

水蒸気改質処理法によるウランを含有する
廃 TBP/n-ドデカンの処理

Treatment of Waste TBP/n-dodecane with Steam Reforming System

曾根 智之 野中 一晴 佐々木 紀樹 山口 大美

Tomoyuki SONE, Kazuharu NONAKA, Toshiki SASAKI and Hiromi YAMAGUCHI

東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所
環境技術管理部

Waste Management Department
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center

March 2008

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp/index.shtml>)
より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター*では実費による複写頒布を行っ
ております。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920

*〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4 日本原子力研究開発機構内

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920

© Japan Atomic Energy Agency, 2008

水蒸気改質処理法によるウランを含有する 廃 TBP/n-ドデカンの処理

日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター

核燃料サイクル工学研究所 環境技術管理部

曾根 智之・野中 一晴・佐々木 紀樹・山口 大美

(2008年 1月 8日 受理)

二次廃棄物が多量に発生する等の理由により焼却処理が適さない有機系廃棄物（リン酸トリブチル廃溶媒、フッ素油を含む廃油等）の処理技術として、水蒸気改質処理法の開発を実施している。この処理法は、有機廃棄物を過熱水蒸気で分解・ガス化させ、ウラン等の非揮発性の放射性核種を有機物と分離したのち、ガス化した有機物を高温空気で酸化分解するものである。この処理法の主な特徴は、廃棄物のガス化プロセスより後段にウラン等がほとんど移行しないため、排ガス処理系から発生する廃液の処理やメンテナンス作業の簡素化が期待できることである。

平成 18 年 9 月から平成 19 年 1 月までウランを含有する TBP/n-ドデカン廃溶媒（以下、TBP 廃溶媒とする）を対象とした処理試験を実施し、装置内機器へのウランの移行率の評価及び処理性能の確認を行った。また、試験で得られた結果に基づき、水蒸気改質処理法による TBP 廃溶媒の減容効果について、熱分解処理法と比較することで評価した。

今回実施した試験で得られた成果は以下のとおりである。

- (1) 排ガス処理系から発生する廃液及び排ガス中のウラン濃度は検出下限値未満であり、ガス化プロセスにおいて有機物とウランを効果的に分離できることが確認された。
- (2) このため、本処理で発生する放射性二次廃棄物として、ガス化プロセスにおいて揮発しないで残留した固体廃棄物のみを考慮すればよいことになる。
- (3) ガス化プロセスよりも後段にウランがほとんど移行しないことから、これよりも後段の装置のメンテナンス作業を簡素化できる。
- (4) ガス化プロセスにおける TBP 廃溶媒のガス化率は 99%以上となり、ガス化プロセスにおいて揮発しないで残留した固体廃棄物は、極わずかであることが確認された。
- (5) 水蒸気改質処理法による TBP 廃溶媒の処理で発生した放射性二次廃棄物をセメント固化した廃棄体量は熱分解処理法の 1/30 倍と試算され、水蒸気改質処理法は TBP 廃溶媒に対して減容効果の高い有効な処理法であることが示された。

Treatment of Waste TBP/n-dodecane with Steam Reforming System

Tomoyuki SONE, Kazuharu NONAKA, Toshiki SASAKI and Hiromi YAMAGUCHI

Waste Management Department
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 8, 2008)

Steam reforming method has been developed for the treatment of organic wastes which are not suitable materials (tributyl phosphate, halogenated oil) for the incineration due to large quantities of secondary wastes generation. This method consists of the gasification process in which organics are vaporized and decomposed with superheated steam and the oxidation process in which vaporized organics are decomposed by oxidizing reaction with heated air. In the gasification process, nonvolatile radionuclides are separated from vaporized waste. Therefore it can be expected that treatment of liquid waste generated from an off-gas treatment system and maintenance operation of the off-gas treatment system become easy to perform.

Experimental study in which waste TBP/n-dodecane (waste TBP) containing uranium was used was conducted with the demonstration scale steam reforming system to examine the distribution ratio of uranium in the system and the feasibility of treatment of the waste TBP from September 2006 to January 2008. The effect of treatment with steam reforming system on the volume reduction of the waste TBP was compared with that of pyrolysis method.

The results of these studies are as follows:

- The uranium contents in liquid wastes from off-gas treatment system and of exhaust gases are under the detection limits. Most of uranium compounds contained in waste TBP are separated from organics in the gasification process.
- Only the solid waste remained in the gasification process is the radioactive secondary waste from the treatment of the waste TBP with steam reforming system.
- It is considered that the maintenance operation of the equipments installed downstream of the gasification process become easy to perform because uranium compounds are hardly distributed to these equipments.
- More than 99% of the wastes were evaporated in the gasification process. Therefore the volume of secondary solid wastes is very small.
- It was estimated that the total volume of waste packages, the residual substance solidified with cement in 200 liter drum, is 30 times less as compared with that generated by treatment with pyrolysis method. These results show that the steam reforming system can achieve high volume reduction of waste TBP.

Keywords : Steam Reforming, TBP, Gasification, Volume Reduction, Secondary Waste

目 次

1. はじめに	1
2. 試験方法	2
2.1 水蒸気改質処理試験装置の概要	2
2.2 対象廃棄物	2
2.3 試験条件	2
2.4 試験手順	3
2.5 分析	3
2.5.1 溶液中のウラン濃度の分析	3
2.5.2 排ガス中のウラン濃度の分析	5
3. 試験結果及び考察	6
3.1 ウラン移行率の評価	6
3.1.1 ウラン濃度の測定	6
3.1.2 ウラン移行率の評価	8
3.2 処理性能の確認	8
3.2.1 TBP 廃溶媒のガス化	8
3.2.2 TBP 廃溶媒の燃焼安定性	9
3.3 廃棄物減容率の評価	10
4. おわりに	12
参考文献	13

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	2
2.1 Steam reforming system	2
2.2 Samples	2
2.3 Treatment conditions	2
2.4 Treatment procedures	3
2.5 Analytical procedures	3
2.5.1 Uranium concentration in liquid waste	3
2.5.2 Uranium concentration in exhaust gas	5
3. Results and Discussion	6
3.1 Estimation of the distribution ratio of uranium	6
3.1.1 Analysis of uranium concentration	6
3.1.2 Estimation of the distribution ratio of uranium	8
3.2 Estimation of the feasibility of treatment	8
3.2.1 Gasification ratio of waste solvent	8
3.2.2 Combustion stability	9
3.3 Estimation of the volume reduction ratio of waste solvent	10
4. Conclusion	12
References	13

図表リスト

- 表 2.1 水蒸気改質処理試験装置の主な仕様
- 表 2.2 試験に用いた廃溶媒の組成
- 表 2.3-1 試験で設定した主要な運転条件
- 表 2.3-2 TBP 廃溶媒の処理試験条件
- 表 2.5-1 分析項目及び分析方法
- 表 3.1-1 分析試料中のウラン量の測定結果 (各サンプリング溶液)
- 表 3.1-2 排ガス中のウラン濃度の分析結果
- 表 3.1-3 分析試料中のウラン量の測定結果 (水スクラバ溶液及びデミスタ溶液)
- 表 3.1-4 ウランの移行率
- 表 3.2-1 TBP 廃溶媒の減重率

- 図 2.1 水蒸気改質処理試験装置の構成図
- 図 2.3 水蒸気改質処理試験装置における主要な計器の設置箇所
- 図 3.1 残渣受け容器に排出された残渣
- 図 3.2-1 燃焼部温度, CO 濃度及び NO_x 濃度の経時変化 (ガス化装置温度 600°C)
- 図 3.2-2 排ガス中の粒子状物質濃度の経時変化 (ガス化装置温度 600°C)
- 図 3.2-3 燃焼部温度, CO 濃度及び NO_x 濃度の経時変化 (ガス化装置温度 650°C)
- 図 3.2-4 排ガス中の粒子状物質濃度の経時変化 (ガス化装置温度 650°C)

This is a blank page.

