

JAERI-Tech
96-050



NUCEFアルファ廃液処理設備の基本設計 －プロセス設計－

1996年11月

峯尾英章・松村達郎・西沢市王・三井武志・植木浩行・和田 淳
坂井一太・西村建二*・竹下 功

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。

入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 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, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1996

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 日立高速印刷株式会社

NUCEF アルファ廃液処理設備の基本設計
—プロセス設計—

日本原子力研究所東海研究所 NUCCEF 試験室

峯尾 英章・松村 達郎・西沢 市王・三井 武志・植木 浩行
和田 淳・坂井 一太・西村 建二*・竹下 功

(1996年10月22日受理)

本報は、平成6年度に行なったアルファ廃液処理設備の基本設計について、プロセス設計を中心に述べたものである。NUCEFでは、TRU（超ウラン）元素を用いた様々な実験が行われるため、TRU元素を含む廃棄物が発生する。NUCEFで発生する液体廃棄物は3種類に分類されるが、最も放射能濃度の低い回収水等の低レベル α 廃液の発生量が大きいことから、これを減容処理する設備の整備が必要である。アルファ廃液処理設備は、この廃液を処理し、放出できる程度の非常に低いレベルの放射能濃度にまで除染する目的で整備するものである。本設備のプロセス設計に先立ち、その前提条件となる対象廃液の性状と発生量、設置する建屋スペース及び許認可上の制約等を整理した。廃液量が多いこと、廃液性状が多様であること、高い除染係数が必要であることを考慮し、蒸発法を基礎にこれを補完するプロセスを検討した。その結果、アルファ廃液処理設備は、蒸発缶を中心として、その前段に限外ろ過及び吸着カラム、後段に逆浸透工程を備えた構成とし、受け入れる廃液の性状によって、吸着カラムに入れる吸着剤と蒸発缶の運転方法を変えて対応することとした。

本件は科学技術庁から委託を受けて実施した「再処理施設臨界安全性実証試験」の一部が含まれる。

* : 三菱マテリアル(株)

Basic Design of Alpha Aqueous Waste Treatment Process in NUCEF

Hideaki MINEO, Tatsuro MATSUMURA, Ichio NISHIZAWA

Takeshi MITSUI, Hiroyuki UEKI, Atsushi WADA

Ichita SAKAI, Kenji NISHIMURA *, Isao TAKESHITA

Department of NUCEF Project

Tokai Research Establishment

Japan Atomic Energy Research Institute

Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 22, 1996)

This paper described the basic design of Alpha Aqueous Waste Treatment Process in NUCEF. Since various experiments using the TRU(transuranium)elements are carried out in NUCEF, wastes containing TRU elements arise. The liquid wastes in NUCEF are categorized into three types. Decontamination and volume reduction of the liquid waste mainly of recovery water from acid recovery process which has lowest radioactive concentration is the most important task, because the arising rate of the waste is large. The major function of the Alpha Aqueous Waste Treatment Process is to decontaminate the radioactive concentration below the level which is allowed to discharge into sea. Prior the process design of this facility, the followings are evaluated:property and arising rate of the liquid waste, room space to install and licensing condition. Considering varieties of liquid wastes and their large volume, the very high decontamination factor was proposed by a process of multiple evaporation supported with filtration and adsorption in the head end part and reverse osmosis in the distillate part.

Keywords:NUCEF, TRU Waste, TRU Waste Management, TRU Waste Treatment, Adsorption, TRU Waste Evaporation, Reverse Osmosis, Ultra Filtration, Decontamination

Present study was conducted under the auspices of the Science and Technology Agency of Japan

* Mitsubishi Materials Corporation

目 次

1.はじめに	1
2. NUCEFで発生するTRU廃棄物と管理	2
2.1 NUCEFで発生するTRU廃棄物	2
2.2 NUCEFで発生するTRU液体廃棄物の管理	4
3. アルファ廃液処理設備のプロセス設計	5
3.1 プロセス選定の前提条件	5
3.2 アルファ廃液処理設備に適用する処理技術の検討	7
3.3 プロセスの決定	11
4. おわりに	14
謝 辞	14
引用文献	15

CONTENTS

1. Introduction	1
2. Management of TRU Waste in NUCEF	2
2.1 TRU Waste Arisen at NUCEF	2
2.2 Management of TRU Liquid Waste in NUCEF	4
3. Process Design of Alpha Aqueous Waste Treatment Process	5
3.1 Presupposition for Selection of Process	5
3.2 Discussion of Treatment Technology Applying Alpha Aqueous Waste Treatment Process	7
3.3 Selection of Process	11
4. Conclusion	14
Acknowledgment	14
References	15

1. はじめに

燃料サイクル安全工学研究施設（NUCEF: the Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility）は、大型の複合研究施設であり、1995年（平成7年）初めにホット運転を開始した。NUCEFにおける研究は、燃料サイクルバックエンドの特に再処理と廃棄物管理の分野に重点を置いている。これらの研究分野ではTRU（超ウラン）元素を用いた実験がなされるため、TRU元素を含む廃棄物（以下、TRU廃棄物）が発生する。

施設内で発生するTRU廃棄物の管理は、NUCEF等の核燃料施設において重要である。NUCEFでのTRU廃棄物管理は、溶媒や酸等の試薬のリサイクル使用、TRU元素の回収及び再利用を最大限に行うことを中心としている。

NUCEFのTRU廃棄物のうち、TRU元素を含む液体廃棄物（以下、TRU液体廃棄物）は後述するように濃縮廃液、廃溶媒、並びに回収水及びグローブボックスからの廃液の3つに大きく分けられる。このうち、特に回収水は、核燃料調製設備の酸回収設備から発生する。この廃液のTRU濃度は低いが、臨界実験のため核燃料調製設備においてプルトニウムの使用を開始すると比較的大量に発生するため、プルトニウムを使用する以前に処理設備を整備することが必要である。

NUCEF計画の当初からこのような処理設備の必要性は予見されており、アルファ前処理設備として位置づけられてきた。本報で述べるアルファ廃液処理設備は、このアルファ前処理設備が具体化されたものである。本設備は、回収水を処理し、海水中に放出できる程度の非常に低いレベルの放射能濃度にまで除染する目的で設計するものであり、限外ろ過工程、吸着工程、蒸発工程及び逆浸透工程から構成される。この処理設備は、比較的TRU元素等の濃度の低いグローブボックスからの廃液等の処理にも用いられる。

本報は、平成6年度に行ったアルファ廃液処理設備の基本設計について、プロセス設計を中心にして述べたものである。まず、NUCEFで発生するTRU液体廃棄物の分類を行い、この処理設備の必要性を明らかにする。次にプロセスの基本設計について述べる。最後にアルファ廃液処理設備に関連する今後必要な技術開発項目について述べる。

2. NUCEF で発生する TRU 廃棄物と管理

2.1 NUCEF で発生する TRU 廃棄物

NUCEF における研究は、次の 3 つに大きく分けられる：1) 臨界安全性に関する研究、2) 群分離、基礎化学を含む高度化再処理研究及び 3) TRU 廃棄物管理の研究。これらの研究の内容については詳細な記述がなされている¹⁾。

2.1.1 α 固体廃棄物

TRU 核種で汚染されたフィルタ、グローブ、紙等の固体廃棄物は、すべての研究活動から発生する。 α 固体廃棄物は、包装され遠隔操作により缶に封入された後、NUCEF の α 固体廃棄物保管室に貯蔵される。この保管室は 1,500 本のドラム缶(0.2 m³)を収容できる。

2.1.2 TRU 液体廃棄物

(1) 臨界安全性に関する研究で発生する TRU 液体廃棄物

臨界安全性に関する研究では、STACY（定常臨界実験装置）及び TRACY（過渡臨界実験装置）の 2 つの臨界実験装置が用いられる。これらの実験装置では、核燃料物質の硝酸溶液が用いられる。特に、STACY ではウラン及びプルトニウムの硝酸溶液が用いられる。臨界実験で用いられる核燃料物質は、PUREX プロセスによる再処理に類似した機能を有する核燃料調製設備で処理され、繰り返し使用される。核燃料調製設備の概略を Fig. 2.1 に示す。

STACY で用いられるプルトニウム硝酸溶液は、未照射の MOX 燃料を溶解し、プルトニウムをウランから分離し、精製した後、酸濃度やプルトニウム濃度を調整することにより準備される。Fig. 2.1 に示すように核燃料調整設備は、使用する硝酸の回収及び抽出溶媒 (TBP) の再生のための設備を有し、これらの試薬はリサイクル使用される。

酸回収設備は、主として蒸発缶及び精留塔からなる。調整設備の濃縮缶からの凝縮液及び分離精製プロセスの抽残液は、この蒸発缶で濃縮される。蒸発缶の凝縮分は、さらに精留塔へ導かれ、硝酸が回収される。一方、分離精製プロセスで用いられた抽出溶媒は炭酸ナトリウム（あるいはヒドrazin）を用いてミキサセトラにより再生される。同プロセスからの希釈剤 (n-ドデカン) は、シリカゲルにより洗浄される。溶媒再生設備で発生する廃液のうち水相のものは酸回収設備でさらに処理される。これら 2 つの設備から、4 種類の TRU 液体廃棄物（アメリシウム廃液、濃縮廃液、回収水、有機廃液）が発生する。

アメリシウム廃液及び濃縮廃液は、酸回収設備の蒸発缶の濃縮分である。これらの廃液に含まれる主な TRU 核種は、MOX 燃料中のプルトニウムの崩壊により生成するアメリシウム-241 であり、廃液に含まれるアメリシウムの濃度が 37 GBq/l を超える場合にアメリシウム廃液として分類される。この分類は将来廃液の処分を考えた場合に、アメリシウムに対して特別な処理を行う必要があると予見されたこと、さらにアメリシウムを回収し NUCEF における各研究活動において有効利用することが予見されたことによる。

供給される MOX 燃料中に初期に含まれるアメリシウムの量は最大 3kg 程度であり、分離精製プロセスで分離されアメリシウム廃液として貯槽に蓄えられる。

Table 2.1 のうち、回収水は、酸回収設備の精留塔からの凝縮水の一部である。廃溶媒及び廃希釈剤は、溶媒回収設備から有機廃液として発生する。

(2) その他の研究活動から発生する TRU 液体廃棄物

再処理及び TRU 廃棄物管理に関する研究は、ホットセル及びグローブボックスにおいて、多種の核燃料物質及び放射性同位元素を用いて行われる。ネプツニウム、プルトニウム及びアメリシウムがここで使用される主な TRU 元素である。さらに、 $\alpha\gamma$ セルでは、最大 45,000 MWD/t の使用済燃料を年間 3kg 使用する。Table 2.1 にこれらの研究活動により発生する TRU 廃棄物を示す。

グローブボックスで行われる TRU を用いた実験より、 α 廃液及び有機廃液が発生する。 α 廃液のうち、プルトニウム濃度が 0.05mg/l を超えるもの及び有機廃液は、グローブボックス内で固化され、 α 固体廃棄物として NUCEF に保管される。

