

JAERI-Research

2004-012



JP0450775



放射化金属廃棄物の分留特性の数値解析

2004年8月

赤岡 克昭・丸山 庸一郎

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）にて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Nakagun, Ibarakiken 319-1195, Japan.

## 放射化金属廃棄物の分留特性の数値解析

日本原子力研究所東海研究所環境科学研究部

赤岡 克昭・丸山 庸一郎

(2004年7月16日受理)

主にステンレスから構成される JPDR 金属廃棄物を対象に 0~2500 °Cまで 200 °C/h で昇温する場合の分留特性の数値解析を行った。解析モデルは Henry の法則を Langmuir の式に適用し Runge-Kutta 法を用いて解析した。その結果、 $^{152,154}\text{Eu}$  及び  $^{14}\text{C}$ 、 $^{94}\text{Nb}$  は分留によって除去できることが示された。 $^{54}\text{Mn}$  及び  $^{55}\text{Fe}$  については、30年程度の冷却によって放射能をクリアランスレベル以下に低減できる。従って、 $^{59,63}\text{Ni}$  と  $^{60}\text{Co}$  をレーザーによって除去することにより、放射化金属の廃棄物量を 1/100 以下にできる可能性があることが明らかになった。

Numerical Analysis of Fractional Distillation Characteristics  
for Radioactive Metallic Waste

Katsuaki AKAOKA and Yoichiro MARUYAMA

Department of Environmental Sciences  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 16, 2004)

The fractional distillation characteristics at between 0 °C and 2500 °C (the rate is 200 °C/h) of radioactive metallic waste for JPDR which mainly consists of stainless steel were analyzed numerically. In the simulation, the vaporization rates of the components of JPDR waste were calculated by using the Langmuir's equation and Henry's law. As the results, it was calculated that  $^{152,154}\text{Eu}$ ,  $^{14}\text{C}$  and  $^{94}\text{Nb}$  can be removed by the fractional distillation. On the other hand,  $^{54}\text{Mn}$  and  $^{55}\text{Fe}$  can be reduced by cooling them for about 30 years. Therefore, by removing  $^{59,63}\text{Ni}$  and  $^{60}\text{Co}$  using laser separation method, it will be possible to reduce the radioactive metallic waste by less than one hundredth.

Keywords: Fractional Distillation, Atom, Isotope, Laser, Separation, Radioactive Metallic Waste, Vapor, JPDR

## 目次

1. はじめに .....	1
2. 解析モデル .....	3
3. JPDR 金属廃棄物の蒸発特性の解析 .....	6
4. 考察 .....	8
5. まとめ .....	11
参考文献 .....	11

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Model .....	3
3. Numerical Analysis .....	6
4. Discussion .....	8
5. Conclusion .....	11
References .....	11

This is a blank page.

## 1. はじめに

我々は、原子力施設の解体等により発生する放射化金属廃棄物中の極微量の放射性核種を除去するために、金属の分留とレーザー照射を組み合わせた分離方法を提案し、その研究を行っている<sup>1) 5)</sup>。日本原子力研究所においては、1986年から1995年にかけて日本で最初の発電炉である動力試験炉 (Japan Power Demonstration Reactor : JPDR) の解体実地試験が行われ、その際に発生した約180 tの放射化金属廃棄物を、その他の放射性廃棄物と共に保管管理している<sup>6)</sup>。現在、このような放射性廃棄物の処分を目的として原子力安全委員会 (Nuclear Safety Commission of Japan : NSC) や国際原子力機関 (International Atomic Energy Agency : IAEA) において、放射性物質として扱う必要のないもの (クリアランスレベル) の調査・検討が行われ、原子力施設の解体等によって発生する放射性廃棄物の処分や再利用等についての基準の作成が試みられている。例えば、JPDR 解体廃棄物のデータ分析結果<sup>7)</sup>に基づき、JPDR 停止後10年 (1986年) における最も放射化の度合いが高い炉内構造物による放射化金属廃棄物中の放射性核種の組成をもとに、クリアランスレベル以下にするために必要な期間を試算すると、Table 1に示すように<sup>14</sup>Cや<sup>59</sup>Ni、<sup>94</sup>Nbなどの長半減期放射性核種を含むため1万年以上の冷却期間が必要となる。一方、その中に含まれる放射性核種の量は $8 \times 10^{-4}\%$ 以下であり、全ての放射化金属廃棄物が炉内構造物と同等の放射化をしていると仮定しても180 tに対し僅か1.4 kg程度である。JPDRの例に見られるように原子力施設の解体に伴って発生する金属廃棄物のほとんどは安定核種であるため、極微量の放射性核種を除去することによって廃棄物量を激減できる可能性がある。

このような放射化金属廃棄物中に含まれる微量の放射性核種などの同位体の除去や分離には同位体固有の光吸収を利用したレーザーによる選択的励起・電離による方法が効果的である。しかし、ステンレスなど多くの元素から構成されている系から個別の核種をレーザーのみで除去することは、単一元素から特定の同位体を分離するレーザー同位体分離法に比べ、そのシステムが極めて複雑になるため適当ではなく、レーザーで処理する元素数を減らす必要がある。そのためには元素の蒸気圧などの違いによる熱特性を利用した分留が効果的であり、レーザー処理との適合性もよいと考えられる。