1. はじめに

日本原子力研究開発機構（以下、JAEA とする）では、二次廃棄物が多量に発生する等の理由により焼却処理が適さない有機系廃棄物 {フッ素油を含む廃油、リン酸トリブチル (TBP) 廃溶媒等} を保管している¹⁾。危険物や有機物は、埋設処分に際して廃棄体への混入が禁止されているため、これらの廃棄物の処分に当たっては分解・無機化する必要がある。

環境技術管理部処理技術課では、これら有機系廃棄物の分解・無機化及び減容化を行う処理技術として、水蒸気改質処理法を選定し、実用化に向けた技術開発を行っている。水蒸気改質処理法は、過熱水蒸気による改質と熱分解により有機系廃棄物の分解・ガス化を行う技術であり、諸外国においても放射性有機系廃棄物の減容化・安定化処理技術として開発が進められている²⁾³⁾。当課では、小規模水蒸気改質処理試験装置を用いた基礎試験により廃棄物の分解特性等のデータを取得する⁴⁾とともに、蓄積したデータに基づき、ウラン系の有機系液体廃棄物 (フッ素油を含む廃油及び TBP を含む廃溶媒) を処理対象とした実証規模処理試験装置を製作した。製作した実証規模水蒸気改質処理試験装置は、過熱水蒸気による改質と熱分解を組み合わせた有機系廃棄物の分解・ガス化を行うガス化装置、ガス中の放射性物質を取除く放射性物質除去用フィルタ、高温空気によりガス化した廃棄物の酸化分解を行う主反応器、排ガス処理を行うスクラバ等から構成されており、その主な特徴は、

- ① ガス化装置における有機系廃棄物のガス化においてウラン等の不揮発性の放射性核種とガス化した廃棄物を分離できる
- ② ハロゲンやリン酸による炉材の腐食に対して、ガス化を行う反応器の構造が単純かつ小型であるため、定期的な交換を行うことで対処できる

③ 装置内を負圧にして処理を行うことができるため、内容物の漏洩に対する安全性が高いこと等である。これまでに実施した模擬試料を用いた実証規模処理試験装置による処理試験の結果から TBP 廃溶媒については、TBP/n-ドデカンを処理する際にガス化温度を適切に設定することにより、ガス化装置内において TBP の分解生成物であるリン酸の大部分が揮発すること、揮発しないでガス化装置に残留した廃棄物 (固体残渣) の主成分はリン化合物であることが明らかとなった⁵⁾。この結果は、ガス化装置の温度を適切に設定することによりガス化装置内に残留する固体廃棄物の発生量を大幅に低減できることを示している。また、揮発したリン酸のほとんど全てがスクラバ等の排ガス処理装置で回収されることも確認されている。従って、TBP 廃溶媒を用いた処理試験を行って、TBP 廃溶媒中に含まれているウランがガス化装置に残留した固体廃棄物とともに回収され、放射性除去用フィルタよりも後段に移行していないことを確認できれば、スクラバ等から発生する廃液にウランの除去等の特別な処理を行う必要がなくなり、リン酸塩等の沈殿物を新たに生成することなく、これらの廃液を処理施設から排出することが可能となる。これにより、TBP 廃溶媒の処理において放射性二次廃棄物として残る廃棄物は、ガス化装置から回収される少量の固体残渣のみとなり、放射性廃棄物の大幅な減容が可能となる。また、放射性物質除去用フィルタよりも後段の装置のメンテナンス作業時における作業員の被ばくの可能性が低減され、メンテナンス作業に係る負荷を軽減することが可能となる。

本試験では、ウラン濃度が既知の TBP 廃溶媒を対象に実証規模水蒸気改質処理試験装置によ

る処理試験を実施し、本処理におけるウランの移行挙動を評価した。また、TBP 廃溶媒に対する処理性能（ガス化率及び燃焼安定性）を確認した。さらに、ウラン移行挙動の評価結果等に基づき、本処理による TBP 廃溶媒の減容効果等について検討した。

2. 試験方法

2.1 水蒸気改質処理試験装置の概要

水蒸気改質処理試験装置は、過熱水蒸気による改質と熱分解を組み合わせた有機系廃棄物の分解・ガス化を行うガス化装置、ガス化した廃棄物の高温空気による完全酸化分解を行う主反応器、排ガス処理を行うスクラバ等で構成されている。本装置の構成図を図 2.1 に、主な構成機器の仕様を表 2.1 に示す。

試料は、約 600°C に加熱されたガス化装置内で水蒸気と向流接触され、低分子の有機ガスと無機固体等に分解される。ガス化装置内で揮発したガスは、放射性物質除去用フィルタを通して同伴した放射性物質や煤等を取り除いた後に主反応器に導入される。主反応器に導入された有機ガスは、約 900°C に加熱された空気と混合されて、主に酸化反応により水及び炭酸ガス等に分解される。ここで、有機ガスに同伴して導入されたリン酸系のミストも酸化される。燃焼ガスは、主反応器下部に設置された急冷容器内で水中に噴出されて急冷される。急冷容器から排出されたガスは、水スクラバ、アルカリススクラバ及びデミスタを通して煤やリン化合物等が除去され、装置外に排出される。デミスタの後段では、排ガスの一部がガス分析系に導入され、CO 濃度、NO_x 濃度及び粒子状物質濃度等の連続的な測定や α 放射能濃度測定用試料のサンプリングが行われる。

2.2 対象廃棄物

対象としている TBP 廃溶媒は、再処理技術開発のウラン試験で発生したものであり、TBP とノルマルドデカンを中心とするウランを含有する混合有機溶媒である。また、これらの TBP 廃溶媒には、TBP の放射線損傷等で生成したリン酸ジブチル (DBP) やウランの溶媒抽出の際に混入した硝酸イオン等が微量成分として含まれている。

本試験では、保管している TBP 廃溶媒の中でウラン濃度が最も低く、TBP 濃度が最も高く、DBP 及び硝酸イオンの濃度が低いものを試料として選定した。選定した試料の組成及び試料に含まれている微量成分の濃度を表 2.2 に示す。

2.3 試験条件

本試験において設定した主要な運転条件を表 2.3-1 に、試験条件を表 2.3-2 に示す。また、主要な計器の設置箇所を図 2.3 に示す。試験パラメータとして、ガス化温度を選定し、TBP

廃溶媒のガス化装置におけるガス化率及び主反応器における燃焼性を確認した。

なお、表 2.3-1 に示した運転条件は、これまでに実施した模擬試料を用いた試験で得られた結果に基づき最適化した条件である。

2.4 試験手順

はじめに、蒸気過熱器、ガス化装置、放射性物質除去用フィルタ等の分解・ガス化システムの装置を所定温度まで昇温し、水蒸気を供給した。次に、ガス化装置に灯油を供給し、分解したガスを主反応器で燃焼することで主反応器燃焼部の温度を試料の発火点以上まで昇温した。昇温後、所定の 1/3 の供給量で試料を供給し、順次増量させた。試料の供給量が所定量に達するのと同時に灯油の供給を停止し、試料の単独処理を開始した。

試料が安定して処理されていることを確認しながら 1 試験当たり 3～5 時間処理した後、試料の供給を停止し、所定の停止操作を行って試験を終了させた。なお、試験中は主反応器燃焼部の温度（以下、燃焼部温度とする）を熱電対で連続測定した。また、デミスタを通過した排ガスの一部をサンプリングポートから連続的に吸引し、表 2.1 に示した排ガス分析系に導入した。ここで、セルローズ・ガラス繊維フィルタ（ダストサンプラー内に設置）には 0.12m³/h の流量で排ガスを通気させた。

装置が室温まで冷えた後、残渣受け容器から固体残渣を回収し、重量を測定した。また、水スクラバ、アルカリスクラバ及びデミスタから各溶液を分析用試料としてサンプリングした。

2.5 分析

分析は、水スクラバ溶液、アルカリスクラバ溶液、デミスタ溶液及び排ガスについて行った。主な分析項目及び分析方法を表 2.5-1 に示す。排ガス中の CO 濃度、NO_x 濃度及び粒子状物質濃度は、試験中に連続的に測定した。水スクラバ溶液、アルカリスクラバ溶液及びデミスタ溶液中のウラン濃度の測定は、ネオトリン吸光度法で行った。排ガス中のウラン濃度は、セルローズ・ガラス繊維フィルタで捕捉した α 放射能を測定することで推定した。ウラン濃度の測定方法を以下に示す。

2.5.1 溶液中のウラン濃度の分析

水スクラバ溶液、アルカリスクラバ溶液及びデミスタ溶液中のウラン濃度の分析は、ネオトリン吸光度法により行った。分析方法の詳細を以下に示す。

(1) 試薬及び装置

- ・硝酸ウラニル標準溶液：U₃O₈ 粉末を濃硝酸に溶解し、イオン交換水を加えてウラン濃度を 54 μg/ml に調整した。
- ・硝酸/硝酸ナトリウム溶液：硝酸ナトリウム（和光純薬製 試薬特級）500 g をイ

オン交換水に溶解し、濃硝酸 {関東化学製 特級 (1.38)} 70ml を加え、イオン交換水で 1000ml に定容した。

- ・ネオトリン水溶液 : ネオトリン (関東化学製 特級) をイオン交換水に溶解して 0.01mol/L に調整した。
- ・EDTA・2Na 水溶液 : エチレンジアミン四酢酸二水素二ナトリウム二水和物 (関東化学製 特級) をイオン交換水に溶解して 0.01mol/L に調整した。
- ・トリエタノールアミン緩衝溶液 : トリエタノールアミン (関東化学製 特級) 37.5g をイオン交換水で 250ml に定容し、0.5mol/l の硝酸を 250ml 加え、アンモニア水で pH7.5±0.1 に調整した。
- ・TBP/ケロシン溶液 : TBP (関東化学製 特級) をケロシン (和光純薬工業製 特級) で希釈し、TBP の濃度を 30% に調整した。
- ・分光光度計 : 島津製作所製 UV-1200, 測定可能波長範囲 200~1100nm

(2) 分析手順

① 前処理

水クラバ、アルカリクラバ及びデミスタからサンプリングした各分析用溶液 (以下、サンプリング溶液とする) から所定量をビーカに採取した。各サンプリング溶液について 3 試料を採取し、そのうちの 2 試料には本分析法におけるウランの検出効率を算出するための指標として、所定量の硝酸ウラニル標準溶液を加えた。次に、各溶液に含まれている固形分を溶解するため、液量が 10ml 程度になるまでホットプレート上で濃縮した後、7N 硝酸 20ml を加えて超音波洗浄器で 15 分間の混合及びホットプレート上で 30 分間の加熱を行った。冷却後、溶解しなかった固形分をろ紙 (ADVANTEC No. 5C) で自然ろ過し、ろ液をホットプレート上で蒸発乾固して分析試料とした。