$\alpha\gamma$ セルでの実験は、PUREX プロセスの高度化に関するもので、実験からは高レベル廃液が発生するが、この廃液は同じセル中で実施される群分離研究で有効に使用される。他の廃液のうち、水性のものはセル内で処理され、NUCEF 外の東海研究所放射性廃棄物処理場で処理される。一方、セルで発生する有機廃液は NUCEF の廃液貯槽に蓄えられる。

分析作業は、主に核燃料調製設備の工程管理のため行われ、TRU 液体廃棄物がやはり発生するが、その発生量は小さく固化処理される。また、ウラン及びプルトニウムの濃度測定のためのハイブリッド K 吸収端/XRF 濃度計の導入により、分析廃液の発生量を著しく抑えることが可能になる。

(3) TRU 液体廃棄物の分類

以上から、NUCEF から発生する TRU 廃棄物のうち、液体廃棄物として発生するものは、以下のものであり、その放射能濃度、性状等から、Table 2.2 で示すように、Type I から III に分類される。

- ・ アメリシウム廃液（核燃料調製設備の酸回収設備から発生、Am>37 GBq/l）
- ・ 濃縮廃液（核燃料調製設備の酸回収設備から発生）
- ・ 有機廃液（核燃料調製設備の溶媒回収設備から発生）
- ・ 有機廃液（セルから発生）
- ・ α 廃液（プルトニウム濃度が 0.05mgPu/l より低いもの）
- ・ 回収水（核燃料調製設備の酸回収設備から発生）

2.2 NUCEF で発生する TRU 液体廃棄物の管理

Table 2.2 で示した Type I から III の廃液の管理の将来構想については既に詳細に述べている²⁾。その概要を Table 2.3 に示す。

Type I の廃液は、アメリシウム廃液及び濃縮廃液であり、放射能濃度が高く、しかも硝酸濃度が高い。この廃液に対しては、アメリシウム分離及び安定化の技術開発を行い、アメリシウムの回収及び再利用が考えられている。Type II の廃液は、廃溶媒等の有機廃液である。この廃液に対しては、液中燃焼法等の廃溶媒処理法の適用が考えられている²⁾。

Table 2.2 で示したように、Type I 及び II の 2 つの廃液は、高い放射能濃度を有するが、発生量は比較的小さい。これに比べ、Type III に分類される廃液、すなわち、回収水及び α 廃液は、放射能濃度は低いが、発生量が大きい。特に回収水は、年間約 28 m^3 の発生量が見込まれている。

回収水には Table 2.2 で示したように最大で $3,000 \text{ Bq/l}$ 程度の α 放射能濃度が含まれるため、そのまま液体廃棄物として東海研究所の放射性廃棄物処理場へ引き渡すことはできない。しかし、年間約 28 m^3 発生する廃液を貯留できる槽を NUCEF の施設内には設置できないため、Table 2.3 に示したように、廃液の体積を減少させ含まれる TRU 核種を分離する機能をもつ処理設備を整備することが必要になる。また、この廃液は NUCEF において、プルトニウムの使用を開始すれば必ず発生するため、他の 2 つの廃液が発生量が小さくある程度の期間 NUCEF に安全に保管できるのに比べて処理を行う緊急性が最も高い。この観点から、回収水の処理を主たる目的とするため、減容処理と TRU 分離の機能を有するアルファ廃液処理設備が必要である。さらに、Type III に分類されるもう 1 つの廃液であるグローブボックスからの α 廃液の処理も可能な設備とする必要がある。

3. アルファ廃液処理設備のプロセス設計

3.1 プロセス選定の前提条件

3.1.1 処理対象廃液

2章で述べたように、アルファ廃液処理設備はType IIIの廃液（核燃料調製設備より発生する回収水及びグローブボックスで発生する α 廃液）を処理する設備である。このほか、分析廃液で α 放射能を含むもの並びに実験棟A及びBのサンプピット(1)及び(2)からの廃液で α 放射能を含むものも処理対象とする。これは、1章で述べたようにNUCEF計画当初においてアルファ前処理設備がType IIIの廃液以外の低濃度の α 放射能を有する廃液も処理対象としていた経緯による。これらの廃液はType IIIと同等かそれ以下の濃度の α 放射能を有する。

対象廃液のうち、定常に発生する廃液は回収水であり、グローブボックスからの α 廃液は定常に発生しない。分析廃液は2章で述べたように固化を中心とした処理がなされるが、低濃度の α 放射能を含む廃液は不定期に発生する。また、サンプピットからの α 廃液は本来発生するものではないが、発生した場合は本処理設備で処理される。このように、対象廃液の性状を一義的に決め難く、基本的に α 放射能濃度が低いこと、混入する成分は多種多様であり、放射性／非放射性イオンとともに微量のスラッジ等の固形成分も考えられる。

3.1.2 設定処理液及び必要除染係数

(1) 処理液の設定

Table 3.1で示した廃液の放射能濃度、発生量及び性状等から、廃液を定常に発生し性状も比較的安定している回収水とその他の廃液（雑廃水）との2つのグループに分けて処理を行うことが合理的である。このため、発生量、性状及び放射能濃度を設定しプロセス設計の前提条件とした。Table 3.2にこれを示す。

(2) 排出基準の設定

本廃液処理設備からの処理液は、放出できる放射能濃度まで除染されるものとする。このため、以下の排出基準を設定した。

処理済廃液： $\alpha: 1.0 \times 10^{-1} \text{ Bq/l}$, $\beta\gamma: 1.0 \text{ Bq/l}$

また、廃液処理を行うことで発生する濃縮された α 廃液に対する排出基準を、アルファ廃液処理設備の設置場所のしゃへい能力から以下のように設定した。

濃縮液： $\beta\gamma: 3.7 \times 10^6 \text{ Bq/l}$

(3) 必要除染係数

(1) 及び(2)から、本廃液処理設備に要求される除染係数は、それぞれの受入廃液に対して、Table 3.3 のようになる。

3.1.3 廃液に含まれる元素

回収水及び雑廃水は発生源が異なるため、含有する放射性同位元素は互いに異なる。回収水に含まれる元素は、微量のウラン、プルトニウムの他、アメリシウムが挙げられる。一方、グローブボックスでは同様の核燃料物質の他、分析、中和、洗浄等に伴って、Na、K、Ca、Fe、Ag 等の陽イオン及び NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、Cl 等の陰イオン基が含まれる。また、Table 3.4 に示すような放射性同位元素が実験で用いられるため、雑廃水にはこれらの元素が低濃度で存在しうる。したがって、プロセス設計の際には、これらの元素についても配慮する必要がある。

3.1.4 原子炉施設設置変更許可上の制約条件

アルファ廃液処理設備は、1章で述べたようにアルファ前処理設備が具体化したものである。NUCEF の原子炉施設の設置変更許可申請時に、この廃液処理設備は、Fig. 3.1 で示すように蒸発装置を中心に構成され、蒸発濃縮処理で発生する濃縮廃液については、濃縮廃液貯槽に保管するものとされた。したがって、アルファ廃液処理設備のプロセスの検討においては、蒸発濃縮工程を中心に採用し、しかも濃縮廃液が濃縮廃液貯槽に導入されることが求められる。

蒸発濃縮による除染は、液体廃棄物の処理に多く用いられており、多段蒸発により $10^6 \sim 10^7$ も達成可能である^③が、一段の濃縮操作では、通常、 10^4 程度の除染係数に留まる^④。したがって、蒸発濃縮 1 段による除染のみで Table 3.3 に示した除染係数を達成することは困難であるのは明らかであり、凝縮水を再度蒸発処理するか、何らかの補完プロセスが必要となる。また、回収水は比較的性状が安定しており含まれる放射性同位元素も限られているのに対し、雑廃水のように様々な放射性同位元素を含み、性状に幅のある廃液も処理できるプロセスを設計する必要がある。

3.1.5 設置場所

本処理設備の設置場所は、Fig. 3.2 及び 3.3 に示す実験棟 B 地下 1 階の廃液処理室(II)、廃液処理室(III)-1 及び(III)-2、並びに実験棟 B 1 階の廃液処理室(V)及び(VI)である。このうち、廃液処理室(III)-1 は、3.1.4 を受けて建家設計時から、蒸発缶の設置を考慮して地下 1 階から地上 1 階までの吹き抜け構造となっている。

設置場所の総床面積は、 280 m^2 程度であり、蒸発濃縮のみによる除染を行うならば十分な広さといえるが、蒸発缶以外の除染装置も設置するため、十分に広いとは言えない。したがって、プロセス設計の段階で、できるだけ床面積をとらず、主要機器をすべてグローブボックスに収納できるようなコンパクトで必要な除染の行えるものとする必要がある。

3.2 アルファ廃液処理設備に適用する処理技術の検討

3.2.1 基本的考え方

蒸発濃縮をアルファ廃液処理設備のプロセスの中心とする場合、既に述べたように、蒸発濃縮1段では要求される除染係数を実現できない。しかし、3.1.2項で設定した除染係数は、グローブボックス廃液、分析廃液等の性状には相当の巾があることを考慮し、保守的に決めたものである。現実の廃液中の核種濃度はより低い可能性が十分に考えられる。そこで、必要があれば凝縮水を再度蒸発処理を行なうとする原則的な考え方のもとに、これを補完する簡便な除染プロセスについて検討する。一方、雑廃水にも対応できる処理設備とすることが前提であることから、蒸発操作の前処理もあわせて考慮する。

3.2.2 補完プロセスの考え方

廃液処理技術には、多くの技術が研究開発されている。Fig. 3.4 は、主な処理法をまとめたものである。ここでは、蒸発濃縮の前段または後段に適用できる簡便な補完プロセスを中心に検討する。

(1)イオン交換法

イオン交換法には、有機イオン交換体あるいは無機イオン交換体を用いイオン状で存在する核種を樹脂等に吸着させて廃液から除去する方法がある。この方法は、廃液中のウランや TRU 元素の除去に用いられている。有機イオン交換体は、硝酸溶液中のプルトニウムとアメリシウムの分離に用いられた実績がある。これは、硝酸が 6M 以上であれば、プルトニウムはほとんど陰イオン交換樹脂に吸着されることを利用したもので、プルトニウム除去後アメリシウムは陽イオン交換樹脂にて回収された⁵⁾。イオン交換樹脂によるプルトニウムの除去については、いくつかのイオン交換樹脂を用いてその性能が評価されている⁶⁾。

無機イオン交換体については、Ryan によりまとめられている⁷⁾。さらに、Harwell では、水酸化チタン、二酸化マンガン、リン酸チタン、リン酸ジルコニウム、ポリアンチモン酸等の多様な無機イオン交換体についてネプツニウム、プルトニウム、アメリシウム及び照射燃料溶解液に対する性能評価が行われた⁸⁾。また、アンチモン酸チタン及びアンチモン酸スズのプルトニウムとアメリシウムに対する吸着性能が評価されている⁹⁾。さらに、Synrock 等の TRU 核種のセラミック固化処理を目的とした無機交換体の開発も行われている¹⁰⁾。その他、ゼオライトはセシウムやストロンチウムの除去に用いられている¹¹⁾。物理吸着により分離が行われるものとしては、活性炭によるテクネチウムやルテニウムの除去があげられる¹¹⁾。

