

鉛抽出法による有用金属回収試験

— 第 3 回 ホット 試験 結果 —

1995年8月

動力炉・核燃料開発事業団
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ください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

鉛抽出法による有用金属回収試験
— 第3回ホット試験結果 —

明珍宗孝*、川瀬啓一**
川口浩一*、和田幸男*

要 旨

高レベル放射性物質研究施設（CPF）において実施した有用金属回収試験（第3回ホット試験）の試験データについてとりまとめた。

*核燃料技術開発部先端技術開発室

**核燃料技術開発部転換技術開発室

目 次

1. 緒言	1
2. 試験方法	2
2.1 供試不溶解残渣	2
2.2 供試仮焼体	2
2.3 抽出用試薬の調製と装荷	2
2.4 るつぼ	3
2.5 抽出炉	3
2.6 抽出操作	3
2.7 抽出後の分析方法	3
3. 鉛抽出試験各バッチの結果	16
4. EPMA による分析結果	32
4.1 面分析結果	32
4.2 特性 X 線強度測定結果	32
5. まとめ	60
謝辞	61

1. 緒言

有用金属回収第3回ホット試験は高レベル放射性物質研究施設（CPF）B系列の試験ランとして平成3年9月より平成4年度上半期ころにかけて実施した。鉛抽出試験は平成3年9月及び10月に実施し、その後平成4年8月ころまでの間でX線による元素分析を行った。

今回のホットランでは（1）鉛抽出温度の効果、（2）酸化鉛を用いた鉛抽出法及び（3）高レベル廃液仮焼体への鉛抽出法の適用性の3点について検討、評価することを目的として試験を実施した。（1）については鉛抽出温度をこれまでの800℃から1100℃に上昇させ、フラックスとして用いるホウ砂の粘性を低下させ鉛ボタンの生成促進を試みた。（2）は抽出媒として鉛金属の代わりに酸化鉛（PbO）を用いた場合の抽出挙動を調べたものである。また、さらに高レベル廃液仮焼体について鉛抽出試験を行い、白金族元素を回収する可能性について検討するための試験を実施した。

本報告書はこれらの試験データを取りまとめたものである。

2. 試験方法

2.1 供試不溶解残渣

本試験に用いた残渣は再処理技術開発部プロセス・分析開発室（現アクチニドプロセス・分析開発室）が高レベル放射性物質研究施設（CPF）にて実施した高速炉燃料再処理試験、第11回ホットラン及び第16回ホットランにおいて回収されたものである。第11回ホットランではフェニックスで照射された平均燃焼度94000MWd/tの照射済燃料より、第16回ホットランでは常陽で照射された平均燃焼度54100MWd/tの照射済燃料より、それぞれ溶解工程において生じた残渣が回収された。フェニックス炉の照射済燃料からの残渣（以下11ラン残渣と記す）の回収方法は図3.1に示すとおりである。また、常陽燃料からの残渣（以下16ラン残渣と記す）については表3.1に示す4通りの溶解試験で生じたものを集め、3N硝酸により常温にて3回洗浄し乾燥後鉛抽出試験に供した。16ラン残渣の履歴、組成等について表3.2にまとめて示す。

2.2 供試仮焼体

本試験において使用した仮焼体は高レベル放射性廃液（第5回受入れ廃液）を加熱し作製したものであり、その方法は次のとおりである。仮焼処理には鉛抽出で用いたものと同じポットメルターを使用した。約500mlの高レベル放射性廃液をポリ容器に分取しこれをポットメルターのポットへ注入した。ポリ容器は1N-硝酸50mlで洗浄し、この洗浄液もポットへ注入した。仮焼のための加熱処理は温度及び時間を変えて3回行った。それぞれの加熱パターンは図2.2に示すようなものである。3回の加熱処理後、ポット底に固化した仮焼体が得られ、図2.3に示すようにこれをタガネを用いて掻きとり、ステンレス鋼製バット上でさらにハンマーにより破碎し細粒化した。ポットより掻き出した直後の仮焼体の外観を写真2.1に示す。ハンマーによる破碎後も5mm径程度の粗粒が残ったためこれを取り除き2~3mm径程度以下のものを集めて秤量し鉛抽出試験に供した。

2.3 抽出用試薬の調製と装荷

不溶解残渣の抽出試験での各溶解バッチの残渣及び試薬の重量を表2.3に示す。残渣の抽出試験においては抽出媒の鉛としては鉛メタル粉及び酸化鉛粉末を用いた。鉛の重量は残渣重量の25倍とし、各溶解バッチあたり約10gとした。フラックスはホウ砂 ($\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$) とし、残渣の10倍量の約4gを使用した。酸化鉛を用いた場合は還元剤として炭素粉末を反応当量の2倍に相当する約0.6gを添加した。また、パラジウム添加の影響を調べるために二つの溶

解バッチについては約2gのパラジウム金属粉末を添加した。これは残渣に含まれるロジウム量のほぼ50倍を目安としたものである。

仮焼体の抽出試験での各溶解バッチの仮焼体及び試薬の重量を表2.4に示す。仮焼体の抽出試験においては抽出媒の鉛の供給源としては酸化鉛を使用した。各試薬の重量は残渣の抽出試験の場合と同様である。

これらの抽出用試薬は秤量後、めのう乳鉢中で破碎混合した。ついでセル内に投入し残渣とともにポリエチレン製の蓋付き容器に入れ、マニプレータで容器を振盪させて混合し、図1に示すようにロートを用いてタンマン管内に装荷した。

2.4 るつば

鉛抽出に使用したるつばはNCタンマン管であり、これまでのホットランで使用したものと同等のものである。その外観・寸法は図2.4に示すとおりであり、組成は47%Al₂O₃-49%SiO₂の混合酸化物である。

2.5 抽出炉

鉛抽出にはC B-1セル内に設置されているポットメルターを使用した。ポットメルターは縦型管状炉であり、ガラス固化体試料の作成用として図2.5に示すような形状のポットを炉心管とし、上部フランジを介してスラリー配管、圧力配管及びオフガス配管と接続されるようになっている。本試験においては図2.6に示すようなホルダーを用いてタンマン管をポット中に装荷し、ポット上部には上記各配管を接続した状態で鉛抽出操作を行った。

2.6 抽出操作

ポットメルターは常温より昇温を開始しポット外側での测温が1100℃に達した時点より3時間保持し、残渣中白金族元素の鉛相への抽出を行った。3時間保持後はポットメルターの電源を遮断し、そのまま室温まで冷却させた。

抽出操作においてはポットメルターのポット外壁に設置した熱電対が不調であったため、設定温度はメルターの下部ヒーターの指示温度とした。

鉛抽出試験の条件を表2.5にまとめて示す。

2.7 抽出後の分析方法

抽出後の試料について各元素の分布状態を調べるためにX線マイクロアナライザー(EPMA)による分析を行った。分析に用いたEPMAはCPFのアンバー区域に設置されている島津製作所製EPMA(型式:JRXA503)である。

表2.3及び表2.4に示すように抽出試薬の種類と対象が不溶解残渣か高レベル廃液仮焼体かによって大きく3種類の条件となるので各条件より1試料を選びEPMAにより特性X線像の測定（面分析）を行った。各凝固試料は縦方向に切断し、樹脂埋め後回転研磨盤により研磨を行いEPMA用試料とした。

また前述の面分析では各元素の空間分解能が良くないので、さらに詳しく調べるために鉛ボタン上の分析位置を変えて6箇所について各元素の特性X線の強度を測定しその変化の様子をみた。分析を行った試料は不溶解残渣を鉛によって抽出した試料（HB-Pb-1）である。ガラス相中の各元素の濃度についてはこの試料のガラス相部分の任意の2箇所を分析し比較検討を行った。分析は約0.45mm×0.55mm（走査像の倍率：200倍）の範囲を走査しながら行い、この領域の平均的な濃度を求めることとした。

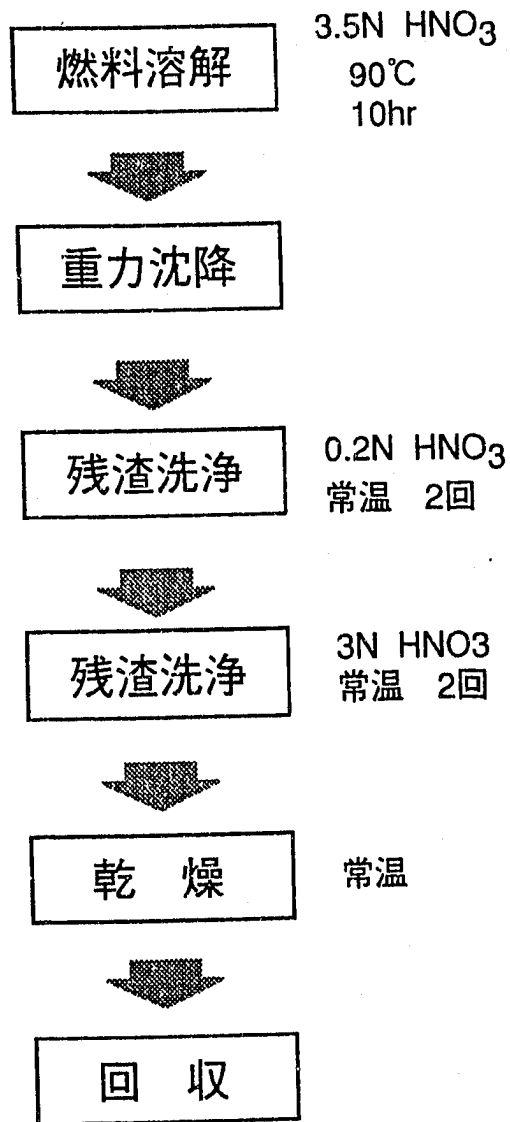


図2.1 残渣回収方法

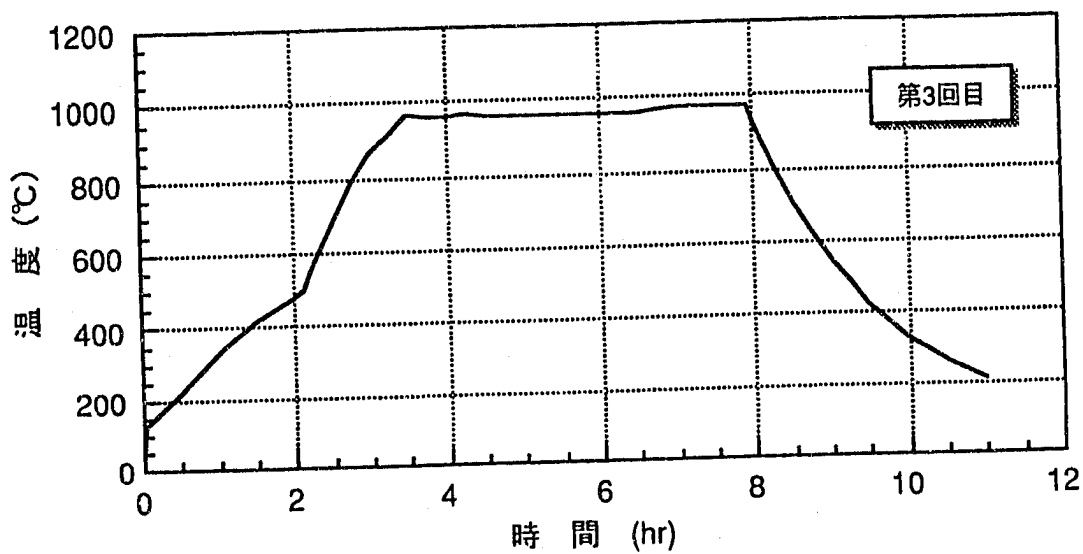
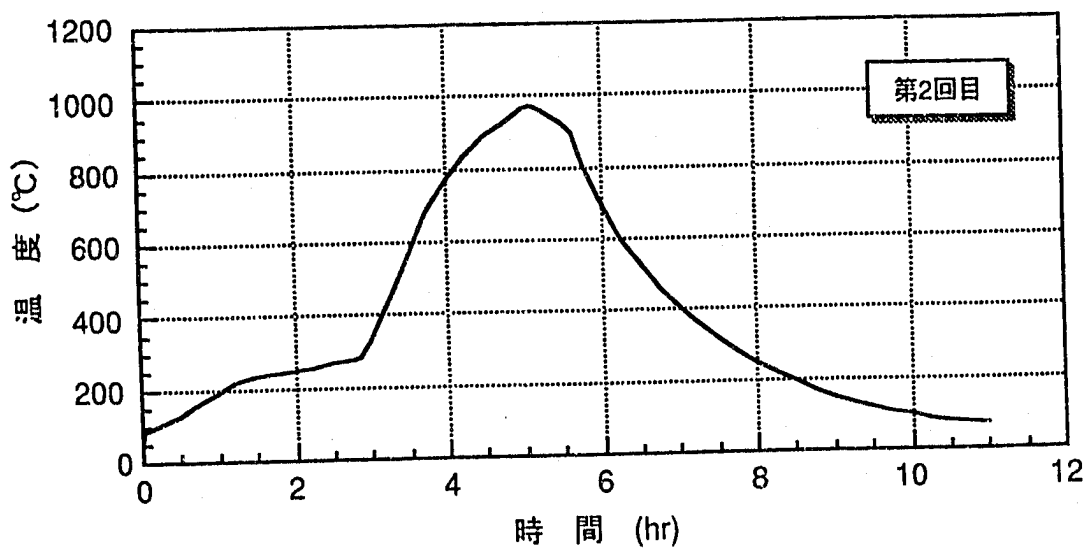
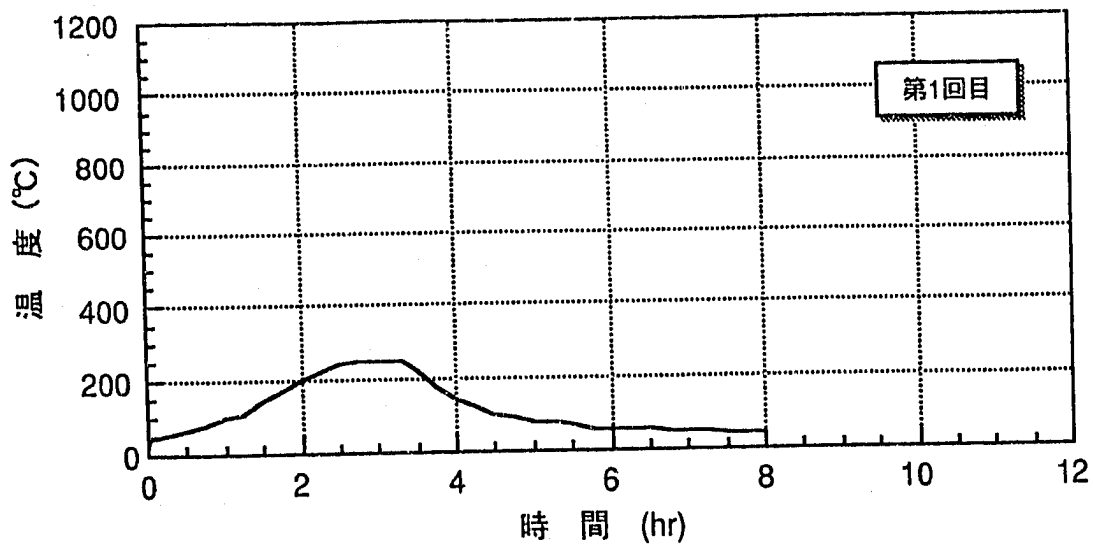
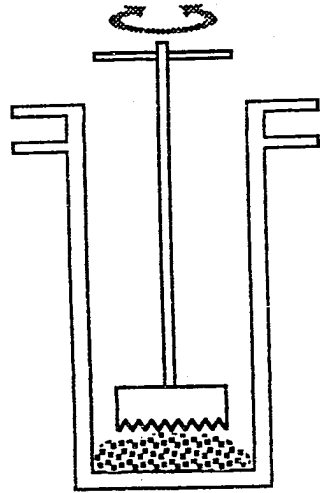
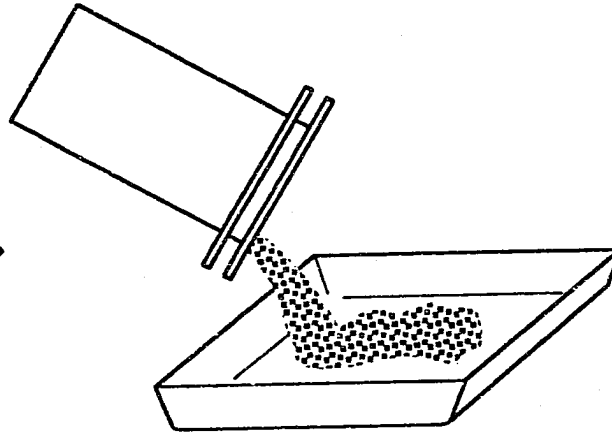