② ウランの TBP 抽出

①の操作で得た乾固物を 2N 硝酸 15ml で溶解し、分液ロート (100ml) に移し入れた。これに硝酸/硝酸ナトリウム混液 10ml 及び 30%TBP/ケロシン溶液 25ml を加え、振とう機を用いて 3 分間振り混ぜてウランを有機相に抽出した。ここで、アルカリクラバ溶液を対象とした場合には、硝酸/硝酸ナトリウム混液の代わりに 2N 硝酸を加えた。分液ロートから水相を除去した後、有機相に混入した妨害元素を取除くため、硝酸/硝酸ナトリウム混液 10ml を加え、振とう機を用いて 1 分間振り混ぜて妨害元素を水相に移行させた。この操作をもう 1 回行い、分液ロートから水相を除去した。

次に、分液ロートに 10%炭酸ナトリウム溶液 10ml 及び 10%水酸化ナトリウム溶液 1ml を加え、振とう機を用いて 2 分間振り混ぜてウランを水相に逆抽出し、水相をビ

一カに移した。有機相に残っているウランを抽出するため、分液ロートに10%炭酸ナトリウム溶液10mlを加え、振とう機を用いて2分間振り混ぜ、水相を先のビーカーに合わせた。

次に、水相から炭酸イオンを除去するため、水相に4N塩酸12mlを加え、イオン交換水で全量が約50mlとなるように希釈し、ホットプレート上で液量が約20mlになるまで濃縮した。

③ ウラン量の測定

②の操作で得た濃縮液にアンモニア水及び硝酸を加え、濃縮液のpHを 2.6 ± 0.05 に調整した。濃縮液の全量を50mlメスフラスコに移し、マスキング剤としてEDTA・2Na水溶液0.5mlを加えてよく振り混ぜ、ネオトリン水溶液2ml及びトリエタノールアミン緩衝溶液5mlを加え、イオン交換水で全量が50mlとなるように希釈し、これを吸光度測定用の試料とした。

吸光度測定用溶液の一部を1cm角のガラスセルに分取し、同様に操作して得たブランク試料を対照として波長595nmにおける吸光度を測定した。硝酸ウラニル標準溶液について、同様の操作を行って得られた検量線から分析試料中のウラン量を算出した。

なお、前処理を含めた本測定法による分析試料中のウラン量の検出下限値は、硝酸ウラニル標準溶液を用いて同様の測定を行って得た結果から $10 \mu\text{g}$ である。従って、サンプリング溶液中のウラン濃度の検出下限値は、以下の式により算出される。

$$C_{\text{dl}} = 10 / f / W \quad (2.5.1)$$

C_{dl} : サンプリング溶液中のウラン濃度の検出下限 ($\mu\text{g/ml}$)

f : 本測定法における分析試料中のウランの検出効率

W : 分析に用いたサンプリング溶液の液量 (ml)

2.5.2 排ガス中のウラン濃度の分析

排ガス中のウラン濃度の分析は、排ガスのサンプリング用フィルタ（セルローズ・ガラス繊維フィルタ）で捕捉した α 放射能を α 放射能濃度測定法により測定することで推定した。分析方法の詳細を以下に示す。

(1) 測定装置

- 放射能測定装置 : アロカ(株)製 ZD-453FU、ZnS(Ag)シンチレーション検出器、検出効率25% (U_3O_8 標準線源、天然ウラン)

(2) 分析手順

主反応器に供給した燃焼用空気に含まれていたラドンによる妨害を低減させるため、

ダストサンプラーから取り出したセルローズ・ガラス繊維フィルタをシャーレの中で72時間以上保管し、これを分析用試料とした。

新品のセルローズ・ガラス繊維フィルタを用いて、測定時間20分間におけるバックグラウンドの計数値を3回測定した。

次に、測定時間20分間における分析用フィルタの計数値を3回測定した。

試料の計数値、バックグラウンドの計数値及び測定時間から正味計数率 (cpm) を算出し、算出した正味計数率と装置の検出効率からフィルタに捕捉された核種の α 放射能を求めた。

フィルタに捕捉された核種を全て天然ウランであると仮定し、天然ウランの比放射能と測定した放射能からフィルタに捕捉されたウラン重量を算出した。ここで、天然ウランの比放射能を26700 Bq/gUとした。算出したウラン重量及びダストサンプラーへの排ガスの総通気量から排ガス中のウラン濃度を推定した。

また、本測定法による検出下限は以下の式により算出される。

$$D = T / 60 \times f \quad (2.5.2)$$

$$T = 2 / t_s + 2 \times \{(1 / t_s)^2 + N \times (1 / t_s + 1 / t_B)\}^{0.5} \quad (2.5.3)$$

D : 検出下限値 (Bq)

T : 本測定法による限界計数値 (cpm)

f : 本装置における検出効率 = 0.25

t_s : 試料の測定時間 (min)

t_B : バックグラウンドの測定時間 (min)

N : バックグラウンドの計数値 (cpm)

3. 試験結果及び考察

3.1 ウラン移行率の評価

TBP 廃溶媒の供給速度 3kg/h、約 46 時間の処理試験における水スクラバ、アルカリススクラバ、デミスタ及び排ガスへのウランの移行率を処理試験後の水スクラバ溶液、アルカリススクラバ溶液及びデミスタ溶液中のウラン濃度並びに排ガス中のウラン濃度の測定結果に基づき評価した。各溶液及び排ガス中のウラン濃度の測定結果並びにウラン移行率の評価について以下に示す。

3.1.1 ウラン濃度の測定

TBP 廃溶媒の供給速度 3kg/h の条件で約 46 時間の処理を実施した後の水スクラバ溶液、アルカリススクラバ溶液及びデミスタ溶液中のウラン濃度並びに排ガス中のウラン濃度の測定を行った。ネオトリン吸光度法によるウラン濃度の分析に用いた各溶液量、指標と

して添加した硝酸ウラニル溶液中のウラン量及び測定結果を表 3. 1-1 に、 α 放射能測定法による排ガス中のウラン濃度の分析における測定時間及び測定結果を表 3. 1-2 に示す。

アルカリスクラバ溶液について、試料の吸光度の測定値はブランク試料の測定値と同程度であった。このため、試料中のウラン量は、本測定法における検出下限値 ($10 \mu\text{g}$) 未満となった。また、指標としてウラン量が $54 \mu\text{g}$ 及び $108 \mu\text{g}$ となるように硝酸ウラニル標準溶液を添加した試料におけるウランの検出効率はどうらの試料も 1 となり、本測定中にウランが損失する要因はないことが確認された。以上の結果からアルカリスクラバ溶液中のウラン濃度は、(2. 5. 1) 式から算出される本測定における検出下限値 ($0.5 \mu\text{g/ml}$) 未満であることが確認された。

一方、水スクラバ溶液について、試料中のウラン量の測定値は本測定法の検出下限値未満となったが、指標として $54 \mu\text{g}$ のウラン量に相当する硝酸ウラニル標準溶液を添加した試料における測定値は $22 \mu\text{g}$ 、その検出効率は 0.4 と非常に低く、この結果から水スクラバ溶液中にウランが存在するか否かを判断することは困難であった。デミスタ溶液については、試料だけでなく、指標として $54 \mu\text{g}$ のウラン量に相当する硝酸ウラニル標準溶液を添加した試料中のウラン量の測定値も本測定法の検出下限値未満となった。このため、水スクラバ溶液及びデミスタ溶液に対しては、ウランの検出効率を向上させて信頼性の高い分析データを取得するために分析方法を改良する必要があることが分かった。

水スクラバ溶液及びデミスタ溶液は、TBP 廃溶媒の処理で発生した排ガスに含まれていたリン化合物が溶解したリン酸溶液である⁵⁾。各溶液中のリン酸濃度をイオンクロマトグラフィーで測定した結果、それぞれ 3wt% 及び 10wt% であることが分かった。ウランは、リン酸溶液中で UO_2^{2+} 、 $\text{UO}_2(\text{H}_2\text{PO}_4)^+$ 、 $\text{UO}_2(\text{H}_2\text{PO}_4)_2$ 及び $\text{UO}_2(\text{H}_2\text{PO}_4)(\text{H}_3\text{PO}_4)^+$ 等の形態で存在している⁶⁾⁷⁾と考えられるが、これらの錯体は TBP によってほとんど抽出されない。このため、TBP を用いた溶媒抽出におけるウランの抽出割合は、試料溶液中のリン酸濃度の増加に従って減少していき⁶⁾、これに応じて本分析方法におけるウランの検出効率は低下していくと考えられる。ここでは、分析に用いる試料を希釈することで TBP によるウランの溶媒抽出に供する分析試料中のリン酸濃度を低下させ、本分析におけるウランの検出効率の向上を試みた。分析に用いた水スクラバ溶液量及びデミスタ溶液量、指標として添加したウラン量並びにネオトリン吸光度法による測定結果を表 3. 1-3 に示す。