樹脂にキレート生成機能を持たせたキレートイオン交換樹脂では、次亜リン酸基(phosphinic acid)を付加した樹脂¹²⁾や Horwitz らによる DIPHONIX¹³⁾が開発された。

(2) 吸着法

柿しづから得られたタンニン酸を不溶化処理した Tannix が開発され、廃液からのウランの除

去に用いられており¹⁴⁾、TRU 元素の除去への適用も可能であることが報告されている¹⁵⁾。この交換体は、炭素、水素、酸素のみから構成されているため、乾燥後焼却処理が可能である。また、焼却処理が可能なものとしては、最近 Mimori ら¹⁶⁾により炭素繊維により構成される吸着剤が示され、プルトニウムを含む廃液の処理を目的とした研究が行われている。

ロスアラモス国立研究所では 63 種類の吸着剤（抽出クロマトグラフィーも含む）を用い、3 種類の模擬廃液に対する吸着試験の結果が報告されている¹⁷⁾。

(3) 沈殿法

沈殿法は、古くから行われている方法で、廃液に凝集剤を加え、イオンや分子状の放射性核種を凝集粒子とともに沈殿させて除去する方法で、大量の廃液を処理することが可能である。目的物質の濃度が比較的高い場合には、適当な試薬を加え、又は単に pH を変化させて不溶性の沈殿としてろ過する。濃度が低い場合には化学的に同族の元素を添加することで、共沈除去する²⁷⁾。

沈殿法による廃液処理は、その廃液の性状から最適な凝集剤を選択する必要があるため、様々な試薬が選択され、処理に用いられている。沈殿法による放射性廃液処理については、Carley-Macaulay ら⁴⁾によりまとめられている。水酸化チタンや硫化コバルトによる β γ 核種の分離を含むマルクールやラアーグの再処理施設で行われた廃液処理、リン酸塩及び水酸化鉄の沈殿を利用した Harwell 研究所における処理、水酸化アルミニウムと水酸化鉄を用いたセラフィールドの再処理施設における処理等がある。さらに Rockey Flats Plant では、水酸化鉄による沈殿において鉄(III)を部分還元しマグネタイト化し、これを磁気によって分離する方法が開発された。この方法により発生する固体廃棄物の量が軽減された。

(4) 膜分離法

膜分離法には、限外ろ過と逆浸透によるものがある。これらは比較的新しい技術で一般産業でも盛んに利用されており、原子力施設においても 1970 年代から検討が行われ、実際に使用されている例が多い¹⁸⁾。これらの方法は、精密ろ過の部類に入り、限外ろ過はコロイド粒子（1nm～1μm）、逆浸透はイオンや 1nm 以下の粒子の分離に使用される。原子力発電プラントの廃液処理や、再処理施設の廃液処理の例があるが、使用する膜は主として有機物であるため、高レベル廃液のような高線量で膜の劣化が問題となるような箇所には使用されず、中低レベルの廃液処理に用いられる。無機物を用いた限外ろ過システムは Harwell による報告がある⁴⁾。

3.2.3 分離技術の選択

蒸発濃縮法と組み合わせてアルファ廃液処理設備を構築するために、前項で示した分離技術から適した技術を選択する必要がある。このため、各技術の除染性能、操作性、保守性及び発生する廃棄物の発生量や廃棄物の処理に関する検討を加えた。

(1) 除染性能

まずイオン交換法においては、有機イオン交換体を用いる場合 100 度程の除染係数が示されて

いる。一方、無機イオン交換体の場合、1000程度の除染係数が示されている⁴⁾。キレートイオン交換樹脂では、DIPHONIXの場合、プルトニウムに対し 10^5 ml/g 程度の分配比が、アメリシウムに対しては $100 \sim 10^6 \text{ ml/g}$ の分配比が得られている¹³⁾。しかし、これらは α 核種濃度の高い溶液に対する値であり、回収水のポリッシング程度の微濃度成分を除染する目的での実績はない。

Tannix 吸着剤では、 α 放射能濃度 $10^7 \sim 10^8 \text{ Bq/l}$ である中性領域の硝酸プルトニウム溶液を試験液としたカラム実験で、 $DF = 10^5$ を得た例がある¹⁹⁾。炭素繊維については、Pu 濃度 $1.0 \times 10^{-4} \text{ g/l}$ の再処理プロセス廃液に対し、95%の Pu を取り除くことができたとの報告がある²⁰⁾。

沈殿法では、10～1000程度の除染係数が期待できるが、極微濃度の廃液に対する実績は少ない^{4), 21)}。膜分離法の除染係数は、10～100程度が報告されている⁴⁾。特に逆浸透法ではイオンの濃度やイオンの化学形にもよるが、 $3.7 \times 10^4 \text{ Bq/l}$ 以下の極微濃度条件下においても、10～1000程度の除染係数を期待でき、原子力発電所廃液の処理等において応用されている。

(2)操作性

イオン交換法及び吸着法は、カラムに充填し液を流す形式がとられるため、操作性はほぼ同等である。逆浸透法では、給液操作を除いて静的な操作が主体である。設備の modular 化が可能であり、処理容量、除染係数等に関する拡張性、改良性において弾力的な対応が可能である。沈殿法は、沈殿操作だけでなくろ過操作も必要になるため、カラムに通液する方式の分離法に比べ、操作は複雑になると考えられる。

(3)保守性

イオン交換法、吸着法及び膜分離法はカラムの液を抜き樹脂や膜を交換する方式であり、ほとんど同等である。ただし、イオン交換法では、樹脂の再生操作を伴う場合も考えられる。沈殿法は沈殿剤、共沈剤の添加やスラッジ生成とともにろ過器の保守が重要であり、その頻度は高いと考えられる。逆浸透法では、膜の保持が重要となるが、一般化学工業において確立されている技術であり、高濃度の放射性廃液を扱う場合を除き、保守頻度も低く交換操作も大きな障害とはならない。

(4)発生廃棄物

イオン交換法において溶離操作を行なう場合には、二次廃液が発生する。また、有機性の樹脂では廃樹脂の処理が大きな負担となる。沈殿法は、凝集剤を加え沈殿を生成させ、ろ過により分離する方法であるため、大量の沈殿物が発生する。逆浸透法の大きな特徴の一つは、吸着剤や沈殿剤等の試薬を用いないため2次的な廃棄物を伴わず、かつ廃棄物の濃縮操作を同時に達成できることである。

発生廃棄物の処理について検討すると、イオン交換や吸着、膜分離の場合、2次廃棄物処理が重要な課題である。これらの処理の過程では、固体廃棄物のみならず気体廃棄物や別の2次廃液が発生する場合も考えられる。一方、無機イオン交換体は、目的イオンを吸着させそのまま固化体として廃棄できる可能性があるが、多くの場合固化体となる廃棄物の量は無視できない。不溶

性タンニンからなる吸着剤は、可燃性の廃棄物として処理できる。焼却に伴う気体廃棄物の処理が必要となるが、比較的簡単な操作で2次廃棄物の発生を著しく抑制できる。限外ろ過や逆浸透の膜分離法については、耐久性に優れ燃焼性の良い膜を選定することにより、2次廃棄物の処理は容易になると考えられる。

(5) まとめ

以上の評価結果をまとめたものをTable 3.5に示す。なお、表中に示す評価はあくまで相対的なものである。

Table 3.5から、以下の分離法が蒸発濃縮法と組み合わせて適用する分離法の候補として挙げられる。

Table 3.2で示したように、アルファ廃液処理設備の処理対象廃液は、回収水及び雑廃水である。これらは、既に述べたように硝酸濃度は0.02M以下またはpH領域である。したがって、分離のために脱硝操作などの特別な処理を行う必要はない。3.1.3で述べたように回収水に含まれる主な元素は、ウラン、プルトニウム及びアメリシウムである。一方、雑廃水にはTable 3.4で示したような様々な元素が存在し、性状や含まれる元素がバッチごとに異なる可能性がある。このような多様な成分に対し、共通的に高い分離性能を有する化学的分離操作を選択することは、一般的に困難である。一義的には、物理的な分離操作である蒸発濃縮を基本にこれを補完する限外ろ過、逆浸透などの物理的手法の適用を考えられる。吸着法などの半物理的な手法も有用であろう。さらに、雑廃液中に特殊な成分、たとえば蒸発操作において揮発性の成分が存在する場合や、TRU等、他に比較して特に高濃度の成分が存在する場合については、これに適した化学分離を検討する必要があろう。

無機イオン交換体には、既に述べたようにTRU元素に対するリン酸ジルコニウムを始めとする吸着剤、セシウムやストロンチウムに対するゼオライトがある。また、ルテニウムやテクネチウムの分離には活性炭が有効である。ウランやTRU元素の分離には不溶性タンニンが利用できる。このうち、比較的安価で入手が容易なものは、ゼオライト、不溶性タンニン及び活性炭である。ただし、イオンのみを吸着する吸着剤による分離法の場合は、コロイド粒子等が存在すると分離性能が低下するため、限外ろ過による分離を予め行っておく必要がある。

さらに、蒸発濃縮においては、蒸発缶において高温で濃縮された硝酸が存在するため、この工程に有機物が混入すると爆発の危険性がある。したがって、蒸発濃縮操作を行なう前の段階で有機物を吸着剤等を用いて除去する必要がある。また、蒸発缶からの凝縮液はかなり除染されているものの、目的の放射能濃度にするためには、さらにイオンの除去を行う必要がある。したがって、蒸発濃縮工程の凝縮液に対して、逆浸透法を用いた最終的なイオンの分離を行う。

3.3 プロセスの決定

3.3.1 プロセスの決定

(1) 各基本工程の順序

前項において選定された分離技術は、吸着法（無機イオン交換体、不溶性タンニン、キレートイオン交換体）と膜分離法（限外ろ過及び逆浸透法）に分類されるが、工程としては吸着操作をシリーズで行なう吸着工程、限外ろ過工程及び逆浸透工程に分類される。したがって、本設備の工程は、以下の組み合わせとなる。

- ・蒸発工程
- ・吸着工程
- ・限外ろ過工程
- ・逆浸透工程

これらのうち、限外ろ過工程ではコロイド粒子以上の粒径を持った核種を対象としたものである。したがって設備全体として必要とされる除染係数 $10^7 \sim 10^8$ を得るために主要な工程は、蒸発工程と吸着工程とし、残りの 2 つは補助的な位置づけとするのが適当であると考えられる。蒸発工程と吸着工程の順序については、吸着工程は処理液中の元素濃度が高い方が除染係数が高くなる傾向があること及び蒸発工程は原理上処理液濃度が希薄となつても除染係数の低下への影響が吸着法に比べて小さいことから、蒸発工程の前段に吸着工程をつなぐ順序が適当であると考えられる。

限外ろ過工程は、微粒子の固形分やコロイド粒子の除去を目的とすることから、廃液受入後に行なう可能性のある pH 調整により発生する沈殿物の除去等のため、最前段に置くことが必要である。一方、逆浸透工程は、廃液中の塩濃度が分離に影響することが知られていること、また濃縮液の蓄積を防ぐ観点から、蒸発工程の後ろにすることとした。