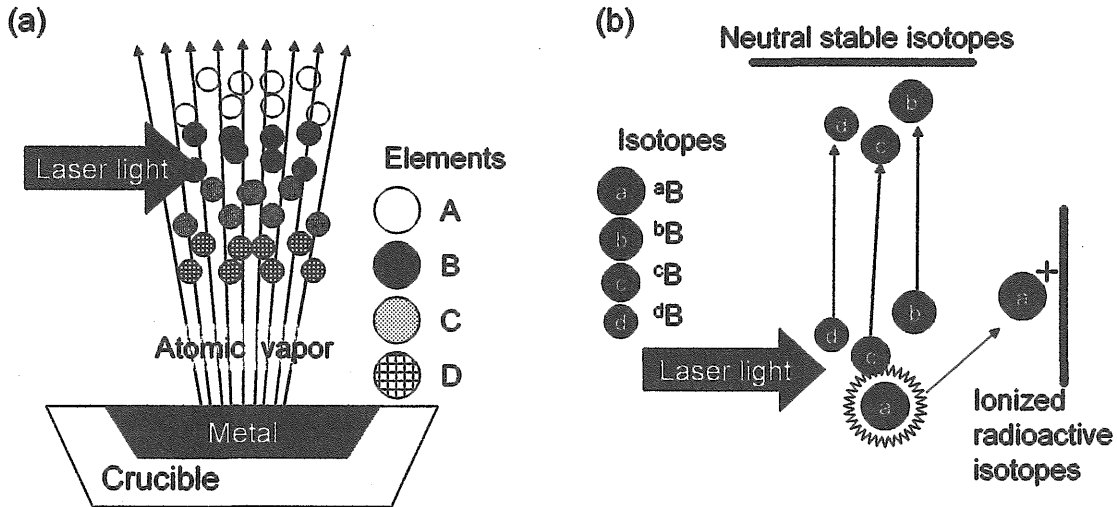
本方法は、微量の放射性核種を含む合金や金属を Fig. 1a) に示すように真空中で原子ビーム状に蒸発させ、各元素の蒸気圧等の熱特性の違いによる蒸発時刻の差を利用して分留する。この時、Fig. 1b) に示すように、特定の元素群が蒸発している時間内に、元素群中の特定の放射性核種のみが吸収する波長のレーザ

一光を照射して、イオン化し、これを電磁的に中性核種から分離、回収する。このような減量技術を実現するためには、分留による元素の分別が非常に重要である。従って、JPDR の金属廃棄物を対象に分留特性の数値解析を行った。更に、解析結果を元に放射化金属廃棄物の量を 1/100 以下にするために必要な蒸発条件について検討を行った。

**Table 1 Composition and clearance level  
for radioactive metal wastes of JPDR**

Element	Composition W (wt%)	Life time	Clearance level (Bq/g)		Cooling period in which a clearance level is satisfied (NSC)
			IAEA	NSC	
$^{14}\text{C}$	$1.36 \times 10^{-6}$	$5.73 \times 10^{23}\text{y}$	300	5	$5.05 \times 10^{4}\text{y}$
Al	0.049	-	-	-	-
Si	0.813	-	-	-	-
S	$5.88 \times 10^{-3}$	-	-	-	-
Cr	18.9	-	-	-	-
Mn	1.57	-	-	-	-
$^{54}\text{Mn}$	$2.38 \times 10^{-10}$	312d	0.3	1	8.05y
Fe	69.2	-	-	-	-
$^{55}\text{Fe}$	$2.55 \times 10^{-6}$	2.73y	300	3000	26.1y
Co	0.127	-	-	-	-
$^{60}\text{Co}$	$1.45 \times 10^{-5}$	5.27y	0.3	0.4	126y
Ni	9.01	-	-	-	-
$^{59}\text{Ni}$	$6.80 \times 10^{-4}$	$7.6 \times 10^{4}\text{y}$	-	600	$3.65 \times 10^{6}\text{y}$
$^{63}\text{Ni}$	$9.47 \times 10^{-5}$	100y	3000	2000	997y
Cu	0.108	-	-	-	-
$^{94}\text{Nb}$	$1.15 \times 10^{-6}$	$2.03 \times 10^{4}\text{y}$	0.3	0.2	$1.75 \times 10^{6}\text{y}$
Mo	0.186	-	-	-	-
Sn	$4.90 \times 10^{-2}$	-	-	-	-
$^{125}\text{Sb}$	$1.28 \times 10^{-7}$	2.75y	-	-	-
$^{152}\text{Eu}$	$1.48 \times 10^{-6}$	13.5y	0.3	0.4	242y
$^{154}\text{Eu}$	$9.45 \times 10^{-8}$	8.59y	-	0.4	235y





**Distillation.**  
 Vaporization time of each elements is controlled by the crucible temperature.

**Laser separation.**  
 Specific isotope is ionized by laser irradiation.

Fig. 1 Process of distillation and laser separation.