分析に用いた水スクラバ溶液及びデミスタ溶液をそれぞれ 5 倍及び 17 倍に希釈することにより各分析試料におけるウランの検出効率は 1 及び 0.8 に向上し、水スクラバ溶液については測定中にウランが損失する要因がないこと、デミスタ溶液についてもその影響が小さくなっていることが確認された。これは、TBP による溶媒抽出に供する分析試料中のリン酸濃度が減少したことにより、TBP によって溶媒中に抽出されたウランの割合が増加したためと考えられる。また、水スクラバ溶液及びデミスタ溶液のどちらの溶液においても、試料中のウラン量の測定値は本測定法の検出下限値未満となった。以上の結果から、水スクラバ溶液及びデミスタ溶液中のウラン濃度は、(2. 5. 1) 式から算出される本測定法の検出下限値 (水スクラバ溶液: $0.5 \mu\text{g/ml}$ 、デミスタ溶液: $2.1 \mu\text{g/ml}$)

未満であることが確認された。

排ガスについては、分析試料における α 放射能の計数値がバックグラウンドと同等以下であったことから試料に捕捉されたウランの放射能は、(2.5.2)式及び(2.5.3)式により算出される本測定条件における検出下限値0.02Bqよりも小さいことが分かった。この検出下限値及び天然ウランの比放射能(26700 Bq/gU)から試料に捕捉されたウラン量は0.75 μ g未満と算出され、算出されたウラン量及びダストフィルタへの排ガスの累積通気量(5.5 m³)から排ガス中のウラン濃度は 1.4×10^{-7} μ g/ml未満と推定された。

3.1.2 ウラン移行率の評価

水スクラバ溶液、アルカリススクラバ溶液、デミスタ溶液及び排ガス中のウラン濃度の測定結果に基づいて算出した各装置へのウランの移行率を表3.1-4に示す。本処理において、放射性物質除去用フィルタよりも後段に移行したウランの割合は、2%以下であることが確認され、装置に供給されたウランはガス化装置内における有機物のガス化過程において、ガス化した廃棄物から効果的に分離されていることが分かった。これは、

- ① ガス化装置温度650°Cに比べてウラン化合物の沸点は非常に高く、この温度における蒸気圧は非常に低い(例えば、二酸化ウランでは沸点3542°C、650°Cにおける蒸気圧 3×10^{-21} Pa⁸⁾)ため、ガス化装置内でウラン化合物はほとんど蒸発しない
- ② 生成されたウランを含む残渣はフレーク状の固体(図3.1参照)であり、粉体状の残渣は生成されていないこと及びガス化装置内のガス流速が0.05 m/sと非常に緩やかであることから、ウランがガス化した廃棄物に伴ってガス化装置から排出されない

ためと考えられる。今回の試験で得られた結果から放射性物質除去用フィルタよりも後段の機器に対するメンテナンス作業における作業員の被ばくの可能性は非常に低く、メンテナンス作業を簡素化できる可能性が高いことが分かった。

一方、ウランの移行率の評価は、水スクラバ溶液、アルカリススクラバ溶液及びデミスタ溶液中のウラン濃度の測定結果が本件で採用した分析法における検出下限値未満であったことから、それぞれの検出下限値を用いて実施した。このため、放射性物質除去用フィルタよりも後段に移行したウランの割合は、実際は今回推定した値よりもさらに低いと考えられる。今後は、ウラン濃度の検出下限値がより低い分析手法を開発するとともに、今回の試験で処理した試料よりもウラン濃度の高いTBP廃溶媒を用いた処理試験を行い、放射性物質除去用フィルタよりも後段の機器へのウランの移行率を再度確認することが必要である。

3.2 処理性能の確認

3.2.1 TBP廃溶媒のガス化

今回の試験に用いた試料は、保管しているTBP廃溶媒の中で最もTBP濃度の高いもの

であり、先に実施したコールド試験で用いた模擬廃溶媒中の TBP の濃度よりも高い。TBP はガス化装置内における熱分解によりリン酸とブテンに分解し、生成したリン酸がさらに縮重合反応によって沸点の高いポリリン酸等になる⁹⁾ため、ドデカンに比べてガス化が進行しづらいと考えられる。このため、TBP 廃溶媒中の TBP 濃度が増加するに従って、TBP 廃溶媒のガス化率は低下していくと考えられる。ここでは、ガス化装置内における TBP 廃溶媒のガス化への TBP 濃度の増加の影響を確認し、適切な処理条件を選定するため、ガス化装置温度をパラメータにした試験を実施した。なお、TBP 廃溶媒のガス化率は、以下に示す式から算出される廃棄物の減重率に基づいて評価した。

$$\text{減重率 (\%)} = \{1 - (\text{ガス化装置内の残渣重量} / \text{処理した廃棄物重量})\} \times 100$$

今回の試験で得られたデータから算出した各処理条件における TBP 廃溶媒の減重率を表 3.2-1 に示す。また、模擬試料として 30wt%TBP/ドデカンを用いて、ガス化装置温度 600°C の条件で実施したコールド試験における減重率のデータ⁵⁾をあわせて表 3.2-1 に示す。

ガス化装置温度を 600°C に設定した試験 1-1 における TBP 廃溶媒の減重率は 95.1% であり、同じ処理条件で実施したコールド試験における 30wt%TBP/ドデカンの減重率 99.4% を下回った。この結果から TBP 濃度が 48.5wt% まで増加した廃溶媒に対してガス化装置温度 600°C の条件ではガス化が十分に進行しないことが確認された。一方、ガス化装置温度を 650°C に設定した試験 1-2 における TBP 廃溶媒の減重率は 99.3% であり、コールド試験における減重率と同程度であった。これは、ガス化装置温度を上昇させることにより、TBP の熱分解で生成したリン酸及びリン酸の縮重合反応で生成したポリリン酸のガス化装置内における蒸発が促進されたためと考えられる。この結果から TBP 濃度 48.5wt% の廃溶媒に対してガス化装置温度を 650°C に設定することによりガス化装置において十分なガス化を行えることが分かった。

今回の試験で得られた結果から TBP 廃溶媒のガス化について、ガス化装置温度を適切に設定することにより廃溶媒中の TBP 含有量の変化に対応できることが確認された。

3.2.2 TBP 廃溶媒の燃焼安定性

TBP 廃溶媒の燃焼の安定性を確認するため、3.2.1 項に示した処理試験中に燃焼部温度、排ガス中の CO 濃度、NOx 濃度及び粒子状物質濃度を連続的に測定した。安定した燃焼の目安は、燃焼部温度が 1200°C 前後で安定していること、主反応器において有機ガスを燃焼した際に煤が発生しないこと及び排ガス中の CO 濃度及び NOx の濃度がそれぞれ廃棄物処理法及び茨城県公害防止条例で定められた規制値 (100ppm 及び 250ppm) 以下であることとした。ここで、本装置は廃棄物処理法の規制対象外であるため CO 濃度の管理を行う必要はないが、不完全燃焼の指標としてこれに準拠した管理を行うこととした。

今回の試験で得られた燃焼部温度、CO 濃度及び NOx 濃度の経時変化と粒子状物質濃度の経時変化を図 3.2-1～図 3.2-4 に示す。燃焼部温度は、いずれの条件においも試料の

処理期間中に急激な上昇を示すこともなく、1150℃から 1250℃の範囲で安定していた。CO 濃度は、いずれの条件において 5ppm 以下で安定しており、試料の処理期間中に規制値を上回することはなかった。また、排ガス中の粒子状物質濃度もいずれの条件において、0.35mg/m³ 以下と非常に低い値であった。CO 濃度が非常に低かったこと及び粒子状物質がほとんど発生していないことから、いずれの条件においても試料はほぼ完全燃焼していたと考えられる。NO_x 濃度は、ガス化装置温度 600℃の条件における処理試験の開始直後に一時的に急激な上昇傾向を示したが、その後はいずれの条件においても処理期間中に大きく変動することもなく、常に規制値を下回っていた。一般的に燃焼反応によって生成される NO_x は、空気中の N₂ の酸化により生じる NO_x (Thermal NO_x) と燃料中の N を起源として生成される NO_x (Fuel NO_x) に分類される。Thermal NO_x の生成速度は燃焼温度の上昇により急激に増加するのに対して、Fuel NO_x の生成速度は温度依存性が弱いという特徴がある^{10) 11)}。ガス化装置温度 600℃の条件において NO_x 濃度の一時的な上昇が確認された時間帯に燃焼部温度も大きく上昇していること、この上昇を抑えるために試験中に主反応器に冷却空気を導入し燃焼部温度を低下させたが、この直後に NO_x 濃度も急激に減少していることから、NO_x 濃度の一時的な上昇は、Thermal NO_x の生成によるものであり、試料に含まれていた微量の硝酸イオンの影響ではないと考えられる。以上の結果から排ガス中の NO_x 濃度を抑制するためには、主反応器における燃焼温度を低めに維持し、急激に上昇することがないように制御していくことが重要となる。

3.3 廃棄物減容率の評価

今回の試験で得られたウランの移行率及び廃棄物の減重率に基づき、水蒸気改質処理法による TBP 廃溶媒の処理で発生する二次廃棄物の処理方法及び廃棄物の減容効果について検討した。

