JNC TN6440 2001-009

平成２年度人形峠事業所環境資源開発部
業務報告

1991年6月

動力炉・核燃料開発事業団
人形峠事業所

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。

〒708-0698 岡山県苫田郡上斎原村1550番地
核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター
環境保全技術開発部 管理課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Co-ordination Section,Environmental Research and Development Division,
Ningyo-Toge Environmental Engineering Center,
Japan Nuclear Cycle Development Institute,
1550 Kamisaibara-son, Tomada-gun, Okayama-ken, 708-0698
Japan Nuclear Cycle Development Institute,

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

1991年6月

平成2年度人形峠事業所環境資源開発部業務報告

要　　旨

標記について平成2年6月22日に報告会を開催し，関係者に対し報告を行った。

ここに平成2年度環境資源開発部の成果を報告する。環境資源開発課及び転換技術開発課の業務成果概要は，次のとおりである。

環境資源開発課では主として次のような業務を実施した。

1. 海外探鉱関係として，鉱物試験，鉱石処理試験を，また新製錬技術開発では，塩化揮発法，乳化型液体膜による溶媒抽出試験，回収剤開発を行った。
2. 地質環境調査技術開発は，ナチュラルアナログ研究，深部地下水調査，水・岩石反応試験及び地下深部における微生物影響調査等を行った。
3. ウラン廃棄物処分研究では，処分方策に係るシナリオ作成及び開発課題の調査を行った。
4. 鉱山後処置では鉱害対策，ミルテーリング処理処分技術開発及び夜次鉱さいダム周辺にモニタリング孔3孔を新たに掘削しモニタリングを行った。
5. 通常業務として事業所内の廃水処理及び固体廃棄物の焼却，貯蔵・管理業務の他計量管理，許認可業務，管理業務等を行った。

転換技術開発課では主として次のような業務を実施した。

1. 国内回収ウラン利用実証試験研究及び平成4年度からの回収ウラン実用化試験に係る電力との調整，改造工事のための基本設計並びに許認可資料の作成を行った。
2. 脱硝工程高度化確証試験に係る許認可業務，新設機器設備の設置に必要な場所確保のための既設設備の撤去を開始した。
3. スクラップウラン等の処理を行った。
4. 乾式再処理技術開発，金属ウラン転換技術開発等の基礎試験を行った。

目　　次

1. 転換技術開発課関係業務報告 …… 1

1－1　平成2年度転換技術開発課成果概要 …… 1

1－2　国内回収ウラン利用実証試験研究「最終報告」 …… 3

1－2－①　輸送・運転概要及び安全性評価 …… 3

1－2－②　核種挙動評価及び総合評価 …… 16

1－3　スクラップウラン等の処理 …… 28

1－4　金属ウラン転換試験 …… 34

1－5　溶融塩電解精製試験 …… 50

1－6　核種分離試験「電気泳動法」 …… 62

1－7　UF_6 還元試験 …… 67

1－8　分析技術開発 …… 79

1－8－①　Cd，混合塩中U，不純物分析開発 …… 79

1－8－②　UF_6 中As分析開発 …… 85

2. 環境資源開発課関係業務報告 …… 92

2－1　平成2年度環境資源開発課成果概要 …… 92

2－2　地下深部微生物調査 …… 94

2－3　深部地下水溶存ガス分析技術開発 …… 98

2－4　水－岩石反応試験 …… 106

2－5　土壌－植物系における元素挙動研究 …… 114

2－6　鉱物試験技術開発 …… 128

2－7　ナチュラルアナログ鉱物試験研究 …… 138

2－8　ジンバブエ鉱物試験研究 …… 145

2－9　不純物含有品位の高い鉱石からのウラン回収法の検討 …… 155

2－10　塩化揮発法による含ウランリン鉱石からのウラン回収法 …… 165

2－11　過酸化水素水によるイエローケーキ沈殿試験 …… 176

2－12　放射性廃棄物のデータ管理システム開発 …… 184

2－13　ミルテーリング処理，処分研究 …… 192

2－14　捨石堆積場措置概要 …… 201

2－15　捨石堆積場の管理 …… 209

1. 転換技術開発課

1－1 平成2年度転換技術開発課業務成果概要

報告者 転換技術開発課 安田弐郎

平成2年度は昨年度に引続き，電力10社との共同研究「国内回収ウラン利用実証試験研究」及びスクラップウラン等の処理を行った。また研究開発についても継続実施し，それぞれのテーマで成果を得た。

1. 回収ウラン転換

(1) 国内回収ウラン利用実証試験研究

平成元年9月末，約40^{t-u}のUF_6の生産を行い設備の運転を終了した。その後，運転データ及び種種サンプルの核種分析結果等を基に最終報告書を作成し，平成2年9月末電力10社へ提出した。

(2) 回収ウラン実用化試験

平成4年度より，約100^{t-u}／年規模で共同研究を実施すべく回収ウラン実用化試験に係る調整を電力会社と行った。また，本件に関する改造工事のための基本設計を実施し，許認可資料の作成を行った。

2. 脱硝工程高度化確証試験

本件に係る許認可業務を実施すると共に，新たに脱硝，還元，粉砕等の設備機器を新設するに必要な場所（約800 m²）を確保するため，溶媒抽出室内の既設設備の撤去工事に着手した。

3. スクラップウラン等の処理

在庫UF_6を用い，高性能遠心機用UF_6 73^{t-u}，DPランニングストック用UF_6 23^{t-u}の精製詰替えを行った。また，二級品UF_4等の処理を行い，32^{t-u}のUF_6を製造した。

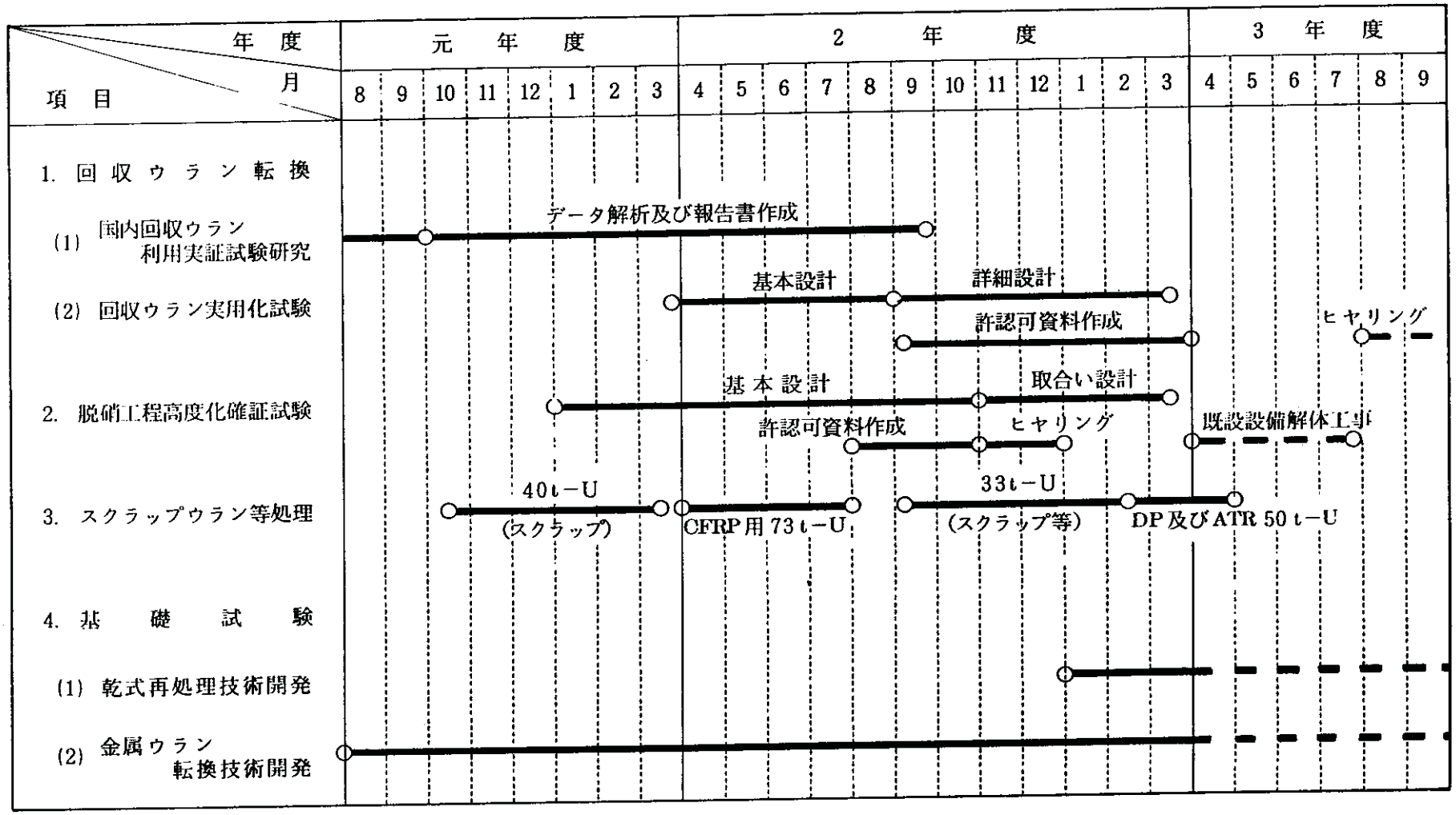
4. 基礎試験

(1) 乾式再処理技術開発

FBR新型燃料技術開発の一環として，溶融塩電解精製の基礎試験装置を導入し，試験を開始した。

(2) 金属ウラン転換技術開発

ウラン酸化物より直接金属ウランを生成する試験及び，H_2によるUF_6の還元試験を実施した。


年度
月
項目
元年度
2年度
3年度
8 9 10 11 12 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 1 2 3 4 5 6 7 8 9
1. 回収ウラン転換
(1) 国内回収ウラン利用実証試験研究
データ解析及び報告書作成
(2) 回収ウラン実用化試験
基本設計
詳細設計
許認可資料作成
ヒヤリング
2. 脱硝工程高度化確証試験
基本設計
取合い設計
許認可資料作成
ヒヤリング
既設設備解体工事
3. スクラップウラン等処理
40t−U
(スクラップ)
CFRP用 73t−U
33t−U
(スクラップ等)
DP及びATR 50t−U
4. 基礎試験
(1) 乾式再処理技術開発
(2) 金属ウラン転換技術開発

1－2　国内回収ウラン利用実証試験研究「最終報告」

1－2－①　輸送・運転概要及び安全性評価

報告者　転換技術開発課 [redacted]

1. はじめに

約2年間にわたり実施された「国内回収ウラン利用実証試験研究（転換等評価研究）」は電力10社との共同研究として実施された。本試験研究の目的を図－1，研究項目の詳細を図－2に示す。1～4の項目は事前の許認可手続き等であり，ここでは5の核種の挙動評価及び分析データのまとめを除く各項目について報告する。また，スケジュールを図－3に示す。許認可・輸送共にスケジュールどおりであった。

2. 転換プロセス

回収ウランの転換プロセスフローを図－4に示す。

再処理で得られたUO_3粉体はロボットを使用した気流輸送によりプロセスへ導入される。まず，水を添加して水和物とし，次工程からの気－固反応の反応性を向上させる。反応装置はパグミキサー型である。次に水素ガスにより脱水・還元を行い，UO_2粉体とする。反応装置は流動床式である。次にフッ化水素ガスによりＨＦふっ化を行い，UF_4粉体とする。反応装置は流動床式である。次にフッ素ガスによりF_2ふっ化を行い，UF_6気体とする。反応装置は流動床式及びフレームタワー式である。これをコールドトラップ（シェル＆フィン・チューブ式）にて冷却・固化により捕集した後，約80℃で加温・液化しシリンダへ充填し，ウラン濃縮パイロットプラントへ搬出する。

また，F_2ふっ化工程には2つのフローがある。F_2ふっ化工程のフローを図－5に示す。単独系では全量のUF_4が流動床で反応してUF_6となり1次及び2次コールドトラップにて捕集される。併用系ではUF_4の70％がフレームタワーにてUF_6となり，1次コールドトラップにて捕集される。残りの未反応UF_4と新しいUF_4が流動床に送られ，フレームタワーで未反応のフッ素ガスと反応しUF_6となり，2次コールドトラップにて捕集される。主として，ＰＷＲ系には単独系を，ＢＷＲ系には併用系を使用した。

なお，上述した機器のうち水和処理及びフレームタワー式F_2ふっ化における2つの機器は本試験において初めて，処理能力：33 kgU／時間として導入した機器である。

3. 輸送・運転概要

(1) 輸　送

・昭和63年7月～平成元年7月まで約43 tUのUO_3を再処理工場から製錬転換施設へ陸上輸送した。輸送回数は20回であり，ほぼ予定どおりであった。

・輸送物は発送前検査及び定期検査を実施して安全性を確認した。

また，輸送物の線量当量率（表面：～5μSv/hr，1m：2μSv/hr）は法令値を十分下回り，安全上問題はなかった。

・ほぼ2週間に1回の割合で約2.3～2.4 tUの原料UO_3を輸送した。また，転換処理の速度と一致していたため，輸送能力は十分であった。

(2) 運　転

・昭和63年8月～平成元年9月までに約40 tUのUF_6を転換し，28本の30Bシリンダに充填後，ウラン濃縮パイロットプラントへ搬出した。

・製品はすべてウラン濃縮パイロットプラントの受入仕様値を満足した。

・運転は全5工程のうちの2工程を同時運転する分割運転とした。

・処理速度は約30 kgU/時間（設計値33 kgU/時間）であり，連続前処理工程及びF_2ふっ化工程において新たに導入した2つの機器についても，その処理能力を十分に発揮した。

・ウランの収率は約95%であった。物質収支の詳細を図－6に示す。ロスの内訳としては流動媒体及びNaFトラップへの移行が大きな割合を占めている。なお，これらの廃棄物からのウラン回収は原理的には可能であるが，現有の設備では不可能である。

4. 安全性評価

(1) 単体機器等の線量当量率

主な機器・容器について測定をしたが，ここでは代表としてUO_3収納容器について述べる。U－232の含有量と線量当量率の関係を図－7に示す。U－232の含有量が増加するにつれて線量当量率も増加する傾向がみられる。また，原料組成に基づく計算値（QADコード）は測定値とよい一致を示す。

(2) 機器内への不純物の蓄積

① 流　動　床

ウラン処理量と線量当量率との関係を図－8に示す。ウラン処理量とともに線量当量率の増加がみられる。これは，原料中の放射性不純物が流動媒体（　　）中に蓄積するため

であると考えられる。また，天然ウラン処理時に比べて約6倍の高い線量当量率となっている。しかし，運転操作上の理由から5tU毎に流動媒体を交換するためこれ以上に線量当量率が増加することはない。また，流動媒体の分析からはPa－234m，Tl－208等のウラン娘核種が検出されている。さらに，使用済流動媒体の分析値を基に図－9に示す線源モデル（減衰モデル）による計算値（QADコード）は測定値とよい一致を示している（図－8）。同様にして，原料組成を基に不純物が100％流動媒体へ移行すると仮定して線量当量率を求めると測定値の約2倍となり，安全側の評価として事前評価が可能である。

② フレームタワー

比較的高い線量当量率が測定された。

ウラン処理量と線量当量率との関係を図－10に示す。前半部においてはウラン処理量と共に線量当量率が若干増加する傾向がみられるが，後半部では線量当量率の増加はみられずほぼ一定の値（～100μSv/hr）となっている。線量当量率の増加の原因としては，フレームタワー本体は空塔のため，塔の内壁に不純物等が付着したためと考えられるが，内壁面の観察では付着物はみられなかった。

③ ケミカルトラップ

線量当量率の増加はみられず，値自体も非常に小さな値であった（～5μSv/hr）。充塡物（MgF_2）の分析からNp，Pu，Ru等の不純物が検出されているが，線量当量率には寄与しないものと推定される。

(3) 安全管理データ

(2)にて述べた理由により空間の線量当量率及び放射線業務従事者の線量当量が若干増加したが，空気中放射性物質濃度，表面密度及び排気・排水中放射性物質濃度はいずれも基準値等を下回っており，安全上の問題はなかった。

一例として，排水中の放射性物質濃度の測定結果を図－11に示す。

5. まとめ

(1) 輸送及び運転実績

・昭和63年7月から平成元年7月までに約43tUの原料UO_3を再処理工場から製錬転換施設へ陸上輸送し，その安全性を確認した。

・昭和63年8月から平成元年9月までに40tUの製品UF_6を製造し，30Bシリンダにてウラン濃縮パイロットプラントへ払い出した。

・製品はいずれもウラン濃縮パイロットプラントの受入仕様値を満足した。

・転換工程の収率は約95％であった。また，固体廃棄物量はＨＦふっ化工程及びF_2ふっ化工程からの発生が多いことがわかった。

(2) 安全性評価

・F_2ふっ化工程（流動床及びフレームタワー）においては，回収ウランに含まれるU－232の娘核種による影響により，他の機器に比べて線量当量率が増加した。

・放射線業務従事者の線量当量は，天然ウラン処理時よりも高くなったが，法令値に対しては十分に低いものであった。

・排気及び排水中のＵ及び不純物核種の分析により，環境への放出濃度は法令値を十分下回り，安全上問題のないことを確認した。

質　疑　応　答

Ｑ１：ウランの収率95％は全体としての値か？

Ａ１：そうである。

Ｑ２：PWR系の処理とBWR系の処理とで使用済流動媒体の発生量が異なるのは何故か？

Ａ２：BWR系の処理の場合，図－５にて説明したように不揮発生の不純物を多く含んだUF_4が流動床へ供給され流動床の線量当量率が比較的高くなる。これを避けるため少ないウラン処理量で流動媒体の交換を実施したためである。

〔コメント〕

回収ウラン中の不純物の挙動の概要が把握できたことは大きな成果である。今後はこれをより詳細なものとすると共に転換プロセス全体としての処理速度やウランの収率の向上ということも商用化に対して重要な開発課題の１つである。

回収ウランに特有な諸特性を検討し，安全性及び経済性の評価並びに必要な技術の実証を行うことにより回収ウラン利用技術の確証を図る。

(1) 回収ウラン中に含まれるＦＰ，ＴＲＵ核種の挙動を把握

(2) 回収ウラン中に含まれるＦＰ，ＴＲＵ，ウラン同位体及びその娘核種による安全性の評価及び放射線対策の検討

図－１　国内回収ウラン利用実証試験研究の目的

1. 試験計画の検討
   - 原料ウランの処理順序，プロセス運転条件の検討
   - 試験実施に係わる問題点の抽出及び対応
2. 取扱対象回収ウラン特性評価
   - 履歴調査
   - 原料回収ウラン代表サンプルの分析
   - 原料組成評価（分析値／計算評価値）
3. 転換・輸送工程における安全評価
   - 受入仕様値の設定
   - 挙動評価核種の選定及び工程内の挙動評価
   - 被ばく，廃棄物，輸送物等の安全性評価
4. 分析・測定に関する調査，計画
   - 分析・測定技術の検討
   - 分析対象核種の選定
   - 分析測定計画の立案
5. 輸送・転換及び実績評価
   - 実績データのまとめ（輸送・転換処理）
   - 取得データのまとめ（分析・測定）
   - 安全に係わる実績評価
   - 核種の挙動評価（不純物，製品仕様）
6. 総合評価
   - 本試験研究の全体評価
   - 本格利用に関する検討（高燃焼度ウラン）

図－２　研　究　項　目

工程＼年度	62	63	元	2	3	4
転　換	許認可		運　転	評価・解析		

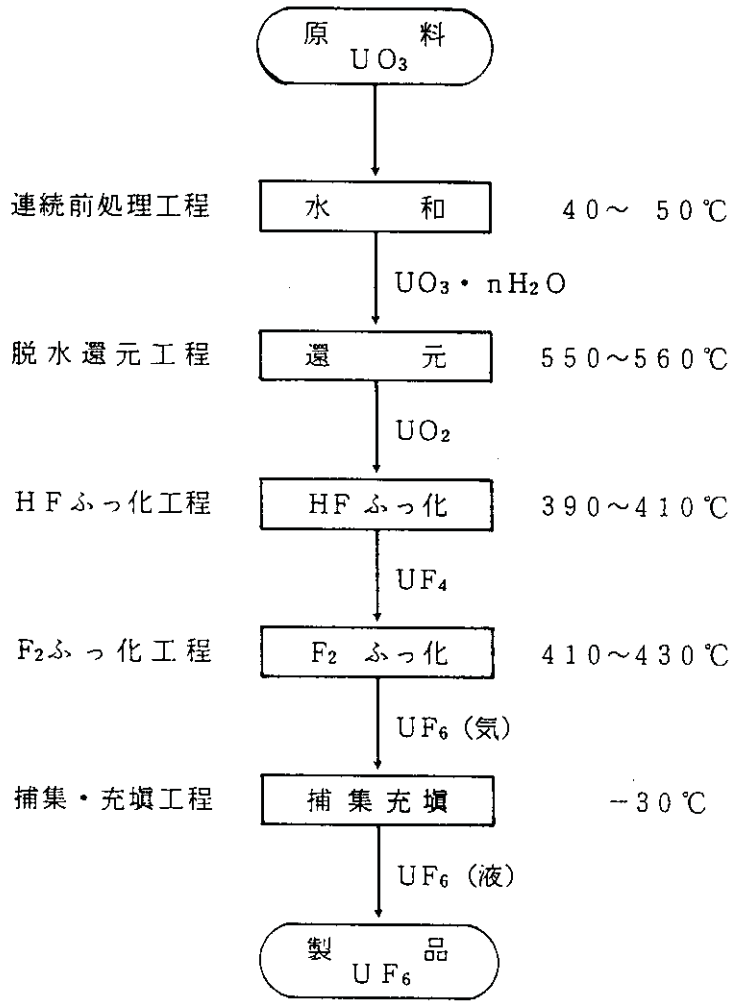
電力共研一転換等評価研究（輸送を含む）

- FP，TRU，U同位体娘核種の挙動把握
- 放射線対策の検討

転換役務

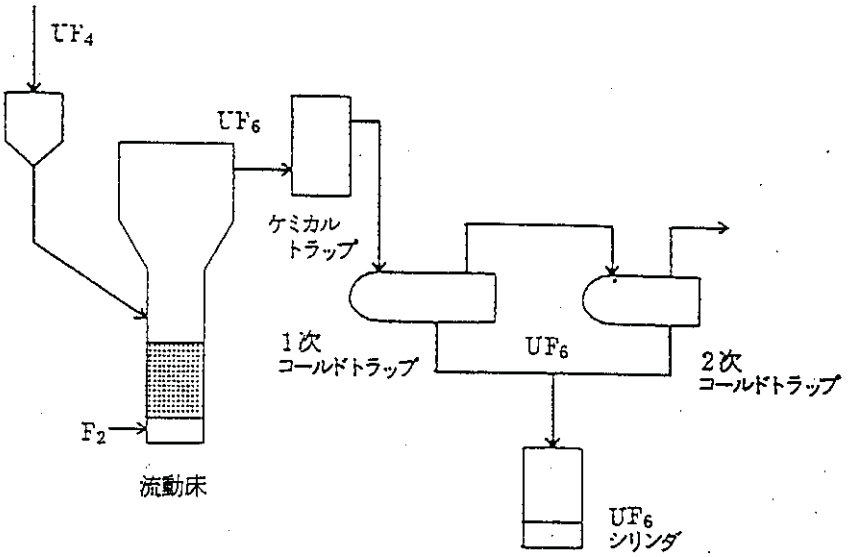
- 濃縮への原料供給　PWR系 [　　] tU
  BWR系 [　　] tU

図－3　国内回収ウラン利用実証試験研究スケジュール

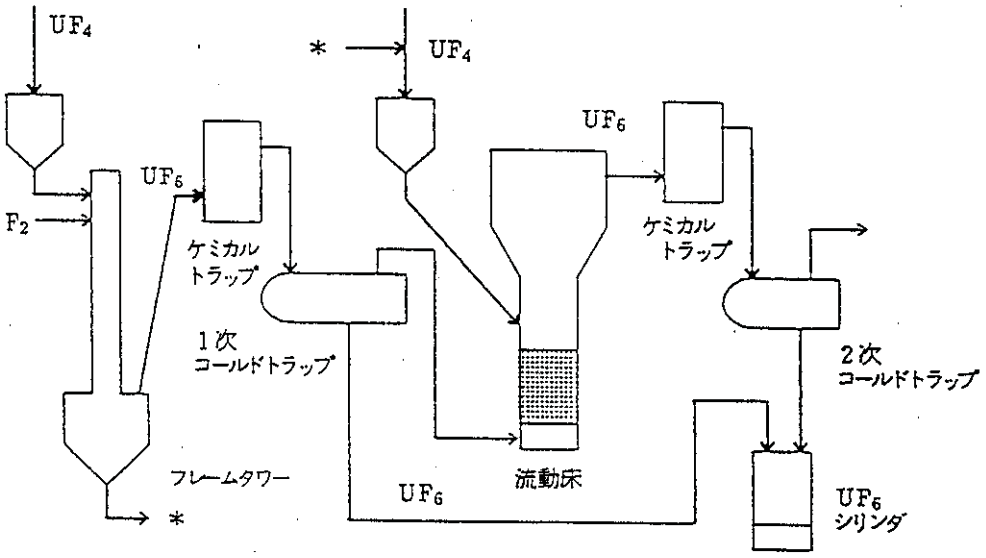


図－4　転換プロセスフロー

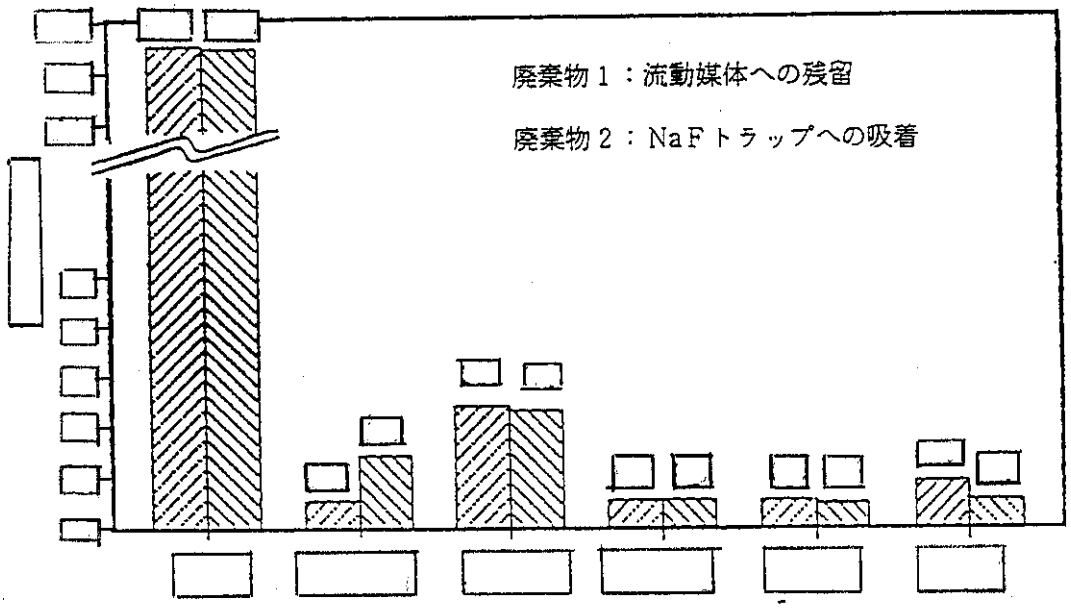
単　独　系



併　用　系



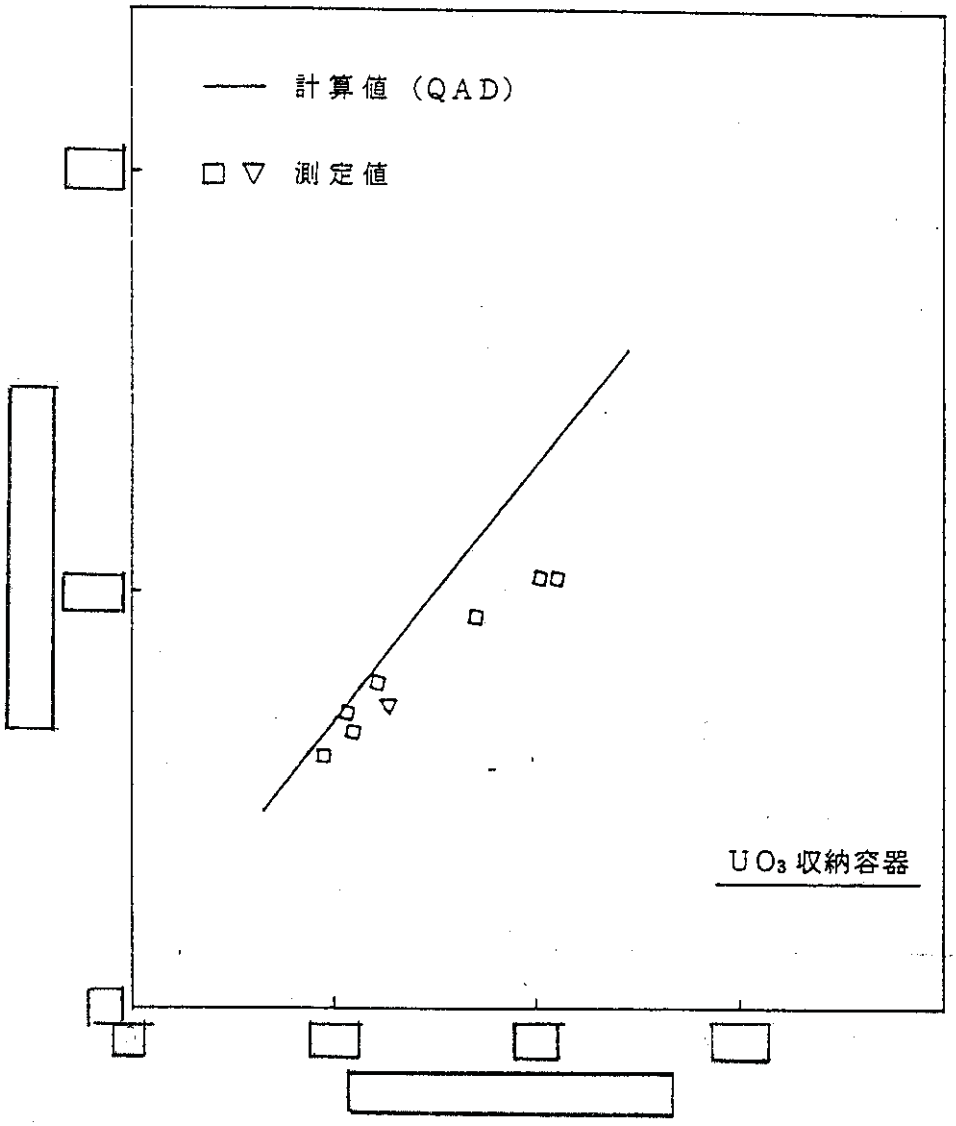
図－5　F_2ふっ化工程



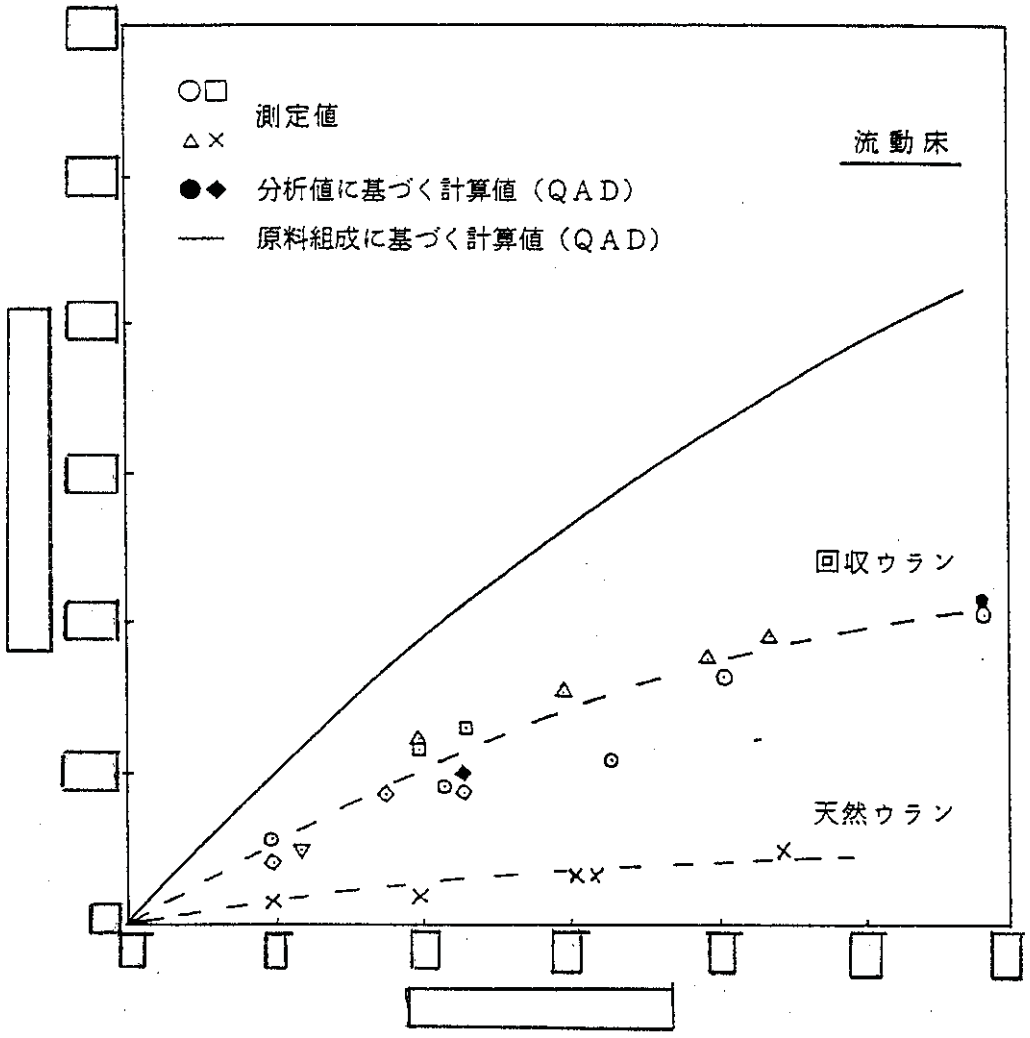
内　訳

PWR系　BWR系

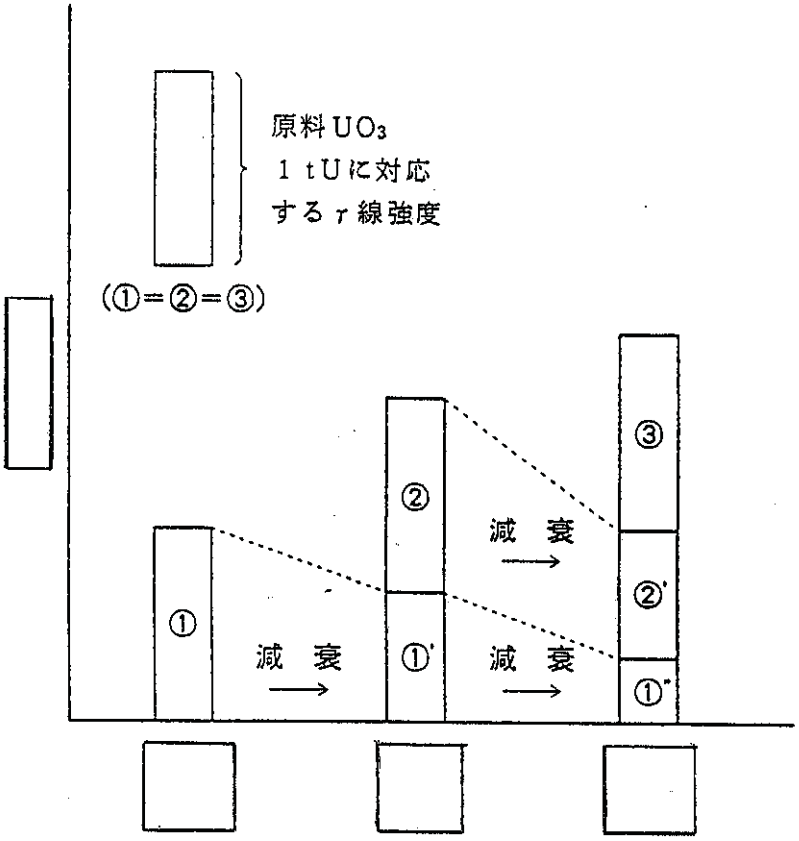
図－６　ウランの物質収支



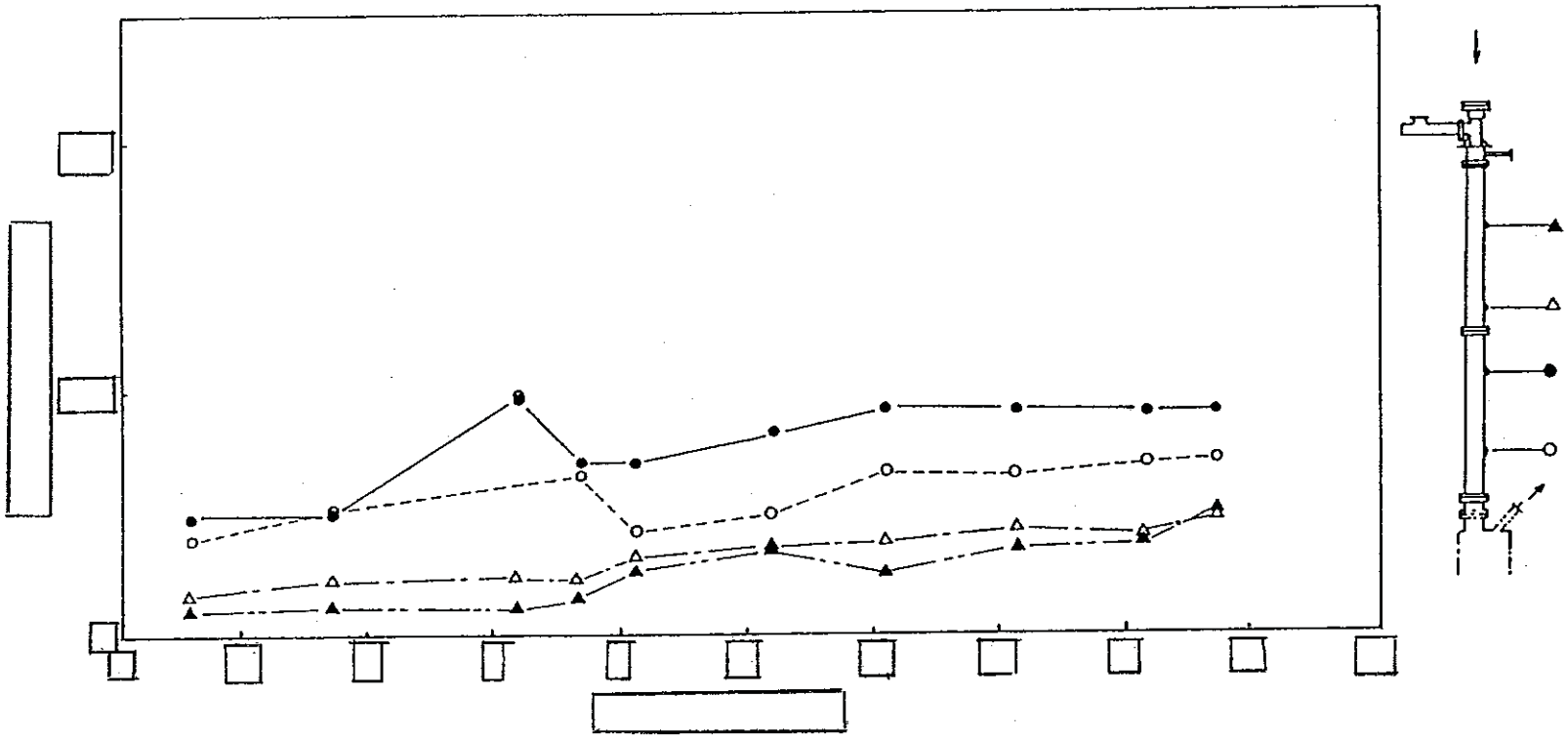
図－7　U－232含有量と線量当量率の関係



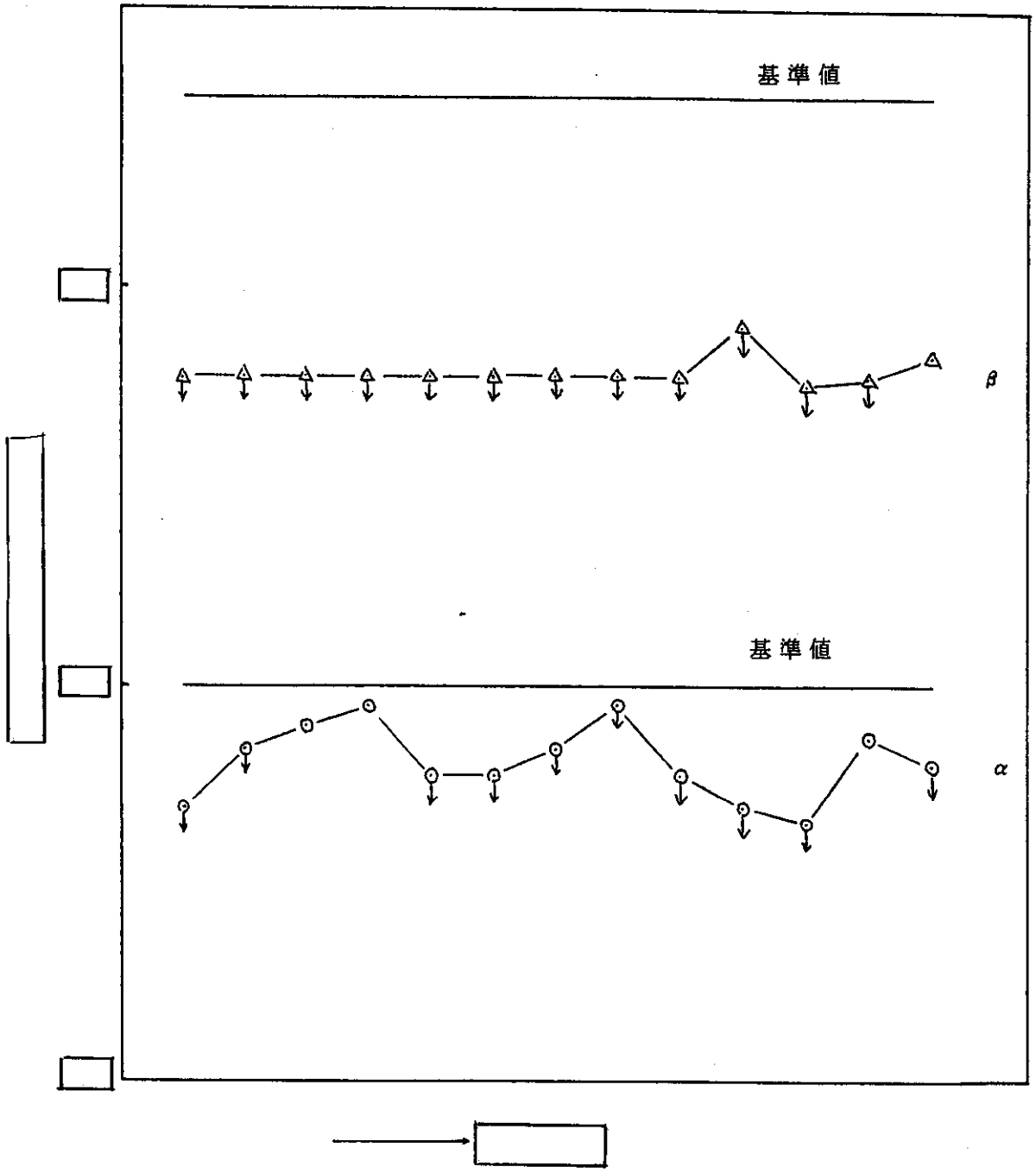
図－８　ウラン処理量と線量当量率の関係



図－9　流動床の線源モデル概念図



図－10　フレームタワーにおけるウラン処理量と線量当量率の関係



図－11　製錬転換施設の排水中放射性物質濃度

1－2－② 核種挙動評価及び総合評価

報告者　転換技術開発課 [redacted]

1. はじめに

回収ウラン中に極く微量含まれる不純物核種の一部について，転換工程における除染係数，工程内における蓄積量等を定量的に評価した。また，本試験の総合評価及び将来の商用プラントを想定した回収ウランの本格利用に対する検討を実施した。

2. 核種挙動評価

(1) 転換工程内の不純物核種の除染係数評価

図－1にF_2ふっ化工程の流動床単独系のフローシートを，図－2にフレームタワー，流動床併用系のフローシートを示す。

原料UO_3及び製品UF_6中の各核種の分析結果から，回収ウラン転換工程における除染係数を評価した。結果を表－1に示すが，Np 237，Pu 239＋240，Ru 106の3核種について除染係数が把握できた。除染係数は，流動床単独系とフレームタワー・流動床併用系の2つの運転系で異なる結果となった。

AmとCmは，原料UO_3からは検出されたが製品UF_6からは検出されず除染係数は不等号付の評価にとどまった。

Tcは，原料及び製品から検出されなかったが，ケミカルトラップから検出されたため，転換工程内で除染されることが確認できた。なお，図－3に回収ウラン転換工程内の不純物濃度の推移を示す。

(2) F_2ふっ化工程内の不純物核種の蓄積分布評価

転換工程において除染のあることが明らかになったNp 237，Pu 239＋240，Ru 106について，排気・排水系のサンプルも含めた分析を実施して，除染箇所とその分布を定量的に評価した。結果を図－4に示す。

これによれば，Np，Puについては，ふっ化物の化学的性質がウランと似ているにも関わらず，ふっ化反応の特性（平衡），生成するふっ化物の安定性等の相違により，F_2ふっ化炉で除染されることが確認された。表－2にそれぞれのF_2ふっ化反応の特性を示す。

また，Ruは揮発性のふっ化物となるが，捕集充填工程のコールドトラップにおいて捕集されず排気処理系に移行していることが確認された。予想されていたRuF_5，$RuOF_4$よりも揮発性の化合物が生成していた可能性がある。

ケミカルトラップにおける除染は，文献値等に比べ小さいことがわかった。

3. 本格利用に関する総合評価（高燃焼度化を含む）

(1) 輸送，転換

輸送については，本格利用を想定すると現状の方法では1回あたりの輸送量及び輸送頻度に制約があることから，大型容器の開発，再処理工場と転換工場を同一サイト内に設置する等の方策が必要である。

転換については，本試験での成果と廃棄物低減化，ウランの回収率の向上化等の問題がある。このため，本格利用の1段階前に試験等を実施し，回収ウランの大量処理，機器の耐久性等の情報をさらに蓄積する必要がある。また，廃棄物からのウランの回収技術の改良，プロセスの改良等も必要である。表－3に問題点と対策をまとめる。

(2) 安　全　性

表－4に燃料が高燃焼度化された場合の不純物含有量を示すが，U232 の生成割合が大きくなることがわかる。図－5には，U232の崩壊系列を示すが，娘核種であるBi 212とTl 208が透過性の強いγ線を放出することからU232の増加は外部被ばく上問題となる。このため，工程の遠隔自動操作化の充実，一部の機器の遮蔽が必要である。

固体廃棄物の取扱いについては，ＴＲＵ，ＦＰが移行するため，管理方法，貯蔵場所の確保が必要である。

また，不純物核種の挙動評価データは，データ数が少なく信頼性が低いので，本格利用の1段階前に試験を実施して確認することが重要である。表－5に問題点と対策をまとめる。

(3) 経　済　性

表－6に燃料の高燃焼度化が経済性に与える影響を示す。回収ウラン転換は，天然ウラン転換に比べ，需要が少ないためプラント規模が小さく転換コストが割高となる。さらに高燃焼度の燃料の対策及び大量処理のための措置（遮蔽等）による転換コストの増加が予想されるため，運転の効率化等によりコスト差を補っていくことが重要である。

(4) 将来における回収ウランの利用方策の検討

回収ウランの利用方策としては，①再濃縮利用，②ＭＯＸ母材利用，③ブレンディングによる利用の3種類のオプションが有力である。

再濃縮利用については，高燃焼度の燃料の場合，Ｕ232，Ｕ234，Ｕ236が増加し，U235が減少することから，U236の反応度補償により濃縮工場での分離作業量が大きくなる問題点

がある。

ＭＯＸ母材利用とブレンディングによる利用は利用量を多く見込めないこと，及びＭＯＸ利用の場合は，ＡＴＲ，ＦＢＲの導入時期が遅れること等が問題である。表－７に将来の利用方策に関する問題点と対策を示す。

今後の計画を図－６にまとめる。下北の再処理工場の運転時期，その貯蔵庫が満杯となる時期を考慮して，転換商用施設を建設する計画があるが，その施設の設計のために現状で不足しているデータを年間 100 tU規模の試験（回収ウラン実用化試験）を実施して確証する予定である。

質　疑　応　答

1. F_2ふっ化工程の除染係数について

Q：Np，Puの除染係数の値が，10^2 ～10^4とばらついているが理由はなにか。

A：流動床単独系とフレームタワーとの併用系ではプロセスが異なる。併用系では反応炉が２つあり，ふっ化する機会が２度与えられるため，除染係数は小さくなると考えられる。

Q：単独系だけをみても，除染係数がばらついているのは何故か。また，装置の設計値等と比べてどうか。

A：転換工程は積極的に除染係数を稼ぐところではない。装置に除染係数の設計値はない。流動床単独系の場合に限ってみても除染係数がばらつくのは，流動媒体に残留する不純物の量が装置の運転条件（媒体にウランをどの程度残したところで媒体を抜き出すか等）により変化すること等が理由であると考えられる。また，除染係数が10^3 ～10^4ばらつくとはいっても実際の数値は，Puの場合 4000 と 10000 であり，比は 2.5 倍程度でありそれほど大きくはないと判断している。

2. 回収ウランのスペックについて

Q：回収ウランの濃縮への払出しスペックはどうなるのか。

A：スペックは決められない。転換工程より上流の原子炉での燃焼，再処理工場での除染等によって，転換の原料中の不純物量が変化するためである。ＦＰ，ＴＲＵは除染係数という形でスペックにかえることは可能である。ウラン同位体は転換工程では除染されないので，原子炉の燃焼条件によって決まる。転換では何ともいえない。

表－1　不純物核種の除染係数

核　　種	除　染　係　数		備　　考
	流動床単独系	併　用　系	
Np237	[redacted]	[redacted]	併用系UF_6：検出下限値以下
	[redacted]		
Pu239, 240	[redacted]	[redacted]	
	[redacted]	[redacted]	
Ru106	[redacted]	[redacted]	
	[redacted]	[redacted]	
Am241	[redacted]	[redacted]	UF_6：検出下限値以下
Cm244	[redacted]	[redacted]	

表－2　U，Pu，NpのF₂ふっ化反応特性

298K

反　　応　　式	ΔG kcal/mol	備　　考
$UF_4(s) + F_2(g) \rightarrow UF_6(g)$	－58	6ふっ化物へのなりやすさは，U＞Np＞Pu
$NpF_4(s) + F_2(g) \rightarrow NpF_6(g)$	－37	
$PuF_4(s) + F_2(g) \rightarrow PuF_6(g)$	＋6.0	
$NpF_6(g) + UF_4(s) \rightarrow NpF_4(s) + UF_6(g)$	－21	Puは6ふっ化物が還元されやすい。
$PuF_6(g) + UF_4(s) \rightarrow PuF_4(s) + UF_6(g)$	－64	

表－3　輸送，転換に関する問題点と対策

項目	問題点	対策等
輸送	・輸送スケジュールは外部要因による変更を考慮する必要がある。 ・1回あたりの輸送量と輸送頻度に制限がある。	・再処理工場と転換工場を同一サイドに設置 ・大型輸送容器の開発
転換	・プロセスデータ（大量処理データ，機器の耐久性，連続運転実績等）が不足。 ・ウランの回収率の向上 ・廃棄物量低減化	・本格利用の1段階前にこれらの不足データを試験により確認。 ・廃棄物からのウランの回収技術の開発，プロセスの改良等

表－4　高燃焼度回収ウランの特徴

核種	単位	含有量		比率	転換工程に与える影響等
		高燃焼度	低燃焼度	高／低	
U 232	ppb／gU	2.6	0.69	3.8	娘核種による被ばく
U 234	%	0.019	0.027	0.7	比放射能が高い　環境への影響
U 236	%	0.50	0.44	1.1	中性子吸収断面積が大きい U235の実効的価値を下げる
Np237	μci／gU	4.8E－4	2.4E－4	2.0	α放出核種　環境への影響
Pu239 240	μci／gU	9.5E－4	7.1E－4	1.3	含有量はごく微量
Ru106	μci／gU	8.9E－4	3.1E－4	2.9	含有量はごく微量

			高燃焼度	低燃焼度
・燃焼度	MWD／T	：	45000	28000
・比出力	MW／T	：	60	26
・初期濃縮度	%	：	3.5	4.0
・冷却		：	4年	180日

表－5　安全性に関する問題点と対策

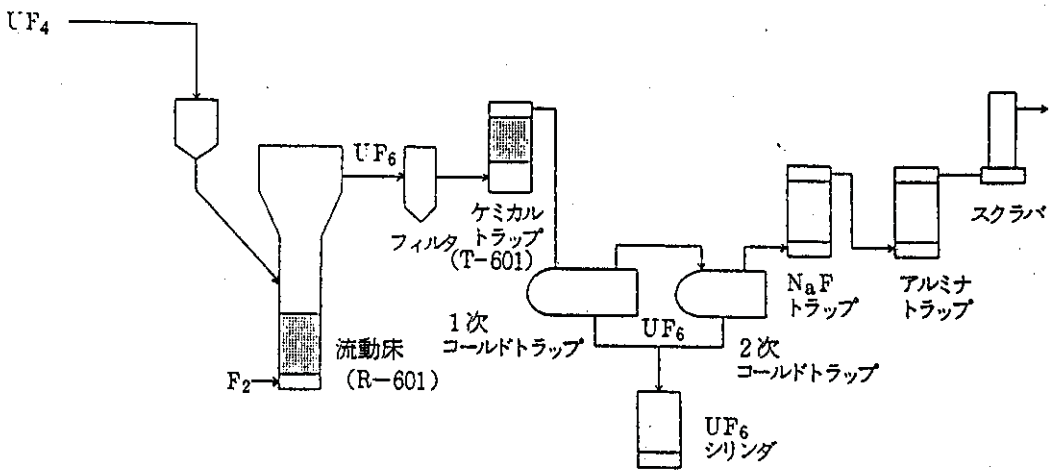
項目	問題点	対策等
安全性	高燃焼度の燃料処理の場合 ・U232 の娘核種の影響による外部被ばく対策 ・固体廃棄物の取扱い （ＴＲＵ，ＦＰ核種の移行） ・不純物核種の挙動評価データの信頼性	・機器の遠隔操作化， 一部機器の遮蔽， 保守スペースの確保　が必要 ・管理方法，貯蔵場所の確保が必要 ・本格利用の１段階前にこれらの不足データを試験により確認

表－6　燃料の高燃焼度化が経済性に与える影響

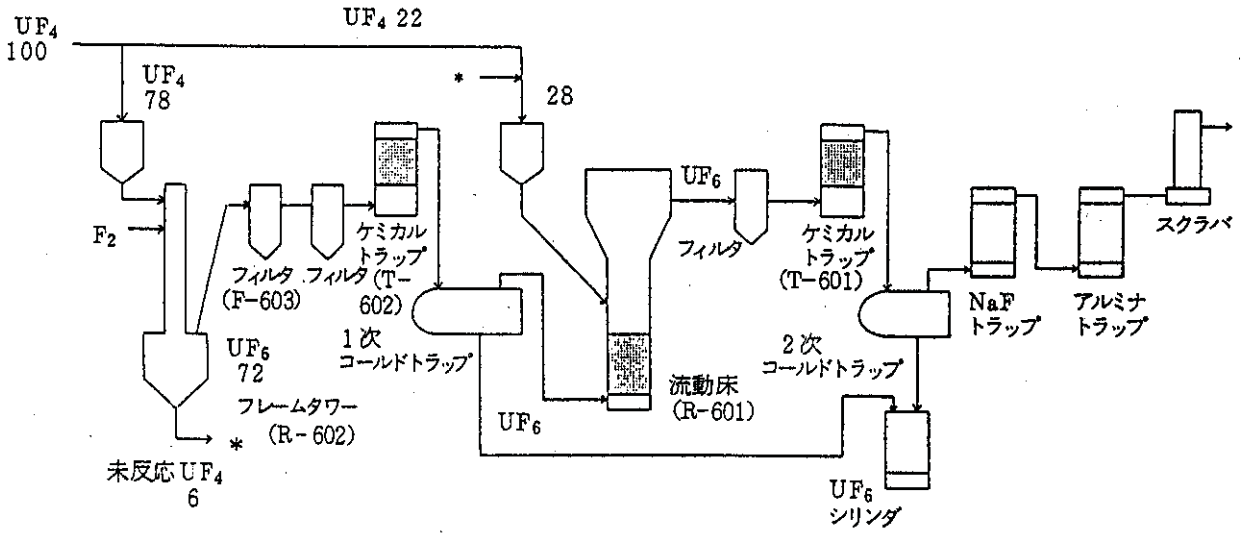
項目	高燃焼度回収ウランの特性	転換工程への影響	コストへの影響
臨界	U235 含有量減少	臨界制限は緩和	コスト増加はない。 但し，低燃焼度の原料も当然処理できる設備とすることから，コスト減とはならないと考えられる。
遮蔽	U232 含有量増加 それに伴い， 娘核種（Tl 208，Bi 212 等）増加	被ばく対策のため，遮蔽材の設置，自動化，遠隔化，機器間の拡大等	資本金（設備費）が増加
副原料量	U232 含有量増加 それに伴い， 娘核種（Tl 208，Bi 212 等）増加	流動床媒体（不活性アルミナ）の表面線量当量率増加により交換頻度増加	化学材料費が増加
廃棄物	U232 含有量増加 それに伴い， 娘核種（Tl208，Bi212 等）増加	使用済流動媒体量が増加	保守費が増加