## 2. 解析モデル

本方法は高真空下で行われる分留であるため、分子蒸留と仮定できる。分子蒸留は、通常  $10^{-2}$  Pa 以下の高真空下で行われる蒸留であり、蒸発分子の平均自由行程は長くなる。従って、常に排気され高真空状態が保たれている真空雰囲気においては、蒸発分子は他の分子と衝突すること無しに凝集面に到達することが可能になる。実際、温度  $T$ 、圧力  $P$ 、分子半径  $D$  とした場合の平均自由行程は以下の式で表される。

$$l = \frac{kT}{\sqrt{2}\pi PD^2} \dots\dots\dots(1)$$

但し、 $k=1.38 \times 10^{-23}$  J/K はボルツマン定数である。例えば、温度 300 K、圧力  $10^{-3}$  Pa で封じられた真空雰囲気中に蒸発する分子直径  $1 \times 10^{-9}$  m (10 Å) の気体分子の平均自由行程は約 3.7 m にも達する。このような分子蒸留は工業的応用としてビタミン、一般油脂、高純度金属の精製などに用いられてきた。しかしながら、先に述べたように高融点金属（低蒸気圧金属）を対象にした蒸留においては、精留は難しく単蒸留が主となると考えられる。この場合、理論的分離能力はそれぞれの成分の蒸気圧の比でしかない。

ここで、 $n$ 種の物質の合金を単蒸留した場合の蒸発量を考える。今、  
 $t$ :時刻(秒)

$T(t)$ :時刻 $t$ における温度 (K)

$w_i(T(t))$ :温度 $T$ における物質 $i$ の単位表面積あたりの蒸発量 ( $g/cm^2$ )

$a$ :蒸発面面積( $cm^2$ )

$w_{i,0}$ :物質 $i$ の初期量 ( $g$ )

$P_i(T(t))$ : 温度 $T$ における物質 $i$ の蒸気圧(分圧) (Pa)

$P_i^0(T(t))$ : 温度 $T$ における物質 $i$ の単体の蒸気圧 (Pa)

$M_i$ : 物質 $i$ の原子(分子)量

$\gamma_i$ : 物質 $i$ の活量係数

$N_i(T(t))$ : 温度 $T$ における物質 $i$ の原子濃度比率

とすると、Langmuir の式より、物質  $i$  の蒸発速度は以下の式で表される。

$$\frac{dw_i(T(t))}{dt} = 0.0583/133P_i(T(t))\sqrt{\frac{M_i}{T(t)}} \dots\dots\dots(2)$$

但し、圧力を Torr から Pa へ変換するために  $a$  を 133.32 で割った。  
 一方、蒸発源を理想溶液と仮定すると Henry の法則より物質  $i$  の分圧は以下のようになる。

$$P_i(T(t)) = \gamma_i N_i(T(t)) P_i^0(T(t)) \dots\dots\dots(3)$$

$$N_i(T(t)) = \frac{\frac{w_{i,0} - aw_i(T(t))}{M_i \sum_{k=1}^n (w_{k,0} - aw_k(T(t)))}}{\sum_{l=1}^n \frac{w_{l,0} - aw_l(T(t))}{M_l \sum_{k=1}^n (w_{k,0} - aw_k(T(t)))}} \dots\dots\dots(4)$$

また、物質  $i$  の単体の蒸気圧は VanLaar の式を用いて

$$\log P_i^0(T(t)) = -\frac{A}{T(t)} + B + C \log T(t) + DT(t) + 2.125 \dots\dots\dots(5)$$

但し、 $A$ 、 $B$ 、 $C$ 、 $D$ は定数である。これらから、 $w_i(T(t))$ を求めれば、物質  $i$  の蒸発量が得られる。また、

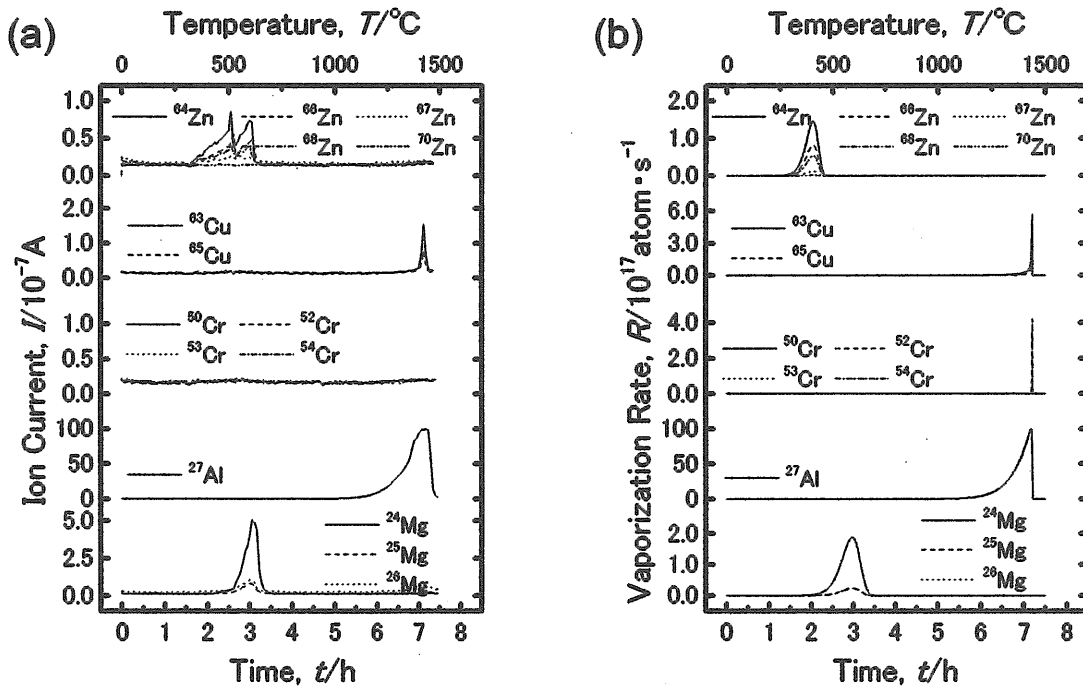
$$\frac{\frac{dw_i(T(t))}{dt}}{M_i \sum_{k=1}^n \frac{dw_k(T(t))}{dt}} \dots\dots\dots(6)$$