水蒸気改質処理試験装置で TBP 廃溶媒を処理した場合、ガス化装置から排出される残渣及び排ガス処理系から発生する廃液が二次廃棄物として発生する。残渣は、リン酸塩を主成分とする無機固体⁵⁾であり、廃溶媒に含まれていたウランのほとんどを含有している。また、その発生量は非常に少ないことから、更なる減容化処理をする必要はなく、そのままの状態ですべてセメント充填固化法によって廃棄物化することが適切であると考えられる。

一方、廃液はウランをほとんど含有していないため、α放射能濃度については環境への放出基準 (1×10⁻³ Bq/cm³) 以下の廃液として、処理することが可能と考えられる。今回の試験で得られた水スクラバ溶液、アルカリススクラバ溶液及びデミスタ溶液中のウラン濃度と天然ウランの比放射能 (26700 Bq/gU) から算出した各廃液中の α放射能濃度は、それぞれ 1.3×10⁻² Bq/cm³、2.7×10⁻⁴ Bq/cm³ 及び 5.6×10⁻¹ Bq/cm³ となった。水スクラバ及びデミスタから発生する廃液については、3.1 項にも示したとおり、今回の試験で採用した分析手法におけるウランの検出下限値が高いため、α放射能濃度も高くなっている。今後はリン酸溶液 (水スクラバ溶液及びデミスタ溶液) 中のウラン濃度の検出下限値の低い分析手法を開発していくことが課題となる。

以上の検討結果から、水スクラバ及びデミスタから発生する廃液の処理に関して分析手法の課題は残るものの、水蒸気改質処理法による廃溶媒の処理で発生する放射性二次廃棄物として、残渣のみを対象にすればよいことが分かった。

次に、水蒸気改質処理法によるウランを含有する TBP 廃溶媒の減容効果について、熱分解処理法と比較することで評価する。ここで、比較する熱分解処理法として、TBP 廃溶媒の処理法として開発が進んでいる乾留法を採用する。乾留法は、予め TBP 廃溶媒に水酸化カルシウム溶液を加えて混合し、この廃液を礫床炉で熱分解することで、TBP の熱分解等により生成するリン酸を化学的に安定なリン酸カルシウムに直接転換して残渣として回収し、礫床炉内で生成する有機ガスを後段の焼却炉で焼却する手法である¹²⁾。また、廃棄物を減容する狙いは、廃棄体量の低減による廃棄物の保管及び処分費用の削減にある。従って、ここでの評価は、発生する二次廃棄物を固化化剤で安定化(廃棄体化)した廃棄体量を基準にして行う。評価対象とする廃溶媒の条件を以下に示す。

- ・ 廃溶媒の組成 : 60wt%TBP/n-ドデカン
- ・ 廃溶媒に含まれている核種 : ウランのみ
- ・ 廃溶媒の比重 : 0.92 kg/L
- ・ 処理量 : 200L (184kg)

また、水蒸気改質処理法及び乾留法において発生する廃棄体量の算出のための前提条件を以下に示す。

1) 水蒸気改質処理法における前提条件

- ・ 残渣の発生量は、今回の試験で得られた結果に基づき処理した廃溶媒の重量の 1wt% とする。
- ・ 残渣の廃棄体化は、セメント固化法で行う。
- ・ 廃棄体への残渣の充填率は 20wt% とする。
- ・ 廃棄体の比重は 2.5g/cm³ とする。

2) 乾留法における前提条件

- ・ 評価の対象とする放射性二次廃棄物は、礫床炉から排出される残渣のみとし、排ガス処理系から発生する廃液は、水蒸気改質処理法と同様に海洋に放出できるものとする。
- ・ 残渣の発生量は、TBP 廃溶媒に含まれている TBP の重量の 50wt% とする¹²⁾。
- ・ 残渣の廃棄体化は、セメント固化法で行う。
- ・ 廃棄体容器は、200L ドラム缶とする。
- ・ 廃棄体への残渣の充填率は 20wt% とする。
- ・ 廃棄体の比重は 2.5g/cm³ とする。

以上に示した条件に基づいて、200L のウランのみを含む 60wt%TBP/n-ドデカンを各処理法により処理した際に発生する廃棄体量を算出した結果を以下に示す。この結果から水蒸気改質処理法による廃棄物の減容効果は、乾留法の約 30 倍となることが分かった。

【廃棄体発生量】

- ・水蒸気改質処理法 : 3.7 L
- ・乾留法 : 110 L

以上に示した評価の結果から水蒸気改質処理法は、ウランを含有する TBP 廃溶媒に対して非常に減容効果の高い処理法であり、廃棄物の保管費用及び処分費用の削減に対して有効な処理法であることが示された。

4. おわりに

実証規模水蒸気改質処理試験装置について、TBP 廃溶媒の処理におけるウランの移行率及び処理性能を評価するため、ウラン濃度が既知の TBP 廃溶媒を用いた処理試験を実施した。また、試験で得られた結果に基づき水蒸気改質処理法による TBP 廃溶媒の減容効果について評価した。

TBP 廃溶媒の処理において、排ガス処理系へのウランの移行率は非常に低く、装置に導入したウランのほとんどがガス化装置内で揮発しなかった廃棄物とともに固体残渣として回収されることが確認された。

試験で得られた結果から廃溶媒中の TBP 濃度が 48.5%に増加したとしても、ガス化装置温度を 650℃に設定することで廃溶媒のガス化率を 99%以上に維持できることが確認された。また、TBP 濃度が 48.5wt%及び微量成分を含有する TBP 廃溶媒に対しても本処理法により安定した燃焼が可能なが確認された。

ウランを含有する TBP 廃溶媒を水蒸気改質処理法で処理したときの減容効果は、放射性二次廃棄物をセメント固化した廃棄体数で評価した場合、乾留法の 30 倍と試算された。以上に示した結果から水蒸気改質処理法は、ウランを含有する TBP 廃溶媒に対して減容効果の高い処理法であり、廃棄物の保管費用及び処分費用の削減に対して有効な処理法であることが示された。

今後は、メンテナンス作業及び廃液処理の簡素化の検討並びに TBP 廃溶媒の安定した処理に資するデータを整備するため、排ガス処理系から発生する廃液中のウラン濃度の分析手法の高度化を行うとともに、ウラン濃度及び不純物濃度の高い TBP 廃溶媒を用いた処理試験を実施していく。

参考文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構 : “低レベル放射性廃棄物管理プログラム”, JNC TN 1400 2001-019 (2002)
- 2) DOE : “Alternatives to Incineration Technical Area Status Report”, DOE/MWIP-26, p. 7-36~p. 7-50 (1995)
- 3) J. Bradley Mason, J. McKibbin, D. Schmoker, P. Bacala : “Pyrolysis/Steam Reforming Technology for Treatment of Orphan Wastes”, WM’ 03 (2003)
- 4) 青山誠, 他 : “水蒸気改質法を用いた低レベル放射性有機廃棄物の処理”, 日本原子力学会 2003 年春の年会要旨集, p. 706 (2003)
- 5) 曾根智之, 野中一晴, 佐々木紀樹, 山口大美 : “水蒸気改質処理法による模擬 TBP/n-ドデカン及びフッ素系油の処理試験”, JAEA-Technology 2007-063, (2007)
- 6) Y. Shigetomi, T. Kojima, I. Nouma, S. Hirono : “Fundamental Studies on the Extraction of Uranium from Phosphoric Acid with Various Organophosphorus Compounds”, Okayama University of Science, 20, p. 30 (1984)
- 7) I. Grenthe, J. Fuger, R. J. M. Konings, R. J. Lemire, A. B. Muller, C. Nguyen-Trung, H. Wanner : “Chemical thermodynamics of uranium, Chemical thermodynamics 1”, Nuclear Energy Agency OECD, North-Holland Elsevier, p. 280 (1992)
- 8) International Atomic Energy Agency : “Thermophysical properties database of materials for light water reactors and heavy water reactors”, IAEA-TECDOC-1496, IAEA, Vienna, p. 127 (2006)
- 9) Derek Corbridge : “PHOSPHORUS 2000”, ELSEVIER, p. 1218 (2000)
- 10) 岡崎健, 他 : “燃焼生成物の発生と抑制技術”, 株式会社テクノシステム, p. 63-66 (1997)
- 11) 日本機械学会 : “燃焼工学ハンドブック”, 丸善, p. 89 (1995)
- 12) NUKEM : “Pyrolysis of Radioactive Organic Waste”, NUKEM Technologies GmbH January 2007, (2007) (online)
Available from <<http://www.nukemgroup.com/fileadmin/pdf/Brochure>>

