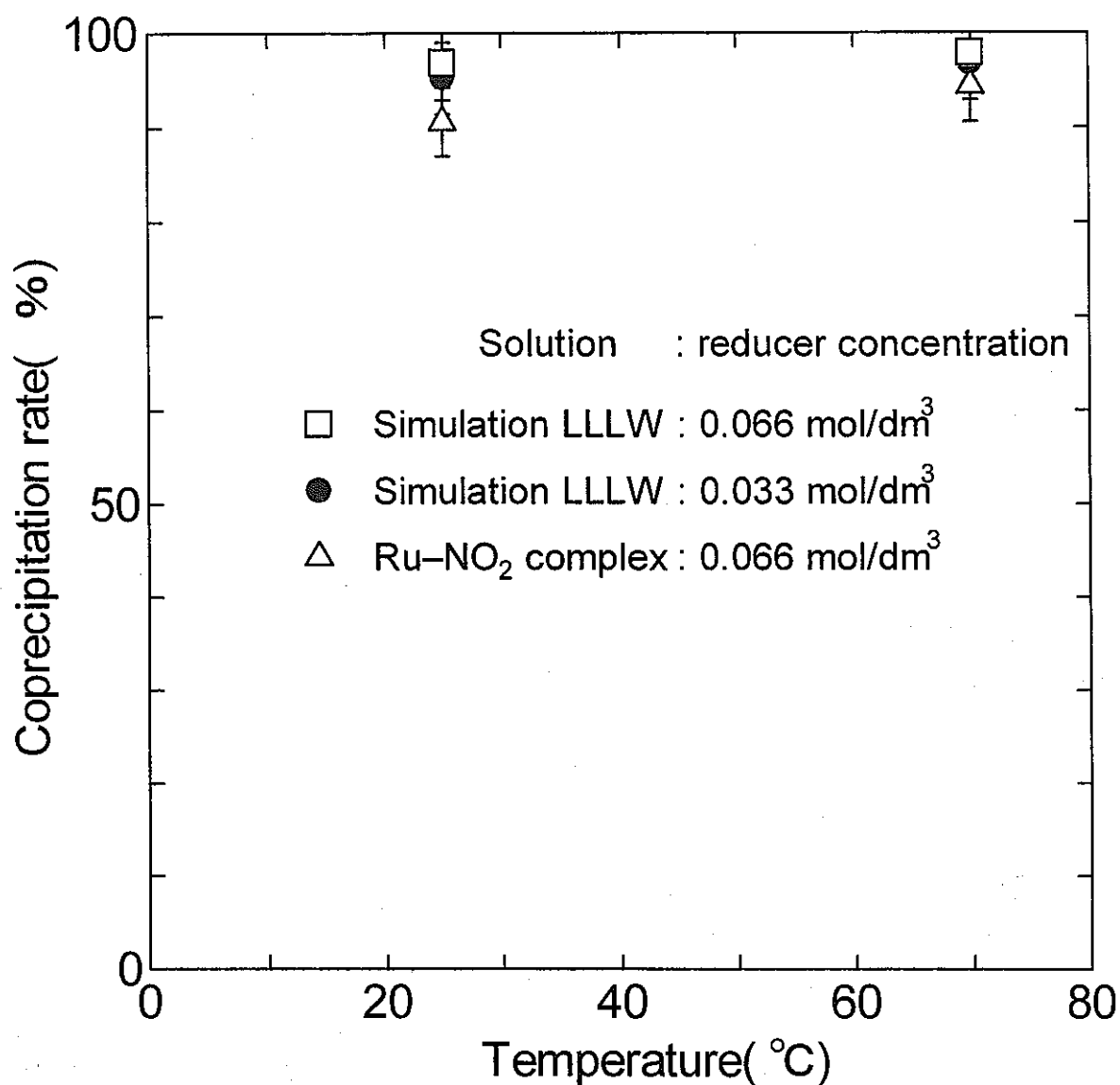
図6-5に静置温度とルテニウム共沈率の関係を示す。

## (2) 考察

ルテニウムニトロシルニトロ錯体に対する共沈率は、LLLW模擬液に含まれるルテニウム錯体に対する共沈率より低いものの、リン酸ランタンによる還元・共沈がルテニウムニトロシルニトロ錯体の分離にも適用できる可能性があることがわかった。

表6-6 試験液とルテニウム共沈率の変化

試験液	還元剤(Fe)添加量	静置温度	共沈率
LLLW模擬液	$3.3 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$	室温	95.2%
	(残存亜硝酸量の5倍mol)	70℃	96.8%
	$6.6 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$	室温	95.2%
	(残存亜硝酸量の10倍mol)	70℃	97.8%
ルテニウムニトロシル ニトロ溶液	$6.6 \times 10^{-2} \text{mol/dm}^3$	室温	90.6%
	(亜硝酸量の5倍mol以上)	70℃	94.4%