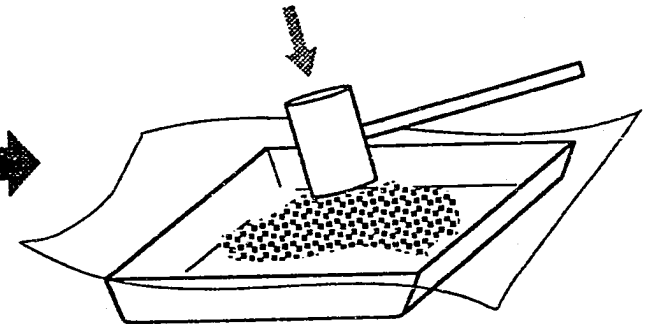
図2.2 仮焼体作製時の加熱パターン



- ① 高レベル廃液500mlを加熱
脱硝しポット底に生成した
仮焼体をかき取る

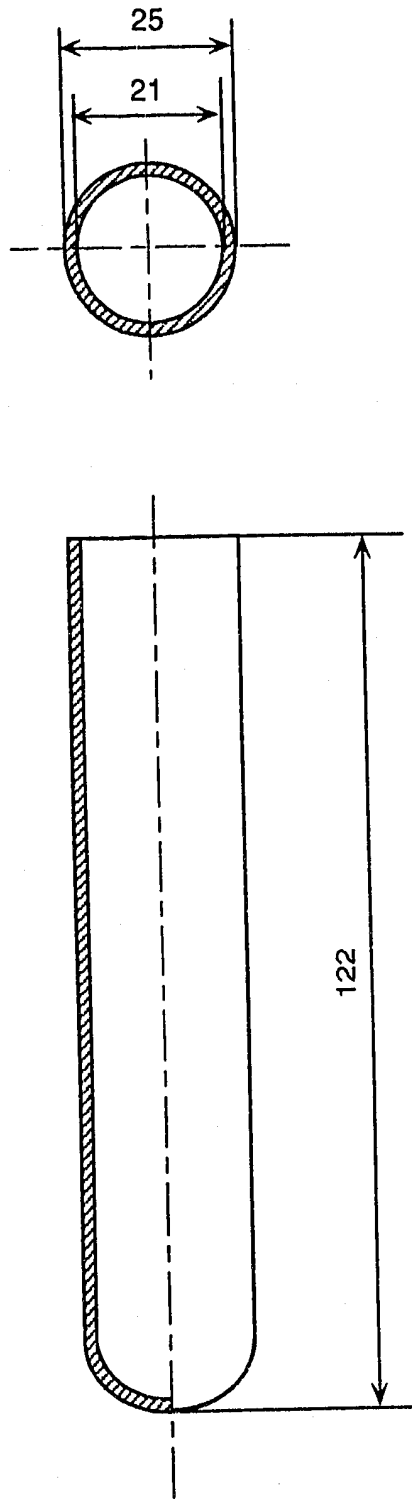


- ② ステンレス鋼製バットに移す



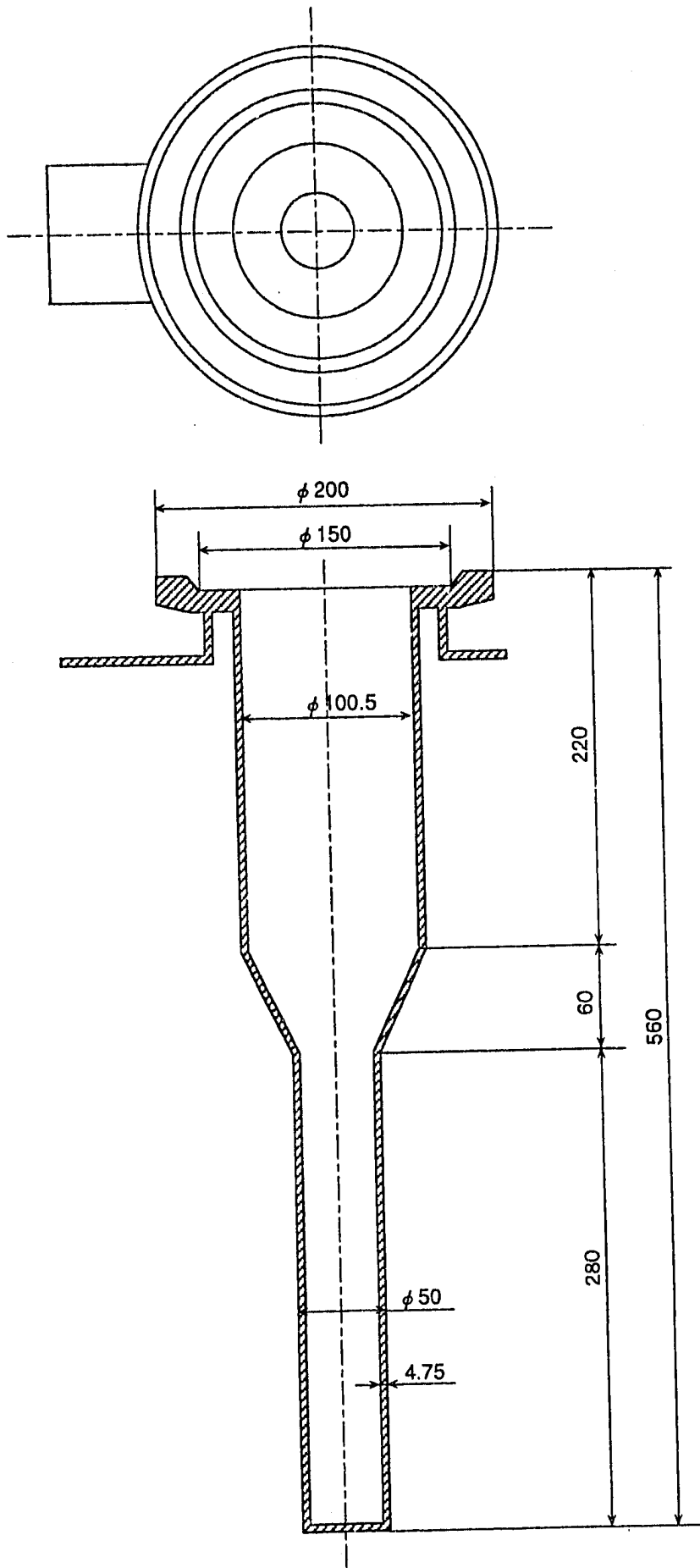
- ③ ビニールシートをかぶせて
ハンマーにより破碎する

図2.3 仮焼体作製手順



単位：mm

図2.4 タンマン管形状・寸法



材質：SUS304
単位：mm

図2.5 ポットメルター用ポットの形状・寸法

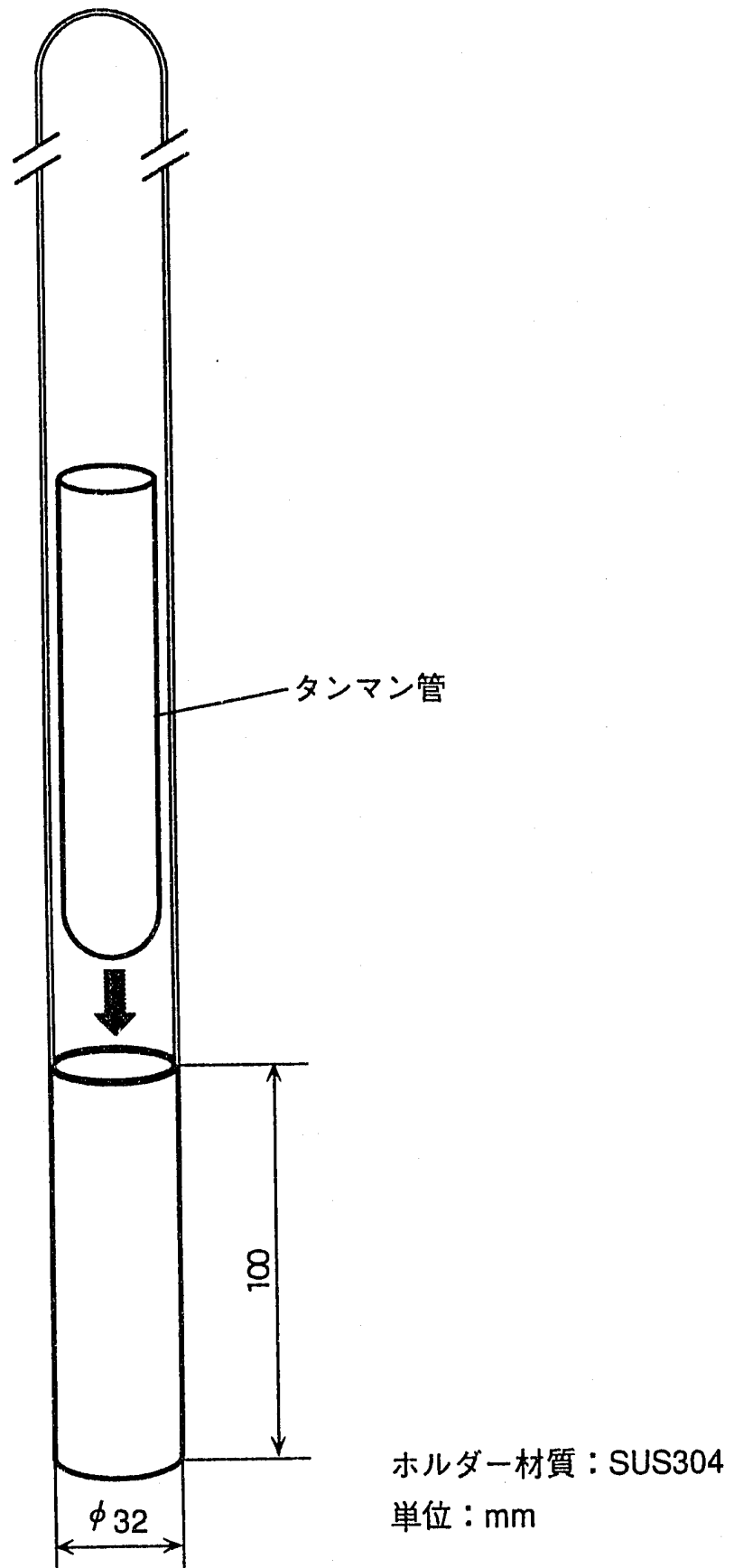


図2.6 タンマン管ホルダー

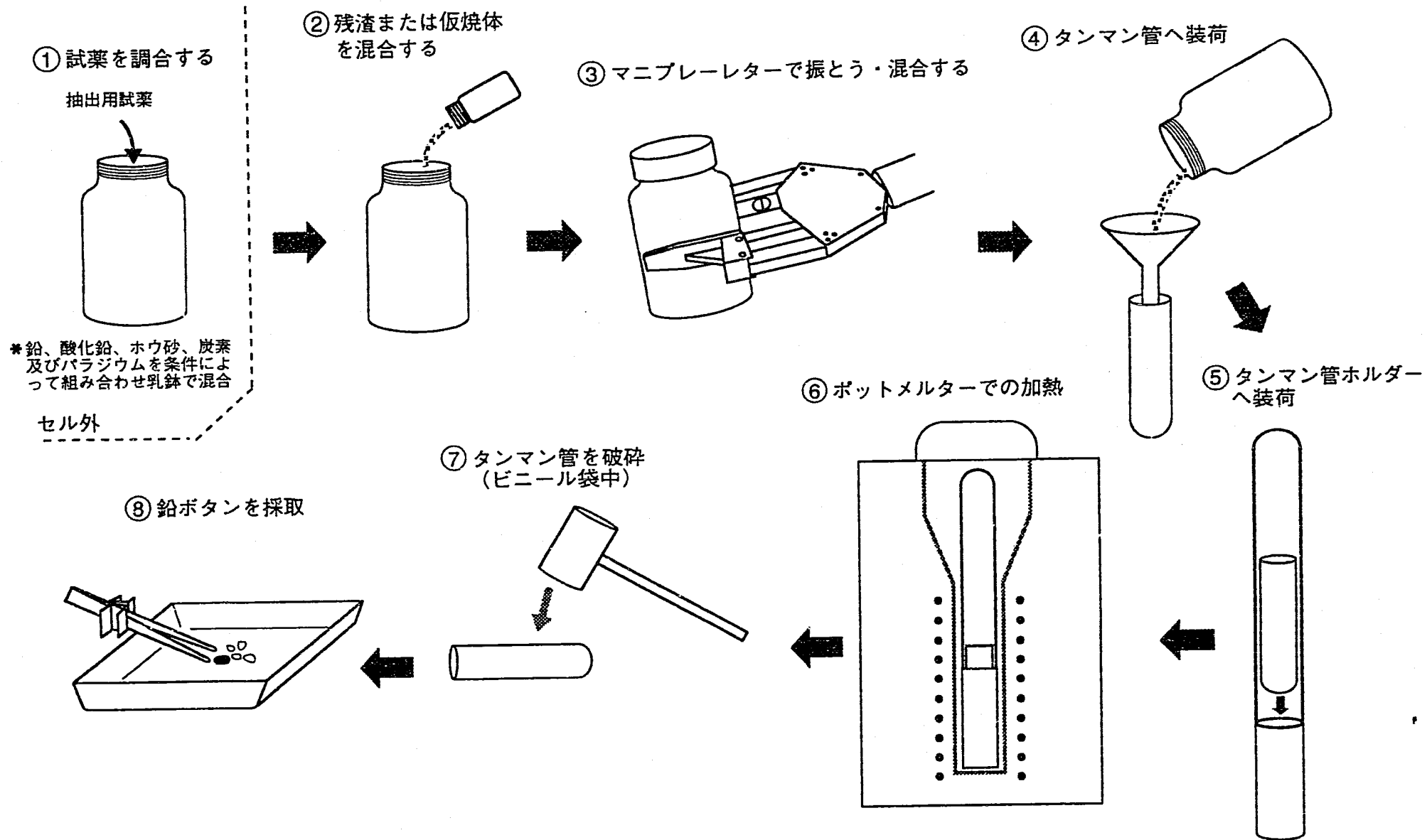


図2.7 鉛抽出試験の手順

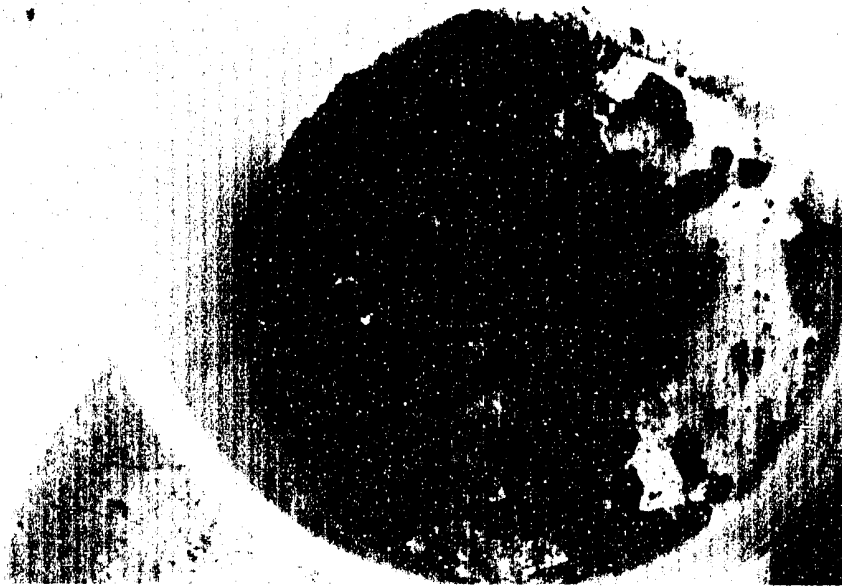


写真2.1 仮焼体外観（第5回受入れ廃液より作製）

表2.1 第16回ホットラン燃料溶解条件

番号	溶解条件
1	3.5M 硝酸 沸騰温度 8時間
2	8.7M 硝酸 沸騰温度 2.5時間
3	3.5M → 8.5M 硝酸 沸騰温度 4時間
4	3.5M → 8.5M 硝酸 95℃ 4時間

表2.2 第16回ホットラン溶解燃料及び溶解条件

項目	条件等
照射炉	常陽
燃焼度	54100MWd/t
冷却期間	1302 日
燃料組成 (燃料重量) (1ピン)	濃縮U 9.44g, 天然U 73.16g, Pu 35.4g
重量 (1ピン)	コア部 118g, インシュレータペレット 4g(DU) 合計124g
PuO富化度	30%
回収残渣重量	1.7 g
残渣組成	Ru : 3%、Rh : 7~9%、Pd : 13~16%、 Tc : 10~13%、Mo : 23~28% (wt%)

表2.3 鉛抽出試験における残渣及び抽出試薬混合重量

溶解 バッチNo.	試料番号	不溶解残渣 (g)	鉛 (g)	酸化鉛 (g)	ホウ砂 (g)	炭素 (g)	パラジウム (g)	不溶解残渣の履歴	備考
1	H3-Pb-1	0.341	10.537	—	4.068	—	—	11ラン残渣*	EPMA用試料
2	H3-Pb-2	0.343	10.117	—	4.039	—	—	11ラン残渣	
3	H3-Pb-3	0.439	10.066	—	4.025	—	—	16ラン残渣**	
4	H3-Pb-4	0.427	10.056	—	4.032	—	2.012	16ラン残渣	
5	H3-Pb-5	0.412	—	10.845	4.028	0.583	—	16ラン残渣	EPMA用試料
6	H3-Pb-6	0.409	—	10.866	4.021	0.589	—	16ラン残渣	
7	H3-Pb-7	0.408	—	10.878	4.026	0.583	—	16ラン残渣	
8	H3-Pb-8	0.430	—	10.830	4.022	0.585	2.038	16ラン残渣	

*11ラン残渣：高速炉燃料リサイクル試験第11回ホット試験にて回収した残渣（フェニックス照射燃料）

**16ラン残渣：高速炉燃料リサイクル試験第16回ホット試験にて回収した残渣（常陽燃料）

表2.4 鉛抽出試験における仮焼体及び抽出試薬混合重量

溶解 バッチNo.	試料番号	仮焼体 (g)	酸化鉛 (g)	ホウ砂 (g)	炭素 (g)	備考
9	H3-Pb-9	2.304	10.833	4.024	0.582	
10	H3-Pb-10	2.228	10.840	4.034	0.583	EPMA用試料

表2.5 鉛抽出試験条件

項 目	設 定
不溶解残渣	約0.4g (常陽またはフェニックス燃料より回収)
仮焼体	約2.2g (第5回受入れ廃液より作製)
抽出剤	鉛粉末 約10g または 酸化鉛粉末 約10.85g
ガラス形成剤	ホウ砂 ($\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$) 約4g
添加貴金属	パラジウム (粉末) 約2g (残渣中Rh量の50倍量)
還元剤	炭素粉 約0.6g
溶融炉	ポットメルター (CB-5セル)
溶融雰囲気	空気中
抽出温度	1100℃
抽出時間	3時間
るつぼ	NCタンマン管

3. 鉛抽出試験各バッチの結果

鉛抽出試験は10バッチ実施した。このうち第1バッチから第8バッチは不溶解残渣を用いた試験であり、第9バッチ及び第10バッチは高レベル廃液仮焼体を用いた試験である。

表3.1、表3.2及び表3.3はタンマン管を含む装荷総重量の加熱前後の重量変化より溶解試料の重量変化を調べたものである。

各溶解バッチについての鉛抽出操作の結果は以下のとおりである。

第1バッチ (H3-Pb-1)

溶解時の加熱パターンを図3.1に示す。写真3.1に示すように冷却後、ポットメルターより溶解試料を取り出したところタンマン管が溶解試料の上部凝固面に接する付近を境にふたつに割れていた。また、ガラスが一部タンマン管ホルダー内に流れ出している状態であった。このため溶解後の試料重量の算出は不可能であった。

第2バッチ (H3-Pb-2)

溶解時の加熱パターンを図3.2に示す。冷却後、ポットメルターより溶解試料を取り出したところ第1バッチと同様にタンマン管がふたつに割れていた。また、タンマン管ホルダーより試料を取り出すために傾けたところ黒色の粉が一緒に出てきた。タンマン管ホルダーが酸化されて生じた酸化鉄粉であると思われるが詳細は不明である。溶解後の試料重量はこのため約2.8gの増加として算出される結果となった。凝固後の試料の外観は写真3.2に示すようにガラスは黒色を呈しており透明感はまったくない状態であった。

第3バッチ (H3-Pb-3)

溶解時の加熱パターンを図3.3に示す。抽出操作終了後のタンマン管は割れておらず健全であった。凝固後の試料の外観は写真3.3に示すように生成したガラスは表面は比較的透明であるが、るつぼ底に向かうにつれて黒っぽくなり上部から鉛ボタンを確認することはできない状態であった。タンマン管内面には黒色の付着物は認められず清浄な状態のまま保たれていた。溶解後試料の重量は約0.3gの減少にとどまり良好な抽出ができたものと推察される。

第4バッチ (H3-Pb-4)

溶解時の加熱パターンを図3.4に示す。冷却後、ポットメルターよりタンマン管ホルダーを取り出したところ第1バッチ及び第2バッチと同様にタンマン管はふたつに割れていた。タンマン管表面はタンマン管ホルダーの底に残った部分をタガネによって取り出すことを

試みたが強固に付着した状態で取り出すことはできなかった。取り出すことのできたタンマン管の上部の破片の表面はやや光沢のある状態となっていた。おそらくガラスが付着したためと思われる。

第5バッチ (H3-Pb-5)

溶解時の加熱パターンを図3.5に示す。抽出操作終了後のタンマン管は割れておらず健全であった。凝固後の試料は縦方向に切断しEPMAに供した。

第6バッチ (H3-Pb-6)

溶解時の加熱パターンを図3.6に示す。抽出操作によってタンマン管は割れなかったがタンマン管底部に若干腐食の形跡が認められた。タンマン管ホルダーの中には加熱によって生成した酸化鉄と思われる粉が堆積していた。生成したガラスは写真5に示すように比較的透明であり、鉛ボタンを確認できる状態であった。

第7バッチ (H3-Pb-7)

溶解時の加熱パターンを図3.7に示す。写真3.7に示すように生成したガラスには透明感があり上部から鉛ボタンを確認することができた。タンマン管には大きな損傷はなかったが、底部が一部欠損していた。これは外観より判断するとタンマン管が外部から浸食を受けたためではなくタンマン管ホルダーに残留していたガラスによってホルダーと固着し取り出し時に損傷した可能性が大きいと思われる。

第8バッチ (H3-Pb-8)

溶解時の加熱パターンを図3.8に示す。写真3.8に示すように生成したガラスには比較的透明感があったが内部に向かうにつれて黒っぽくなっていた。タンマン管の底部は第7バッチの場合と同様に一部欠損がみられたが内部からの浸食によるものなのかどうかについての詳細は不明である。またタンマン管内には黒色の付着物がみられた。

第9バッチ (H3-Pb-9)

写真3.9に抽出後の試料及びタンマン管の外観を示す。ガラスは全く透明感のない黒色を呈していた。タンマン管底部には一部欠損がみられたがその程度は軽微であった。タンマン管の内面には黒色の付着物が観察された。

第10バッチ (H3-Pb-10)

写真3.10に抽出後の試料及びタンマン管の外観を示す。第9バッチと同様にガラスは全く透明感のない黒色を呈していた。タンマン管には大きな損傷はなかったが、やはり底部が

一部欠損していた。タンマン管の内面には比較的多量の黒色付着物が観察された。

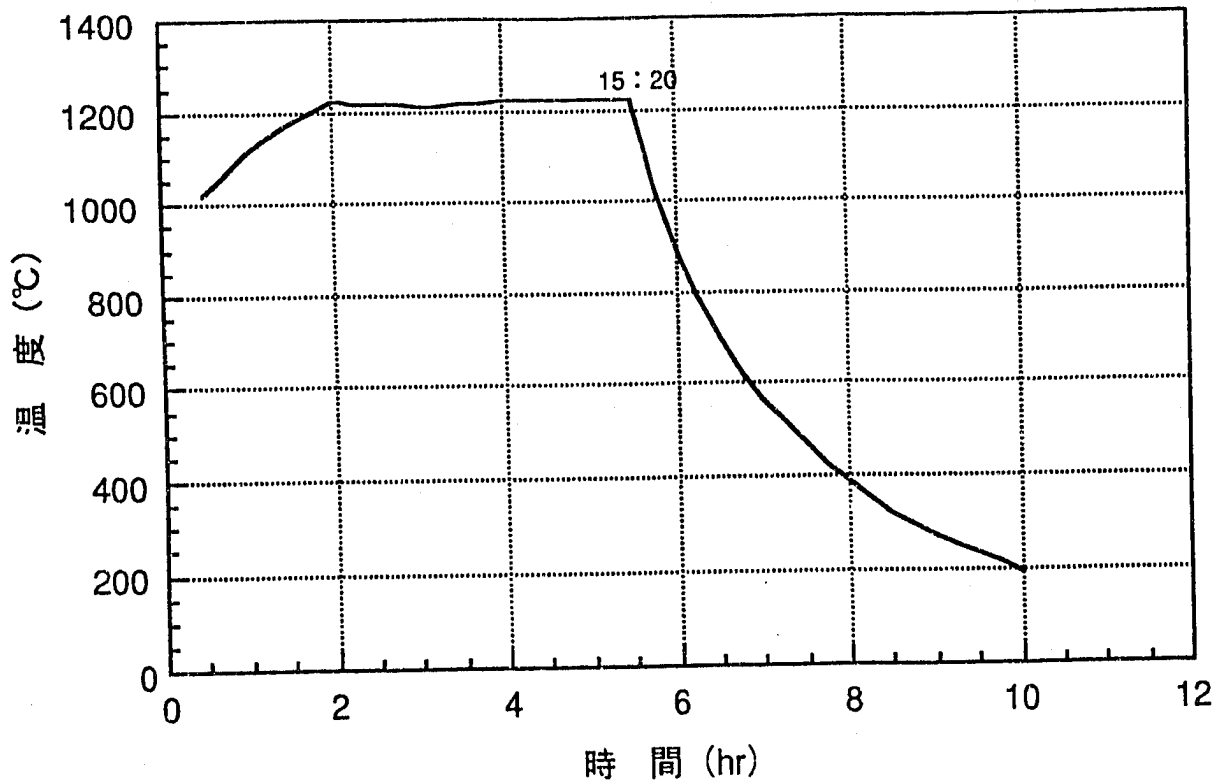


図3.1 鉛抽出時の加熱パターン (第1バッチ; H3-Pb-1)

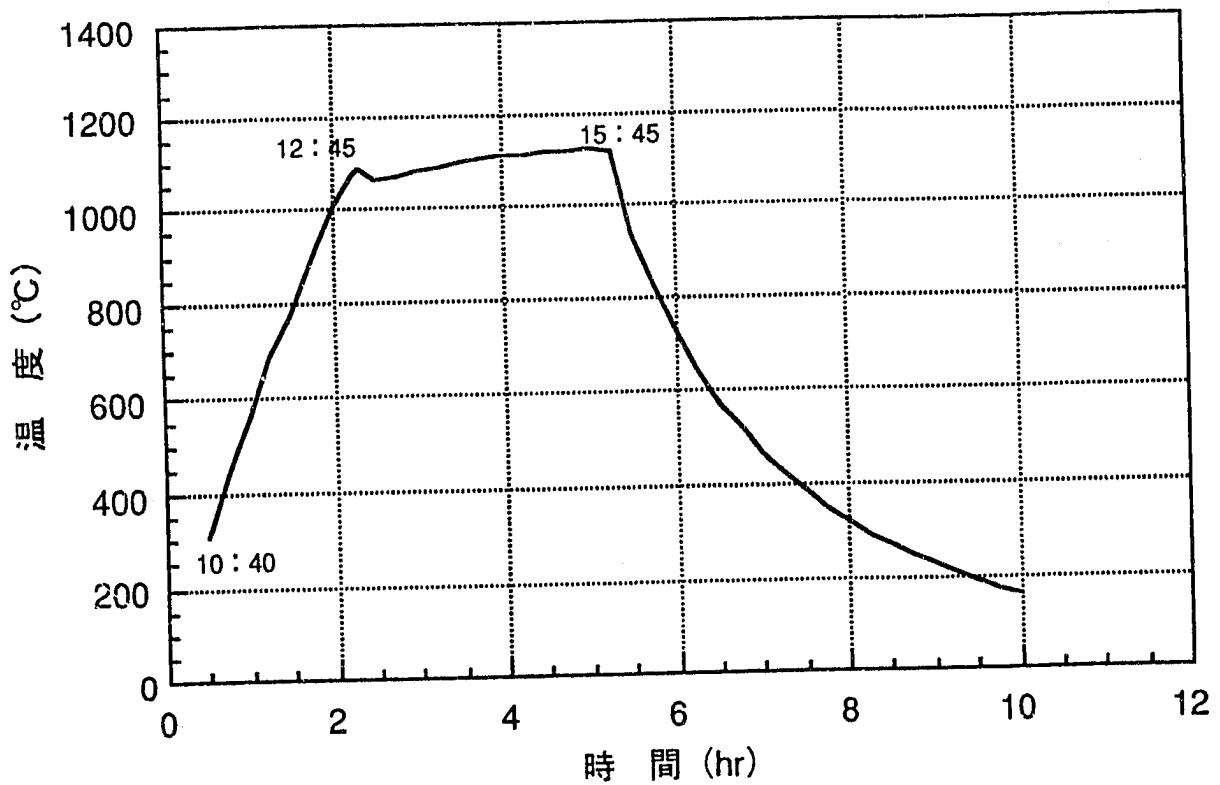


図3.2 鉛抽出時の加熱パターン (第2バッチ; H3-Pb-2)

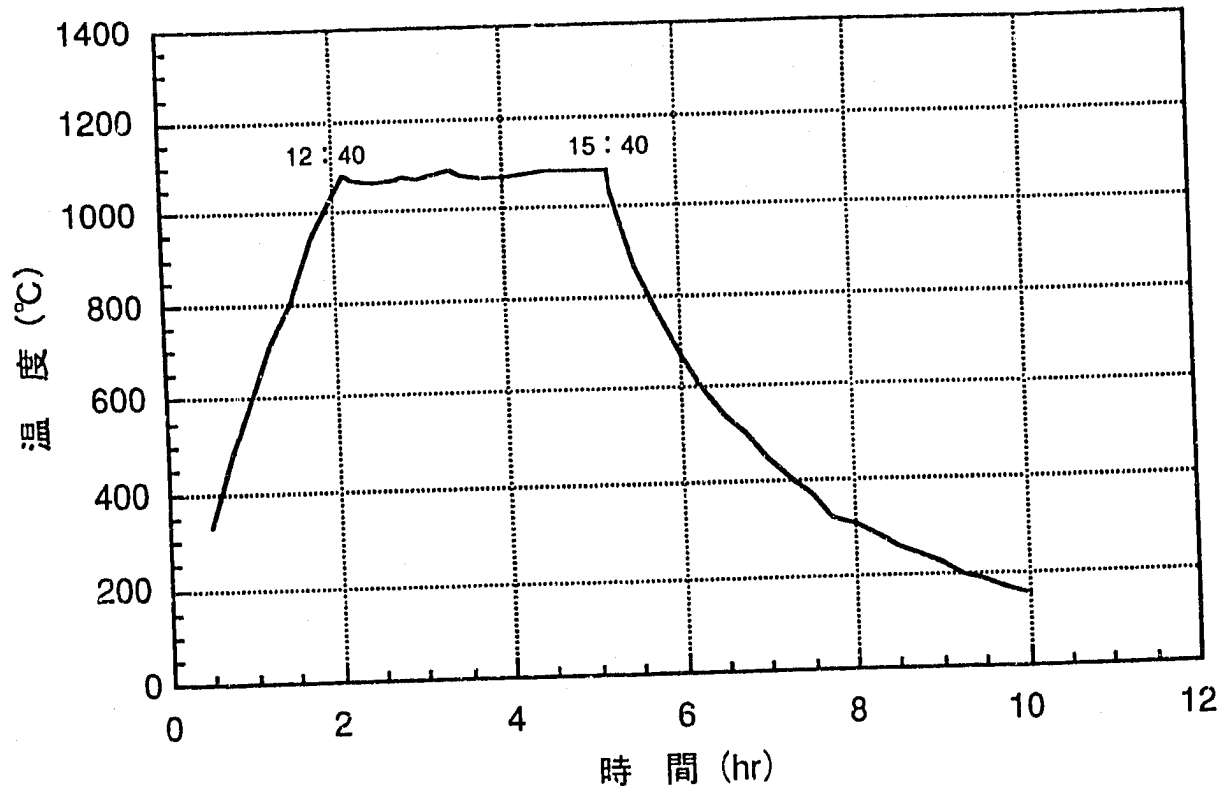


図3.3 鉛抽出時の加熱パターン (第3バッチ; H3-Pb-3)

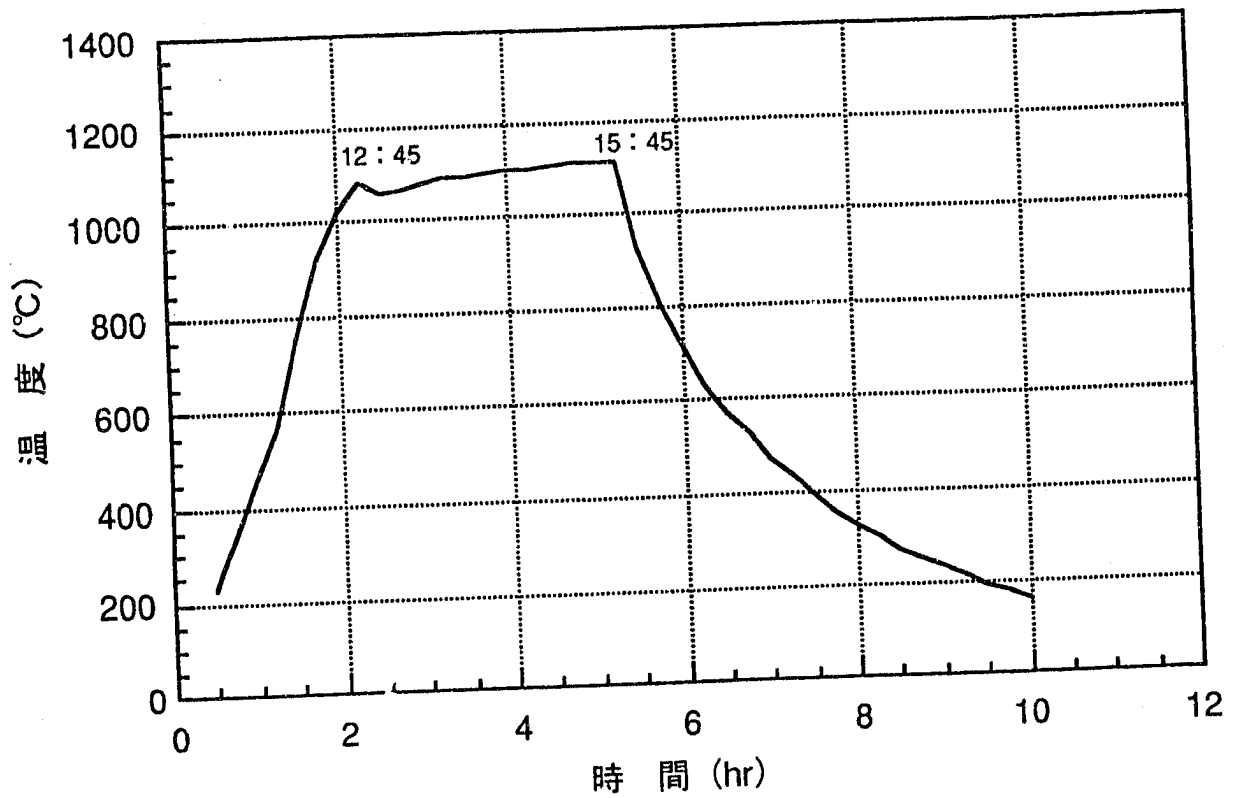


図3.4 鉛抽出時の加熱パターン (第4バッチ; H3-Pb-4)