表 2.1 水蒸気改質処理試験装置の主な仕様

装置構成	仕 様
ガス化装置	型式：外熱式スクルーフィーダ方式 (ヒータ 6kW×3 ゾーン) 温度：750°C (最高使用温度) 容積：26L
放射性物質除去用 フィルタ	型式：メッシュフィルタ(穴径：10、40 μm 等) 温度：650°C (最高使用温度)
主反応器	型式：空気加熱式円筒形炉 容積：245L 温度：1300°C (最高使用温度)
空気加熱器	型式：ヒータ加熱式 (スーパーヒータ 12kW) 供給量：90Nm ³ /h (最大供給量) 温度：1000°C (最高使用温度)
水スクラバ	型式：水洗浄型スクラバ 液量：50L～150L 温度：45°C (運転時) 液：イオン交換水
アルカリススクラバ	型式：アルカリ水中和型スクラバ 液量：350L～700L 温度：45°C以下 液：NaOH(5wt%以下)水溶液
デミスタ	型式：密閉式吸引型 処理ガス量：1.2 Nm ³ /min 温度：45°C以下
排ガス分析系	<ul style="list-style-type: none"> ・ 定電位電解方式ガス濃度計 (TESTO 350XL) 測定対象：CO、O₂、NO_x、H₂ ・ 光散乱式粉塵計 (柴田科学 LD-2) 測定対象：粒子状物質 ・ ダストサンプラー (セルローズ・ガラス繊維フィルタ (ADVANTEC 製 HE-40T)) 捕捉対象：ウラン

表 2.2 試験に用いた廃溶媒の組成

成 分	濃 度
TBP	48.5 wt%
ノルマルドデカン	51.5 wt%
天然ウラン	0.07 g/L
DBP	0.233 g/L
NO ₃ ⁻	0.756 g/L

表 2.3-1 試験で設定した主要な運転条件

項 目	設定値
試料供給速度	3kg/h
水蒸気供給速度	1.5kg/h
空気比*	1.8
放射性物質除去用フィルタ穴径	10 μm
T105 ガス化装置出口	600℃
T104 ガス化装置中央	600℃
T103 ガス化装置入口	600℃
T101 蒸気過熱器出口蒸気	400℃
T117 ガス化装置出口配管	600℃
T107 放射性物質除去用フィルタ表面	600℃
T108 熱分解ガス配管	600℃
T109 空気加熱器 A ヒータ	1000℃
T110 空気加熱器 B ヒータ	1000℃
T112 主反応器燃焼部温度	<1300℃

* ガス化装置に供給した試料の全てがガス化されると仮定したときに、このガスを主反応器で完全燃焼させるのに必要な理論上の最小空気量に対して、主反応器に供給する空気量の比

表 2.3-2 TBP 廃溶媒の処理試験条件

試験条件	試験 1-1*1	試験 1-2*1	試験 2*2
ガス化装置	600℃	650℃	650℃
ガス化装置出口配管	600℃	650℃	650℃
放射性物質除去用フィルタ表面	600℃	650℃	650℃
熱分解ガス配管	600℃	650℃	650℃
TBP 廃溶媒の単独処理時間	約 10 時間	約 10 時間	約 50 時間

*1 TBP 廃溶媒の処理性能の確認試験

*2 ウラン移行挙動の評価試験

表 2.5-1 分析項目及び分析方法

分析項目	分析試料	分析方法
ウラン	水スクラバ溶液	ネオトリン吸光度法
	アルカリススクラバ溶液	ネオトリン吸光度法
	デミスタドレン水	ネオトリン吸光度法
	排ガス (ガラス繊維フィルタ)	α 放射能測定法 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
CO	排ガス	定電位電解方式ガス濃度計 (TEST0350XL)
NO _x	排ガス	定電位電解方式ガス濃度計 (TEST0350XL)
粒子状物質	排ガス	光散乱式粉塵計 (柴田科学 LD-2)

表 3.1-1 分析試料中のウラン量の測定結果（各サンプリング溶液）

試料名		測定条件		測定結果	
		分析に用いた溶液量 (ml)	添加したU量 ^{*1} (μg)	U重量 (μg)	検出効率
水スクラバ	W1	100	0	<10 ^{*2}	—
	W2	100	54	22	0.4
アルカリスクラバ	A1	100	0	<10 ^{*2}	—
	A2	100	54	54	1
	A3	100	108	108	1
デミスタ	D1	100	0	<10 ^{*2}	—
	D2	100	54	<10 ^{*2}	—

*1 分析試料へのウランの添加は硝酸ウラニル標準溶液で行った。

*2 検出下限値未満

表 3.1-2 排ガス中のウラン濃度の分析結果

	バックグラウンド測定		試料測定		検出下限 (Bq)	ウラン濃度 (μg/ml) ^{*1}
	測定時間 (min)	計数値 (count)	測定時間 (min)	計数値 (count)		
1	20	1	20	1		
2	20	2	20	1	0.02	<1.4×10 ⁻⁷ ^{*2}
3	20	1	20	1		

*1 検出下限を天然ウランの比放射能 2.67×10⁴ Bq/g で除してウラン重量を算出し、これを排ガスのダストフィルタへの累積通気量で除して算出した。

*2 検出下限値未満

表 3.1-3 分析試料中のウラン量の測定結果（水スクラバ溶液及びデミスタ溶液）

試料名	測定条件		測定結果		
	分析に用いた液量 (ml)	添加した U 量 ^{*1} (μg)	U 重量 (μg)	検出効率	
水スクラバ	W3	20	0	< 10 ^{*2}	—
	W4	20	16	16	1
	W5	20	32	32	1
デミスタ	D3	6	0	< 10 ^{*2}	—
	D4	6	16	13	0.8
	D5	6	32	26	0.8

*1 分析試料へのウランの添加は硝酸ウラニル標準溶液で行った。

*2 検出下限値未満

表 3.1-4 ウランの移行率

	機器名称				
	ガス化装置	水スクラバ	アルカリスクラバ	デミスタ	—
試料名称	残渣	スクラバ水	スクラバ水	洗浄水	排ガス
ウラン濃度	1.2wt% ^{*1}	< 0.5mg/L (DL 未満) ^{*2}	< 0.1mg/L (DL 未満) ^{*2}	< 2.1mg/L (DL 未満) ^{*2}	< 1.4×10^{-7} mg/L (DL 未満) ^{*2}
ウランの移行率	> 98.47% ^{*1}	< 0.66%	< 0.44%	< 0.42%	< 0.01%

*1 水スクラバ、アルカリスクラバ、デミスタ及び排ガスに移行しなかったウランの全てがガス化装置内に残留したと仮定して計算した。

*2 DL：検出下限値

表 3.2-1 TBP 廃溶媒の減重率

	ガス化装置 温度 (°C)	試料中の TBP 濃度 (wt%)	処理した試料 の重量 (kg)	残渣の重量 (kg)	ガス化率 (%)
試験 1-1	600	48.5	26.76	1.30	95.1
試験 1-2	650	48.5	33.55	0.23	99.3
コールド試験 *1	600	30	8.9	0.05	99.4

*1 30wt%TBP/ドデカンを対象にガス化装置温度 600°Cで処理したとき
のガス化率⁶⁾ {JAEA-Technology 2007-063, (2007)}