表－7　将来の利用方策に関する問題点と対策

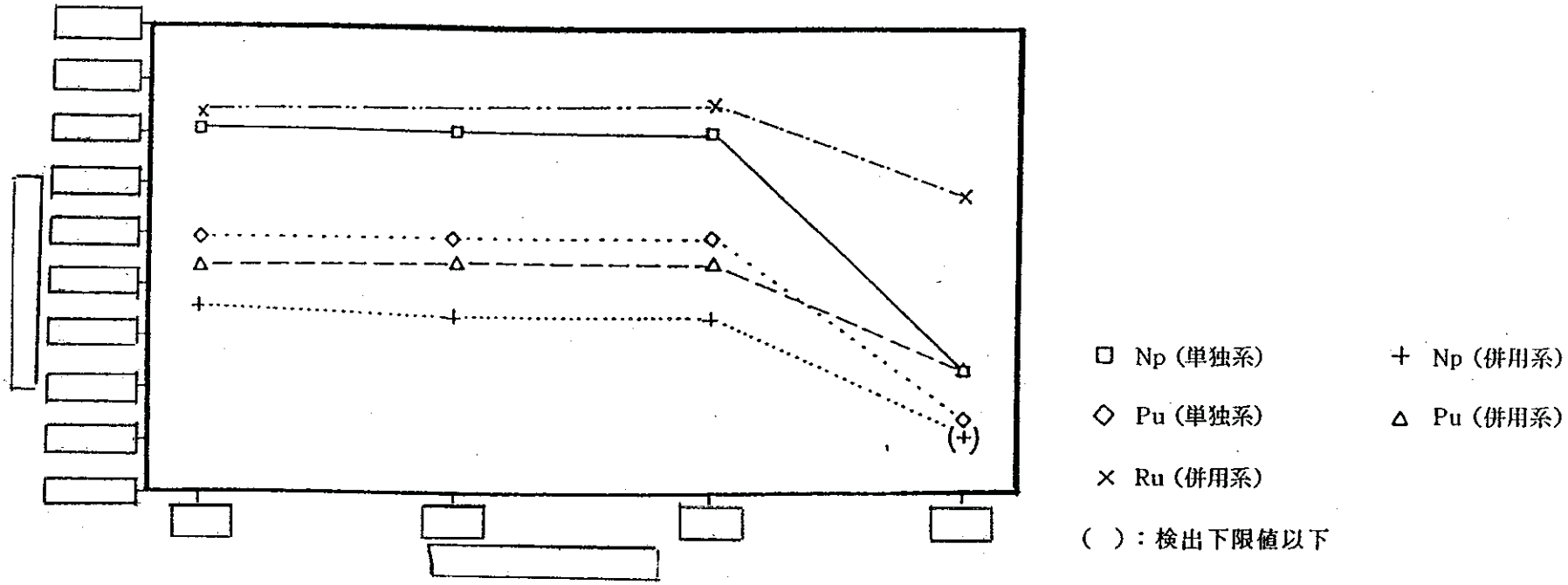
項　目	問　題　点	対　策　等
将　来　の 利用方策	高燃焼度の燃料処理の場合 ・再濃縮利用 U 232，234，236 量増加 U 235 量減少 反応度補償が問題 （濃縮の分離作業量が増加） ・ＭＯＸ母材利用 利用量が少，ＡＴＲ，ＦＢＲは炉の数が少，炉の導入時期が遅れる。 ・ブレンディング利用 利用量が小	同位体分離性能の高い濃縮方法の開発動向，将来の炉の形式と導入時期等により，利用方策は変化しうる。 当面はそれぞれのオプションに関する検討を加えて，本格利用に備える必要がある。



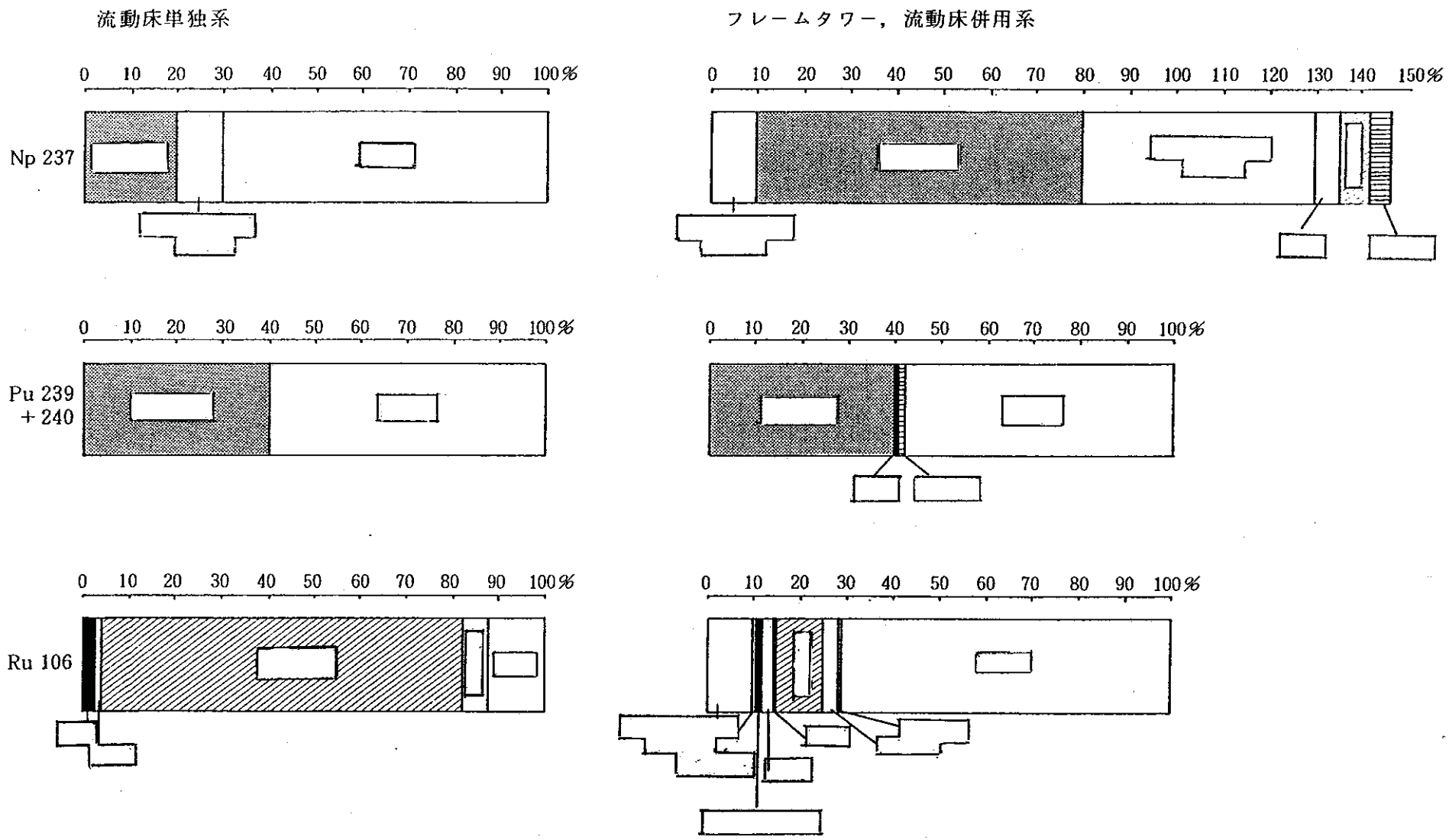
図－1　F_2ふっ化工程のフローシート（流動床単独系）



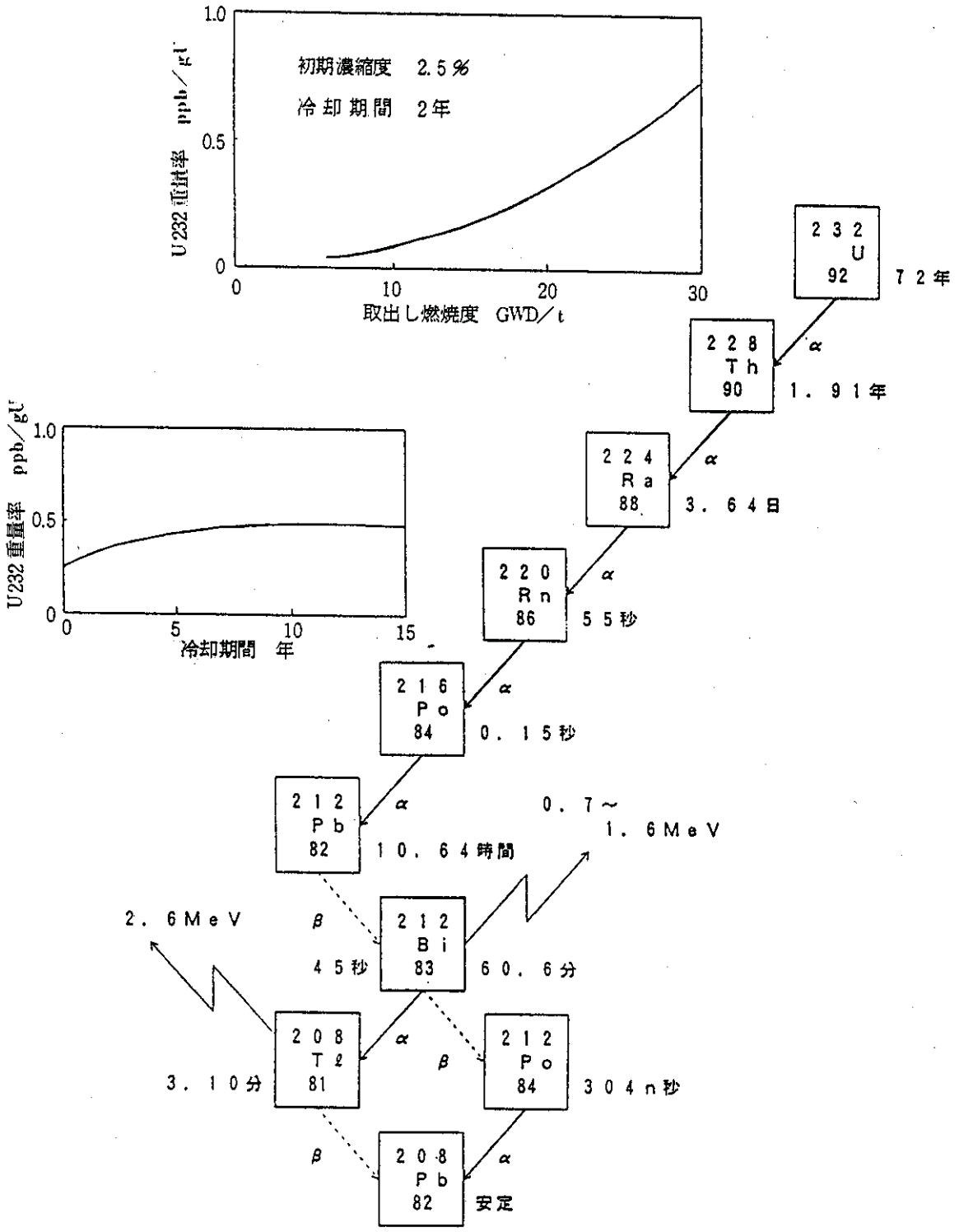
図－2　F_2ふっ化工程のフローシート（フレームタワー，流動床併用系）



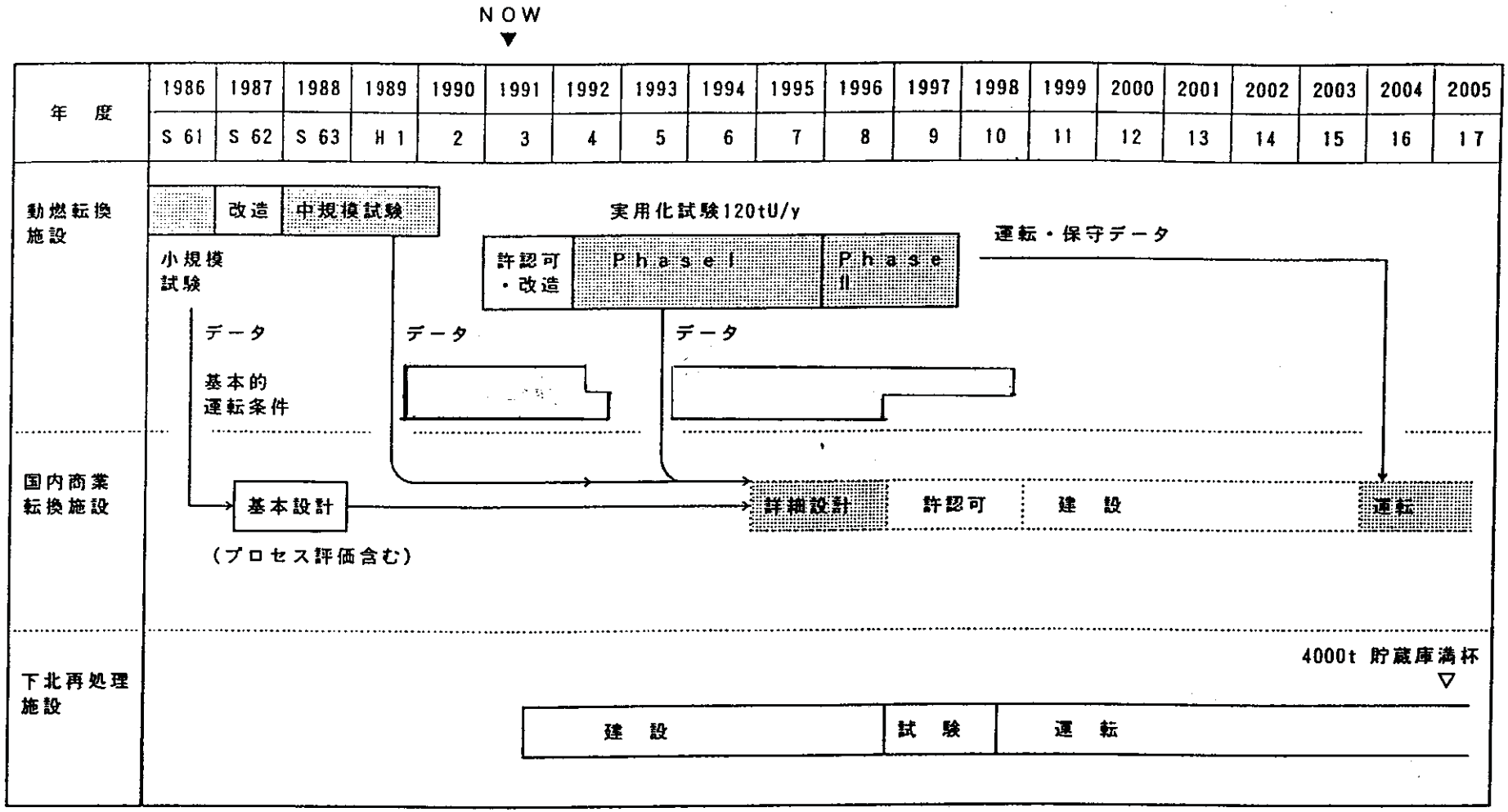
図－3　回収ウラン転換工程内の不純物濃度の推移



図－4　Np, Pu, Ru の F_2ふっ化工程内における蓄積量



図－5　U 232の崩壊系列



図－6　回収ウラン転換に関する今後の計画

1－3　スクラップウラン等の処理

報告者　転換技術開発課 [redacted]

1. はじめに

製錬転換パイロットプラントは昭和57年3月に運開し，6年間の試験運転を経て，昭和63年3月末に本格的な運転を終了した。この間に発生したスクラップウラン等は63年度から処理を実施し，製品UF_6として電力会社に売却を行ってきた。

平成2年度に実施した2級品UF_4の処理及び，UF_6の詰替精製処理について報告する。

2. 目　的

1) 6年間の天然ウラン運転中に発生した2級品UF_4を処理するため，あらたに粉砕設備を設け，既設の脱水工程，F_2ふっ化工程（フレームタワーを使用）を通してUF_6を製造する。

2) 極微量の不純物が混入しているUF_6（30Bシリンダに充填）を，F_2ふっ化炉（流動床炉）に導入しF_2ガスで不純物を分解し，精製処理する。

以上の処理を行ったUF_6を電力会社に売却，あるいは濃縮工場へ供給する。

3. スクラップウラン等の処理概要

1) 2級品UF_4は，ふっ化沈殿工程（図－1参照）で発生したものである。

主な発生原因

(1) 廃液中に含まれるUF_4の微結晶物がシックナー槽に沈積，滞留して固化した塊状物。

(2) 反応晶析槽，配管，各装置，にスケーリングした固形物。

これらの固形UF_4は，ビニール袋へ小分され200ℓのドラム缶に収納保管されている。大きい塊は直径が約30cmあり，非常に固くしかも水分を多く含んでいるため，通常の方法では処理できない。

2) 微量の不純物が混入しているUF_6は30Bシリンダーに充填され，保管されている。

4. 処理方法

1) 2級品UF_4の処理

2級品UF_4の処理フローを（図－2）に示す。

以下に処理方法をまとめる。

(1) UF_4をドラム缶から取出し，粉砕工程で塊状物を粗粉砕する。

(2) 水分の少ない粉体は脱水工程へ気流輸送し，水分の多い粉体は，乾燥機を経由し，脱水工程へ気流輸送する。

(3) 脱水工程では，含水UF_4を約400℃に加熱し，付着水，結晶水を除去し無水UF_4を生産する。

(4) 無水UF_4は，F_2ふっ化工程に気流輸送し，フレーム型F_2ふっ化炉でUF_6に転換，及び未反応粉体，未反応F_2は流動床炉により処理し，生成したUF_6はコールドトラップに捕集する。

(5) コールドトラップで捕集したUF_6は液化後，フィルタを経由し，30Bシリンダに充填し中間製品とする。

2) UF_6詰替精製

UF_6詰替精製の処理フローを示す。（図－3参照）

以下に処理方法をまとめる。

① 原料（不純物含有）30BシリンダをUF_6発生槽（A，B）に装荷，蒸気加熱しUF_6をガス化する。

② ガス化したUF_6は400℃に加熱した流動床型F_2ふっ化炉へ供給しF_2ふっ化する。（ここで極微量に含まれる不純物がUF_6から分離される）

③ UF_6は，コールドトラップに捕集されるが，分離した極微量の不純物は捕集されず排気系に排出する。

④ 精製，捕集したUF_6は製品UF_6としてコールドトラップで加熱，液化され48Yシリンダ又は30Bシリンダに充填し製品とする。

5. 結　果

1) 処理実績

2級品UF_4の処理，及びUF_6の詰替精製を行い，

(1)	高性能遠心機	73tU
(2)	DPランニングストック	24tU
(3)	九州電力売却用	33tU
(4)	三菱売却用	3tU

合計133tUのUF_6を生産した。

2) 問　題　点

(1)　2級品UF_4の処理

①　ドラム缶からUF_4を取出し，粉砕機に投入する機械設備の導入が出来ず，多大なマンパワーを必要とした。

②　固まりは微結晶が集合したものであり，粉砕，乾燥後のUF_4は，粉体物性（流動性）が悪く，分離層，流動床，配管内において閉塞が多発した。

(2)　UF_6詰替精製

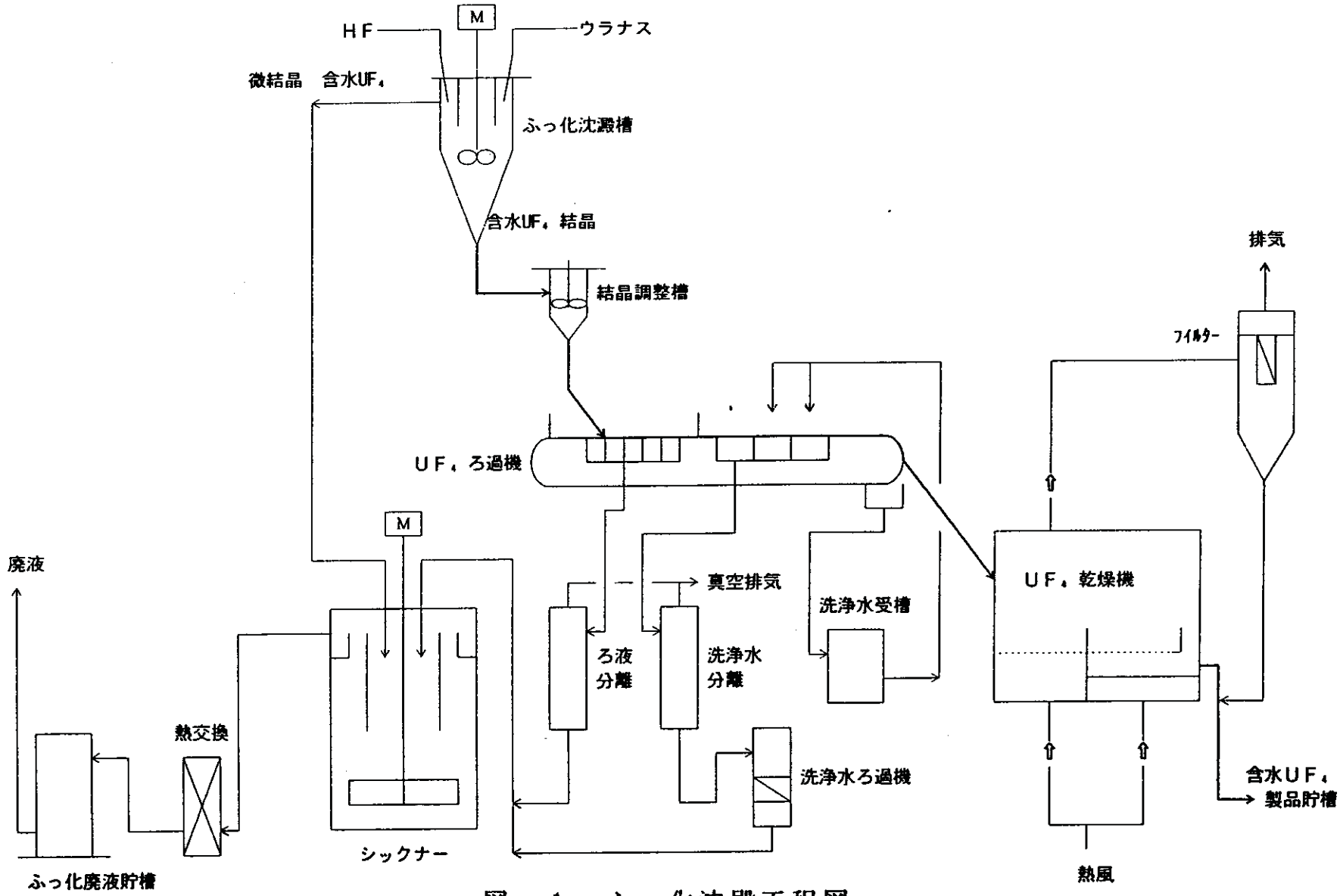
①　不純物を分離するため，過剰のF_2ガスを導入したため，未反応F_2ガス処理に吸着剤である活性アルミナを使用した。

②　F_2ガス供給調整が自動調整に出来なかった。

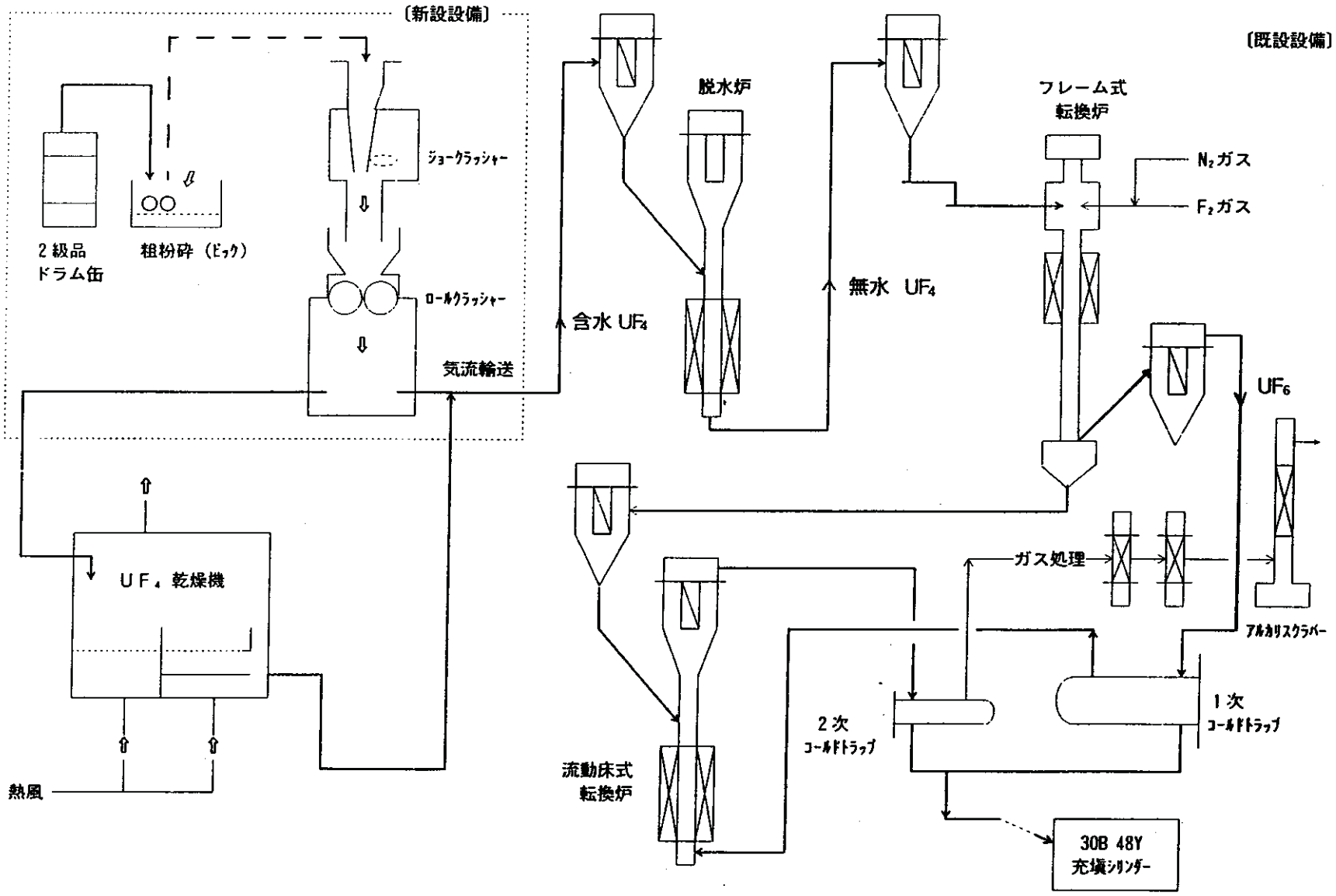
6.　今後の課題

1)　まだ施設内に残っている2級品UF_4の処理については，今後あらたな方法を開発する必要がある。

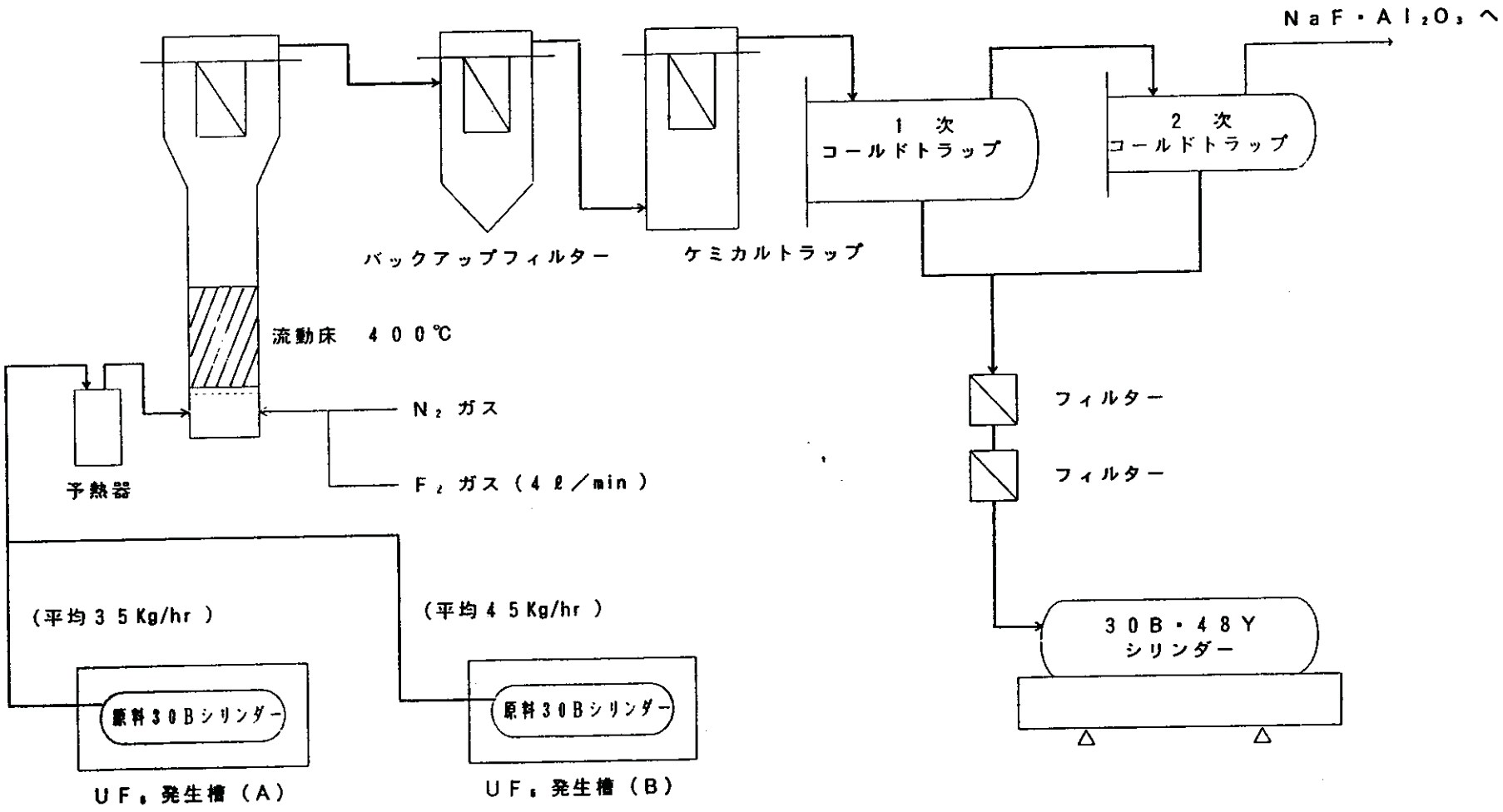
2)　同様に施設内に保管している使用済NaFから，ウランを回収するため，あらたに試験を実施する必要がある。


HF
ウラナス
M
微結晶
含水UF4
ふっ化沈澱槽
含水UF4 結晶
結晶調整槽
排気
フィルター
UF4 ろ過機
M
廃液
真空排気
洗浄水受槽
UF4 乾燥機
ろ液
分離
洗浄水
分離
熱交換
洗浄水ろ過機
含水UF4
製品貯槽
シックナー
ふっ化廃液貯槽
熱風

図－1　ふっ化沈殿工程図



図－2　2級品UF4処理フロー図



図－3　UF₆詰替精製処理フロー図

1－4　金属ウラン転換試験

報告者　転換技術開発課[　　]

1. 概　　要

金属ウラン転換基礎試験は，ＦＢＲ新型燃料技術開発の一環として，また，ウランレーザ濃縮技術開発（AVLIS法)試験用材料の製造法確立のために人形峠事業所転換技術開発課にて取り組んでいる研究開発のテーマのひとつである。

金属ウラン転換法について検討する場合，四フッ化ウラン（UF_4)，二酸化ウラン（UO_2)及び四塩化ウラン（UCl_4)の還元並びに溶融塩の電解を実現可能な方法として挙げることができる。この中，UF_4の還元は最も技術的に確立された方法であり，世界の主要各国において工業的に使用されている。UF_4の還元法としては，通常，Bomb Method（テルミット還元法ともいう）が用いられている。Bomb Methodとは，UF_4に還元剤を反応させ反応生成物として金属ウランとスラグを生成させる方法であり，還元剤には，金属マグネシウム（Mg）または金属カルシウム（Ca）を用いている。これは，MgやCaがウランと金属間化合物を作らず，また，フッ化物の生成自由エネルギーがウランのそれよりも高いためである。さらに，MgやCaは他の還元剤に比較して入手し易く，価格も比較的安価であり，かつ，取扱い易い等の利点もある。Bomb Methodにおける還元反応は瞬時にして起こり，この時発生する反応生成熱により反応生成物は溶融し，比重差により，金属ウランとスラグ（MgF_2)に分離される。金属ウランは冷却後，塊状で取り出すことができる。転換技術開発課では，これまでに従来法であるフッ化物還元法の確証試験を中心とした基礎試験を実施し，同法による金属ウラン転換最適条件の取得や熱挙動解析を行ってきた。しかしながら金属ウラン転換の材料には，通常使用されているウランフッ化物よりもウラン酸化物を用いた方が原料に近い形態で金属ウランに転換できるため，全体的な工程を考えた場合，ＨＦフッ化工程が省略化でき経済性や安全面における利点が大きいようである。そこで，ウラン酸化物の還元試験を実施し，同プロセスにて金属ウラン塊を製造する可能性についての検討を行うことにした。

2. 目　　的

ウラン酸化物の還元により金属ウラン塊を製造する技術が確立することにより，

(1) 従来法（フッ化物還元法）で原料として必要な四フッ化ウラン（UF_4）を製造するためのHFフッ化工程が不要となり，経済性及び安全性の向上，省力化等の効果が期待できる。

(2) 従来法（酸化物還元法）によるとウラン酸化物（UO_2等)を金属ウランに転換することは可

能であるが，回収率が極めて悪く，かつ，生成された金属ウランがスラグ中に粒状または粉体状で点在し，塊状にまとまらなかった。つまり，スラグ中の金属ウランの回収工程や酸化物還元によって発生したスラグの後処理工程を必要としていたが，これらの技術の確立により，工程を簡略化できる。さらに，同法で回収した金属ウランは，従来の粒状ウランの欠点（比表面積が大きいため空気等と反応し易く取扱い難い）が克服できる。等の観点よりウラン酸化物還元法の開発を行う。

同法の開発においては，昨年度，本試験のために設計・製作をした酸化物還元炉を用いて基礎試験を行い，金属ウラン塊生成の可能性を検討する。

3. ウラン酸化物還元における熱力学的考察

3.1 各種試料の反応生成熱

ウラン酸化物の還元を実施するにあたり，熱力学的に同還元が可能かどうかを考察してみる。本項では，まず，ウラン化合物の反応生成熱について，以下の試料と還元剤の反応についての検討を行い，さらに，プルトニウム化合物の反応生成熱についても算出してみた。なお，還元剤として，本考察では，カルシウム（以下，Caと記す。）及びマグネシウム(以下，Mgと記す。)を用いている。

(1) 四フッ化ウラン　（以下，UF_4 と記す。）

(2) 四フッ化プルトニウム（以下，PuF_4 と記す。）

(3) 二酸化ウラン　（以下，UO_2 と記す。）

(4) 二酸化プルトニウム　（以下，PuO_2 と記す。）

反応生成熱の算出にあたっては，「表－1　各種試料の反応生成熱(1)」の基礎データを用い，「表－2　各種試料の反応生成熱(2)」の結果を得た。

表－1より算出した「表－2　各種試料の反応生成熱(2)」より，各フッ化物と各酸化物の反応を比較した場合，フッ化物の還元反応が酸化物の還元反応と較べて，約3倍の反応生成熱が発生することがわかる。また，Caを還元剤として用いた方がMgよりも同モル当りの反応生成熱量が多いことがわかる。即ち，反応生成物の溶融分離を反応生成熱の観点より考えた場合，酸化物よりもフッ化物，MgよりもCaの方が有利であるようである。

表－1　各種試料の反応生成熱(1)　(at 25℃ (298K))

反応式	ΔH 反応生成熱 (kcal/g-mole)
(イ) $Mg + 1/2\ O_2 \longrightarrow MgO + \Delta H$	−143.84
(ロ) $Ca + 1/2\ O_2 \longrightarrow CaO + \Delta H$	−151.7
(ハ) $U + O_2 \longrightarrow UO_2 + \Delta H$	−259.2
(ニ) $Pu + O_2 \longrightarrow PuO_2 + \Delta H$	−246
(ホ) $Mg + F_2 \longrightarrow MgF_2 + \Delta H$	−263.5
(ヘ) $Ca + F_2 \longrightarrow CaF_2 + \Delta H$	−290.3
(ト) $U + 2F_2 \longrightarrow UF_4 + \Delta H$	−443
(チ) $Pu + 2F_2 \longrightarrow PuF_4 + \Delta H$	−424

表－2　各種試料の反応生成熱(2)　(at 25℃ (298K))

反応式	ΔH 反応生成熱 (kcal/g-mole)
(イ) $UF_4 + 2Mg \longrightarrow U + 2MgF_2$	− 84.02
(ロ) $UF_4 + 2Ca \longrightarrow U + 2CaF_2$	−137.6
(ハ) $PuF_4 + 2Mg \longrightarrow Pu + 2MgF_2$	−103.02
(ニ) $PuF_4 + 2Ca \longrightarrow Pu + 2CaF_2$	−156.6
(ホ) $UO_2 + 2Mg \longrightarrow U + 2MgO$	− 28.48
(ヘ) $UO_2 + 2Ca \longrightarrow U + 2CaO$	− 44.2
(ト) $PuO_2 + 2Mg \longrightarrow Pu + 2MgO$	− 41.68
(チ) $PuO_2 + 2Ca \longrightarrow Pu + 2CaO$	− 57.4

3.2　各種試料の生成自由エネルギー

3.1にて各種試料の反応生成熱に関する考察を行ったが，次に，各種試料の生成自由エネルギーを算出してみる。なお，本項においても3.1と同様の化合物についての検討を行う。（参考として，プルトニウム化合物の生成自由エネルギーについても算出してみた。）生成自由エネルギーの算出にあたっては，「表一3　各種試料の生成自由エネルギー(1)」の基礎データを用い，「表一4　各種試料の生成自由エネルギー(2)」の結果を得た。

「表一4　各種試料の生成自由エネルギー(2)」を用いて生成自由エネルギーの面から反応の起こり易さを考察するとフッ化物の還元反応が酸化物の還元反応よりも起こり易く，Caを還元剤として用いた方がMgよりも大きい生成自由エネルギーを得ることができることがわかる。

3.1及び3.2の結果を総合するとウラン化合物及びプルトニウム化合物のいずれの場合も，それらのフッ化物をCaにて還元する方法が最も効果的であるとみなすことができこのことは従来より金属ウラン製造においてよく知られている。

表－3　各種試料の生成自由エネルギー(1)

反　応　式	ΔG 生成自由エネルギー (kcal/g-mole)	
	25℃	1227℃
(イ) $Mg + 1/2\ O_2 \longrightarrow MgO + \Delta G$	−136	−102
(ロ) $Ca + 1/2\ O_2 \longrightarrow CaO + \Delta G$	−144	−115
(ハ) $U + O_2 \longrightarrow UO_2 + \Delta G$	−247	−198
(ニ) $Pu + O_2 \longrightarrow PuO_2 + \Delta G$	−234	−193
(ホ) $Mg + F_2 \longrightarrow MgF_2 + \Delta G$	−251	−198
(ヘ) $Ca + F_2 \longrightarrow CaF_2 + \Delta G$	−278	−230
(ト) $U + 2F_2 \longrightarrow UF_4 + \Delta G$	−422	−342
(チ) $Pu + 2F_2 \longrightarrow PuF_4 + \Delta G$	−403	−324

表－4　各種試料の生成自由エネルギー(2)　(at 1227℃(1500K))

反　応　式	ΔG 生成自由エネルギー (kcal/g-mole)
(イ) $UF_4 + 2Mg \longrightarrow U + 2MgF_2$	− 54
(ロ) $UF_4 + 2Ca \longrightarrow U + 2CaF_2$	−118
(ハ) $PuF_4 + 2Mg \longrightarrow Pu + 2MgF_2$	− 72
(ニ) $PuF_4 + 2Ca \longrightarrow Pu + 2CaF_2$	−136
(ホ) $UO_2 + 2Mg \longrightarrow U + 2MgO$	− 6
(ヘ) $UO_2 + 2Ca \longrightarrow U + 2CaO$	− 32
(ト) $PuO_2 + 2Mg \longrightarrow Pu + 2MgO$	− 24
(チ) $PuO_2 + 2Ca \longrightarrow Pu + 2CaO$	− 50

3.3　ウラン化合物還元における必要熱量

ここで，3.1及び3.2の基礎データを用いて，ウラン化合物がMgまたはCaと還元反応を起こした場合，外部よりどの程度の熱量を取り入れる必要があるかについて検討をしてみる。ウラン化合物としては，UF_4及びUO_2をその対象とする。　また，参考までにPuF_4およびPuO_2を還元するのに必要な熱量についても算出してみる。計算結果を「表－5　ウラン化合物還元における必要熱量」及び「表－6　プルトニウム化合物還元における必要熱量」に示す。

表－5　ウラン化合物還元における必要熱量

ウラン化合物の種類	UF_4	UF_4	UO_2	UO_2	UO_2	UO_2
還元剤の種類	Mg	Ca	Mg	Ca	Mg	Ca
ウランの融点 (℃)	1133	1133	1133	1133	1133	1133
スラグの融点 (℃)	1263	1418	2826	2572	1227*	1227*
必要熱量**(kcal／mole)	3.3	−39.5	143.1	72.8	56.6	−5.4
備考	*スラグが1227℃で溶融すると仮定した場合 **スラグの融点を反応熱により到達する最高温度として計算している。					

表－6　プルトニウム化合物還元における必要熱量

プルトニウム化合物の種類	PuF_4	PuF_4	PuO_2	PuO_2	PuO_2	PuO_2
還元剤の種類	Mg	Ca	Mg	Ca	Mg	Ca
プルトニウムの融点 (℃)	639.5	639.5	639.5	639.5	639.5	639.5
スラグの融点 (℃)	1263	1418	2826	2572	1227*	1227*
必要熱量**(kcal／mole)	−19.8	−62.8	124.6	53.9	3.8	−18.3
備考	*スラグが1227℃で溶融すると仮定した場合 **スラグの融点を反応熱により到達する最高温度として計算している。					

表－5及び表－6は，初期温度を25℃とした場合の，ウラン化合物またはプルトニウム化合物をMgまたはCaで還元した時に生ずる反応熱をまとめたものであり，同表によるとUF_4とCaの反応によって生ずる熱量は，同反応によって生成するUとスラグ（CaF_2）を溶融するのに十分であることがわかる。同様のことがPuF_4をCaで還元する場合にもいうことができる。即ち，UF_4またはPuF_4が理想状態でCaと反応すれば，外部加熱がなくとも，反応生成物であるUとCaF_2は溶融し，双方の比重差によって分離させることが可能である。しかしながら，表－5及び表－6の他の組合せでは，金属ウランを塊で生じせさしめるのに外部加熱を必要とし，例えば，UF_4とMgの反応においては，3.3 kcal/mole 以上の外部加熱を必要とする。また，表－1～表－6によると，ウラン酸化物やプルトニウム酸化物の還元も理論的には可能であるが，同還元で発生する反応生成物であるMgOやCaOの融点が極めて高く，かつ，UやPuとスラグを溶融するのに必要な熱量も大きいため，従来の技術を用いてUやPuを溶融分離することは非常に困難であるように見受けられる。

但し，表－5及び表－6で見られるように，スラグの融点をなんらかの方法により低下させることができれば，例えば，スラグの融点を1227℃と仮定した場合のUO_2とCaの反応における必要熱量のように反応生成物の溶融に外部加熱を必要としないケースを見出すことができる。

4. 酸化物還元炉の製作

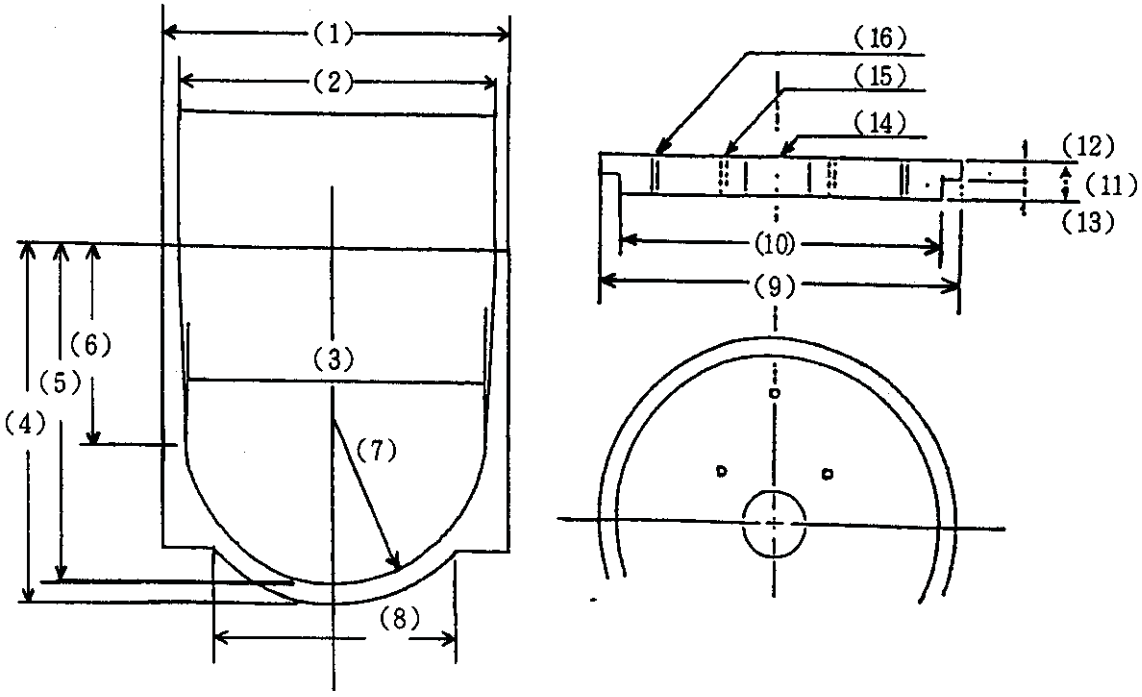
酸化物還元炉の製作にあたり各種耐熱材料を検討した結果，タングステンが入手し易く，また，加工も可能であるため，これを酸化物還元炉用るつぼの材料とした。

また，酸化物還元炉の加熱については，温度の制御性や操作性の良さから抵抗発熱体方式とする。抵抗発熱体としては，高速で高温を得るためタングステンを用いる。また，熱の反射板としてもタングステンを用いることとする。

以上の結論より製作したるつぼを図－1に，また，ウラン酸化物還元装置（以下，酸化物還元炉という。）を図－2に示す。同炉は，基礎試験装置であることから，1バッチ50 gU程度の金属Uを製造することを目標として製作を行う。反射板についてはタングステンが高価であることから，8枚の組合せの内，最も発熱体に近い3枚をタングステン板，次の3枚をモリブデン板，あまり熱の影響を受けない外側の2枚をステンレス（以下，SUSという。）板とする。

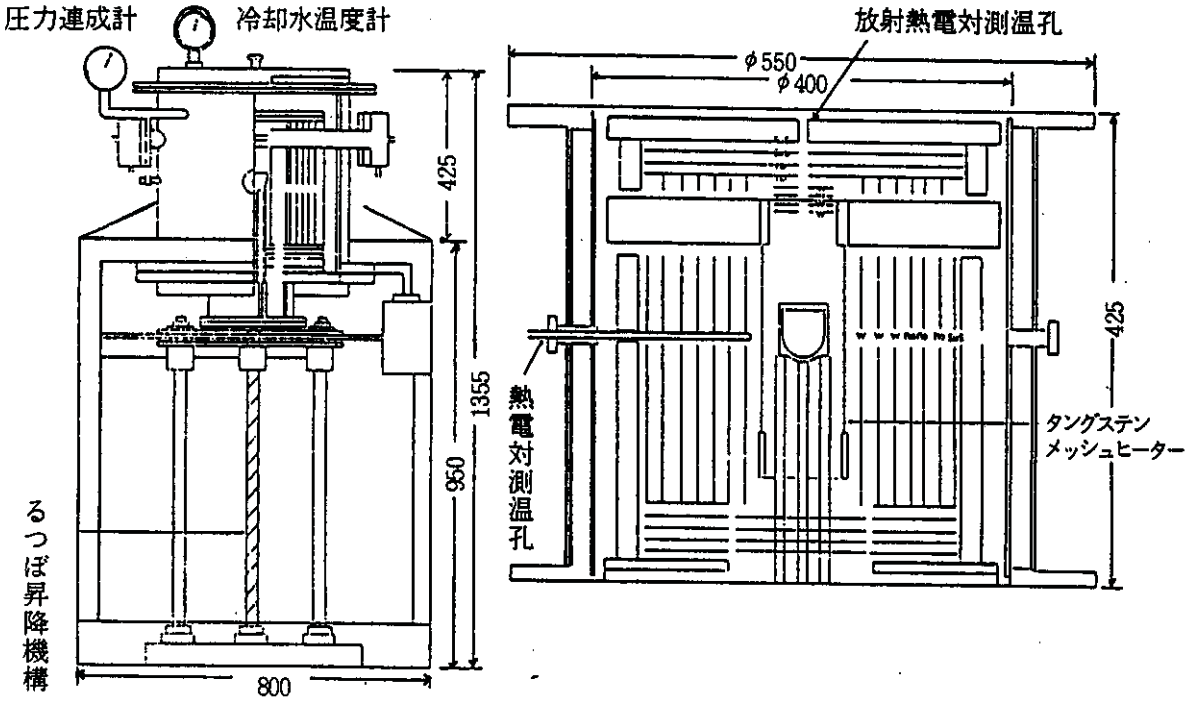
本酸化物還元炉は，最高2200℃までの昇温が可能であり，室温より，2000℃までの昇温速度は2000℃/時間である。

なお，本酸化物還元炉の製作は，当方の基本設計により「住友金属工業㈱」が実施した。



項　目	寸法(mm)	項　目	寸法(mm)	項　目	寸法(mm)	項　目	寸法(mm)
(1) 外　径	⌀56	(5) 有効高さ	50	(9) 外　径	⌀56	(13) 厚　み	3
(2) 内　径	⌀51	(6) 勾配高さ	30	(10) 外　径	⌀50	(14) 孔　径	⌀10
(3) 内　径	⌀49.5	(7) 底部R	R25	(11) 厚　み	6	(15) 孔　径	⌀ 0.5
(4) 高　さ	53.5	(8) 底　部	⌀40	(12) 厚　み	3	(16) 孔　径	⌀ 0.5

図－1　るつぼ概要図



全体図　　炉内詳細図

図－2　酸化物還元炉

5. ウラン化合物還元基礎試験

5.1 試験概要

これまでの文献・報告書等の検索結果によると，ウラン酸化物を還元し直接金属ウラン塊を得た報告は見当たらなかった。また，従来の技術によると，ウラン酸化物の還元により粒状や粉体の金属ウランを製造することはできるものの収率は上がらないようであった。その原因のひとつとして，同酸化物還元反応で生成されるスラグ（酸化カルシウム）の融点が約2572℃と非常に高く，それ故，金属ウランがスラグより分離できなかったことが考えられる。本ウラン酸化物還元基礎試験では，スラグ融点の高さに着目し，スラグの溶融温度を共融塩を使用することにより，金属ウランの融点である1133℃以下に下げてやり，酸化物還元反応によって生成した反応生成物を反応生成熱で溶融している間に液一液分離させ，金属ウラン塊を得ることを試みてみる。

5.2 共融塩の検討

酸化カルシウム（以下，CaOと記す。）を溶解する物質としては，塩化カルシウム（以下，$CaCl_2$と記す。）がよく知られているので本試験においてもこれを使用する。

また，共融塩については，その組み合わせと融点について，過去に動燃事業団で調査した資料をもとに500℃以下に融点があるものを抽出し，「表－7　共融塩の融点」にまとめた。

表－7　共融塩の融点

系，組成（下段は混合割合）	融　点（℃）
$CaCl_2$－LiCl－NaCl－$BaCl_2$ 10.6 ： 41.1 ： 8.9 ： 39.4	490
$CaCl_2$－NaCl－$BaCl_2$ 47.0 ： 38.0 ： 15.0	340
$CaCl_2$－LiCl－$BaCl_2$ 28.8 ： 54.1 ： 17.1	406
$CaCl_2$－LiCl－NaCl 34.2 ： 52.3 ： 13.5	440
$CaCl_2$－KCl－NaCl 50.0 ： 7.3 ： 42.7	465

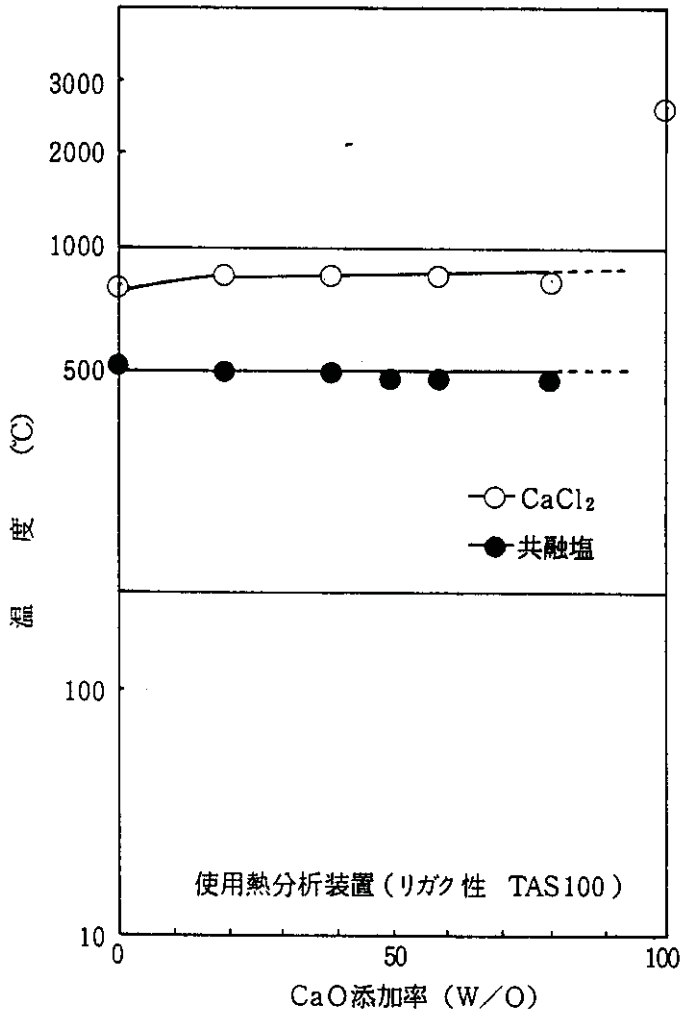
5.3　熱分析装置による酸化カルシウムの溶解試験

5.2で考慮したように，CaOの溶媒としては，$CaCl_2$が広く知られているおり，その融点は772℃である。本試験では，$CaCl_2$のCaOに対する溶媒としての効果について検討を行った。また，表―7より$CaCl_2$は，ある種のハライド化合物と混合することにより$CaCl_2$の融点以下の温度にて共融することがわかっているので，本試験においては，塩化リチウム(LiCl)―塩化ナトリウム（NaCl）―塩化バリウム（$BaCl_2$）の混合塩（以下，共融塩と称する)を共融剤として用い，$CaCl_2$の溶解特性との比較をしてみた。同溶解試験には，㈱リガク製の熱分析装置ＴＡＳ 100を使用した。図―3は，熱分析装置によりCaOと$CaCl_2$または，共融塩を混合した試料の融点を測定した結果である。同図によると，$CaCl_2$の場合，CaOを混合しないときはその融点である772℃付近で溶融しているがCaOを添加することにより融点が約800℃となる。このとき，CaOの添加率とは関係なく800℃付近で溶融しているようである。次に，共融塩の場合は，CaOを添加しないときは約500℃で溶融するがCaOを添加することにより480℃付近で溶融しているようである。これについてもCaOの添加率による温度変化は見受けられなかった。