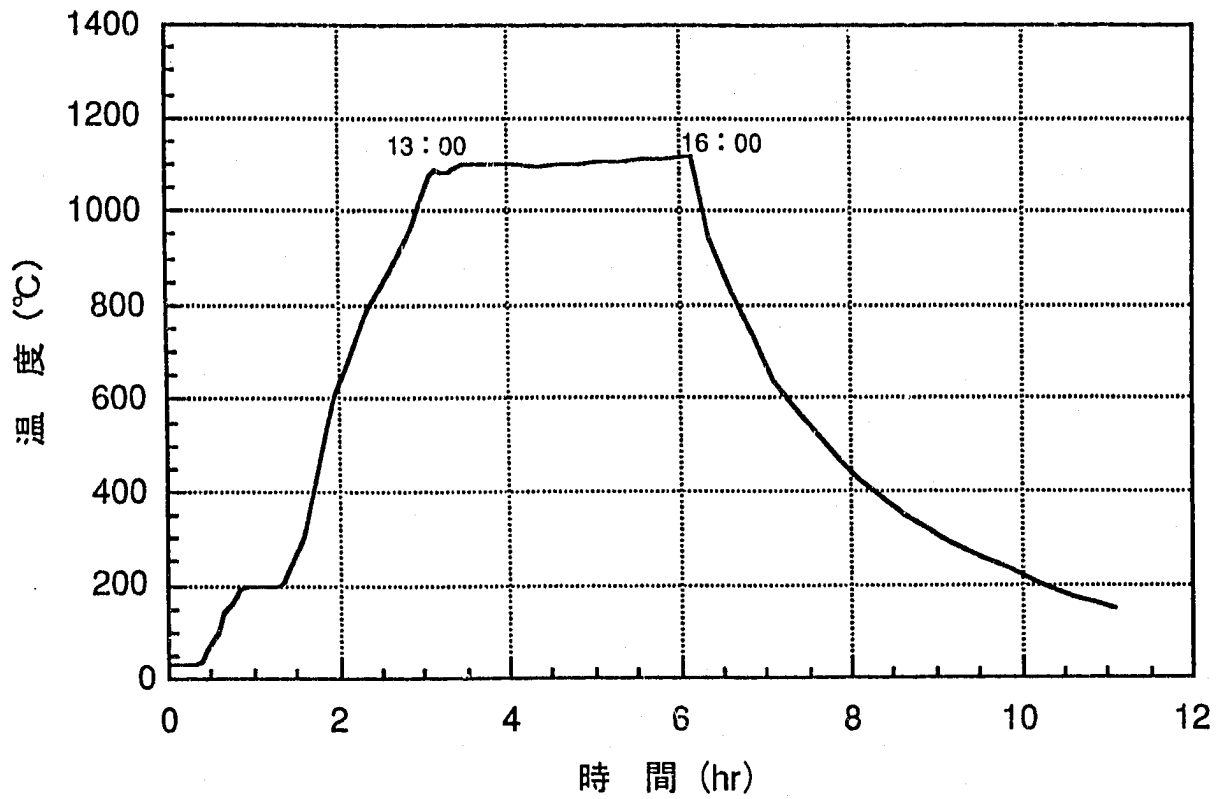


図3.5 鉛抽出時の加熱パターン (第5バッチ; H3-Pb-5)

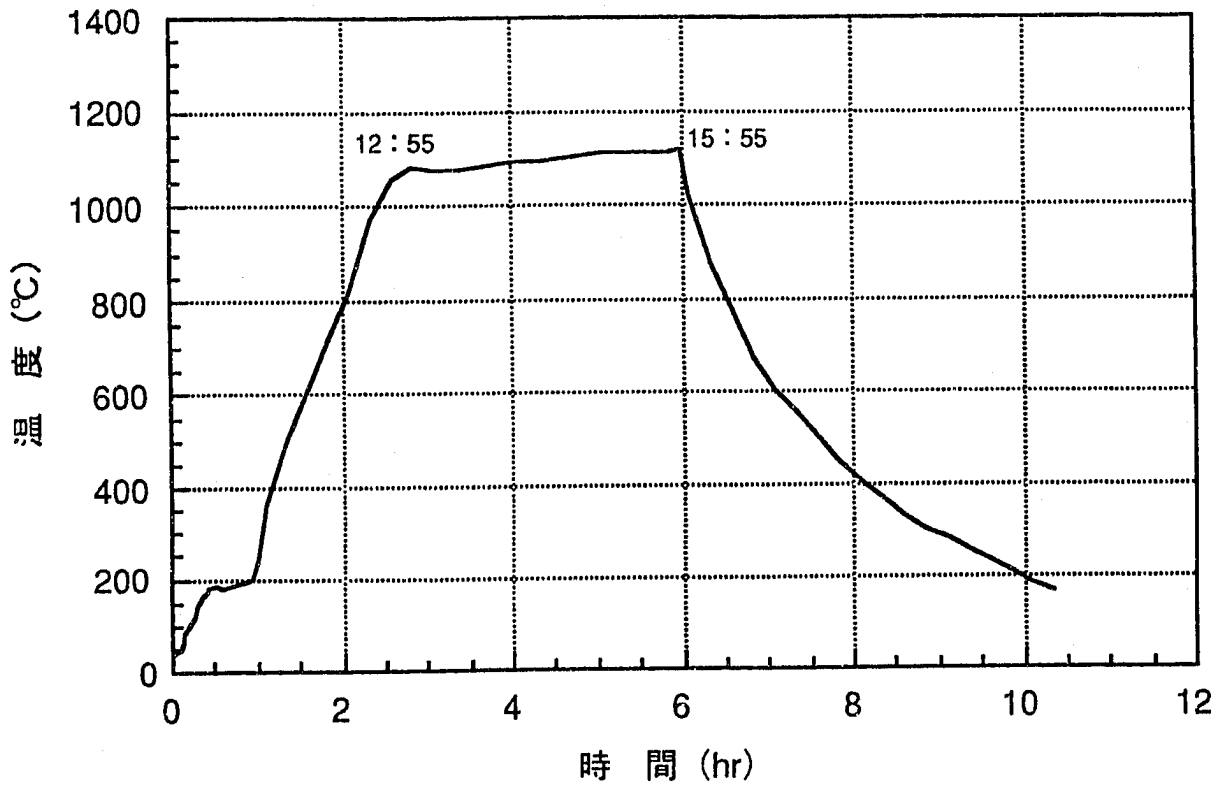


図3.6 鉛抽出時の加熱パターン (第6バッチ; H3-Pb-6)

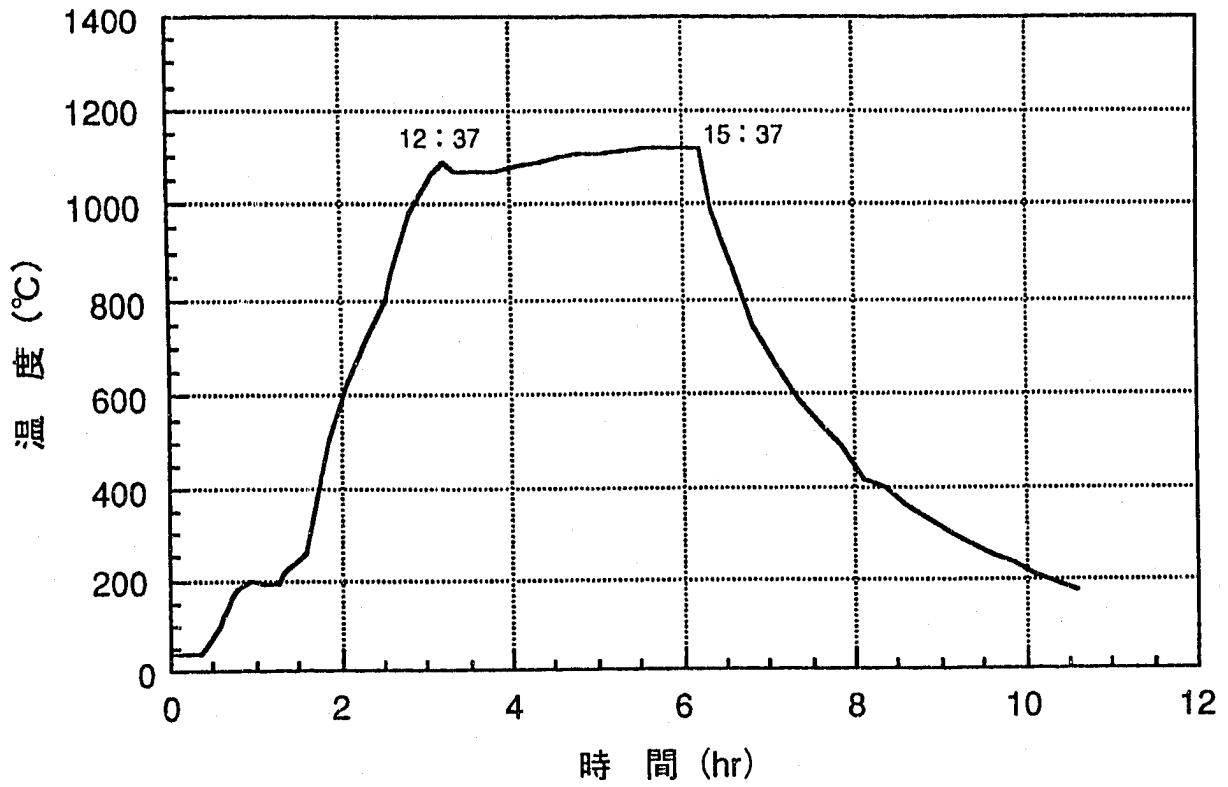


図3.7 鉛抽出時の加熱パターン (第7バッチ; H3-Pb-7)

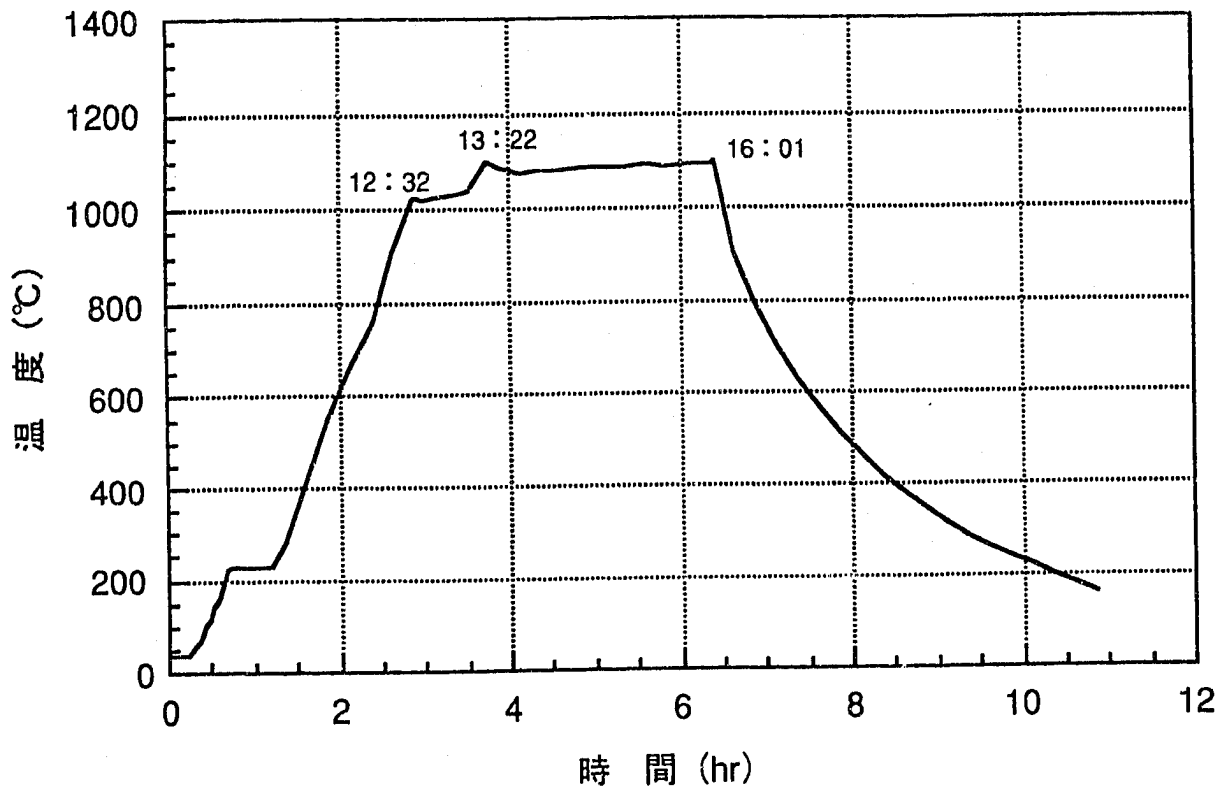
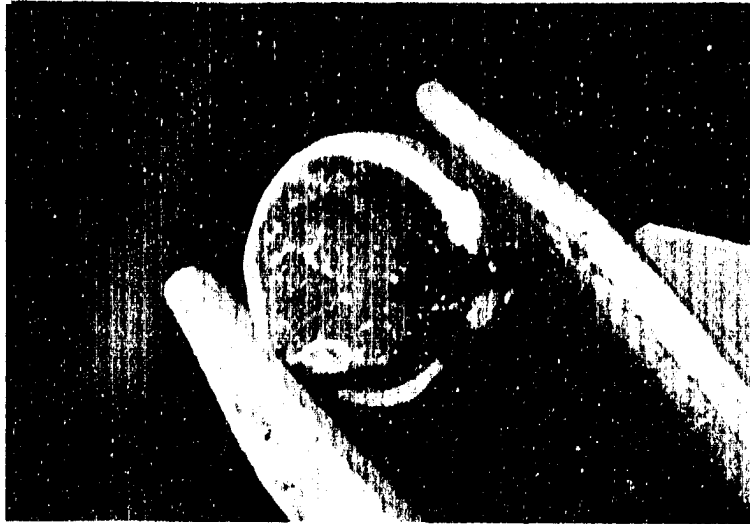
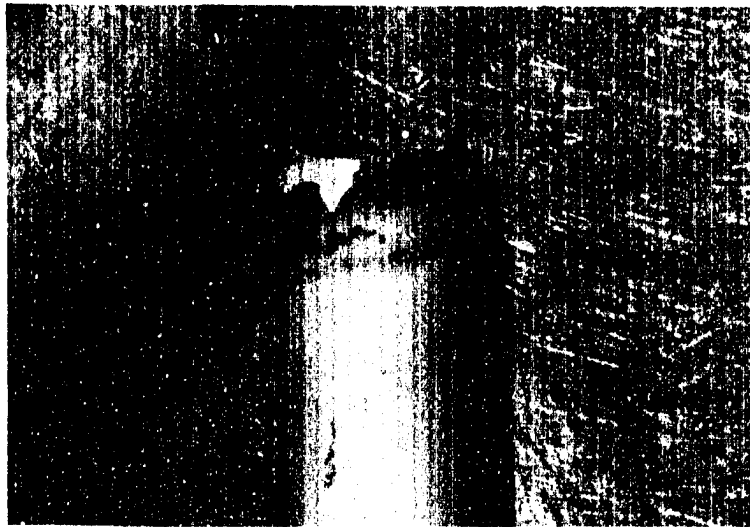


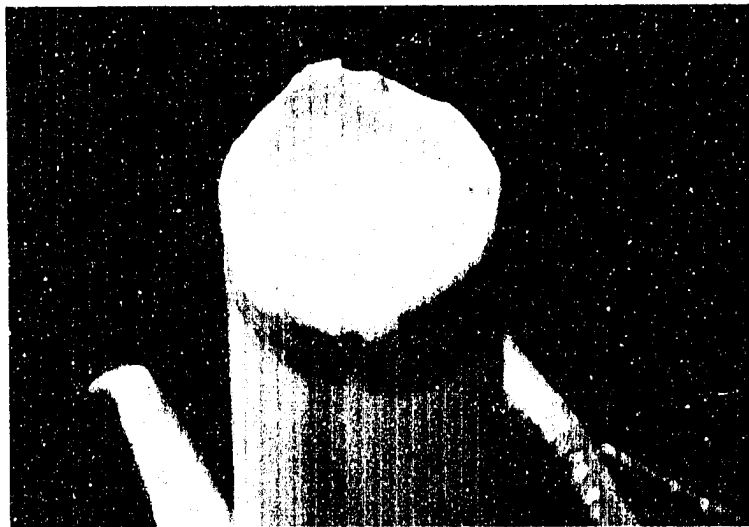
図3.8 鉛抽出時の加熱パターン (第8バッチ; H3-Pb-8)



溶解試料



タンマン管折損部



タンマン管折損部（拡大）

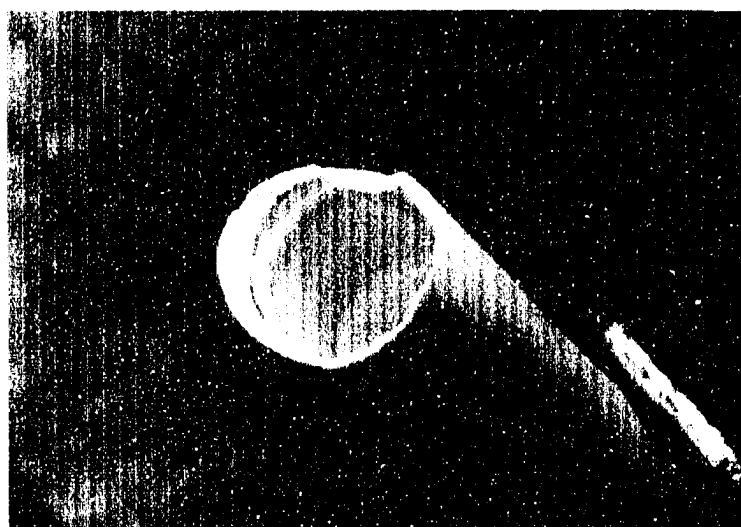
写真3.1 鉛抽出後の試料及びタンマン管の外観（第1バッチ；H3-Pb-1）



溶解試料

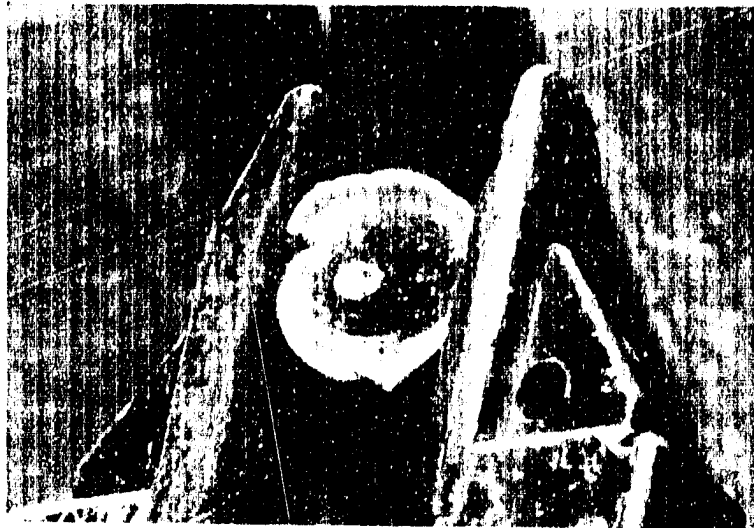


溶解試料（底部）

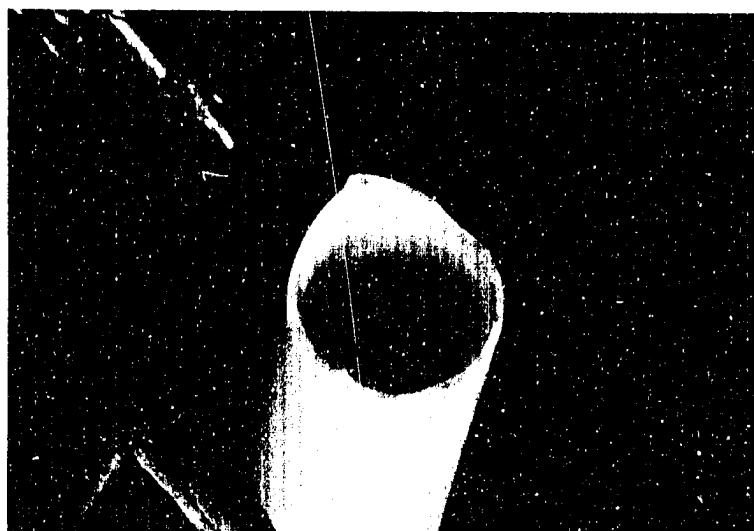


タンマン管折損部

写真3.2 鉛抽出後の試料及びタンマン管の外観（第2バッチ；H3-Pb-2）



溶解試料



タンマン管外観 (1)

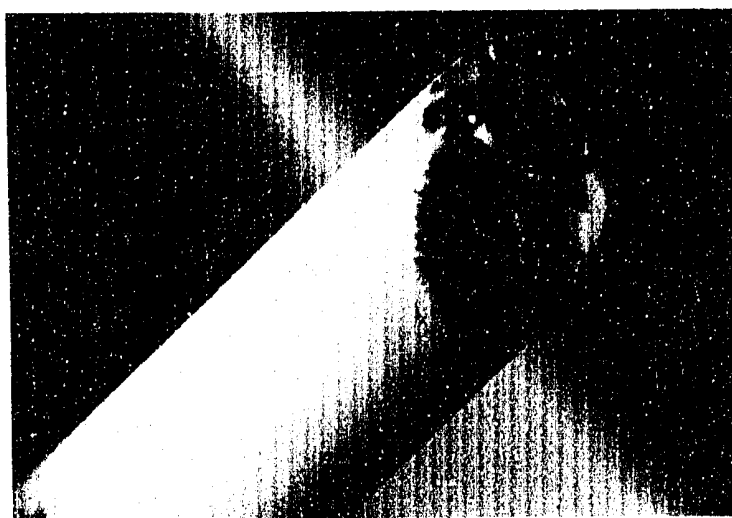


タンマン管外観 (2)

写真3.3 鉛抽出後の試料及びタンマン管の外観 (第3バッチ ; H3-Pb-3)