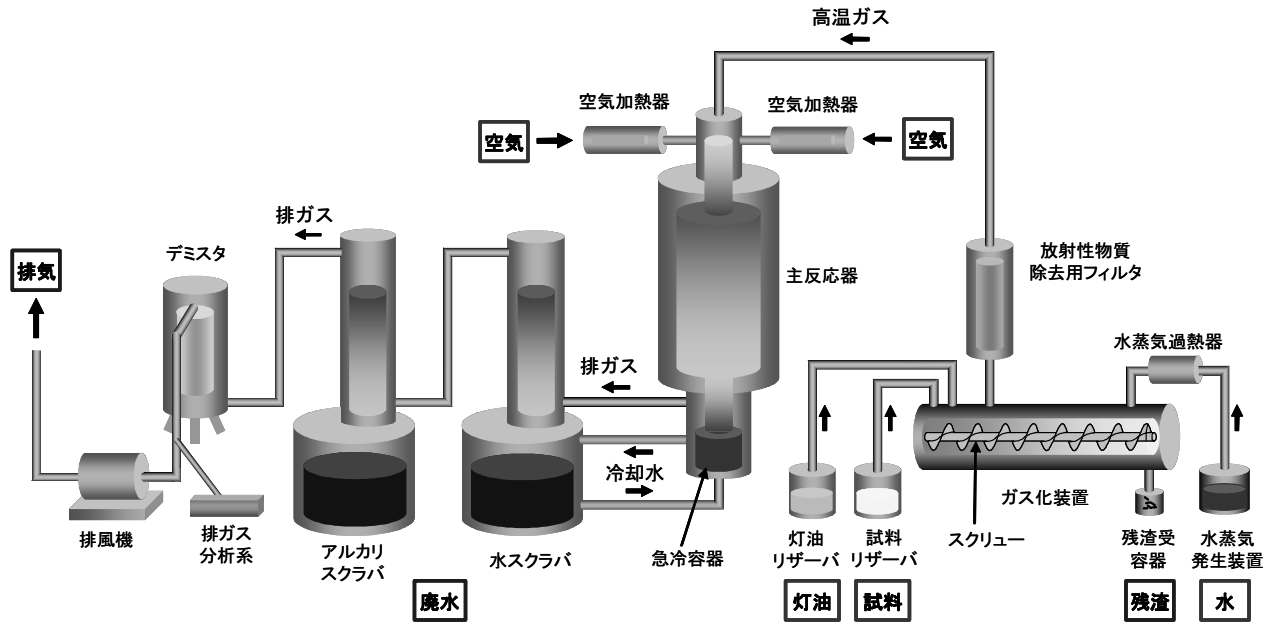


図 2.1 水蒸気改質処理試験装置の構成図

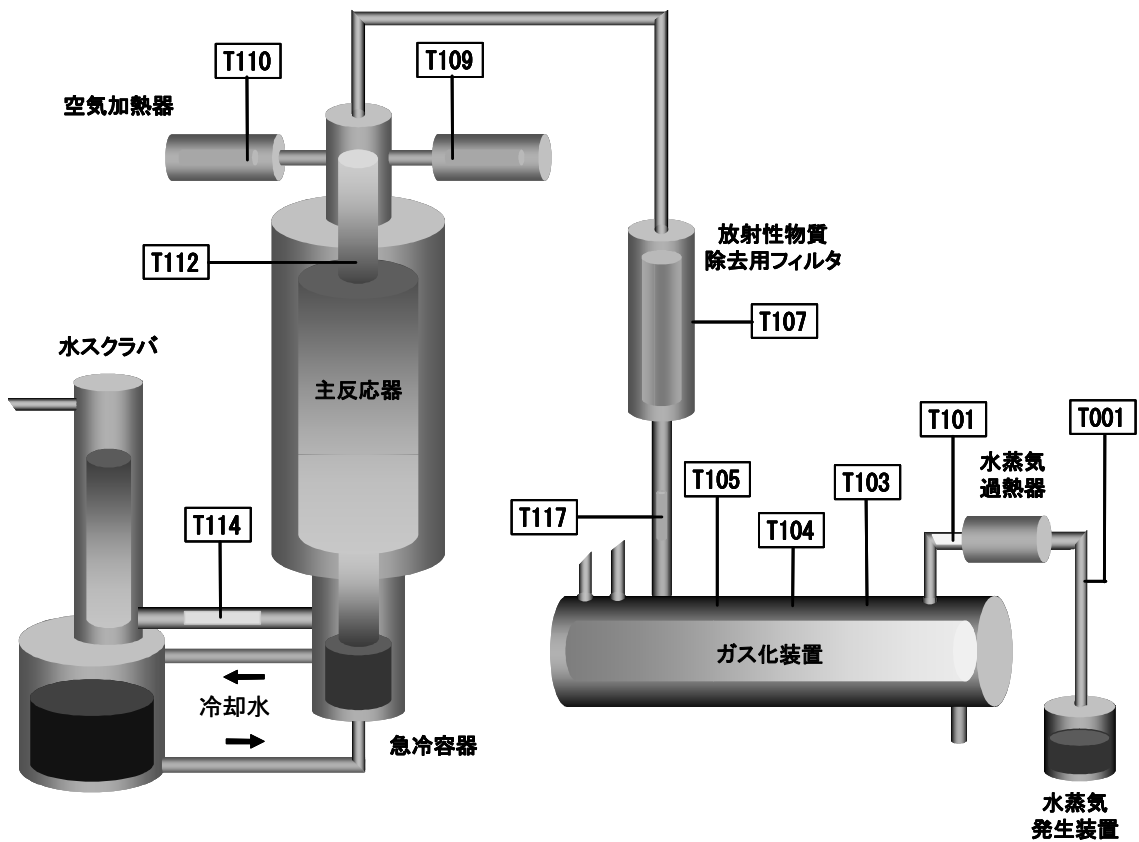


図 2.3 水蒸気改質処理試験装置における主要な計器の設置箇所



図 3.1 残渣受け容器に排出された残渣

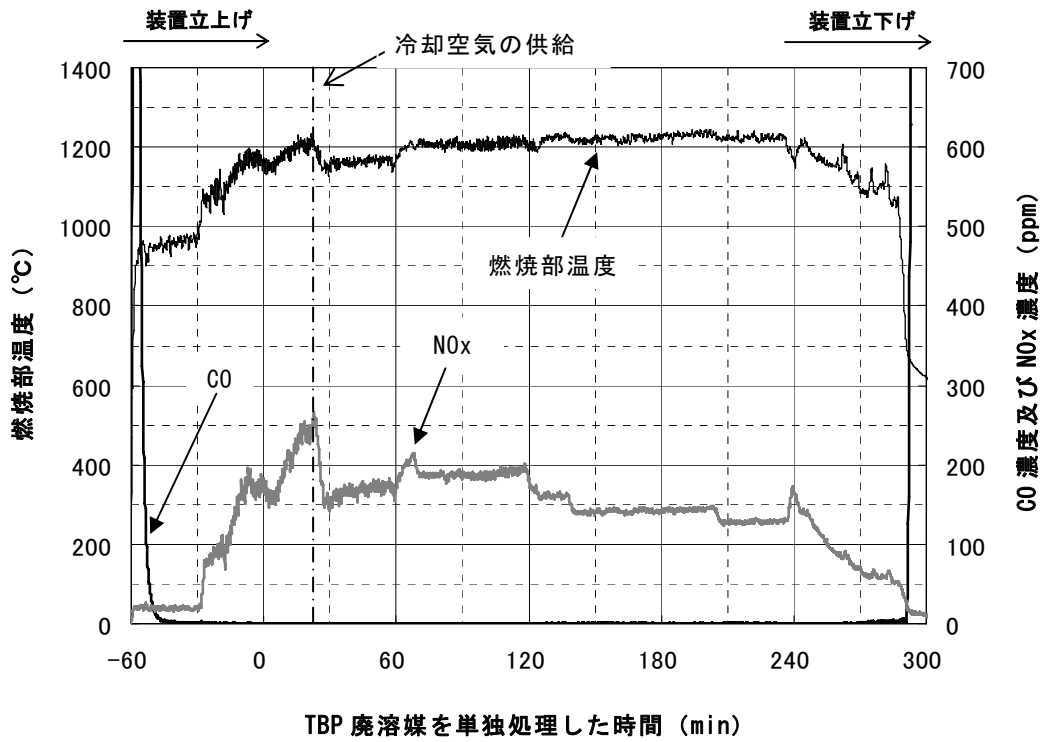


図 3.2-1 燃焼部温度，CO 濃度及び NOx 濃度の経時変化（ガス化装置温度 600℃）

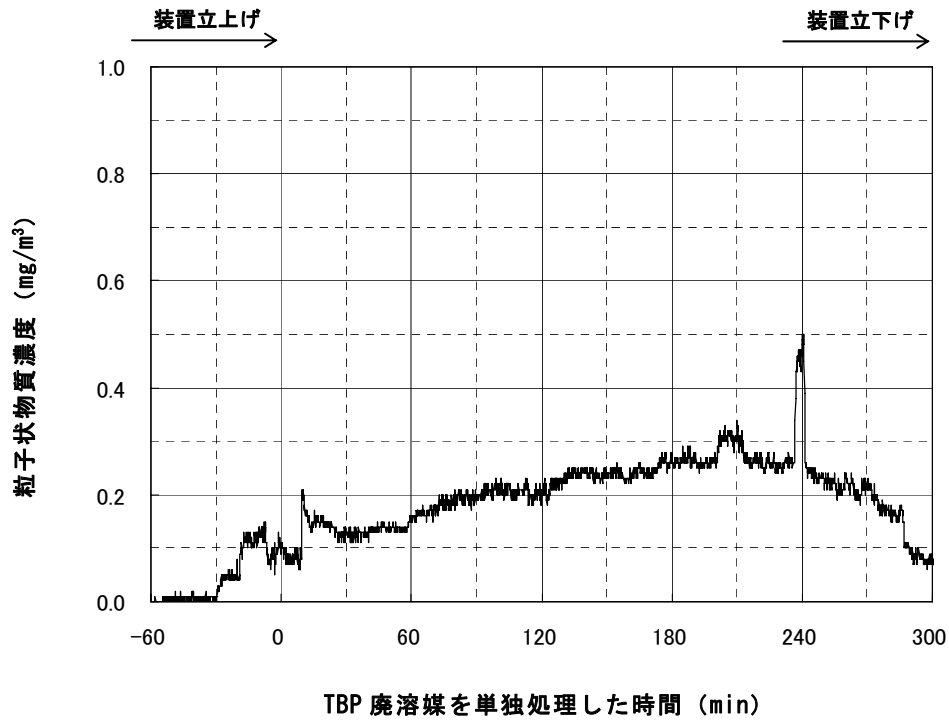


図 3.2-2 排ガス中の粒子状物質濃度の経時変化（ガス化装置温度 600℃）

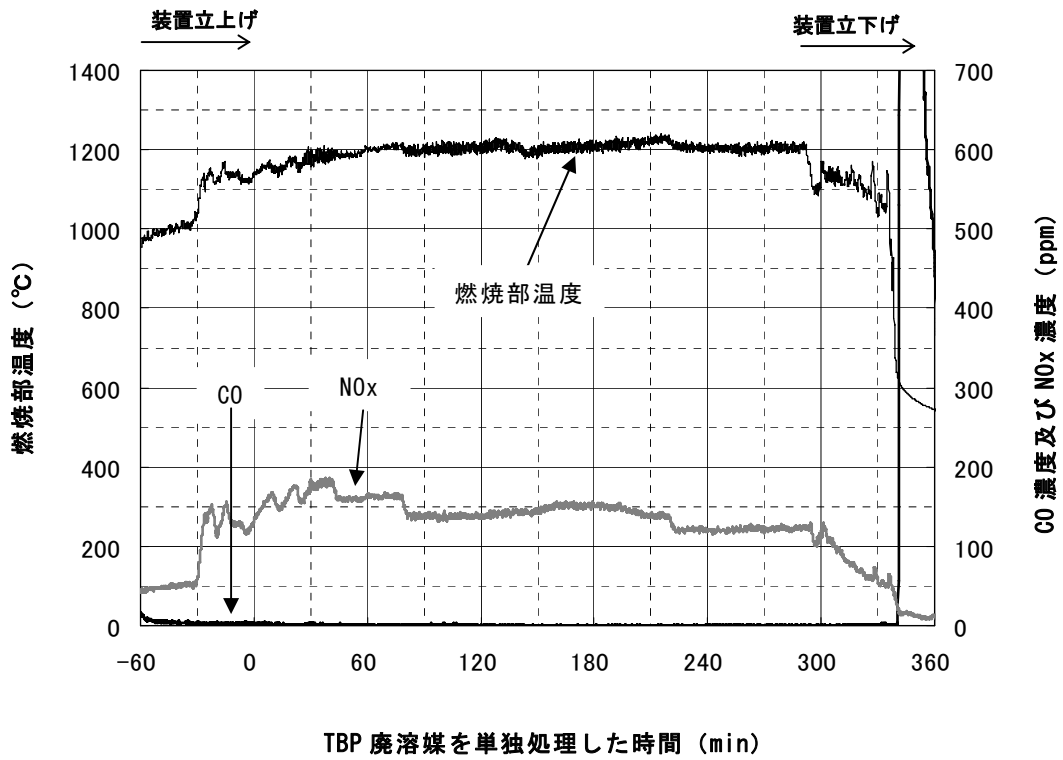


図 3.2-3 燃焼部温度，CO 濃度及び NOx 濃度の経時変化（ガス化装置温度 650°C）

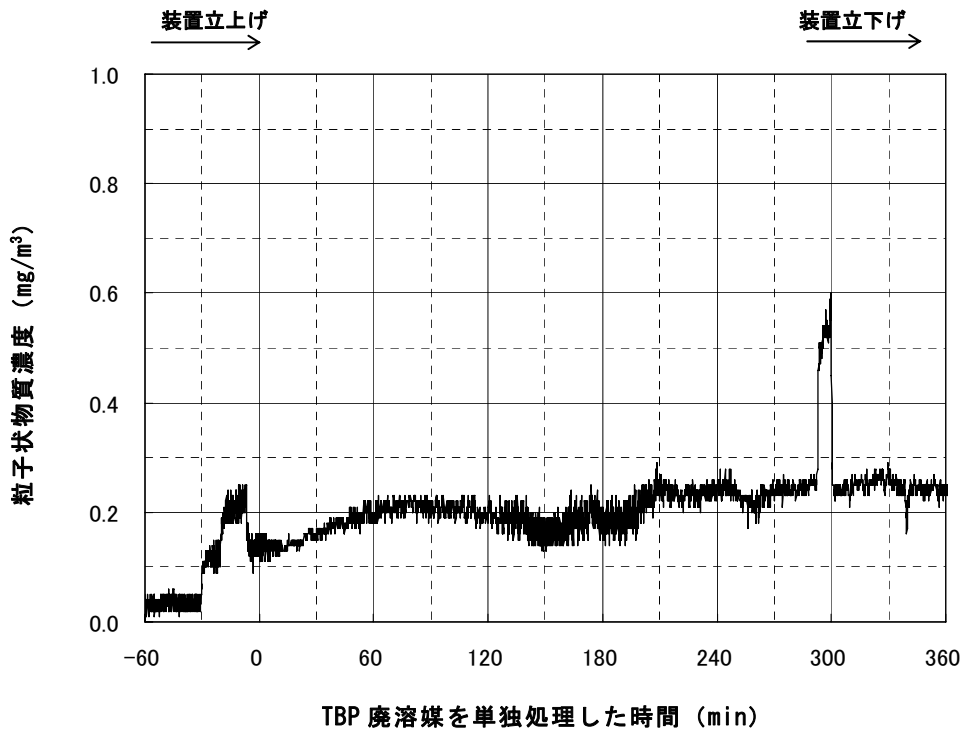


図 3.2-4 排ガス中の粒子状物質濃度の経時変化（ガス化装置温度 650°C）

This is a blank page.

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質の量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度 (質量密度)	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
質量体積 (比体積)	立法メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
(物質量の) 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率	(数の) 1	1

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ⁻¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ⁻²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ⁻³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(a)	rad		m ⁻¹ ・m ¹ =1 ^(b)
立体角	ステラジアン ^(a)	sr ^(c)		m ² ・m ⁻² =1 ^(b)
周波数	ヘルツ	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m ¹ ・kg ¹ ・s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ ・kg ¹ ・s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N・m	m ² ・kg ¹ ・s ⁻²
工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² ・kg ¹ ・s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s ¹ ・A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² ・kg ¹ ・s ⁻³ ・A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ⁴ ・A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² ・kg ¹ ・s ⁻³ ・A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ³ ・A ²
磁束	ウェーバ	Wb	V・s	m ² ・kg ¹ ・s ⁻² ・A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg ¹ ・s ⁻² ・A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² ・kg ¹ ・s ⁻² ・A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(d)	°C		K
光束流	ルーメン	lm	cd・sr ^(c)	m ² ・m ⁻² ・cd=cd
照射 (放射性核種の) 放射能	ベクレル	Bq	lm/m ²	m ² ・m ⁻⁴ ・cd=m ⁻² ・cd
吸収線量, 質量エネルギー分与, カーマ線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量, 組織線量当量	グレイ	Gy	J/kg	m ² ・s ⁻²
	シーベルト	Sv	J/kg	m ² ・s ⁻²

- (a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作るときにいくつかの用例は表4に示されている。
 (b) 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“1”は明示されない。
 (c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
 (d) この単位は、例としてミリセルシウス度m°CのようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	ニュートンメートル	N・m	m ² ・kg ¹ ・s ⁻²
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	kg ¹ ・s ⁻²
表角速度	ラジアン毎秒	rad/s	m ¹ ・m ⁻¹ ・s ⁻¹ =s ⁻¹