(2) 各基本工程毎に期待される除染係数

前述の通り、本設備全体として確保しなければならない除染係数は $10^7 \sim 10^8$ である。本設備のケミカルフローシートを Fig. 3.6 に示した。各基本工程毎の除染係数は、保守的に考えて次のように設定した。まず、中心となる蒸発工程では、除染係数は蒸発缶の設計及び運転方法に依存するが、一般的な除染係数は 10^4 程度⁴⁾ であることから、蒸発操作を 2 回行なつて蒸発工程にて 10^5 程度の除染係数を得られるようにした。また、限外ろ過工程は、コロイド及び沈殿等の粒子状のものを取り除くことが目的であること、逆浸透工程では一般的に 90~95 % 程度のイオンを取り除くことができるが除染係数に直すとかたか 10 程度である場合があることから、保守的に考えてこれらの工程では廃液の除染係数に対する寄与はないものとした。吸着工程では、適切

な吸着剤等を用いることで廃液中の主要な放射性核種を取り除き、 10^3 程度の除染係数を得るものとした。

受け入れる廃液によっては、それほどの除染係数を必要としない場合もあるが、その場合には 2 次廃棄物を低減化させる観点から、吸着工程をバイパスさせる運転を行なう。

(3) 吸着工程で使用する吸着剤等

吸着工程で使用する吸着剤の候補としては、3.2.2 項で述べたとおり無機イオン交換体、不溶性タンニン及びキレートイオン交換体がある。受け入れる廃液は Table 3.1 と 3.1.3 項に示したとおりの組成であり、これらに含まれる主要な放射性核種を吸着するために適切な吸着剤を選定する必要がある。以下に、回収水とそれ以外の雑廃水について述べる。

・回収水

純水ベースで、含まれる放射性核種は、ウラン、プルトニウム、アメリシウム及び微量の FP である。また、硝酸系廃液を酸回収設備において蒸発処理し精留塔を通過させた硝酸濃度の薄い留分であるので、希薄な硝酸水溶液 (<0.02 M) である。したがって、水酸化ナトリウムによって pH 領域に調整し、不溶性タンニンを用いることによって、これらのアクチノイド核種を吸着させることができる。また、Table 3.1 に示した放射能濃度は最大値であり、通常はより低い値であると考えられるため、吸着剤を使用する必要がない場合には pH 調整を行なわず、直接、蒸発工程に供給する。

・回収水以外の雑廃水

3.1.1 項で述べたように、雑廃水は様々な実験等から発生するため組成は一定しない。しかし、実験内容等から考えられる主要な放射性核種は下記の通りである。

α 核種 : U、Th、Pu、Np、Am、Cm

$\beta \gamma$ 核種 : Cs、Sr

これらを、吸着処理するため、pH 調整した後、ゼオライトと不溶性タンニンにシリーズに通すことによって吸着させる。上記以外の核種が入ってきた場合には、適切な吸着法を検討した上で、予備カラムを使用して吸着させる。

3.3.2 運転方法

本設備は、前述の Type III 廃液を処理対象として、以下の処理能力を有することを基本条件としている。

- ① 年間発生量 30 m^3 の廃液を処理できる能力を有すること。
- ② 前述の通り、処理済廃液の放射能濃度は、 $\alpha : 1 \times 10^{-1} \text{ Bq/l}$ 、 $\beta \gamma : 1 \text{ Bq/l}$ 以下にできること。
- ③ 濃縮廃液の発生量は、年間 0.6 m^3 以下にできること。

上記要件を満たすため、本設備は蒸発処理工程を中心として、1) 限外ろ過、2) 吸着工程、2) 蒸発工程、3) 逆浸透工程の 4 つの工程で構成し、5 日／週、1 バッチ (1 m^3) / 週で、年間 30 週の運転で対応することにしている。プロセスフローダイヤグラムを Fig.3.7 に示した。以下、各

工程の運転方法の概略について述べる。

(1) 限外ろ過工程及び吸着工程

前処理工程に、酸回収設備から排出される回収水、各実験設備のグローブボックス及びサンプルピット等から排出される雑排水を受け入れる。回収水については廃液の性状が安定していると考えられるので、回収水調整槽に受け入れた後、放射能濃度が十分低い場合は、処理することなく限外ろ過工程及び吸着工程をバイパスして蒸発工程に払い出す。そうでない場合には、雑廃水と同様の処理を行なう。回収水以外の雑廃水については、廃液の性状範囲 (TRU/FP 濃度、pH、不純物等) が広いと考えられるので、雑廃水中間槽または雑廃水受槽に受け入れ、その性状に応じて pH 調整後、限外ろ過処理及び第一、第二吸着処理を行なう。

限外ろ過処理では、限外ろ過カラムを用いて、コロイド等の不純物を除去する。また、第一、第二吸着処理では、吸着剤としてゼオライト及びタンニン等を用いて、FP 及び TRU 核種を除去する。なお、本工程はさらに 2 基の予備カラムを設置しており、上記以外の吸着剤を用いて選択的に核種を除去する操作も可能である。

(2) 蒸発工程

蒸発処理工程では、廃液を蒸発缶供給槽に受け入れた後、蒸発缶を用いて減容濃縮（第一蒸発処理）し、濃縮液を 2 章で分類した Type I の濃縮廃液として施設内に貯蔵する。また、凝縮液は放射能濃度に応じて、再濃縮（第二蒸発処理）するか次工程の逆浸透循環槽に払い出す。

(3) 逆浸透工程

蒸発処理工程から払い出された凝縮液は、逆浸透循環槽に受け入れる。この凝縮液は、極低レベル廃液として施設外に払い出すのに十分低い放射能濃度になっている場合が多いと考えられるが、さらに放射能濃度を下げるため、逆浸透カラムによる残存イオンの除去を行なう。

逆浸透処理後の廃液は、チェック槽において放射能濃度及び pH を測定し、必要に応じて中和処理を行ない、NUCEF 内の β 廃液処理設備への払出基準濃度以下であることを確認した後、極低レベル廃液貯槽へ払い出こととしている。

4.おわりに

NUCEF では TRU 元素を用いた実験を行なうため、様々な TRU 廃棄物が発生する。これらの廃棄物をどのように管理・処理していくかが、NUCEF の今後の効率的な利用と成果をあげるための鍵であるといえる。本報では、まず、NUCEF で発生する TRU 廃棄物の中で特に液体廃棄物を整理し、回収水の処理の緊急性を明らかにした。さらに、この処理を行なうためのアルファ廃液処理設備の基本設計について述べた。本設備は、蒸発缶による蒸発処理を中心として、吸着カラム、限外ろ過法及び逆浸透法を組み合わせた構成とし、設備全体で除染係数 10^8 を達成できるものとした。また、本設備は NUCCEF の臨界実験装置及びその核燃料調製設備においてプルトニウムの取り扱いを始めると必要となるものであり、NUCEF の設置変更許可申請書でもその設置について記述されている。

アルファ廃液処理設備における廃液除染の鍵となっているのは、蒸発缶と吸着カラムである。ここで、プルトニウム及びアメリシウム等のアクチノイド元素を吸着させる吸着カラムで用いる吸着剤として不溶性タンニンを用いる計画である。この吸着剤は、C、H、O しか含まず、焼却すると吸着した元素の酸化物しか残らないという非常に優れた減容性を持っており、2 次廃棄物の発生低減化に大きく寄与するものであるが、pH 領域におけるプルトニウム、アメリシウム、キュリウム及びネプツニウムについてのバッチ法による吸着データはあるものの必ずしも十分でなく、それ以外の条件における吸着特性はわかっていない。特に、これらの元素の希薄な硝酸濃度条件下での吸着が可能であれば、pH 調整の必要がなくなり 2 次廃棄物をさらに少なくすることが可能となる。また、不溶性タンニンに限らず、吸着カラムに適切な吸着剤を用いることによって、含まれる核種を選択的に分離し、再利用を図ることも考えられる。今後、これらの特性データを取得するための実験を行ない、本設備の効率的な運転を目指したい。一方、現在、NUCEF では、2 章で分類した Type I の TRU 廃液を処理するための研究計画があり、廃液の条件が違うものの、上記の実験で得られたデータは、TRU 分離の基礎的なデータとしてこの研究においても有用なものとなると期待できる。

廃液処理では、その廃液の性状によって適切な手法を取らなければならない。本報では、上流側の設備の設計時の物質収支と設備間の受け渡し条件から廃液の組成を設定したが、今後、詳細な運転条件等を検討するには、受け渡しの上限値ではなく実際の廃液組成がどの程度になるかが問題となる。今後、上流側設備の担当者と協力し、現在の運転実績等からより現実的な廃液組成を評価していく予定である。

謝　　辞

本報を取りまとめるにあたり、NUCEF 試験室長である前田充氏には、貴重なコメントと激励を頂きました。深く感謝いたします。

4.おわりに

NUCEF では TRU 元素を用いた実験を行なうため、様々な TRU 廃棄物が発生する。これらの廃棄物をどのように管理・処理していくかが、NUCEF の今後の効率的な利用と成果をあげるための鍵であるといえる。本報では、まず、NUCEF で発生する TRU 廃棄物の中で特に液体廃棄物を整理し、回収水の処理の緊急性を明らかにした。さらに、この処理を行なうためのアルファ廃液処理設備の基本設計について述べた。本設備は、蒸発缶による蒸発処理を中心として、吸着カラム、限外ろ過法及び逆浸透法を組み合わせた構成とし、設備全体で除染係数 10^8 を達成できるものとした。また、本設備は NUCCEF の臨界実験装置及びその核燃料調製設備においてプルトニウムの取り扱いを始めると必要となるものであり、NUCEF の設置変更許可申請書でもその設置について記述されている。

アルファ廃液処理設備における廃液除染の鍵となっているのは、蒸発缶と吸着カラムである。ここで、プルトニウム及びアメリシウム等のアクチノイド元素を吸着させる吸着カラムで用いる吸着剤として不溶性タンニンを用いる計画である。この吸着剤は、C、H、O しか含まず、焼却すると吸着した元素の酸化物しか残らないという非常に優れた減容性を持っており、2 次廃棄物の発生低減化に大きく寄与するものであるが、pH 領域におけるプルトニウム、アメリシウム、キュリウム及びネプツニウムについてのバッチ法による吸着データはあるものの必ずしも十分でなく、それ以外の条件における吸着特性はわかっていない。特に、これらの元素の希薄な硝酸濃度条件下での吸着が可能であれば、pH 調整の必要がなくなり 2 次廃棄物をさらに少なくすることが可能となる。また、不溶性タンニンに限らず、吸着カラムに適切な吸着剤を用いることによって、含まれる核種を選択的に分離し、再利用を図ることも考えられる。今後、これらの特性データを取得するための実験を行ない、本設備の効率的な運転を目指したい。一方、現在、NUCEF では、2 章で分類した Type I の TRU 廃液を処理するための研究計画があり、廃液の条件が違うものの、上記の実験で得られたデータは、TRU 分離の基礎的なデータとしてこの研究においても有用なものとなると期待できる。