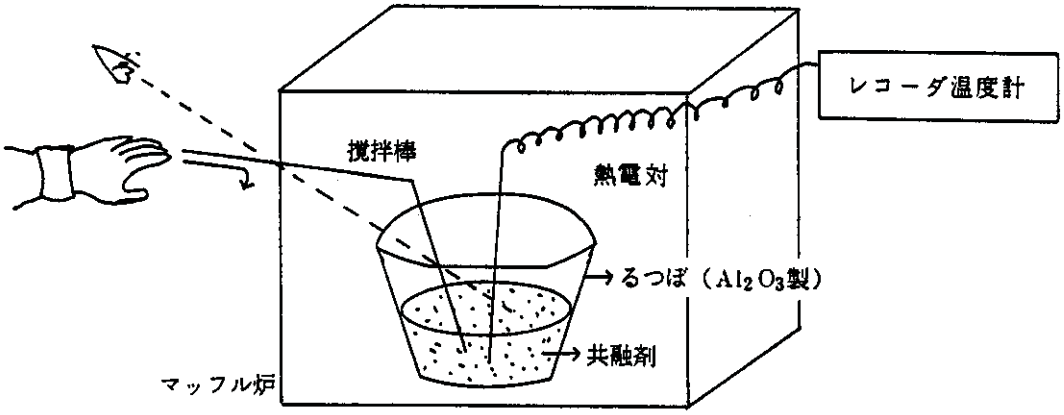
5.4　目視による酸化カルシウムの溶解試験

熱分析装置によるCaO溶解試験の結果，$CaCl_2$をCaOの溶媒として用いた場合，CaOの添加率に関係なく800℃付近でCaOを溶融しているようであり，また，共融塩をCaOの溶媒として用いた場合，CaOの添加率に関係なく480℃付近で溶融しているような傾向をみることができた。しかしながら，このような傾向は，CaOの溶解時の熱を本熱分析装置では十分に観測することができず，CaOの$CaCl_2$に対する溶解率はある一定量で飽和となるため，融点の変化が生じなくなっていると考えた方が良いようである。このような観点に基づき図―4に示すような方法にて$CaCl_2$の溶解に関する目視観察を行ってみた。なお，図―4の目視観察については，一定の割合で混合したCaOと共融塩を詰めたアルミナるつぼを通常のマッフル炉にて加熱していく方法をとった。このとき，溶融状態や温度を観察項目とし，るつぼ内の試料が透明となる温度をCaOの溶解終了点とした。その結果を「図―5　目視による融点観察」に示す。同図によると，共融塩はCaOを添加しないとき約450℃にて透明となり，同温度が共融塩の融点と考えられる。熱分析装置による融点測定結果との間に20℃の差があるが，熱分析装置による測定精度の方が極めて高いことを考えると，これは，測定誤差であるように思われる。CaOの添加率を40％としたとき目視によると約500℃で透明となった。なお，目視観察によると，約450℃で試料は半透明のゾル状になっているので，熱分析装置にて観

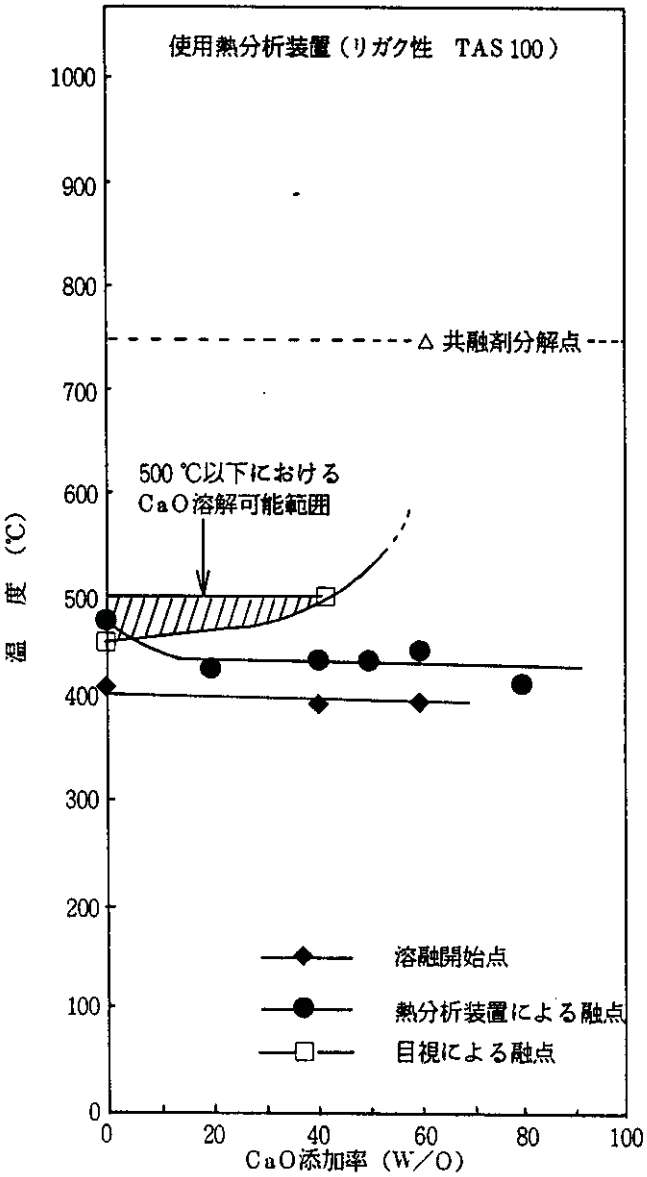
測された融点はこのときの温度であるように推察される。CaOの添加率を60％としたとき，目視によると常温より約750℃までの温度勾配において透明となることはなかった。即ち，温度を高めてやることにより，450℃付近で試料は半透明のゾル状になりはするものの透明になることはなく，約750℃で共融塩が分解を始め，気体が発生することを確認できる。これは共融塩中の塩化ナトリウム（融点804℃）が分解を開始したものであるようである。750℃を越すと共融塩の分解は激しくなり，最終的には固化してしまう。よって，共融塩を本試験に用いる場合，750℃以下に温度設定をしておく必要がある。ウラン酸化物還元基礎試験では，同試験にて発生するスラグをできる限り低い温度，つまり，UO_2とC が反応を開始する前の温度である500℃以下にて溶融することを目標の一つとしているので，図―6よりCaOの溶解可能範囲を検討してみると，斜線の範囲，つまり，CaO添加率0～40％の範囲であることがわかる。



図－3　熱分析装置による融点測定



図－4　目視観察方法



図－5　目視によるCaO融点観察

5.5 酸化物還元炉を用いたウラン酸化物還元基礎試験

5.2～5.4の結果を踏まえ，転換技術開発課にて製作した酸化物還元炉を用いてウラン酸化物還元基礎試験を行った。その結果について以下に述べる。

(1) 試薬及び装置（試薬は十分に脱水したものを使用する。）

① 試薬：(イ) 二酸化ウラン　（転換技術開発課にて製造したもの）

(ロ) 金属カルシウム　（昭和電工㈱製）

(ハ) 無水塩化カルシウム　試薬特級（和光純薬㈱製）

(ニ) 塩化バリウム　試薬特級（和光純薬㈱製）

(ホ) 無水塩化リチウム　試薬特級（和光純薬㈱製）

(ヘ) 塩化ナトリウム　試薬特級（和光純薬㈱製）

② 装置名称：酸化物還元炉（図－3　酸化物還元炉概略図参照）

③ 装置構成：(イ) 酸化物還元炉本体

(ロ) 真空排気系設備

(ハ) 雰囲気ガス・冷却系設備

(ニ) 計装・制御装置

④ 装置詳細：酸化物還元炉本体及び真空排気系設備

(イ) 酸化物還元炉本体（性能等を下表に示す。）

	本　体	るつぼ	ヒ　ー　タ	リフレクター
形　式	円筒竪型	円筒竪型	円筒竪型	円筒竪型
材　質	SUS－304	タングステン	タングステンメッシュ	タングステン(W)とモリブデン(Mo)の組合せ
内　寸	400φ×425H	50φ×50H	85φ×250H	――――
その他	昇温範囲2200℃	――	容量：40KW	――――

(ロ) 真空排気系設備（性能等を下表に示す。）

	真空ポンプ
形　式	回転ポンプ
排気速度	500 ℓ/min
到達真空度	10^{-3} torr
空炉到達真空度	10^{-2} torr

(2) ウラン酸化物還元基礎試験還元条件

① 使用ウラン量：50g ・UO_2

② 使 用 Ca 量：17.1g

③ 共融塩使用量：31.8g

④ 共融塩混合率：$CaCl_2$：$BaCl_2$：NaCl ：LiCl（10.6 ：39.4 ：8.9 ：41.1）

(3) 昇温条件

昇温条件を以下のような仮定のもとに決定した。

仮 定

① 「表－7 共融塩の融点」より，共融塩は約490℃で溶融する。

② 共融塩はアルカリ金属及びアルカリ土類金属のハライド化合物であるのでCaも，共融塩中に約490℃で溶融する。

③ Caが溶融する点，即ち，約490℃でUO_2の還元反応が開始する。

④ 還元反応による反応生成熱が反応生成物の溶融に有効に消費される必要がある。つまり，反応物の系を490℃付近まで均等に加熱する。

⑤ 反応生成熱の損失を極力抑えるように，490℃付近より急速に加熱してやればよい。

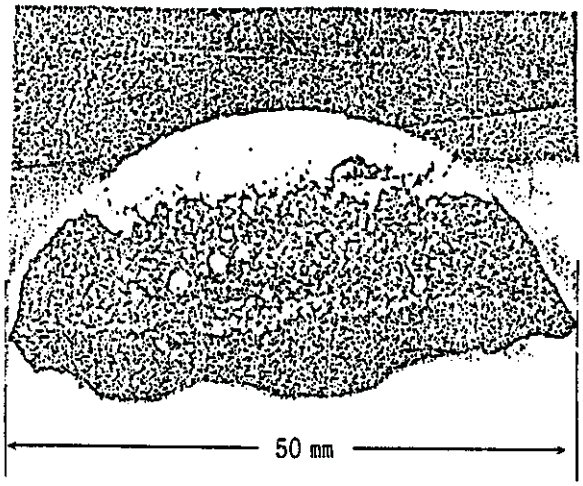
昇温条件

① 室温より約450℃付近まで徐々（2時間程度）に加熱する。

② 450℃より，1500℃まで15分間で加熱する。（酸化物還元炉の最大能力）

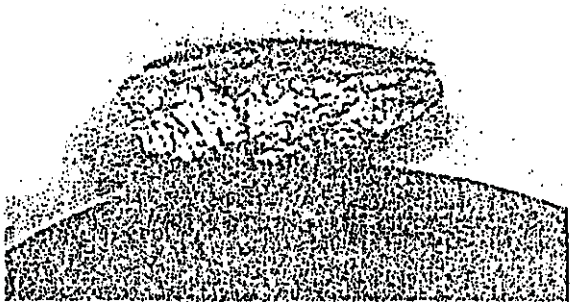
(4) ウラン酸化物還元基礎試験結果

4.5(1)の試薬及び装置を用いて，4.5(2)の条件にてウラン酸化物還元基礎試験を行った結果，「生成した金属ウラン（写真）」に見られるような金属ウラン塊を生成することができた。同写真(A)は，タングステンるつぼより取り出した直後の写真であり，(B)は，スラグを取り除いた写真，(C)は(B)を基礎試験用アーク炉にて再溶融させ冷却した後の写真であり，銀色の光沢があることがわかる。同ウラン塊の重量は33.4gであるので，ウラン塊収率は，約75.8%となる。

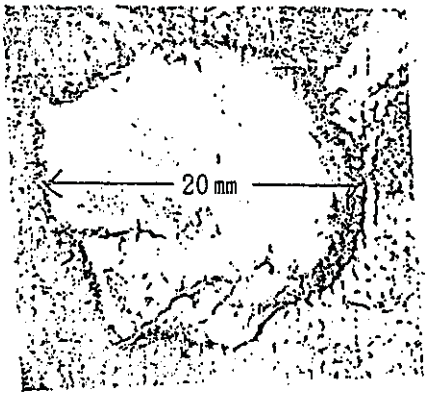


(A) 金属ウラン転換直後，るつぼより取り出した写真。

（上部に白く見られるのが生成された金属ウランであり，下部の黒い部分はスラグである。）



(B) (A)の試料よりスラグを取り除いた写真。



(C) (B)の試料を基礎試験用アーク炉にて溶解精製した写真。

（溶解精製することにより銀色の光沢を持った金属ウランを得ることができる。）

写真－1　生成した金属ウラン

1－5　溶融塩電解精製試験

報告者　転換技術開発課

1. はじめに

動燃事業団が実施しているＦＢＲ新型燃料技術開発において，転換技術開発課では使用済金属燃料の乾式再処理技術開発を推進している。平成２年度は，乾式再処理法の中心となる溶融塩電解精製基礎試験装置の設計及び製作を行った。更に，同装置の試運転として，カドミウムへのウラン溶解試験を行い予察的データを取得した。また，試運転で得た知見をもとに，溶融塩電解基礎試験PHASE 1として，金属ウランの電析試験を行い陰極表面に金属ウランの結晶を析出させた。

2. 溶融塩電解精製法の概要

乾式再処理に用いる溶融塩電解精製法の概略を図－１に示す。溶融塩電解精製には，二層構造の浴を使用している。即ち，同図にみられるように上層は塩化リチウムと塩化カリウムの混合塩より成り，下層は金属カドミウムより構成されている。運転時の温度は，通常約500℃に設定されており，同温度において，浴は上下層とも溶融している。

処理する使用済燃料は，浴中に投入される。この時，使用済燃料の構成元素の内カドミウムに対して高い溶解度を持つウラン，プルトニウム，ジルコニウムや稀土類金属，貴金属，核分裂生成物（Rh，Pd等），超ウラン元素（Cm等）は，カドミウム中に溶け出し，また，溶解度の低い被覆管材（Fe，Mo，Cr等）等の元素は不溶融解残渣として電解精製槽底部に留まる。なおウランのカドミウムに対する溶解度は，500℃において約1.1mol％である。（図－１の①の過程）

次に，混合塩浴中にウランより塩化物生成エネルギーの小さい塩化物（$CdCl_2$等）を添加することにより，カドミウムに溶解した元素の内，塩化物生成エネルギーの大きいウラン，プルトニウム，ジルコニウムや稀土類金属，超ウラン元素（Cm等）を塩化物として，上層の混合塩浴へ移動させる。（図－１の②の過程）その後，陽極（カドミウム浴が陽極となる。），陰極間に電圧をかけ，酸化還元電位の差を利用してウラン及びプルトニウム等を陽極から陰極へ電解精製する。（図－１の①，②，③の過程）

以上のように，本再処理法は，各元素の溶解度及び酸化還元電位の差を利用して，使用済金属燃料中の元素の分離を行い，ウラン及びプルトニウムを精製回収するものである。

3. 溶融塩電解精製基礎試験装置の概要

溶融塩電解基礎試験装置の概要を図－2に，電解槽及び電気炉部分の詳細を図－3に示す。装置は

・電解精製系（電解槽・電気炉）を収納するグローブボックス

・グローブボックス内部の雰囲気（Ar雰囲気）を制御するガス精製装置

・電気炉温度・電流・電圧を測定制御する制御装置

より構成されている。装置の主要な仕様を表－1に示す。

電解精製系の概略を図－3に示す。

電解槽（低炭素鋼製 or アルミナ製）の中に電極として，低炭素鋼製の陰極，陽極及びAg^{+}/Ag基準電極が，装着されている。また，電解槽には熱電対が装着されておりカドミウム層及び混合塩層の温度が測定できる。さらに撹拌機により電解内を撹拌できる（最大10 rpm)構造となっている。

4. 試　　験

4.1 溶融塩電解基礎試験装置試運転（ウラン溶解試験）

4.1.1 概　　要

溶融塩電解基礎試験装置の試運転としてカドミウム中へのウラン溶解試験を試み，電解槽内の昇温状況，混合塩の状態，ウランの溶解状況を観察した。溶解試験条件を表－2に示す。

4.1.2 結果及び考察

(1) 装置の作動状況については，ヒーター温度560℃で加熱したところ，約4～5時間るつぼ内を500℃で安定させることができ，その他グローブボックス内雰囲気についても安定した状態で作動させることができた。

(2) 混合塩の変色（黒紫色）が観察された。混合塩を分析したところ0.016㎎の鉄（Fe）を確認した。Feの混入の原因としては，

(a) 塩化物中の水分の存在による鉄材質（るつぼ，電極等）の腐食

(b) るつぼ内壁，電極表面の鉄酸化物の存在

等が原因として考えられる。

(3) カドミウムへのウランの溶解量は，約7時間の溶解で文献による飽和溶解量の約半分の溶解であり，カドミウムへのウラン溶解速度は非常に緩慢であることが伺えた。

4.2 ウラン電析試験

4.2.1 概　要

溶融塩電解基礎試験装置の試運転で得られた知見を基に，ウランの電析を目的とした試験を行った。試験は，

(1) 器具・試薬前処理

(2) カドミウムへのウラン溶解

(3) 混合塩中での三塩化ウランの生成

(4) ウランの電析

の過程を経て行い，それらの過程において

(a) カドミウムへのウランの溶解速度

(b) 三塩化ウランの生成速度

(c) ウランの還元電位

(d) ウラン還元に於ける電流効率

等のデータを採取することとした。

4.2.2 結果及び考察

(1) ウランの溶解速度

試験は4バッチ（4日間）に分けて24時間に渡り行った。試験条件及び試験結果を図－4に示す。

試験の結果より，カドミウムへのウランの溶解は，溶解開始後1時間以内に急激に起こり，その後，徐々に溶解速度を鈍らせながら約20時間かけて飽和濃度（約1.1 mol %）近くに達することがわかった。溶解速度が減少していく原因としては，

① カドミウム中のウラン濃度が上昇し平衡に近づくため溶解速度が減少する。

② 金属ウランの比表面積が減少するために単位時間当たりの溶解量が減少する。

等が考えられる。

(2) 三塩化ウランの生成速度

混合塩中での三塩化ウランの生成は，下記の反応により行う。

$$U + 3/2 CdCl_2 \rightarrow UCl_3 + 3/2 Cd$$

試験条件及び反応の進行状態を図－5に示す。上記の反応が進行し混合塩中の$CdCl_2$量が減少するにつれてUCl_3量が増加していくのがわかる。本試験では約5時間で反応が終了した。

(3) ウランの還元電位

ポテンショスタット，基準電極（Ag^+／Ag）を用いた3電極方式によりボルタンメトリーを行い，ウランの還元電位を測定した。典型的な電流一電圧曲線を図－6に示す。このような電流一電圧曲線における還元電流の立ち上がりを観察することにより，還元電位を確認することができる。本試験では，ウランの還元電流測定を電位の走査速度等を変化させながら17バッチ測定を行った。結果を表－3に示す。

測定の結果，ウランの還元電位は500℃において，－1.39～－1.45Vの範囲に入ることが確認できた。文献によれば，450℃に於けるウランの還元電位は－1.496であるが，還元電位はネルンストの式に従う事から，試験温度及び塩中のウラン濃度が異なることを考慮すれば，非常に近似した値であると考えられる。

(4) ウラン還元に於ける電流効率

ボルタンメトリーを行う際，陰極に流した還元電流によりウランを電析回収することができた。ウランは，陰極上に図－7に示すような針状結晶として析出した。このウラン電析回収に於ける通電量，ウラン回収量，電流効率の一例を表－4に示す。ウランの電析回収量は電解槽及び電極の形状・サイズにより規制され，本試験では最大7.08gであった。また電流効率は，69％程度であった。電流効率については，外部で報告されている値より低いが，その原因として

① 電解槽より金属ウランを回収する際のウラン結晶の落脱

② 通電量を測定する際，電解槽からの漏れ電流を測定してしまい通電量を過大評価したこと

等が考えられる。

5. まとめ

カドミウムへのウラン溶解試験及びウラン電析試験の結果より以下の知見が得られた。

(1) 溶融塩電解基礎試験装置は，試験温度（500℃）で安定運転することができる。

(2) 塩化物の脱水法として真空乾燥を試みたが，完全な脱水はできなかった。今後塩化水素等による脱水を試みる必要がある。

(3) カドミウムへのウランの溶解速度は極めて緩慢であり，飽和濃度まで溶解するには30時間以上を要す。

(4) 塩化カドミウムとウランの反応による三塩化ウランの生成反応は，約5時間で終了する。

(5) ウランの還元電位は，基準電極に対して－1.39～－1.45Vであることを確認した。

(6) 本装置で電解精製プロセスを踏むことによりウランを電析回収できることを確認した。また，1バッチあたりのウラン電析量は約7gであるが，今後電極形状の改良により精製量を増やせる可能性がある。

(7) 本試験でのウラン電解精製試験に於ける電流効率は，約70%であった。今後，効率（回収率）向上のために漏洩電流の除去・精製後のウラン回収法についての検討が必要である。

6. 今後の予定

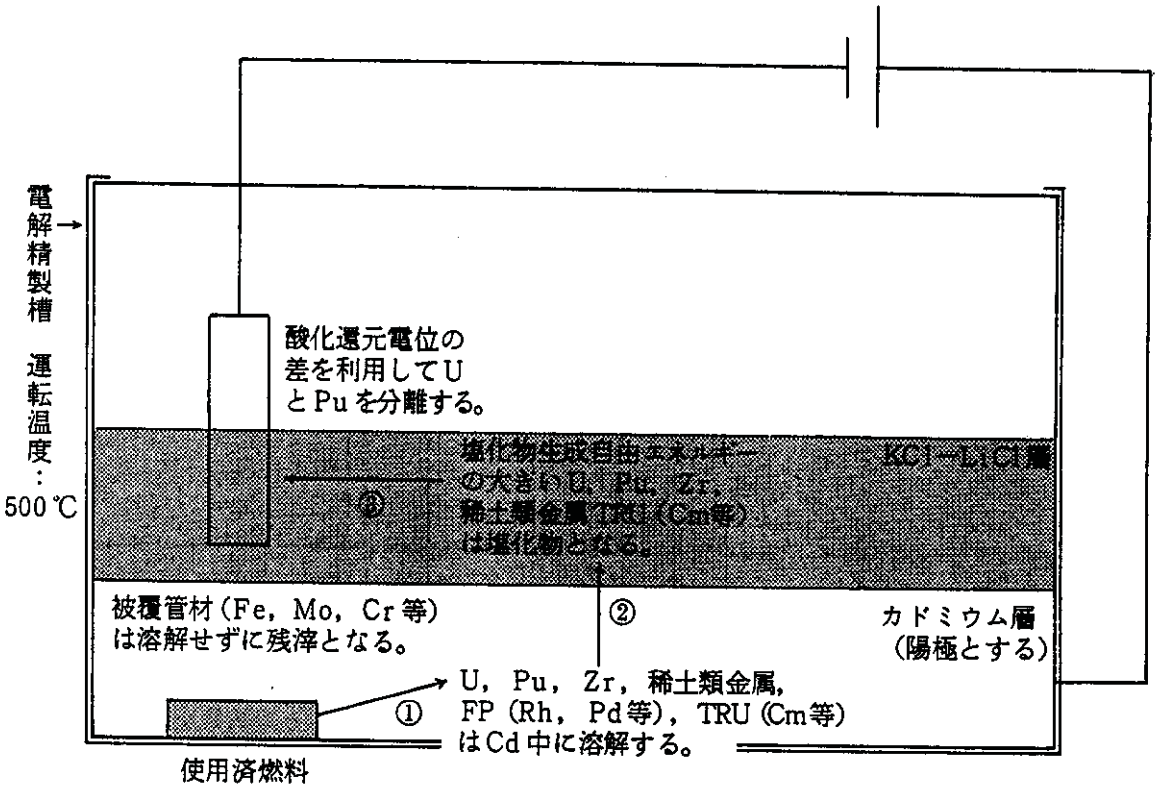
主たる試験については，新型燃料技術開発計画に基づき実施する。即ち，

(1) FP，TRUの挙動調査（模擬試料使用）

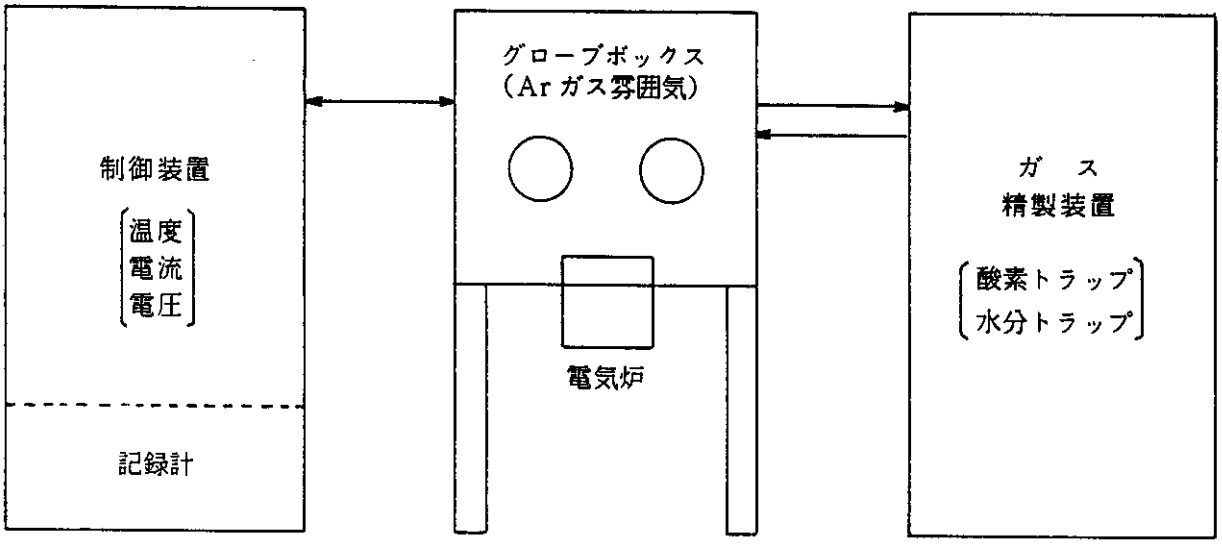
(2) ウラン回収率の向上

(3) 全体システムの評価

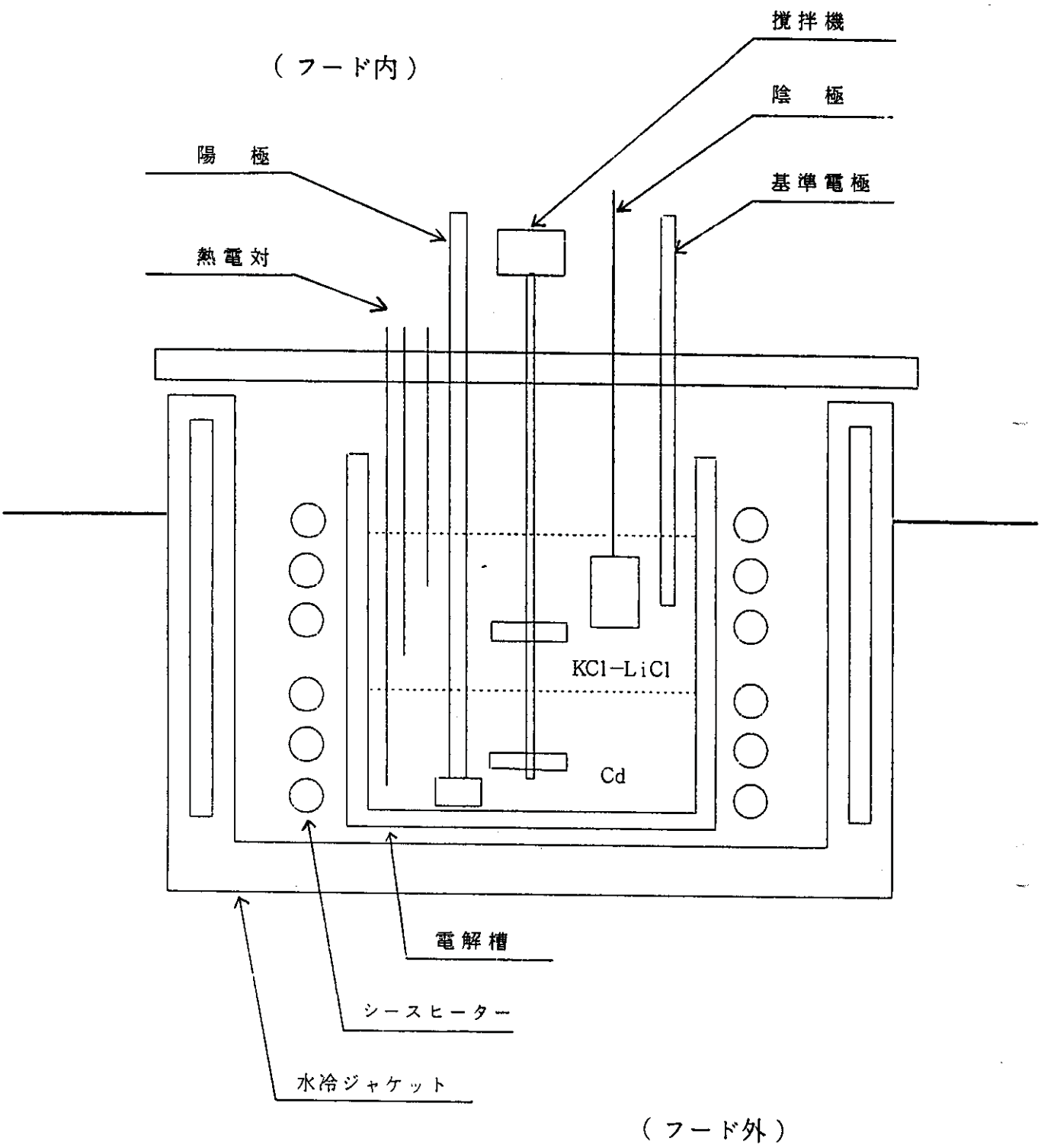
(4) MOX燃料，窒化物燃料への適用等に関する試験を行う予定である。



図－1　溶融塩電解精製概要



図－2　溶融塩電解精製基礎試験装置概要



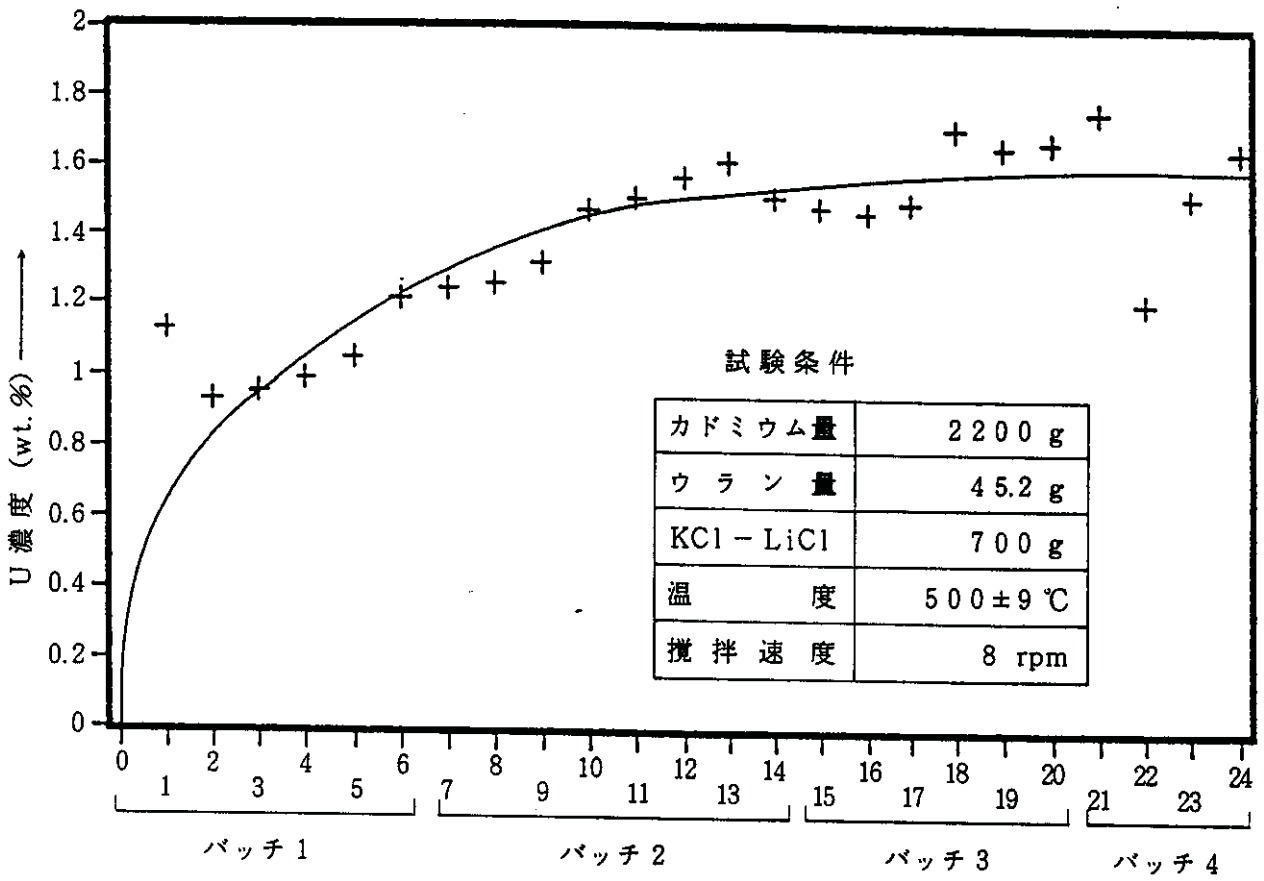
図－3　溶融塩電解精製系概略図

表－1　溶融塩電解精製基礎試験装置仕様

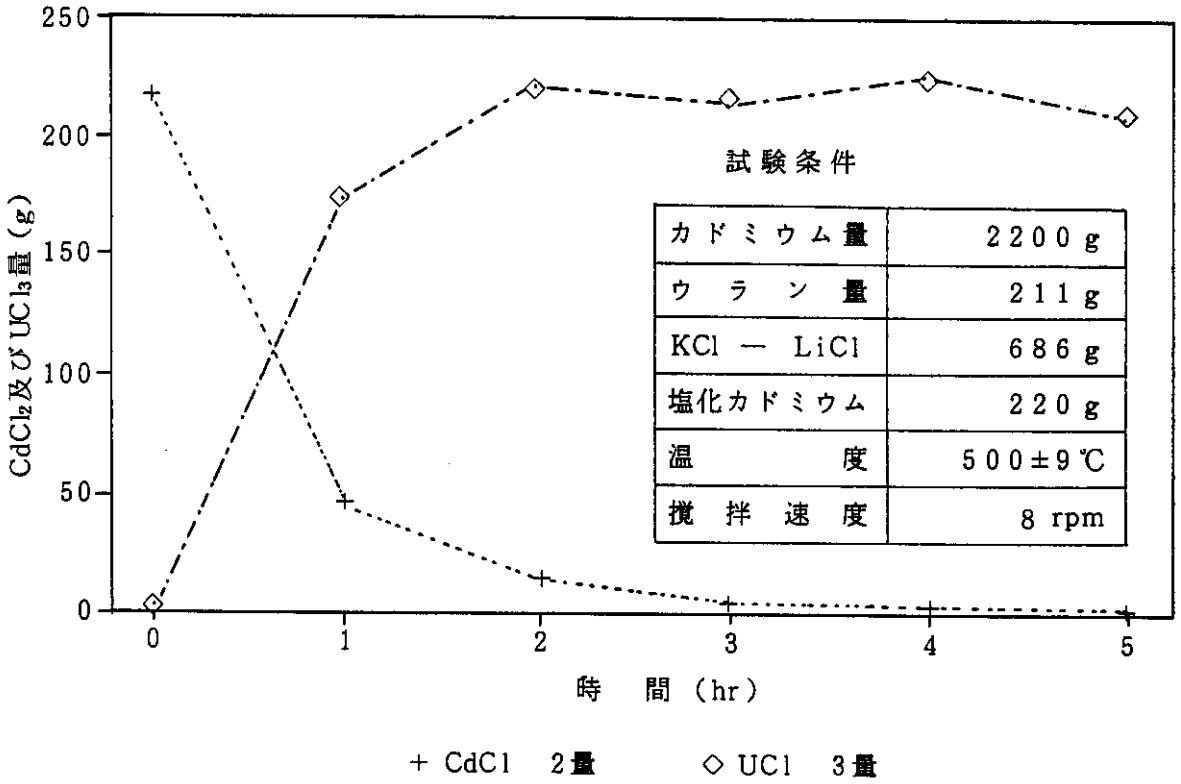
	仕　　様
フード内酸素	0.01 ppm
フード内水分	4×10^{-2} ppm
最大電流	20A
最大電圧	10V
最大温度	500℃
最大U処理量	10g

表－2　ウラン溶解試験条件

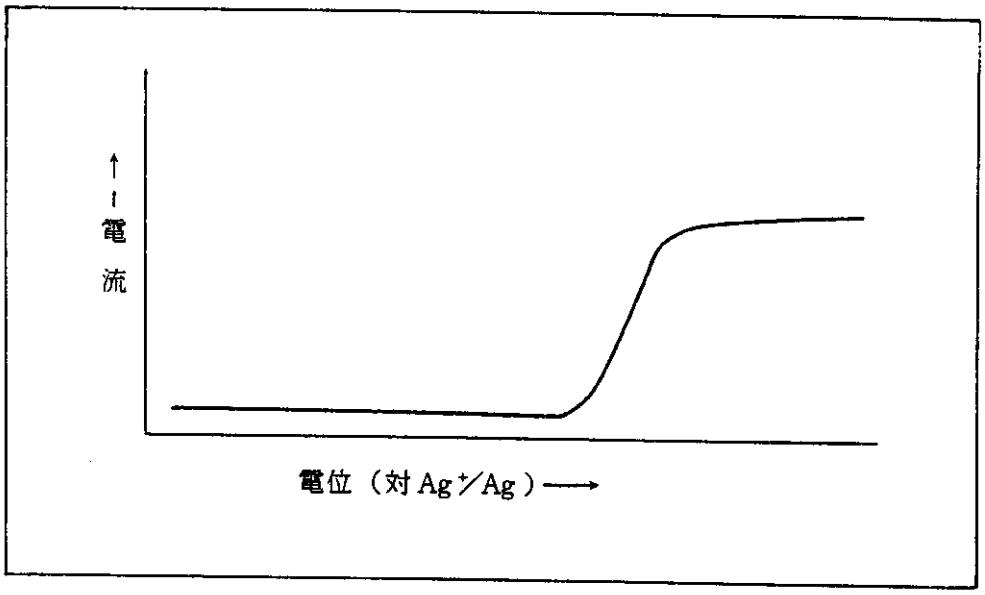
KCl－LiCl (41：59 mol%)	700g
Cd	2100g
U	48.9g
温　　度	500±5℃
撹拌速度	8 rpm
溶解時間	7時間



図－4　ウラン溶解試験結果
（カドミウム中のウラン量変化）



図－5　三塩化ウラン生成試験結果
（混合塩中のUCl_3量$CdCl_2$量の経時変化）

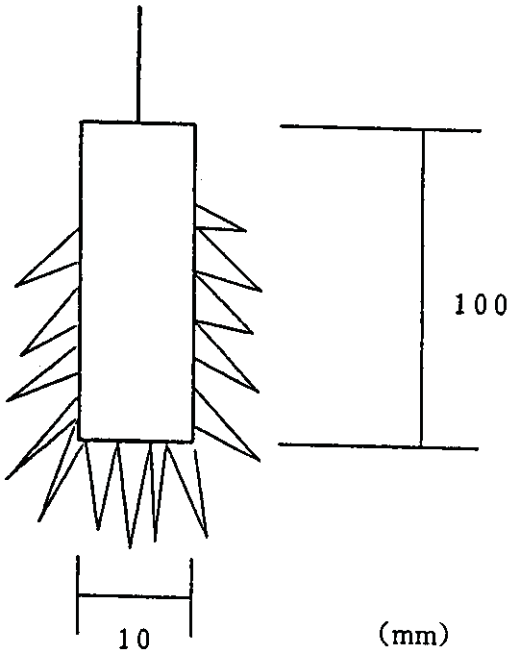


図－6　理想的な電流－電圧曲線

表－3　ウランの還元電流測定結果

（500℃）

試験 No.	走査速度 (mV／min)	ウラン還元電位 (対 Ag^+／Ag：V)	文献値
1 ～ 17	30 (MIN) ～ 1000 (MAX)	−1.39 (MIN) ～ −1.45 (MAX)	温度：450℃ 標準状態において −1.496



図－7　ウラン電析状態

表－4　ウラン電解精製に於ける電流効率

試験No.	通　電　量 (C)	金属ウラン回収量 (g)	電 流 効 率 (%)
RUN 2	9294	5.22	68.3
RUN 3	12327	7.08	69.8

1－6　核種分離試験「電気泳動法」

報告者　転換技術開発課

1. はじめに

使用済燃料の再処理過程で発生する高レベル廃液（以下，ＨＬＷと略す。）には，Rh，Pd，希土類等の有用な元素やSr 90，Cs 137，ＴＲＵ等の長半減期核種が含まれている。ＨＬＷの資源化と処分負担の軽減化のための分離回収技術の開発（オメガ計画）が求められており，当課でも，模擬廃液等を用いて分離回収技術開発のための検討を行っている。

前年度までに，湿式法（溶媒抽出，沈殿，イオン交換）による分離回収試験結果やふっ化揮発分離法の概念等について報告した。本年度は，新分離技術の一つとして検討を進めている電気泳動法について，原理と一次元装置による分離基礎試験結果を報告する。

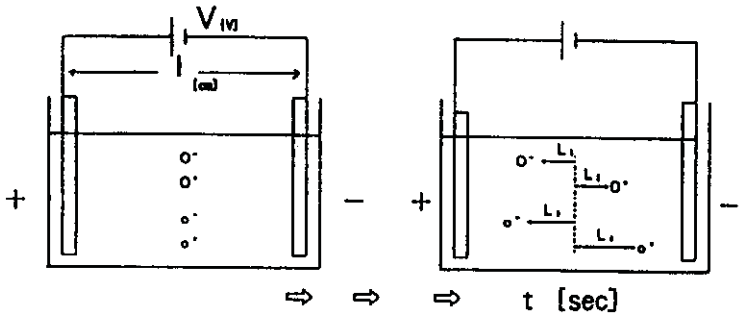
2. 目　的

ＨＬＷからの元素分離回収法として，電気泳動法の適用性について評価する。

3. 原　理

溶液に存在するイオン性物質に電場が与えられるとイオン性物質は，荷電状態と反対極の方向に移動する。(図３－１参照）イオンの移動速度を電気泳動移動(Electrophoretic mobilty：移動度と略す。)と呼び，イオンの移動速度(V)は，移動度(m)と電位勾配(E)の積で表わせる。

$$V = m \times E \quad \text{———} \quad ①$$



$$L = \overline{m} E t$$

L：イオンの移動距離〔cm〕
$\overline{m}$：実効移動度〔cm²／Vsec〕
E＝V／1：電位勾配〔V／cm〕

図３－１　電気泳動法の原理

移動度は，イオンの電荷，イオンサイズ，分子量，溶媒（電解液）の誘電率，pH，錯形成剤の影響を受け，金属イオンの場合には，錯形成剤の影響が大きい（錯体効果）。イオンの移動速度の差を利用して元素を分離する方法が電気泳動分離法である。代表的な電気泳動分離法には，ゾーン法と等速法がある。等速法では，移動速度の異なる２種類の電解液（リーディング液とターミナル液）を使用する。

4. 試　　験

4.1　試験装置

図4－1に試験装置の概略図を示す。注入された試料は，内径0.5㎜のカラムで元素分離が行われる。分離された試料は，押出ポンプからの液（リーディング液）でカットされ，それをフラクションコレクターで受け取る仕組みとなっている。なお，本装置は広島大学（木曽研究室）製である。

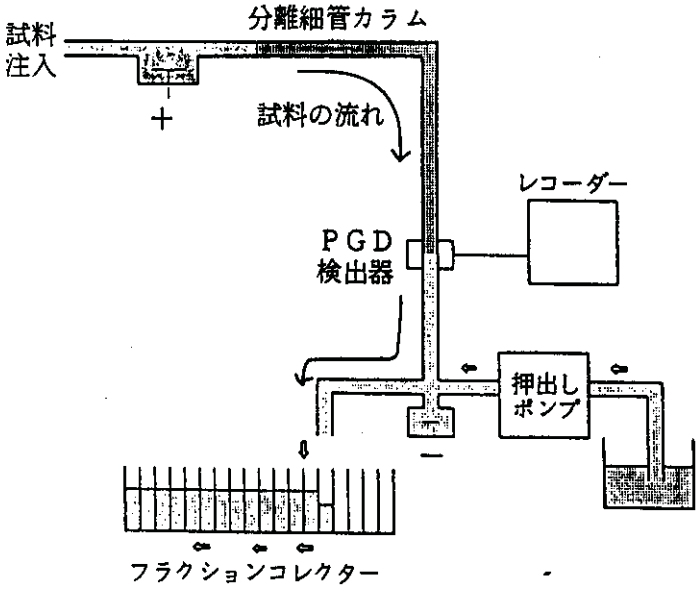


図4－1　試験装置概略

4.2　電　解　液

本試験に用いた電解液の組織を表4－1に示す。

表4－1　電　解　液

電解液系	リーディング電解液(L)	ターミナル電解液(T)
HCl	10 mM　HCl ca　pH＝2 0.1wt %　HPC	10 mM　塩酸カルニチン 0.1 wt %　HPC
NH_4Ac －HIB	20 mM　NH_3溶液 10 mM　HIB pH＝4.80 (Acetate) 0.1wt %　HPC	20 mM　塩酸カルニチン 0.1 wt %　HPC

注　HIB＝α－ヒドロキシイソ酪酸
　　HPC＝ヒドロキシプロピルセルロース

4.3 試　料

分離試験用の試料は，平成元年度に調整した模擬廃液（表４－２）を蒸発乾固・再溶解し，酸濃度と金属イオン濃度を電気泳動条件（pH約３，金属イオン濃度約26 m mol／ℓ）に合わせた。

表４－２　模擬液組成及び調整用試薬

元素	HLW濃度計算値 8.3 m³/t U	試薬	試薬溶解量		溶解ロ過後濃度（実測値）		備考 再：再処理時混入 増：測定限界まで増量 沈：溶解時沈殿
	mg／l		g／l	mg／l	g／l	mg／l	（元素グループ）
Na	3760	$NaNO_3$	13.91		3.76		アルカリ金属　再
Rb	61.3	$RbNO_3$	0.106			93.1	
Cs	453	$CsNO_3$	0.663			81.4	
Sr	142	$Sr(NO_3)_2$	0.345		0.143		アルカリ土類金属
Ba	306	$Ba(NO_3)_2$	0.585		0.286		
Ru	340	$RuCl_2$　HNO_3置換	0.579		0.24		
Rh	70.7	$Rh(NO_3)_2$	0.199			63.4	白金族金属
Pd	248	$Pd(NO_3)_2$	0.623		0.29		
Y	80	$Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$	0.345			81.6	希土類
La	219	$La(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$	0.683		0.214		
Ce	428	$Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$	1.322		0.452		
Pr	198	$Pr(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$	0.612		0.219		
Nd	730	$Nd(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$	2.21		0.717		
Sm	134	$Sm(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$	0.395		0.157		
Eu	26.6	$Eu(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$		77.8		21.6	
Gd	30.1	$Gd(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$		86.2		31.6	
Tb	0.527	$Tb(NO_3)_3$		23		2	増
Dy	0.301	$Dy(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$		16.3		6	増
Ho	0.039	$Ho(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$		21.1		8.1	増
Er	0.017	$Er(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$		22.9		7.7	増
Mn		Mn	0.109		0.15		Tc代替
Fe	732	$Fe(NO_3)_2 \cdot 9H_2O$	5.28		0.728		再
Cr	34.2	Cr		34.7		37.7	再
Ni	91.7	Ni		91.5	0.1		再
Zr	637	$ZrO(NO_3)_2 \cdot 2H_2O$	1.86		0.469		再
Nb	0.000573	Nb		11.3		0.2	増　沈
Mo	435	Mo	0.433		0.43		
Ag	13.9	$AgNO_3$		22		4.6	増　沈
Cd	23.7	$Cd(NO_3)_2 \cdot 4H_2O$		64.8		23	増　沈
In	0.31	$In(NO_3)_3 \cdot 3H_2O$		19.2		0	
Ge	0.117	Ge		11.9		0	
As	0.035	As		6.7		0	
Se	1	Se		20.1		21.9	
Sn	16.5	Sn		16.5		16	
Sb	643	Sb		38.9		32.3	
Te	88.6	Te		88.1		82.9	

5. 結果及び考察

希土類元素の分離で実績のあるα－ＨＩＢ系を錯形成剤として用いたときの分離結果の例を図５－１に示す。この図では，試料に多量に含まれるNaよりも移動度の大きいCs，Rb等(表示していない）は，Mnよりも早く分取される。図中の元素の重なりは，分取時の影響によるもので，電気泳動装置上は分離されている。回収率を表５－１に示す。

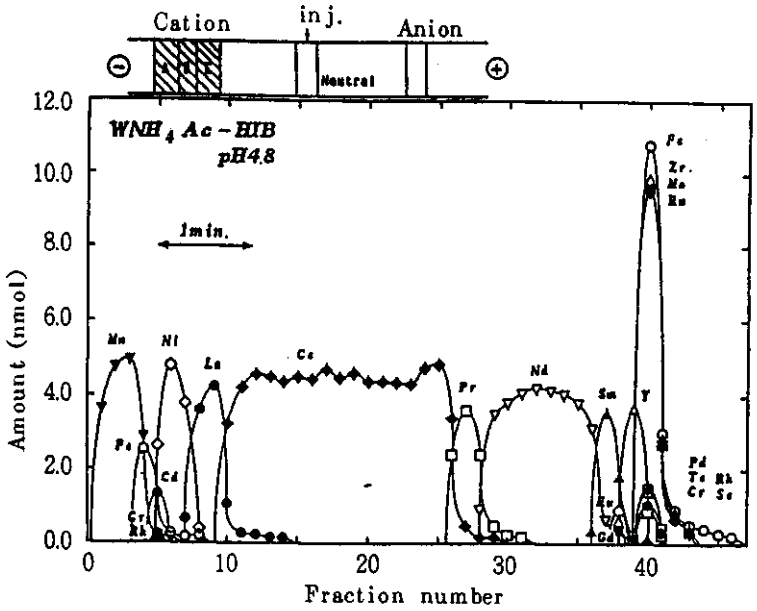


図５－１　分　取　結　果

表５－１　回　収　率

Z	元素	回収率(%)	Z	元素	回収率(%)	Z	元素	回収率(%)
1	H	—	39	Y	102	55	Cs	分取せず
11	Na	分取せず	40	Zr	56	56	Ba	〃
15	P	〃	42	Mo	33	57	La	99
24	Cr	50	44	Ru	61	58	Ce	108
25	Mn	98	45	Rh	51	59	Pr	110
26	Fe	22	46	Pd	17	60	Nd	98
28	Ni	104	47	Ag	—	62	Sm	—
34	Se	42	48	Cd	—	63	Eu	—
37	Rb	分取せず	50	Se	—	64	Gd	—
38	Sr	〃	52	Tn	45			

① Mn，Ni，希土類は，カチオンとして泳動し，試料調整時の化学形がカチオンであるRu，Rh，Pd等の白金属は，中性もしくはアニオンの挙動を示した。Fe，Zrは水酸化合物コロイドとして存在し，このコロイドにRu，Rh，Pdの一部が取り込まれたものと考えられる。

② Cs，Rb，Sr等の移動度は，模擬廃液中に多量に存在するNaより大きく，分離・回収は容易であると予見される。

③ 錯形成剤としてα－HIBを用いたときの分離能は，1.14mmol／Cであった。

④ 本試験の知見をもとに，HLWから元素の分離回収を行う場合の分離だけのコストを求めると，再処理費用の10％程度と試算された。但し，再処理費用の1～1.5億円／t，HLW発生量1㎥／t（金属イオン約200mmol含有）とする。

6. 結　論

HLWからの元素分離回収法として，電気泳動法の適用の可能性が予見された。

7. 課題・予定等

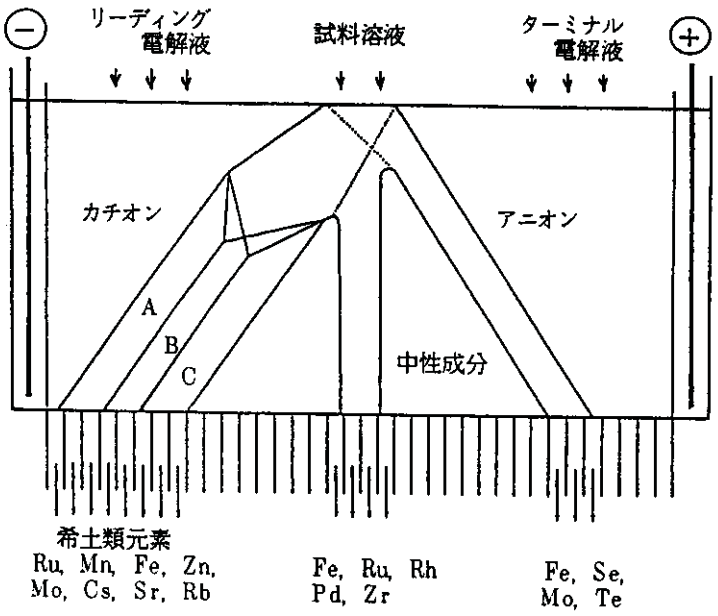
引続き大学等の協力を得ながら，連続分離化の検討を行い経済性，プロセス成立性の評価を行う。

質疑応答

Q：電気泳動法で連続分離はどうするのか？

A：下図の様に，流れを作ることにより（移動度と時間の効果を利用し）連続分離する。

2次元等速電気泳動分離



1－7　UF_6還元試験

報告者　転換技術開発課 [redacted]

1. はじめに

人形峠事業所のウラン濃縮工場には，現在約800 tUの劣化UF_6が保管されている。今後さらに，平成10年度まで約200 tU／年の割合で発生する。これら劣化UF_6は，現在のところシリンダ貯蔵されているが，今後長期間にわたりシリンダ貯蔵する場合は，以下のような問題がある。

(1) UF_6は，化学的に活性な物質であるため，火災や漏洩等による潜在的な危険性が高い。

(2) 以下の理由により管理コストが高価になる。

- 国内においては，海外のようにシリンダの屋外貯蔵ができない。
- 屋内貯蔵する際も，シリンダ貯蔵しているため，貯蔵容量の大きい貯蔵庫が必要となる。
- また腐食等によりシリンダ，特にバルブの健全性が損なわれていないか定期的に検査する必要がある。
- さらに貯蔵容器として使用するシリンダが高価である。

(3) UF_6には，ウラン1原子あたり6つのフッ素原子が結合しており，このまま貯蔵することは高価なフッ素資源の死蔵となる。

このような問題を解決するためには，劣化UF_6を化学的に安定でコンパクトかつ再利用できる形態に転換することが必要である。加えて，フッ素についても再利用可能な形態で回収できる，合理的なシステムの確立が重要である。また原子力開発利用長期計画によれば，西暦2000年過ぎには3000 t SWU／年規模による計画もあり，そうなると発生する劣化UF_6も大幅に増加するため，これら一連の技術の確立が急務となる。

そこで，その一環として，UF_6をH_2によりUF_4に還元するプロセスの技術開発を行う。このプロセスの特徴としては，乾式であるためプロセスがシンプルで，廃液や廃棄物発生量が少ないことが挙げられる。また，フッ素が再利用に適したＡＨＦの形態で回収できる。UF_4については，UF_6より化学的に安定でコンパクトな形態であり，金属ウランの原料や酸化物への再転換など利用自由度の高いことが長所として挙げられる。