角加速度	ラジアン毎平方秒	rad/s ²	m ¹ ・m ⁻¹ ・s ⁻² =s ⁻²
熱流密度, 放射照度	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg ¹ ・s ⁻³
熱容量, エントロピー	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻² ・K ⁻¹
質量熱容量 (比熱容量), 質量エントロピー	ジュール毎キログラム	J/(kg・K)	m ² ・s ⁻² ・K ⁻¹
質量エネルギー (比エネルギー)	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² ・s ⁻² ・K ⁻¹
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m・K)	m ¹ ・kg ¹ ・s ⁻³ ・K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ ・kg ¹ ・s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m ¹ ・kg ¹ ・s ⁻³ ・A ⁻¹
体積電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ ・s ¹ ・A
電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² ・s ¹ ・A
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m ⁻³ ・kg ⁻¹ ・s ⁴ ・A ²
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m ¹ ・kg ¹ ・s ⁻² ・A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m ² ・kg ¹ ・s ⁻² ・mol ⁻¹
モルエントロピー	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	m ² ・kg ¹ ・s ⁻² ・K ⁻¹ ・mol ⁻¹
モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	m ² ・kg ¹ ・s ⁻² ・K ⁻¹ ・mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ ・s ¹ ・A
吸収線量	グレイ毎秒	Gy/s	m ² ・s ⁻³
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ ・m ⁻² ・kg ¹ ・s ⁻³ =m ² ・kg ¹ ・s ⁻³
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² ・sr)	m ² ・m ⁻² ・kg ¹ ・s ⁻³ =kg ¹ ・s ⁻³

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	''	1''=(1/60)'=(π/648000) rad
リットル	l, L	1 l=1 dm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg
ネーパ	Np	1 Np=1
ベル	B	1 B=(1/2) ln10 (Np)

表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.60217733(49)×10 ⁻¹⁹ J
統一原子質量単位	u	1 u=1.6605402(10)×10 ⁻²⁷ kg
天文単位	ua	1 ua=1.49597870691(30)×10 ¹¹ m

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海里	海里	1 海里=1852m
ノット	ノット	1 ノット=1 海里毎時=(1852/3600)m/s
アール	a	1 a=1 dam ² =10 ² m ²
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 ⁵ Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=10 ⁻¹⁰ m
バール	b	1 b=100fm ² =10 ⁻²⁸ m ²

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn・s/cm ² =0.1Pa・s
ストークス	St	1 St=1cm ² /s=10 ⁻⁴ m ² /s
ガウス	G	1 G ≡ 10 ⁴ T
エルステッド	Oe	1 Oe ≡ (1000/4π) A/m
マクスウェル	Mx	1 Mx ≡ 10 ⁻⁸ Wb
スチルブ	sb	1 sb=1cd/cm ² =10 ⁴ cd/m ²
ホト	ph	1 ph=10 ⁴ lx
ガル	Gal	1 Gal=1cm/s ² =10 ⁻² m/s ²

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
X線単位	X	1 X unit=1.002×10 ⁻⁴ nm
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
ジャンスキー	Jy	1 Jy=10 ⁻²⁶ W・m ⁻² ・Hz ⁻¹
フェルミ	fm	1 fermi=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 metric carat = 200 mg = 2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