廃液処理では、その廃液の性状によって適切な手法を取らなければならない。本報では、上流側の設備の設計時の物質収支と設備間の受け渡し条件から廃液の組成を設定したが、今後、詳細な運転条件等を検討するには、受け渡しの上限値ではなく実際の廃液組成がどの程度になるかが問題となる。今後、上流側設備の担当者と協力し、現在の運転実績等からより現実的な廃液組成を評価していく予定である。

謝　　辞

本報を取りまとめるにあたり、NUCEF 試験室長である前田充氏には、貴重なコメントと激励を頂きました。深く感謝いたします。

引用文献

- 1) Tonoike, K., Mineo, H., Takeshita, I., and Tsujino, T., : "NUCEF Project and its Contribution to Emerging Fuel Cycle Back-end," Proc. the International Conference and Technology Exposition on Future Nuclear Systems: Emerging Fuel Cycles and Waste Disposal Options (GLOBAL'93), Seattle, USA, September 12-17, 1993, Vol. 1, p.555(1993).
- 2) Mineo, H., Matsumura T., Takeshita, I., Nishizawa, I., and Sugikawa, S., and Tsujino, T., "Development of an Integrated TRU Waste Management System for a Large Research Facility: NUCEF", to be published in Nuclear. Technol., 117(1997)
- 3) Vigreux, B.; Meline, F.;: "Concentration by Evaporation of Low and Medium Activity Radioactive Effluents", Radioactive Waste Management Decommissioning Spent Fuel Storage. V. 2. Waste Processing and Conditioning, 26-55(1985).
- 4) Cauley-Macauly, K.W., Gutman, R.G., Hooper, E.W., Logsdail, D.H., Rees, J.H., Simpson, M.P., Smyth, M.J., and Turner, A.D., : AERE-R 11304, "Options for the Decontamination of Alpha-Bearing Liquid Wastes", (1984).
- 5) Wheelwright, E.J.,: PNL-SA-7844, "Kilogram-scale Purification of Americium by Ion Exchange", (1979).
- 6) Ryan, J.L., and Wheelwright, E.J.,: "Recovery and Purification of Plutonium by Anion Exchange", Ind. Eng. Chem., 51(1), 60-65(1959).
- 7) Ryan, J.L.,: "Ion Exchange Reactions", Chapter 7 of Transuranium, Gmelin Handbokk of Inorganic Chemistry, vol. 21, part D21, 343-437 (1974).
- 8) Hooper, E.W.,: "The Application of Inorganic Ion Exchangers to the Treatment of Alpha-bearing Waste Streams", Inorganic Ion Exchangers and Adsorbers for Chemical Processing in the Nuclear Fuel Cycle, IAEA-TECDOC-337, 113-132 (1985).
- 9) Kaneko, H., Tsuji, M., Abe., M., Morita, Y., and Kubota, M.,: "Selective Exchange of Pu^{4+} and Am^{3+} by Titanium and Tin Anitimonates Cation Exchangers," J. Nucl. Sci. Technol., 29(10), 988-995(1992).
- 10) Crispino, E., Gerontopoulos, P., Arcangeli, G., Forno, M., and Muller, E.,: "Application of Inorganic Ion Exchangers Prepared by Gel Supported Precipitation to Radwaste Ceramics," Radiochimica Acta, 36, 69-74(1984).
- 11) Kubota, M., Yamaguchi, I., Morita, Y., Kondou, Y., Shirahashi, K., Yamagishi, I., and Fujiwara, T.,: "Development of a Partitioning Process for the Management of High-level Waste", Proc. of Int. Conf. on Future Nuclear Systems: Emerging Fuel Cycle and Waste Disposal Options (Global'93), 588-594 (1993).
- 12) Alexandratos, S.D., Quillen, D.R., and McDowell, W.J.,: "Bifunctional Phosphinic Acid Resins for the Complexation of Lanthanides and Actinides", Separation Sci. Technol.,

- 22(2&3), 983-995(1987).
- 13) Horowitz, E.P., Chiarizia, R., Diamond, H., Gatrone, R.C., Alexandratos, S.D., Trochimczuk, A.Q., and Crick, D.W., : "Uptake of Metal Ions by a New Chelating Ion-Exchange Resin. Part 1: Acid Dependencies of Actinide Ions", Solvent Extr. Ion. Exch., 11(5), 943-966 (1993).
 - 14) Kamei, Y., Shirato, W., Morikawa, K., Uchikoshi, T., and Honda, Y.,: "U Containing Waste Water Treatment by Using Insoluble Tannin", Preprint of 1992 Annual Meeting of AESJ, C28 (1992).
 - 15) Kamei, Y., Shirato, W., Morikawa, and Honda, Y.,: "TRU Containing Waste Water Treatent by Using Insoluble Tannin", Preprint of 1992 Annual Meeting of AESJ, C29 (1992).
 - 16) Mimori, T., Miyajima, K., Nakao, T., Masui, H., Mori, T., and Takahashi, H.,: "Study of Plutonium Adsorption by Fibrous Adsorbent", Proc. the Waste Management, Tucson Arizona, Vol. 1 (1994).
 - 17) Marsh, S.F., Svitra, Z.V., and Bowen, S.M., : LA-12654, Rev., "Distributions of 14 Elements on 63 Adsobers from Three Simulant Solutions (Acid-Dissolved Sludge, Acidified Supernate, and Alkaline Supernate) for Hanford HLW Tank 102-SY, 1994.
 - 18) Bond, W.H.,: PRNL-NFW-82-18, "Ultrafiltration/Reverse Osmosis (Liquid Treatment Systems)", 241-282 (1982).
 - 19) 沼田浩二、根本剛、都所昭雄：プルトニウム系廃液処理プロセスの開発、動燃技報、No.94、p.72 (1995)
 - 20) Mimori, T., Miyajima, K., Takahashi, H., Oiwa, M., Okamoto, T., Mori, T. and Iwata, H., "Studies on Plutonium Adsorption by Inorganic Adsorbent", Proc. the Waste Management, Tucson Arizona, Vol.1(1996)
 - 21) 阿見則男、館盛勝一：私信

Table 2.1 NUCEF より発生する予定の TRU 液体廃棄物²⁾

研究項目	発生場所	廃棄物
臨界安全性	酸回収設備	アメリシウム廃液
		濃縮廃液
		回収水
再処理及び廃棄物管理	溶媒再生設備	有機廃液
	グローブボックス	α 廃液($Pu > 0.05 \text{ mg/l}$) — 固化処理
		α 廃液($Pu < 0.05 \text{ mg/l}$)
		有機廃液 — 固化処理
	$\alpha \gamma$ セル	高レベル廃液 — 群分離研究に使用
		有機廃液
		その他廃液 — 処理後 NUCEF 外へ
分析業務	グローブボックス	液体廃棄物 — 固化処理が中心

Table 2.2 NUCEF で発生する TRU 液体廃棄物の分類²⁾

TRU 液体廃棄物	α 放射能濃度 [Bq/l]	発生量 [m^3/y]	分類
アメリシウム廃液	約 1.2×10^{11}	0.3	Type I
濃縮廃液	$< 7.0 \times 10^9$	1.1	
有機廃液 (核燃調)	$< 1.8 \times 10^8$	0.6	Type II
有機廃液 (セル)	$< 1.85 \times 10^8$	< 0.14	
α 廃液	$< 4.1 \times 10^5$	2.0	Type III
回収水	3×10^3	28.0	

Table 2.3 NUCEF で発生する TRU 液体廃棄物の管理と要求される技術開発²⁾

TRU 液体廃棄物	当面の管理手法	将来の管理手法	
		処理	技術
Type I	貯槽に保管	TRU(Am)回収	TRU 分離技術
Type II	貯槽に保管	廃溶媒処理	減容技術及び TRU 分離技術
Type III	アルファ廃液処理設備による処理		減容技術及び TRU 分離技術

Table 3.1 アルファ廃液処理設備の対象廃液及び性状

廃液	放射能レベル	発生量	性状	備考
回収水	$\alpha < 7.4 \times 10^5 \text{ Bq/l}$ $\beta \gamma < 3.7 \times 10^5 \text{ Bq/l}$	500～ 1000 l/パッチ	$\text{HNO}_3 < 0.02\text{M}$	純水ベース 一定的に発生
α 廃液	$\alpha < 4.1 \times 10^5 \text{ Bq/l}$ $\beta \gamma < 1.85 \times 10^6 \text{ Bq/l}$	50 l/パッチ	酸、アルカリ (パッチごとに 変化)	純水ベース
分析廃液	$\alpha < 3.7 \times 10^4 \text{ Bq/l}$ $\beta \gamma < 3.7 \times 10^4 \text{ Bq/l}$	100 l/パッチ	酸、アルカリ (パッチごとに 変化)	α 汚染時のみ (純水ベース)
サンプピット廃液	$\alpha < 3.7 \times 10^4 \text{ Bq/l}$ $\beta \gamma < 3.7 \times 10^4 \text{ Bq/l}$	1000 l ／数十パッチ	雑物混入	α 汚染時のみ

Table 3.2 設定処理液発生量、性状及び放射能濃度

廃液種類		発生量	性状	放射能濃度
回収水		500 ～1000 l／パッチ	HNO ₃ <0.02M	$\alpha < 7.4 \times 10^5 \text{ Bq/l}$ $\beta \gamma < 3.7 \times 10^5 \text{ Bq/l}$
	設定値	700 l／パッチ	HNO ₃ <0.02M	$\alpha : 7.4 \times 10^5 \text{ Bq/l}$ $\beta \gamma : 3.7 \times 10^5 \text{ Bq/l}$
雑廃水	α廃液	50 l／パッチ	酸、アルカリ (パッチごとに変化)	$\alpha < 4.1 \times 10^5 \text{ Bq/l}$ $\beta \gamma < 1.85 \times 10^6 \text{ Bq/l}$
	分析廃液	100 l／パッチ	酸、アルカリ (パッチごとに変化)	$\alpha < 3.7 \times 10^4 \text{ Bq/l}$ $\beta \gamma < 3.7 \times 10^4 \text{ Bq/l}$
	サンプピット廃液	1000 l／パッチ	雑物混入	$\alpha < 3.7 \times 10^4 \text{ Bq/l}$ $\beta \gamma < 3.7 \times 10^4 \text{ Bq/l}$
	設定値	100 l／パッチ	HNO ₃ : 0.02M あるいは pH<12	$\alpha : 7.4 \times 10^6 \text{ Bq/l}$ $\beta \gamma : 1.85 \times 10^6 \text{ Bq/l}$

Table 3.3 必要除染係数

	回収水		雑廃水	
	α 放射能	$\beta \gamma$ 放射能	α 放射能	$\beta \gamma$ 放射能
受入廃液	$7.4 \times 10^5 \text{ Bq/l}$	$3.7 \times 10^5 \text{ Bq/l}$	$7.4 \times 10^6 \text{ Bq/l}$	$1.85 \times 10^6 \text{ Bq/l}$
処理済廃液	$1.0 \times 10^{-1} \text{ Bq/l}$	1.0 Bq/l	$1.0 \times 10^{-1} \text{ Bq/l}$	1.0 Bq/l
除染係数	7.4×10^6	3.7×10^7	7.4×10^7	1.85×10^6