平成2年度は，昨年度製作したUF_6還元基礎試験装置による基礎試験を実施した。

2. UF_6還元基礎試験の目的

UF_6をH_2によりUF_4に還元する乾式プロセスについては実績が少なく，国内はもとより，海外でも数件の報告があるだけである。

したがって，本UF_6還元基礎試験は，予察試験的な要素も強く，以下の2点を目的とする。

(1) プロセスの可能性（UF_4が生成すること等）を探る。

(2) 基礎試験装置の健全性及び操作性を確認する。

3. UF_6還元基礎試験装置の概要

図－1にUF_6還元基礎試験装置（改造前）の概略図を示す。本基礎試験装置は，反応ガス（H_2，UF_6）等を還元炉へ供給する供給系，還元炉を中心とするUF_4への還元・回収系，バックアップフィルタを中心とする微粉回収系及びケミカルトラップ（NaFトラップ，Al_2O_3トラップ）を中心とするオフガス処理系とから構成される。しかし，この装置で実際に試験を実施したところ，さまざまな問題が発生した。

(1) SUS製ノズルが腐食し，閉塞した。

(2) 還元炉の内部温度を測定するシース熱電対が腐食して破損した。

(3) 中間フッ化物や微粉が，オフガスライン及びバックアップフィルタで閉塞した。

(4) 試験実施中に還元反応の確認ができない。

(5) ケミカルトラップでは，試験ごとの微量な吸着量が把握できず，正確な物質収支評価が難しいうえに解体に多くの時間を費やしていた。

以上の問題を解決するために，基礎試験装置の改造を行った。図－2にUF_6還元基礎試験装置（改造後）の概略図を示す。主な改造点は図中網かけで示してあるが，内容は以下のとおりである。

(1) SUS製ノズルをモネル製ノズルに変更した。

(2) 還元炉の内部温度を測定するシース熱電対に，モネル製の保護管を取付けた。

(3) 中間フッ化物や微粉による閉塞を避けるために，オフガスラインを反応ゾーンから離すとともにUF_4受槽でガス線速を低減するようにライン変更した。また，固気分離器を設置した。

(4) 試験を実施しながらオフガス中の成分が分析できるように，ガスIR分析器を設置した。

(5) さらに正確な分質収支の評価ができるように，供給系にはU字管コールドトラップを取付けて配管中に残留するUF_6を回収するとともに，オフガス回収系としてオフガス吸収管を取付けた。

改造の結果，基礎試験装置はUF_6還元基礎試験に耐えるものに仕上がった。

4. UF_6還元基礎試験

UF_6をH_2によりUF_4に還元する乾式プロセスには大別して2つの方法がある。1つはCold Wall法と呼ばれる方法で，H_2とUF_6の反応に必要な熱量をH_2とF_2の反応熱で供給する方法である。この方法には，還元炉を高温に加熱する必要がないため，炉の変形や損傷を抑制できる長所がある。反応は次式に従う。

$$UF_6 + H_2 + xF_2 \longrightarrow UF_4 + 2(1+x)HF$$

もう1つはHot Wall法と呼ばれる方法で，還元炉を高温に加熱してH_2とUF_6の反応に必要な熱量を供給する方法である。この方法には，危険なF_2を取扱わなくてすむ長所がある。反応は次式に従う。

$$UF_6 + H_2 \longrightarrow UF_4 + 2HF$$

本UF_6還元基礎試験では，この両方の還元方法を試験してみた。

Cold Wall法とHot Wall法の試験条件を下表に示す。

表－1　UF_6還元基礎試験条件

試験条件	Cold Wall法	Hot Wall法
設定温度	185℃	300～600℃
ガス流量	5.0 ℓ/min	2.0 ℓ/min
モル比 (H_2/UF_6)	1.5～3.8	1.4～1.6

(いずれも天然UF_6を使用)

5. UF_6還元基礎試験結果

UF_6還元基礎試験結果の一覧を表－2に示す。

Cold Wall法については，本基礎試験装置においてH_2とF_2の反応熱が最高となる条件で実施した。当初，モル比1.5で実施したが，オフガス中に未反応UF_6を検出した。そこでUF_6供給量を減少させてモル比3.8で実施したところ，未反応UF_6は検出しなくなった。しかし，いずれの場合も得られた粉体は茶色で，還元率も非常に悪かった。参考までに，Cold Wall法での代表例を写真－1に示す。SEM写真からわかるように，針状と粒状のものが互いに集合しており，決して良い粉体とはいえない。粒状の結晶がコンペイトウのようになっているのは，還元が不完全であったためと考えられる。

Hot Wall法については，還元炉の加熱温度が反応を左右するファクターと考え，モル比は固定して設定温度を変化させた。

その結果，やはり300℃では低すぎたのか，還元反応は進んでいないようであった。このことは，オフガス中にＨＦガスがほとんど検出されなかったのに対して，未反応UF_6を多量に検出したことからも容易に推察できる。さらに，写真－2に示すように，得られた粉体はごくわずかで，しかも針状のものを中心にコンペイトウのような小さな粒状結晶が付着していることからもわかる。

その後，設定温度を上げていったが，400℃から500℃まではオフガス中に未反応UF_6を検出した。550℃以上で，ようやくオフガス中に未反応UF_6を検出しなくなった。写真－3に設定温度400℃～550℃までの粉体の色の変化を示す。これからわかるように，設定温度が上昇するにつれて粉体の色が黒茶～暗緑～明緑（エメラルドグリーン）へと変化していく。いずれの結晶も，Ｘ線回析で調査したところ，無水UF_4のピークを検出しただけであった。
W. J. Bichaらによると，「製品UF_4中に中間フッ化物が相当量存在すれば，UF_4の特徴であるエメラルドグリーンが失せて黒色になる。」と報告している。このことは，還元炉の設定温度が低いと還元反応が不完全になるため，中間フッ化物がUF_4に混入して黒くなると考えると本基礎試験結果と一致する。

写真－4に設定温度600℃での基礎試験で得られた粉体を示す。色はエメラルドグリーンを呈し，還元反応が完全に進んだことを示している。ところどころ黒く見えるのは，還元炉の温度が高いため炉壁の一部が剥離したものである。ＳＥＭ写真で板状に見えるのがそれで，片面はUF_4が付着してエメラルドグリーンを呈しているが，もう片面は剥離した形跡のある金属面で黒色を呈している。結晶は単結晶かと思わせるような角張ったものもあれば，それらがいくつか集まって角がとれて粒状になっているものもあり，大半が10 μm以上に成長している。また，還元が不完全な条件で見られたコンペイトウのような結晶（写真－1，2）は見当たらなかった。

これらのことを踏まえて，以下に結果をまとめる。

(1) 本UF_6還元基礎試験装置で，UF_6をUF_4に還元できることが確認できた。

(2) 本UF_6還元基礎試験の結果，Cold Wall法よりもHot Wall法の方が有望であることがわかった。

(3) Hot Wall法における還元炉の設定温度を，550℃以上にしなければならないことがわかった。

(4) 改造により閉塞及び腐食等が改善され，本UF_6還元基礎試験装置の健全性，操作性が向上した。

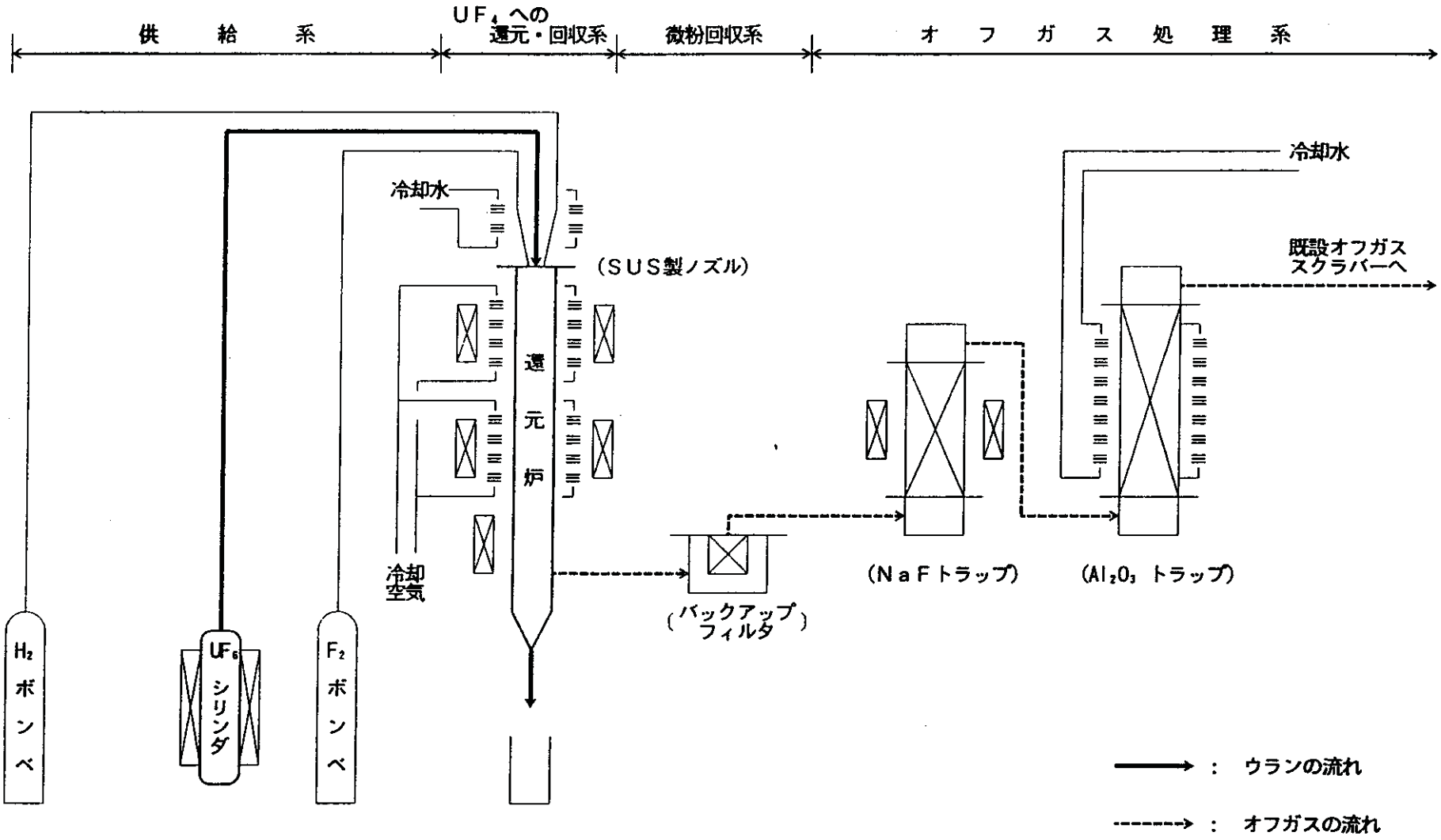
(5) 本UF_6還元基礎試験装置では，約600 g-UF_6／hrの処理速度が得られた。

質疑応答

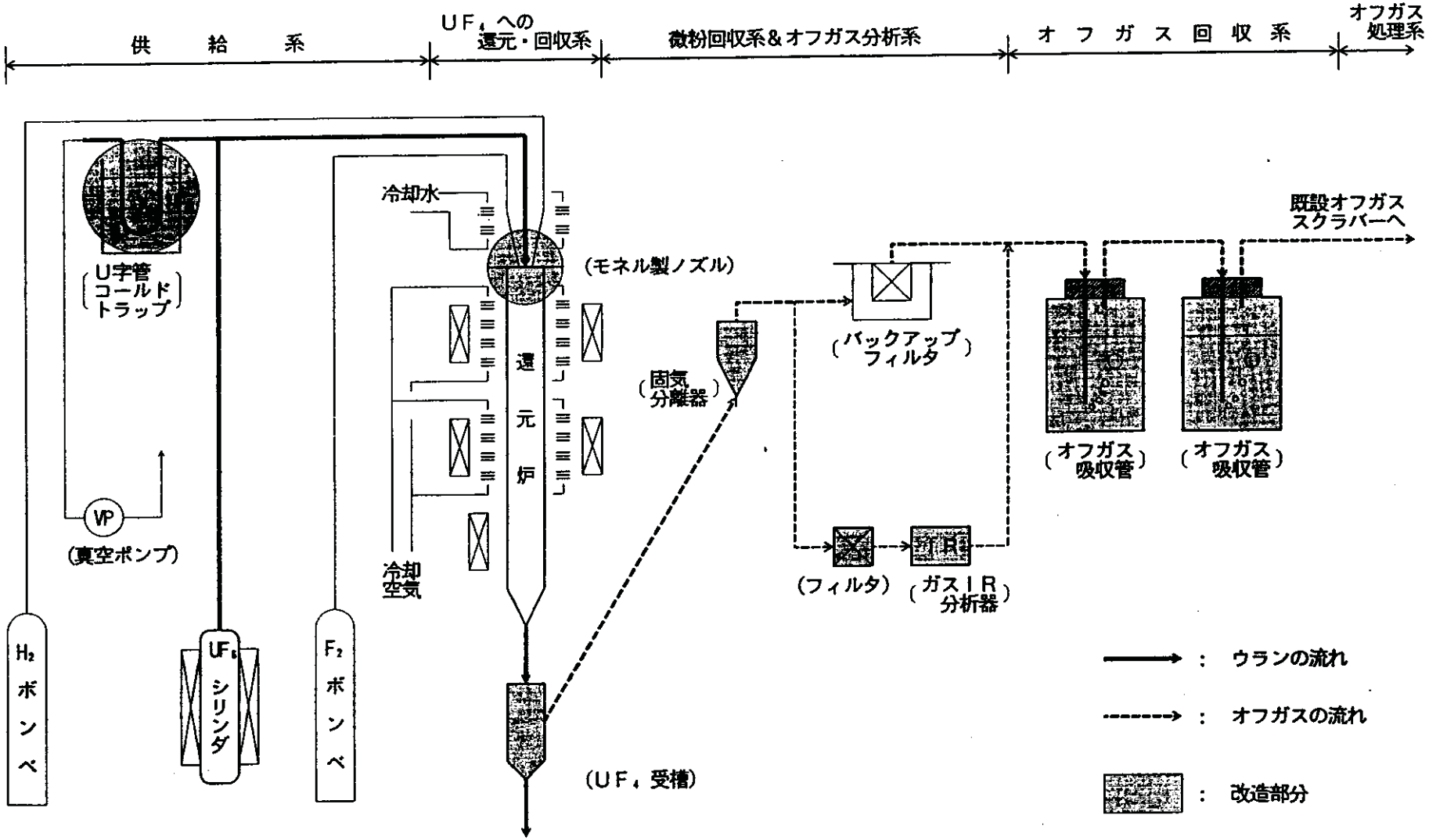
Q：これに関するコスト評価は行っているのか。

A：この件に関しては，まだ行っていない。

A：しかし，酸化物への再転換・貯蔵については，既に委託研究等である程度評価している。また，フッ化物への再転換・貯蔵については，現在再転換のプロセスの可能性を探っている段階なので，まだコスト評価の段階ではないと考えている。



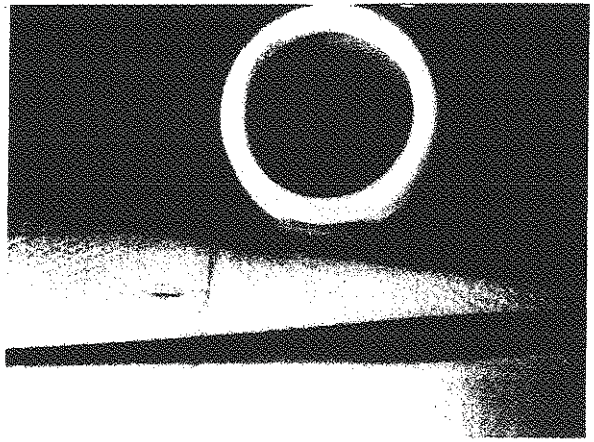
図－1　UF_6還元基礎試験装置概略図（改造前）



図－2　UF6還元基礎試験装置概略図（改造後）

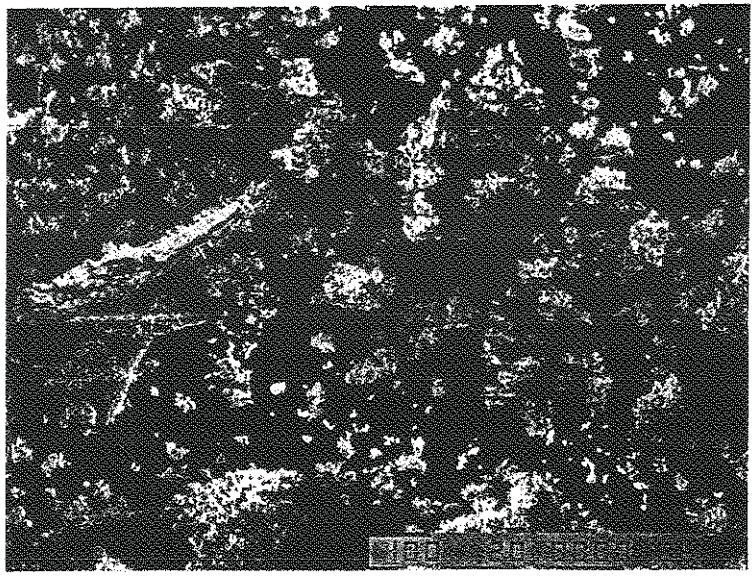
表－2　UF_6還元基礎試験結果一覧表

	Cold Wall 法		Hot Wall 法					
設定温度　℃	185	185	300	400	450	500	550	600
モル比［H_2/UF_6］	1.5	3.8	1.5	1.4	1.6	1.6	1.6	1.4
ガス流量　ℓ／min.	5.0	5.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
還元率　%	12.9	23.7	0.1	82.3	73.1	65.2	78.5	95.6
未反応UF_6ガス	有	無	有（多）	有	有（少）	有（少）	無	無
X線回折ピーク	UF_4	UF_4	——	UF_4	UF_4	UF_4	UF_4	UF_4
粉体粒径　μm（SEM）	約10	10以下	針　状	約10	約10	10以下	約10	10以上
粉体の色	茶	茶	薄　緑	黒茶～暗緑	薄茶～暗緑	緑	明　緑	明　緑
みかけ密度　g／cc	——	——	——	2.12	2.60	2.48	2.41	2.54



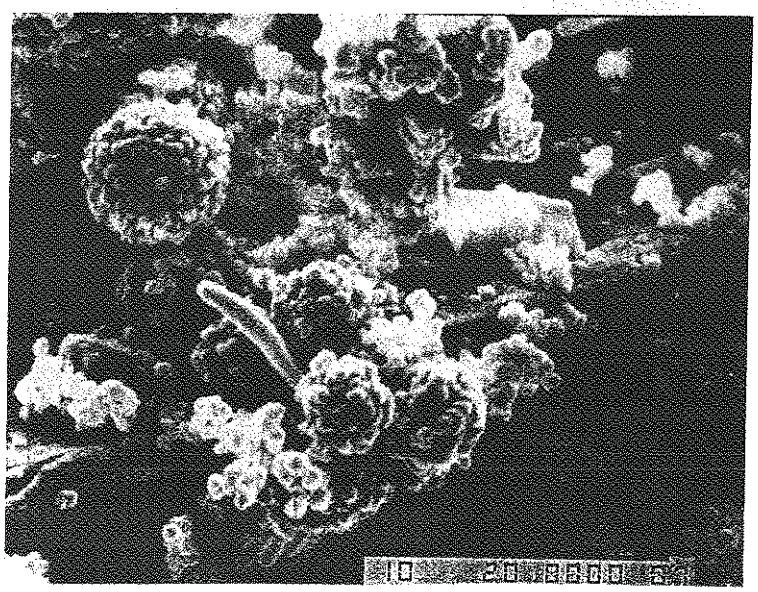
粉体写真　　Cold Wall 法　185℃

モル比 [H_2/UF_6] = 3.8



SEM写真

×100

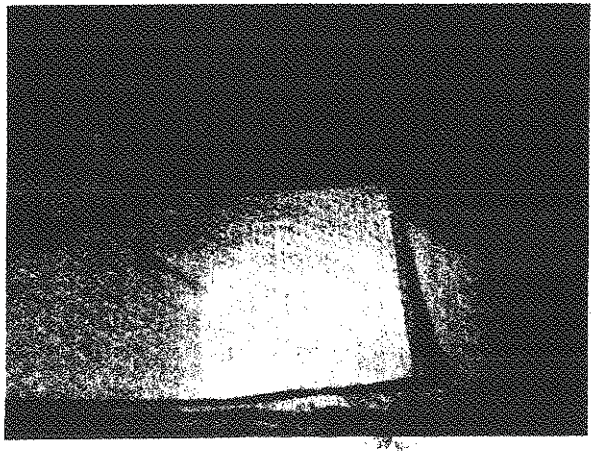


SEM写真

×5000

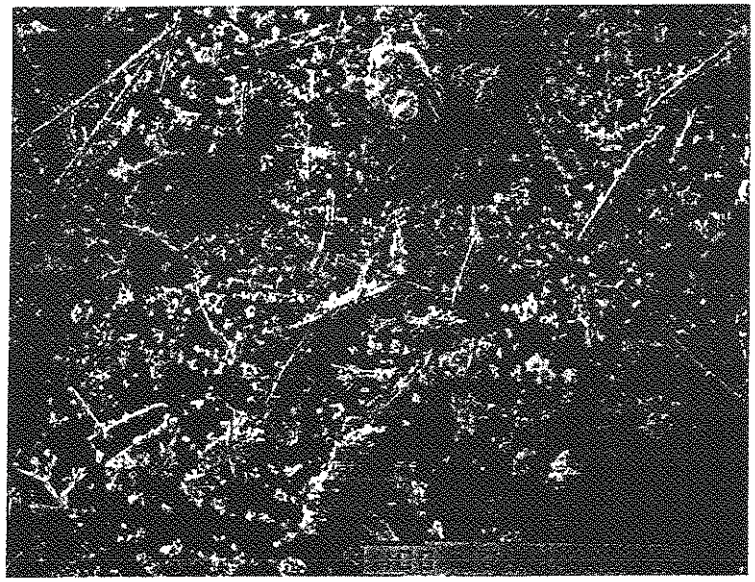
写真－1　Cold Wall 法の粉体

（代表例）



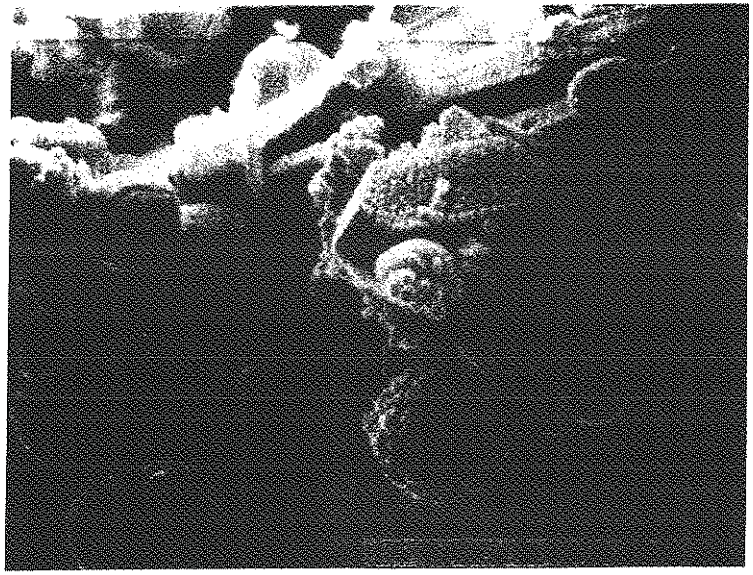
粉体写真　　Hot Wall 法　300℃

モル比 [H_2/UF_6] = 1.5



SEM写真

×100

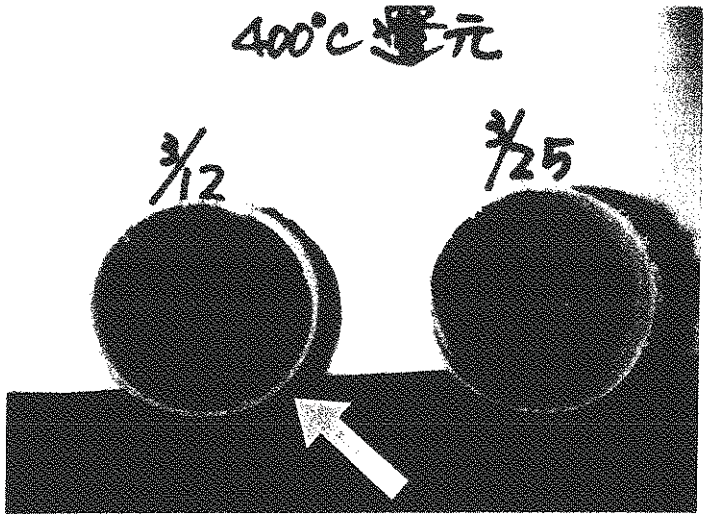


SEM写真

×5000

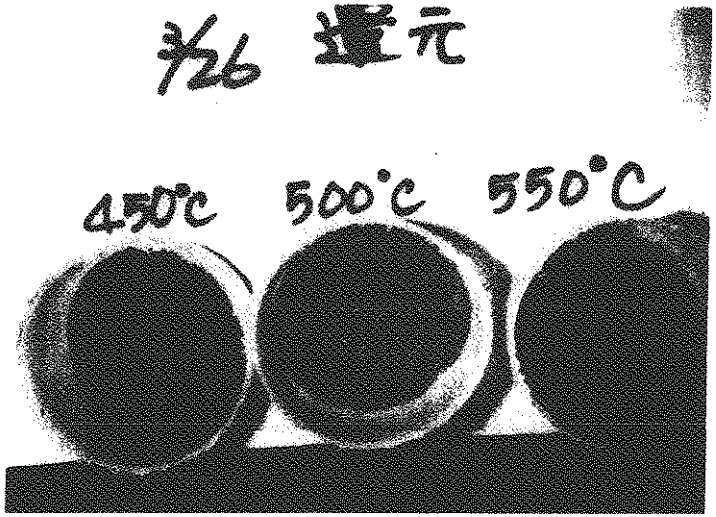
写真－2　Hot Wall 法の粉体

（300℃）



粉体写真　　Hot Wall 法　400℃

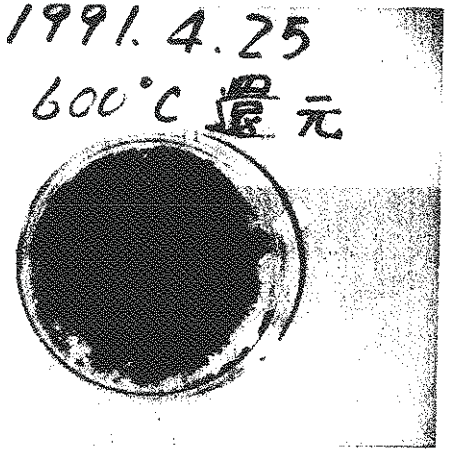
モル比［H_2/UF_6］＝1.4



粉体写真　Hot Wall 法　450~550℃

モル比［H_2/UF_6］＝1.6

写真－3　Hot Wall 法での粉体の色の変化（400℃～550℃）

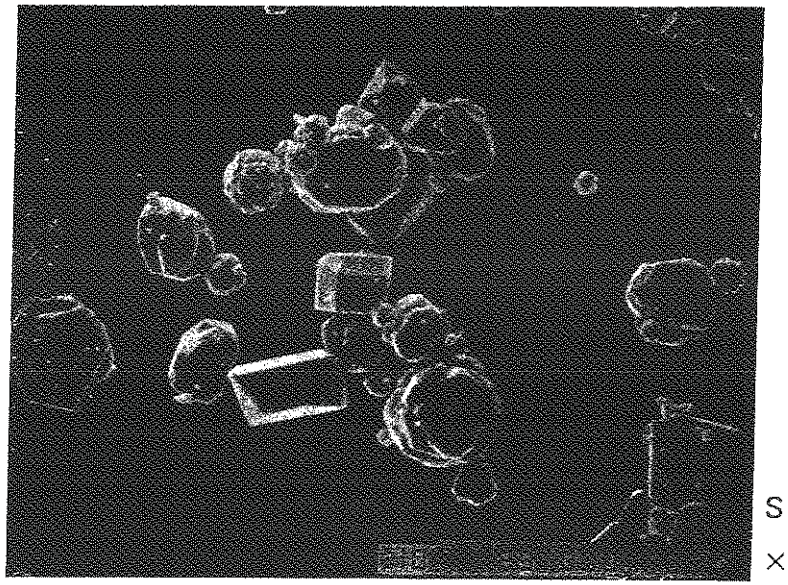


粉体写真　　Hot Wall 法　600℃

モル比 [H_2/UF_6] = 1.4

SEM写真

×100



SEM写真

×1000

写真－4　Hot Wall 法の粉体

（600℃）

1－8　分析技術開発

1－8－①　Cd，混合塩中のU，不純物分析開発

報告者　転換技術開発課

1.　はじめに

転換技術開発課では，FBR新型燃料の乾式再処理技術開発の一環として，溶融塩電解精製基礎試験を実施している。本試験は，熱力学，電気化学的に微妙な領域の試験であり，その評価にあたっては分析精度が試験の良否を大きく左右する。また，本基礎試験の分析対象試料は，Cd浴，混合塩（KCl，LiCl）であり，U・TRU・FPの他，試験試薬，装置材料に起因する多くの不純物が対象となる。これらをマトリックスとする不純物元素の分析経験は無く，早急に分析法の開発を行い試験に対応していくことが重要である。本基礎試験は，Cd浴へのUの溶解及び電析による基礎的データを採取している。ここでは，ウラン試験で必要とするU，他不純物についてイオン交換，溶媒抽出による分離法及びICP測定の検討結果について報告する。

2.　目　　的

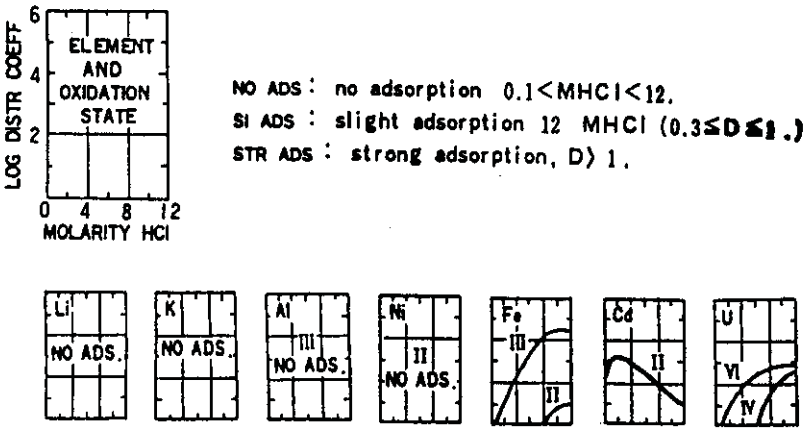
溶融塩電解精製試験の中の，溶融カドミウムへの金属ウランの溶解試験，及びウラン電析試験におけるカドミウム，溶融塩（KCl，LiCl），金属ウランの変化並びに電解槽等の材質からの不純物（Al，Ni，Fe）の挙動調査を目的とする。

3.　試験及び検討

3－1　概要及び結果

(1)　陰イオン交換によるカドミウム浴中のウラン及び不純物分離

図－1に対象元素の塩酸系陰イオン交換の吸着特性を示す。



図－1　塩酸溶液から陰イオン交換樹脂による各元素の吸着

(1)－1　Cdの吸着試験－1

Cdに対する樹脂量の検討として，Cd 1 gを吸着できる樹脂量を樹脂の交換容量から7 mlとし，塩酸濃度は2 M，試料の前処理は①硝酸と塩酸の混酸で溶解後，塩酸処理したもの，②塩酸だけで溶解処理したものについて行った。結果を表－1に示す。

（イオン交換樹脂：BIO-RAD AG-1　100～200 mesh）

表－1　吸着試験－1の結果

		1回目	2回目
		Cdを硝酸＋塩酸で溶解後濃塩酸10mlで4回乾固	Cdを濃塩酸だけで溶解
	洗浄液量(ml)	Cd流出量(mg)	Cd流出量(mg)
1	14	425.5	336.5
2	7	70.1	88.2
3	7	31.6	37.7
4	7	21.9	24.3
5	7	16.5	18.3
6	7	12.8	14.8
流出量合計		561.9	519.8

どちらも約50 mlの洗浄液で半分以上流出してしまい樹脂量が足りないことがわかる。

(1)－2　Cdの吸着試験－2

吸着試験－1の結果から樹脂量を約3倍の20 mlとし，塩酸濃度は1 M，1.5 M，2.0 M，2.5 Mについて検討した。結果を表－2に示す。

表－2　吸着試験－2の結果

		Cdを硝酸＋塩酸で溶解後濃塩酸10mlで5回乾固			
		Cd流出量(mg)			
	洗浄液量(ml)	試料塩酸濃度 1 M	試料塩酸濃度 1.5 M	試料塩酸濃度 2 M	試料塩酸濃度 2.5 M
1	20	—	—	—	—
2	20	0.7	—	—	—
3	20	12.5	—	—	0.2
4	20	11.2	—	0.3	2.2
5	20	14.0	—	4.7	4.8
6	20	12.5	—	6.8	5.8
流出量合計		50.9	—	11.8	13.0

塩酸濃度1.5Mにおいては，洗浄液量120 mlでも流出せず最適塩酸濃度であることがわかる。

以上の結果（試験－1，試験－2）から，Cd 1 gに対する樹脂量は20 ml，塩酸濃度は1.5Mと規定した。

(1)－3　対象元素の樹脂への吸着特性確認試験

Cd 1 gに対象元素（U，K，Li，Fe，Ni，Al）を各500 μg 添加し，フラクション（流速：0.28/min，1フラクション：4.6 ml）をとった。その結果，U，K，Li，Ni，Alについては，11フラクションまでに流出してしまうが，Feについては20フラクション以上流出が続いた。また，Cdについては，25フラクションまで流出が無かった。

Feについては，図－1からもわかるように原子価を2価に還元する必要があると考えられる。

(1)－4　鉄の還元試験

(1)－3の結果から，鉄の還元試験を行った。還元剤には，アスコルビン酸を使用した。結果を表－3に示す。

表－3　鉄の還元試験結果

Cd 溶解法	使用カラム	回収率 (%)					
		Fe	U	K	Li	Ni	Al
濃塩酸（Fe還元）	ロート付カラム	99.3	99.3	100.8	99.4	98.5	98.4
濃塩酸	ユニクロカラム＋定量ポンプ	93.0	98.0	96.8	98.5	101.0	99.3
濃塩酸	ロート付カラム	85.6	97.7	95.4	97.7	99.9	97.9
硝酸＋塩酸	ロート付カラム	97.6	97.4	101.4	98.2	102.1	98.2

還元することにより回収率が向上した。

(1)－5　カドミウム・ウラン同時分離の検討

(1)－1～(1)－4までの試験検討は，Cd 1 gに対象元素として標準試料を500 μg 添加して行ってきたが，実試料中には多いもので2％前後のウランが含有し，ＩＣＰ発光分析においてAl，Ni，Feの測定波長に妨害が生じ，ウランの分離が必要になった。分離法としては，図－1に示すように塩酸濃度を調節することにより可能であると考えられる。検討試験としては，塩酸濃度4M，6M，8M，10Mについて行った。その他の条件としては，Cd－0.5 g，U－10mg，Al，Ni，Fe，K，Li－100 μg，還元剤（鉄用）－アスコルビン酸，洗浄液量－60 ml，流速－0.42 ml／min。結果を表－4に示す。

表－4　Cd，U同時分離検討結果

回　収　率（%）

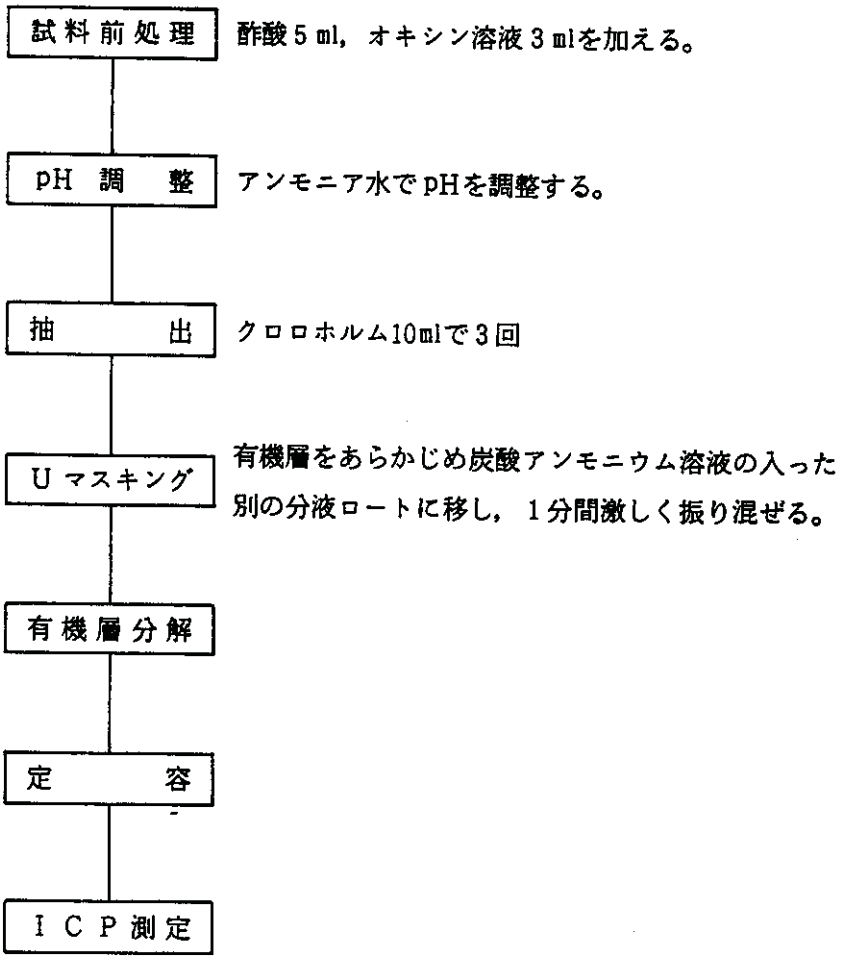
塩酸濃度	流出元素					吸着元素	
	Al	Ni	Fe	K	Li	U	Cd
4M	104.2	101.2	38.7	95.0	91.7	—	—
6M	99.6	98.7	6.0	80.1	99.4	—	—
8M	105.7	102.3	4.8	101.5	94.3	—	—
10M	102.8	101.1	—	105.9	94.1	—	0.05

鉄の回収率向上としては，アスコルビン酸の添加量を多くしたが，これ以上改善出来なかった。鉄以外の元素については，どの塩酸濃度でも違いはないが，鉄の回収率及び塩酸による樹脂の劣化を考えると4Mが適当である。

(2)　オキシン抽出による混合塩中のAl，Ni，Feの分離

混合塩（KCl，LiCl）中のAl，Ni，Feの分離法として，オキシン抽出法を選定した。オキシンは，多くの金属イオンと反応してキレートを生成し，pHを調節することにより種種元素を抽出できる特性を持っている。Al，Feについては，オキシン抽出による同時分離の実績を有している。NiのpH域をみるとAl，Feの中間にあるため適用可能と判断した。

図－2にオキシン抽出フローを示す。



図－2　オキシン抽出フロー

(2)－1　各pHにおけるAl，Ni，Feの抽出試験

試料のpHを4種（pH 4，5，6，7）設定し，回収率の評価を行った。結果を表－5に示す。

表－5　各pHにおける抽出試験結果

	回収率 (%)						
	Al	Ni	Fe	K	Li	U	Cd
pH 4	28	57	97	1.0	0.1	0.9	0.2
pH 5	94	94	103	0.5	0.1	1.1	0.2
pH 6	100	97	96	0.7	—	6.5	—
pH 7	98	96	90	1.2	0.1	60	6.4

pH 5～6付近に最適条件があると考えられる。

1－8－② UF_6中のAs分析開発

報告者　転換技術開発課 [　　]

1. はじめに

砒素（As）は従来UF_6のスペック分析対象元素ではなかった。しかし，近年UF_6中のAsがUF_6ボンベバルブ等の腐食の原因となることが懸念されるようになり，ASTM最新版（1990年版）において新たにUF_6のスペック分析対象元素に追加（仕様<3 ppm）された。従って，PNCでも今後UF_6中のAsの分析が必要となることが予想されるため，今回UF_6中のAsの分析法についての試験，検討を行ったので報告する。

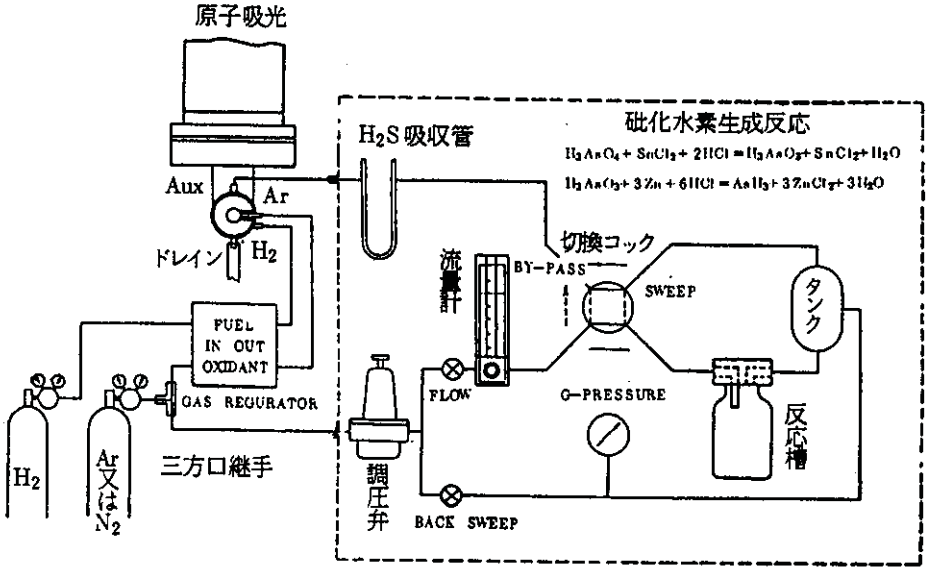
2. 分析法概要

2.1 分離・分析法

一般的なAsの分析法としては，塩化第一錫により，Asを三価に還元し，亜ヒ酸(H_3AsO_3)を生成させる。次に亜鉛を用いてH_3AsO_3を還元し，砒化水素（AsH_3）ガスを発生させAsをマトリクスより分離回収した後，比色法により分析する方法がある。本件では，UF_6を加水分解した後フッ化ウラニル（UO_2F_2）溶液中のAs分析に上記方法を応用し，更に従来の比色法に比べ，より高感度な原子吸光法により分析することとした。

2.2 砒化水素発生装置

本装置は，AsH_3を発生させ，それを原子吸光分析装置に導入するものであり，図－1に装置の概略を示す。装置は，反応槽を中心にキャリアーガスラインが接続されており，これらのガスの圧力及び流量を調節することにより，反応槽で発生したAsH_3ガスの一定量を原子吸光分析装置に導入する構造となっている。



図－1　砒化水素発生装置概略（ASD－1A）

3. 試験及び検討

3.1 試験・検討概要

試験及び検討は，フッ化ウラニル溶液の主なマトリクスであるフッ素の影響及び砒化水素発生時の諸条件についての検討を行った。検討項目を以下に示す。

(1) フッ素の影響（装置の腐食，原子吸光測定への影響）の確認

(2) フッ素の影響の除去法（フッ素除去法，フッ素マスキング法）の検討

(3) 亜鉛還元時の亜鉛の添加量と酸（HCl）濃度の影響

(4) As分離操作における回収率及び再現性

3.2 結果及び考察

(1) フッ素の影響の確認

フッ素及び反応槽（ガラス製）の主材料であるケイ素が，フッ素による腐食のため原子吸光分析装置に導入した場合を想定し，フッ素及びケイ素を含む試料について原子吸光分析（AA）を行ってみた。結果を表－1に示す。

表－1　フッ素の影響確認（As 未添加）

	AA測定結果
BLANK	0.000 ppm
HF	0.073 ppm
HF+Si	0.069 ppm
Si	0.000 ppm

※ F添加量は，UF_6中U 0.5 g相当

測定の結果，フッ素を含む試料を原子吸光分析装置に導入した場合，生成したフッ化ケイ素（SiF_4）の影響により測定値にプラスの誤差を与えることが確認され，フッ素の妨害除去が必要となった。

(2) フッ素の影響の除去

フッ素の影響試験から，フッ素が原子吸光分析に影響することが確認されたため，フッ素の影響を除去する方法について試験を行った。フッ素の影響を除去する方法としては，原子吸光分析の前に予め試料（UO_2F_2溶液）からフッ素を除去してしまう方法とフッ素をマスキングして揮発を抑制し原子吸光分析装置に導入されないようにする方法がある。

以下に各々の方法について試験結果を述べる。

① フッ素の除去試験

試験は，UO_2F_2溶液からのフッ素除去法として一般的に用いられる過塩素酸あるいは，硫酸（H_2SO_4）による加熱揮散除去法の適用を試みることとした。更にこの時，硝酸（HNO_3）を添加することによりAsを5価に酸化し，Asの揮散を抑制することとした。結果を表－2に示す。

表－2　フッ素の影響除去

① 脱　F

	UF_6量（Uとして）	As添加量	AA測定結果	回収率	備　考
H_2SO_4 + HNO_3	0.5 g	0.5 μg	0.25 μg	50%	揮散
		1 μg	0.47 μg	47%	
$HClO_4$ + HNO_3	0.5 g	0.5 μg	1.2 μg	240%	脱F不完全
		1 μg	0.7 μg	70%	揮散

試験の結果，硝酸酸化によるAsの揮散抑制効果はなく，フッ素除去の際Asの揮散が伴うことが確認された。

② フッ素のマスキング試験

フッ素のマスキング剤として，塩化アルミニウム（$AlCl_3$），塩化鉄（$FeCl_3$），ほう酸（H_3BO_3）を選定し，Asを添加した模擬試料に，それぞれの試薬をフッ素量に対し1及び2当量添加した場合の原子吸光分析による分析値に与える影響について試験を行った。結果を表－3に示す。

表－3　Fのマスキング

マスキング剤	UF_6中対F当量	UF_6（U/g）	As添加量（μg）	AA測定結果 強度	AA測定結果 As（μg）	誤差（μg）
$AlCl_3$	1	0.5	0	384	0.75	+0.75
	1		1	840	1.75	+0.75
	2			519	1.00	± 0
$FeCl_3$	1	0.5	0	178	0.25	+0.25
	1		1	1045	2.25	+1.25
	2			8	0.00	−1.0
H_3BO_3	1	0.5	0	54	0.00	± 0
	1		1	547	1.00	± 0
	2			514	1.00	± 0

$AlCl_3$及び$FeCl_3$については，フッ素が十分マスキングされず測定が不安定で誤差が大きいのに対し，H_3BO_3の場合は，フッ素の影響を受けることなく回収率100％でAsを回収することができた。以上の結果より原子吸光分析へのフッ素の影響を除去する方法として，安全を加味し，試料中Fの2当量のH_3BO_3を添加することとした。

(3) 砒化水素発生時の酸濃度の影響

一般的な砒化水素発生時の酸（HCl）濃度は，1～6Nが良いとされているが，対象試料がUO_2F_2溶液という特異な試料であることから，数種の酸濃度について検討を行った。結果を表－4に示す。

表－4　酸濃度の影響

試験条件

1）UF_6試料：Uとして0.5g

2）H_3BO_3量：UF_6の2当量（0.65g）

3）Zn錠剤：1錠（0.8g）

	HCl添加量／25ml	Zn還元状況
1	1.2N（2.5ml）	AsH_3の発生が緩慢 未反応Znあり
2	2.4N（5ml）	反応の安定性，速度とも良好（従来と同様）
3	4.8N（10ml）	反応激しく，試料液の飛散大

試験の結果，1.2Nでは還元反応が緩慢で，未反応Znが残在し4.8Nではこれとは逆に反応が激しく，試料液の飛散が大きいという結果であった。

一方，2.4Nでは反応の安定性，速度ともちょうど良く，従来と同様の測定結果が得られたことから以降のHCl濃度は2.4Nとすることとした。

(4) AsH_3発生時のZn還元剤量の決定

砒化水素成生反応（$H_3AsO_3 + 3Zn + 6HCl \rightarrow AsH_3 + 3ZnCl_2 + 3H_2O$)における還元剤として，Zn末錠剤（1錠は約0.8 g）を使用することとした。ここで，還元剤量を決定するため，単位UF_6（0.5 gU）に対し，Zn末量を変えてその最適量の試験(表－5参照）を行った。

表－5　Zn還元剤量の決定

試験条件

1）UF_6試料　：Uとして0.5 g

2）As　：1 μg

3）H_3BO_3量　：Uの2当量（0.65 g）

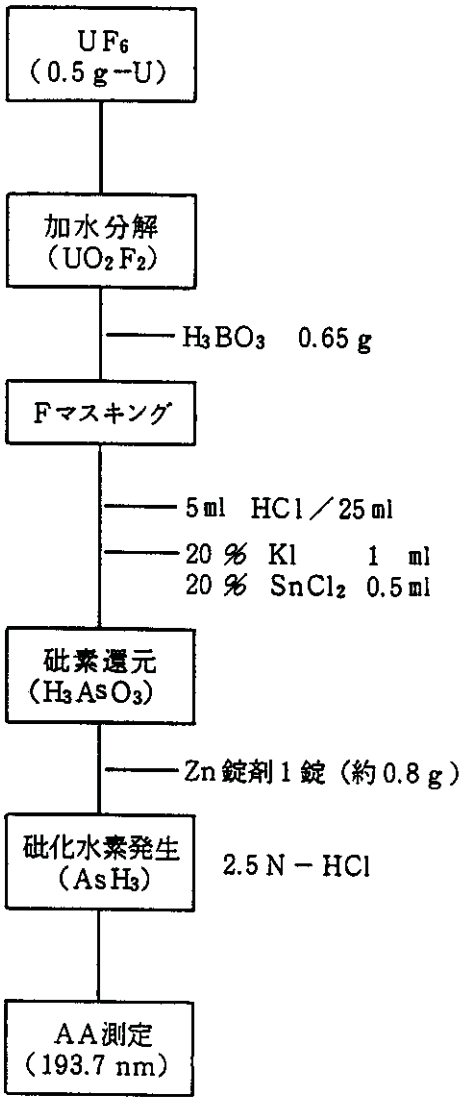
4）HCl添加量：5 ml（2.4 N)

	Zn錠剤添加量	UF_6量（Uとして）	As添加量	AA測定 強度	AA測定 検出量	誤差
1	1錠	0.5 g	0	38	0.003 μg	[illegible]
2			1 μg	572	0.98 μg	[illegible]
3				591	1.02 μg	[illegible]
4				608	1.05 μg	[illegible]
5	2錠		0	66	0.005 μg	+0.005
6			1 μg	651	1.15 μg	+0.15
7				636	1.12 μg	+0.12
8				647	1.12 μg	+0.12

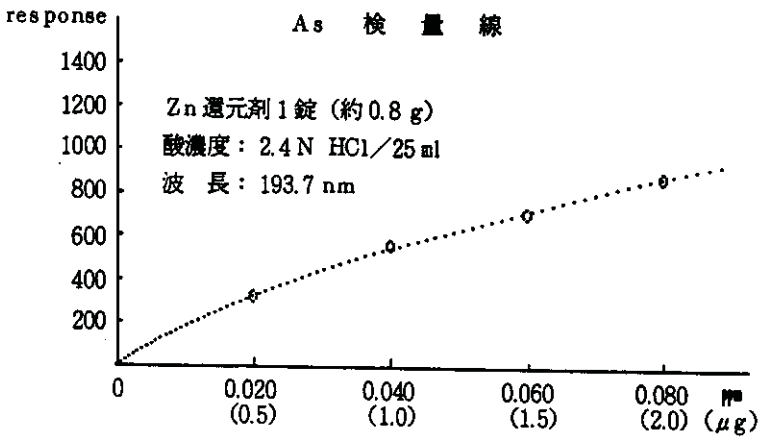
試験の結果，Zn 1錠と2錠で大きな差異はないが，ブランク（As：0 μg）と検出量（回収率）のいずれについても2錠の方が高く検出された。このことはZn 1錠の検量線に対し，2錠の場合のH_2発生量に伴う反応槽圧力が大きいことによるものと考えられる。結論としては，UF_6中Asの還元には，Zn 1錠で十分還元できることがわかった。このときの回収率は，ほぼ100％と好結果を得た。

(5) 分析フロー

(1)〜(4)の試験の結果をもとに，UF_6中のAs分析法を確立した。図－2に分析フローを示すとともに本分析フローによる検量線の一例を図－3に示す。



図－2　As分析フロー



図－3　As 検 量 線

検量線から言えることは，As検出下限値は0.01 ppmと低く，また，その直線性(再現性)もよいということである。

ちなみに，0.02 ppm（As絶対量0.5 μg）の検出において，UF_6試料量0.5 gと設定しているため，UF_6のASTM規格の3 ppm／Uに対し，1 ppm／Uの検出ができるということであり十分にASTM規格を満足できる。

(6) UF_6中As回収試験

AsフリーのUF_6にAsを段階的に添加し，(5)の分析フローに従い回収試験を行った。表－6の試験結果から，1ppm／U（As絶対量0.5 μg）以上については，回収率，偏動係数（CV）ともに好結果が得られ，ASTM規格（3ppm／U）に対応する分析が可能となった。

表－6　UF_6中As 回収試験

UF_6対応 As 濃度	0.5ppm／U	1.0ppm／U	2.0ppm／U	3.0ppm／U
No. ＼ As添加量	0.25 μg	0.50 μg	1.00 μg	1.50 μg *
1	0.225 μg	0.475 μg	1.050 μg	1.450 μg
2	0.250	0.475	1.000	1.425
3	0.250	0.450	1.050	1.550
4	0.250	0.525	1.075	1.525
5	0.225	0.475	1.000	1.500
6	0.250	0.450	0.925	1.525
7	0.175	0.425	0.900	1.525
8	0.200	0.425	0.950	1.475
9	0.200	0.450	0.900	1.525
10	0.250	0.450	1.025	1.525
$\bar{x}$（n＝10）	0.228 μg	0.460 μg	0.988 μg	1.502 μg
σ（n＝1）	0.0275	0.0293	0.0648	0.0399
CV	12.10 %	6.38%	6.56%	2.65 %
回収率	91.0 %	92.0%	98.8%	100.2%

＊ ASTM規格の3ppm／Uに相当する。

4. まとめ

以上の試験結果により，次のような知見を得た。

(1) Fの妨害は，H_3BO_3によりマスキングでき，添加量はFの2当量でよいことがわかった。

(2) AsH_3発生時の塩酸濃度は，2.5Nが最適である。

(3) AsH_3発生時の還元剤は，成形Zn末1錠（0.8g）でよいことがわかった。

(4) UF_6のAs定量における分析の信頼限界1ppm／U（0.5g，UF_6に対し0.5 μgAs）を担保した。

以上により，ASTM仕様を満足する分析法の確立ができた。

2. 環境資源開発課

2－1　平成2年度環境資源開発課成果概要

報告者　環境資源開発課　音　村　圭一郎

環境資源開発課における平成2年度の実施概要は以下のとおりである。

まず鉱物試験では海外探鉱関係として，ジンバブエ・カニャンバ鉱床の変質ハローと鉱床成因の関係を把握するとともに，カナダ，ガボン，ニジェール，中国の鉱石の鉱物の同定，産状観察を実施した。また2年度の特徴としてチタン酸鉱物の同定を科技庁より依頼され，放射能はモナズ石に伴うトリウムが発生源であることを究明した。このほか，所内関係の固体物性試験を実施した。

鉱石処理試験ではミッドウエスト鉱石とバクーマ鉱石を使った浸出試験を実施したほか，ミッドウエスト鉱石を対象とした過酸化水素沈殿試験を実施した。

新製錬技術開発では，塩化揮発法で，揮発したウランの回収試験及び塩化物融解相生成の抑制方法の検討を実施したほか，東北大学に基礎試験及び理論的解析を委託した。乳化型液体膜による溶媒抽出試験では，ウランを使った試験を京都大学に委託した。

回収剤開発では，ウラン採取システム技術開発を海洋科学技術センターに委託し，海水ウラン吸着におけるシステムの比較検討，コスト評価を行った。三井東圧化学に委託した高性能吸着剤開発では，改良アミドオキシム型吸着剤の開発を実施した。宮崎医科大学には生体系物質によるウラン吸着試験を委託し，処理速度を上げスケールアップする試験を実施した。

地質環境調査技術開発では，ナチュラルアナログ研究として，東濃月吉鉱床を対象にした，ウラン鉱物の形成過程，保存環境の解明を行った。また深部地下水の調査として，ＭＰシステムで採水した地下水の分析技術開発及び分析を実施し，深部地層の地質環境を解明した。さらに水・岩石反応試験として，試錐孔岩芯と水との相互反応試験を行い，深部地層における核種移行のメカニズムの解明を行った。同和工営に委託した微生物影響調査では地下深部における微生物の採取及び同定を行った。