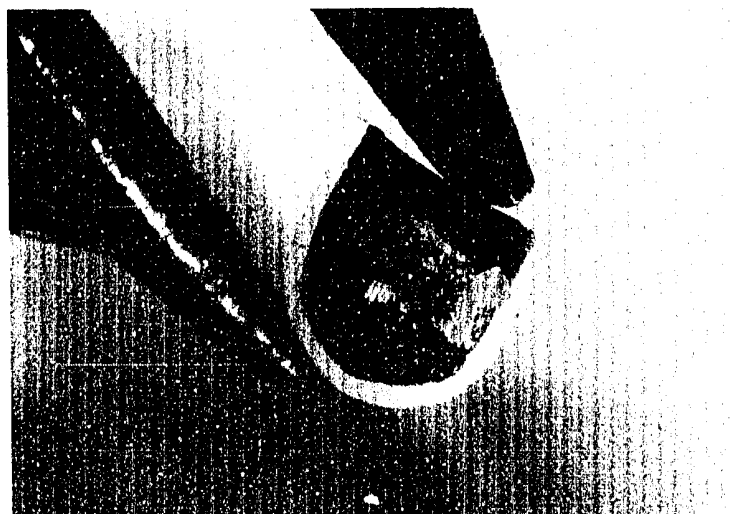


割れたタンマン管上部の外観



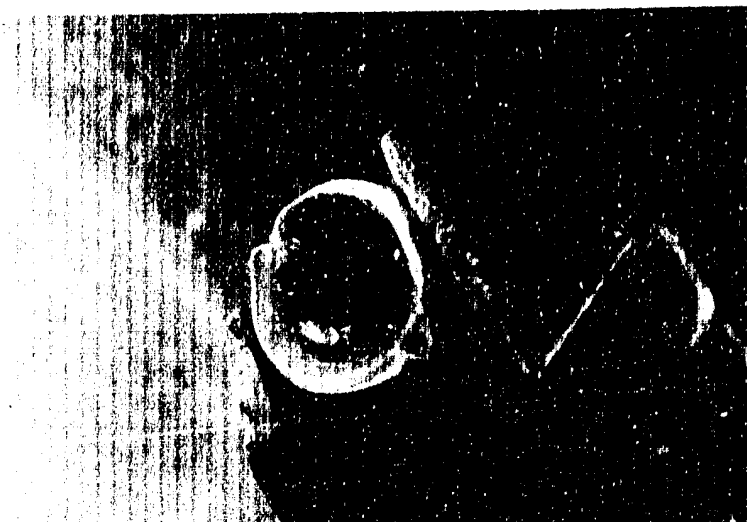
タンマン管折損部

写真4.4 鉛抽出後の試料及びタンマン管の外観（第4バッチ；H3-Pb-4）



溶解試料

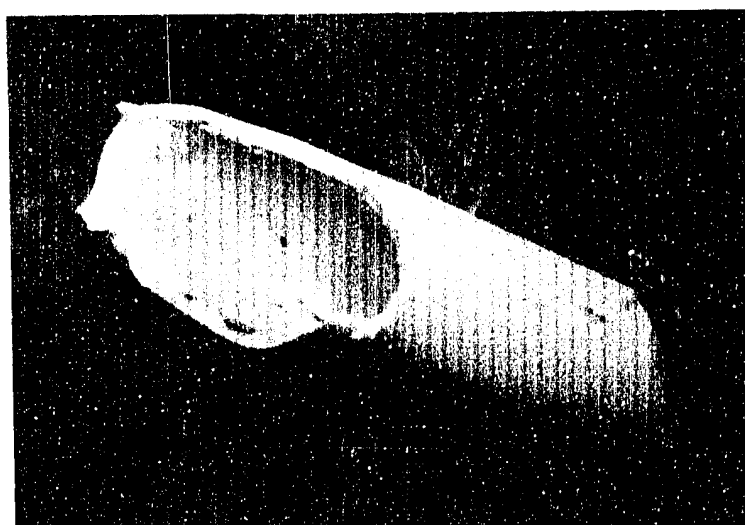
写真3.5 鉛抽出後の試料及びタンマン管の外観（第5バッチ；H3-Pb-5）



溶解試料



タンマン管底部

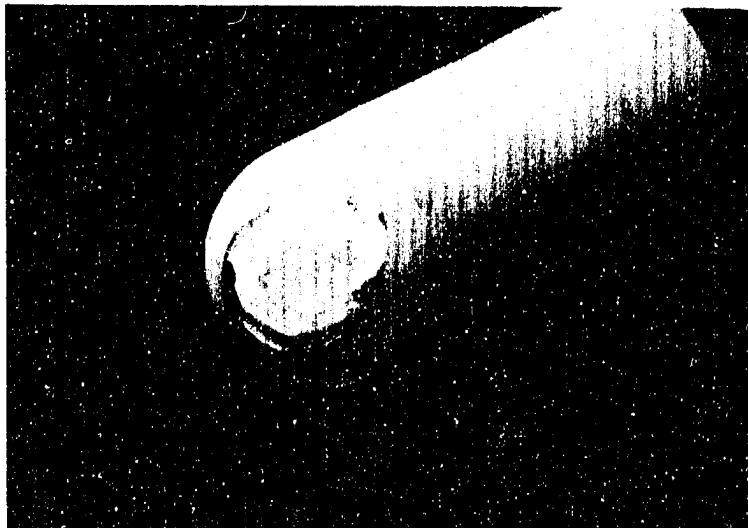


タンマン管内面（試料取り出しのために破碎した破片）

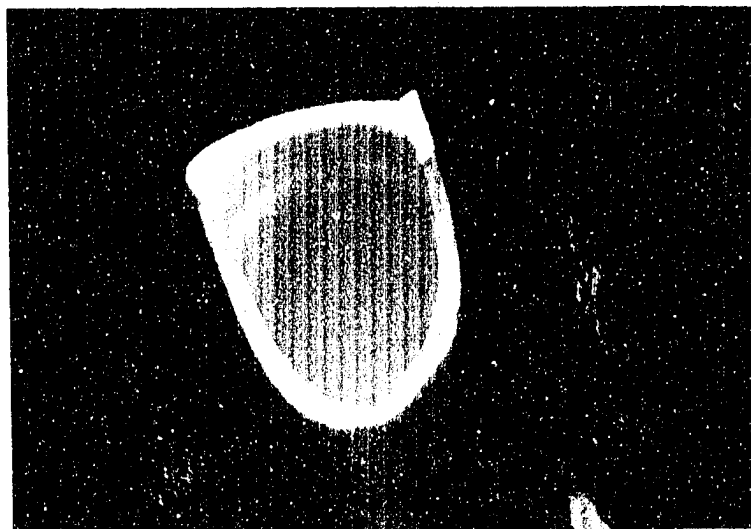
写真3.6 鉛抽出後の試料及びタンマン管の外観（第6バッチ；H3-Pb-6）



溶解試料



タンマン管底部

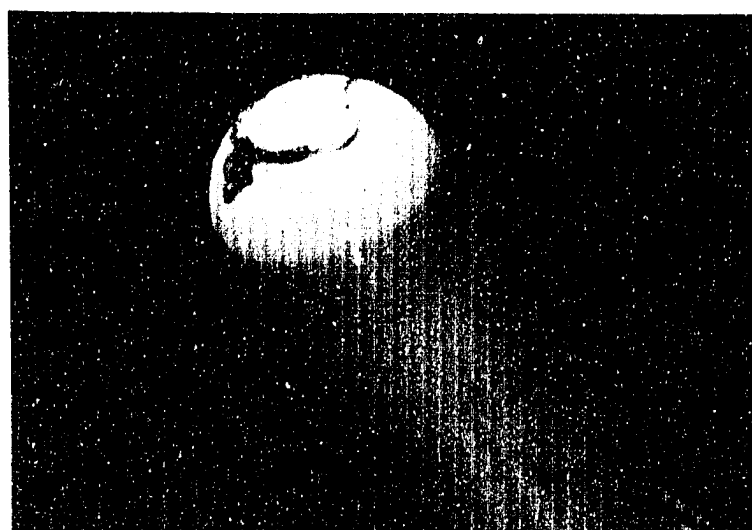


タンマン管内面（試料取り出しのために破碎した破片）

写真3.7 鉛抽出後の試料及びタンマン管の外観（第7バッチ；H3-Pb-7）



溶解試料

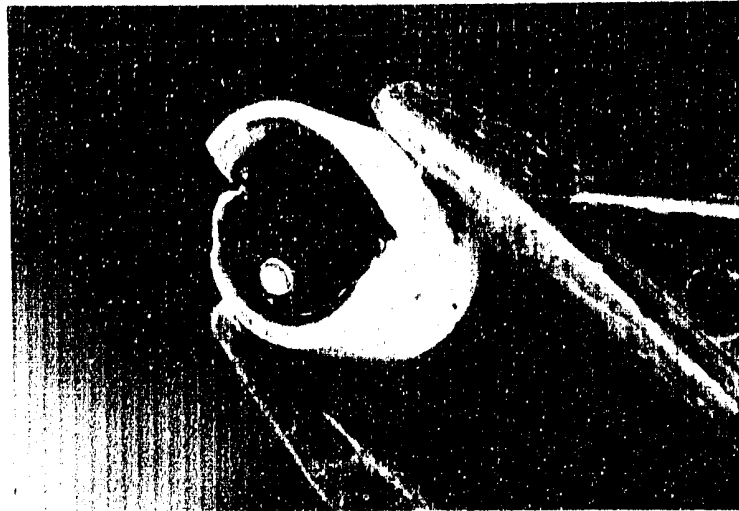


タンマン管底部

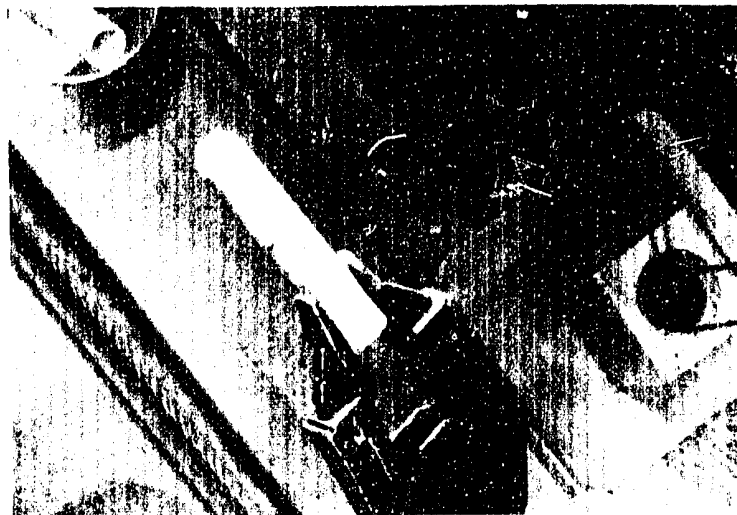


タンマン管内面（試料取り出しのために破碎した破片）

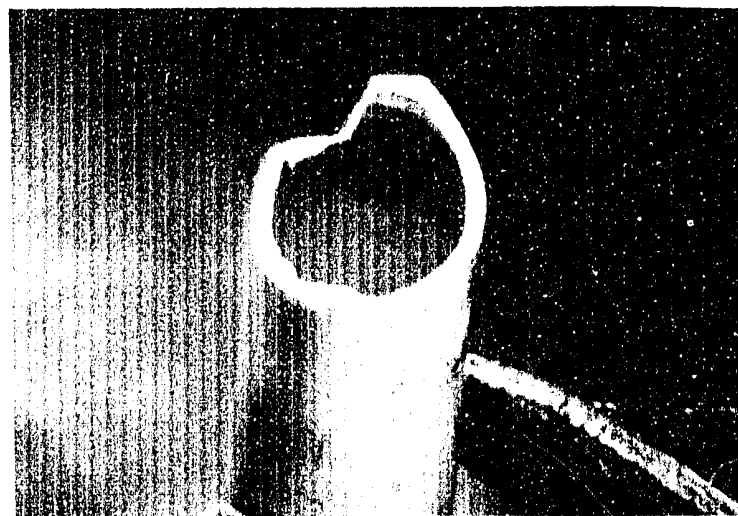
写真3.8 鉛抽出後の試料及びタンマン管の外観（第8バッチ；H3-Pb-8）



溶解試料

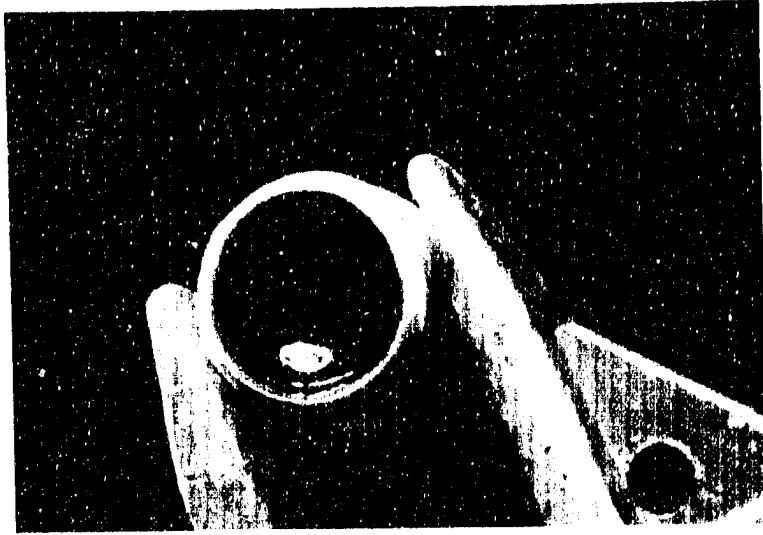


抽出加熱後のタンマン管外観

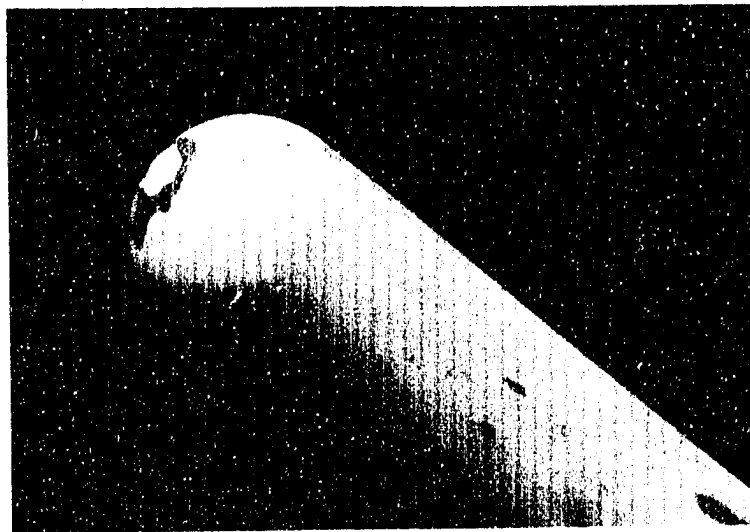


タンマン管内面（試料取り出しのために破碎した破片）

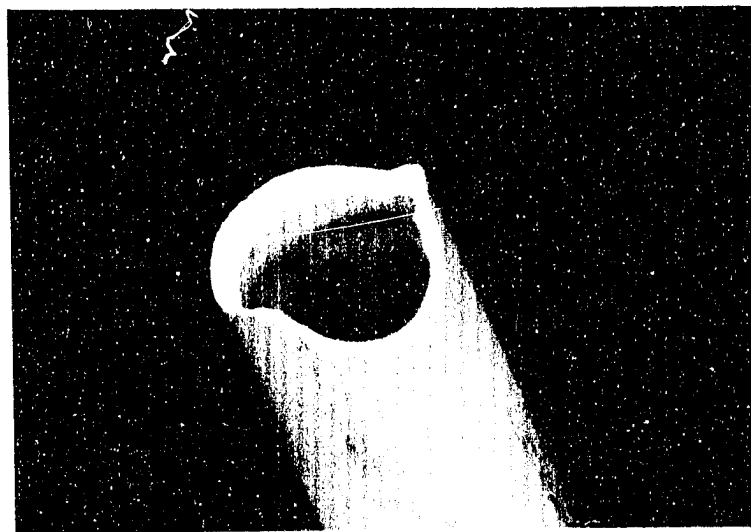
写真3.9 鉛抽出後の試料及びタンマン管の外観（第9バッチ；H3-Pb-9）



溶解試料



タンマン管底部



タンマン管内面（試料取り出しのために破碎した破片）

写真3.10 鉛抽出後の試料及びタンマン管の外観（第10バッチ；H3-Pb-10）

4. EPMAによる分析結果

4.1 面分析結果

3種類の試料についてのEPMAによる面分析結果は以下のとおりである。

不溶解残渣を鉛によって抽出した試料 (H3-Pb-1)

EPMAに先立ちセル内光学顕微鏡により観察した結果を図4.1に示す。ガラスが鉛ボタンの底部に回り込みそこに微細な鉛相が分散しているが、ほぼ良好な鉛相が形成されていることがわかった。写真4.1は鉛ボタンの上部のガラス相との界面付近の二次電子像である。この部分をやや拡大して各元素についてX線像を撮影した結果が写真4.2及び写真4.3である。写真4.2及び写真4.3よりRu、Rh、Pd及びTcが鉛相に抽出されていることがわかる。Moについては写真4.3からは鉛相とガラス相のどちらに抽出されているのかは判然としない。鉛相に各元素の信号とも検出されていない領域がみられるが、この部分からはCuの特性X線が検出されることから試料の研磨に使用した研磨剤に基づくものであると考えられる。

不溶解残渣を酸化鉛によって抽出した試料 (H3-Pb-5)

写真4.4に試料断面の二次電子像を示す。鉛相の中にガラスが一部入り込んでおり鉛ボタンが完全には形成されていないことがわかる。鉛相とガラス相の界面付近を拡大し各元素の分析を行った結果が写真4.5及び写真4.6である。上記試料 (H3-Pb-1) と同様にRu、Rh、Pd及びTcが鉛相に抽出されていることがわかる。またMoについても鉛相に抽出されていることがわかる。

仮焼体を酸化鉛によって抽出した試料 (H3-Pb-10)

写真4.7に抽出後試料の断面の二次電子像を示す。鉛相の凝集は不十分であり、ガラス相中に微細な鉛相が分散した状態となっており鉛ボタンが形成されていないことがわかる。ガラス相中に分散したこれらの鉛相のひとつを拡大しX線分析を行った結果を写真4.8に示す。鉛相の凝集は不十分ではあるものの鉛相にはRu、Rh及びPdが抽出されていることが明らかである。

4.2 特性X線強度測定結果

鉛ボタン及びガラス相の分析位置は図4.2に示すとおりである。鉛ボタンについては頂部から底部に向かってほぼ等間隔に6箇所を分析した。測定条件を表4.1に、その結果を図4.3～図4.18に示す。

これらの分析結果より各分析位置 (L-1～L-6、G-1、G-2) での組成を定量的に求めるた

めには組成が既知である標準試料について分析を行い、原子番号補正係数、吸収補正係数及び蛍光補正係数を知る必要がある。しかしながら鉛ボタンの分析位置に限ればマトリックスは同じ鉛であり大きな組成の変化はないと考えれば原子番号補正係数及び吸収補正係数は1に近いものとしてさしつかえないであろう。また、Ru、Rh、Pd、Tc及びMo以外の不純物元素量はこれらに比べるとかなり低いので蛍光補正についても考慮しなくても半定量的な検討に際しては大きな影響を及ぼさないと考えられる。以上のことからここでは簡単に各元素の特性X線の計数値より分析位置間での各元素濃度の比較を行った。

鉛ボタンの分析結果より次のことがいえる。Ru、Rhともに鉛ボタンの上部に多く抽出されている。特にRuではこの傾向が著しく、L-1~L-3の位置での計数値とL-4~L-6の位置でのそれとの差異が大きい。Pdについて同様の傾向が若干認められるが、鉛ボタン全体にほぼ平均的に分布していると考えてよからう。ただし鉛の計数値をみるとL-3~L-5の値がやや低くなっている（装置条件の変動のためと考えられる）が、30%程度の減少であり、白金族元素に関する上記の傾向に対して大きな影響はない。また、TcについてもRuと同様に鉛ボタンの上部に多く抽出されている。MoはL-2の位置で検出されているがその他の位置では存在は明瞭でない。

一方、ガラス相の分析結果からは次のことがいえる。Ru、Rh及びPdはガラス相では検出されない。Tcもガラス相には存在していないとみてよいであろう。それに対してMo及びPbは明らかにガラス相に存在していることがわかる。ただしマトリックスはガラスであるのでX線の計数値よりこれらの元素量の多少を鉛相と比較することはできない。

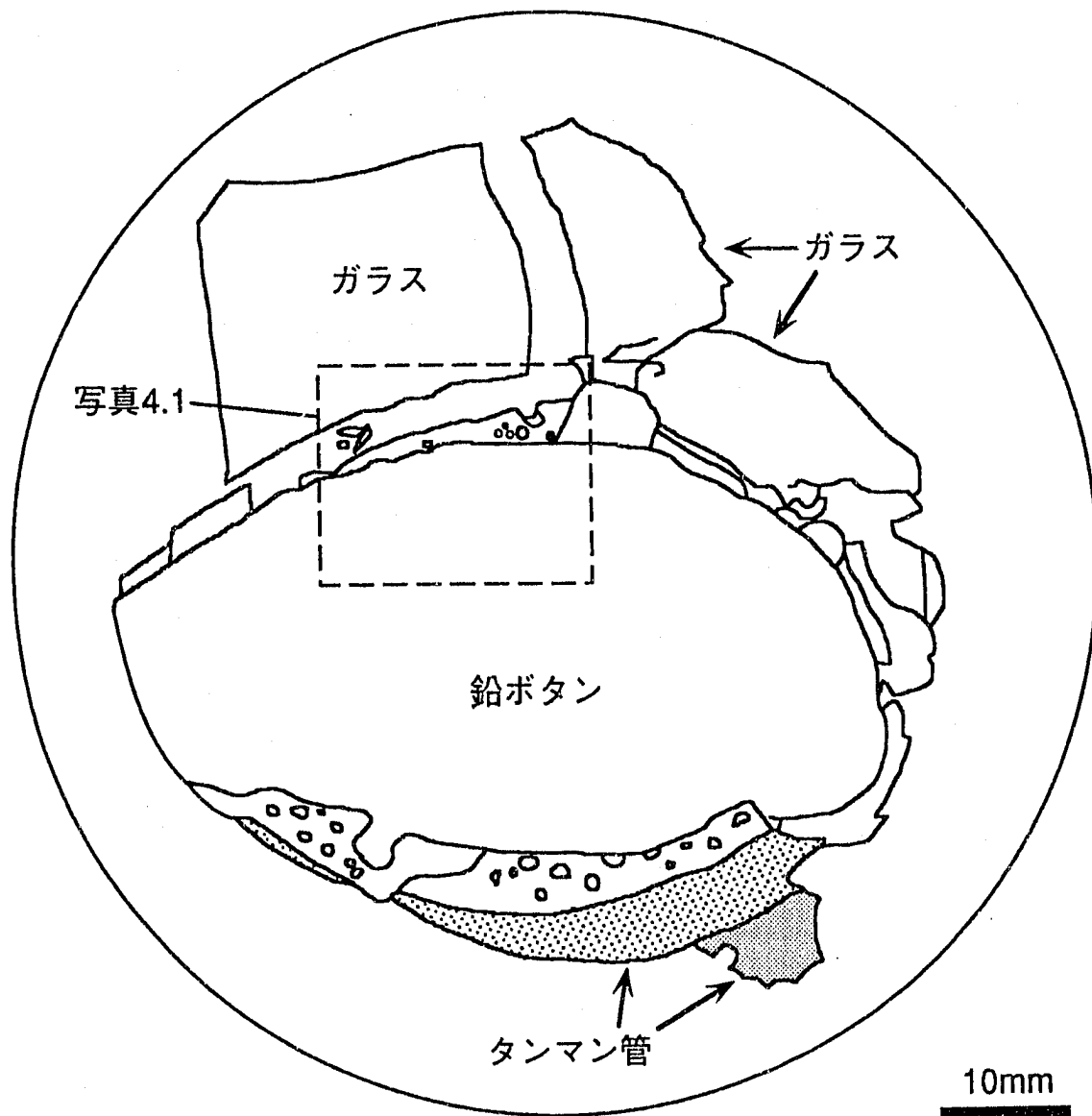


図4.1 抽出後試料の縦断面（光学顕微鏡による観察）

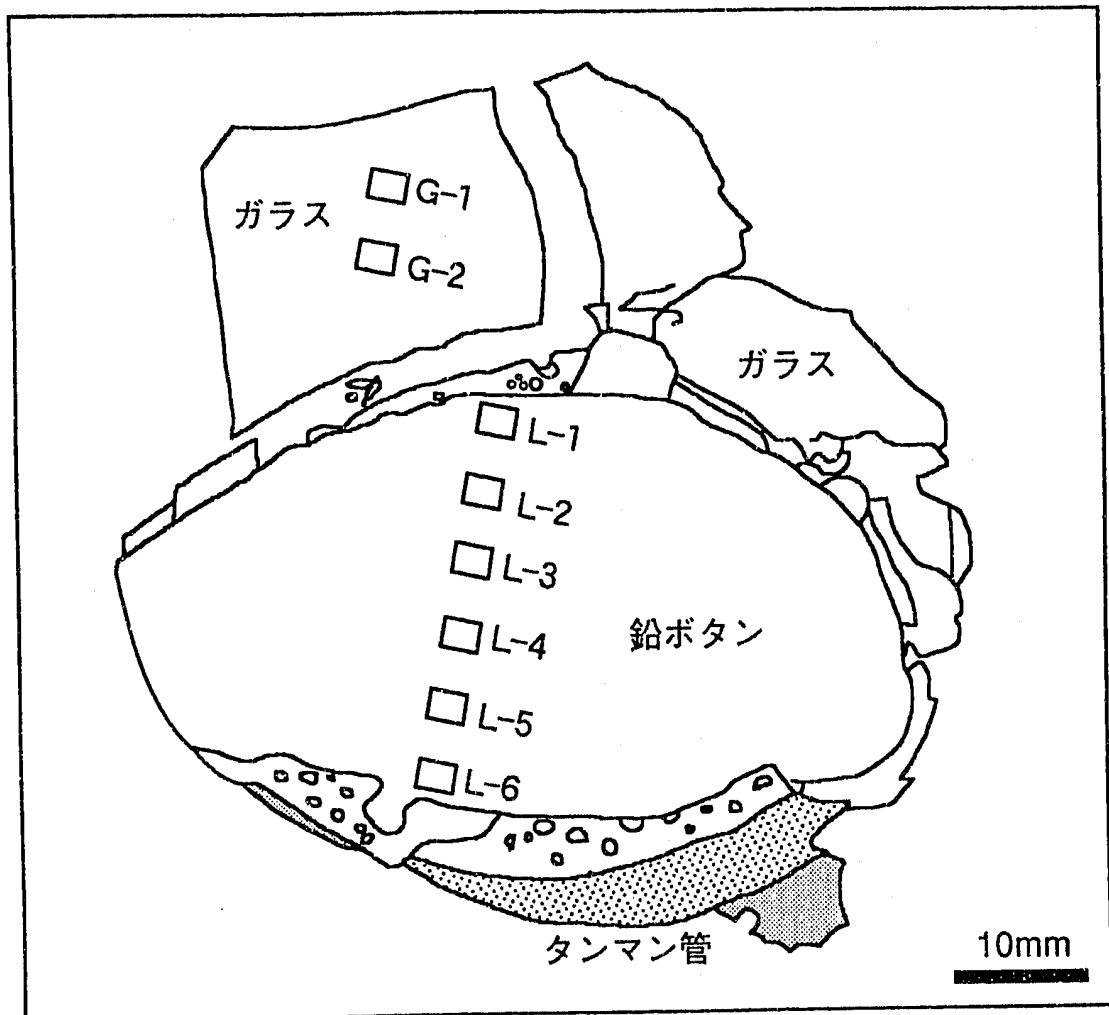


図4.2 EPMAによる分析箇所 (H3-Pb-1)