Table 3.4 NUCEF で使用される放射性同位元素 (非密封)

	IA	IIA	IIIB	IVB	VB	VIB	VIIIB	VIII	IB	IIIB	IIIA	IVA	VA	VIA	VIIA	O		
1	<i>H</i>															<i>He</i>		
2	<i>Li</i>	<i>Be</i>														<i>Ne</i>		
3	<i>Na</i>	<i>Mg</i>														<i>Ar</i>		
4	<i>K</i>	<i>Ca</i>	<i>Sc</i>	<i>Ti</i>	<i>V</i>	<i>Cr</i>	<i>Mn</i>	<i>Fe</i>	<i>Co</i>	<i>Ni</i>	<i>Cu</i>	<i>Zn</i>	<i>Ga</i>	<i>Ge</i>	<i>As</i>	<i>Se</i>	<i>Br</i>	<i>Kr</i>
5	<i>Rb</i>	<i>Sr</i>	<i>Y</i>	<i>Zr</i>	<i>Nb</i>	<i>Mo</i>	<i>Tc</i>	<i>Ru</i>	<i>Rh</i>	<i>Pd</i>	<i>Ag</i>	<i>Cd</i>	<i>In</i>	<i>Sn</i>	<i>Sb</i>	<i>Te</i>	<i>I</i>	<i>Xe</i>
6	<i>Cs</i>	<i>Ba</i>	<i>Ln</i>	<i>Hf</i>	<i>Ta</i>	<i>W</i>	<i>Re</i>	<i>Os</i>	<i>Ir</i>	<i>Pt</i>	<i>Au</i>	<i>Hg</i>	<i>Tl</i>	<i>Pb</i>	<i>Bi</i>	<i>Po</i>	<i>At</i>	<i>Rn</i>
7	<i>Fr</i>	<i>Ra</i>	<i>An</i>															
	<i>Ln(ランタノイド)</i>		<i>La</i>	<i>Ce</i>	<i>Pr</i>	<i>Nd</i>	<i>Pm</i>	<i>Sm</i>	<i>Eu</i>	<i>Gd</i>	<i>Tb</i>	<i>Dy</i>	<i>Ho</i>	<i>Er</i>	<i>Tm</i>	<i>Yb</i>	<i>Lu</i>	
	<i>An(アクチノイド)</i>		<i>Ac</i>	<i>Th</i>	<i>Pa</i>	<i>U</i>	<i>Np</i>	<i>Pu</i>	<i>Am</i>	<i>Cm</i>	<i>Bk</i>	<i>Cf</i>	<i>Es</i>	<i>Fm</i>	<i>Md</i>	<i>No</i>	<i>Lr</i>	

注) : 太字 (イタリック) が使用元素

Table 3.5 各分離法の除染性能、操作性、保守性及び発生廃棄物の比較

	除染性能	操作性	保守性	廃棄物	
				発生量	処理
イオン交換法					
有機イオン交換体	△	○	○	△	△
吸着法					
無機イオン交換体	○	○	○	△	○
キレートイオン交換体	○	○	○	△	△
不溶性タンニン	○	○	○	△	○
沈殿法	△	△	△	×	○
逆浸透法	△	○	○	○	○
膜分離法	△	○	○	△	○