ウラン廃棄物処分研究では三菱マテリアルに委託してウラン廃棄物処分方策に係るシナリオ作り及び開発課題を調査した。また夜次鉱さい堆積場を利用して，土壌調査，植生調査を行い，ウラン廃棄物処分に係る核種移行プロセスの解明を行った。

鉱山後処置では鉱害対策として，旧坑道，堆積場の巡視，補修，台風19号による災害復旧工事を実施した。ミルテーリング処理処分技術開発では，夜次鉱さいダム周辺にモニタリング孔3本

を新たに掘削し，水位測定，水のサンプリング，分析を実施した。また三菱マテリアルに委託し，露天採掘場跡地周辺の天然バリア材の性能調査，人工バリアの研究を実施した。捨石堆積場対策工事では方面地区捨石堆積場に係る柵の設置，防災工事，道路改修工事詳細設計を行い，道路改修工事に着手した。

以上の研究開発のほか，通常業務として夜次鉱さいダム水の処理及び管理排水の管理を実施した。平成２年度は特に重油流出事故の対応及び台風19号による増水対応を実施した。また事業所で発生する固体廃棄物の焼却，貯蔵管理を実施したほか，廃棄物貯蔵管理システムの開発を行った。このほか，核燃料物質，核原料物質の計量管理業務，ＩＡＥＡ，科技庁の査察対応を行い，放射性廃棄物貯蔵庫増設に伴う核燃料物質使用変更申請等の許認可業務を実施した。

環境資源開発課における平成３年度の実施計画は以下のとおりである。

資源技術開発では，鉱物試験として鉱床成因プロセス試験を重点的に実施し，ウラン探鉱活動に資することとした。鉱石処理試験では鉱床評価手法の整備を行う。鉱山後処置技術開発では回収剤開発とミルテーリング処理処分技術開発を合せて，海外におけるウラン鉱山の後処置技術を確立する。

次に環境技術開発では地層科学研究で岩石鉱物試験や地下水分析技術開発を中心に実施していく。ウラン廃棄物処分研究では処分シナリオの構築をはじめ研究項目の体系化を行う。

2－2　地下深部微生物調査

報告者　環境資源開発課　○[redacted]
[redacted]1)

1. はじめに

地質環境調査研究の一環として，地下深部における生物活動の性質やその影響の程度を把握するための調査研究を開始した。既存の坑道や試錐孔を用い，既存のサンプリング手法，培養手法を用いて概査を行った主な成果を以下に示す。

2. 調査地域とサンプリング

調査地域は，人形峠地域，東濃地域，Ｙ地域，Ｓ地域の４地域である(表－１)。

人形峠地域では，白亜紀後期の人形峠花崗岩類が分布している。この中の試錐孔に設置してあるＭＰシステムを用い，その採水ボトルを可能な限り滅菌して採水し試料とした。

東濃地域では，白亜紀後期の花崗岩類の上に新第三紀中新世の瑞浪層群が不整合に覆っている。花崗岩類の土岐花崗岩中の試錐孔より，アンビリカルホースシステムで採水し試料とした。

Ｙ地域では，二畳系の堆積岩類，複合火成岩体，硫化鉄鉱床よりなり，火成岩類を伴う。鉱床中及び周辺に掘削された坑道に湧出する地下水と沈澱物を採取し試料とした。

Ｓ地域では，新第三紀中新世の石英安山岩貫入岩が分布する。石英安山岩貫入岩中に掘削された坑道に湧出する地下水と湧出口に見られる沈澱物を採取し試料とした。

3. 微生物検査

検査は，一般細菌，大腸菌群，嫌気性菌，芽胞形成亜硫酸還元嫌気性菌，腸球菌，緑膿菌，放線菌，カビなどを対象とした。方法は，既存の方法を中心とし，一般細菌，放線菌は上水試験法に，嫌気性菌，カビは衛生試験法に，大腸菌群は水質汚濁に係わる環境基準に，芽胞形成亜硫酸還元嫌気性菌，腸球菌，緑膿菌は厚生省令第35号に従った。

4. 主な結果

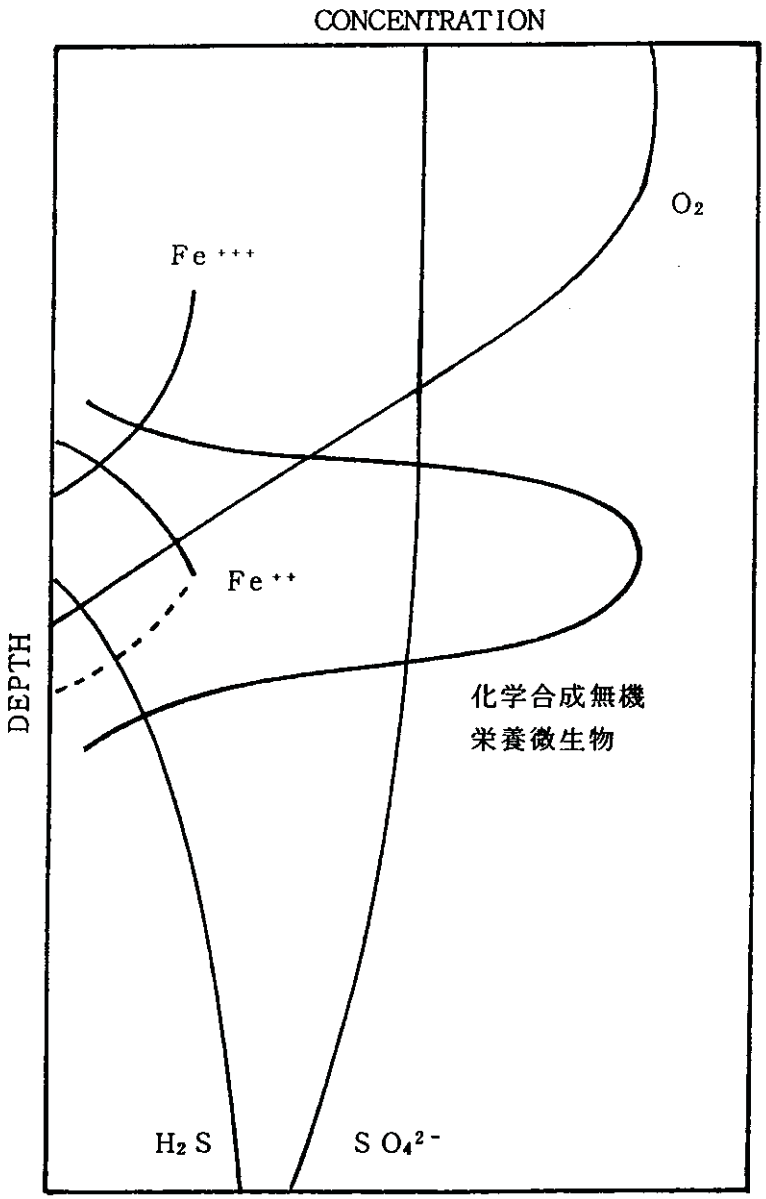
今回の調査では，既存の坑道や試錐孔を利用したため，調査の結果検出された微生物が坑道や試錐の掘削以前から生息しているか，あるいはそれ以降に生息し始めたかについては明らか

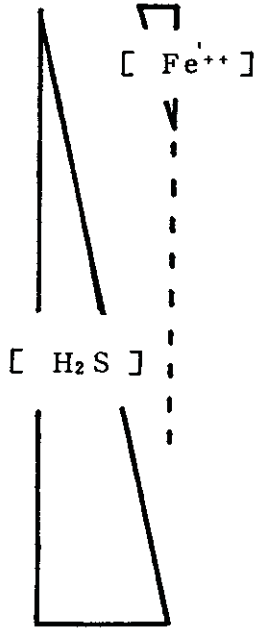
---

1) 本社，環境技術開発推進本部，地層科学研究グループ

ではない。しかし，現在の環境で生息している微生物が検出されたと考えられる。人形峠地域の深部地下水では一般細菌が，東濃地域の深部地下水では一般細菌，大腸菌群，嫌気性菌，芽胞形成亜硫酸還元嫌気性菌，放線菌，カビが，Y地域の深部地下水ではカビ，鉄バクテリアが，Y地域の沈澱物では一般細菌，大腸菌群，嫌気性菌，放線菌，カビ，鉄バクテリアが，S地域の深部地下水では一般細菌，腸球菌が，S地域の沈澱物では一般細菌，大腸菌群，嫌気性菌，放線菌，カビが検出された（表－2）。これらの結果は，深部地下水は表層水と比較して，一般に微生物に乏しいことを示している。しかし，酸化還元に寄与する鉄や硫酸塩が顕著に見出される一部の試料では，東濃地域の芽胞形成亜硫酸還元嫌気性菌や，Y地域の坑道中の地下水と沈澱物の鉄バクテリアなど，酸化還元反応に伴う反応エネルギーを利用する微生物が生息していることを示唆している（図－1）。

今後は，既存手法を用いた調査をさらに空間的に拡大するとともに，地下深部に適用した試料採取・検査方法の開発，地質環境への影響調査の方法の検討などに取り組んでいく。





O_2 reduction
Denitrification
$Mn^{4+} \rightarrow Mn^{2+}$
NO_3^- reduction
$Fe^{3+} \rightarrow Fe^{2+}$
SO_4^{2-} reduction
CH_4 formation

initial iron sulfide (FeS)
↓
greigite (Fe_3S_4)
↓
framboidal pyrite

酸化還元反応と化学種や微生物との関係は，右上に示す順序で進行することが知られている。しかし，天然に存在する濃度を考慮すると，酸素，鉄，硫黄が重視され，左に示す濃度プロファイルが一般的である。酸化還元反応に伴う反応エネルギーを利用する微生物は，主に酸化還元境界付近に生息しているのが表層環境では一般的である。今回の結果は，地下深部においても，酸化還元境界付近においては微生物活動が見出される可能性を示唆している。

図－1　酸化還元反応と化学種や微生物との関係

表－1　調査地域と試料の概要

	地質時代	岩　　相	サンプリング	試　料
人形峠	白亜紀末	花　崗　岩　類	試　　錐 （MPシステム）	地下水
東　濃	白亜紀末	花　崗　岩　類	試　　錐 （アンビリカルホース）	地下水
Y地域	二　畳　紀	堆　積　岩　類 複合火成岩体 硫化物鉱床	坑　　道	地下水 沈澱物
S地域	新第三紀 中新世	石英安山岩貫入岩	坑　　道	地下水 沈澱物

表－2　微生物調査結果

	地下水				沈殿物	
	人形峠	東濃	Y地域	S地域	Y地域	S地域
一般細菌	○	○	—	○	○	○
大腸菌群	—	○	—	—	○	○
嫌気性菌	—	○	—	—	○	○
芽胞形成亜硫酸還元嫌気性菌	—	○	—	—	—	—
腸球菌	—	—	—	○	＼	＼
緑膿菌	—	—	—	—	—	—
放線菌	—	○	—	—	○	○
カビ	—	○	○	—	○	○
鉄バクテリア	—	—	○	—	○	—

2－3　深部地下水溶存ガス分析技術開発

報告者　環境資源開発課　○

1. はじめに

地質環境調査研究において，深部地下水の特性把握は重要な課題となっている。地下水の特性の中で，溶存ガスの組成は，地下水の化学的性質を反映しているだけでなく，その起源についても貴重な情報を提供するため重視されている。これまでは，散逸するガスを地表で採取したり，地下水をポンプアップして分析を行う試みがなされてきたが，加圧状態にある深部地下水を地表に取り出すために起こる減圧により溶存ガスが散逸して，正確な分析は困難であった（図－1）。人形峠事業所構内の試錐孔へのＭＰシステムの導入により，平成元年より溶存ガスを閉じ込めたままの試料の入手が可能となり，それに伴い深部地下水中の溶存ガスを分析する技術開発を開始した。技術開発と得られた成果の概要を以下に示す。

2. 深部地下水溶存ガス分析システムの開発

市販のガスクロマトグラフを基軸とし，ＭＰシステムの採水容器を直接接続することで，10～50 kg／cm²の水圧下で採水した試料の溶存ガスの分析が可能なシステムを開発した。開発にあたり，①圧力を保持した状態で試料容器をシステム本体に取り付けられる連結部の作製，②空気成分の混入チェックと散逸ガス量を確認するための真空ポンプの真空計計量管を連結させたガスサンプリング装置の設置，③数種の無機ガスの分析のための２種類の分離特性の異なるカラムの併用連結，④低濃度（ppm）～高濃度（%）のガス分析を同時に行うための２種類の検出感度の異なる検出器の設置，⑤人為的な分析操作ミスをなくすための一貫した自動分析が行えるタイマーユニットと自動バルブの設置などの改良を行い（表－1），システムを組んだ（図－2，図－3）。

本システムの開発によって，地下深部での様々な深度での地下水中の溶存ガス分析を簡便かつ正確に行うことが可能となった。

3. 適用試験

本システムを用い，人形峠地域の深部地下水を対象として適用試験を行った。人形峠地域の深部地下水では，CO_2，CH_4とも検出される部分，両方とも検出されない部分も存在し，その分布について一般的傾向は認められない。検出される部分での濃度は，CO_2については10^{-1}～10^{0} mg／1，CH_4については10^{-4}～10^{0} mg／1　のオーダーであった（図－4）。ガスの散逸に伴う地

下水の水質変化は認められない。また，散逸するCO_2，CH_4ガス濃度とpHの実測値より推定した酸化還元電位は－200 ～ －600 mVであり，SO_4^{2-}とHS^-との緩衝平衡の酸化還元電位と良い一致を示す（図－5）。これは，地下水中にSO_4^{2-}が存在するが，H_2S臭も認められるという調査結果と調和的である。これらの結果は，本システムが溶存ガス組成の把握のみにとどまらず，ガスの散逸が水質へ与える影響の検討に基づく水質分析の信頼性の向上，測定の難しい酸化還元電位の推定に有益であることを意味している。

今後は，データの蓄積とともに水質の起源などについても解明するために希ガスの分析を行う。

質疑応答

Q：地下水を大気圧下で開放した場合，どの程度Eh，pHが変化するのか？

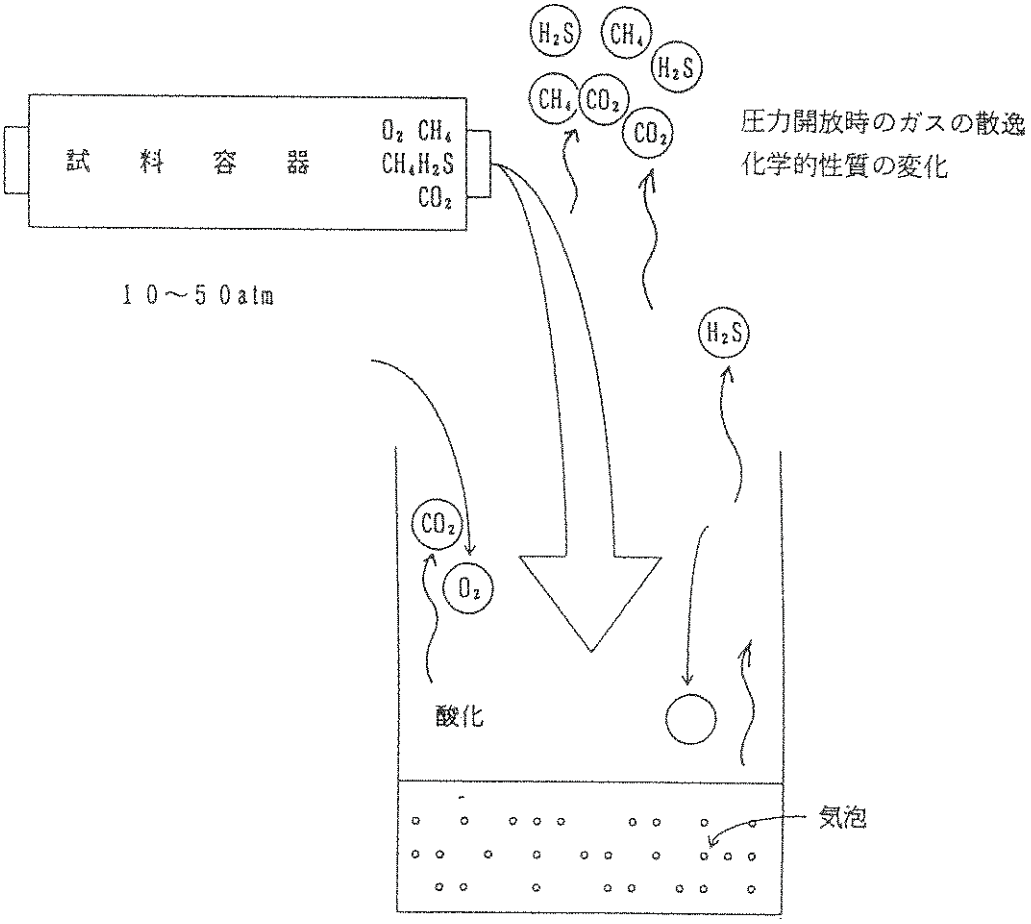
A：pHは，迅速に分析すれば大きな変化はなく，データが取得できる。
Ehは，－200 mV → ＋200 mVまで変化する。

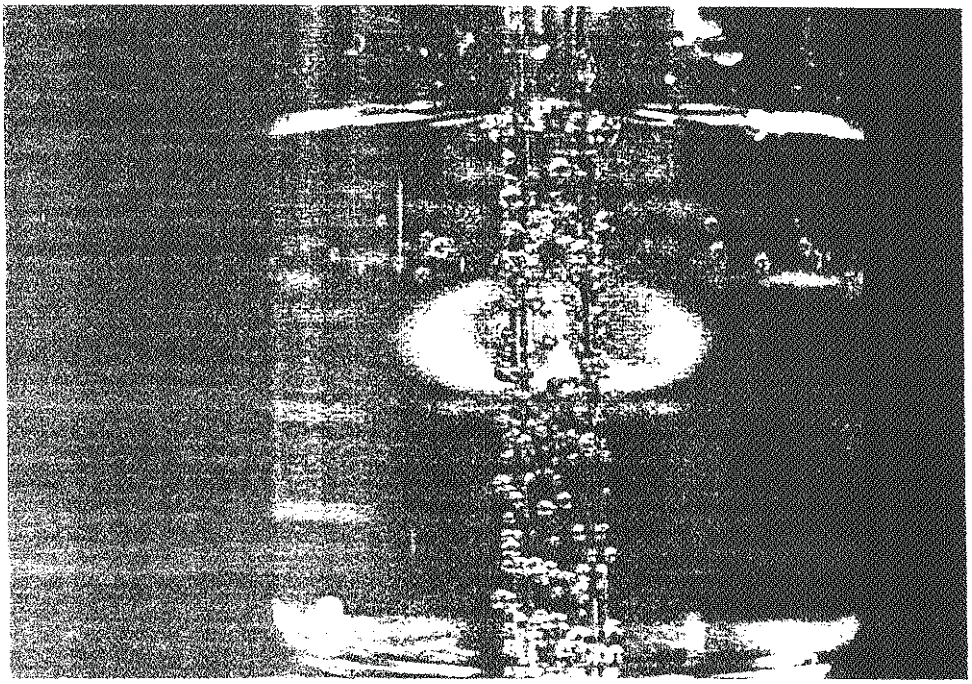
Q：地下の圧力を保持したままでのEh，pH測定は，出来ないのか？ 行えれば，現在行っている大気圧下での測定法の検証になる。

A：耐圧Eh，pHセンサーについては，現在開発中である。

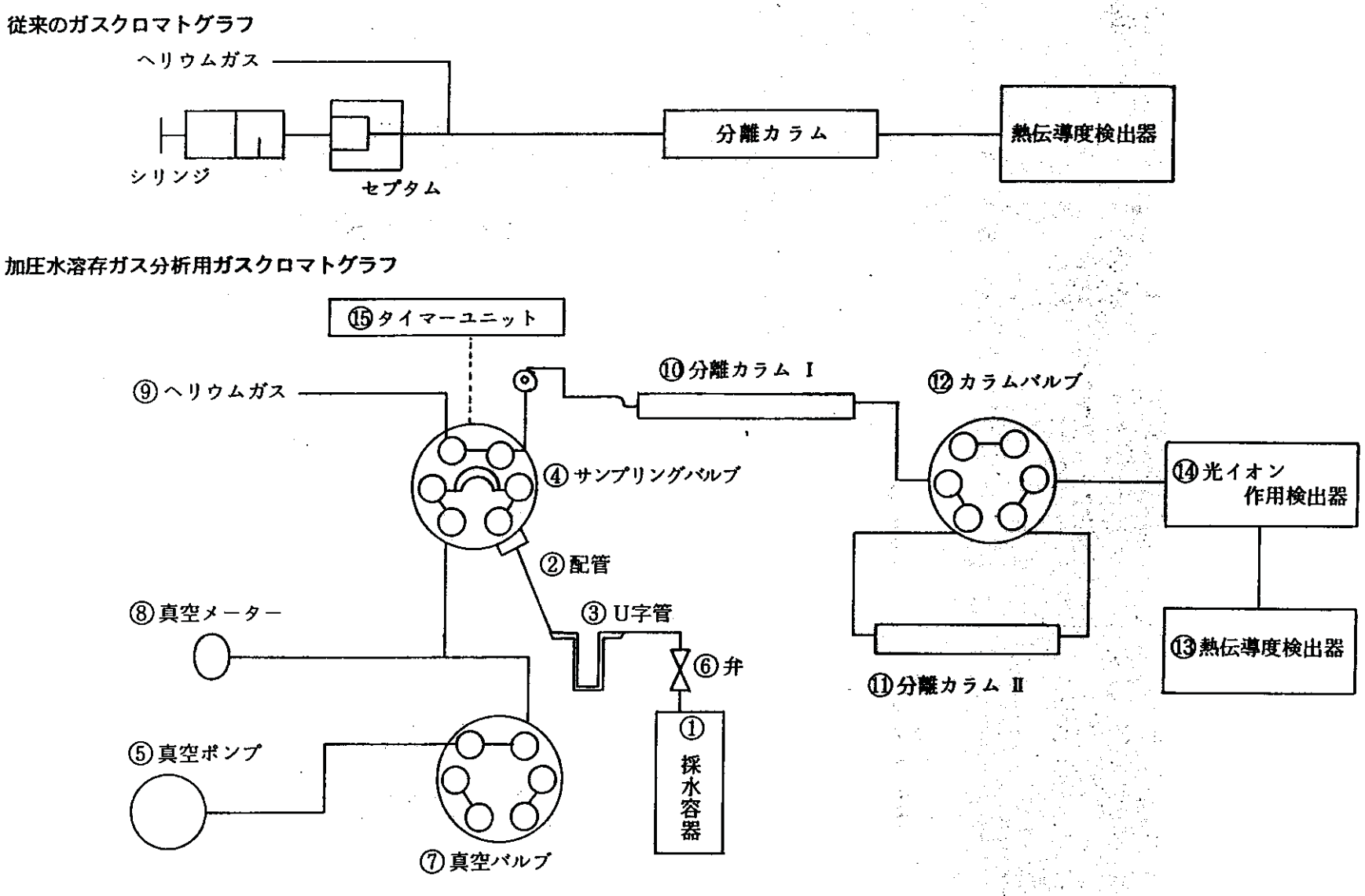
Q：分析システムを車載形にする際，問題点はあるか？

A：よりコンパクトにする必要がある。今後，検討していく。

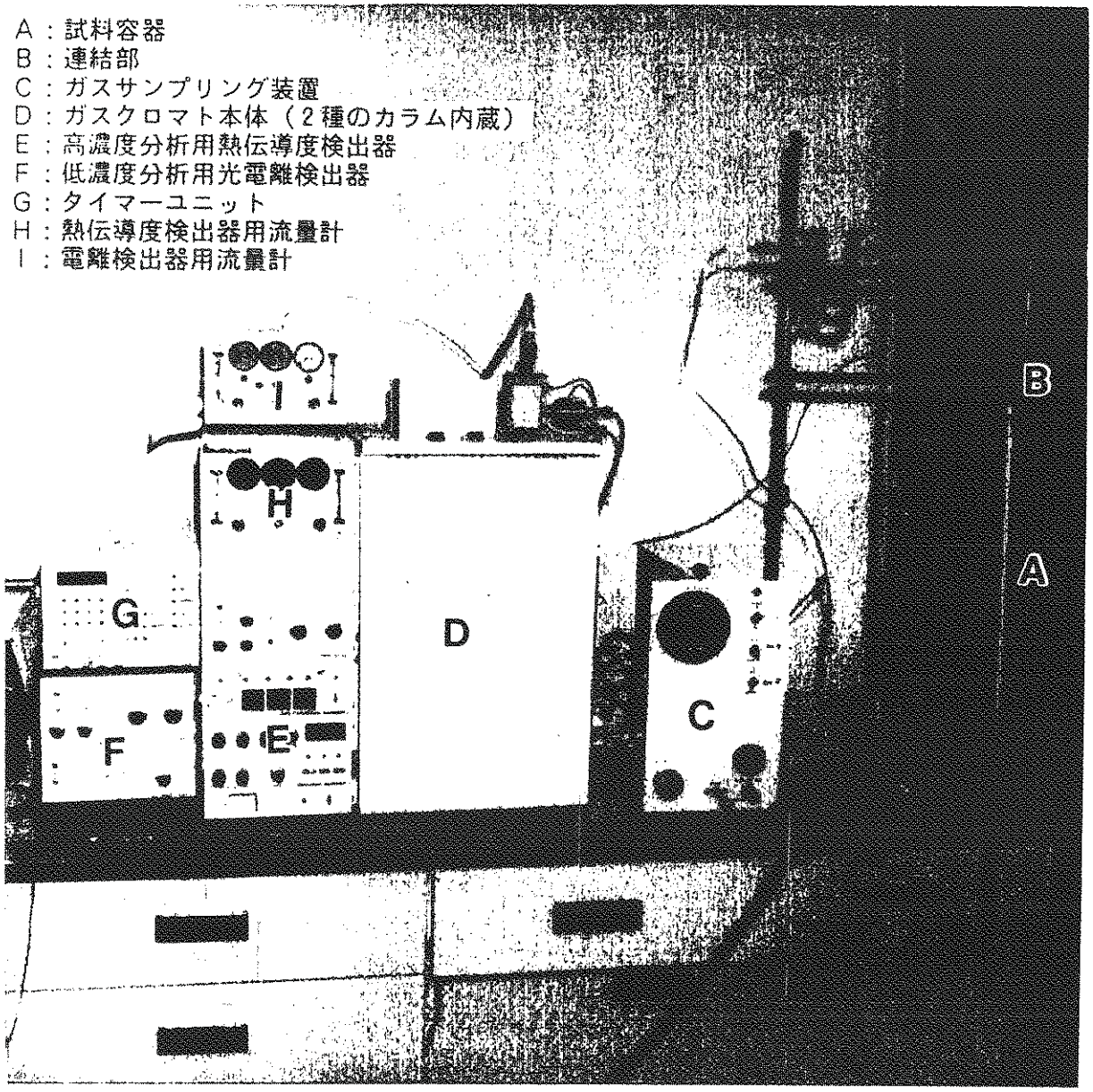




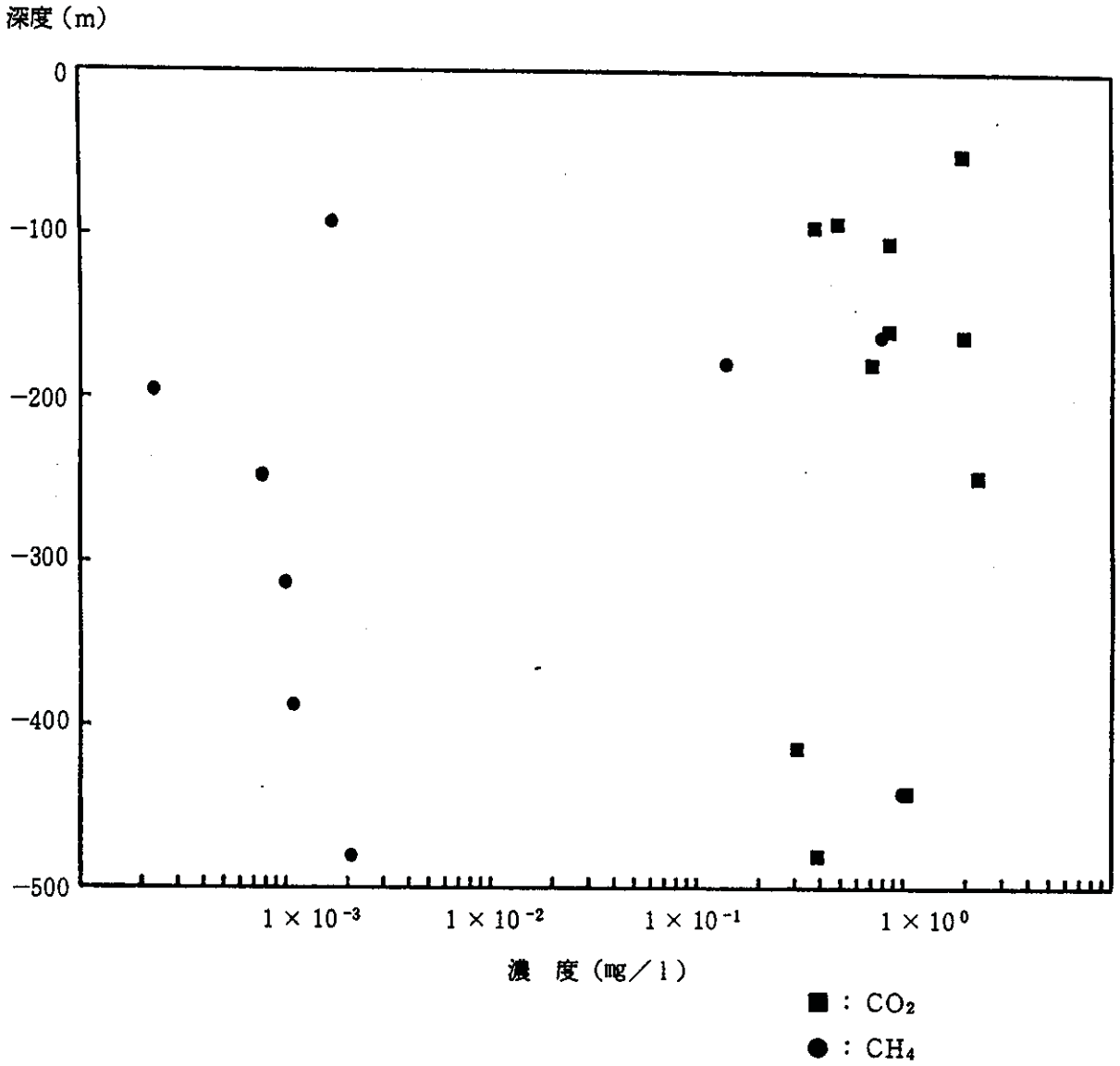
図－1　採水した深部地下水試料の性状
（概念及び実際例）



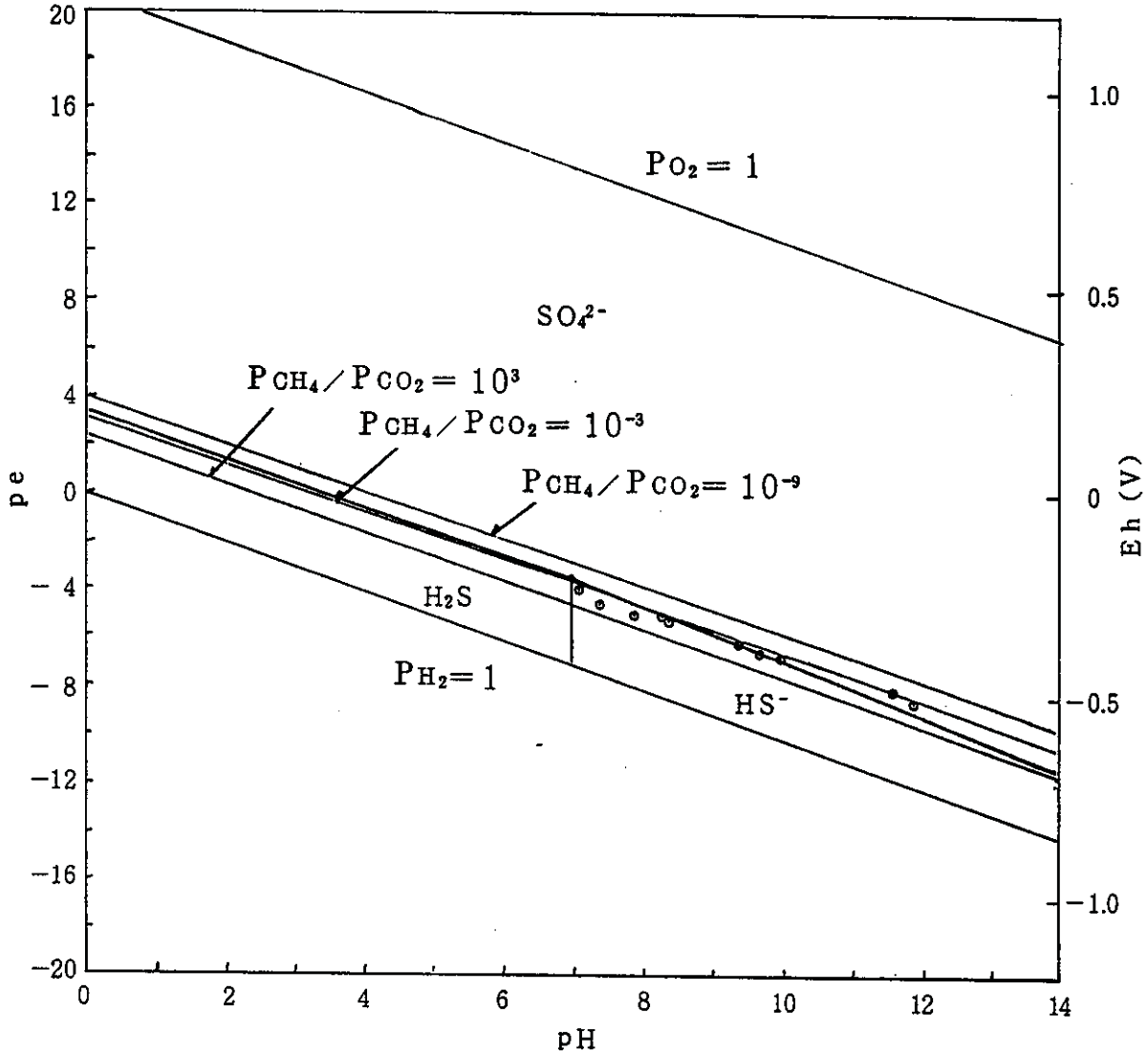
図－2　深部地下水溶存ガス分析システム開発における改良点



図―3　開発した深部地下水溶存ガス分析システム



図－4　人形峠地域深部地下水の溶存ガス分析結果



図－５　ガス成分より推定した深部地下水のＥｈ

表－1　深部地下水の溶存ガス分析上の問題点とその対策

問　題　点	対　策	改　良　点*
1. 圧力の保持	試料容器と分析装置の連結	① ② ③ ⑥
2. 装置の破損防止 散逸ガス量の把握 コンタミネーションの防止	ガスサンプリング装置	④ ⑤ ⑦ ⑧
3. 複数成分の分析	2種のカラムの併用連結	⑩ ⑪
4. 幅広い濃度に対する分析	2種の検出器	⑬ ⑭
5. 分析の簡便化 人為的ミスの防止	タイマーユニット，自動バルブの設置	④ ⑫ ⑮

*) 改良点は，図－2を参照

2－4　水－岩石反応試験

報告者　環境資源開発課　○[　　]

1. はじめに

地質環境調査研究の最重点課題の一つである深部地下水の特性把握の一環として，水質形成機構や地下水流動の解明のため，堆積岩類及び結晶質岩類を対象とした地下水と岩石の相互作用を実験的に把握することを目的とした水－岩石反応試験を平成２年度より開始した(図－１)。初年度である今年度は，調査として常温，常圧下での基礎的なバッチ試験を実施した。これらの成果及びこれを野外調査や熱力学的手法とあわせて解析した主な結果を以下に示す。

2. 試　　料

堆積岩類：東濃地域　５種（生俵累層，明世累層，土岐夾炭累層上部，下部Ａ，下部Ｂ〔多量の亜炭を含む〕）以下Ｃ１～Ｃ５と略す）

結晶質岩類：東濃地域　１種（花崗岩）（Ｃ６）

人形峠地域　４種（花崗岩，花崗閃緑岩，風化花崗岩，割れ目充塡鉱物を伴う花崗岩）（Ｎ１～Ｎ４）

釜石地域　２種（花崗岩，割れ目充塡鉱物を伴う花崗岩）（Ｋ１，Ｋ２）

3. 試験方法

120 ccのスチロールビンを用いたバッチ式の試験，時系列データを取得する（図－２）。

固定したパラメータ：温度（常温），圧力（常圧），水／岩石比(100g／10g)，大気雰囲気

変化させたパラメータ：pH初期値（５，８），粒径（粗粒，細粒）

分析項目：陽イオン（原子吸光分析，ＩＣＰ発光分光分析），pHなど

4. 主な成果

①堆積岩類：陽イオンの溶出は試験開始後約３日まで急激に変化し，以降の大幅な変化は認められない(図－３)。また，pH初期値や粒径の溶出への効果は顕著には認められない。ほぼ一定となった溶液の濃度を地下水実測値と比較すると，Ｃ１とＣ５では類似せず，Ｃ２とＣ４では極めて類似する(図－４)。極めて類似する部分の存在から，堆積岩類の水質形成は，地下水が岩石の粒間を通り岩石全体との反応の進行により形成されることを示唆する(図－５，左)。

②結晶質岩類：陽イオンの溶出は試験開始後約15日まで急激に変化し，以降の大幅な変化は認められない。pH初期値の効果は認められないが，N4以外の岩石では，粒径の効果が顕著で，細粒は粗粒と比較してNa^+とK^+の溶出が増加する。このことは，溶出が化学平衡の規制に加えて細粒化に伴う反応表面積の増加による鉱物の溶解速度の違いにも支配されることを示唆する。結晶質岩類の試験結果は，いずれの岩石も，地下水実測値と類似しない（図－6）。しかし，N4の割れ目充填鉱物のみの溶出を外挿すると，Mg^{2+}は若干異なるものの，Na^+とK^+については実測値と類似し，結晶質岩類の水質形成では，地下水の通路である割れ目充填鉱物が重要であることを示唆する（図－5，右）。

今後は，他地域，他岩種のデータの蓄積，水／岩石比，雰囲気などの制御，基礎データとしての鉱物ごとの試験を行い，水質形成機構を詳細に解明する。

質疑応答

Q：実際の地質環境と実験とでは系（閉鎖系）が異なるのでは？　また，流通系の試験の方が実際に即しているのではないか？

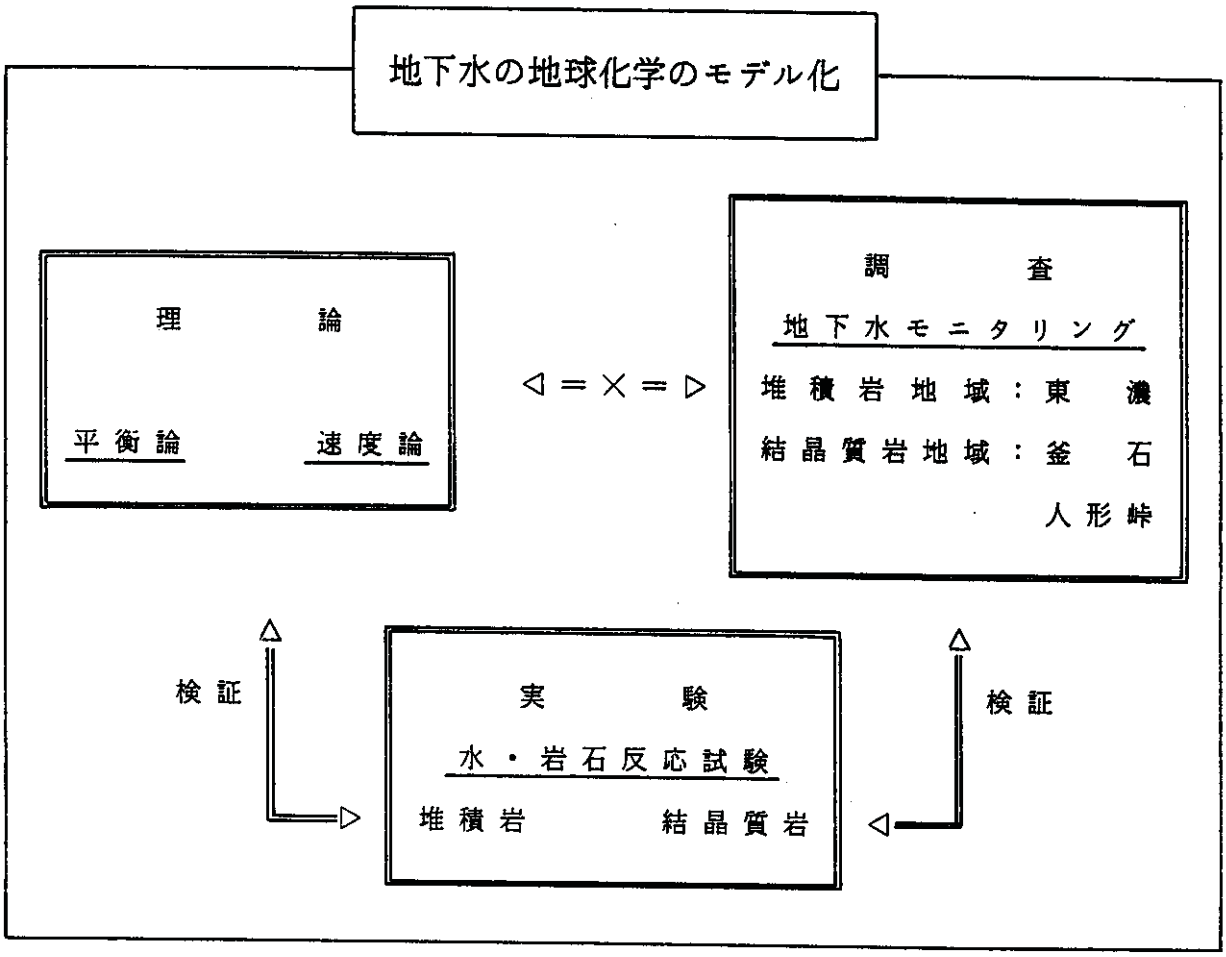
A：実際の系は流通系であるが，実験では単純化している。実際の流動は東濃鉱床での年代決定などから，非常に遅いことが考えられる。まず閉鎖系で行う。流動が溶出に効いていなければ，流動については考慮しなくてもよくなる。

Q：堆積岩について粒度による違いが認められないのはなぜか？

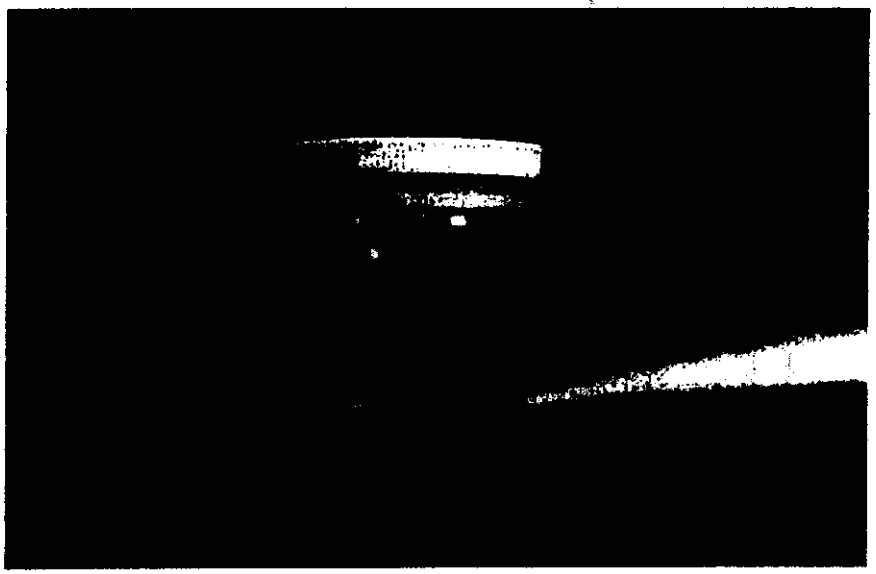
A：堆積岩の構成鉱物としての粘土等が多く，これらの影響も考えられる。

Q：堆積岩について地下水の実測値と異なる試料があるのは，水質形成にはある特定の鉱物が効いているのではないか？

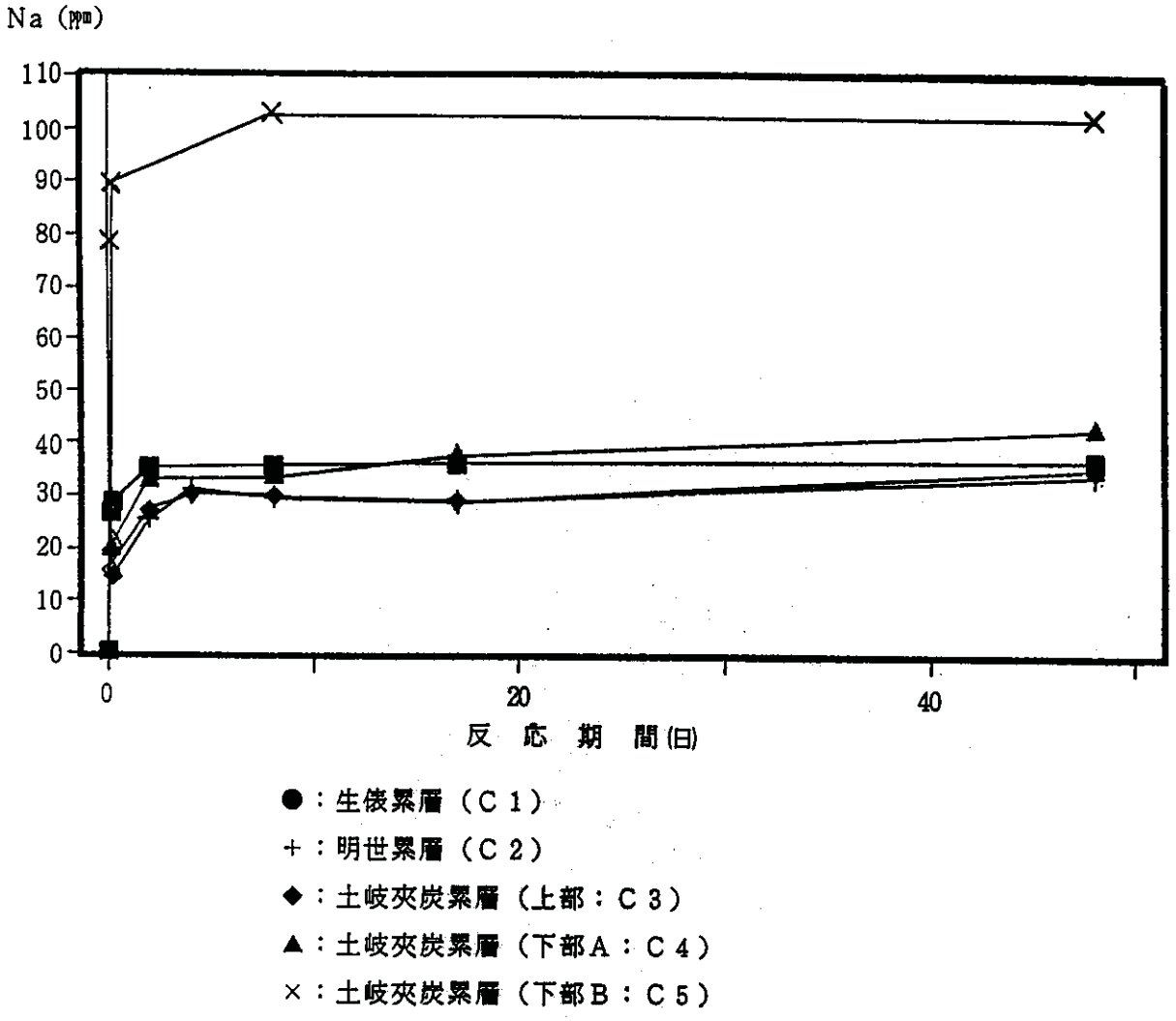
A：実測値との違いは，これまでの試験ではわかっていないが，異なるものがSO_4^{2-}の高いことから，その影響が考えられ，これを抑制するための雰囲気を制御する実験が必要であると考えられている。また，特定の鉱物の溶出については，今後検討していく予定である。



図－1　水－岩石反応試験の位置付け

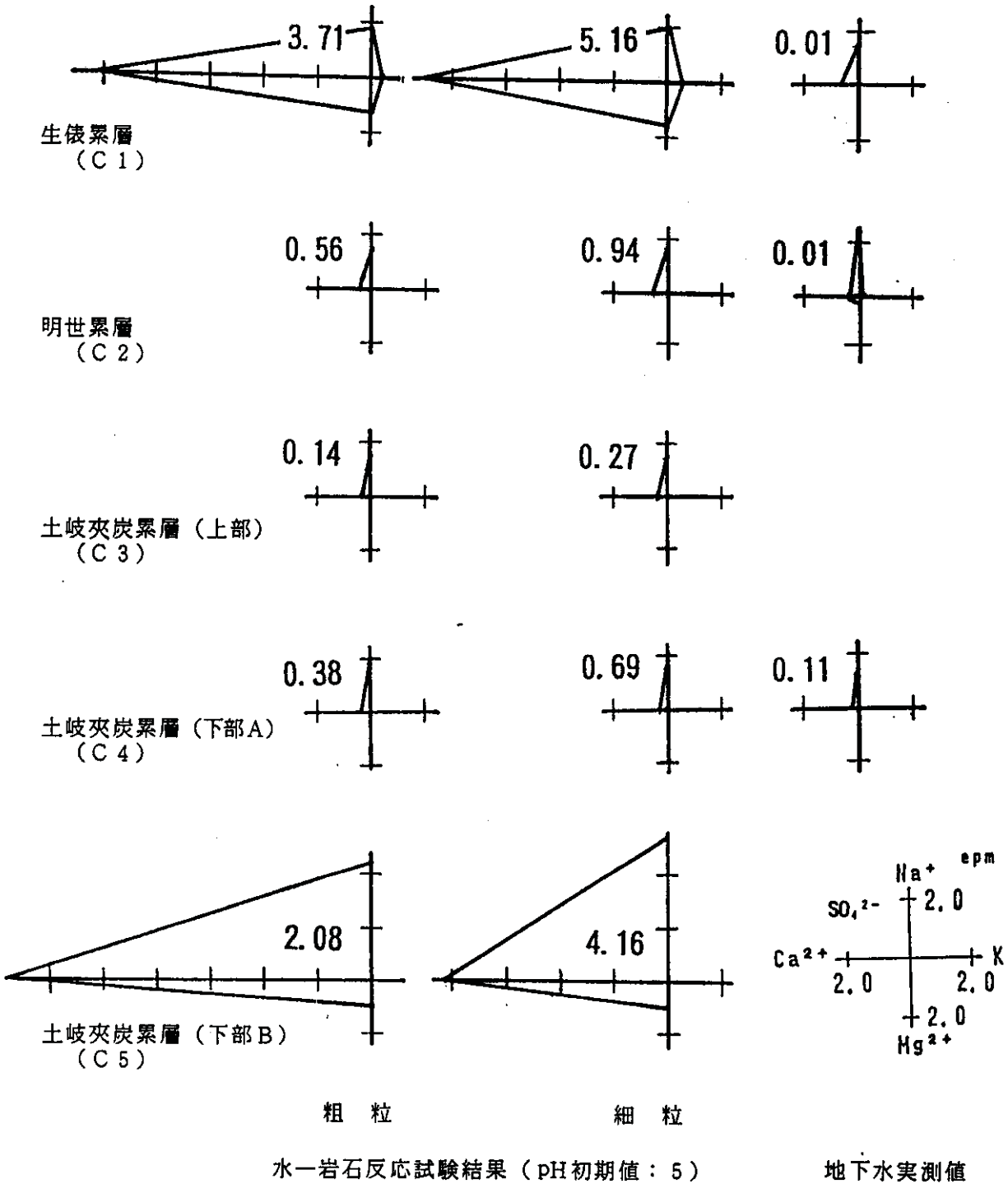


図－２　水－岩石反応実験例

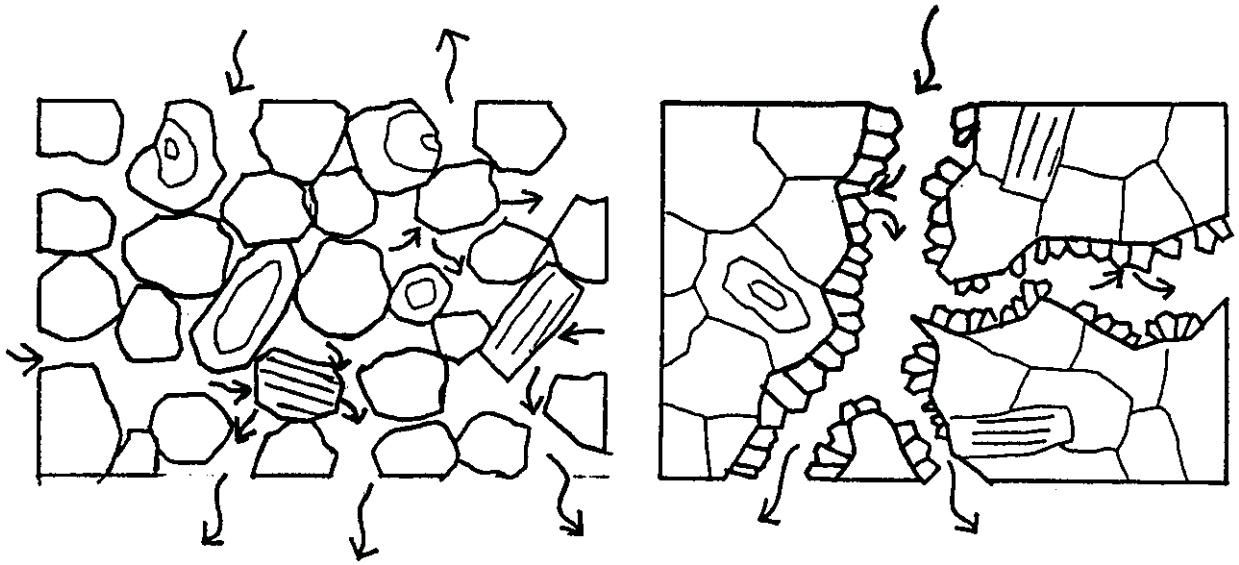


図－3　堆積岩類を用いた水－岩石反応試験におけるNa^+の経時変化

（pH初期値：5　粗粒）



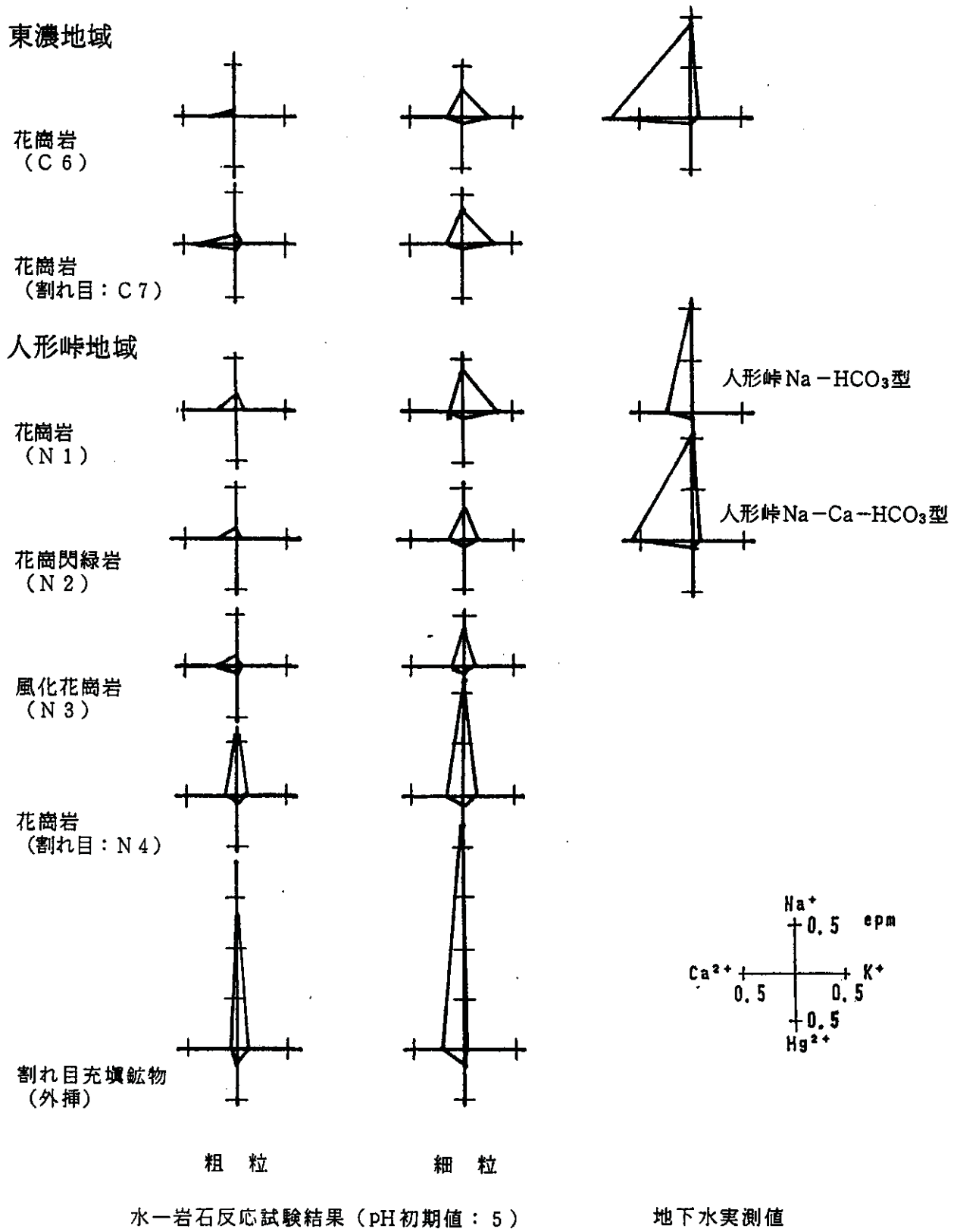
図－4　堆積岩類の水－岩石反応試験結果と地下水実測値との比較



岩石全体との反応　　割れ目充塡鉱物との反応

堆積岩類　　結晶質岩類

図－5　堆積岩類と結晶質岩類での水－岩石相互作用の概念図



図－6　結晶質岩類の水－岩石反応試験結果と地下水実測値との比較

2－5　土壌－植物系における元素挙動研究

報告者　環境資源開発課　○[redacted]
[redacted]1)