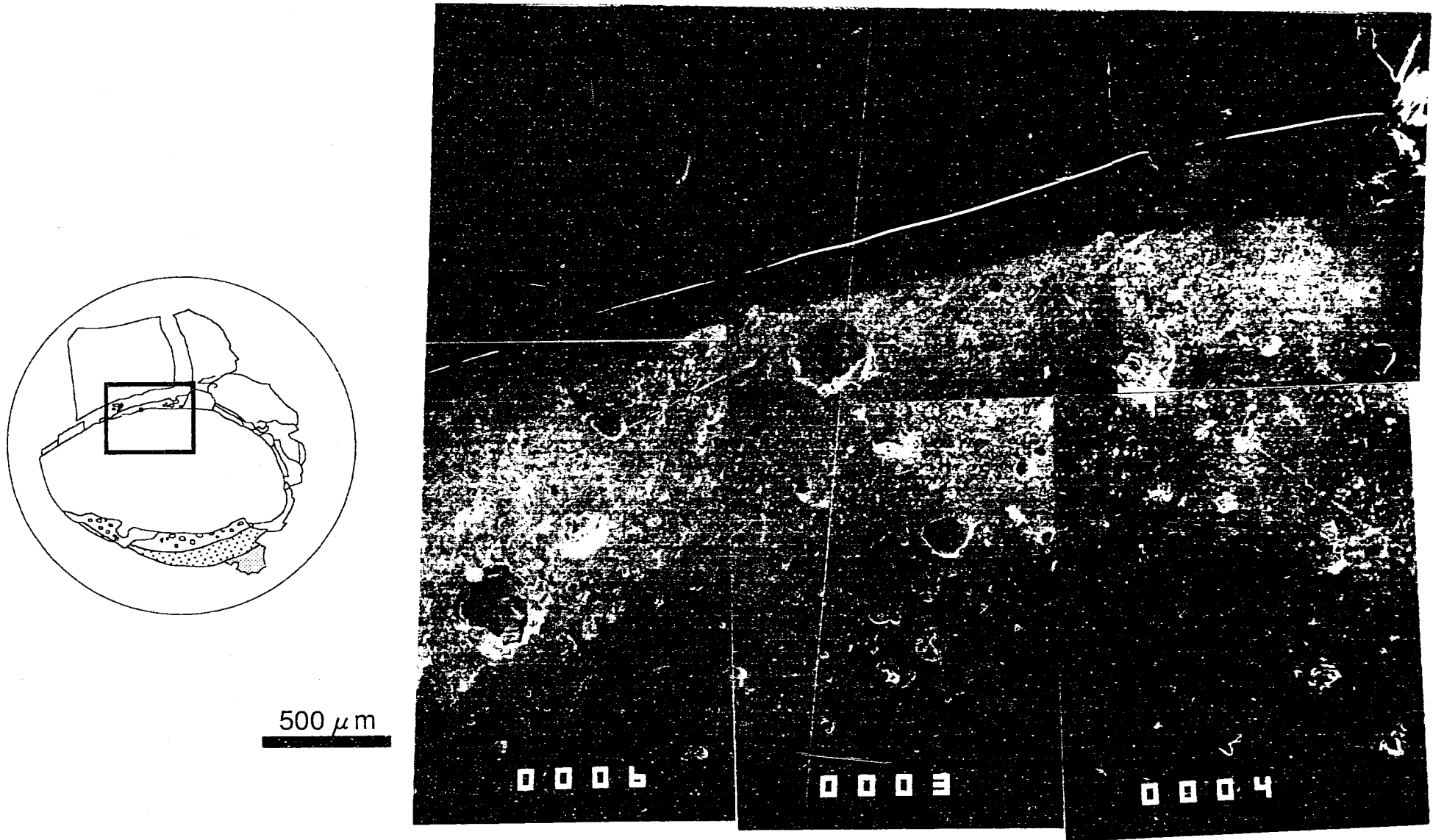
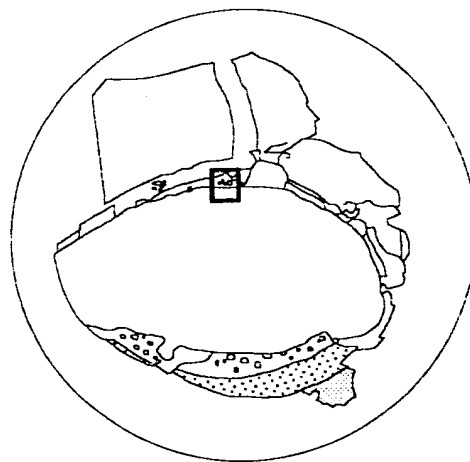


写真4.1 鉛抽出後試料の鉛相-ガラス相界面付近の断面 (H3-Pb-1)
(左図中の矩形部分の二次電子像)



50 μm

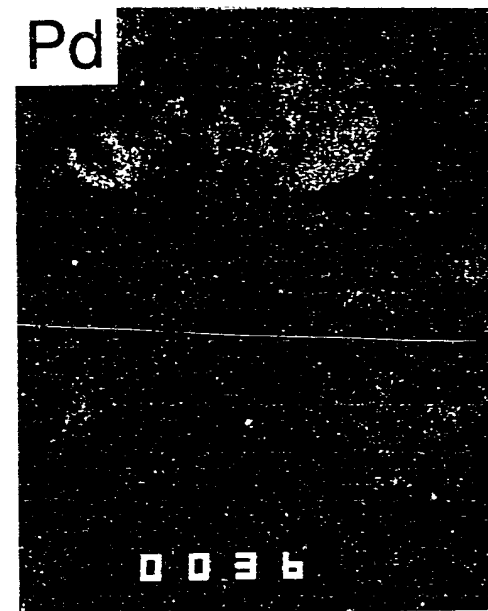
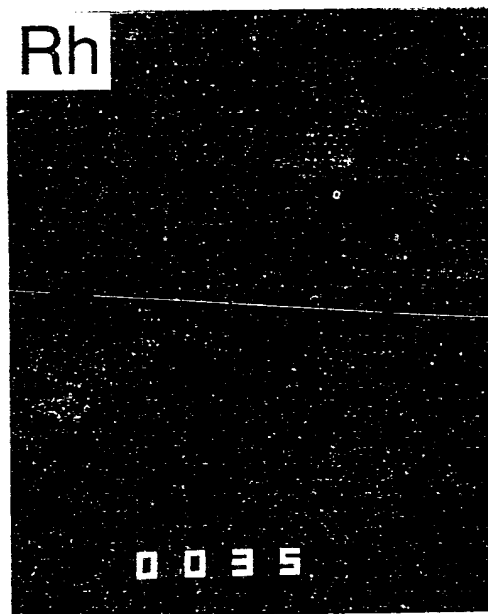
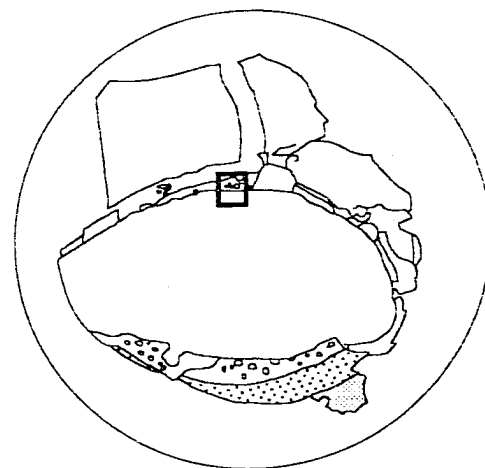


写真4.2 鉛抽出後試料の鉛相-ガラス相界面付近の各元素分布 (H3-Pb-1) [1]
 (図中矩形で示した部分についてのX線面分析結果)



50 μm

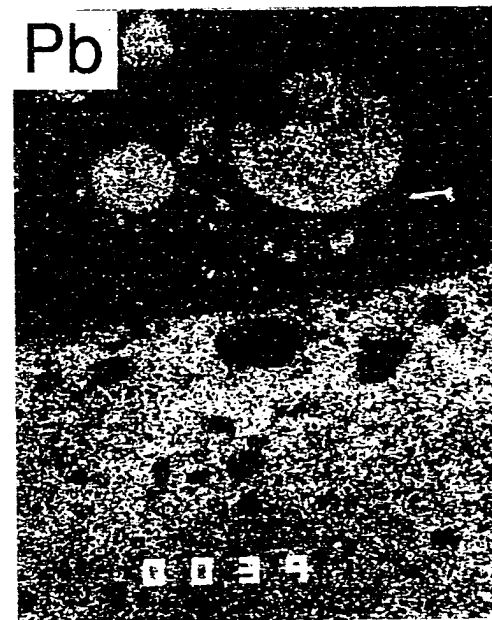
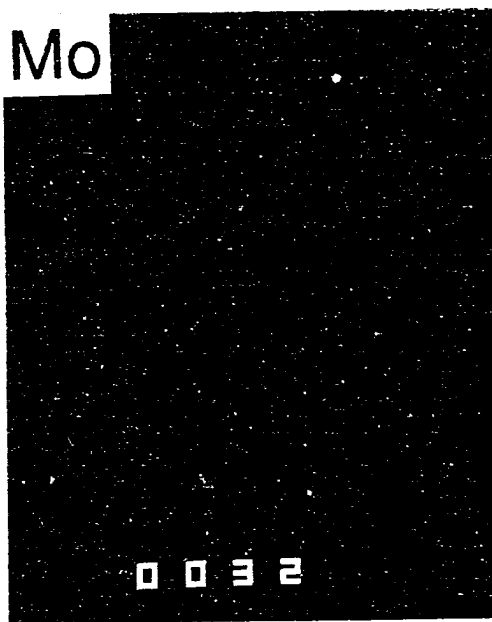
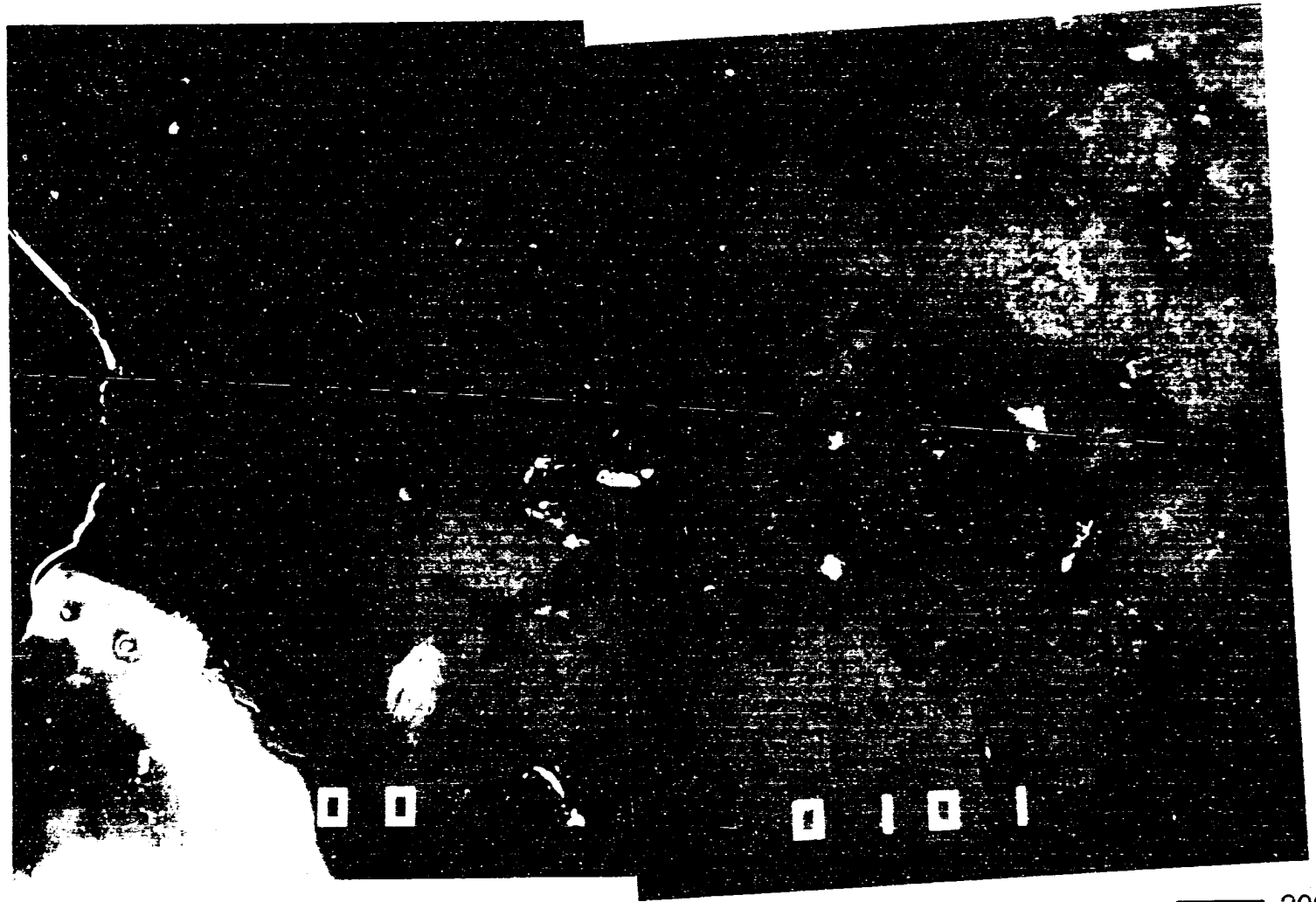


写真4.3 鉛抽出後試料の鉛相-ガラス相界面付近の各元素分布 (H3-Pb-1) [2]
(図中矩形で示した部分についてのX線面分析結果)



200 μm

写真4.4 不溶解残渣を酸化鉛を用いて鉛抽出した試料の断面 (H3-Pb-5)



50 μm

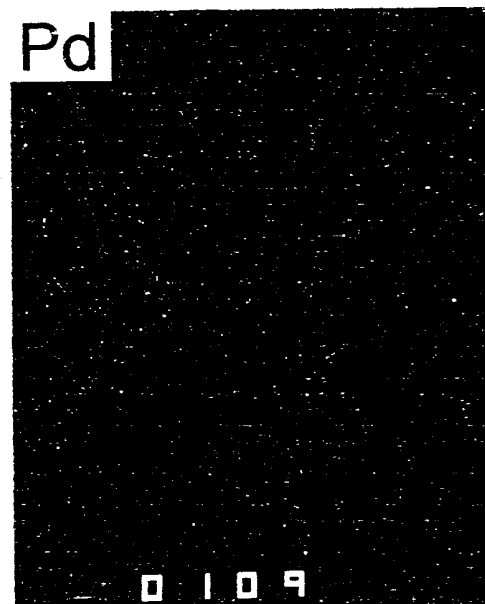
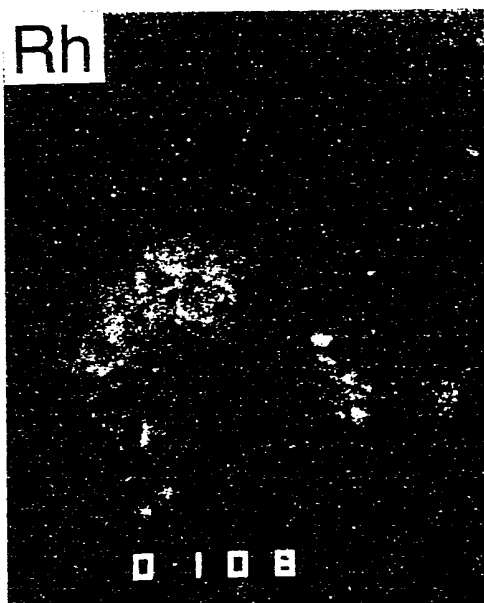
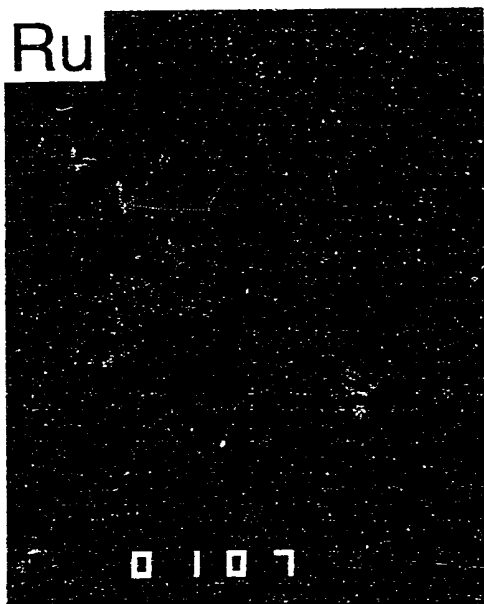


写真5.5 鉛抽出後試料の鉛相-ガラス相界面付近の各元素分布 (H3-Pb-5) [1]
(不溶解残渣を酸化鉛を用いて抽出した試料)



50 μ m

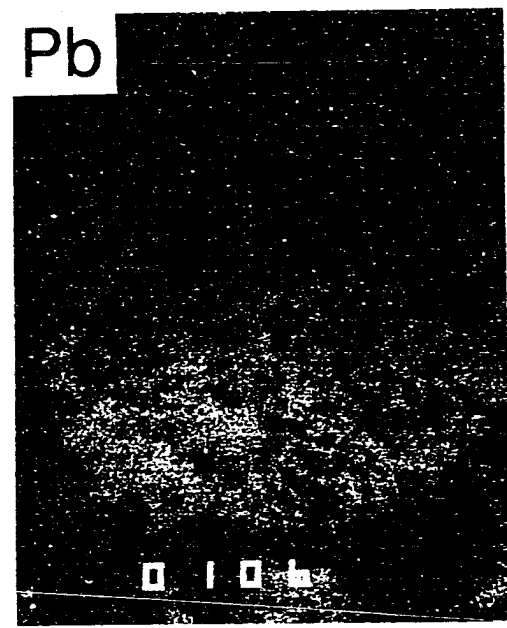
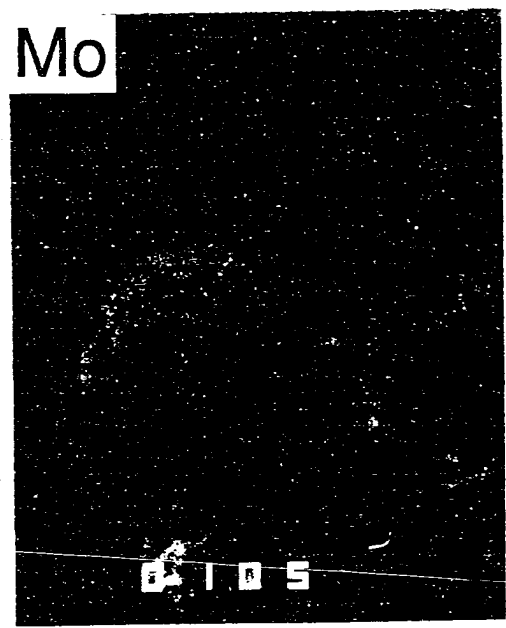
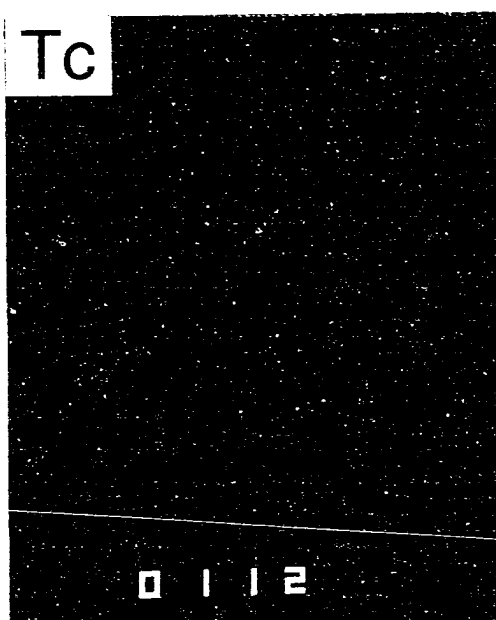
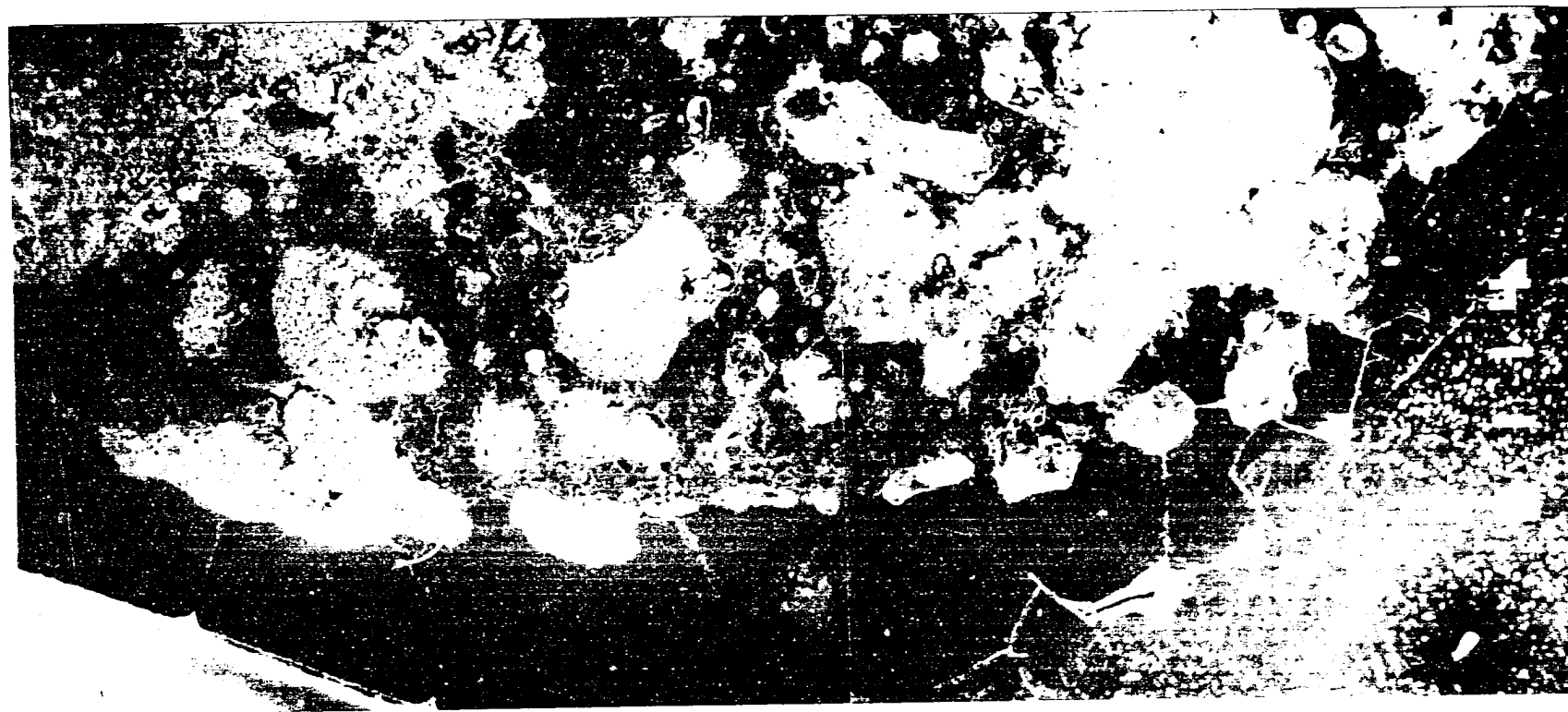


写真4.6 鉛抽出後試料の鉛相-ガラス相界面付近の各元素分布 (H3-Pb-5) [2]
(不溶解残渣を酸化鉛を用いて抽出した試料)



500 μ m

写真4.7 高レベル廃液仮焼体を酸化鉛を用いて鉛抽出した試料の断面 (H3-Pb-10)
(るつぼ底付近)

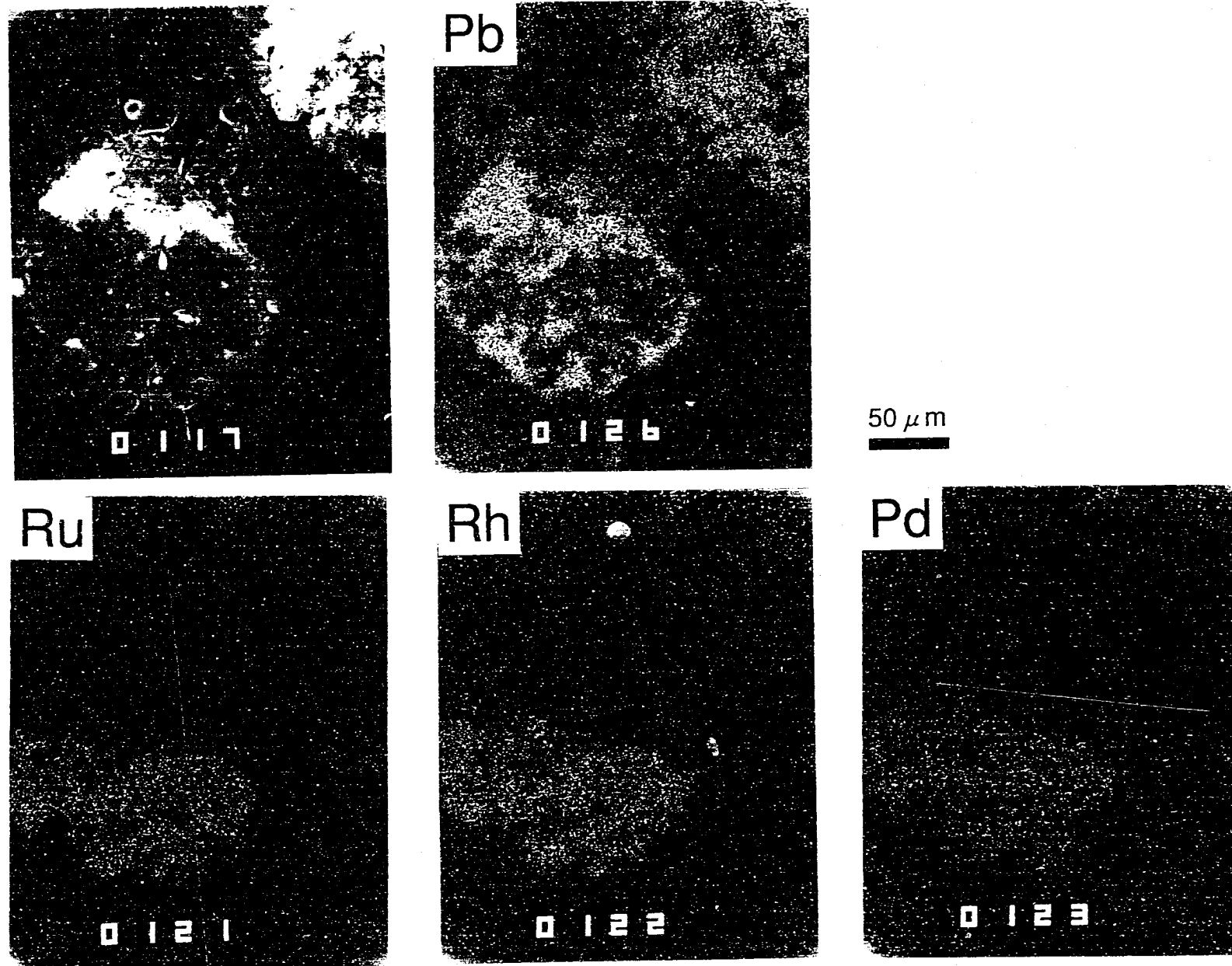


写真4.8 鉛抽出後試料の鉛相-ガラス相界面付近の各元素分布 (H3-Pb-10)
(高レベル廃液仮焼体を酸化鉛を用いて抽出した試料)