から各時刻における蒸発物質の濃度を得ることができる。

上に示したように一般的に Henry の法則より、温度  $T$  が時間  $t$  に寄らず一定であれば混合物質のそれぞれの蒸気圧(分圧)は、蒸発源における混合物質のそれぞれの濃度  $N_i$  に比例する。従って、蒸発源に蒸発物質を補充することが無ければ、蒸発による濃度変化のため、時刻により蒸気の組成が異なる。

従って、分子蒸留過程をシミュレートするために、上記微分方程式を Runge-Kutta 法により解き、多成分元素の蒸発量などを計算できるコードを作成し、解析を行った。

本解析コードの検証を行うため、ジュラルミンの分留特性の測定を行い、解析結果との比較検討を行った<sup>4) 5)</sup>。その結果、Fig. 2 に示すように Zn 等のように昇華による蒸発を解析することはできないが、融点を越え液体で蒸発する過程については実験結果と良く一致し、数値解析できることが確認できた。



Measured ion current of isotope elements of duralumin.

Calculated vaporization rate of isotope elements of duralumin.

Fig. 2 Characteristics of vaporization of duralumin.

## 3. JPDR 金属廃棄物の蒸発特性の解析

ジュラルミンの分留特性の測定及び解析の結果<sup>4) 5)</sup>より、作成した解析コードによって液体金属の蒸発特性が良く模擬できることから、本解析コードを放射化金属の蒸発特性の解析に適用した。解析パラメータを Table 2 に示す。

Table 2 Parameters used for calculation of molecular distribution of radioactive metal wastes.

Element	Composition W (wt%)	Mass No. M <sub>i</sub>	Vapor pressure at 2000K (Pa)	Constants of VanLaar's equation <sup>1 1)</sup>			
				A	B	C	D
<sup>14</sup> C *	1.36x10 <sup>-6</sup>	14	1.33352x10 <sup>-5</sup>	0	-7.00	0.000	0.00
Al	0.049	26.98	7.63917x10 <sup>+2</sup>	16450	12.36	-1.023	0.00
Si	0.813	28.09	4.46599x10 <sup>+0</sup>	20900	10.84	-0.565	0.00
S *	5.88x10 <sup>-3</sup>	32.06	1.33352x10 <sup>+2</sup>	13041	18.58	-2.806	0.00
Cr	18.9	52.00	1.04870x10 <sup>+3</sup>	20680	14.56	-1.310	0.00
Mn	1.57	54.94	1.33784x10 <sup>+4</sup>	13900	17.27	-2.520	0.00
<sup>54</sup> Mn	2.38x10 <sup>-10</sup>	54	1.33784x10 <sup>+4</sup>	13900	17.27	-2.520	0.00
Fe	69.2	55.85	2.22685x10 <sup>+1</sup>	19710	13.27	-1.270	0.00
<sup>55</sup> Fe	2.55x10 <sup>-6</sup>	55	2.22685x10 <sup>+1</sup>	19710	13.27	-1.270	0.00
Co	0.127	58.94	2.46037x10 <sup>+1</sup>	22210	10.82	0.000	0.22x10 <sup>-3</sup>
<sup>60</sup> Co	1.45x10 <sup>-5</sup>	60	2.46037x10 <sup>+1</sup>	22210	10.82	0.000	0.22x10 <sup>-3</sup>
Ni	9.01	58.69	1.73752x10 <sup>+1</sup>	22500	16.95	-2.010	0.00
<sup>59</sup> Ni	6.80x10 <sup>-4</sup>	59	1.73752x10 <sup>+1</sup>	22500	16.95	-2.010	0.00
<sup>63</sup> Ni	9.47x10 <sup>-5</sup>	63	1.73752x10 <sup>+1</sup>	22500	16.95	-2.020	0.00
Cu	0.108	63.54	3.07460x10 <sup>+2</sup>	17650	13.39	-1.273	0.00
<sup>94</sup> Nb	1.15x10 <sup>-6</sup>	94	1.85454x10 <sup>-6</sup>	37650	8.94	0.715	-0.17x10 <sup>-3</sup>
Mo	0.186	95.95	2.32251x10 <sup>-5</sup>	34700	11.66	-0.236	-0.15x10 <sup>-3</sup>
Sn	4.90x10 <sup>-2</sup>	118.70	4.02717x10 <sup>+2</sup>	15500	8.23	0.000	0.00
<sup>125</sup> Sb *	1.28x10 <sup>-7</sup>	125	1.33352x10 <sup>+2</sup>	13689	17.30	-2.510	0.00
<sup>152</sup> Eu	1.48x10 <sup>-6</sup>	152	6.23735x10 <sup>+5</sup>	8980	8.16	0.000	0.00
<sup>154</sup> Eu	9.45x10 <sup>-8</sup>	154	6.23735x10 <sup>+5</sup>	8980	8.16	0.000	0.00