Simulation LLLW Ru : 231 mg/dm<sup>3</sup>

Ru-NO<sub>2</sub> complex Ru : 225 mg/dm<sup>3</sup>

pH 7 , reducer : Fe

図6-5 静置温度とルテニウム共沈率の関係

## 7. おわりに

### 7.1 結論

本試験より、次のような知見を得た。

- (1) 硝酸銀添加後にpH計、ORP計のガラス電極を浸漬させているとAgCl沈殿を生成するため、沈殿除去等の対策が必要である。
- (2) 各試験の共沈で生成した沈殿をXRDで分析した結果、沈殿は全てLaPO<sub>4</sub>であった。
- (3) リン酸ランタンによる還元・共沈はCsを除く6種の評価元素に対し、鉄共沈と同等以上の共沈率を示したため、LLLWの放射性核種除去に適用できる可能性があることがわかった。
- (4) ルテニウム錯体の共沈には、還元剤として鉄粉が有効であることがわかった。また、共沈時の静置温度が高いほうが、共沈を促進させることがわかった。
- (5) 共沈時の静置時間の変化に対し、Sr以外の評価元素の共沈率に顕著な差がみられなかった。これは、リン酸ランタンは結晶生成時の吸着及び吸蔵が共沈率に大きく関係していると考えられる。
- (6) 本試験でのリン酸ランタン還元・共沈の最適条件は以下となった。

還元剤：鉄粉 (Fe)

還元剤添加量：Fe =  $6.6 \times 10^{-2} \text{ mol/dm}^3$  (残存亜硝酸量の10倍mol)

リン酸添加量：ランタン添加量の5倍mol

ランタン添加量： $3.6 \times 10^{-2} \text{ mol/dm}^3$

静置時間：120min

静置温度：70℃

この条件において得られた共沈率はCoが99.4%以上、Srが99.6%以上、Ruが97.8% (ルテニウムニトロシルニトロ錯体に対しては94.4%)、Ndが99.2%以上、Smが99.2%以上、Euが99.2%以上であった。ただし、Csの共沈は起こらなかった。

### 7.2 今後の課題

- (1) RI試験等により、低濃度領域での共沈率及びDFを確認することを提案する。
- (2) 共沈剤添加量、還元剤添加量等の試験条件の更なる把握、及び処理プロセス全体の合理化を提案する。
- (3) ルテニウム錯体の共沈率に焦点をあてた更なる共沈プロセスの研究もしくは、新手法によるルテニウム錯体の分解もしくは分離方法の研究も提案する。

以下に新手法の例をあげておく。

① 電気化学的方法を用いてルテニウムを電着する方法<sup>1)</sup>

② 光触媒(酸化チタン等)を利用したルテニウム錯体を分解もしくはルテニウム錯体を還元する方法<sup>2)</sup>

— 参考文献 —

- 1) 石川 友清 他, 放射線概論 第3版, 通商産業研究社(1996)
- 2) S. Fredric Marsh, at al., Distributions of 15 Elements on 58 Absorbers from Simulated Houble-Shell Slurry Feed(DSSF), LA-12863, UC-940(1994)
- 3) 三澤 忠則, 別冊化学工業31-1 新增補 抽出 工場操作シリーズNo. 15 化学工業社(1987)
- 4) R. A. ティ Jr. 他, 定量分析化学 改訂版, 培風館(1982)
- 5) 三澤 忠則, 新增補 沈降濃縮 工場操作シリーズNo. 13, 化学工業社(1989)
- 6) 木村 捷二郎 他, 凝集沈殿法による放射性廃液の処理(I), 保険物理 Vol. 11 pp. 13-19(1976)
- 7) 豊原 尚実 他, 放射性廃液の処理方法, 特願 平7-69517(1995)
- 8) K. Miyata, at al., New Alternatives for Low-Level Waste Management During Mox Fuel Fabrication and Reprocessing in PNC., Joint International Waste Management Conference Vol. 1(1989)
- 9) M. Sasoh, at al., Study on Formation of Lanthanum Phosphate for Highly Efficient Incorporation of Actinides from Radioactive Liquid Waste., MRS-96, Session-2(1996)
- 10) 住友金属鉱山(株), ルテニウムの挙動及び除去方法に関する調査・検討, PNC ZJ 1010 94-003(1994)
- 11) D. T. Hobbs, at al., Final Report on the Evaluation of Packed-Bed and Fluidized-Bed Cell Technology for the Destruction and Removal of Contaminants in Alkaline Waste Solutions., WSRC-TR-95-0310(1995)
- 12) (株)東レリサーチセンター調査研究部門, 光触媒の最新技術動向(1998)