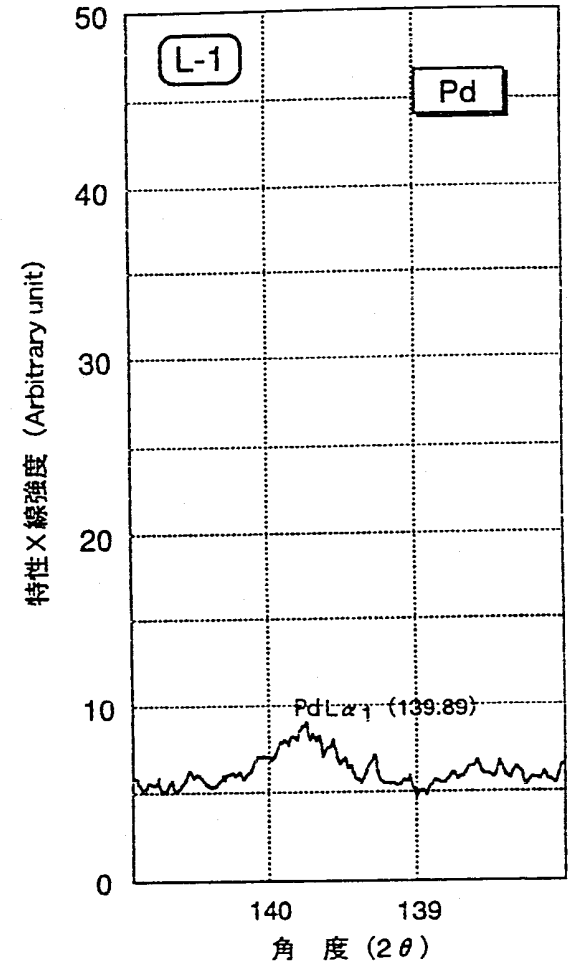
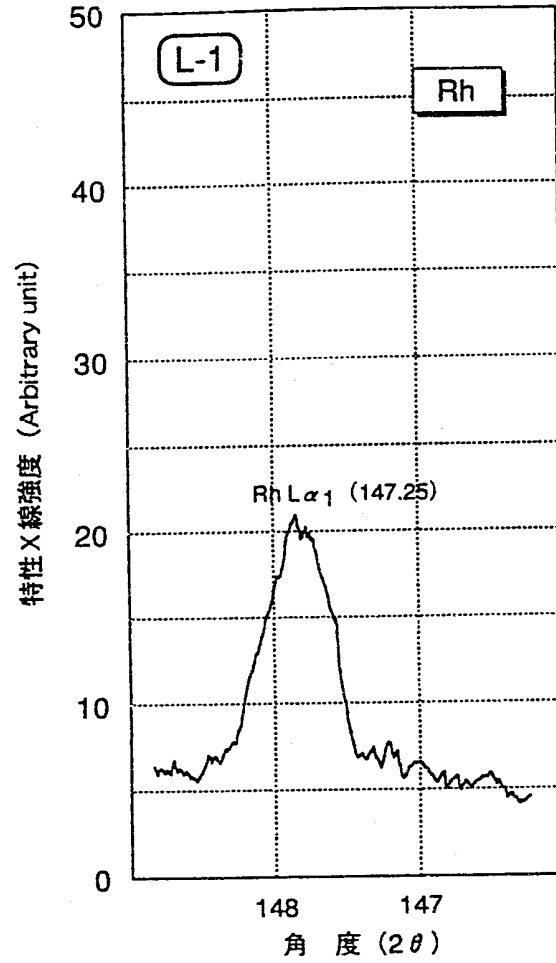
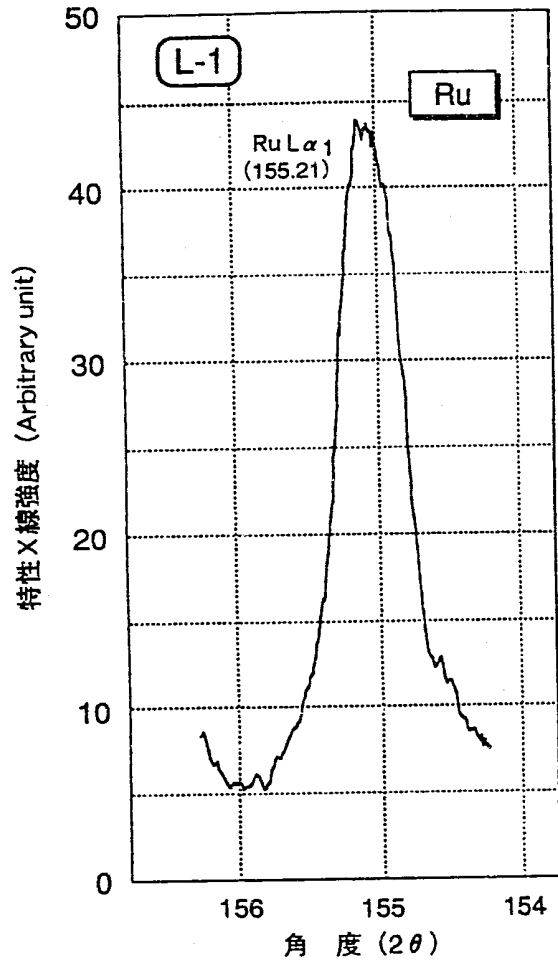


図4.3 EPMAによる各元素分析結果[1] (分析箇所：L-1)

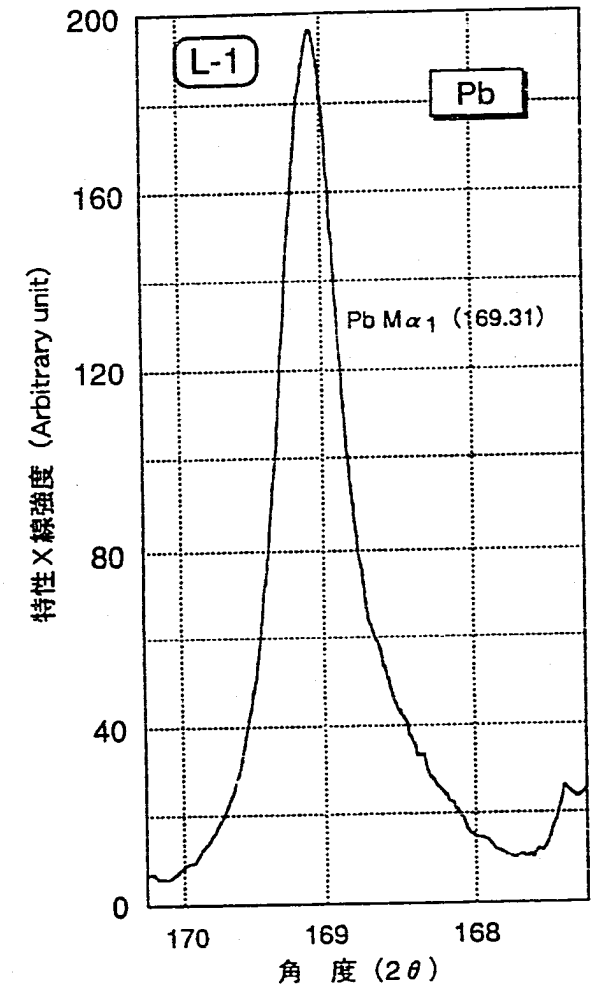
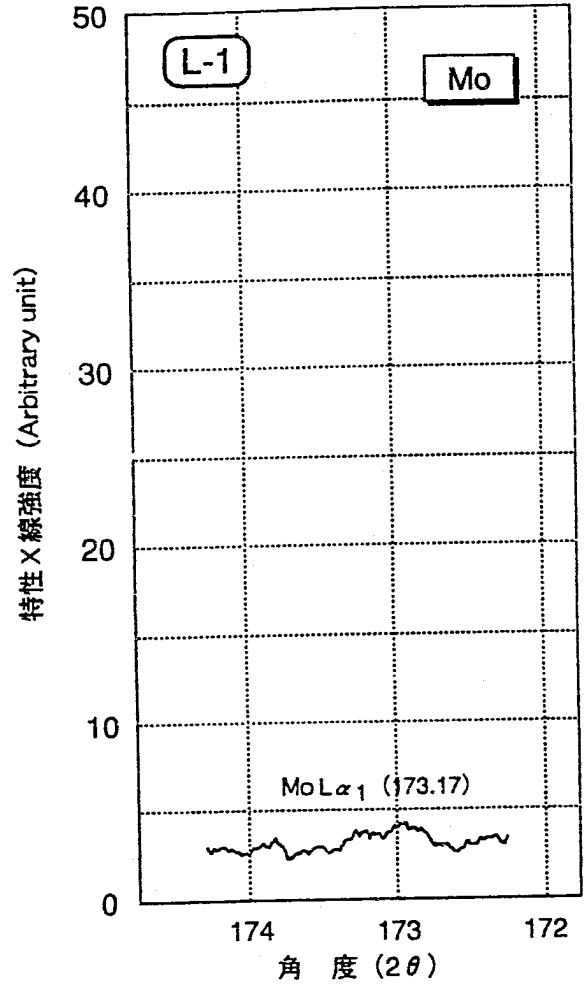
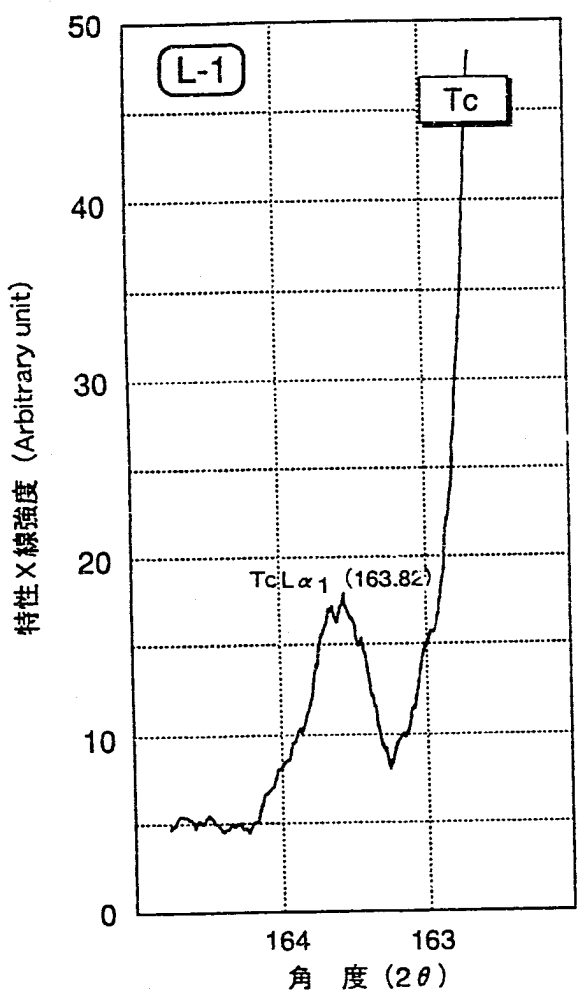


図4.4 EPMAによる各元素分析結果[2] (分析箇所：L-1)

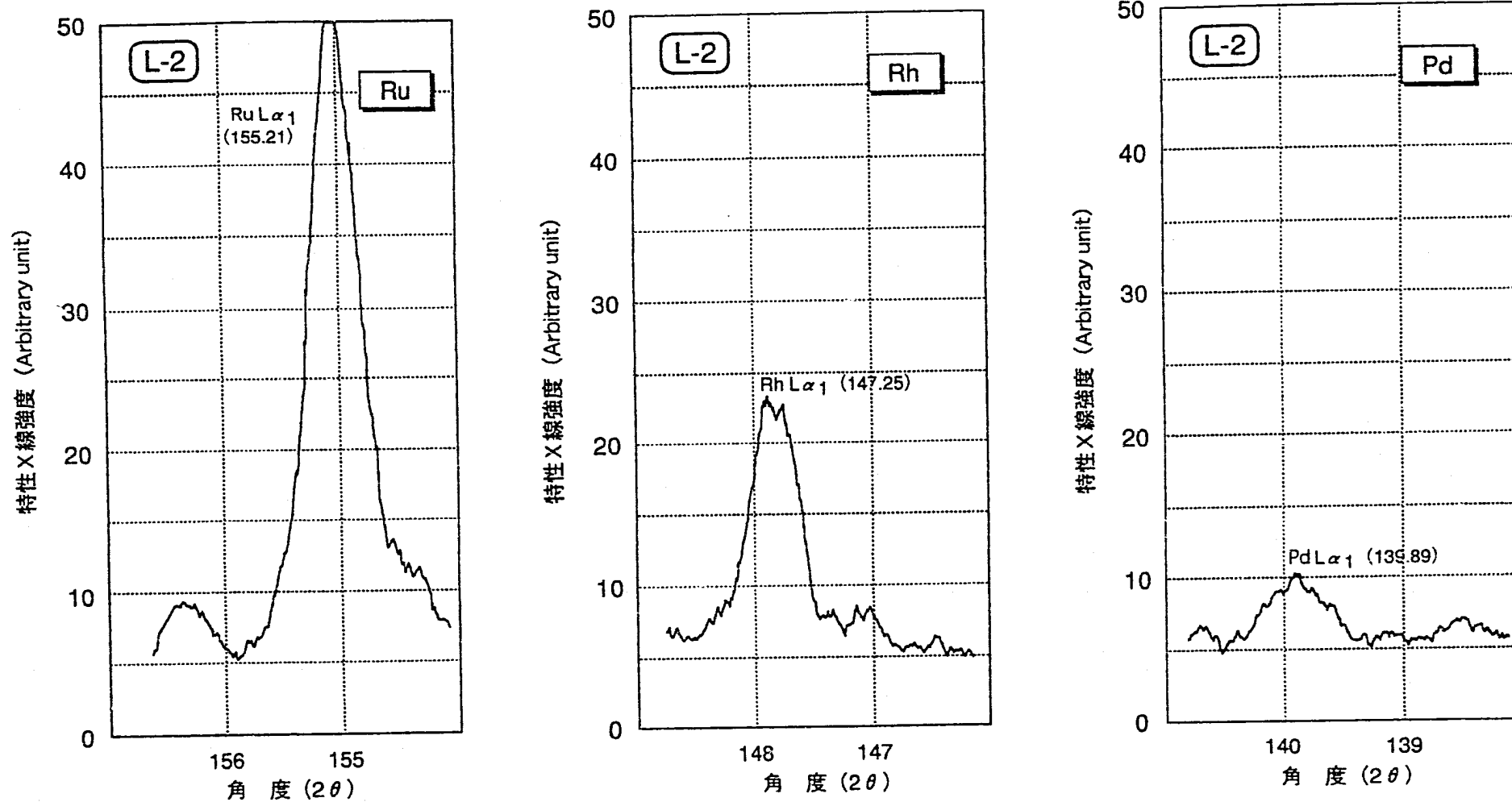


図4.5 EPMAによる各元素分析結果[3] (分析箇所：L-2)

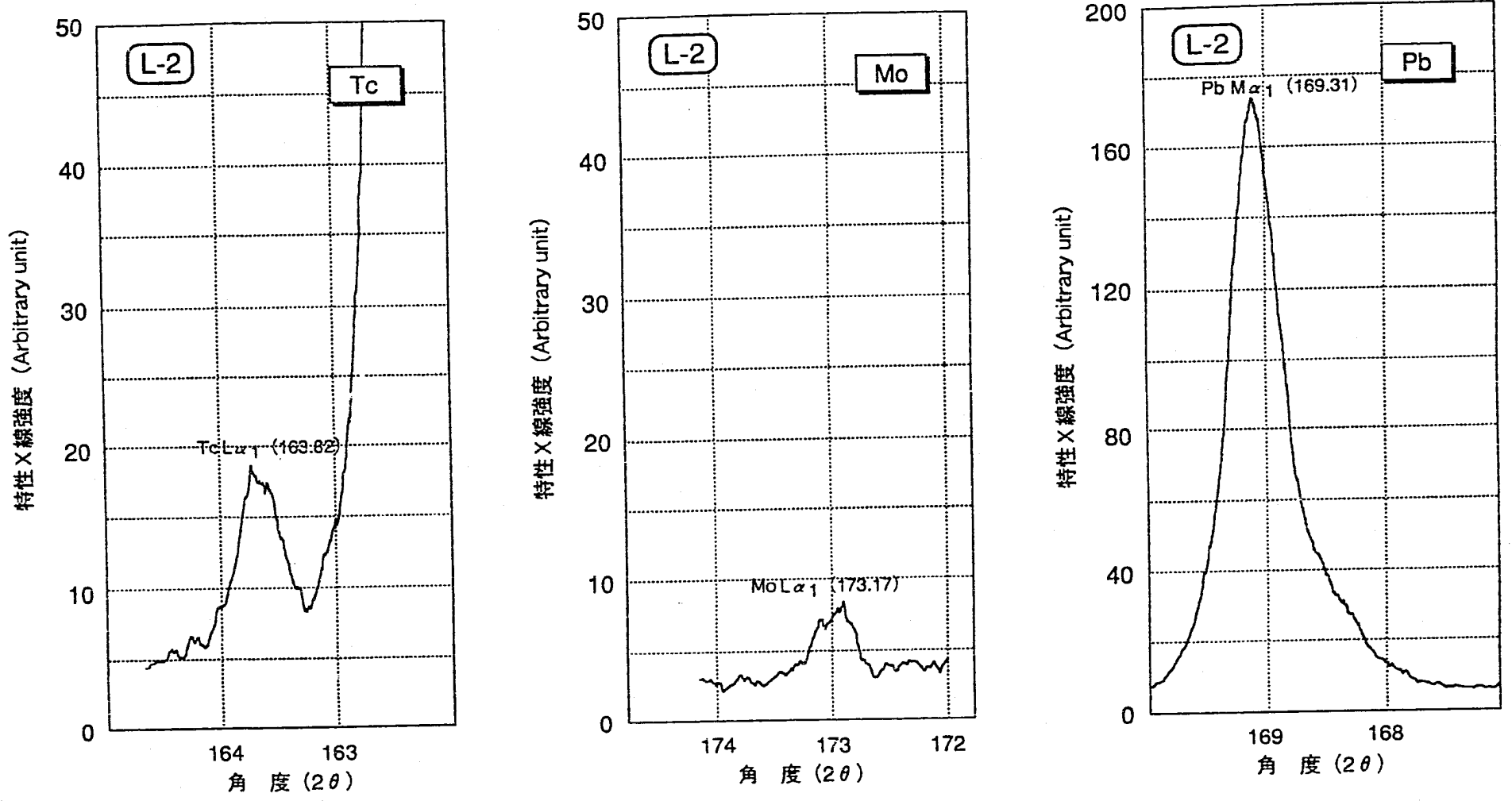


図4.6 EPMAによる各元素分析結果[4] (分析箇所：L-2)

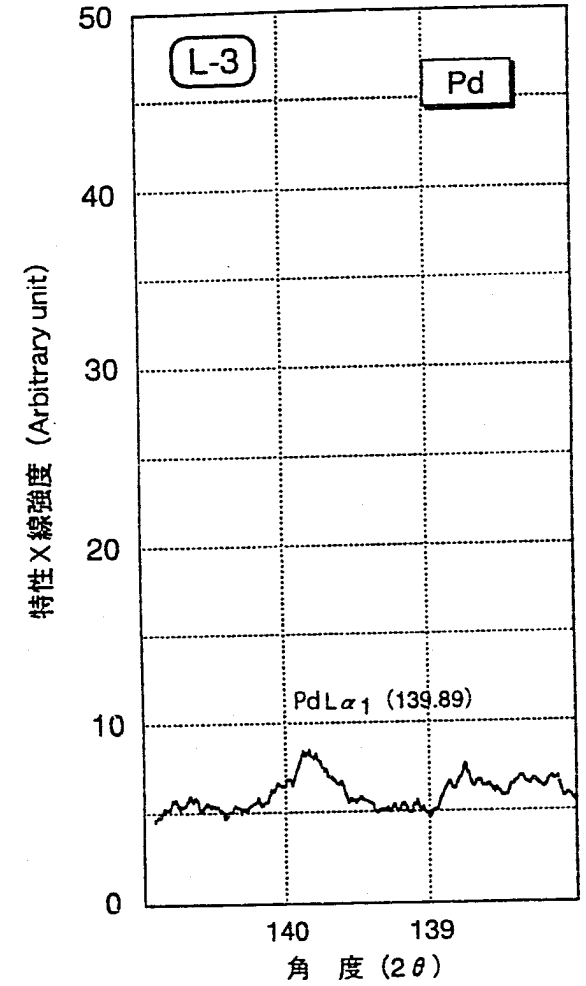
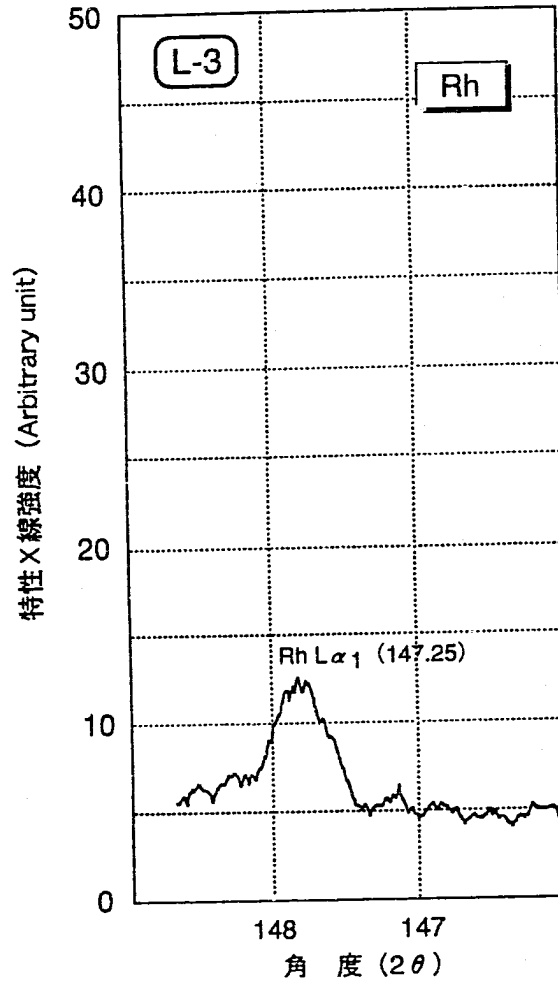
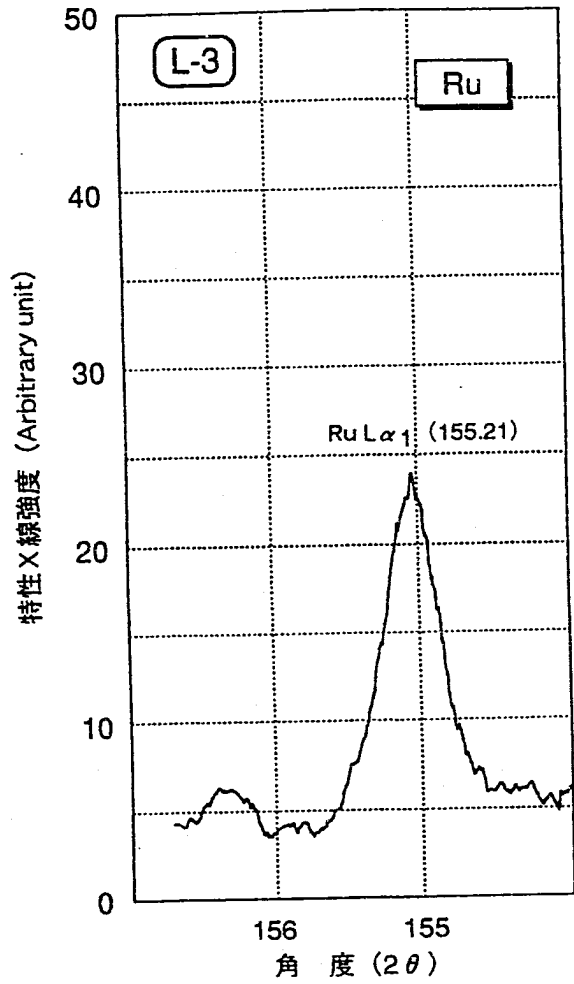


図4.7 EPMAによる各元素分析結果[5] (分析箇所：L-3)