1. はじめに

地表付近における元素の分布や挙動は，物理プロセス，化学プロセスに加えて，生物プロセスも関与するため極めて複雑である。多湿温暖という日本特有の自然環境下においてウラン鉱床付近の元素の分布や挙動を把握することを目的とし，元年度より夜次鉱さい堆積場（夜次ダム）（図－1）をフィールドとしたウランなどの元素挙動研究を開始した。2年度は，土壌－植物系における元素の移行に着目し，フィールドの精査を行うとともに簡易温室内での模擬試験を行った（図－2）。以下に，主要な成果を示す。

2. フィールド調査

①土壌：本地域の土壌は，人の手が加わっていない自然状態に対応する「黒ボク土」，土地造成を行った部分に対応する「造成土」，堆積した鉱さいなどに対応する「鉱さい」の3種に区分される（図－3）。「鉱さい」はダム中央部の湿地帯に，「造成土」はその周辺の乾燥した平坦面や法面に，「黒ボク土」は自然状態の斜面に主として分布する（図－4）。これらの土壌の鉱物組成は，石英，長石類，雲母類，角閃石類，ギブス石，カオリナイト等よりなり，「鉱さい」はさらに石膏，重晶石を含む場合がある（表－1）。ウランは「鉱さい」に顕著に，また一部の湿地沿いの「造成土」に認められるが，場所によりその濃度は異なり，乾燥重量で数ppmから数百ppmのオーダである。ウランの存在状態はこれまでのところ特定できない。

②植物：本地域の植物は，人の手が加わった湿地帯に普遍的に分布する植物で，詳細な植物社会学的手法による植生調査の結果，60科149種の植物が確認された（表－2）。群落としては，計17群落が確認されるが，主として，ダム中央部の湿地帯はヨシ群落，その周辺の乾燥した平坦面や法面はススキ群落，タニウツギ群落及びワラビ群落，自然状態の斜面はクリーコナラ群落が分布している（図－5）。これら植物中に含まれるウランは，乾燥重量で数十ppbから数ppmのオーダである。土壌中のウラン濃度が同じような場所に成育する植物間では，土壌の性質などにもよるが，タニウツギ，ワラビ，ススキ，ヨシの順にウラン濃度が高い傾向が認められる（図－6）。

---

1) ウラン濃縮工場　生産技術部　品質管理課

3. 考　　察

土壌一植物系における元素の移行を把握するため，土壌と植物（地表部のみ）を組で採取し，化学分析を行った試料の濃縮比率（植物体中濃度／土壌中濃度）（図－7）を見ると，ウランについては，植物の種類のみならず，土壌の性質などによって異なり，幅広い値が見られた。並行して行った簡易温室内での模擬試験の結果を考えあわせると，ウランが土壌溶液中に高い場合は，植物へ移行しやすい傾向が示唆される（図－8）。今後は，濃縮比率を支配するファクターの抽出など，移行モデルの構築を目指した研究を進めていく。

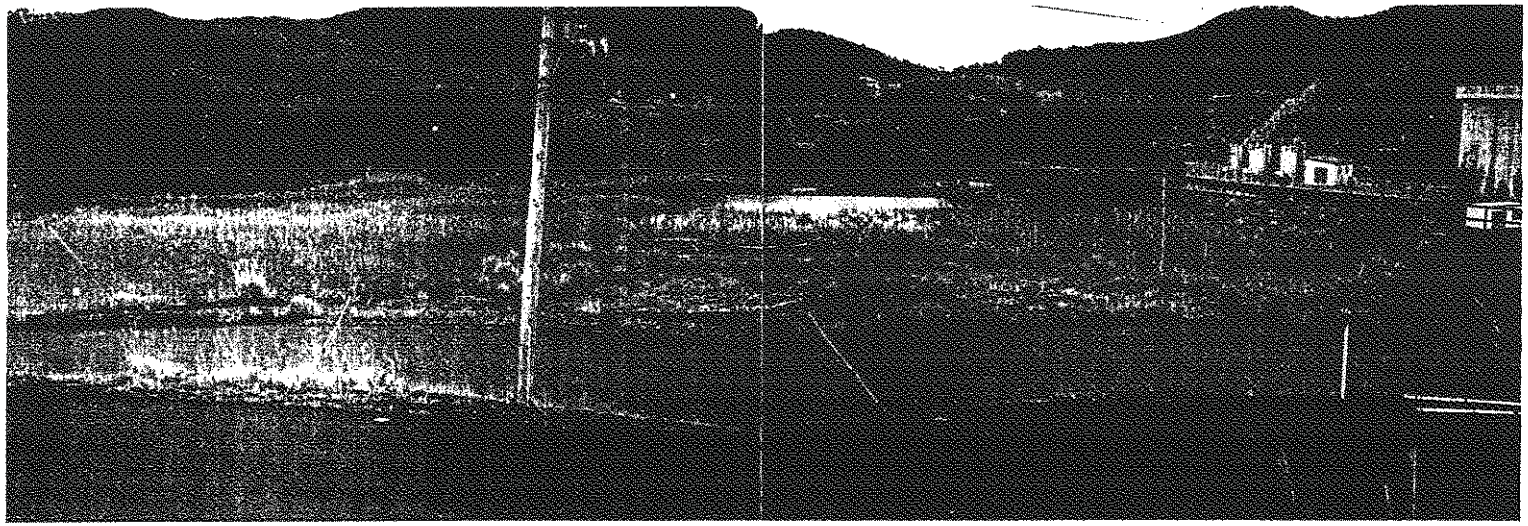
質　疑　応　答

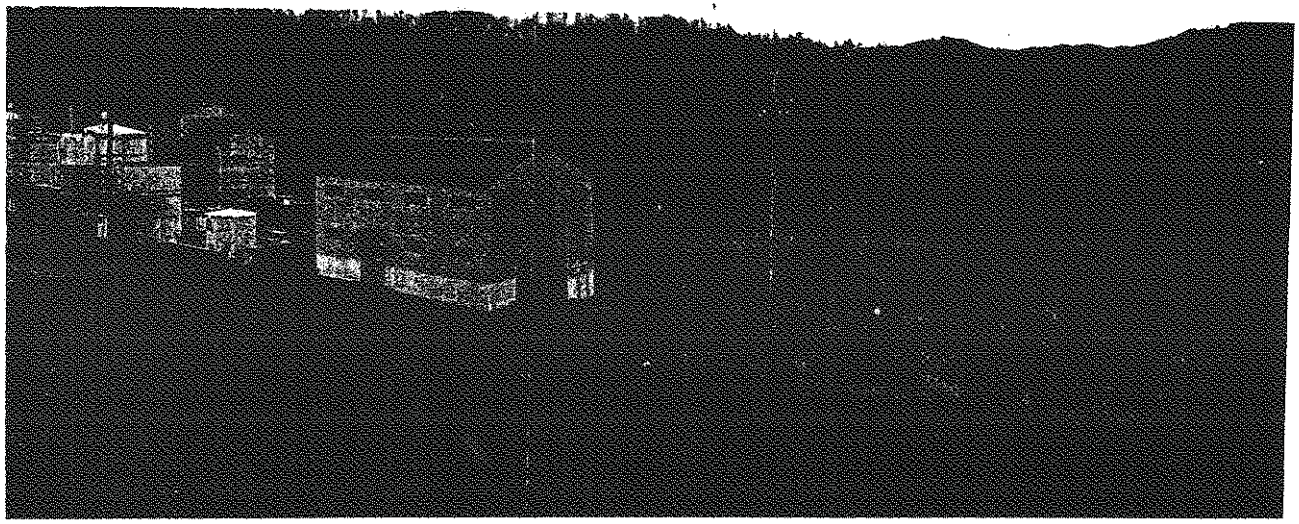
Q：ウランの移動について，土壌粒子の大きさや土壌水などについて考慮しないのか？

A：今回は，概略的な基礎試験中で，粒径，土壌水などについては考慮しなかった。今後，検討したい。

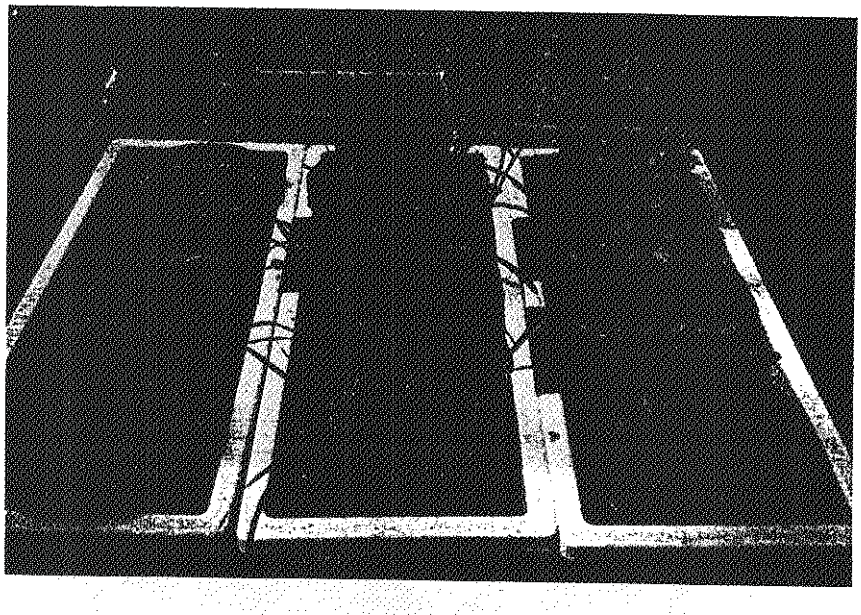
Q：実験の方法をより細分化してみると，どうなのか？

A：細分化する必要はあるが，今回は概略的な基礎試験であり，そこまでは行っていない。今後は色々なファクターについて細分化し，実験を行うつもりである。

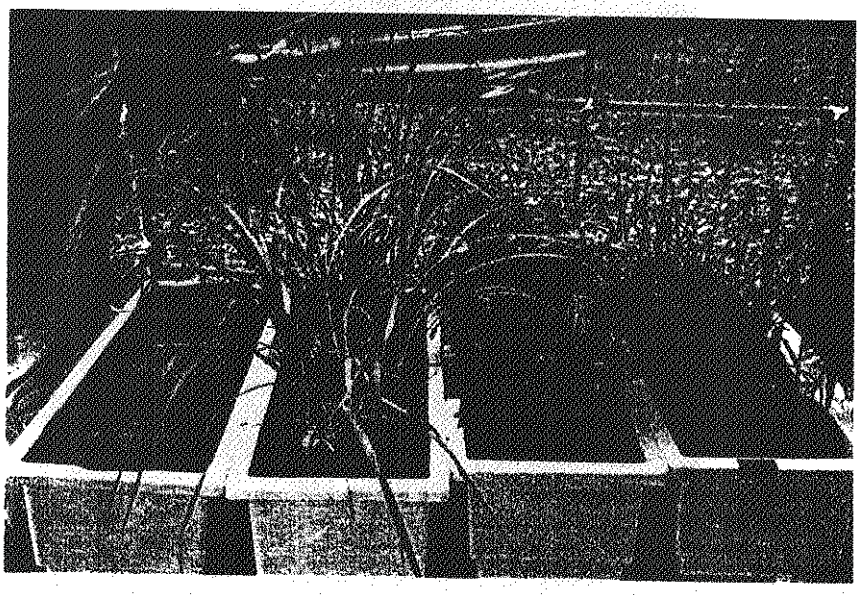




図－1　調　査　地　域　概　観



生育　1ヶ月後



生育　2ヶ月後

図－2　簡易模擬試験例

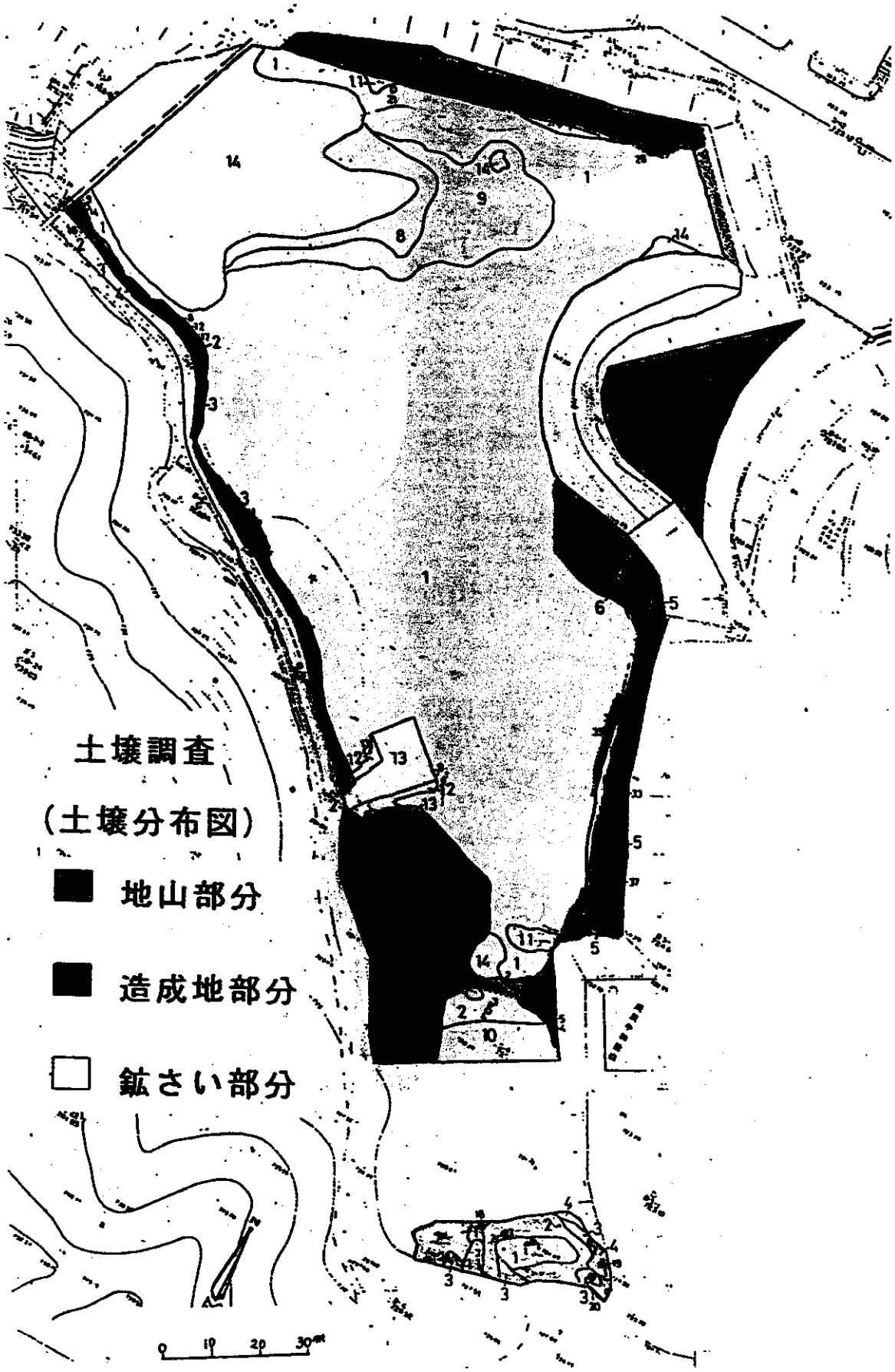
「黒ぼく土」

「造成土」

0　20cm

「鉱さい」

図－3　各土壌の産状



図－4　土壌分布図

図−5 植 生 分 布 図

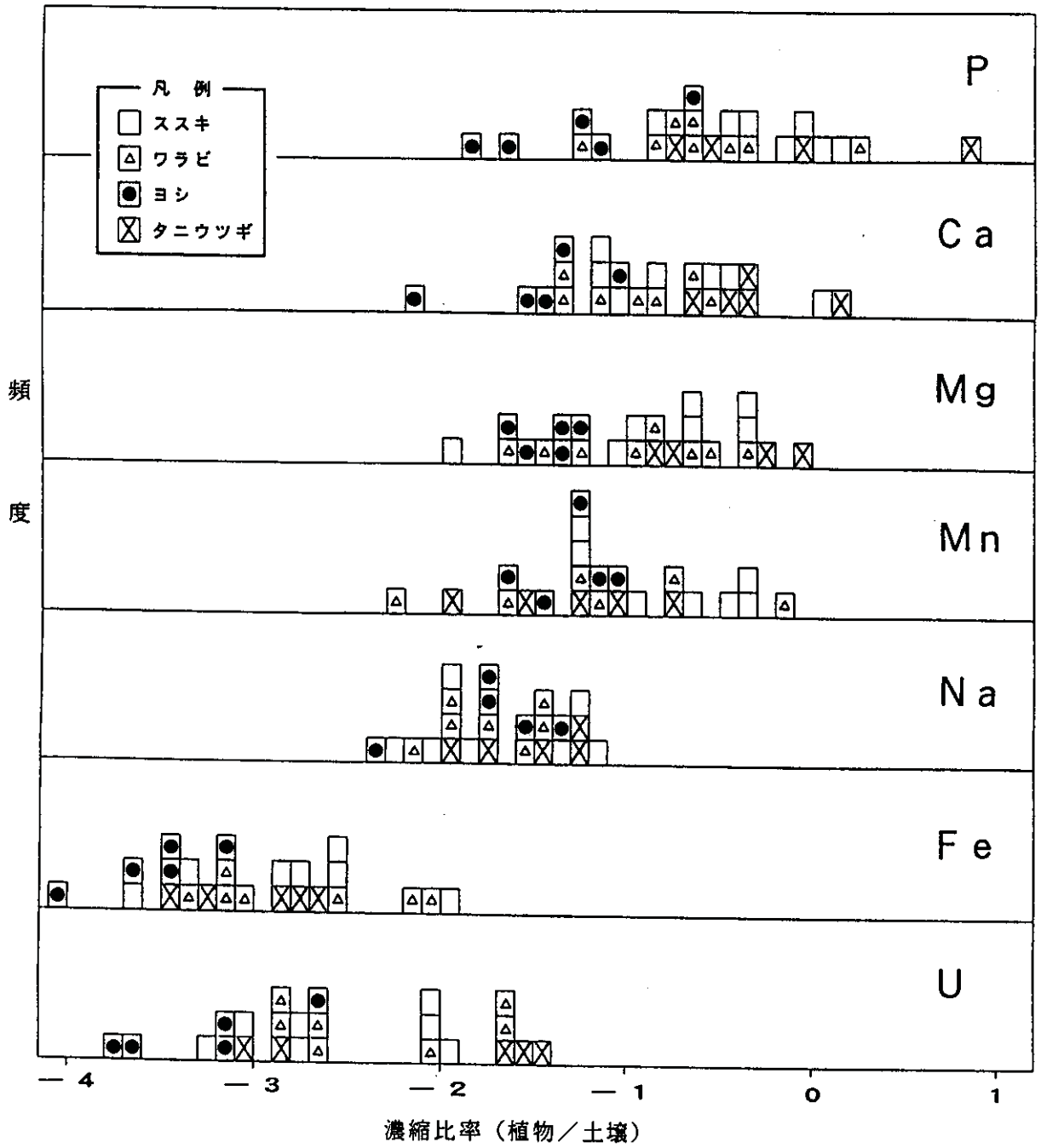
全　体　　タニウツギ ＞ ワラビ ＞ ススキ ＞ ヨシ

造成土　　タニウツギ ≫ ワラビ ≒ ススキ ≒ ヨシ

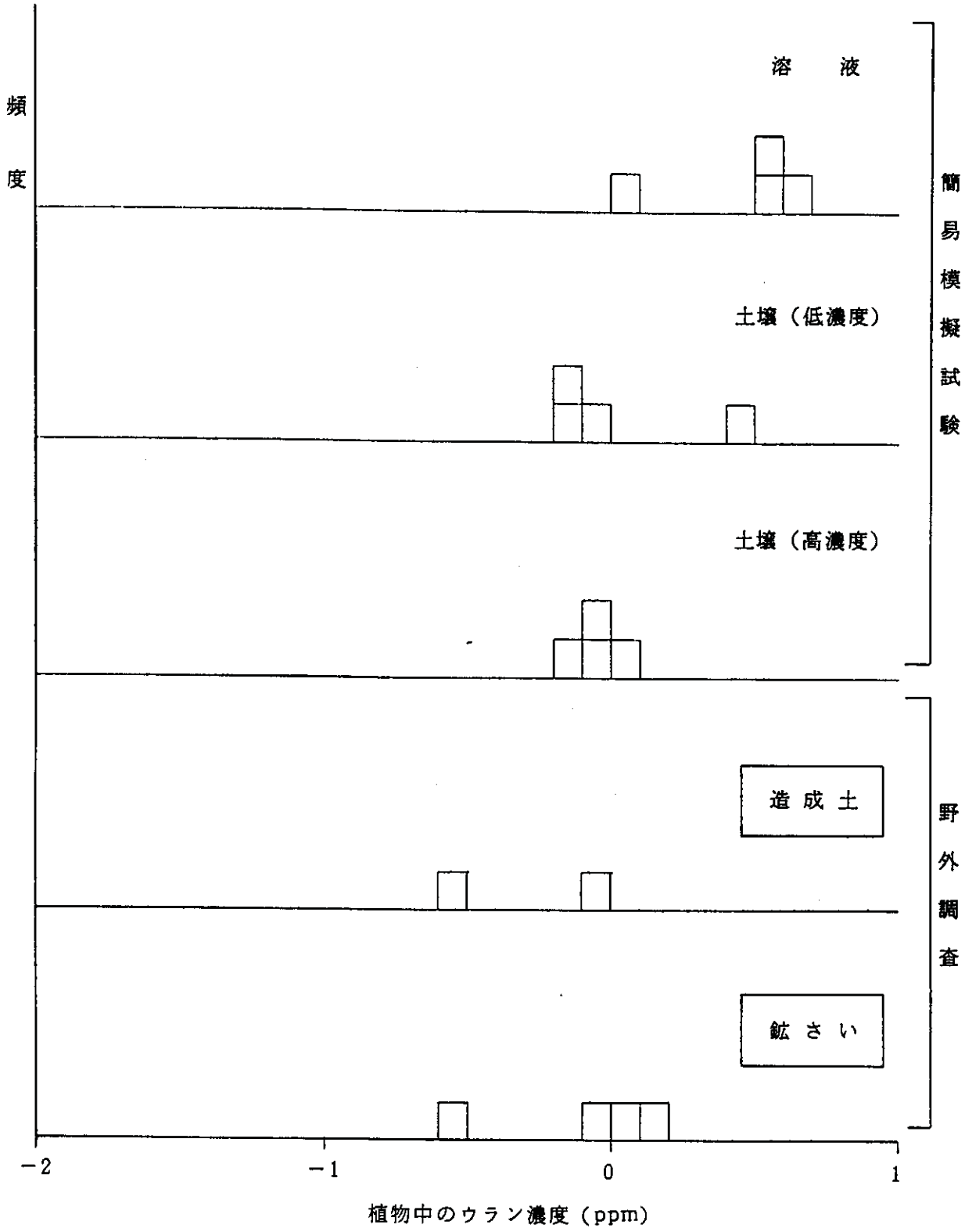
　　≪　　∧　　∧　　∨

鉱さい　　タニウツギ ≒ ワラビ ≒ ススキ ≫ ヨシ

図－6　植物毎のウランの各土壌別濃縮比率の比較



図－7　各植物の元素毎濃縮比率（植物／土壌）



図－8　野外調査と簡易模擬試験結果の比較
－ススキにおけるウランの例－

植物中のウラン濃度は，土壌中のウラン量によらずほぼ一定とみなされるのに対し，溶液でウランを添加した場合は，植物中のウラン量が若干高い傾向にある。このことは，ウランが土壌溶液中に高い場合に植物に移行しやすい傾向を示しているものと考えられる。

表－1　各土壌の鉱物組成

	Qtz	Feld	Mi	Hb	Gb	Gyp	Ba	Kaol	Smec	Chl
地　山	○	○	○	○	○	－	－	○	－	○
造成地	○	○	○	○	○	?	?	○	?	○
鉱さい	○	○	○	○	○	○	○	○	○	?

Qtz：石英，　Feld：長石類，　Mi：雲母類，　Hb：角閃石，　Gb：ギブス石，　Gyp：石膏，　Ba：重晶石，
Kao：カオリナイト，　Smec：スメクタイト，　Chl：緑泥石

表－2　植生調査区域の確認植物リスト（１／３）

番号	門・綱等			科名	種名
1	シダ植物門			ヒカゲノカズラ	ヒカゲノカズラ
2					トウゲシバ
3				トクサ	スギナ
4				ゼンマイ	ゼンマイ
5				イノモトソウ	ワラビ
6				オシダ	ベニシダ
7					イヌガンソク
8					ヒメシダ
9				シシガシラ	シシガシラ
10	裸子植物門			マツ	アカマツ
11	被子植物門	単子葉植物綱		ユリ	コバギボウシ
12					サルトリイバラ
13					ホトトギス
14					アマドコロ
15					チゴユリ
16					シオデ
17					ジャノヒゲ
18					ヤブラン
19				ヤマノイモ	ヤマノイモ
20					トコロ
21				イグサ	イグサ
22				ツユクサ	ツユクサ
23				イネ	チガヤ
24					ヌカキビ
25					ウシノケグサ
26					チヂミザサ
27					メヒシバ
28					ススキ
29					チシマザサ
30					キンエノコロ
31					ヨシ
32					ノガリヤス
33					ナルコビエ
34					シナダレスズメガヤ
35					カゼクサ
36					エノコログサ
37				サトイモ	マムシグサ
38				ガマ	ヒメガマ
39					ガマ
40				カヤツリグサ	カサスゲ
41					ウシクグ
42					アブラガヤ
43		双子葉植物綱	離弁花亜綱	ヤナギ	オノエヤナギ
44					マルバヤナギ
45				ブナ	クリ
46					コナラ
47				クワ	ヤマグワ
48				タデ	イタドリ
49					アキノウナギツカミ
50					ギシギシ

表－2　植生調査区域の確認植物リスト（２／３）

番号	門・綱等			科名	種名
51	被子植物門	双子葉植物綱	離弁花亜綱		ミゾソバ
52					オオイヌタデ
53				ナデシコ	ミミナグサ
54				ヒユ	ヒナタイノコズチ
55				クスノキ	クロモジ
56				アケビ	アケビ
57					ミツバアケビ
58				ドクダミ	ドクダミ
59				オトギリソウ	オトギリソウ
60				アブラナ	タネツケバナ
61				ユキノシタ	イワガラミ
62					チダケサシ
63					ウツギ
64				バラ	ナワシロイチゴ
65					ヤマザクラ
66					ノイバラ
67					ミツバツチグリ
68					ニガイチゴ
69					ナガバモミジイチゴ
70					クマイチゴ
71				マメ	ヤブハギ
72					カラスノエンドウ
73					シロツメグサ
74					ネコハギ
75					ノササゲ
76					ヤハズソウ
77					ミヤコグサ
78					メドハギ
79					クララ
80					ヤブマメ
81					ビッチュウヤマハギ
82				カタバミ	カタバミ
83				フウロソウ	ゲンノショウコ
84				トウダイグサ	エノキグサ
85				ヒメハギ	ヒメハギ
86				ウルシ	ヌルデ
87					ハゼノキ
88					ヤマウルシ
89				カエデ	ウリハダカエデ
90					タカオカエデ
91				モチノキ	イヌツゲ
92				ニシキギ	ツルウメモドキ
93					コマユミ
94				ブドウ	ノブドウ
95				グミ	アキグミ
96				スミレ	ツボスミレ
97					タチツボスミレ
98					スミレ
99					シハイスミレ
100					アギスミレ

表－2　植生調査区域の確認植物リスト（３／３）

番号	門・綱等			科名	種名
101	被子植物門	双子葉植物綱	離弁花亜綱	アカバナ	アレチマツヨイ
102				アリノトウグサ	アリノトウグサ
103				ウコギ	コシアブラ
104					タラノキ
105				セリ	ツボクサ
106			合弁花亜綱	リョウブ	リョウブ
107				イチヤクソウ	ウメガサソウ
108				ツツジ	レンゲツツジ
109				サクラソウ	オカトラノオ
110					ヌマトラノオ
111					コナスビ
112				エゴノキ	ハクウンボク
113					エゴノキ
114				ハイノキ	タンナサワフタギ
115				リンドウ	ツルリンドウ
116					フデリンドウ
117					センブリ
118					リンドウ
119				アカネ	ヨツバムグラ
120					ヘクソカズラ
121					クルマムグラ
122				シソ	ヒメシロネ
123					シロネ
124					イヌトウバナ
125					ニガクサ
126				オオバコ	ヘラオオバコ
127					オオバコ
128				スイカズラ	ミヤマガマズミ
129					タニウツギ
130				オミナエシ	オトコエシ
131				キク	ノブキ
132					ヨモギ
133					アメリカセンダングサ
134					ジシバリ
135					フキ
136					サジガンクビソウ
137					オニタビラコ
138					オオアレチノギク
139					ヒヨドリバナ
140					ノゲシ
141					サワギク
142					アキノキリンソウ
143					シラヤマギク
144					コウゾリナ
145					ヒメジョオン
146					カンサイタンポポ
147					ノアザミ
148					ヨメナ
149					ヨツバヒヨドリ

2－6　鉱物試験技術開発

報告者　環境資源開発課　○[redacted]

1. はじめに

平成２年度の鉱物試験は，海外探鉱関係１８０件（うちジンバブエ１５０件，中国３０件終了：カナダ，ニジェール，ガボンは継続中），所内他事業所関係７０件，ナチュラルアナログ関係１１件の実績があった（表－１）。これらを行うにあたり，微小鉱物の同定手法や，カソードルミネッセンスによる放射線ダメージの検出など新しい手法の導入・開発を行いつつ取り組んできた。以下に主な成果を示す。

2. 微小鉱物の同定技術の向上

微小鉱物のＸ線回折はマイクロディフラクトメータを用いるのが一般的であるが，実際の天然未知試料においては回折されたＸ線の強度がばらつき，鉱物同定が困難なために，これまでは鉱物試験における定常的同定作業にはあまり活用されず，微小鉱物を何らかの方法で分離濃縮し同定を行ってきた。ところが，最近の鉱物試験においては，組織構造観察した試料そのものの同定や微小鉱物の同定に基づく生成環境の推定や鉱物形成のメカニズムの解明など，精度の良い試験研究が要求されている。そこで，鉱物の構造解析のためマイクロディフラクトメータに対して，Ｘ線の強度のばらつきをなくすため最近開発された試料揺動機構を導入し，鉱物試験において簡易な操作で微小鉱物を同定できるよう改良した（図－１，図－２）。同装置を用いることで，ルーチン業務として 0.1㎜程度の鉱物一粒で同定が行えるようになった（図－３）。東濃月吉鉱床におけるナチュラルアナログ研究においては，これまで困難だった顕微鏡観察と対応した輝沸石の同定を行い（図－４），鉱石中に記録されているウラン固定のメカニズムの解明に貴重な情報を提供した。

3. 放射線ダメージの検出

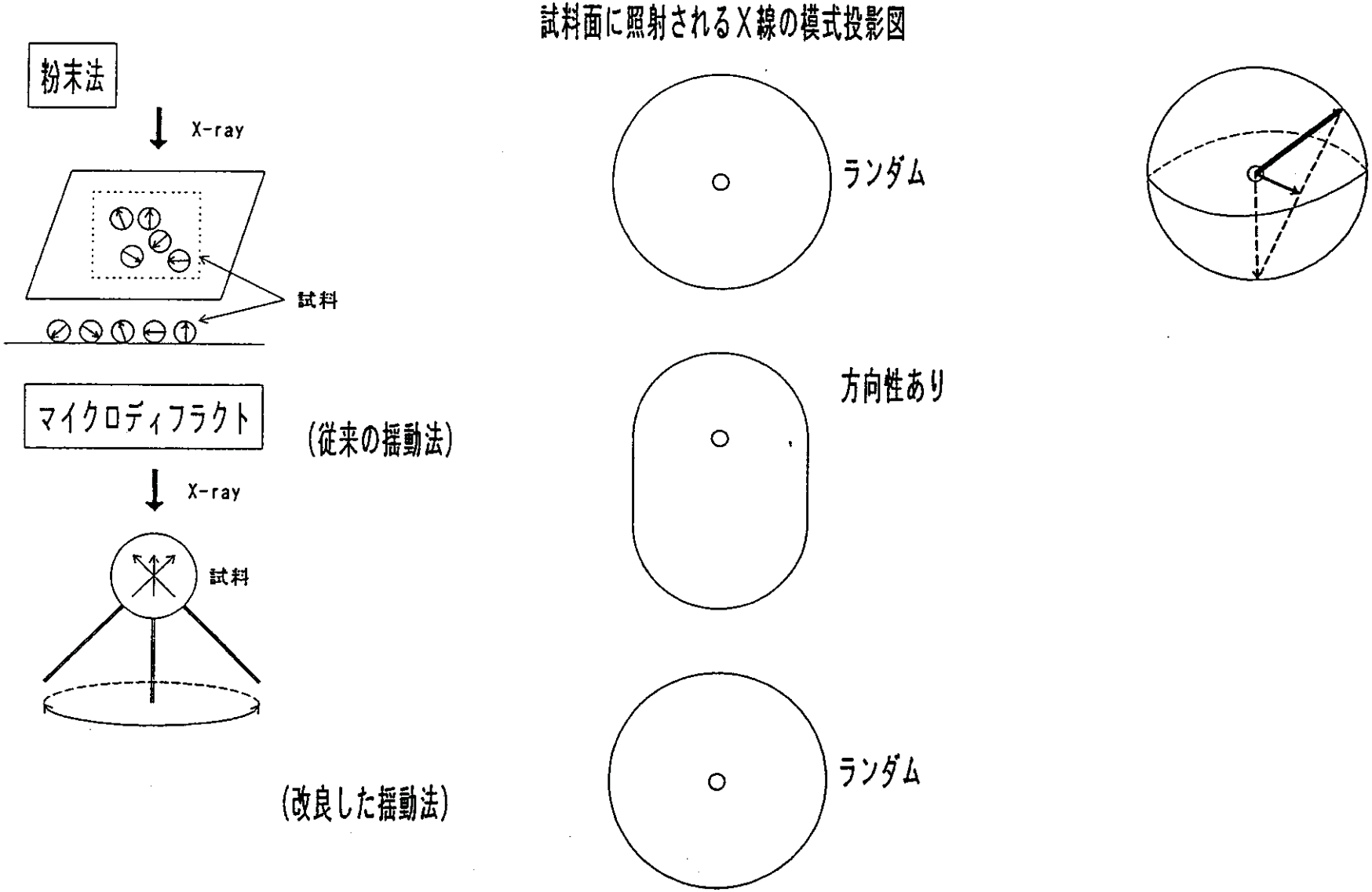
ウラン鉱床の構成元素の起源や経路，地質環境における物質移行の研究において，元素の移動の把握は移動した痕跡をとどめない限り，かつてそこに存在したことさえ把握不能となるため，その解読は地球化学的指標を用いるなど間接的手法によって行われるのが常であった（図－５）。ところが，ウランなど放射性元素が放射能を有することを考えると，岩石中の放射線ダメージの検出は，過去における存在を克明に解明することが可能になるため，ウラン鉱床の研究においては絶大なる効力を発揮する。カソードルミネッセンスは，これまで，岩石，鉱物中の微量元素の把握や組織の解析に主として適用されてきたが，最近，岩石中の放射線ダメージの検出にも有効であることが知られてきた。

そこで，顕微鏡下においてカソードルミネッセンスが観察できる装置を導入し（図－6），鉱物試験への適用技術開発を行った。夜次鉱床や東濃月吉鉱床の鉱石を用いて分析条件を把握したところ，ウラン鉱物に接する石英にα粒子の飛程に相当する放射線ダメージのリムが明瞭に観察できた（図－7）。ジンバブエ・カニヤンバ鉱床の鉱石及び周辺の岩石に適用した結果，殆ど鉱床から離れている岩石ではリムが認められないが，鉱石と一部の近傍の鉱化を受けていない岩石においてリムが観察されたことは，地質環境におけるウランの移行濃集過程が実見可能となったことを意味している。

質　疑　応　答

Q：カソードルミネッセンスでどちらの方向に移動したかわからないか？

A：カソードルミネッセンス単独ではできないと思われるが，カソードルミネッセンスと放射非平衡など他の手法を組み合わせることで解読できる可能性はある。

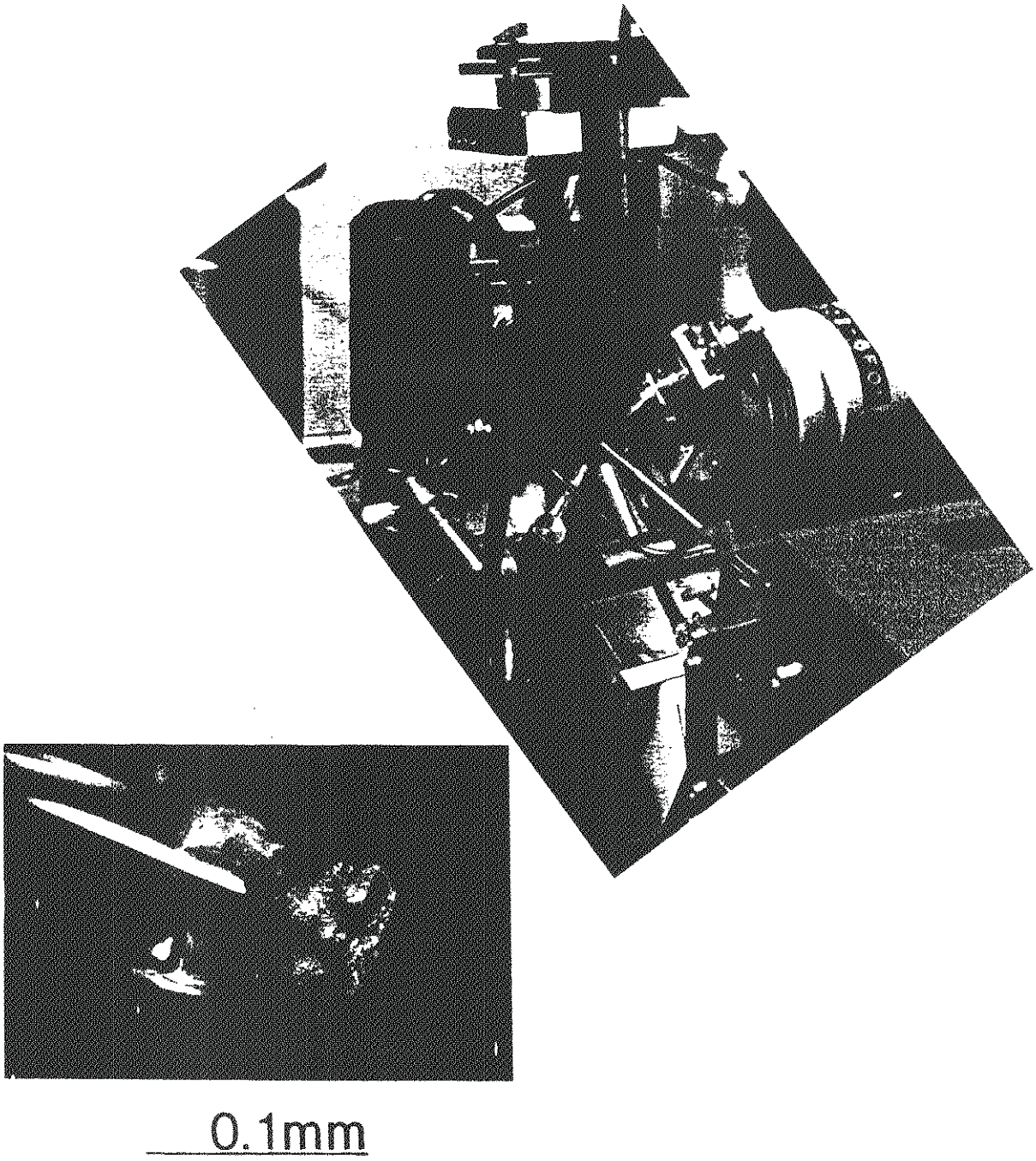


図－1　X線回折計における試料面に照射されるX線の概念図

(左) 粉末法：マイクロディフラクトにおける試料の方位の概念（試料の↑印で表現）

(中) 粉末法，従来揺動　：改良した揺動法の試料面に照射されるX線を　球面に投影したもの。

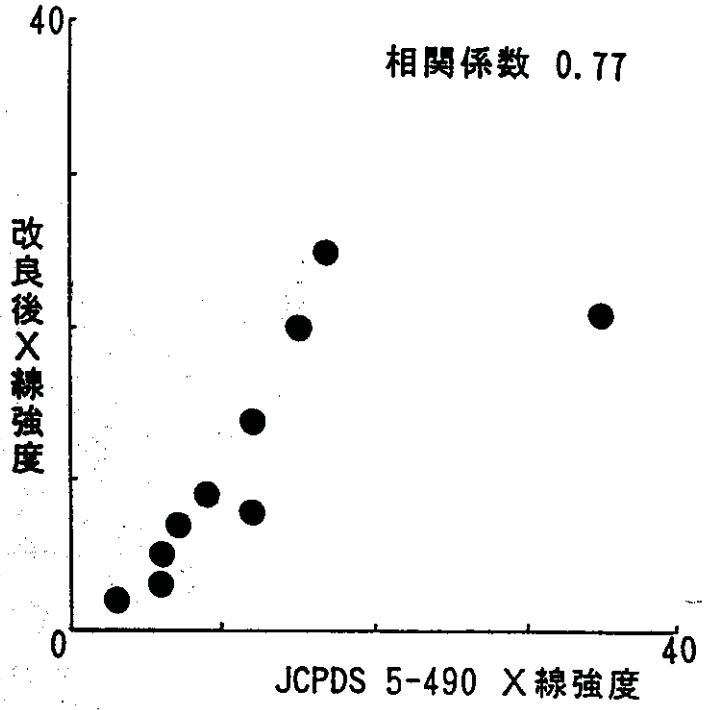
(右) 反射球面：改良し　揺動法は粉末法に近い均質なX線照射が行える。

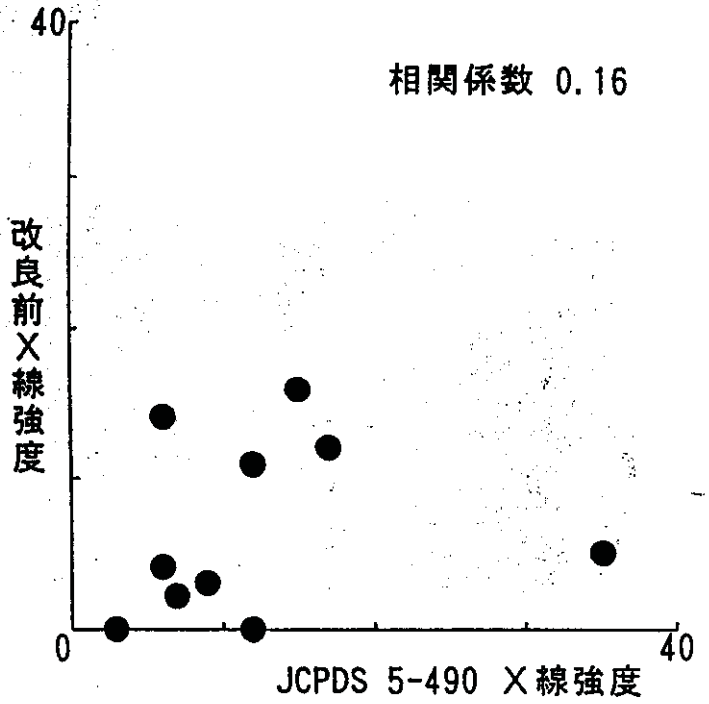


図－2　マイクロディフラクトメータ（右）と分析に供する試料（左下）

Quartzによる X線強度比較

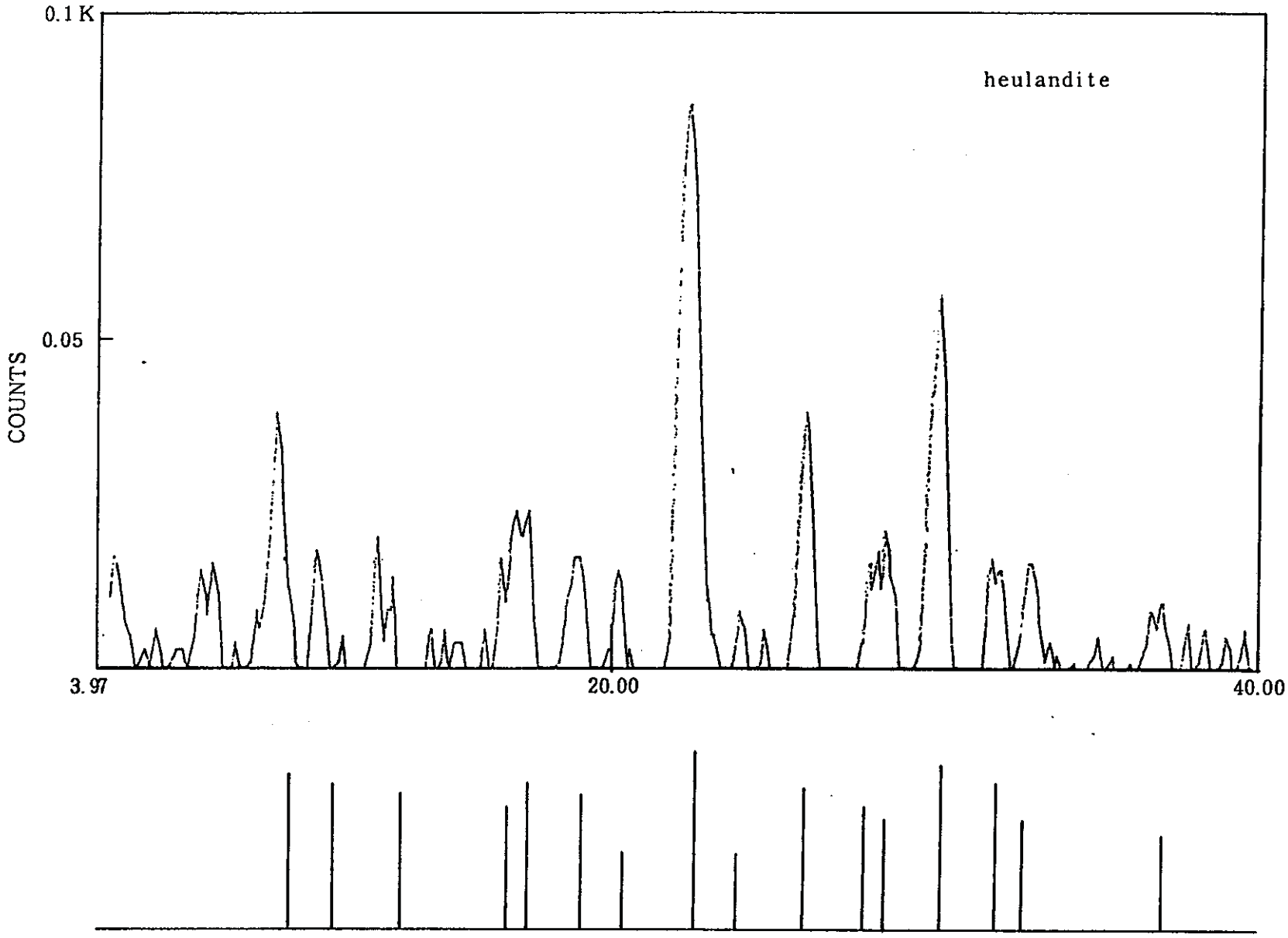
hkl	X線強度 (I/I_1) JCPDS 5-490	改良後	改良前
100	35	21	5
101	100	100	100
110	12	14	11
102	12	8	0
111	6	3	14
200	9	9	3
201	6	5	4
112	17	25	12
202	7	7	2
103	3	2	0
211	15	20	16





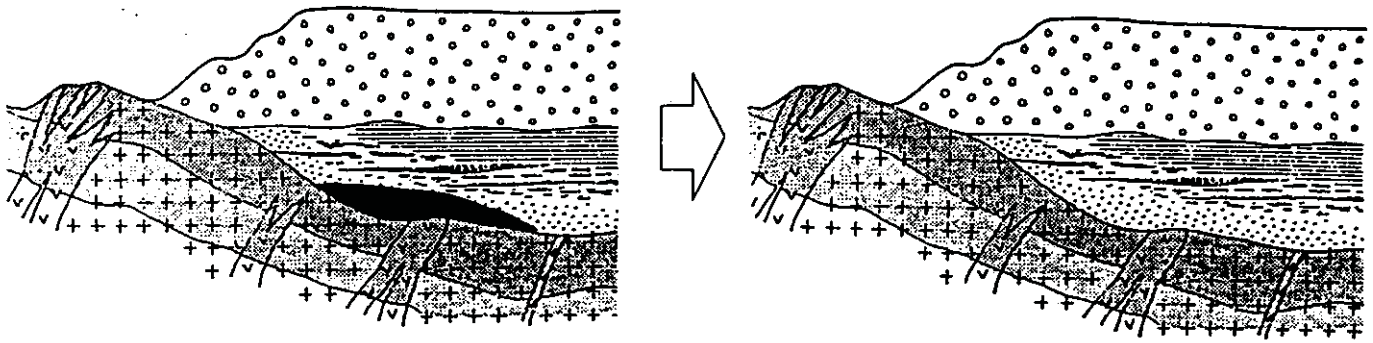
図－3　改良前，改良後のX線強度の比較（Quartz による）

（左）JCPDS データと実測値，（右）JCPDS データと改良後，改良前X線強度の相関図。
相関係数は 0.16 → 0.77 と改良された。



図－4　マイクロディフラクトメータの実測例

東濃月吉鉱床の輝沸石試料，（上）回折チャート，（下）JCPDSの輝沸石データ（強度は対数表示）。一粒（0.1 mm程度）で輝沸石の同定が行えた。



○ 通常の元素

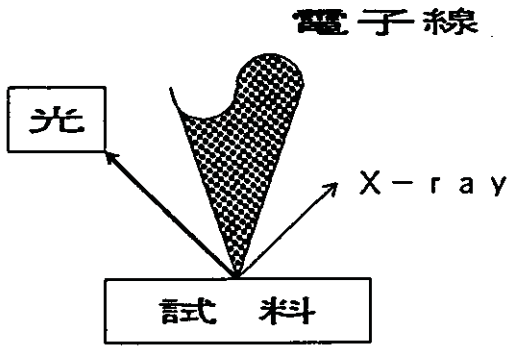
失ったものの解読は困難－間接的手法

○ 放射性元素

ダメージによる格子欠陥で解読が可能

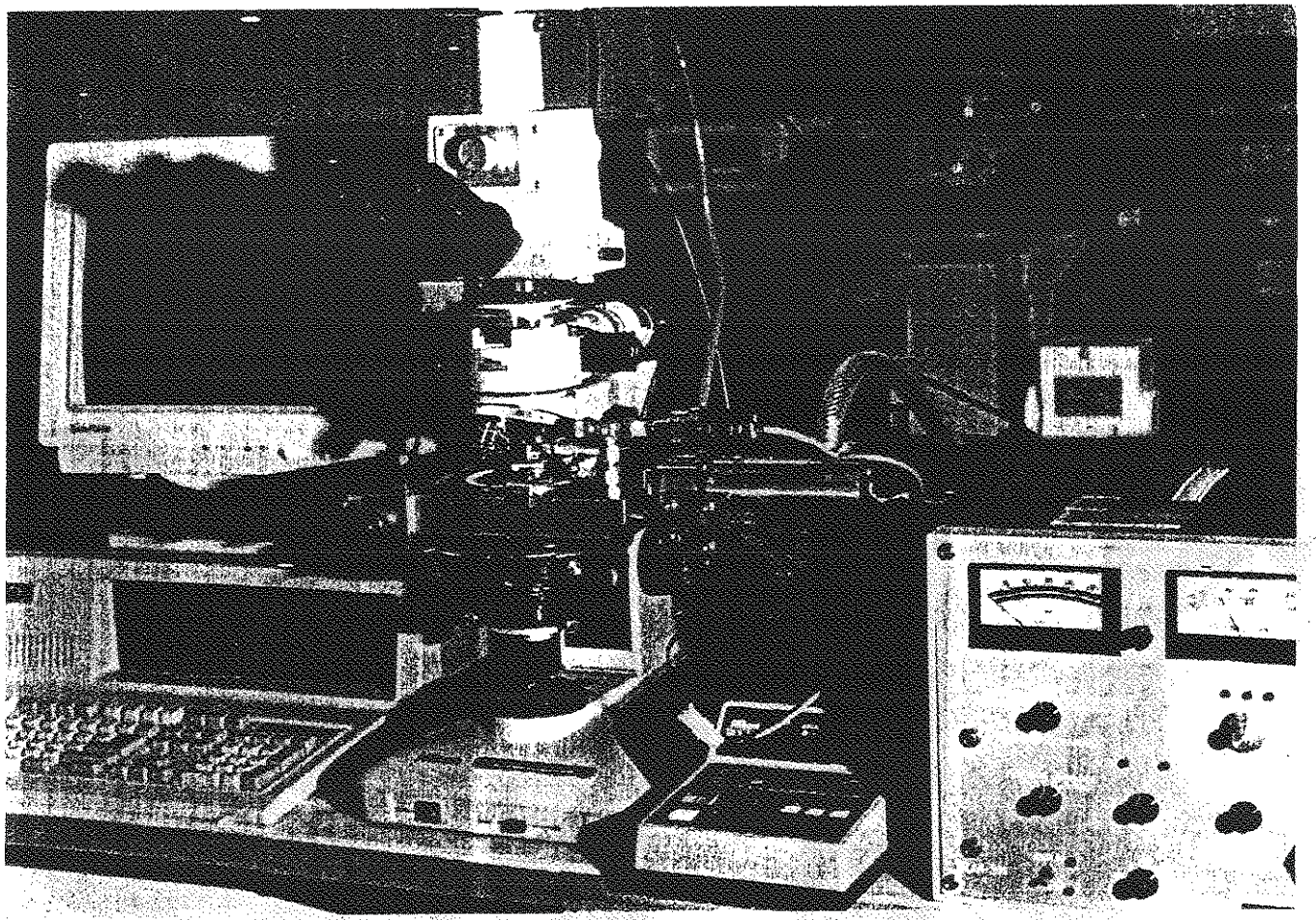
||

カソードルミネッセンス



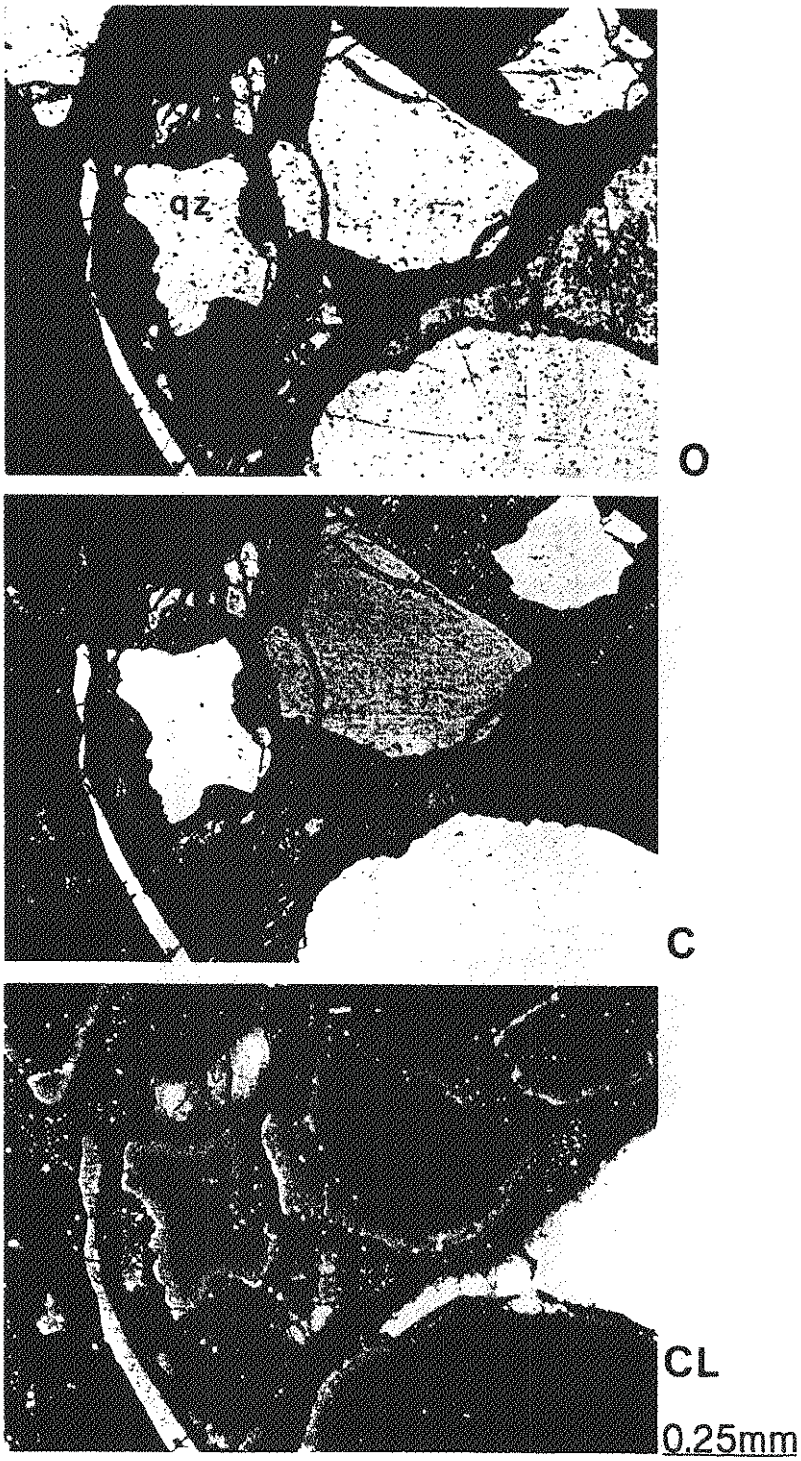
図－5　物質移動の研究方法

放射性元素については，カソードルミネッセンスを用いれば，解読できる可能性がある。



図－6　カソードルミネッセンスマイクロスコープ

偏光顕微鏡の観察ステージ上に試料を入れた真空チャンバーがあり，真空チャンバー内で試料に電子線を照射し，発生するカソードルミネッセンスを観察する。



図―7　カソードルミネッセンス観察例（含人形石）

O：下方ニコル，C：直交ニコル，CL：カソードルミネッセンス，qz：石英

石英に放射能ダメージによるリムが顕著に認められる。

表－1　実績と技術開発項目

実績			技術開発項目	
			微小鉱物同定	産状解析の高度化
海外	ジンバブエ	150件	○	◎
	中国	30件	—	—
	カナダ	(123件)	—	—
	ニジェール	(16件)	—	○
	ガボン	(8件)	○	○
所内	チタン酸関係	14件	◎	—
	転開，濃縮他	56件	—	—
*ナチュラルアナログ研究		11件	◎	◎