\* 参考文献 1 1) において VanLaar の式に対する定数が決定されていなかったため参考文献 1 2) より内・外挿した値を使用した。

放射化金属廃棄物としては、その構造材が SUS304 (旧 SUS27) である JPDR の炉心構造物を対象として、白石<sup>7)</sup>らの放射能及び放射化物と非放射化物の組成及び、助川<sup>8)</sup>らの構造材の組成についての検討を参考に放射性核種の組成を推定した。なお、蒸発量は  $10 \text{ g/cm}^2$ 、蒸発昇温速度  $200^\circ\text{C/h}$  とし、 $0^\circ\text{C}$  から  $2500^\circ\text{C}$  まで 12.5 時間で昇温するとした。

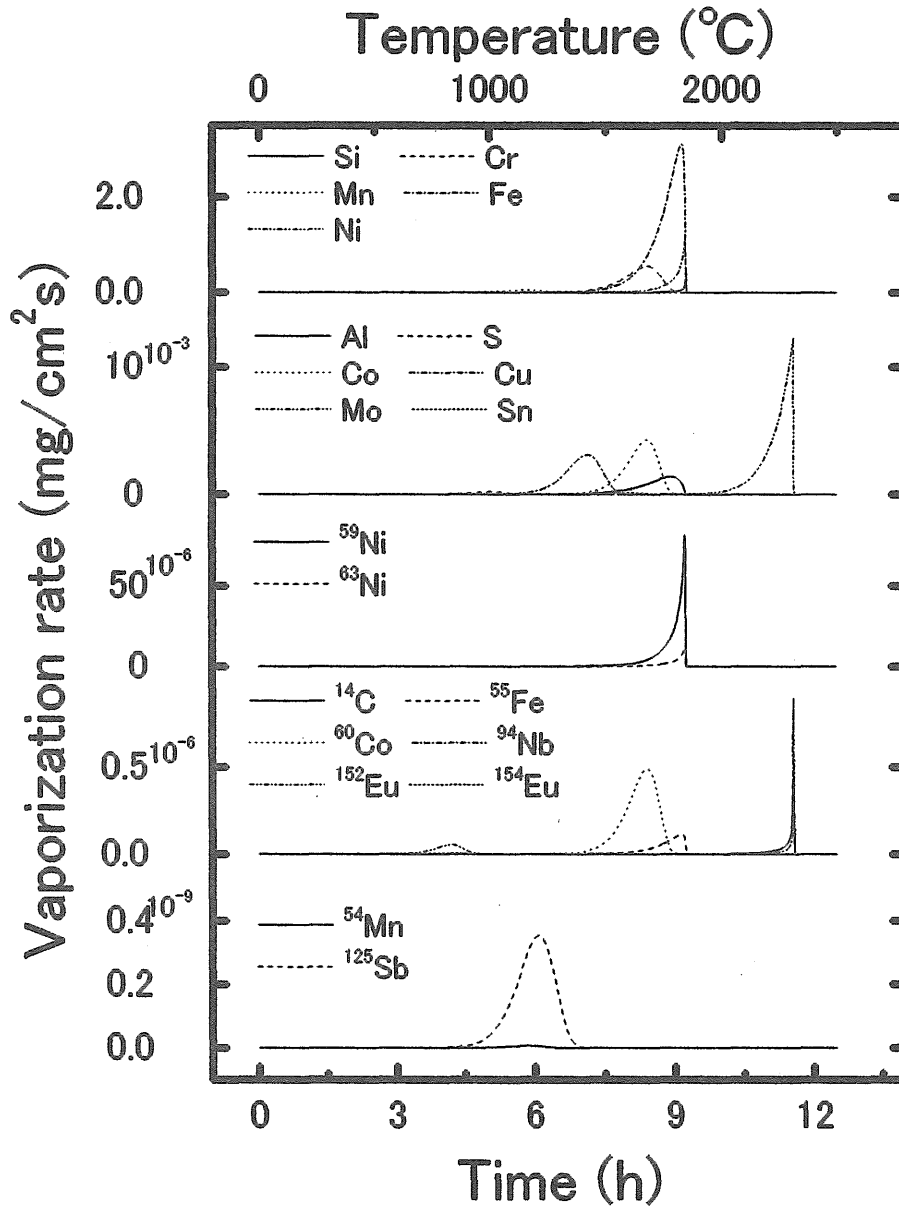


Fig. 3 Vaporization rate of isotope elements in radioactive metallic waste of JPDR

JPDR の放射化金属廃棄物中の各成分の蒸発速度の時間・温度依存性について解析した結果を Fig. 3 に示す。横軸は下に昇温時間、上にその際の温度を示し、縦軸は各同位体の蒸発速度を示している。上 2 段は安定同位体で、多くはステンレス 304 の構成材であり、下 3 段は放射性同位体の成分である。安定同位体でステンレスの主な構成材である Fe、Ni、Cr は 1400~1800°C (7 時間~9 時間) の間に大部分が蒸発している。一方、放射性核種である  $^{152,154}\text{Eu}$  及び  $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{125}\text{Sb}$  はそれより低い温度で、 $^{14}\text{C}$  と  $^{94}\text{Nb}$  は高い温度で蒸発していることが判る。従って、本解析により  $^{152,154}\text{Eu}$  及び  $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{94}\text{Nb}$  は分留により取り除くことができるが、それ以外の  $^{55}\text{Fe}$ 、 $^{59,63}\text{Ni}$ 、 $^{60}\text{Co}$  については、ステンレスの主成分の同位体であるため、分留での除去は困難であることが判る。