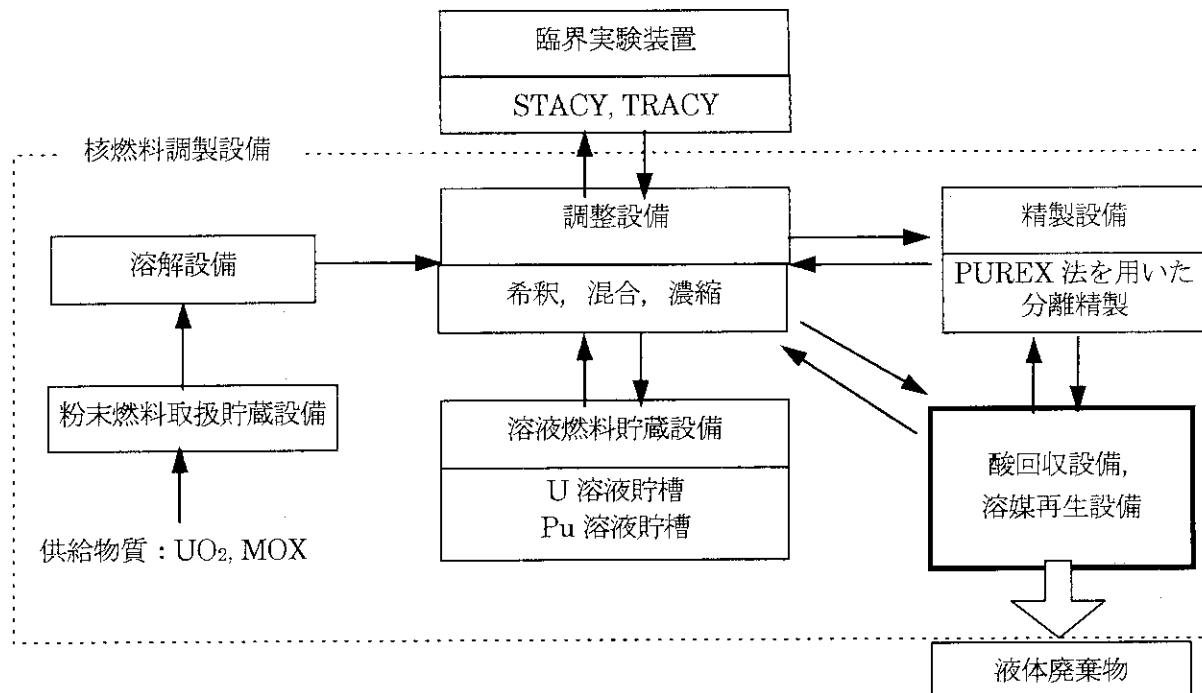


Fig. 2.1 核燃料調製設備の概要

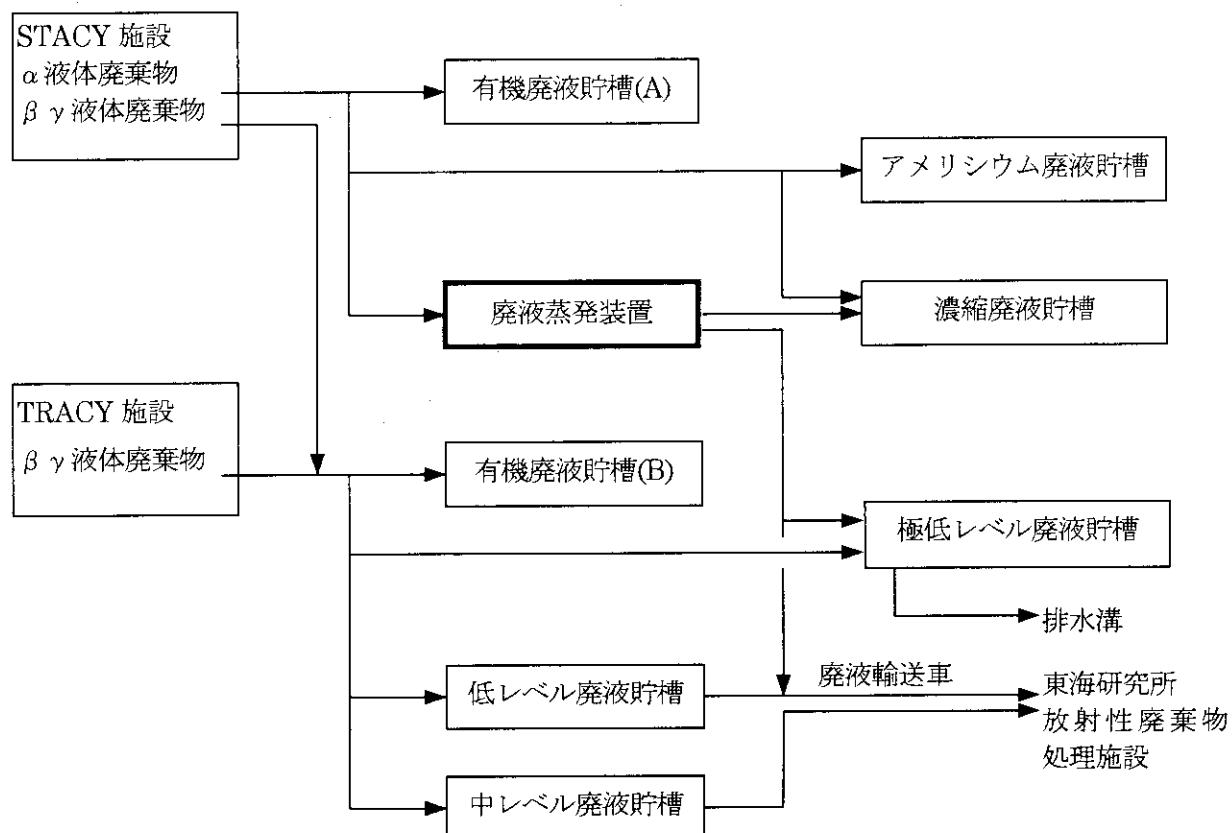


Fig. 3.1 原子炉施設設置変更許可申請で示される放射性廃棄物排気施設系統説明図

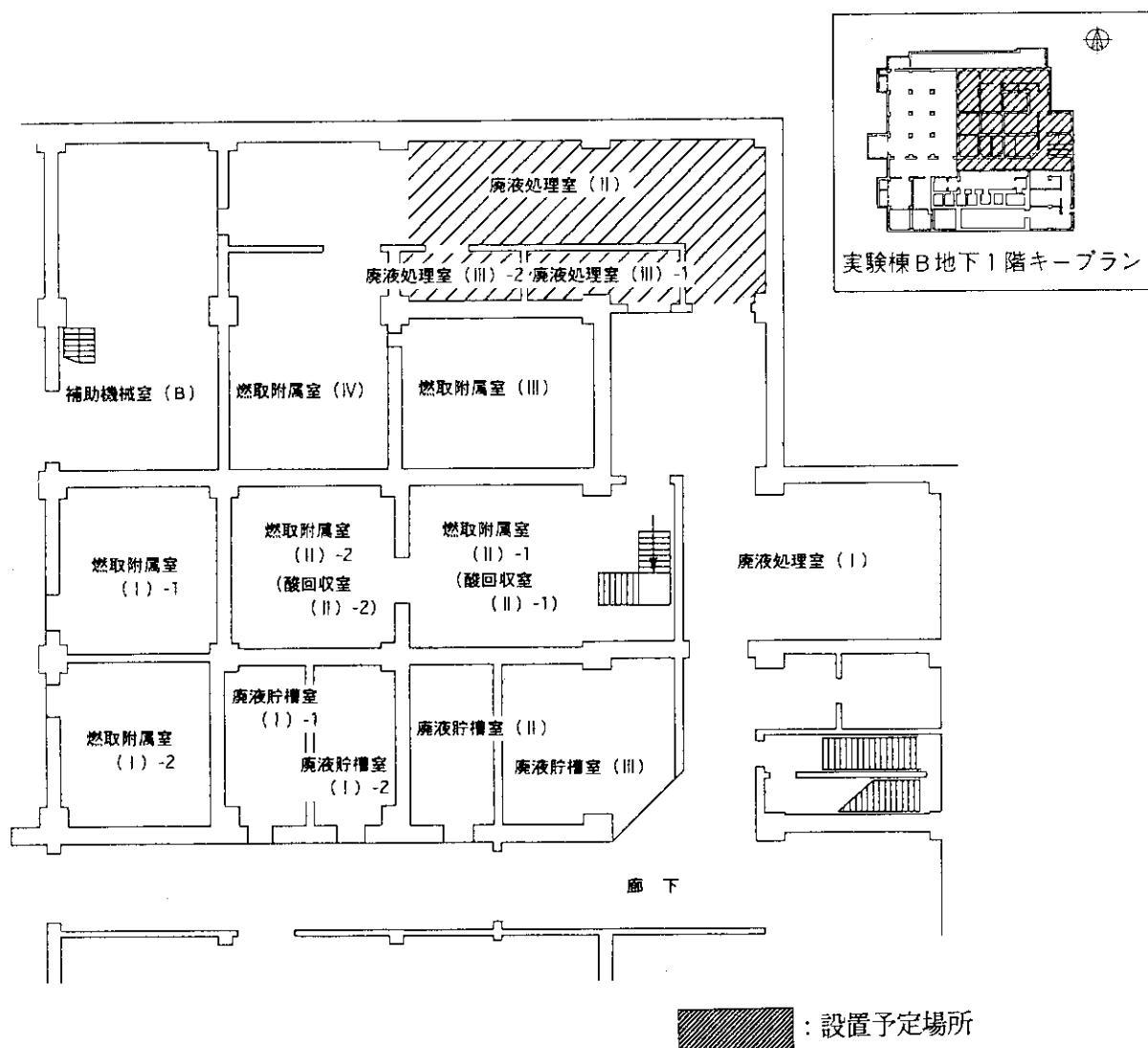


Fig.3.2 アルファ廃液処理設備の設置予定場所（実験棟 B 地下 1 階）

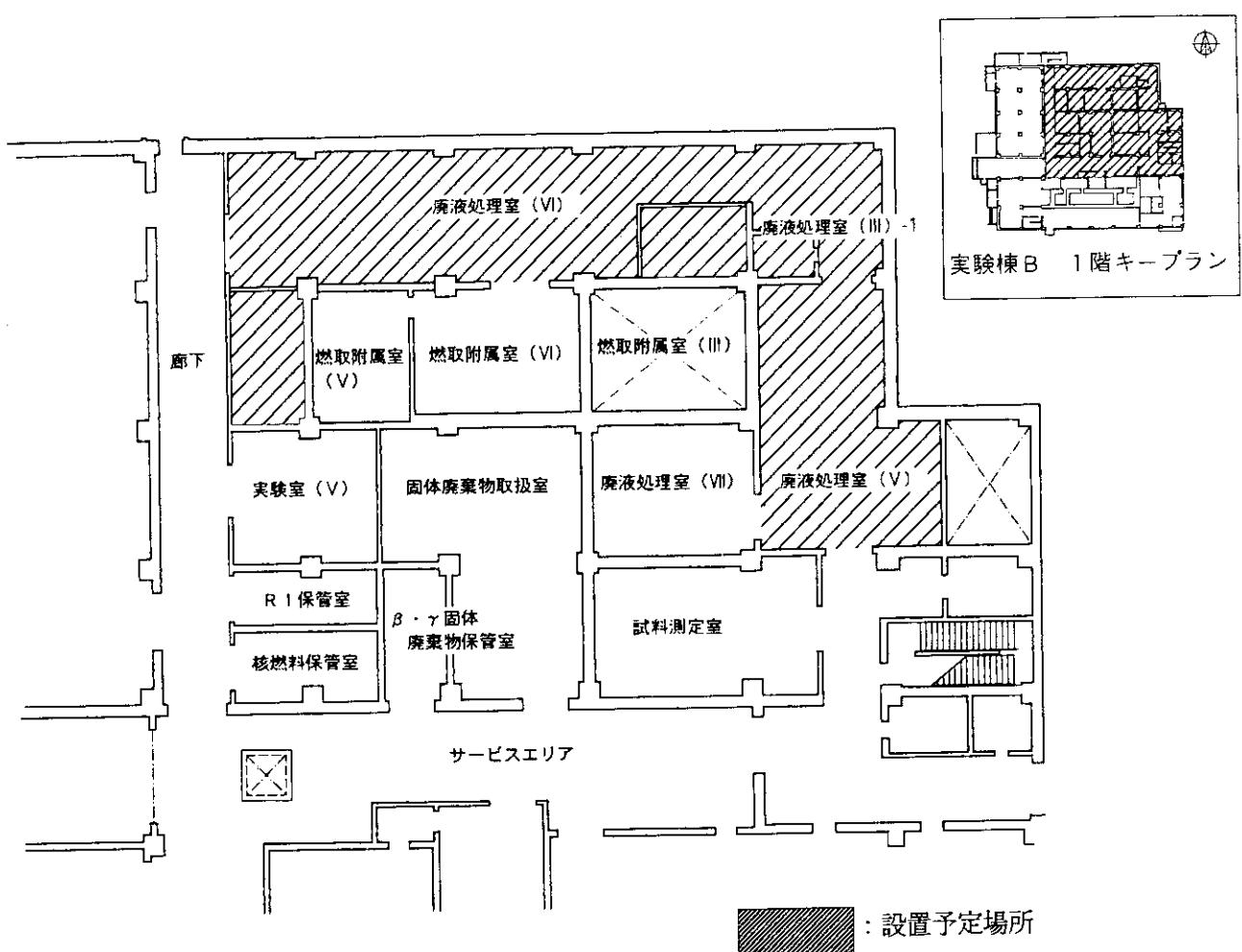


Fig. 3.3 アルファ廃液処理設備の設置予定場所（実験棟 B 1階）

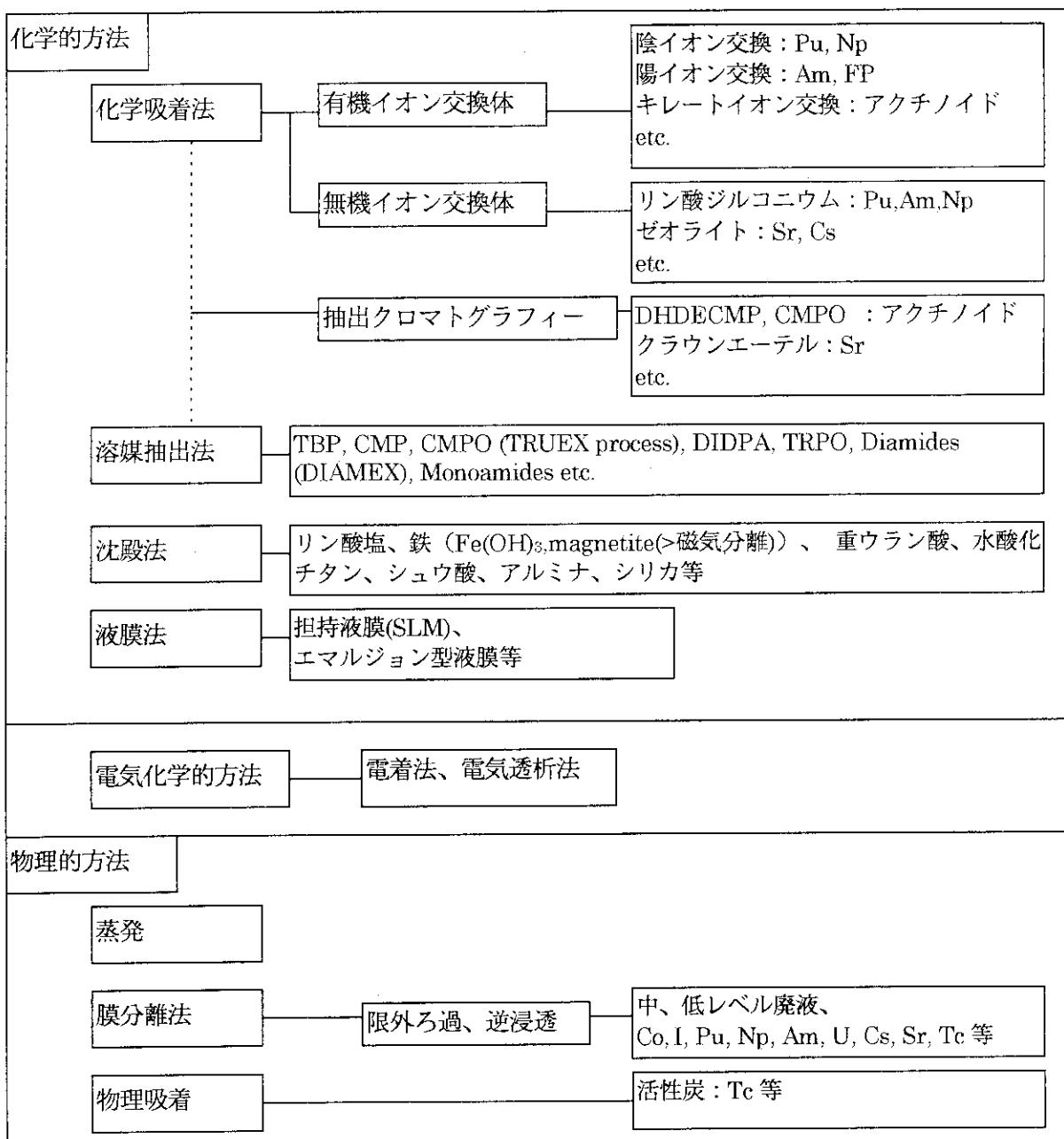