(　　)は試料を受け入れて一部実施中

2－7　ナチュラルアナログ鉱物試験研究　－東濃鉱床のウランの固定と移行－

報告者　環境資源開発課　○[redacted]

1. はじめに

東濃鉱床を対象としたナチュラルアナログ研究の一環として，天然環境下におけるウランの固定と移行のメカニズムやその地質環境の詳細を把握するために，鉱物試験研究を平成元年度より本格的に行ってきた。平成2年度は，高品位ウラン鉱石を対象として顕微鏡観察，X線回折，ＥＰＭＡ分析などを用いたウランの産状解析を中心に展開した。主な成果を以下に示す。

2. 試　　料

試料は，坑内より掘削したボーリング孔ＫＮＡ－３号孔より採取した瑞浪層群土岐夾炭累層の細－中礫岩，細－中粒砂岩中の富鉱部の鉱石である（図－１）。鉱石は，石英，長石類，黒雲母，Fe-Ti酸化鉱物などの砕屑粒子と粒間を充填するスメクタイト，輝沸石などよりなる。

3. 主な成果

(1) ミクロオーダでの放射能異常の分布

オートラジオグラフィなどによれば，異常は鉱物種に関係があり，黒雲母及びFe-Ti酸化鉱物に富む部分では強い放射能異常が，輝沸石，粘土鉱物や炭質物に富む部分ではそれよりも相対的に弱い放射能異常が認められる（表－１）。

(2) 放射能異常部におけるウランの産状

①黒雲母（図－２）：強い放射能異常が顕著な黒雲母は変質しており，変質部には黄鉄鉱とともにスメクタイトが充填している。スメクタイト中に黒雲母のレリックが認められる場合もある。ウランはスメクタイト化した変質部にコフィン石，ピッチブレンドとして存在している。

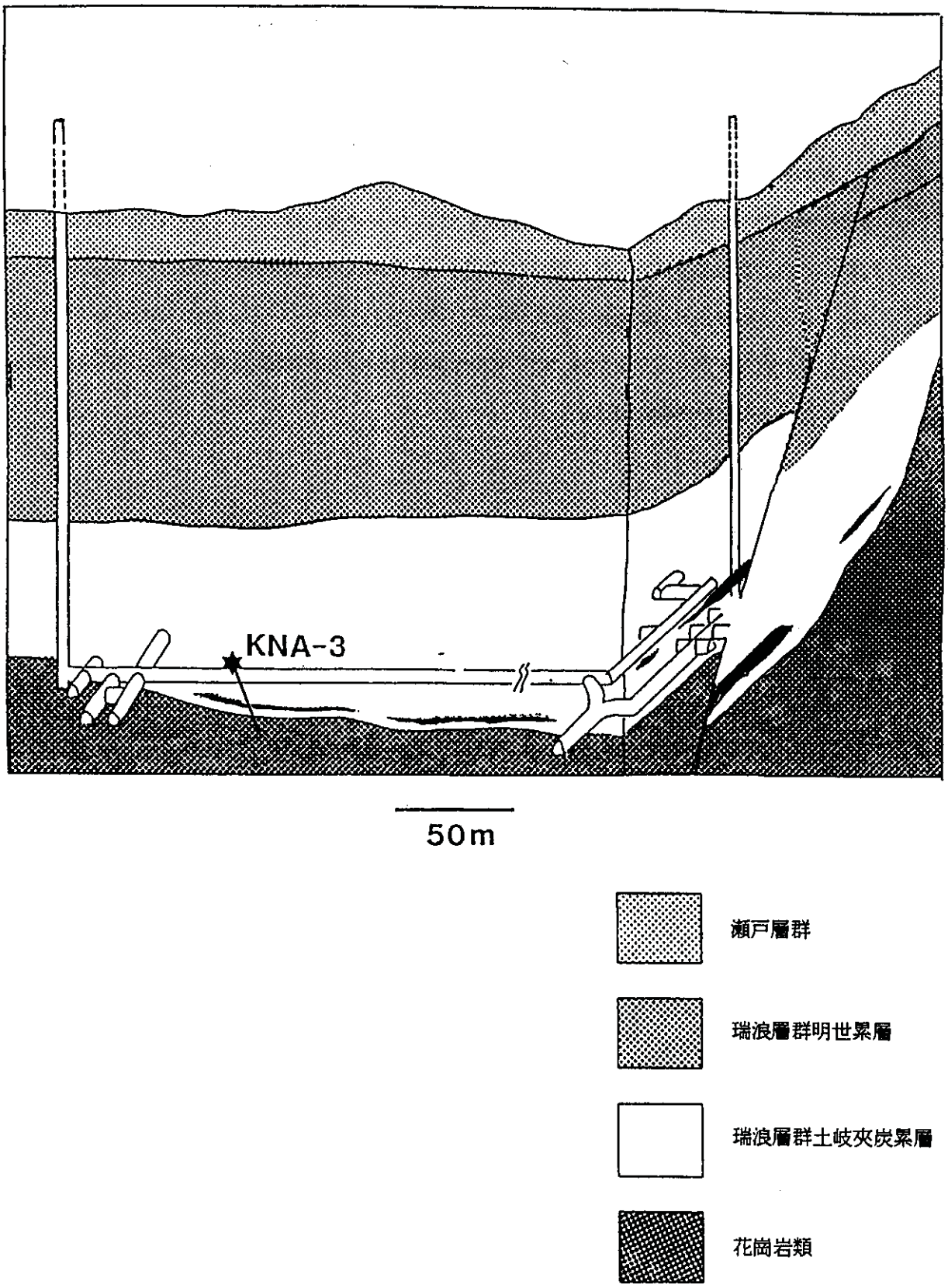
②Fe-Ti酸化鉱物（図－３）：Fe-Ti酸化鉱物は，主として磁鉄鉱とチタン鉄鉱で，それぞれの単一相よりなるものや，格子状や葉片状の組織を持つものが見出され，砕屑性と考えられる。ウランを伴うFe-Ti酸化鉱物の多くは格子状組織を呈するチタン鉄鉱を伴う磁鉄鉱粒子で，磁鉄鉱の溶解後に充填したスメクタイト中には格子状のチタン鉄鉱の残晶が顕著に認められる。ウランはこの変質部のスメクタイト中に認められ，コフィン石が同定される。

③輝沸石とスメクタイト（図－４）：輝沸石は，砕屑粒子を脈状に切るもの，黄鉄鉱とともにスメクタイト中に散在するものなどが見出される。ＥＰＭＡ分析を行った結果，輝沸石がスメクタイ

ト中に散在する部分ではウランはスメクタイト中に見出される。

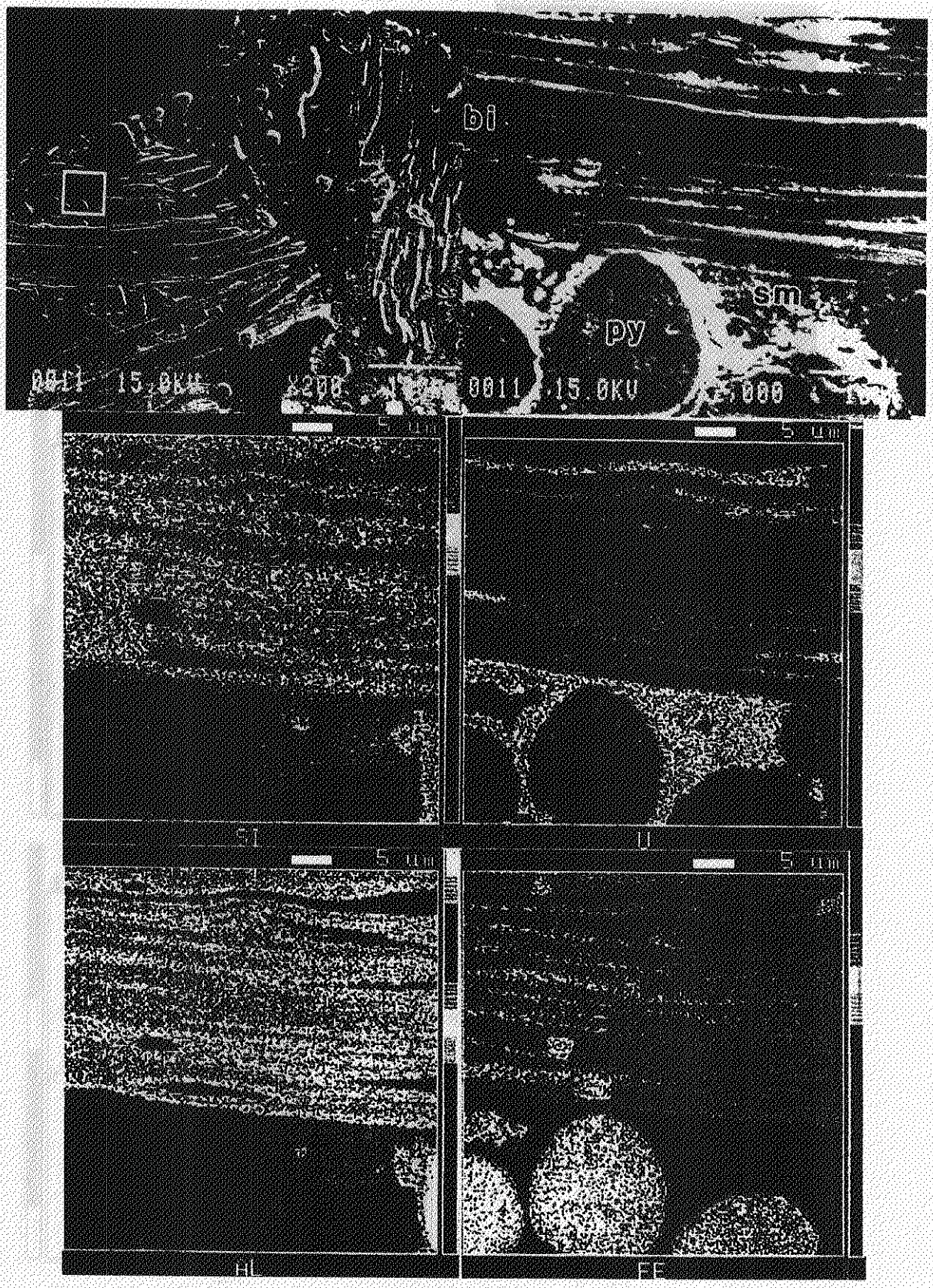
4. 考　　察

これまでの結果を総合すると，ウランは，黄鉄鉱の形成部や磁鉄鉱，黒雲母の変質部のスメクタイトにコフィン石やピッチブレンドとして見出され，硫化水素が発生する程度の還元環境で，堆積以降の粘土鉱物による吸着ないし酸化還元過程を伴った作用でウランが固定されたことを示唆している（図－5）。今後は，解析を鉱床全体へ拡大していくとともに，ラジウムのミクロオーダでの分布や構成粒子の放射能ダメージの把握，固定年代の把握などさらに精度の良い解析が可能となるよう技術開発を行いつつ試験研究を推進する。



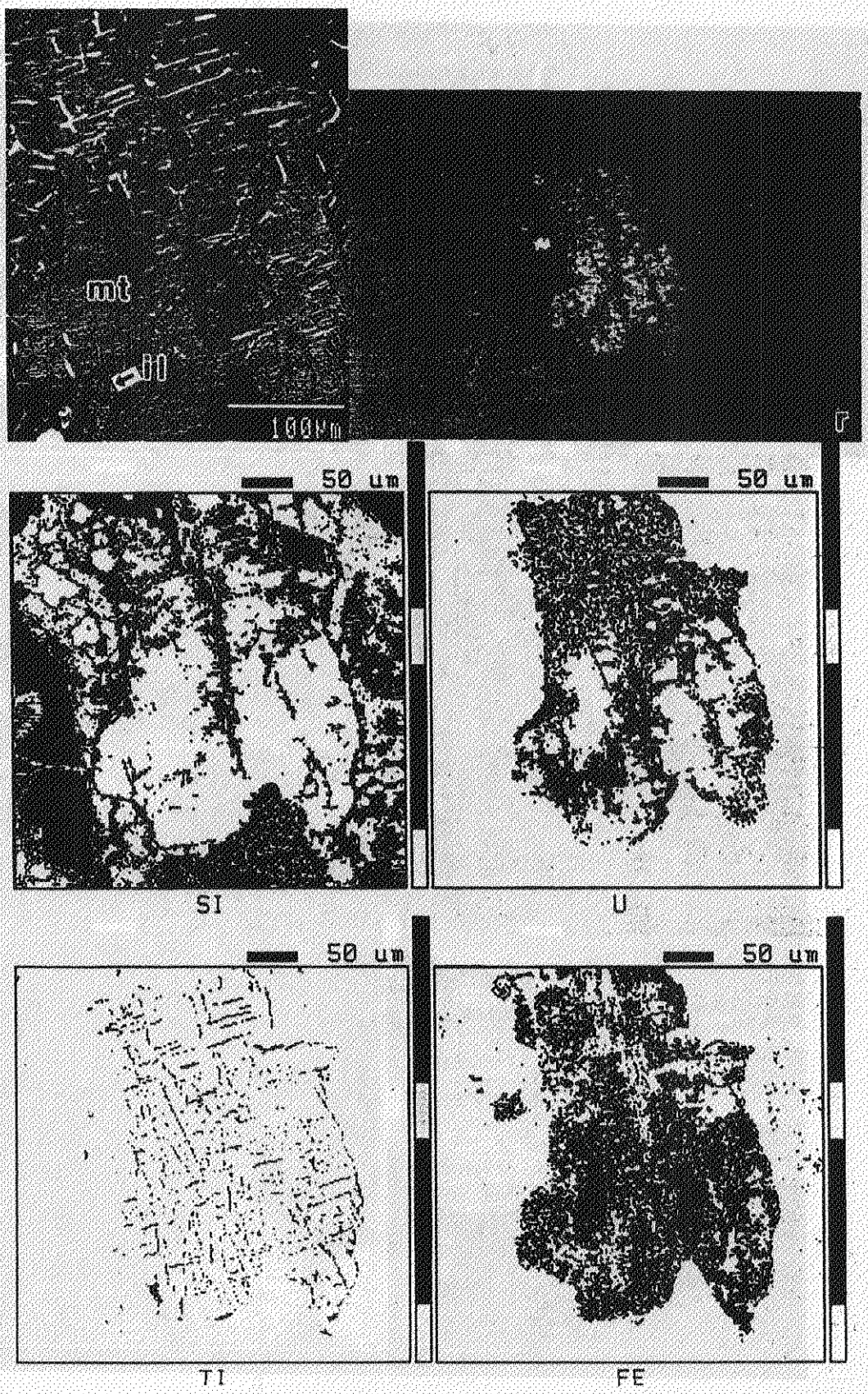
図－１　月吉鉱床付近の模式断面と試料採取位置

試料は，瑞浪層群土岐夾炭累層の細一中礫岩，細一中粒砂岩中の富鉱部の鉱石で，坑内より掘削したボーリング孔ＫＮＡ－３号孔より主に採取したものである。



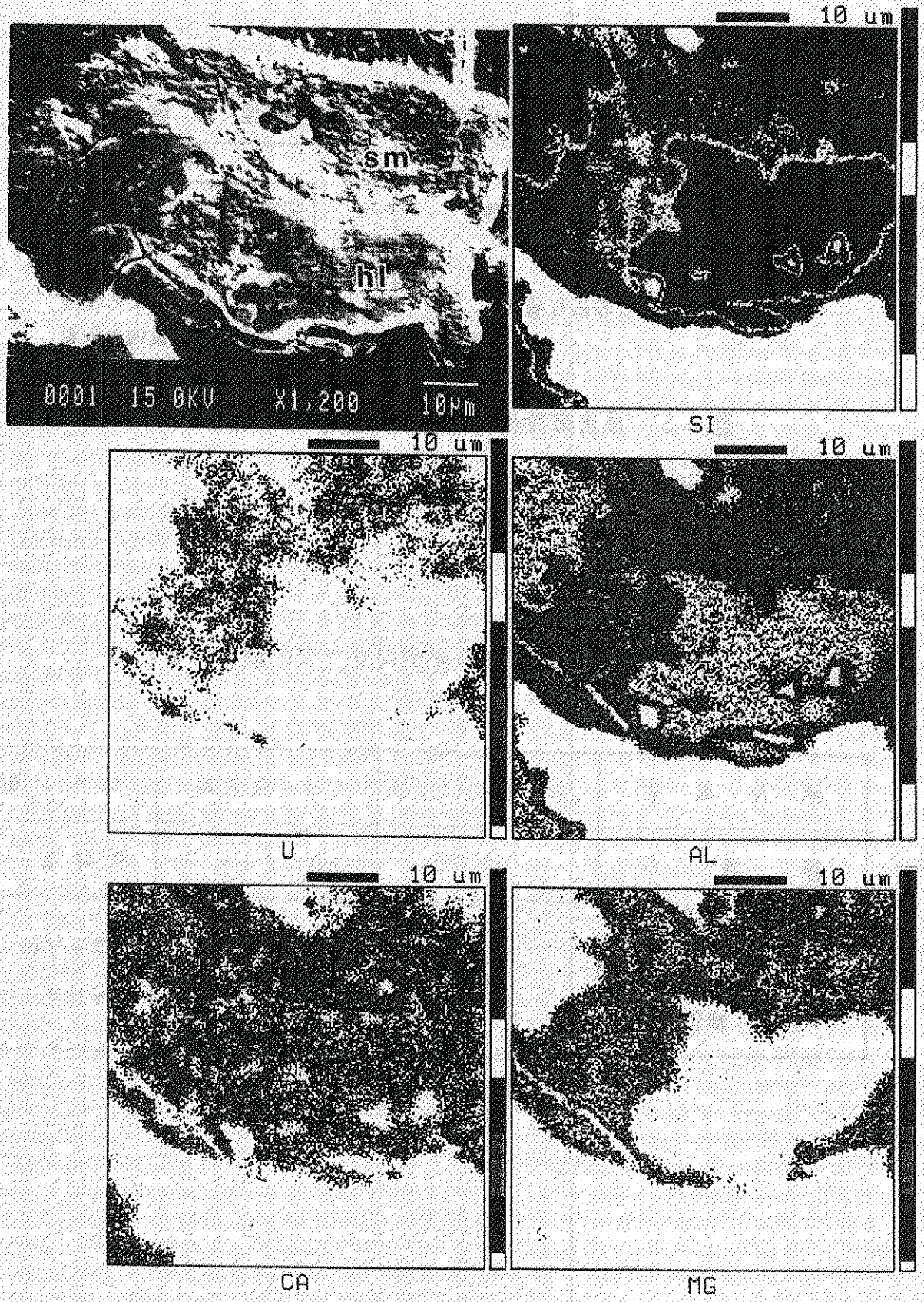
図－2　黒雲母部のＥＰＭＡによる元素濃度マップ

ウランは黒雲母中のスメクタイト変質部に認められる。



図－3　Fe－Ti 酸化鉱物部のＥＰＭＡによる元素濃度マップ

磁鉄鉱中に格子状のチタン鉄鉱が認められる。ウランは，主に磁鉄鉱が変質してスメクタイトが生成している部分に認められる。



図―4　輝沸石とスメクタイト部のＥＰＭＡによる元素濃度マップ

ウランはスメクタイト中に認められる。

ウランの産状

1. ウランの一次鉱物として固定

2. 粘土鉱物と密接な関係

3. 鉄鉱物と密接な関係

→ 固定環境

還元環境　ローカル

→ 固定メカニズム

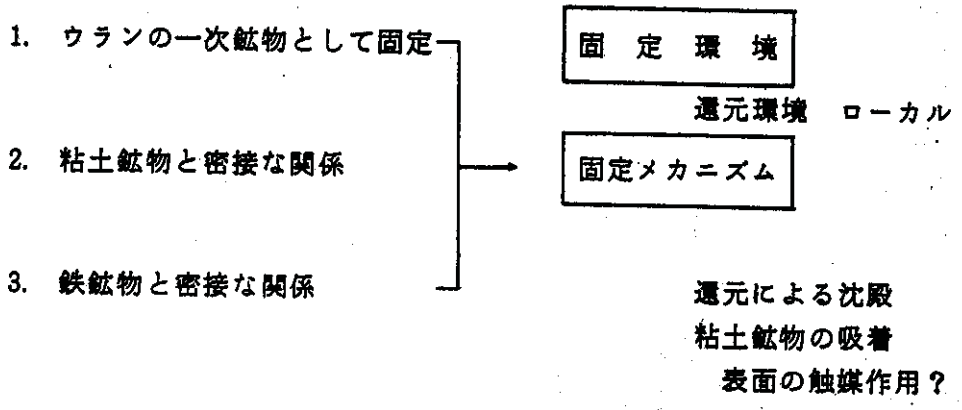
還元による沈殿
粘土鉱物の吸着
表面の触媒作用？

図－5　月吉鉱床によるウランの固定環境とメカニズム

表－1　ミクロオーダでのウランの産状のまとめ

随伴鉱物	ラジオラクソグラフ	ウラン固定部	ウラン鉱物
輝沸石	中	スメクタイト	未同定
黒雲母	強	スメクタイト	コフィン石 ピッチブレンド
Fe－Ti 酸化鉱物			

ウランの産状



図－5　月吉鉱床によるウランの固定環境とメカニズム

表－1　ミクロオーダでのウランの産状のまとめ

随伴鉱物	ラジオラクソグラフ	ウラン固定部	ウラン鉱物
輝沸石	中	スメクタイト	未同定
黒雲母	強	スメクタイト	コフィン石 ピッチブレンド
Fe－Ti 酸化鉱物			

2－8　ジンバブエ鉱物試験研究　―カニャンバ鉱床の形成過程―

報告者　環境資源開発課　○[redacted]

1. はじめに

ジンバブエ・カニャンバ鉱床の成因プロセスの解明や探査モデルの構築を目的として，元素や鉱物の産状や分布様式の把握など鉱物試験を実施してきた（表－1）。昭和62年度は全体的試錐試料の概査，昭和63年度，平成元年度は264号孔を中心とした鉱床及びその上下盤の精査を行った。本年はそれらの経緯を踏まえ，精度の高い解析を行うとともに，グランツ地域などの砂岩型鉱床などの成因プロセスの解明や探査モデルの構築に極めて重要な役割を担ったFe-Ti 酸化鉱物を解析し，鉱床の形成過程を考察した。主な成果を以下に示す。

2. 主な成果

①鉱石の特徴：鉱体の大部分をなす還元鉱は，鏡下では，源岩である中粒から粗粒の長石質ワッケ～アレナイトの砕屑粒子が溶解され，ピッチブレンド，コフィン石，黄鉄鉱を伴う hydromica minerals が充填する交代組織が顕著である（図－1）。

②粘土鉱物の変質ハロー：変質鉱物はウラン量と良い対応関係を示す。ウラン鉱化が強い部分は hydromica minerals, 弱い部分は mixed layer mica／smectite, 非鉱化部分はスメクタイトの顕著な変質鉱物ゾーニングが見出される。

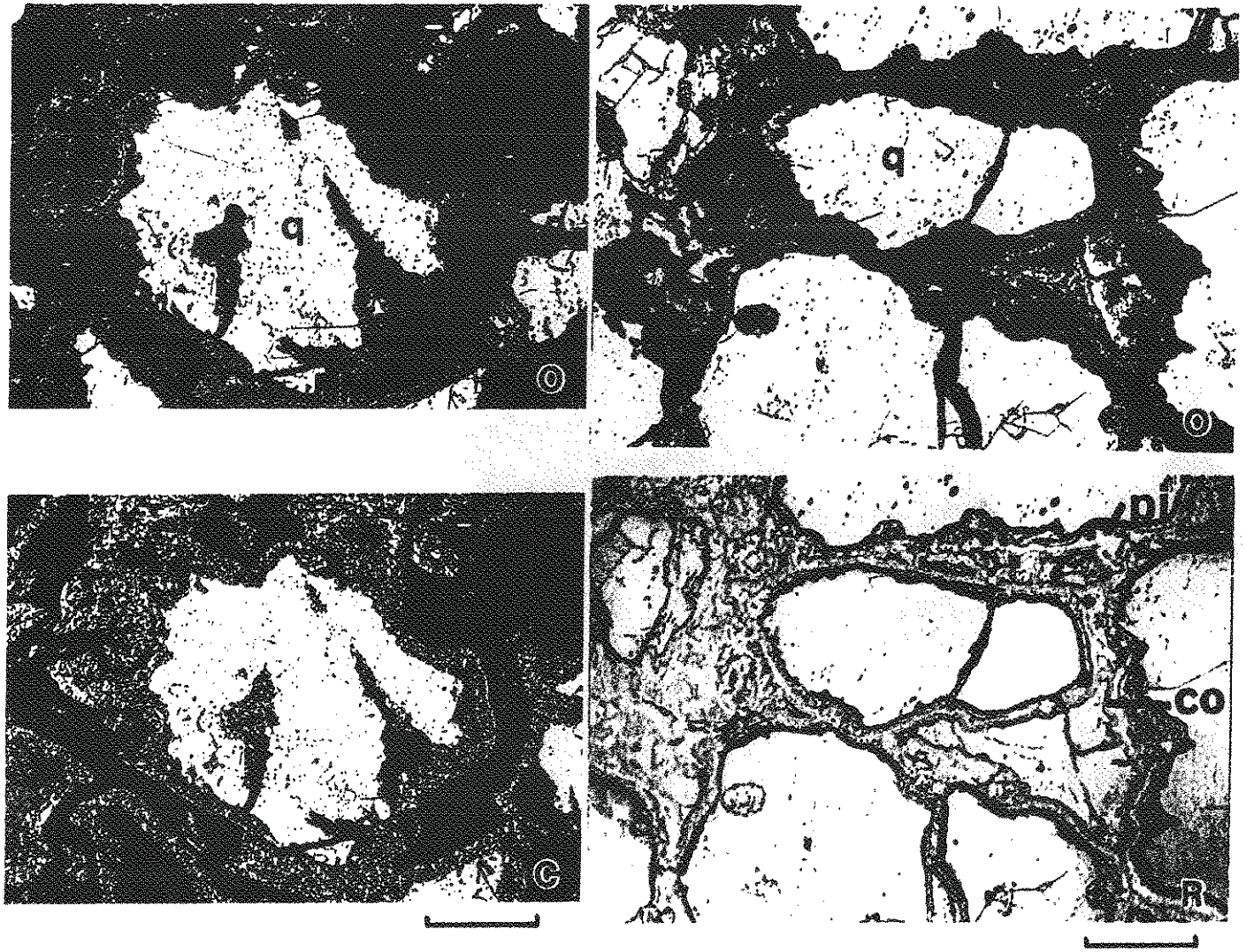
③カソードルミネッセンス解析：鉱床を胚胎しない地域の岩石では放射線のダメージと考えられるリムが認められないが，鉱床を胚胎する地域では鉱石のみならず Forest 砂岩から L cycle の一部の非鉱化部においてリムが観察される。この結果は，Forest 砂岩から L cycle までの広い範囲にわたりウランの移行濃集過程の影響が見られることを示唆する（図－2，図－3）。

④Fe-Ti oxides 解析：Fe-Ti 酸化鉱物は主にシュードルチルで，鉱化中心部以外ではシュードルチルは変質が強いのに対し（図－4），鉱化中心部では変質は弱いがバナジウムに富む（図－5）。これは，チタン鉄鉱⇨シュードルチル⇨金紅石という一連の脱鉄変質の進行過程（図－6）の中間段階において，ウランの鉱化作用に伴ってバナジウムが富化したことを示唆する。これらのFe-Ti 酸化鉱物の変質分布は，グランツ地域やロール型鉱床とは異なる（図－7）。

⑤カニャンバ鉱床の形成過程：以下の過程が考えられる（図－8）。(1)母岩の堆積：有機物に富む細粒砂岩を挾在し，化石などを考慮すると湖沼性，河川性あるいは汽水性であった。(2)一連の続成作用：圧密を受け粒子接触し，粒間の石英や炭酸塩鉱物も形成された。(3)還元型鉱石の形成：

砕屑粒子の溶解やFe-Ti 酸化鉱物のバナジウムの富化，hydromica minerals，黄鉄鉱の形成を伴う還元型鉱石の生成は，砂岩の外部よりもたらされた還元的な鉱液によってなされた。これらの還元的鉱液の起源は，現在の段階では特定できないが，Forest 砂岩から L cycle 中の周辺の有機物に富む細粒砂岩の間隙水が最も考えやすい。外側の僅かな mixed layer mica／smec-tite の形成などの変質ハローも，ウラン鉱化に伴って形成された。(4)酸化型鉱石の形成：地表への隆起と地下水の浸透による還元型鉱石の酸化により形成された。

以上のカニャンバ鉱床の形成過程は，鉱液の起源や性質の上では，グランツ地域のヒューメイトモデルと類似する。今後，形成過程をより具体化するとともに，砂岩型鉱床全般について，その共通性，多様性を考慮した形成モデルの構築を目指す。



LEGEND

O :open

C :clossed

R :reflect

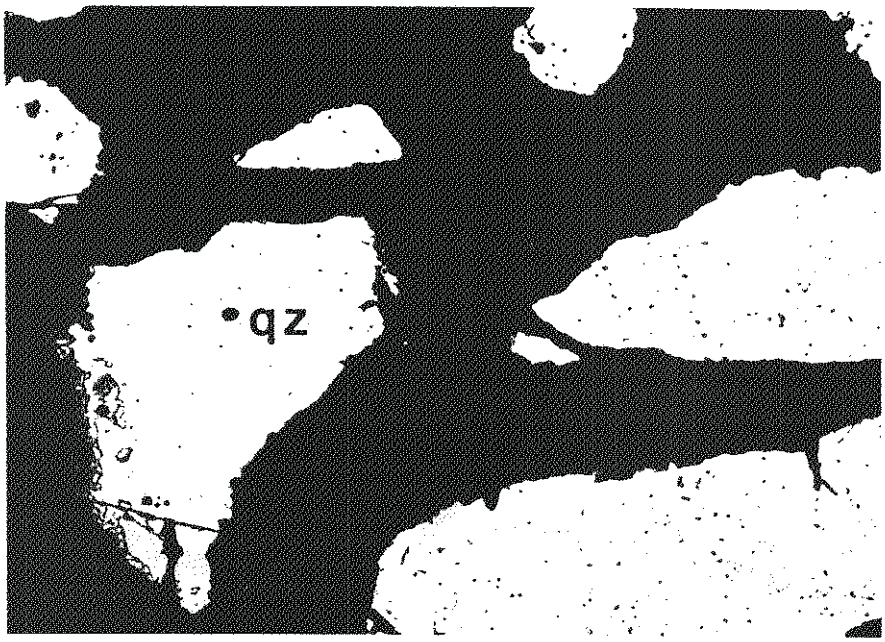
q:quartz
p:pseudorutile
HM:hydromica minerals
pi:pitchblende
co:coffinite
scale bar=0.25mm

図—1　還　元　鉱　の　組　織

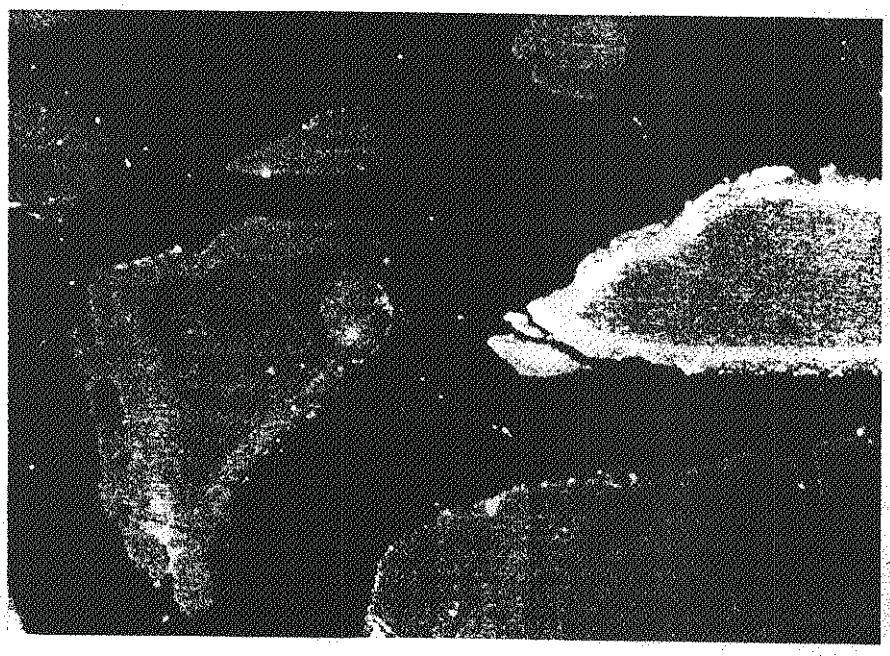
源岩である中粒から粗粒の長石質ワッケ～アレナイトの砕屑粒子が溶解され，ピッチブレンド，コフィン石，黄鉄鉱を伴う hydromica minerals が充填する交代組織が顕著である。

ジンバブエ

6553



O



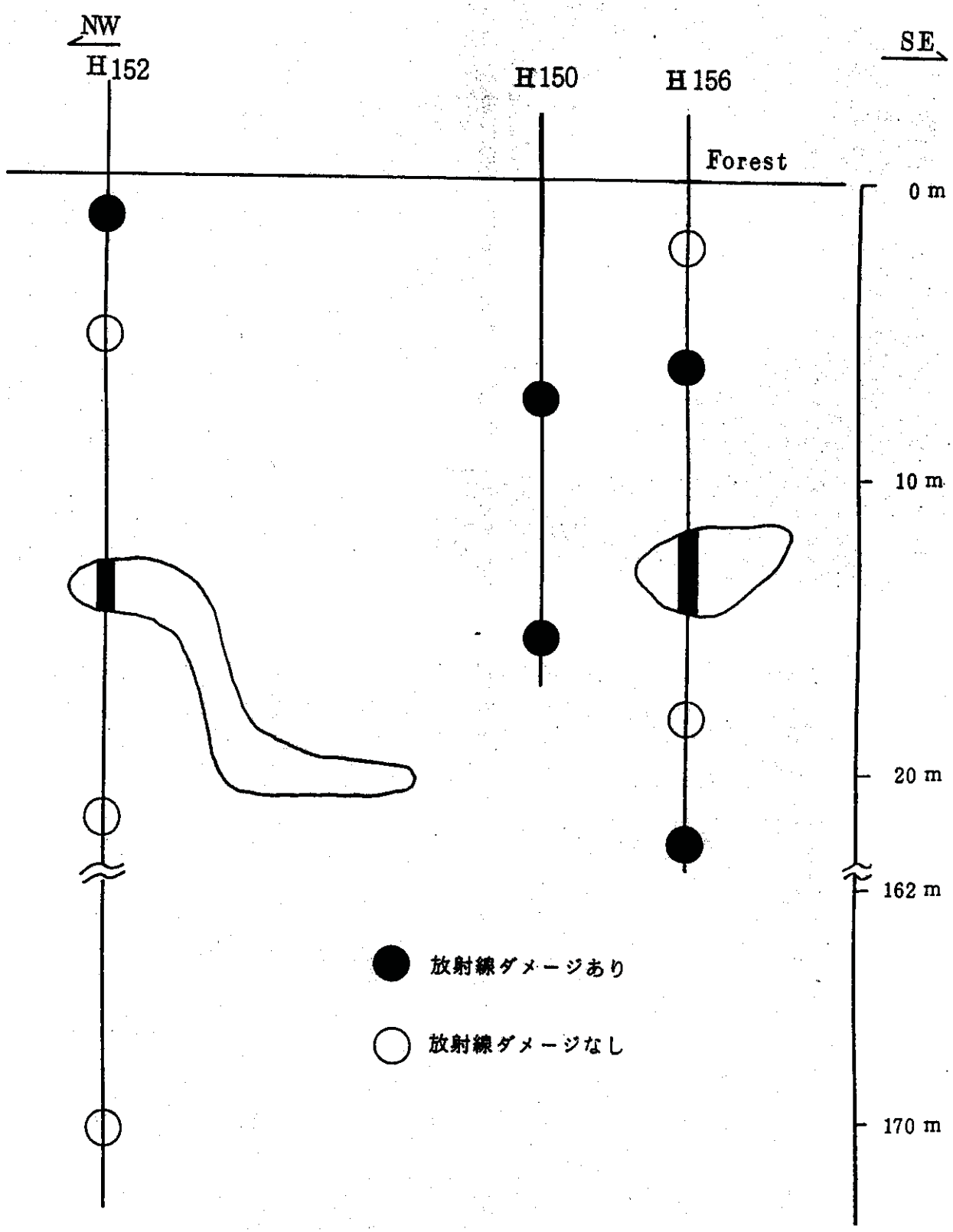
CL

0.25mm

図―2　カソードルミネッセンス観察結果

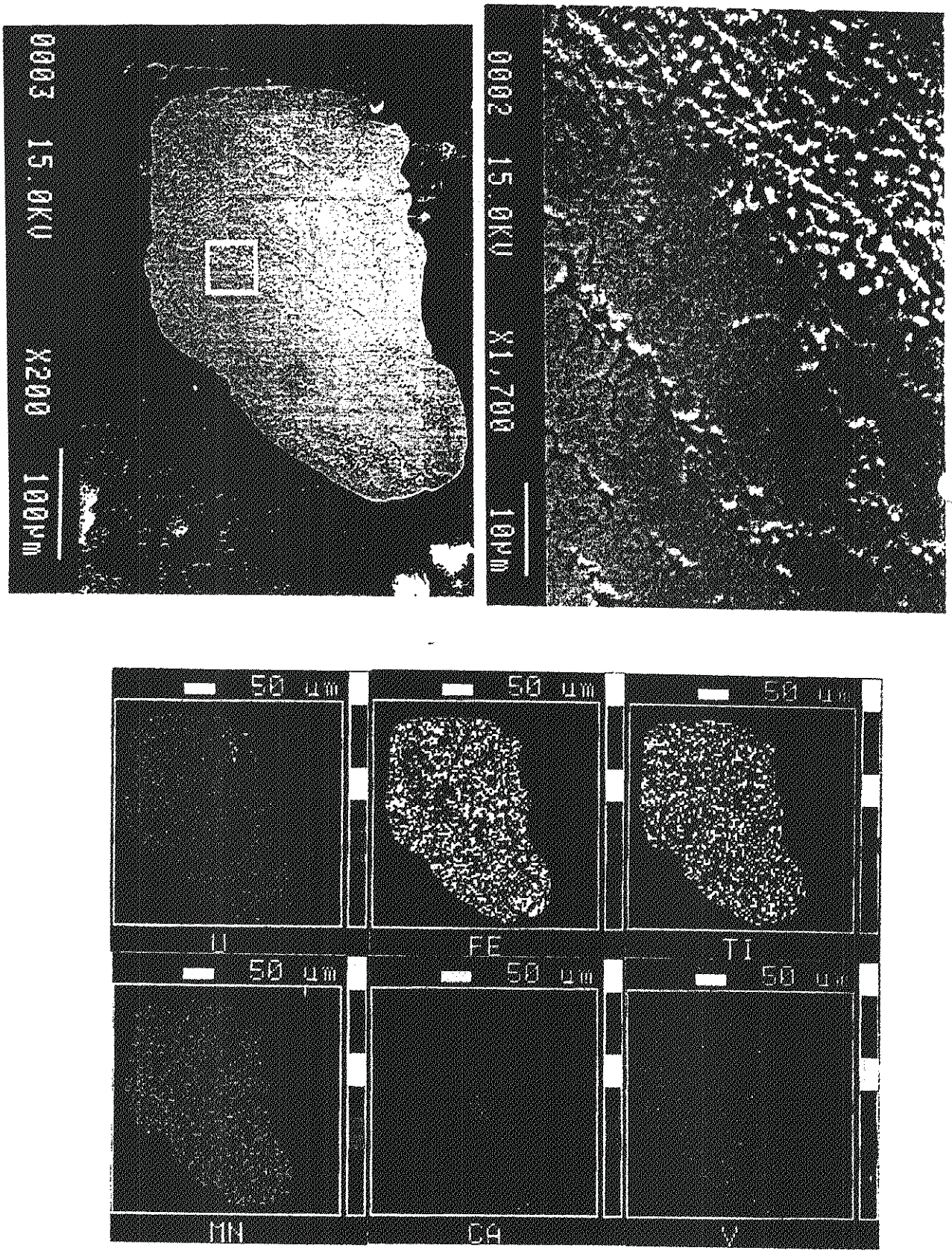
O：透過光，CL：カソードルミネッセンス観察

鉱石においては，放射線ダメージと考えられるリムが見出される。



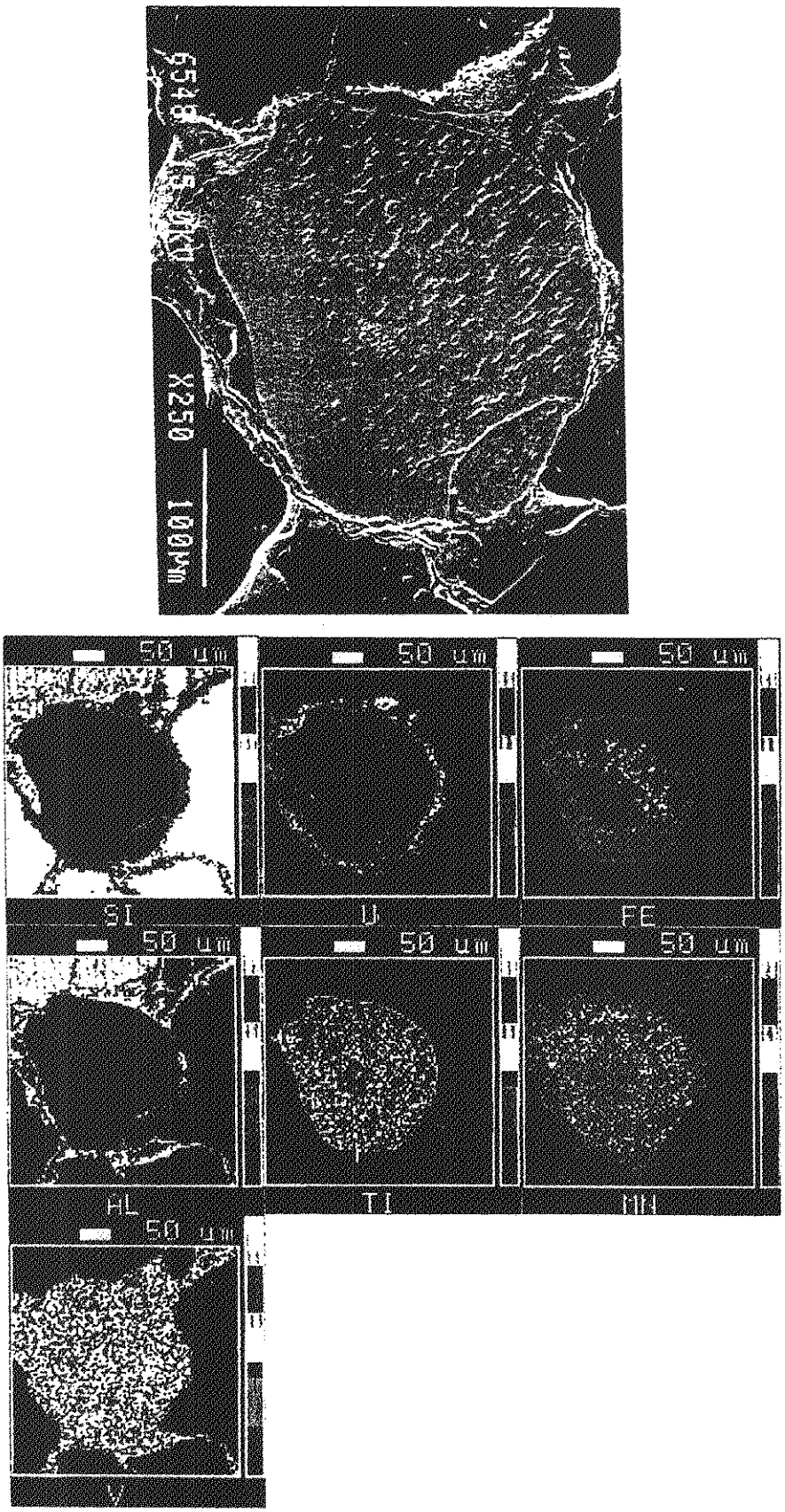
図－3　鉱床とカソードルミネッセンス異常の分布

カニヤンバ鉱床の模式断面図を示す。枠内は鉱床。
カソードルミネッセンスの異常は鉱床外においても認められ，
ウランの通路を示しているものと考えられる。



図―4　鉱体周辺部におけるシュードルチルの電子顕微鏡写真とＥＰＭＡによる元素濃度マップ

変質して縞状の構造が認められる。



図―5　鉱体中央部におけるシュードルチルの電子顕微鏡写真とＥＰＭＡによる元素濃度マップ

変質は顕著ではなく，バナジウムに富む。

チタン鉄鉱	シュードルチル	金紅石
(ilm)	(pse)	
$FeTiO_3$	$Fe_2Ti_3O_3$	TiO_2

$$3\ ilm + 2H^+ + 1/2O_2 \rightarrow pse + Fe^{2+} + H_2O$$

$$pse + 4H^+ \rightarrow 3TiO_2 + 2Fe^{2+} + 2H_2O + 1/2O_2$$

酸化還元　：赤鉄鉱（及至鉄酸化鉱物）＋金紅石

弱還元環境　：シュードルチルから金紅石

還元環境（H_2Sの存在）：黄鉄鉱＋金紅石

図－6　チタン鉄鉱の変質様式（Dimanche & Barthlomé, 1976による）

Grants 地域	：	上盤	一部変質，他不明
		鉱化帯	完全に変質分解
		下盤	Fe－Ti酸化鉱物と赤鉄鉱の保存（Reynoldsら，1986）
roll type	：	還元帯	Fe－Ti酸化鉱物の硫化鉱物化
		鉱化帯	Fe－Ti酸化鉱物の硫化鉱物化後の酸化（鉄酸化，水酸化物）
		酸化帯	Fe－Ti酸化鉱物の保存（Reynolds & Goldhaber, 1978）
ジンバブエ	：	鉱化帯	バナジウムに富むシュードルチルの保存
		非鉱化帯	シュードルチルの変質

（本研究）

図－7　堆積型ウラン鉱床におけるFe－Ti酸化鉱物の変質様式のまとめ

堆積	（準酸化的陸成環境？）
埋没	
続成	圧　密 炭酸塩の生成 石英のオーバーグロース
鉱化作用	砕屑粒子の溶解 泥質部より有機物の供給？ 還元型鉱石の形成 変質ハローの形成 珪化？
二次富化作用	酸化型鉱石の形成

上盤砂岩	上盤　弱	鉱化帯強	下盤　弱	非鉱化帯
Fe－Ti 酸化鉱物（ilmenite, pseudorutile？）の堆積 ilmenite → pseudorutile → rutile ？ anatase				
鉄　の　散　逸				
変質（粘土化？）				
	V　の　富　化 （H_2S に乏しい弱還元的環境）			

組　織	変質顕著	変質顕著 すじ状	変質弱い	変質顕著 すじ状	変質顕著
TiO_2	64～72	60～70	54～68	56～70	66～70
変　質	62～80	52～64	60～64	50～70	54～64
Fe_2O_3*	12～16	12～19	3～15	11～18	19～25
変　質	4～11	4～11	5～11	5～13	14～16
V_2O_5*	0～10	4～13	10～30	4～16	0～ 1
変　質	0～14	6～13	18～24	4～18	0～ 1
UO_2*	0.2 ～0.6	0.0 ～1.0	0.0 ～1.0	0.1 ～1.1	0.0 ～0.1

図－8　カニヤンバ鉱床の形成過程

表－1　ジンバブエ鉱物試験の概要

	一般鉱物試験		成因プロセス試験	
昭和62年度以前	○		－	
昭和62年度	○	火山ガラス	○	概査（長島試料） ・変質ハロー ・成因プロセス
昭和63年度	－		○	精査（小室試料） ・変質ハロー（精密） ・有機地化学分析Ⅰ
平成元年度	－		○	精査（小室試料） ・変質ハロー（広域） ・有機地化学分析Ⅱ
平成2年度	－		○	精査（小室試料） ・成因プロセス ・総合評価

2－10　塩化揮発法による含リンウラン鉱石からのウラン回収法

環境資源開発課

1.　はじめに

昭和61年度から，中央アフリカ産バクーマ鉱石（含リンウラン鉱石）からのウラン回収を塩化揮発法による乾式製錬技術の開発を目的に研究を開始した。

これまでに

①固体塩化剤を用いた塩化揮発試験

②塩素ガスを用いた塩化揮発試験

③ウラン一鉄塩化物の分離を目的とした濃縮試験

を行ってきた。

今年度はこれらの結果を基に

①石炭添加における含リンウラン鉱石の塩化試験

②塩素化工程と濃縮工程を一貫した操作でのウランの揮発濃縮試験

③塩化物融解相生成の抑制方法の試験

を行った。

2.　試験方法

縦型炉に，鉱石と炭材を所定量混合し，造粒したペレット状サンプル10～50g を反応管内に挿入する。N_2置換後，N_2ガスを流しながら炉内温度を上昇させ，所定の温度に達したのち，Cl_2，O_2ガスを流しながら塩化反応を観察する。反応終了後，反応管内の残渣，およびトラップ内生成物について化学分析及び機器分析を行い，塩化揮発における含有元素の挙動を調べた。

2－1　供試鉱石

供試鉱石の主要成分の化学分析値及び主要鉱物を表－1に示す。

本実験に用いた鉱石は，中央アフリカ産バクーマ鉱石と，ブラジル産イタタイヤ鉱石の二種類である。

表－1に示すようにバクーマ鉱石はU_3O_8　0.320％　CaO　21.04％，P_2O_5　14.38％，SiO_2　46.04％であり，本鉱石の主要な成分はシリカとリン灰石である。

イタタイヤ鉱石はU_3O_8　0.189％，CaO　48.58％，P_2O_5　34.95％，SiO_2　6.67％とバクーマ鉱石に比べてはるかにリン，カルシウムの含有量が高くリン鉱石と呼ばれる鉱石である。

2－2　試験装置

図－1に示すようなパイレックス製の回収装置を用いて，塩化揮発及び，濃縮（回収）試験を行った。

2－3　試験手順

図－2に試験手順のフローを示す。まず100メッシュ以下に粉砕した鉱石と炭材とを混合してペレットを造り，乾燥後，縦型炉に挿入し，炉内温度を上げる。所定の温度に達したのち，塩素ガス，酸素ガス・窒素ガスを流しながら鉱石を塩化する。反応終了後，残渣および回収トラップ生成物について分析を行い，含有元素の挙動や回収温度の影響について調べた。

3.　試験結果および考察

3－1　塩化揮発試験結果

①全ガス量一定で保持温度の影響

鉱石を塩化した場合，ウランと不純物元素の揮発分離の可能性を検討するために，活性炭を対鉱石重量5％添加し，酸素ガスを付加しての反応温度の影響を見るために，850～1050℃に温度を変えて，各元素の揮発率を調べた。その結果を図－3に示す。

この結果から，不純物元素であるリン，シリカ，アルミの揮発率を5％以下に抑制できることがわかった。

②炭材の種類の違いによる影響

炭材としてかっ炭を用いて，対鉱石重量の添加量を2.5％，3.7％，5％と変えて，各添加量における酸素濃度とウラン揮発率の関係を調べた。その結果を図－4に示す。

ウラン揮発率90％以上得られる領域を更に，かっ炭添加量と酸素ガス濃度との関係で表すと，図－5の様になる。

図－5の見方は，例えばかっ炭を3％添加した場合，酸素濃度は3.5％に設定し，上限5.8％下限1.8％に調整することによって，ウラン揮発率90％以上得られる領域を示す。

又，かっ炭添加量が少なくなると，酸素濃度の調整幅が狭くなっていき，反応雰囲気の調整が難しくなっていくことがわかった。

かっ炭以外にもれき青炭，無燃炭についても同様な試験を行った結果，かっ炭がはるかに反応雰囲気の調整が容易であることが試験により確認された。

3－2　塩素化工程と濃縮工程を一貫した操作でのウラン揮発濃縮試験

① 塩化物の蒸気圧

鉱石の塩化によって生じた塩化物の蒸気圧を図－6に示す。

この図からウランとウラン以外の塩化物の蒸気圧及び沸点に差があることからこれらを利用して揮発塩化物の分別回収が可能であることが予想される。

② 回収温度の違いによるウラン・鉄混合塩化物の挙動調査

回収容器の炉内温度を250℃から550℃変えて，回収温度によってウランと鉄の塩化物の分離にどの様な影響を与えるか，調査した結果を表－2に示す。

揮発物量は元鉱石の含有量とトラップ回収量から求めた。

ウランと鉄の回収率を回収温度との関係でみると，ウランは500℃までほぼ100％回収されているが550℃となると97％と少し回収率が低くなった。この原因としては，ウラン塩化物の蒸気圧が高くなってきたための影響と推察できる。