#### 4. 考察

先の解析結果より、 $^{55}\text{Fe}$  及び  $^{59,63}\text{Ni}$ 、 $^{60}\text{Co}$  以外の放射性核種は分留により、除去できることが示された。実際には分留によって  $^{152,154}\text{Eu}$  及び  $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{94}\text{Nb}$  をクリアランスレベル以下にする必要がある。なお、 $^{125}\text{Sb}$ 、については現段階で、クリアランスレベルの検討がなされていないことから、ここでは、考慮しないこととする。

クリアランスレベル以下にするための条件を検討するために、上の解析結果を元に蒸気中に含まれる放射能を核種毎に計算した。その結果を Fig. 4 に示す。図の横軸は蒸発時間と温度、縦軸は原子蒸気中に含まれる放射性同位元素の単位質量あたりの放射能をあらわしている。グラフ中、破線で示された曲線部分は Table 1 で示したクリアランスレベルを下回る放射能を示している。このグラフより、原子蒸気中の放射能は  $^{152,154}\text{Eu}$  については 1040°C 以上においてクリアランスレベルを下回り、 $^{14}\text{C}$  と  $^{94}\text{Nb}$  は 1850°C 未満においてクリアランスレベルを超えないことが判る。従って、1040~1850°C の間に蒸発する成分のみを回収することによって  $^{152,154}\text{Eu}$ 、 $^{14}\text{C}$  と  $^{94}\text{Nb}$  をクリアランスレベル以下にすることができる。この際、回収される物質は全体の 99.51 wt% と計算され、放射化金属廃棄物としては 0.49 wt% と全体の 1/100 以下である。

0~1040°C、1040~1850°C 及び 1850°C~ の各回収物の組成と Fig. 4 の結果を積分した放射能量を Table 3 に示す。これによれば  $^{152,154}\text{Eu}$ 、 $^{14}\text{C}$  及び  $^{94}\text{Nb}$  は計算どおりクリアランスレベルを下回る。一方、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{55}\text{Fe}$ 、 $^{59,63}\text{Ni}$  及び  $^{60}\text{Co}$  はクリアランスレベルを上回るが、1 世代 (30 年) 程度の冷却期間をおくことにより、 $^{54}\text{Mn}$  及び  $^{55}\text{Fe}$  についてはクリアランスレベル以下にすることができ

る。一方、 $^{59,63}\text{Ni}$  及び  $^{60}\text{Co}$  については、半減期が長く放射能が高いため、分留と冷却のみによっては、放射能をクリアランスレベル以下にすることができないため、レーザーによる核種分離が必要である。

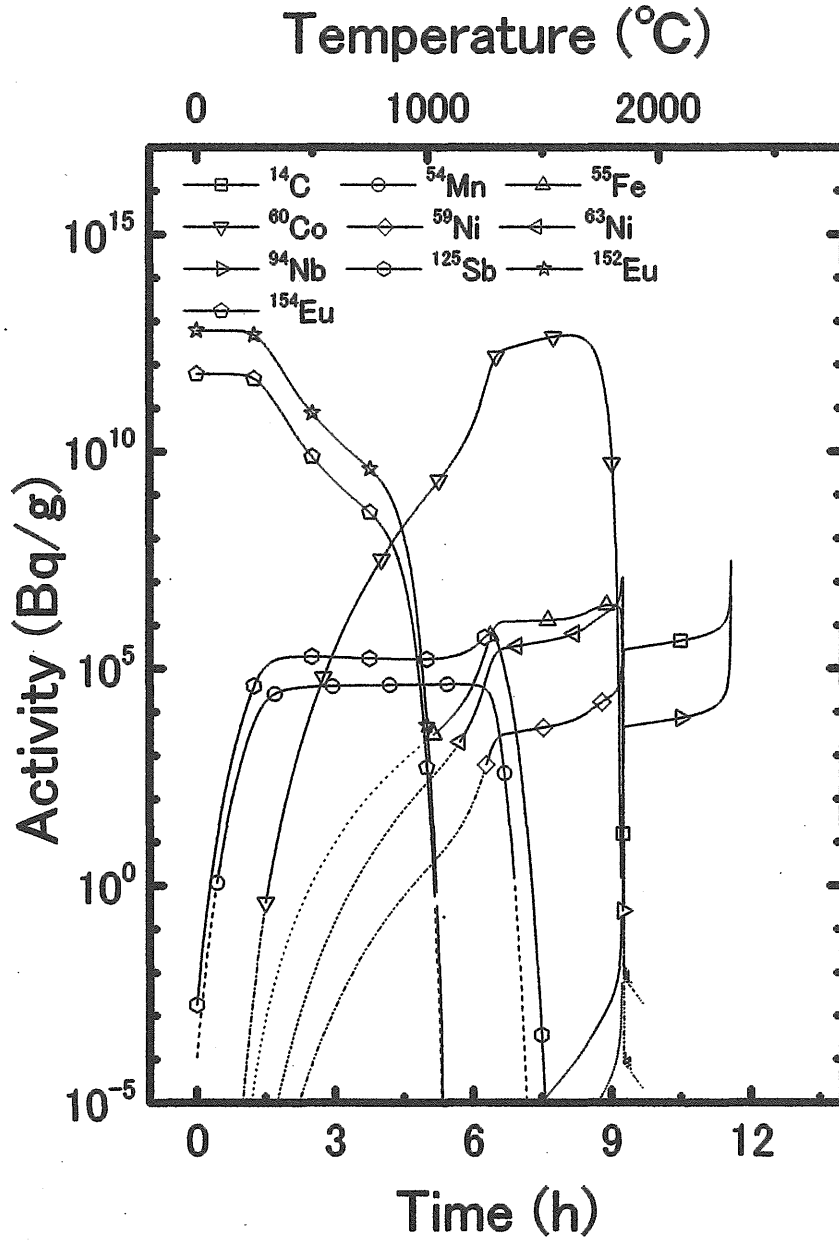


Fig. 4 Activity of isotope elements in vapor

Table 3 Period in which clearance level is satisfied.