Fig.3.4 廃液処理に用いられる主な技術

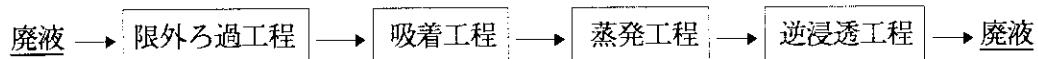


Fig. 3.5 各基本工程の順序

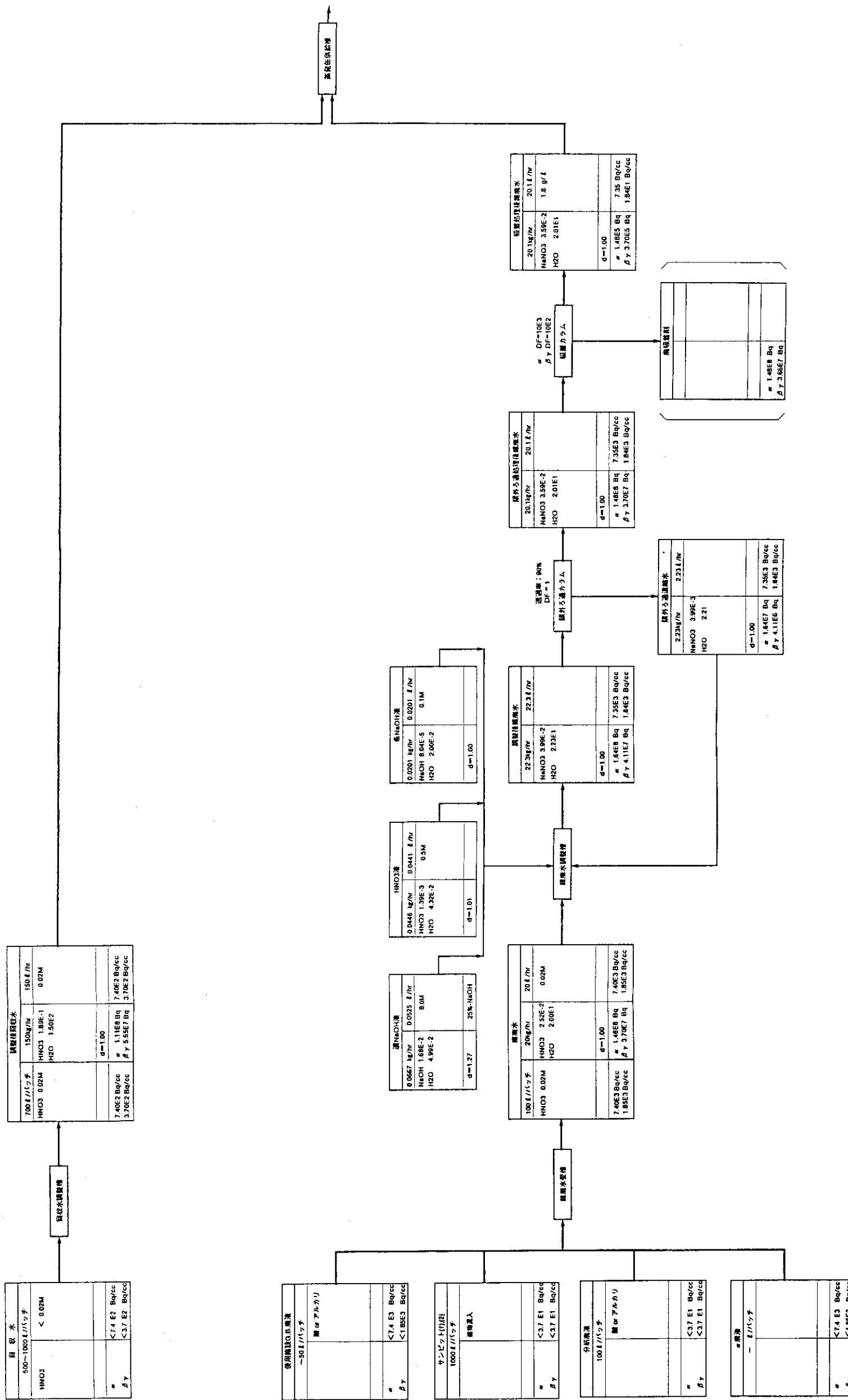


Fig. 3.6(1) アルファ廃液処理設備のケミカルフローシート（限外ろ過工程及び沈着工程）

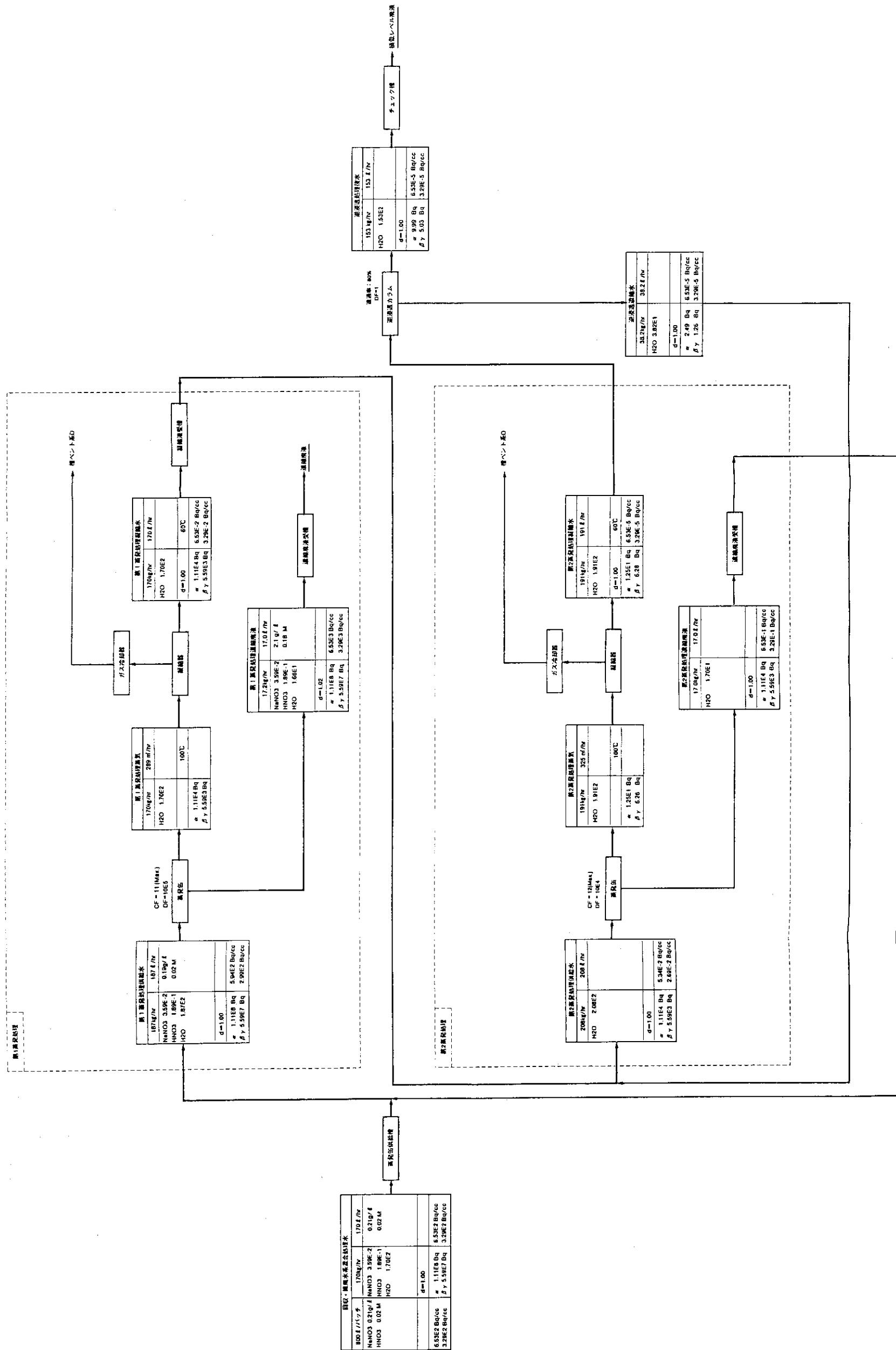


Fig. 3.6(2) アルファ廃液処理設備のケミカルフローシート (蒸発工程及び逆浸透工程)

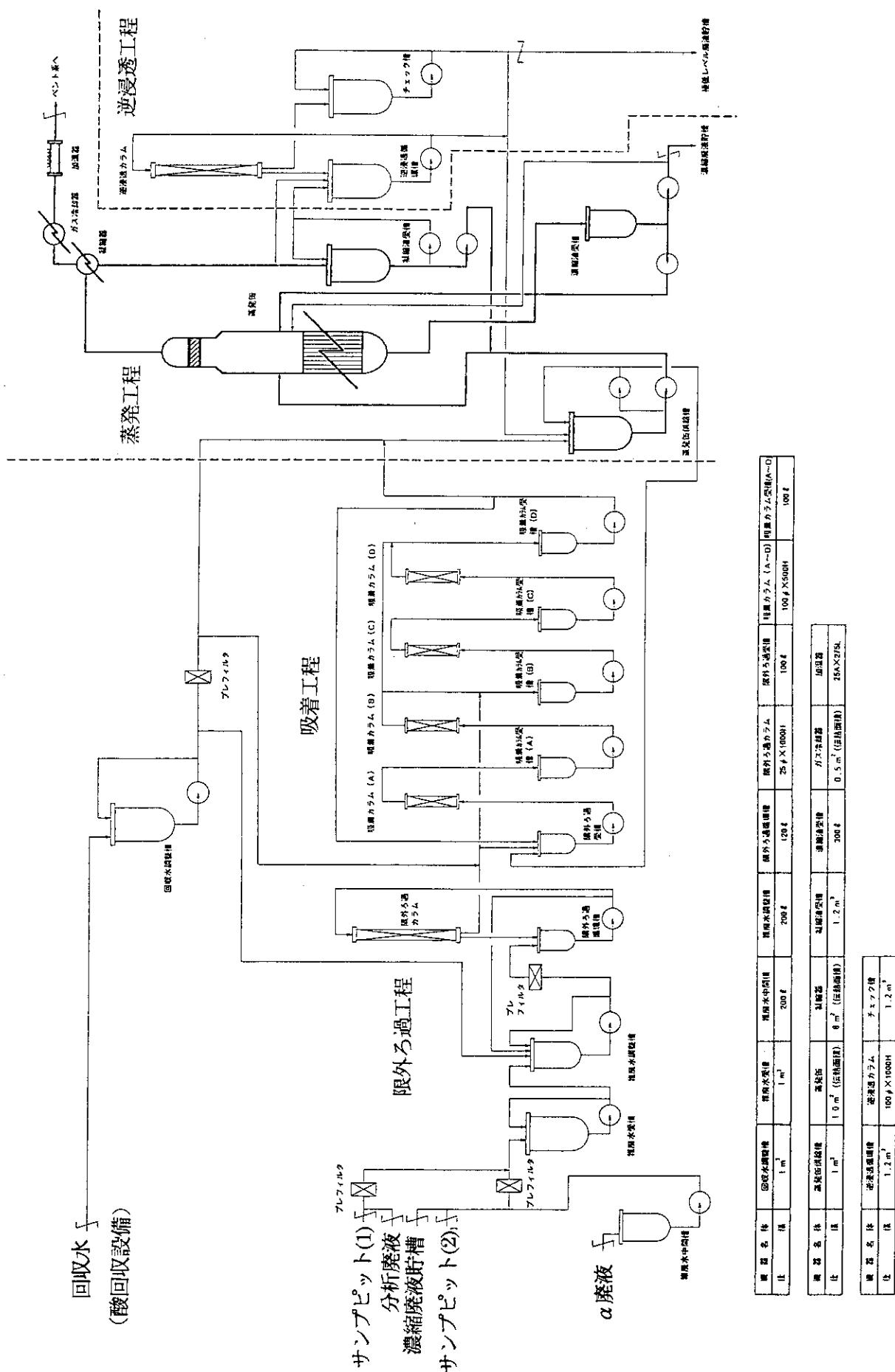


Fig. 3.7 アルファ廃液処理設備のプロセスフローダイアグラム