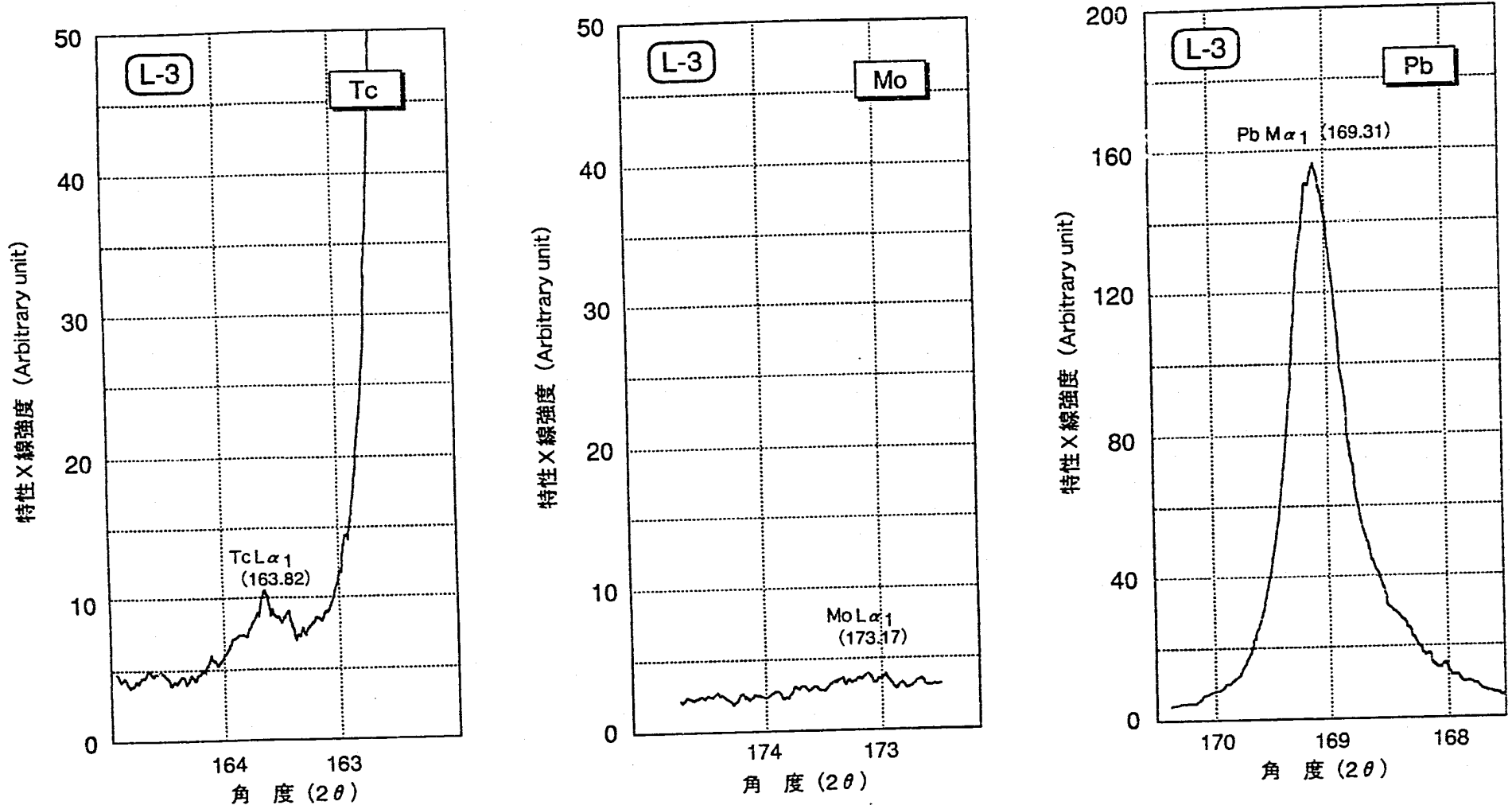


図4.8 EPMAによる各元素分析結果[6] (分析箇所：L-3)

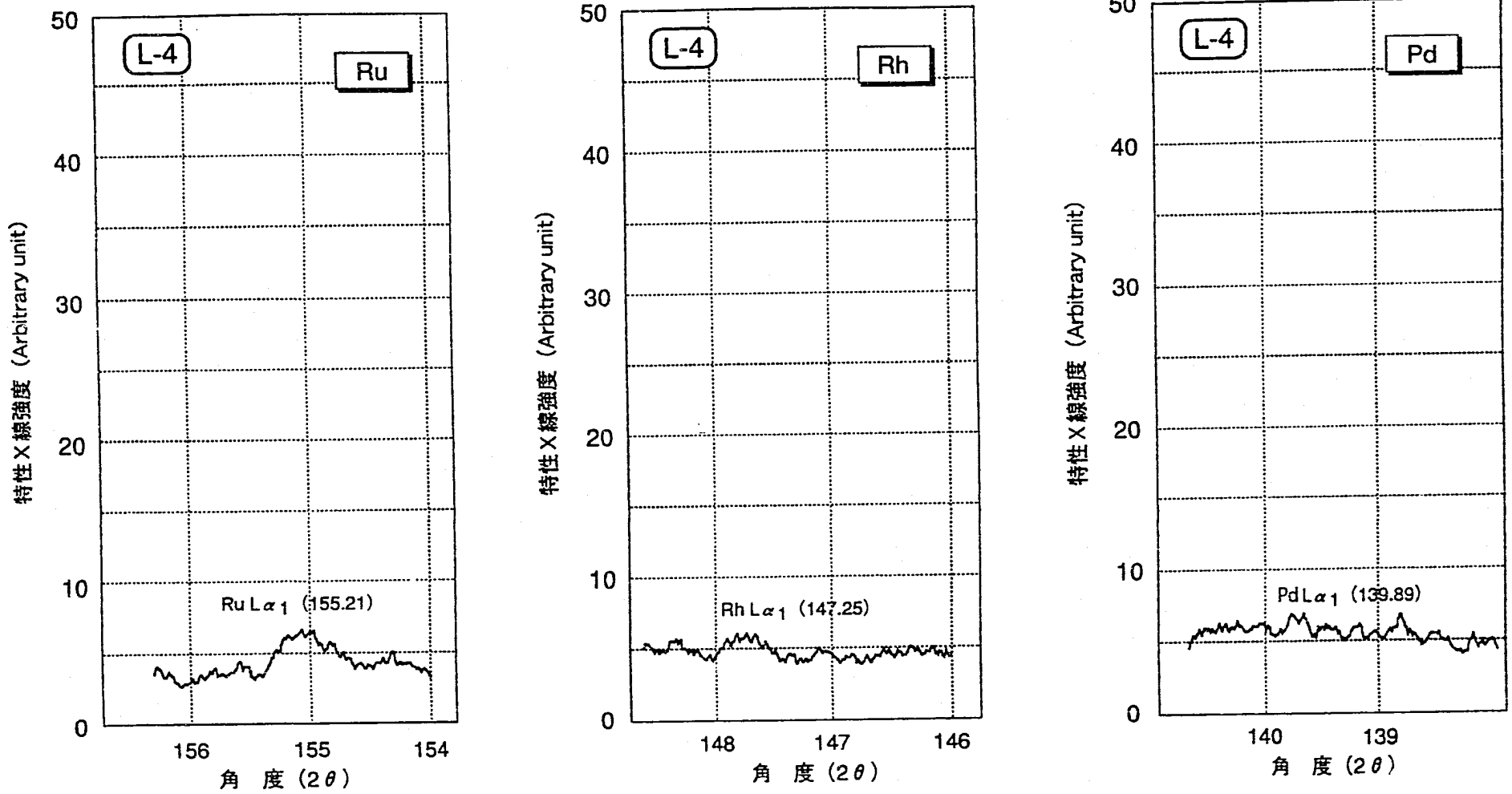


図4.9 EPMAによる各元素分析結果[7] (分析箇所：L-4)

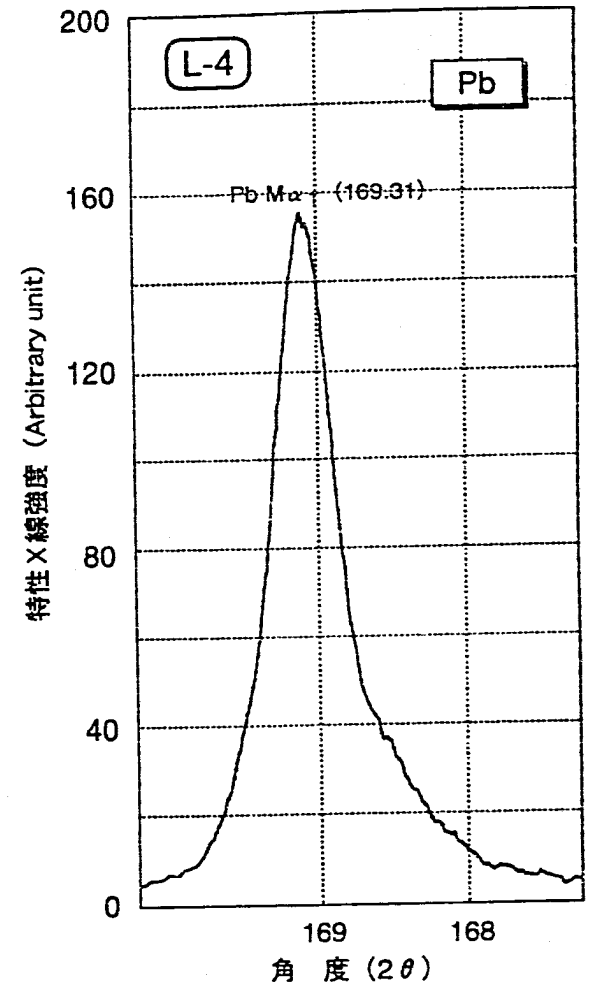
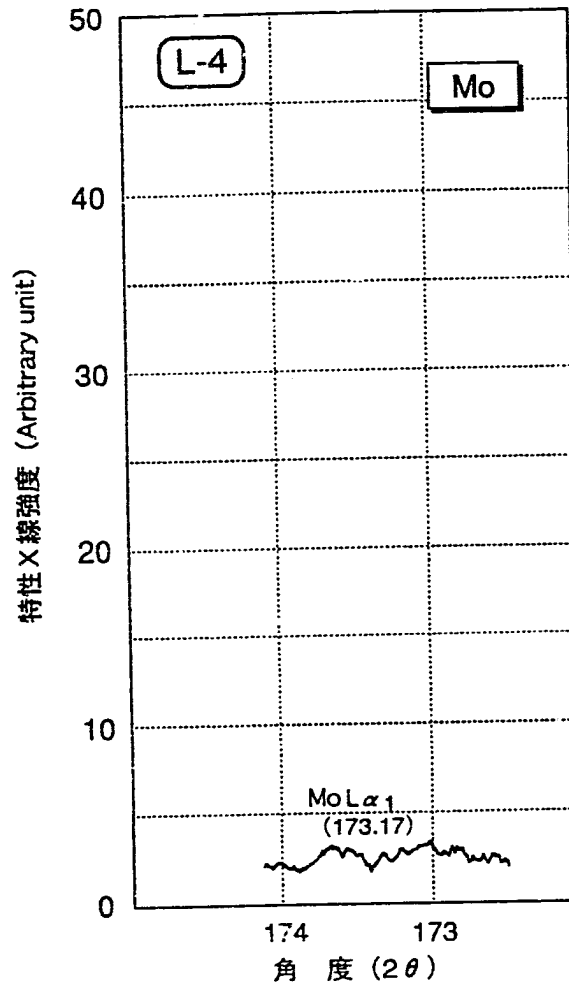
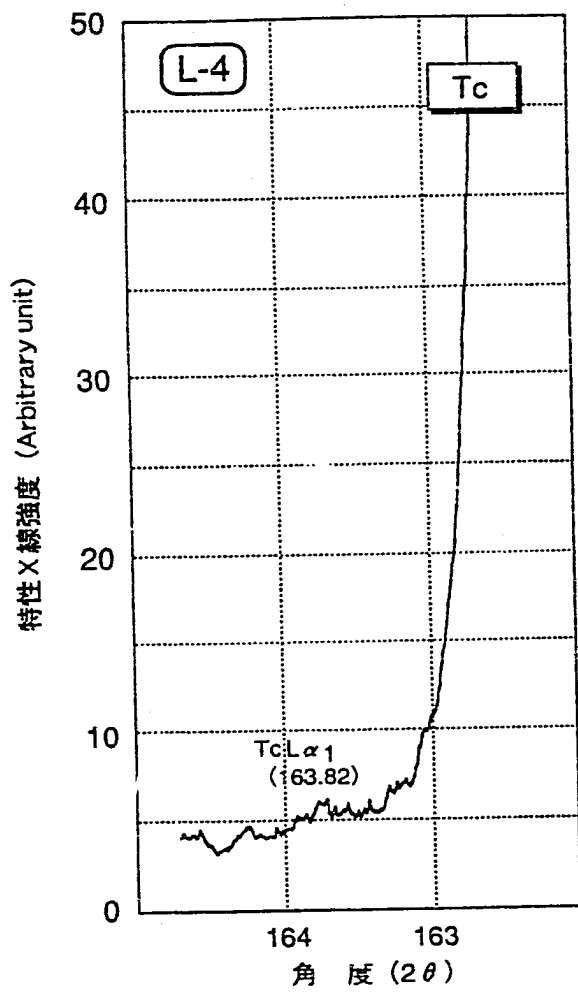


図4.10 EPMAによる各元素分析結果[8] (分析箇所：L-4)

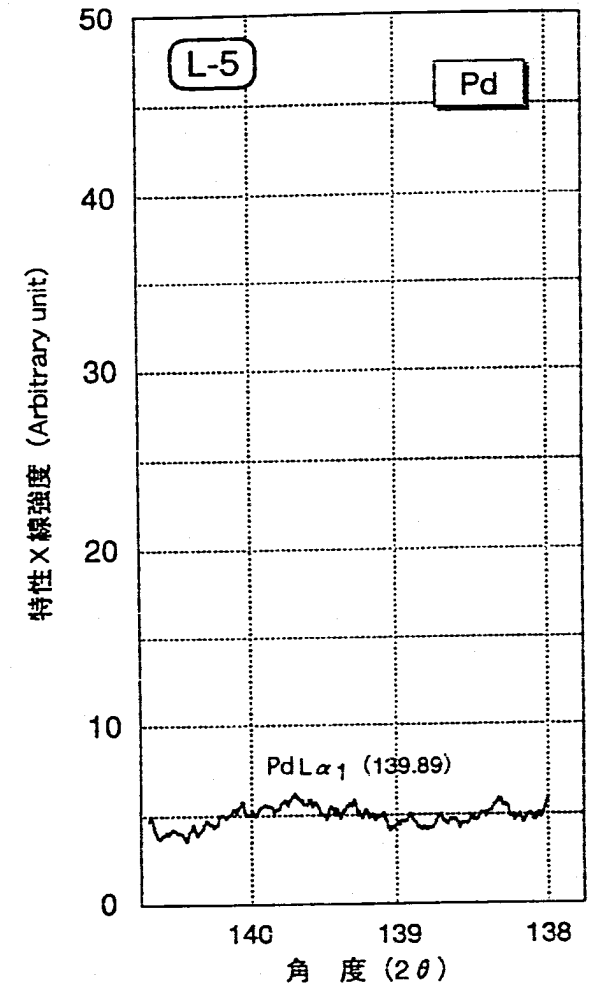
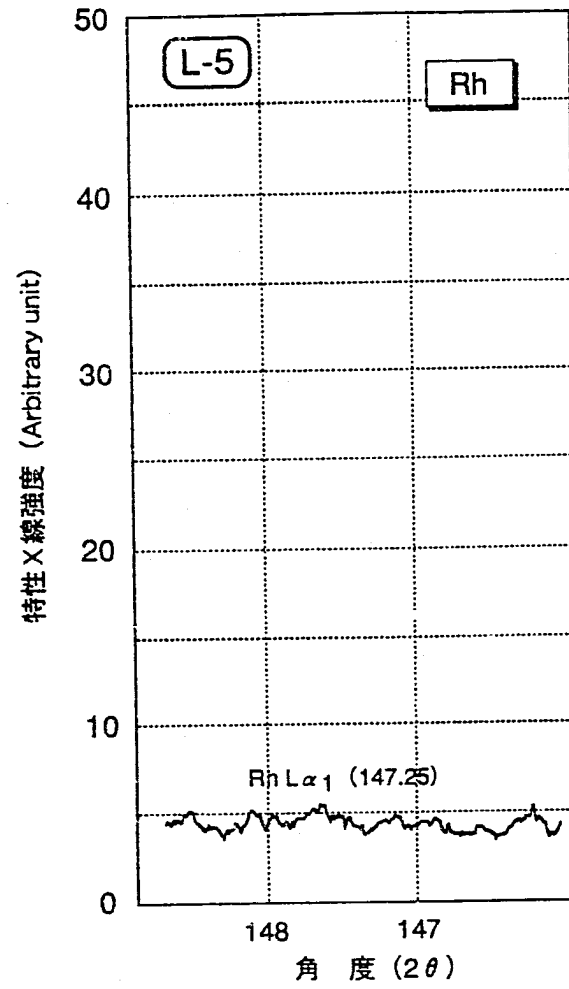
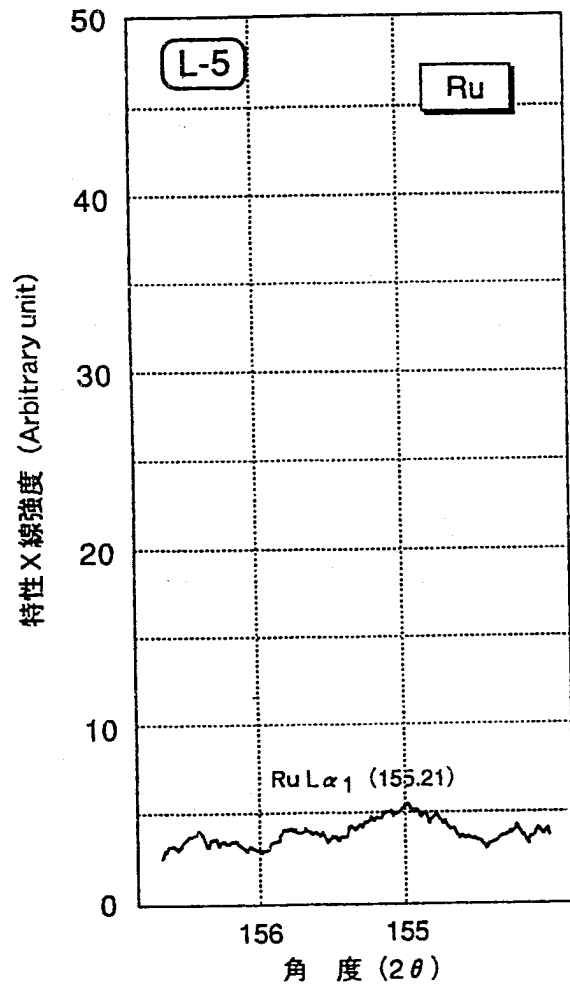


図4.11 EPMAによる各元素分析結果[9] (分析箇所：L-5)

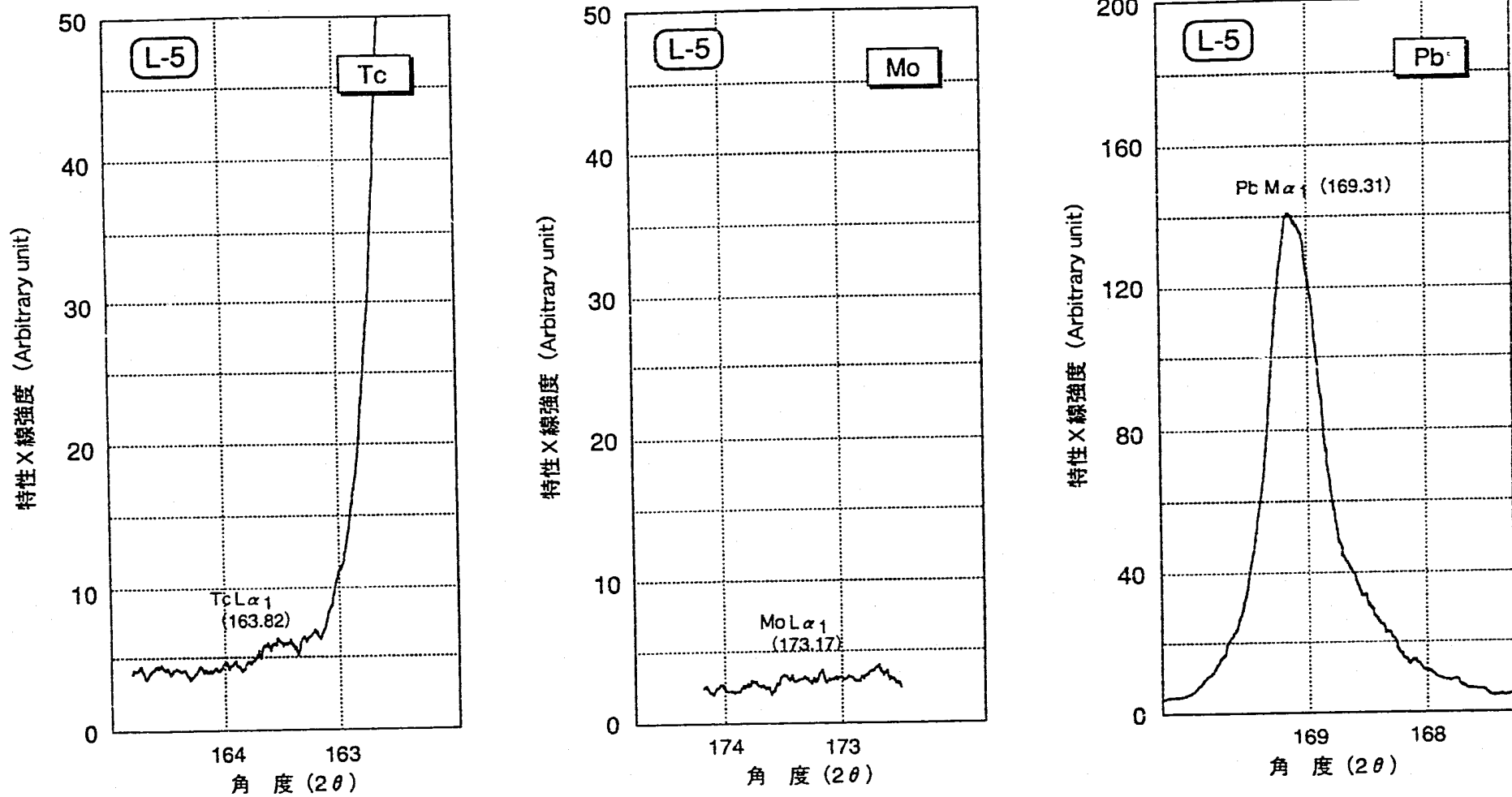


図4.12 EPMAによる各元素分析結果[10] (分析箇所：L-5)

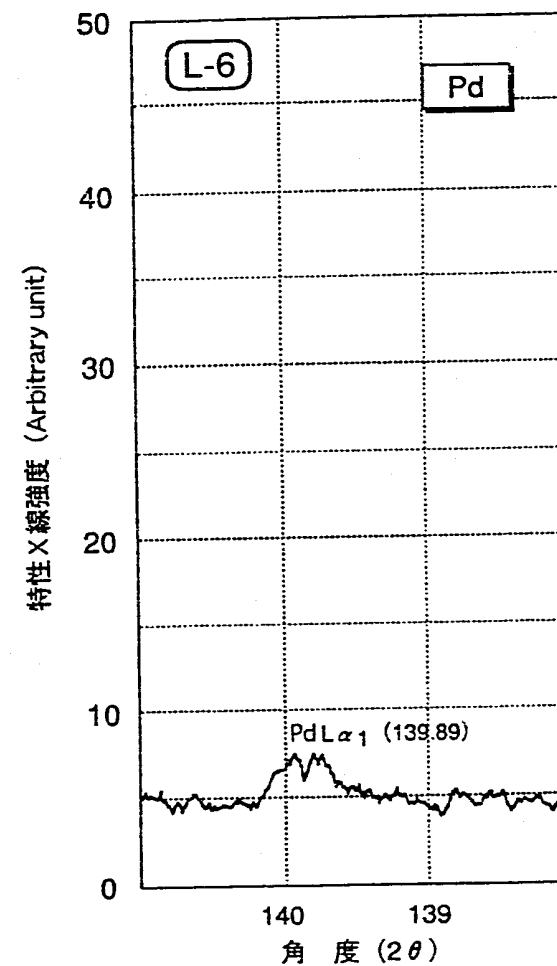
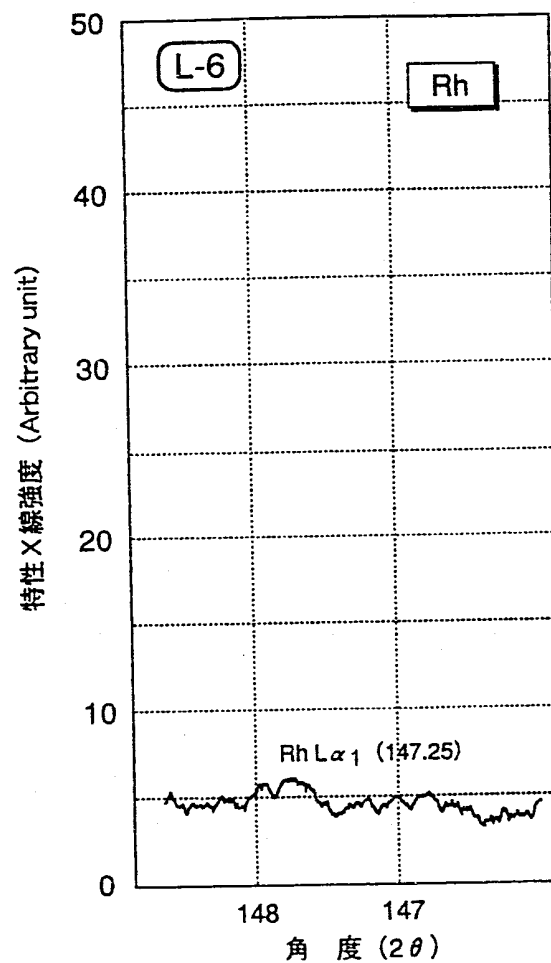
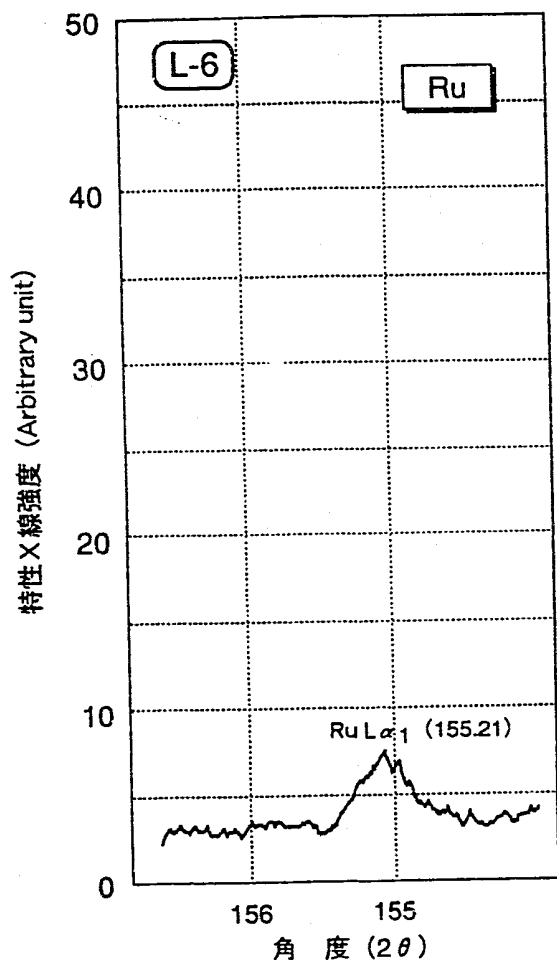