Element	Composition and activity of products						
	0~1040°C		1040~1850°C			1850°C~	
	Composition (%)	Activity (Bq/g)	Composition (%)	Activity (Bq/g)	Cooling period in which a clearance level is satisfied	Composition (%)	Activity (Bq/g)
<sup>14</sup> C	9.07x10 <sup>-22</sup>	1.50x10 <sup>-12</sup>	4.79x10 <sup>-12</sup>	7.91x10 <sup>-3</sup>	< clearance level.	4.42x10 <sup>-4</sup>	7.29x10 <sup>+5</sup>
Al	6.15x10 <sup>-4</sup>	0	4.93x10 <sup>-2</sup>	0	-	4.23x10 <sup>-5</sup>	0
Si	7.49x10 <sup>-5</sup>	0	0.764	0	-	17.1	0
S	2.51	0	1.45x10 <sup>-3</sup>	0	-	0	0
Cr	0.0653	0	19.0	0	-	1.86x10 <sup>-11</sup>	0
Mn	97.3	0	1.40	0	-	0	0
<sup>54</sup> Mn	1.49x10 <sup>-3</sup>	4.26x10 <sup>+4</sup>	2.13x10 <sup>-10</sup>	609	7.9y	0	0
Fe	0.0667	0	69.5	0	-	3.57	0
<sup>55</sup> Fe	2.48x10 <sup>-9</sup>	2.18x10 <sup>+3</sup>	2.55x10 <sup>-6</sup>	2.26x10 <sup>+6</sup>	26.1y	1.23x10 <sup>-7</sup>	1.09x10 <sup>+5</sup>
Co	8.02x10 <sup>-5</sup>	0	0.128	0	-	8.38x10 <sup>-14</sup>	0
<sup>60</sup> Co	9.08x10 <sup>-9</sup>	1.01x10 <sup>+9</sup>	1.46x10 <sup>-5</sup>	1.61x10 <sup>+12</sup>	221y	1.09x10 <sup>-17</sup>	1.21
Ni	1.09x10 <sup>-3</sup>	0	9.00	0	-	1.94	0
<sup>59</sup> Ni	8.17x10 <sup>-3</sup>	2.41	6.79x10 <sup>-4</sup>	2.00x10 <sup>+4</sup>	3.84x10 <sup>+5</sup> y	1.49x10 <sup>-3</sup>	4.39x10 <sup>+4</sup>
<sup>63</sup> Ni	1.10x10 <sup>-3</sup>	2.31x10 <sup>+2</sup>	9.44x10 <sup>-5</sup>	1.98x10 <sup>+6</sup>	995y	2.43x10 <sup>-4</sup>	5.11x10 <sup>+6</sup>
Cu	0.049	0	0.108	0	-	5.59x10 <sup>-15</sup>	0
<sup>94</sup> Nb	4.39x10 <sup>-22</sup>	3.05x10 <sup>-14</sup>	1.91x10 <sup>-12</sup>	1.33x10 <sup>-4</sup>	< clearance level.	3.93x10 <sup>-4</sup>	2.73x10 <sup>+4</sup>
Mo	8.13x10 <sup>-15</sup>	0	3.06x10 <sup>-6</sup>	0	-	59.9	0
Sn	5.20x10 <sup>-4</sup>	0	4.92x10 <sup>-3</sup>	0	-	5.94x10 <sup>-15</sup>	0
<sup>125</sup> Sb	4.32x10 <sup>-7</sup>	1.66x10 <sup>+5</sup>	1.21x10 <sup>-8</sup>	4.64x10 <sup>+3</sup>	-	0	0
<sup>152</sup> Eu	8.35x10 <sup>-4</sup>	5.37x10 <sup>+7</sup>	8.02x10 <sup>-16</sup>	5.16x10 <sup>-5</sup>	< clearance level.	0	0
<sup>154</sup> Eu	5.33x10 <sup>-5</sup>	5.33x10 <sup>+6</sup>	5.88x10 <sup>-17</sup>	5.89x10 <sup>-6</sup>	< clearance level	0	0
Total	0.18	-	99.51	-	-	0.31	

そこで<sup>60</sup>Co、<sup>59,63</sup>Niの除去について簡単に検討を行った。Table 3によれば分留によって除去される放射性核種が全体の0.49 wt%であることから、放射化金属廃棄物量1/100を達成するためには、更に、全体の0.51 wt%の重量の核種をレーザーで除去することが許される。実際、<sup>60</sup>Coと<sup>59,63</sup>Niの量は極微量であることから、かなりの量の安定核種を放射性核種と共にレーザーで除去してもかまわない。コバルトは全量でも、その割合が全体の0.13 wt%以下であることか



ら同位体分離の必要は無く、レーザーによる元素分離で十分である。一方、 $^{59,63}\text{Ni}$  については残りの 0.38 wt%分の安定ニッケルの混入が許される。これはレーザーによって分離される放射性ニッケルに対して、安定ニッケルが質量にして 500 倍程度混入してもよい計算になり、レーザー分離としては比較的容易であると考えられる。

## 5. まとめ

JPDR の解体に伴い排出された放射化金属廃棄物のうち炉心構造物を対象として分留特性を解析し、放射化金属廃棄物をクリアランスレベル以下にするための条件について検討した。その結果、0~2500 °Cまで昇温速度 200 °C/hで蒸発する条件において、1040~1850 °Cの間の蒸発物を回収することにより、 $^{152,154}\text{Eu}$ 、 $^{14}\text{C}$  及び  $^{94}\text{Nb}$  をクリアランスレベル以下にできることが判った。また、 $^{54}\text{Mn}$  及び  $^{55}\text{Fe}$  をクリアランスレベル以下にするためには 30 年の冷却が必要であること、一方、 $^{59,63}\text{Ni}$  については、レーザーによる核種分離が、 $^{60}\text{Co}$  についてはレーザーによる元素分離が必要で、これらにより、放射化金属廃棄物量を 1/100 にできる可能性があることが判った。

今後、本結果を検証するために、ステンレスの分留及び Ni のレーザー同位体分離の実験を実施する計画である。

## 参考文献

- 1) 有澤 孝、赤岡克昭、“レーザー直接再処理法”、特許番号 2097367
- 2) 丸山 庸一郎、赤岡克昭、“放射化された金属廃棄物の減容・減量方法”、特願平 15-012087 (2003)
- 3) 赤岡克昭、丸山 庸一郎、“金属或いは合金に含まれる微量元素を制御・除去する方法”、特願平 15-028127 (2003)
- 4) 赤岡克昭、丸山 庸一郎、“金属元素の蒸留の研究-ジュラルミンの元素分別-”、JAERI-Research 2003-022
- 5) 赤岡克昭、丸山 庸一郎、“ジュラルミンの分留特性”、日本金属学会誌 第 68 巻 第 2 号 (2004)181
- 6) 宮坂靖彦、他、“JPDR 解体実地試験の概要と成果”、日本原子力学会誌、38,553(1996)
- 7) 白石邦夫、助川武則、柳原敏“動力試験炉(JPDR)の解体廃棄物データの

分析(受託研究)」、JAERI-Data/Code99-050(2000)

- 8) 助川武則、畠山睦夫、柳原敏。“原子炉の廃止措置における残存放射能評価方法の検討(受託研究)」、JAERI-Tech2001-058(2001)
- 9) 原子力安全委員会 放射性廃棄物安全基準専門部会、“主な原子炉施設におけるクリアランスレベルについて”平成11年3月17日
- 10) IAEA, “Clearance levels for radionuclides in solid materials. Application of exemption principles.”, TECDOC-855
- 11) E.A.Brandes, and G.B.Brook, “Smithells Metals Reference Book, Seventh Edition”, Butterworth Heinemann,(1998)
- 12) 日本真空株式会社 編、“真空ハンドブック”, オーム社 (1992)

# 国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	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
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バール	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ bar} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値は CODATA の1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

## 換算表

力	N(=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s(N·s/m<sup>2</sup>)=10 P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1 m<sup>2</sup>/s=10<sup>4</sup>St(ストークス)(cm<sup>2</sup>/s)

圧	MPa(=10 bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg(Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 <sup>3</sup>	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 <sup>-4</sup>	1.35951 × 10 <sup>-3</sup>	1.31579 × 10 <sup>-3</sup>	1	1.93368 × 10 <sup>-2</sup>
	6.89476 × 10 <sup>-3</sup>	7.03070 × 10 <sup>-2</sup>	6.80460 × 10 <sup>-2</sup>	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778 × 10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813 × 10 <sup>-4</sup>	0.737562	6.24150 × 10 <sup>18</sup>
	9.80665	1	2.72407 × 10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487 × 10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082 × 10 <sup>19</sup>
	3.6 × 10 <sup>6</sup>	3.67098 × 10 <sup>5</sup>	1	8.59999 × 10 <sup>5</sup>	3412.13	2.65522 × 10 <sup>6</sup>	2.24694 × 10 <sup>25</sup>
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 <sup>-6</sup>	1	3.96759 × 10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272 × 10 <sup>19</sup>
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 <sup>-4</sup>	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 <sup>21</sup>
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506 × 10 <sup>-3</sup>	1	8.46233 × 10 <sup>18</sup>
	1.60218 × 10 <sup>-19</sup>	1.63377 × 10 <sup>-20</sup>	4.45050 × 10 <sup>-26</sup>	3.82743 × 10 <sup>-20</sup>	1.51857 × 10 <sup>-22</sup>	1.18171 × 10 <sup>-19</sup>	1

1 cal = 4.18605 J(計量法)  
 = 4.184 J(熱化学)  
 = 4.1855 J(15 °C)  
 = 4.1868 J(国際蒸気表)  
 仕事率 1 PS(仏馬力)  
 = 75 kgf·m/s  
 = 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 <sup>-11</sup>
	3.7 × 10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

放射化金属廃棄物の分留特性の数値解析



古紙配合率100%  
白色度70%の再生紙を使用しています