図4.13 EPMAによる各元素分析結果[11] (分析箇所：L-6)

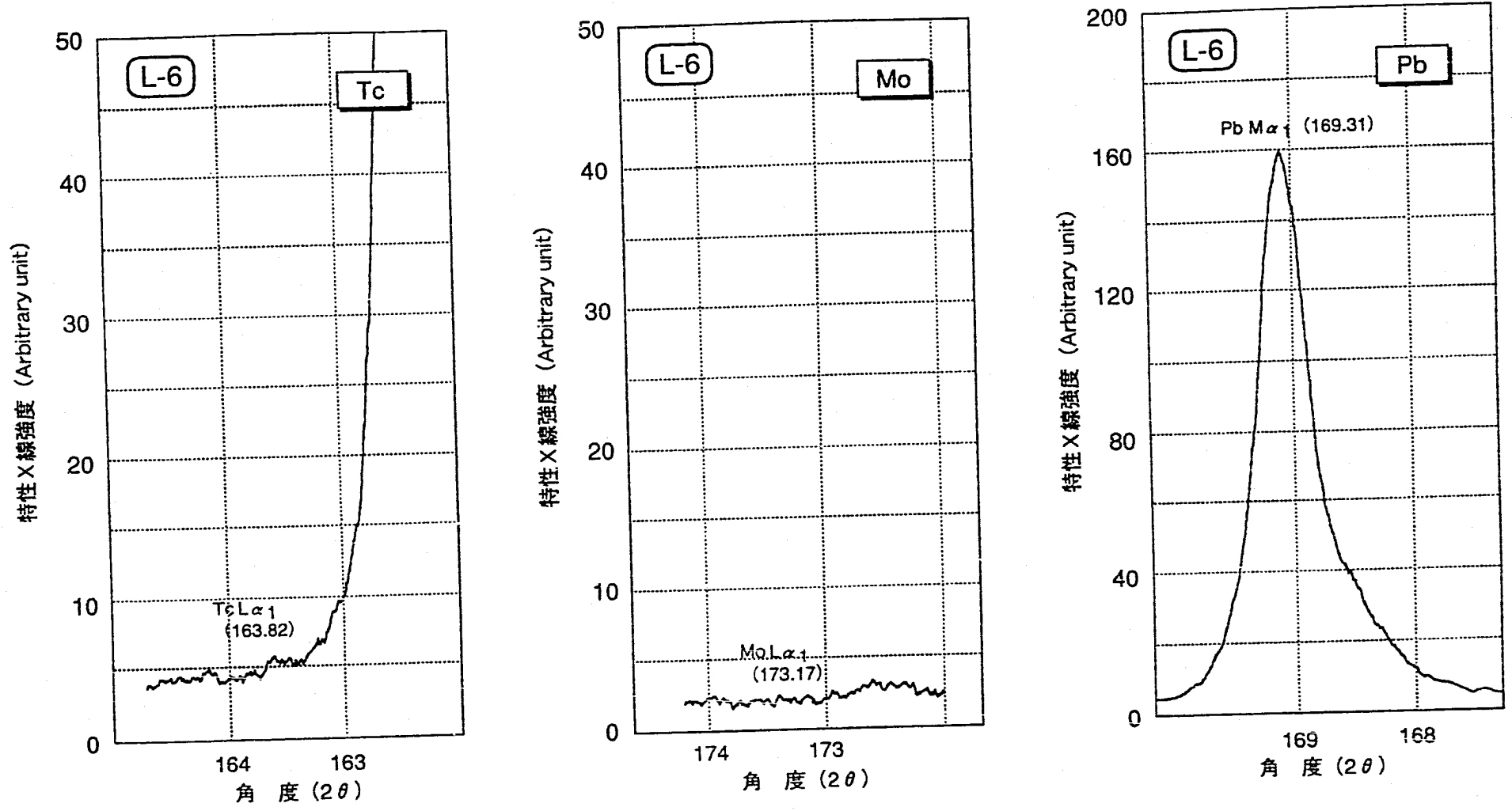


図4.14 EPMAによる各元素分析結果[12] (分析箇所：L-6)

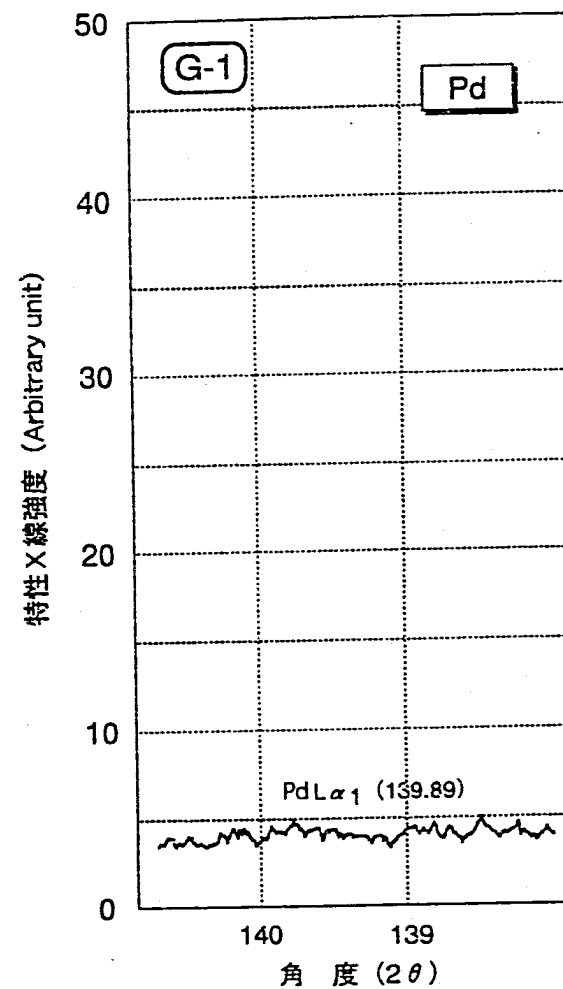
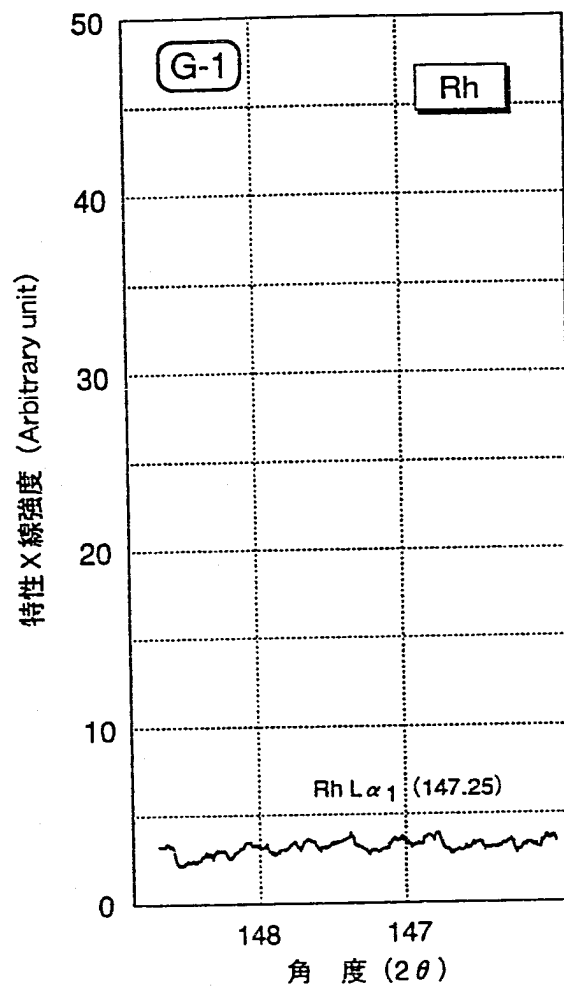
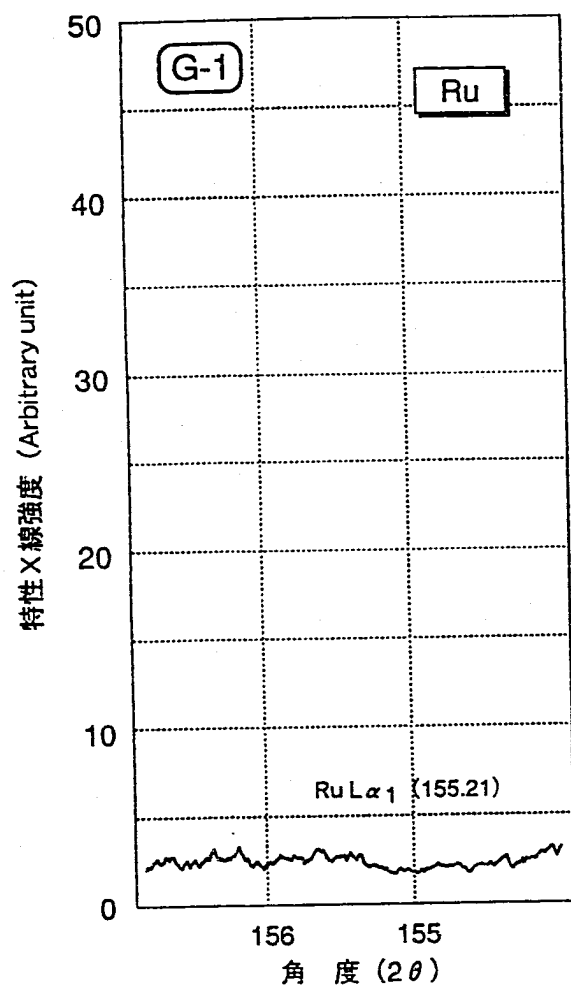


図4.15 EPMAによる各元素分析結果[13] (分析箇所：G-1)

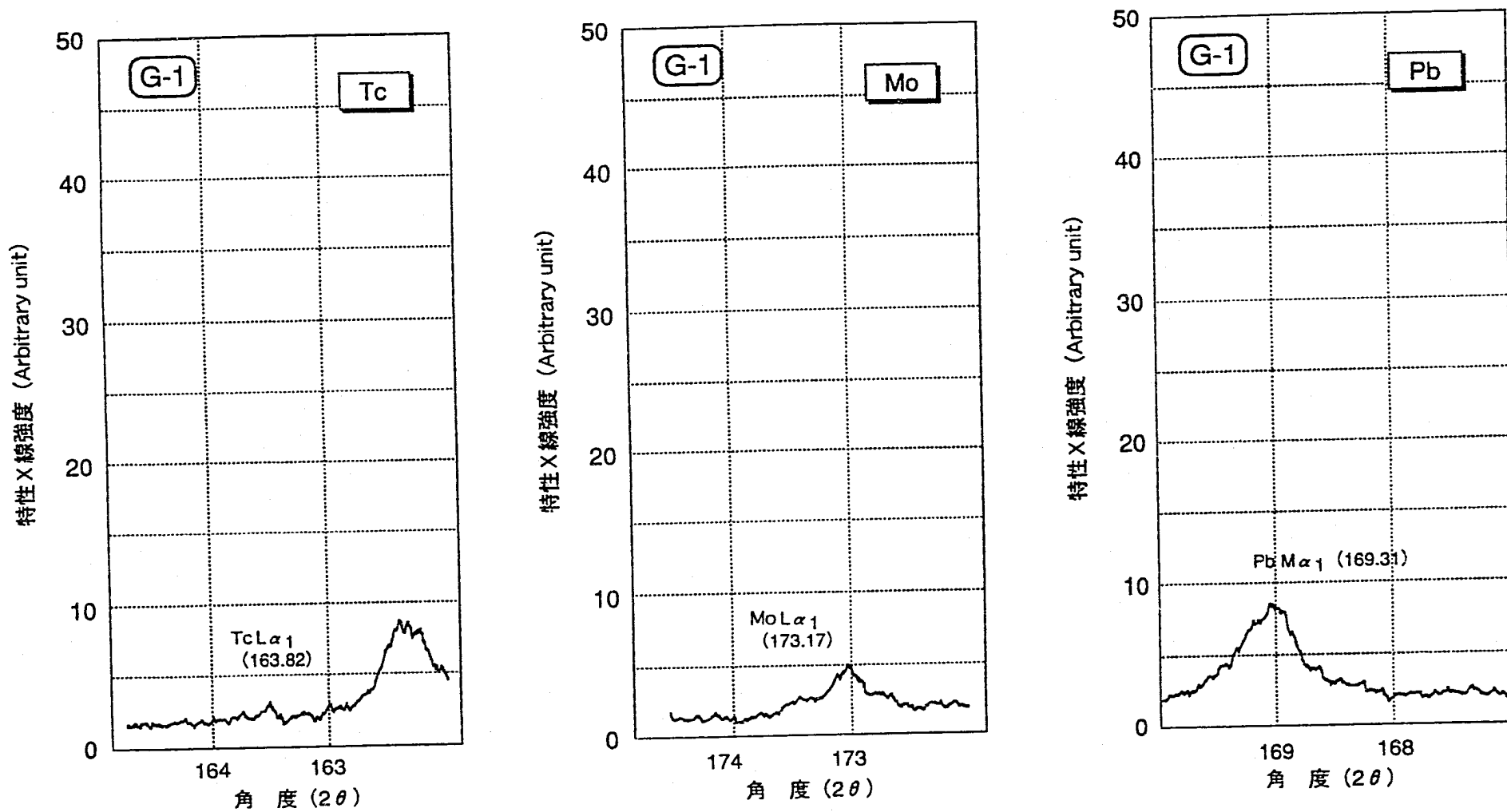


図4.16 EPMAによる各元素分析結果[14] (分析箇所：G-1)

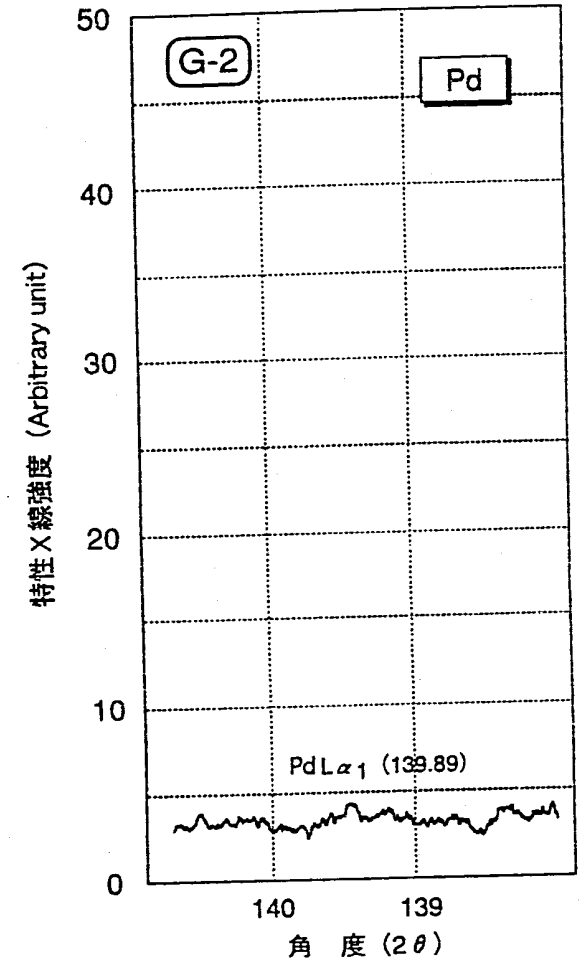
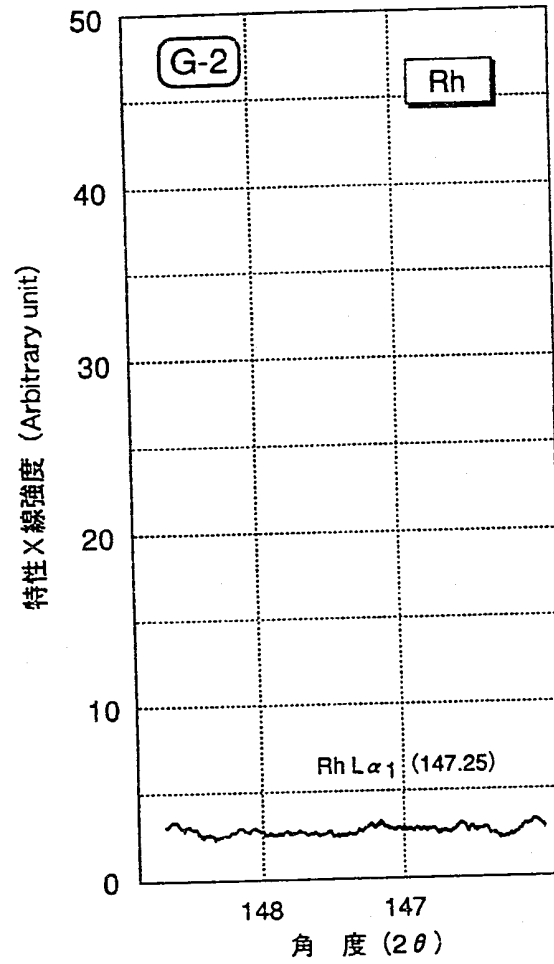
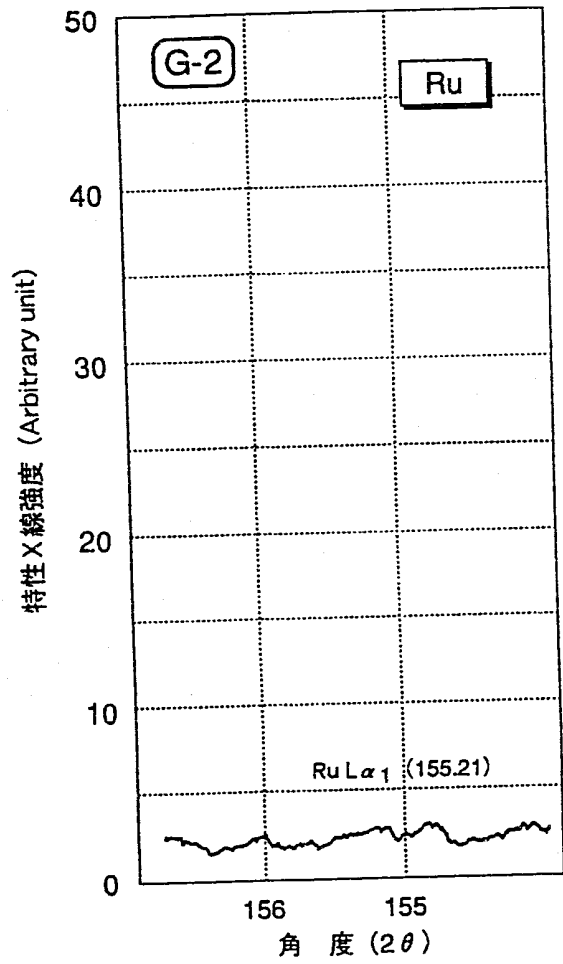


図4.17 EPMAによる各元素分析結果[15] (分析箇所：G-2)

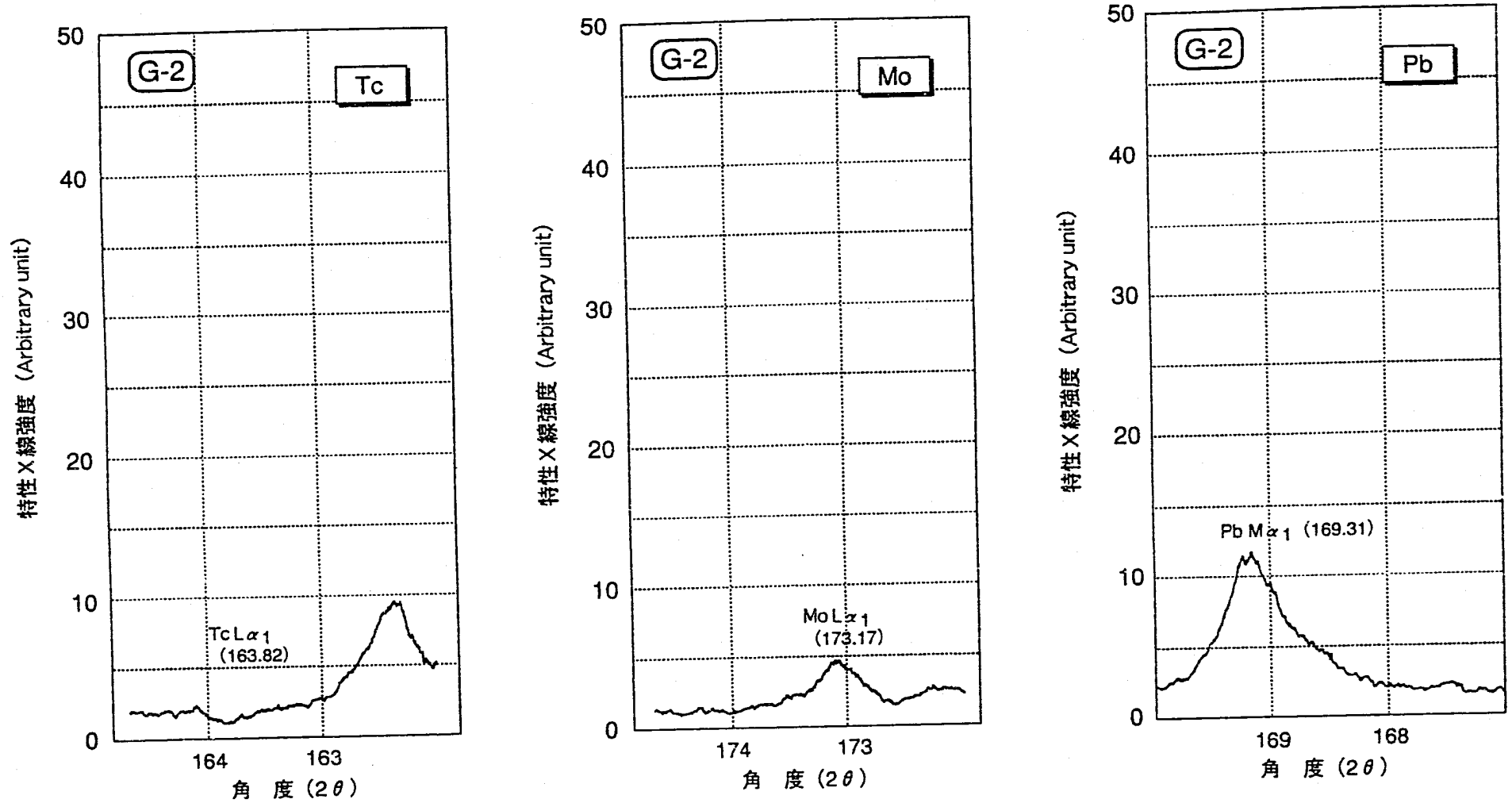


図4.18 EPMAによる各元素分析結果[16] (分析箇所：G-2)

5.まとめ

以上の試験結果をまとめると次のとおりである。

- (1) NCタンマン管を用いた鉛抽出の加熱溶融操作はおおむね良好に行えたが、一部の溶解バッチではタンマン管が損傷しており融体による腐食の兆候がみられた。
- (2) 同一条件での抽出であったにもかかわらず、各溶解バッチの凝固後の試料の外観には相違がみられた。すなわちガラスが黒色で透明感が全くないものと比較的透明でガラスを通して鉛ボタンの頂部がわずかに見えるものがあった。この点に関する詳細は現時点は不明である。
- (3) 酸化鉛を抽出媒として用いて本試験条件によって鉛抽出を行うことが可能である。
- (4) EPMAでの分析結果より白金族元素 (Ru、Rh、Pd) はいずれも鉛相に抽出されガラス相には分配しないことが明らかである。また、Tcは鉛相に抽出されることがわかった。
- (5) 高レベル廃液仮焼体の鉛抽出においては今回の試験条件では鉛ボタンが形成されない結果となったが、EPMAでの分析結果よりガラス相中に分散した鉛相には白金族元素が回収されていることがわかった。
- (6) EPMAでの分析結果よりRu及びRhは鉛ボタンの上半分程度の部分に多く抽出されていることがわかった。特にRuはこの傾向が顕著であった。一方、Pdは鉛ボタンの全体に分布している。また、Moはガラス相でも検出され、Pbも一部ガラス相に分配していることがわかった。

謝辞

本試験は再処理技術開発部及び環境技術開発部の協力を得て実施した。不溶解残渣の回収と移送に関しては再処理技術開発部プロセス・分析開発室（現アクチニドプロセス・分析開発室）の協力を得た。高レベル廃液仮焼体の作製、鉛抽出試験及びEPMAでの分析については環境技術開発部地層処分開発室の山田主査をはじめとするCPFグループの全面的な協力により遂行することができた。記して深謝いたします。