又，鉄は回収温度が高くなるにつれて回収率は低下し，550℃では36.7％となる。又，550℃では揮発物量および回収物量のU／Fe比が0.156から0.423となってウランが約3倍に濃縮されたことがわかった。

3－3　塩化物融解相生成の抑制方法の検討

① 温度とウラン揮発率との関係

バクーマ鉱石とイタタイヤ鉱石の反応温度の違いによる揮発率への影響を調べた結果を図－7に示す。

バクーマ鉱石は▲，イタタイヤ鉱石は●印で示している。両鉱石とも750℃から急激に反応が進んでいることがわかる。バクーマ鉱石は，塩化温度が900℃以上になるとウランの揮発率は，90％以上になるが，イタタイヤ鉱石ではウランの揮発率は70％と低く，鉱石の組成によって塩化反応に差があることを示している。イタタイヤ鉱石でのウラン揮発率が低い原因としては，イタタイヤ鉱石がバクーマ鉱石よりはるかに多くのリン，カルシウムを含有しているため塩化反応によって生じた，塩化カルシウムが融解し，そのためにウランの揮発率が抑制されたものと推察できる。

② 融解相反応条件及び抑制法

現在試験中であるが，炭材の添加量と酸素濃度を調節することによって，融解を抑制できる反応条件の存在が確認されている。しかしウラン揮発率は80％前後と低く，今後ウラン揮発率を高めていく反応条件を確立する必要がある。

4. ま と め

① 鉱石の塩化にあたっては，塩化反応し易くするためには，脱酸剤として炭素を加える必要がある。炭素源として石炭を用いることは可能であり，炭種としては，塩化反応雰囲気の制御の難易，コスト面等考慮するとかっ炭が有利といえる。

② 塩化工程と濃縮工程を一貫した操作でのウランの凝縮，濃縮法については，凝縮温度を500℃から550℃でウラン塩化物を凝縮させることにより，揮発物量及び回収物量のU／Fe比から約3倍にウランと鉄の分離が高まることがわかった。

③ 塩化反応条件として，酸素ガスを供給することにより，塩化物の融解相を抑制できる反応雰囲気の存在することを実験により確認した。

質 疑 応 答

Q．塩化揮発法以外によるウランの回収法の検討は，されていないのか。

A．現在，基礎試験のレベルでありこのプロセスのコストを含めて粗製錬への適用性について評価する計画にある。その結果により今後の方向性が定まると考えている。また，この技術は他分野への応用も考えられるので検討したい。

Q．塩素ガスの調達は，どうするのか。

A．プラントのそばに塩素ガス製造プラントを設置し，食塩による電解法により製造する。

Q．本プロセスを評価するために必要な情報は得られているのか。

A．基礎試験段階で得るべく情報は，把握されていると考えている。

Q．揮発試験の結果で，温度が高くなるにつれてリンの揮発率が低下しているのは何故か。

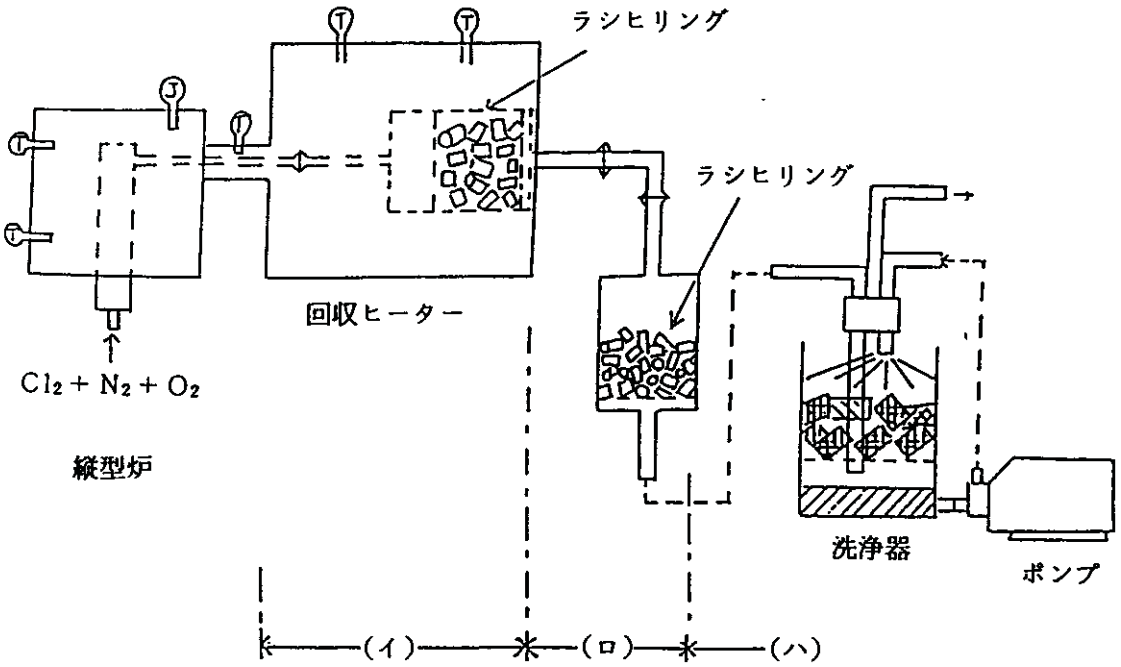
A．実験誤差なのか，分析誤差なのか解析していない。

表－1　供試鉱石の主要な化学分析値及び鉱物組成

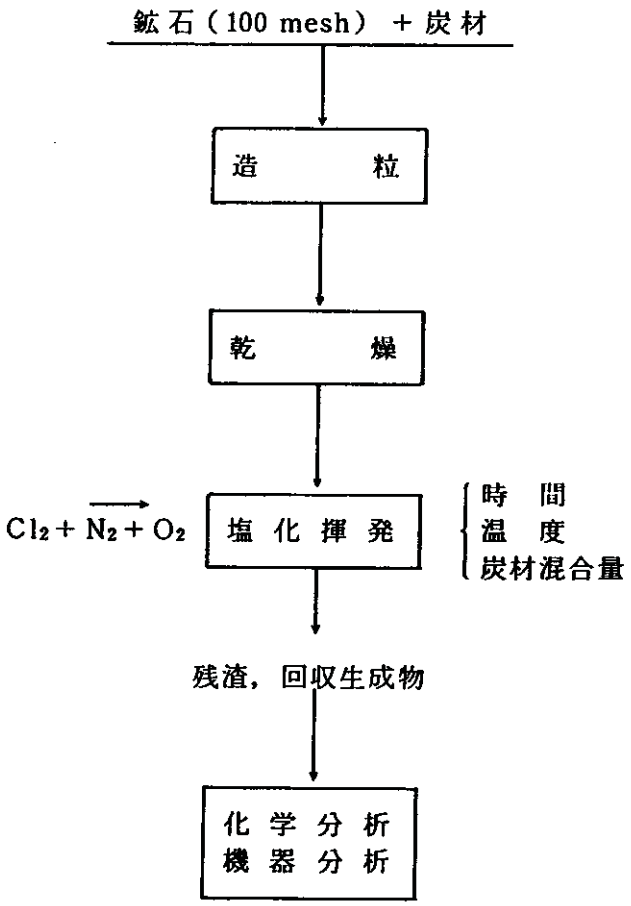
成　分	品　位（%）	品　位（%）
	バクーマ鉱石	イタタイヤ鉱石
U_3O_8	0．32	0．189
CaO	21．04	48．58
P_2O_5	14．38	34．95
Al_2O_3	4．66	1．12
Fe_2O_3	2．15	0．825
SiO_2	46．04	6．67
鉱物組成	Quartz, Gypsum Micaclaymineral, Smectite Kaolinitemineral ウランはApatite に伴う。	Quartz, Micaclaymineral, Kaolinitemineral ウランはApatite に伴う。

表－2　たて型炉塩化装置による揮発塩化物・回収試験結果

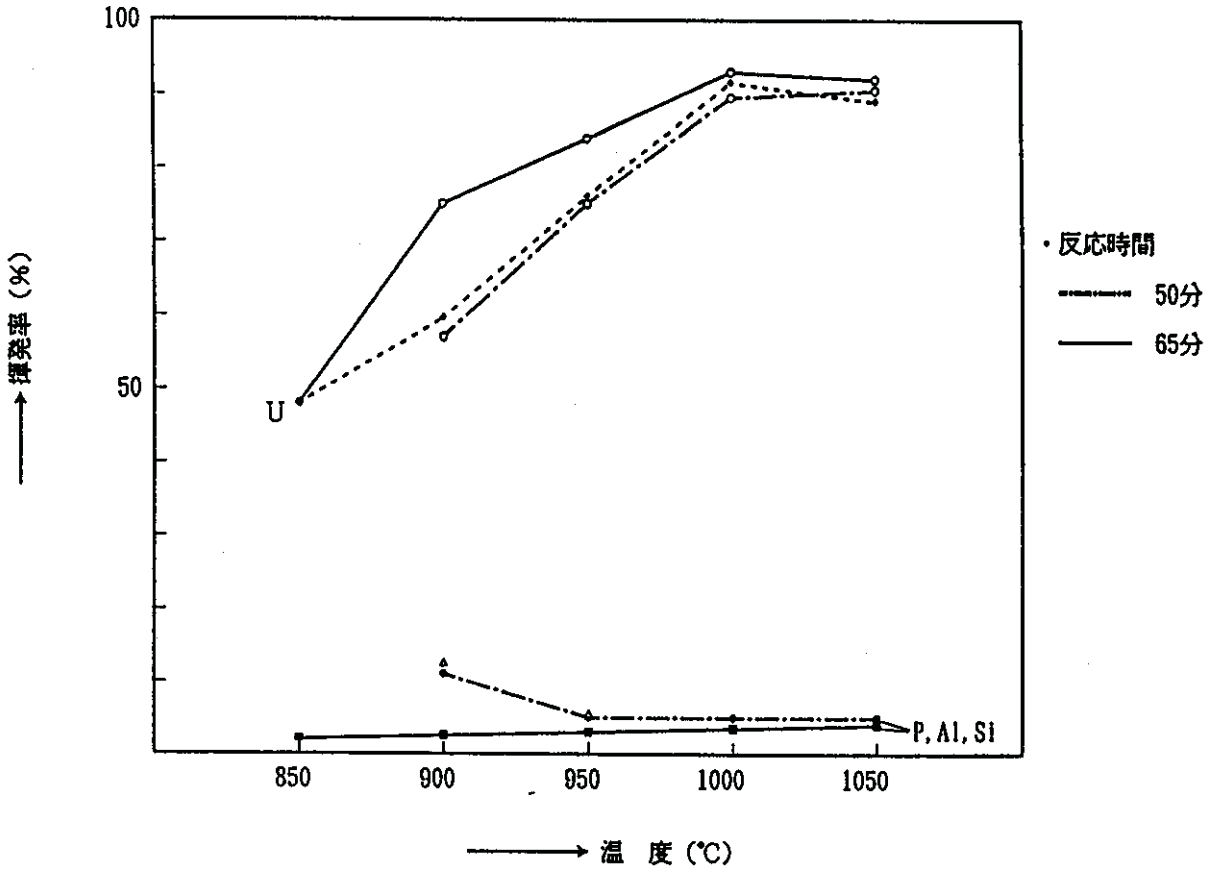
	全重量 (mg)	U (mg)	T－Fe (mg)	U／Fe
試料①（250 ℃）				
元鉱	53230	140	794	0.176
残渣	47650	24	30	
揮発物量	——	116	762	0.152
回収物量	——	114	529	0.216
回収率	——	99.4	67.0	
試料②（350 ℃）				
元鉱	58220	153	869	0.176
残渣	52340	34	35	
揮発物量	——	119	834	0.143
回収物量	——	116	484	0.240
回収率	——	99.5	55.6	
試料③（450 ℃）				
元鉱	52080	137	777	0.176
残渣	46690	25	32	
揮発物量	——	112	746	0.150
回収物量	——	109	418	0.260
回収率	——	99.2	55.8	
試料④（500 ℃）				
元鉱	53030	139	792	0.176
残渣	47560	2.5	32	
揮発物量	——	114	760	0.150
回収物量	——	110	336	0.327
回収率	——	99.3	44.2	
試料⑤（550 ℃）				
元鉱	54140	142	808	0.176
残渣	48470	22	36	
揮発物量	——	121	776	0.156
回収物量	——	118	279	0.423
回収率	——	97.0	36.7	



図－1　塩化揮発・回収装置



図－2　試験手順



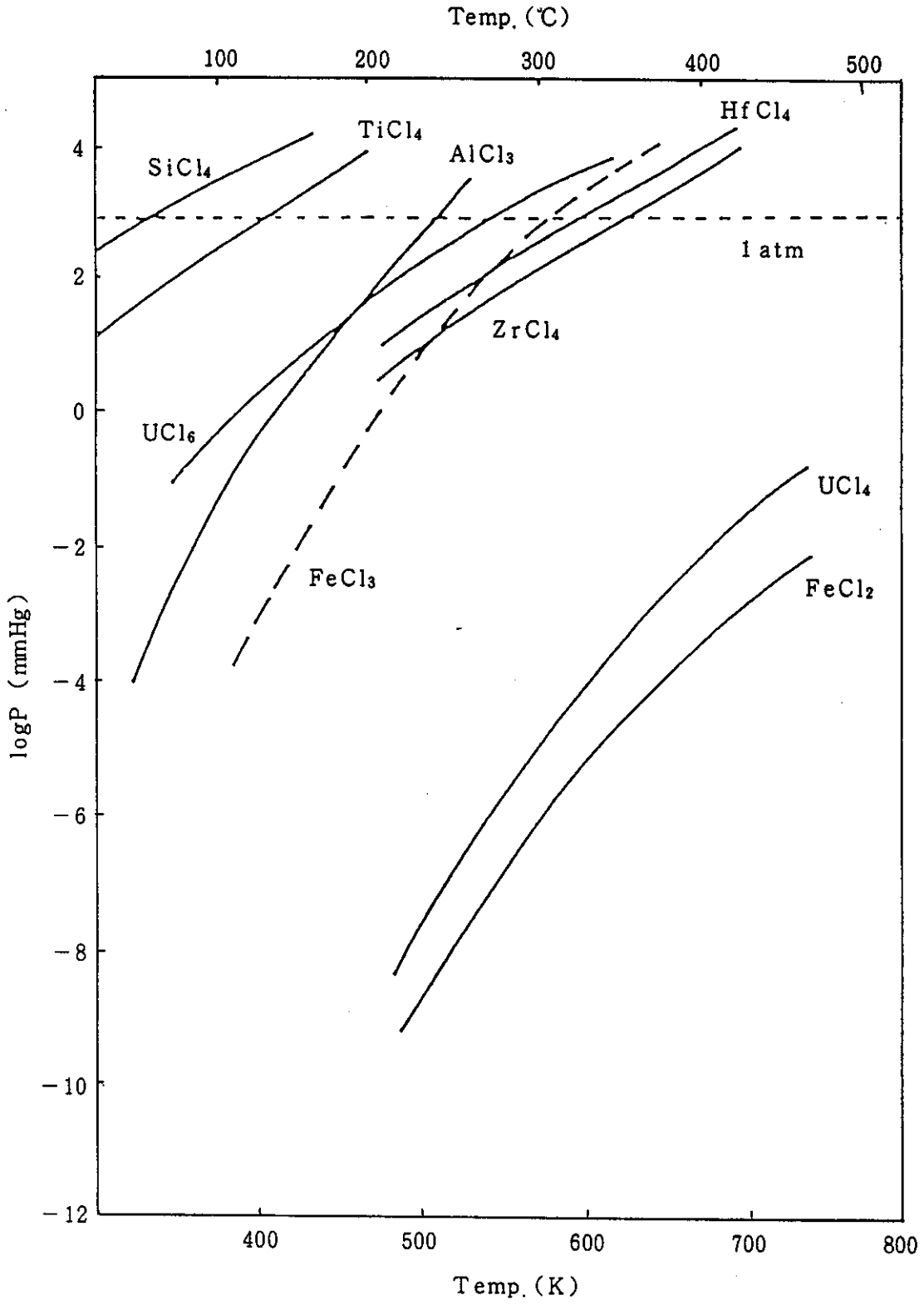
図－3　全ガス量一定で保持温度の影響

ペレット 量：11～12 g　　反 応 時 間：50分，65分

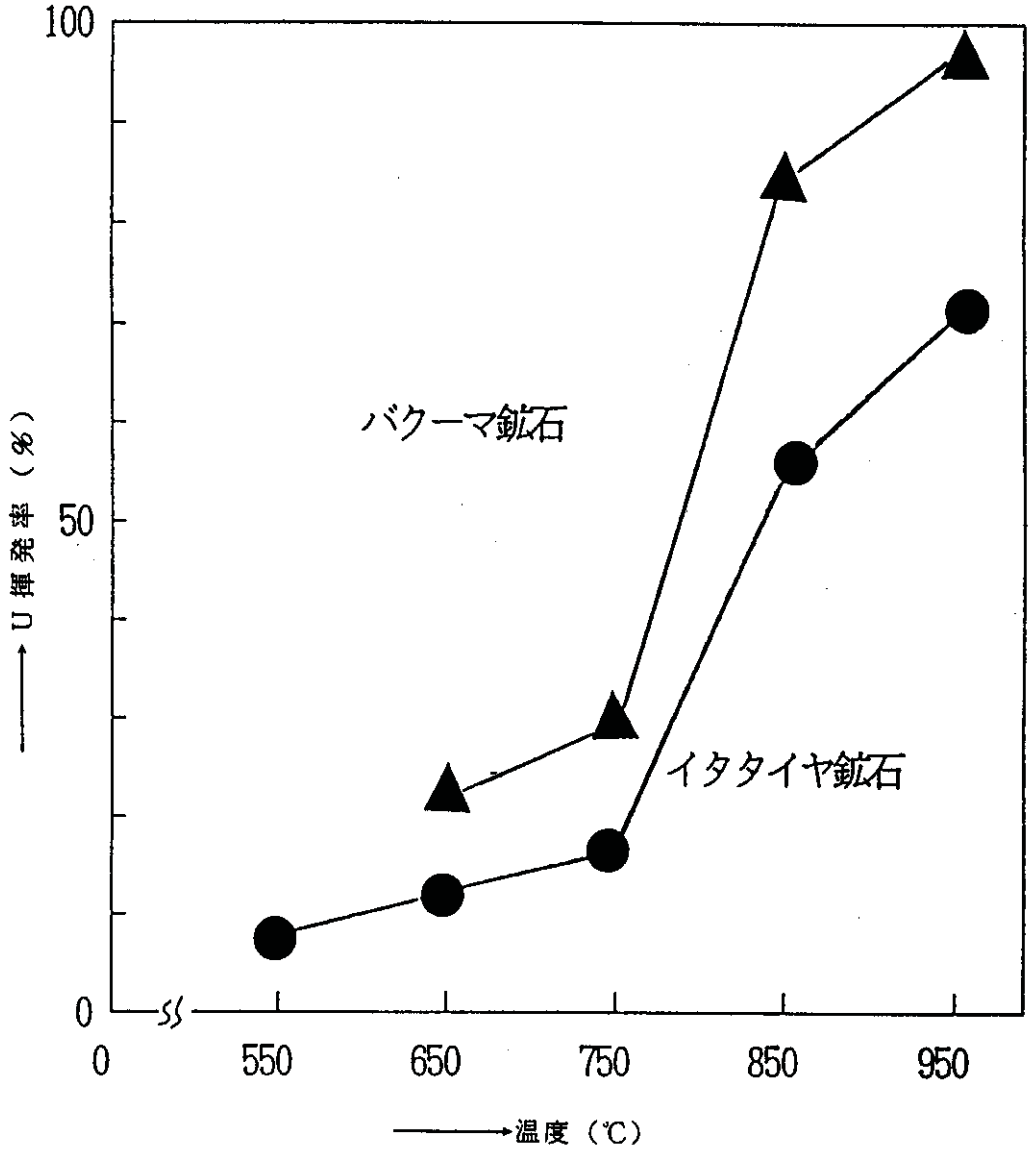
活性炭添加量：5％（対鉱石重量）　　塩素ガス流量：100 ml／分

酸素ガス流量：25 ml／分　　チッ素ガス流量：375 ml／分

参考　◆印：横型管状炉　　粉体10 g　　反応時間 40 分


Temp. (℃)
100
200
300
400
500
SiCl4
TiCl4
AlCl3
HfCl4
1 atm
ZrCl4
UCl6
UCl4
FeCl3
FeCl2
4
2
0
−2
−4
−6
−8
−10
−12
logP (mmHg)
400
500
600
700
800
Temp. (K)

図－6　各塩化物の蒸気圧



図－7　温度と揮発率の関係

炉　　型：横型管状炉

試 料 量：　50 g，　　活性炭：　36 %（対鉱石重量）

Cl_2　：200 ml/分　　N_2　200 ml/分

反応時間：2時間

2—11　過酸化水素水によるイエローケーキ沈殿試験

環境資源開発課

1.　はじめに

過酸化水素法の工業的利用は，1960年に始まり，現在カナダのラビットレーク鉱山，そしてＰＮＣが始めて民間移転したミッドウェスト鉱山等で採用されている。

しかし，採用されたプロセスでは，過酸化水素水によるイエローケーキ沈殿工程前に不純物を前もって除去する工程を設けている。このため，溶媒抽出工程で得られた高濃度ウラン溶液を希釈しなければならない。又，化学沈殿法による不純物除去のため，ウランロスが生じるなどの問題点がある。そこで，転換工場の受入れスペックをクリヤーできる，高濃度のウラン溶液からの過酸化水素水によるイエローケーキ製造プロセスの開発を，平成２年度から開始した。

本報では，沈殿条件の主要パラメーターのうち，初期pH及び過酸化水素水の添加量の影響について調べた結果について報告する。

2.　過酸化水素水によるイエローケーキ製造の一般的特徴

過酸化水素水によるイエローケーキ製造の一般的特徴は，

①Na，V，NH_3 等の汚染を減らす。

②ウランの特異反応でU_3O_8濃度が高く，非常に純度の高いイエローケーキが製造できる。

③不純物をコントロールできる。

④固／液分離が容易。

等，といわれている。

次に，各沈殿法の反応条件と試薬，労務費，建設費から算出したCost比較について1979年のＩＡＥＡレポートに報告されているのをまとめた結果を，表—１に示す。

この表から，過酸化水素水，苛性ソーダによるイエローケーキ製造法に比べて，アンモニア法がコスト的に安いことがわかる。

これは，イエローケーキを製造する試薬であるアンモニアが，過酸化水素水に比べて，試薬コストが，安いためといえる。

又，苛性ソーダ法のコストが高いのは，試薬と，ＳＤＵ沈殿工程の複雑さから，設備コストが高くなるために，他の沈殿法に比べコストが高くなる。

転換工場へのペナルティーを減らすことによる，再生コストの低減や，年々厳しくなる環境規制対策等の理由から，今後，過酸化水素水によるイエローケーキ製造プロセスを採用する粗製錬工場は，多

くなると考えられる。

3. 試験方法

試験方法を図－1に示す。

ウラン溶液に，不純物元素として，As, Mo, Zr, Vの分析試薬をそれぞれ添加し，図－1に示すような濃度に含ウラン模擬液を調整した。

対象外資料

この原液50mlにMgOスラリーを添加して，初期pH調整を行う。初期pHが調整されたら，すばやく30%H_2O_2を添加し，pHを安定させるために5～10分間放置する。pHが安定した後，さらにMgOスラリーを添加して，最終pH調整を行う。その後，一定時間熟成し，イエローケーキを濾過する。濾過後，0.2%H_2O_2 50mlと純粋で洗浄する。

0.2%H_2O_2で洗浄するのは，イエローケーキのコロイド状を防ぐためである。そして，洗浄後イエローケーキを乾燥する。その後，イエローケーキ，及び濾過・洗浄液の各元素分析を行い，各元素の挙動を調べる。

4. 試験結果及び考察

①初期pHの違いによる影響

反応条件のうち，温度は常温，過酸化水素水添加量1.5当量，熟成時間1時間，最終pH4.0に固定し，初期pHを0.5から2.0と変えて行った結果を表－2に示す。

対象外資料

又，イエローケーキ中のこれら不純物成分の対U%は，転換工場CAMECOスペックを一例に比較してみると，充分満足する値である。

しかし，初期pHの違いによる影響は，濾過性に表れた。

それは，初期pHが0.5から2.0と高くなるにつれて，濾過性が非常に良くなることが今回の試験で観察された。

初期pHと濾過特性との関係については，初期pHを決定するさいの大きなファクターになることから，今後，生成されたイエローケーキの物性を調査し，最適な初期pHを設定していく計画である。

②過酸化水素水添加量の違いによる影響

反応条件のうち，温度は常温，熟成時間１時間，初期pH1.0，最終pH4.0に固定し，過酸化水素水の添加量を理論量に対して，156％，201％，231％，309％と変えて行った結果を表－３に示す。

過酸化水素水の添加量を156％から309％と変えた時のU_3O_8品位，Ｕ回収率とも，①の試験結果と，ほぼ同様な結果が得られた。又，イエローケーキ中の不純物成分であるこれらの対Ｕ％も初期pHを変化させた結果と同様にCAMECOスペックを充分満足する値である。このことから，過酸化水素の添加量は，理論量に対して1.5倍添加すれば充分であることが，今回の試験でわかった。今後，最適な，過酸化水素添加量を設定していく計画である。

③製造したイエローケーキの示差熱分析

反応条件のうち，温度は常温，過酸化水素水添加量1.5当量，熟成時間１時間，初期pH1.0，最終 pH4.0に固定して行った結果を図－２に示す。

図－２から，180℃付近までは，$UO_4 \cdot 2H_2O$と結晶水を含んだＵ酸化物であることが，Ｘ線回折により同定できた。そして，180℃から250℃付近で結晶水を失い，無水物の非結晶性の物質を確認した。

5. ま と め

①初期pHの違いによるイエローケーキ中のＵ純度への影響は，ほとんどなかった。しかし，初期pHが0.5から2.0と高くなるにつれて，濾過性が非常に良くなることが観察された。

②過酸化水素水添加量を理論量の1.5から3.0倍と変えたときの，イエローケーキ中のＵ純度への影響は，ほとんど無く，過酸化水素水添加量を理論量に対して1.5倍あれば充分であることがわかった。

③初期pH，及び過酸化水素水添加量を変えて，イエローケーキを製造した結果，最大回収率は，97％であった。

質 疑 応 答

Ｑ．過酸化水素水の添加量１５０％以上について試験した結果についての報告を受けたが１５０％以下での添加量にたいする影響は調べられていないのか。

Ａ．今後，実施する計画にある。

表－1　沈殿方法の比較

沈　澱　法	反　　応　　式	反　　応　　条　　件			コスト
		反応温度	反応時間	添　加　量	
過酸化水素法	$UO_2(SO_4)_3^{4-} + H_2O_2 + 2H_2O$ $\rightarrow UO_4 \cdot 2H_2O + 3SO_4^{2-} + 2H^+$	20 ～25℃	2～8h	0.18～0.25kgH_2O_2 /kgU_3O_8	$0.78
アンモニア法	$2\ UO_2(SO_4)_3^{4-} + 6NH_3$ $\rightarrow (NH_4)_2U_2O_7 + 4SO_4^{2-}$	50 ～85℃	2～6h	0.2 kgNH_3/kgU_3O_8	$0.56
可性ソーダ法	$2\ UO_2(CO_3)_3^{4-} + 14NaOH$ $\rightarrow Na_2U_2O_7 + 6Na_2CO_3 + 8OH^- + 3H_2O$	20 ～30℃	2～4h	3.0 ～4.0 kgNaOH/ kgU_3O_8	$0.83

IAEA REPORT (1979年)

A Review of Yellow cake

Precipitation Practise

表－2　初期pHの違いによる影響

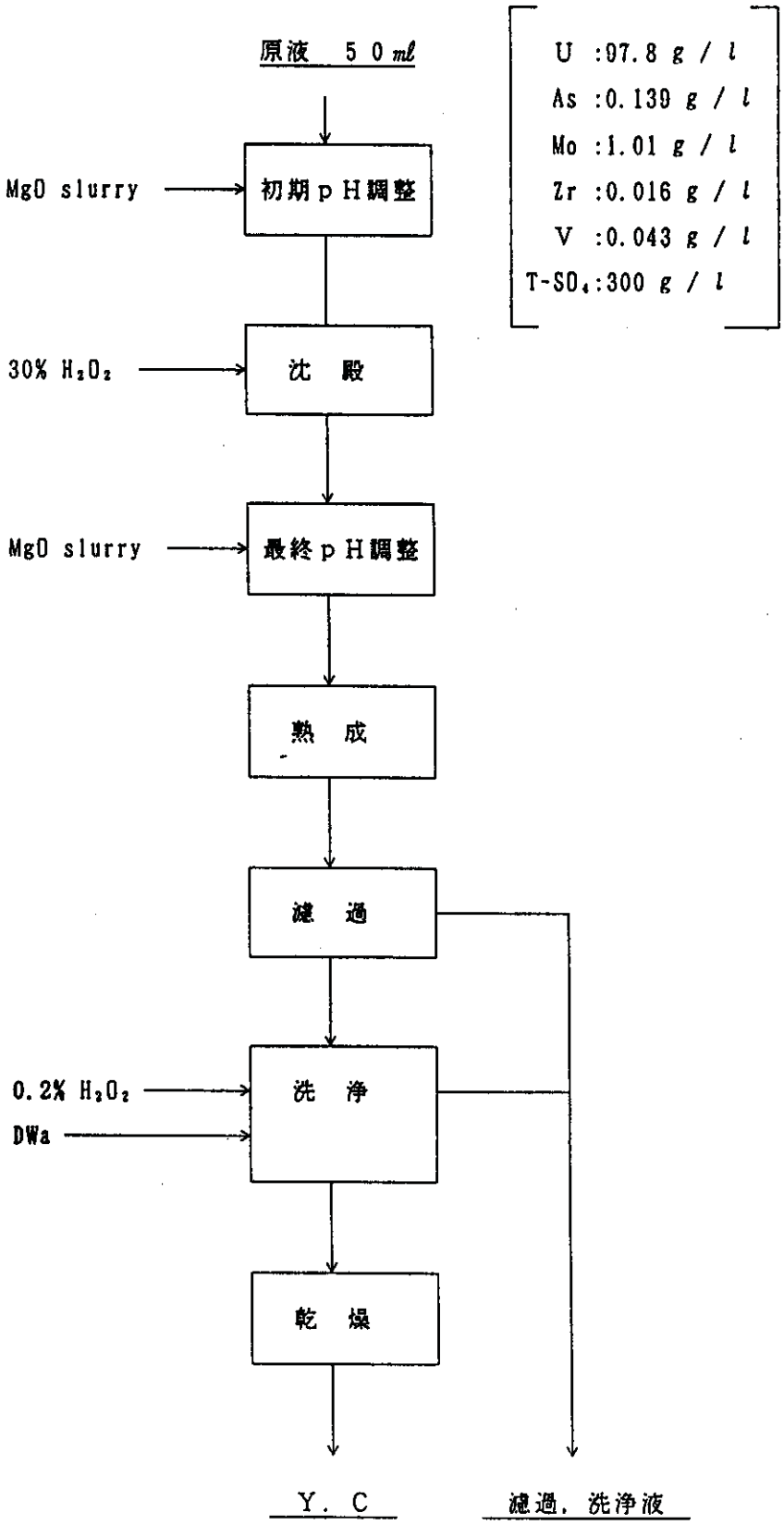
初期pH	Y．C中の成分品位　（対U％）					
	U	As	Mo	Zr	V	Mg
0.5	76.8	0.035	<0.001	0.016	0.040	0.031
1.0	76.0	0.041	<0.001	0.016	0.021	0.053
1.5	77.2	0.034	<0.001	0.016	0.025	0.044
2.0	75.7	0.040	<0.001	0.017	0.026	0.050
CAMECOスペック		0.050	0.100	0.100	0.100	3.000

反応条件：常温，H_2O_2添加量1.5当量，熟成時間1h，最終pH 4.0

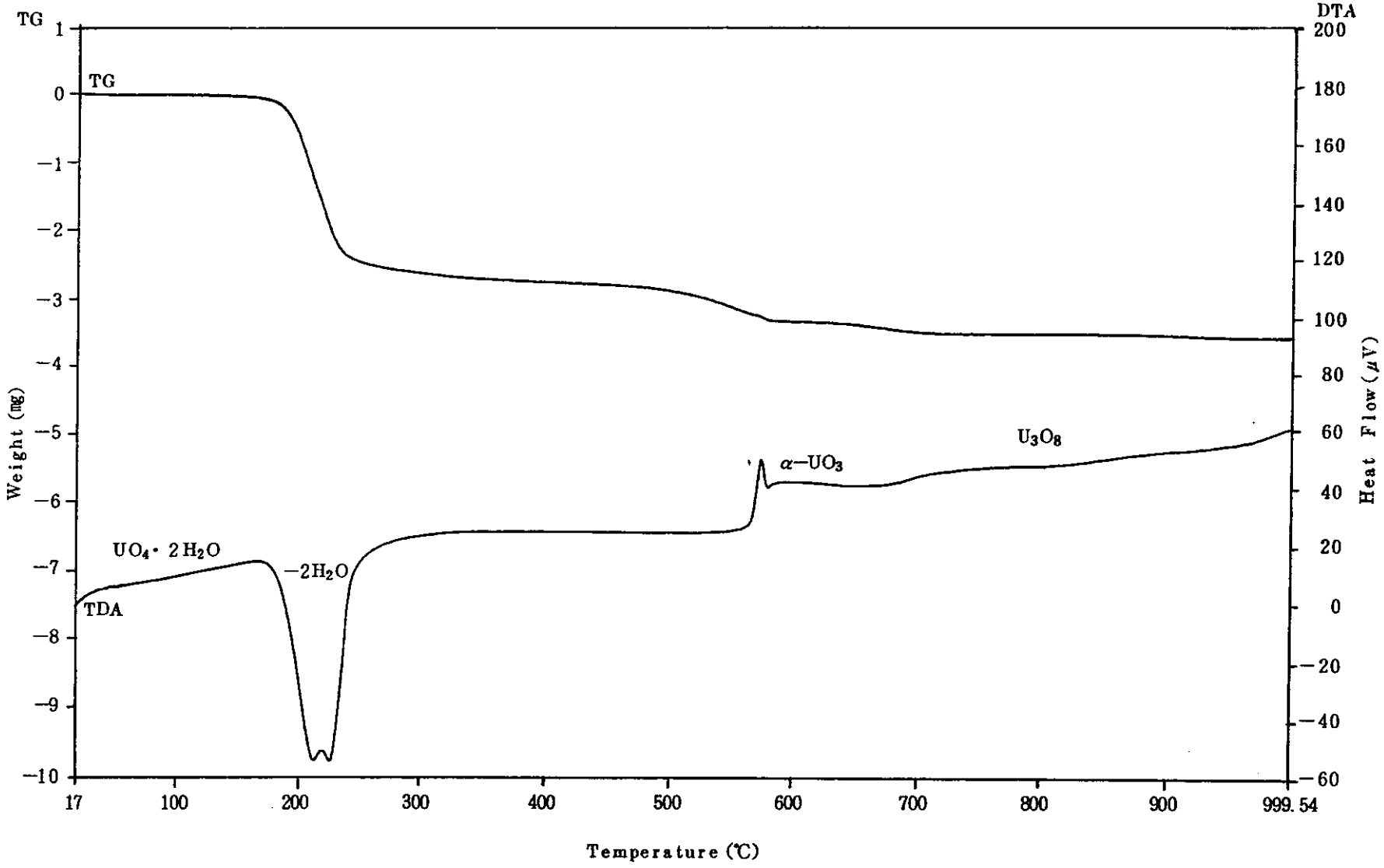
表－3　過酸化水素添加量の違いによる影響

H_2O_2/U_3O_8	H_2O_2当量 (%)	Y．C中の成分品位（対U％）						
		U	As	Mo	Zr	V	S	Mg
0.194	156	76.0	0.041	<0.001	0.016	0.021	<0.001	0.053
0.253	201	76.5	0.034	<0.001	0.016	0.027	<0.001	0.041
0.291	231	77.2	0.032	<0.001	0.017	0.026	<0.001	0.023
0.389	309	77.4	0.034	<0.001	0.016	0.023	<0.001	0.030
CAMECOスペック（標準）			0.050	0.100	0.100	0.100	1.000	3.000

反応条件：常温，熟成時間1h，初期pH 1.0，最終pH 4.0



図－1　Y．C沈殿試験フローチャート


TG
DTA
TG
TDA
$UO_4 \cdot 2H_2O$
$-2H_2O$
α-UO_3
U_3O_8
Weight (mg)
Heat Flow (μV)
Temperature (℃)
1
0
−1
−2
−3
−4
−5
−6
−7
−8
−9
−10
200
180
160
140
120
100
80
60
40
20
0
−20
−40
−60
17
100
200
300
400
500
600
700
800
900
999.54

図－2　Y．Cの示差熱分析

2－12　『放射性廃棄物のデータ管理システム』の開発

報告者　環境資源開発課

1. はじめに

人形峠事業所で発生する放射性廃棄物のすべては，環境資源開発課・放射性廃棄物処理施設で焼却処理及び貯蔵管理されている。これら放射性廃棄物の処理量及び貯蔵量が膨大なものになり（焼却量：約8,000本，貯蔵量：約6,500本）人間によるこれらのデータ管理が難しくなってきた。また，今後も放射性廃棄物が多量に発生すると予測され，さらにデータの管理が複雑化する。

この『放射性廃棄物のデータ管理システム』により，人形峠事業所内で発生する固体の放射性廃棄物（可燃物，難燃物及び不燃物）すべてを対象に，廃棄物ドラム缶の入出庫，処理等の操作を含めた管理の状況を一元的に登録管理するシステムを開発した。さらに，発生元，種別，貯蔵先等のデータ処理機能を持たせ，放射性廃棄物管理情報の検索を行うことにより，内外部への提供等種々の要求に対して迅速に対応できるものとした。

2. データ管理システムの概要

2.1　人形峠事業所の放射性廃棄物の流れ

放射性廃棄物の流れを図－1に示す。放射性廃棄物は，使用施設（濃縮パイロットプラント，開発試験棟，製錬施設，焼却施設），加工施設（濃縮デモンストレーションプラント）から発生する。これらは，可燃物，難燃物及び不燃物に区分される。可燃物及び難燃物については，カートンボックスに詰められた後ドラム缶に封入され焼却施設で焼却処理する。焼却後に発生する灰は，不燃物として貯蔵施設へ搬送し貯蔵管理される。また，不燃物は，発生形態のままドラム缶に詰められ発生元より直接貯蔵施設へ搬送され貯蔵管理される。

2.2　システム機能

このシステムは，2.1項で述べたような放射性廃棄物の流れに沿って可燃物，難燃物及び不燃物のそれぞれのデータを登録することにより廃棄物の所在，内容物等さらには，履歴も管理する。これらのデータは，次の方法で登録，情報検索及び帳票出力を行う。

(1)　ハードウエアは，人形峠事業所計算機室ＦＡＣＯＭ　Ｍ－７６０／４を用いて，言語は，ＣＯＢＯＬを使用する。

(2)　アクセス方法は，メニュー画面方式。

(3)　機能は，データの入力，更新，削除，情報検索及び帳票出力。(ソフトの構成を図－2に示す。)

入力，更新，削除及び帳票出力は，メニュー画面からその項目を選定し，実行するようになっている。

2.3　登録するデータの種類

可燃物及び難燃物のデータの種類を表－1に，また，不燃物のデータの種類を表－2に示す。太線枠内のデータは，発生元より提供される。その他のデータは，受入元が管理する。

2.4　帳票リスト

帳票リストを表－3に示す。可燃物及び難燃物をまとめた帳票が7種類，不燃物をまとめた帳票が11種類あり，様々な用途にあわせて出力する。

3.　システムの運用方法

本システムの運用方法は，放射性廃棄物処理伝票（可燃物・難燃物），放射性廃棄物処理伝票（不燃物）及び放射性不燃物処理体搬出・移動伝票にデータを発生元が記入し受入元へ提出する。放射性廃棄物の流れとデータ登録の関係を図－3に示す。

可燃物及び難燃物については，焼却施設へ搬送する際に処理伝票を受入元へ提出する。それらが焼却後にデータを入力する。

不燃物については，貯蔵施設へ搬送される際に処理伝票を受入元へ提出する。ドラム缶が貯蔵施設に入庫してからデータを計算機に入力する。さらに，将来ウラン廃棄物処理施設等で不燃物を処理する際に，ドラム缶を処理体として搬出する時は，搬出・移動伝票にデータ（搬出年月日等）を記入し，搬出後にデータを入力する。

各伝票は，3枚つづりとなっており，1枚目は発生元控え，2枚目は受入元控え，3枚目は計算機入力用シートとなる。

4.　開発状況

『放射性廃棄物のデータ管理システム』の平成2年度の開発状況を以下に示す。

(1)　登録に必要とするデータの決定を行った。

(2)　本システムを運用するに対して，既存データが適用するように整備した。

(3)　メニュー画面方式の画面使用を作成した。同時に入力時の条件及びエラー検出条件等を決定した。

(4)　本システム運用のための各種処理伝票及び搬出・移動伝票等のフォーマットを作成した。

(5)　必要とするデータ方法を検討し，帳票フォーマットを作成した。

(6) プログラム作成のための初期条件を検討した。

5. システムの特徴

『放射性廃棄物のデータ管理システム』の特徴を以下に示す。

(1) 不燃物ドラム缶1本ごとの管理が可能。

(2) 可燃物及び難燃物については，カートン単位で管理が可能。

(3) 焼却灰中身の履歴確認が可能。

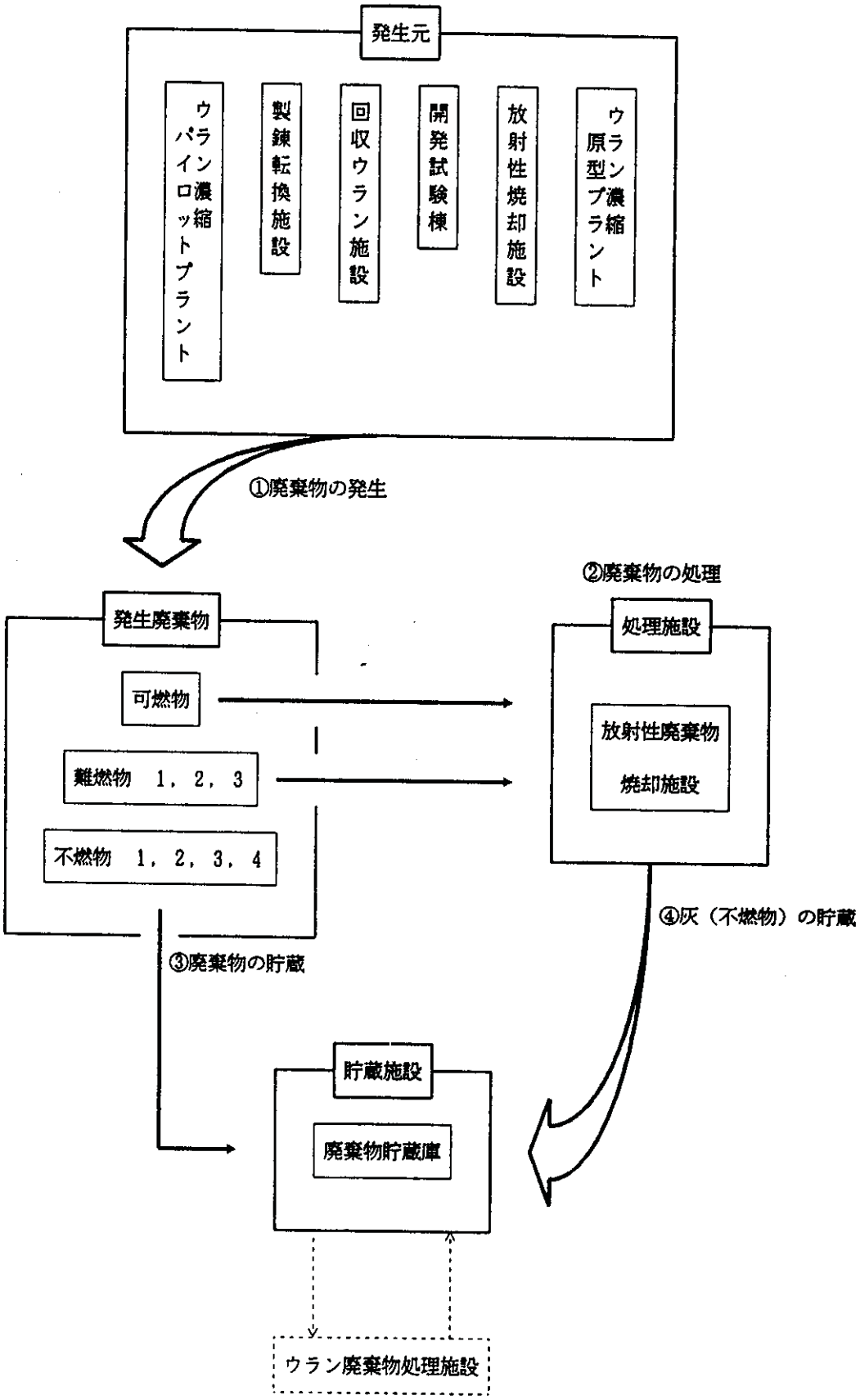
(4) 発生量，焼却量及び貯蔵量等について，発生元別，年度別，月別，種別等ごとのデータ整理が迅速にできる。

(5) 将来，不燃物が処理される際に，ドラム缶を処理体として搬出する時の要求（条件）に対して迅速な対応が可能。

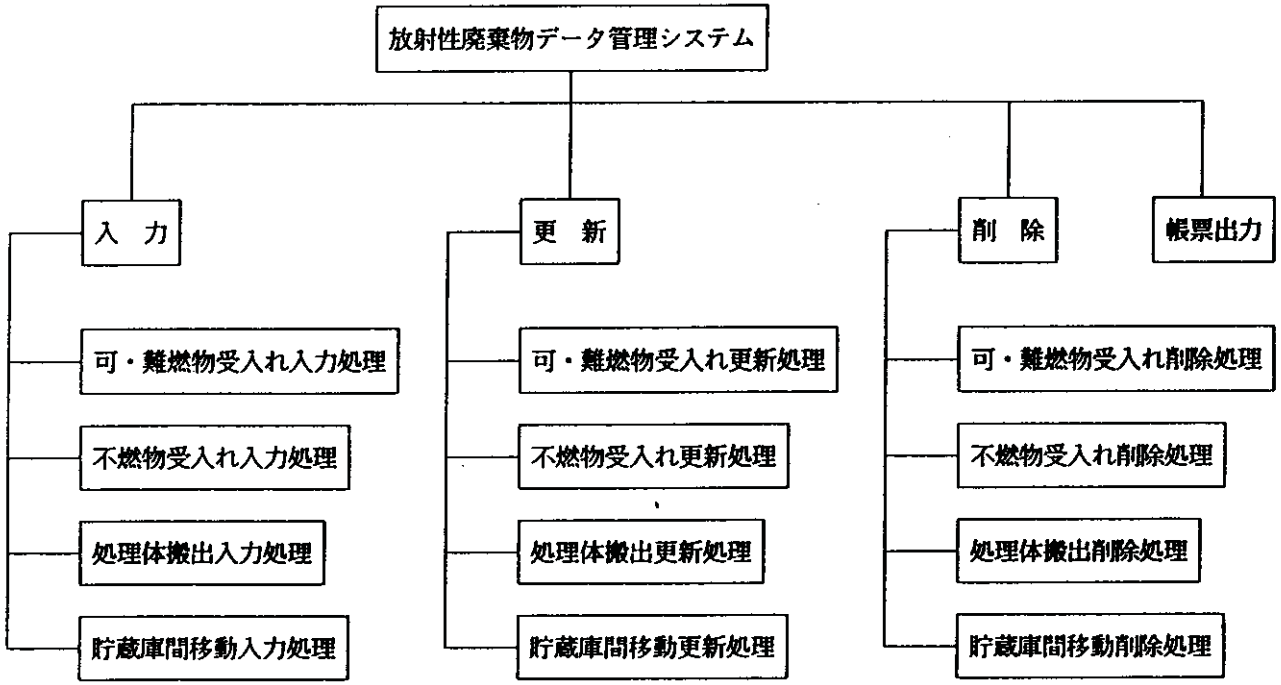
6. 成果と今後の課題

このシステムにより，廃棄物ドラム缶の所在，内容等を確実に管理できる。特に，焼却灰の内訳については，いつ，どこで発生し，どのような物がいつ焼却されたか等の履歴を迅速に確認できる。また，様々な目的にあったデータの整理が可能となり，迅速な情報提供ができる。

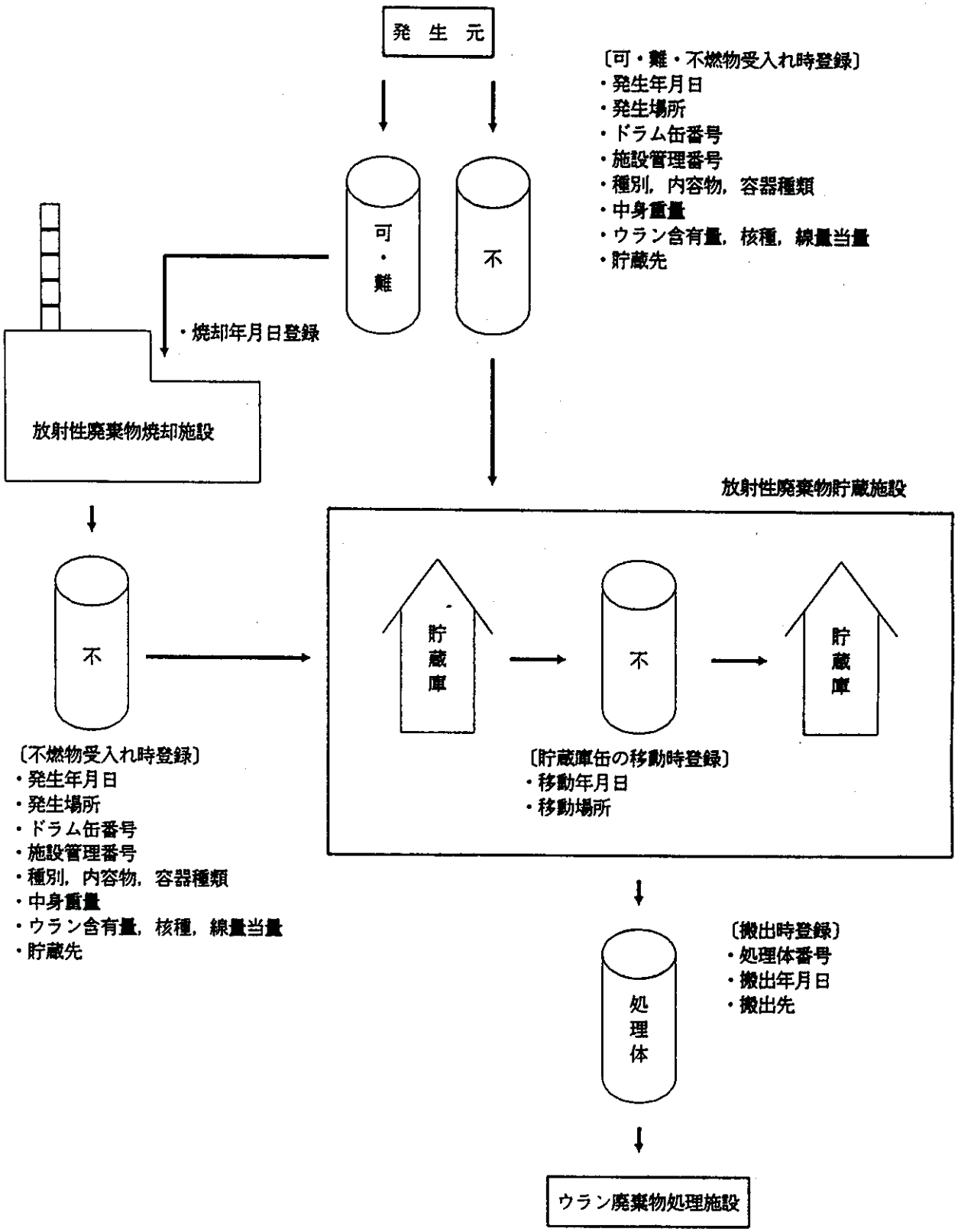
今後は，このシステムのプログラムを作成し，早急に運用図りたい。また，将来計画されている他事業所との『廃棄物管理統合システム』（情報交換ネットワーク）に参画する予定である。



図－1　人形峠事業所の廃棄物の流れ


放射性廃棄物データ管理システム
入　力
更　新
削　除
帳票出力
可・難燃物受入れ入力処理
不燃物受入れ入力処理
処理体搬出入力処理
貯蔵庫間移動入力処理
可・難燃物受入れ更新処理
不燃物受入れ更新処理
処理体搬出更新処理
貯蔵庫間移動更新処理
可・難燃物受入れ削除処理
不燃物受入れ削除処理
処理体搬出削除処理
貯蔵庫間移動削除処理

図－2　ソ　フ　ト　構　成



図－3　放射性廃棄物の流れとデータ登録

表－1　可・難燃物データの種類

―内は発生元よりデータ提供　N：数字，X：ローマ字

受入年月日	平成NN年NN月NN日
発生場所	XX－NN
容器種類	1．ドラム缶　2．コンテナ
種別	0．可燃　1．難燃1　2．難燃2　3．難燃3
カートン数	0．可燃___個　1．難燃1___個　2．難燃2___個　3．難燃3___個
施設番号	XX－NNNNNN
核種	1．天然　2．回収　3．濃縮
中身重量	NNN．Nkg
焼却年月日	平成NN年NN月NN日
灰ﾄﾞﾗﾑ 缶番号	XXNN－XXNNN

表－2　不燃物データの種類

―内は発生元よりデータ提供　N：数字，X：ローマ字

受入年月日	平成NN年NN月NN日
発生場所	XX－NN
容器種類	1．ドラム缶　2．コンテナ
種別	1．不燃1　2．不燃2　3．不燃3　4．不燃4
内容物	11．金属類 21．排気フィルタ 31．殻物類　32．コンクリート・土砂　33．プレコート類 41．保温材　42．ガラス類　43．活性アルミナ　44．耐火物　45．焼却灰 51．その他（　カタカナ15文字　）
施設番号	NNNN
ドラム缶番号	XXNN－XXNNN
中身重量	NNN．Nkg
線量当量	1．＜0.2　2．0.2～1.0　3．1.0～2.0　4．＞2.0（NNN．Nμ Sv/h）
核種	1．天然　2．回収　3．濃縮
ウラン含有量	NNNNN．Ng
貯蔵先	第NN貯蔵庫　N段　NN列　NN行
処理体番号	XXNN－XXXX－NNNN
搬出年月日	平成NN年NN月NN日

表－3　帳　票　リ　ス　ト

不燃物	放射性不燃物種別発生量（月別）
	放射性不燃物種別発生量（年度別）
	放射性不燃物施設別発生量（年度別）
	放射性不燃物貯蔵庫別貯蔵内容
	放射性不燃物貯蔵庫配置図
	焼却灰中身内訳
	放射性不燃物ドラム缶別内訳
	放射性不燃物処理体搬出量（月別）
	放射性不燃物処理体搬出量（年度別）
	放射性不燃物受入伝票一覧
	放射性不燃物処理体搬出・移動伝票一覧
可燃物・難燃物	放射性可燃物・難燃物種別発生量（月別）
	放射性可燃物・難燃物種別発生量（年度別）
	放射性可燃物・難燃物施設別発生量（年度別）
	放射性可燃物・難燃物種別焼却量（月別）
	放射性可燃物・難燃物種別焼却量（年度別）
	放射性可燃物・難燃物施設別焼却量（年度別）
	放射性可燃物・難燃物受入表一覧

2—13 ミルテーリング処理，処分研究

環境資源開発課

1. はじめに

鉱山後処置技術開発は，鉱山閉鎖後の無管理化を目的として，図—1に示すように，鉱山施設デコミッショニング技術開発，ミルテーリング処理・処分技術開発及び環境保全技術開発を行っている。中でもミルテーリング処理・処分技術開発は，ミルテーリングの処理・処分技術の確立並びに処分場及びその周辺の安全性の評価システムの確立を目指して，ミルテーリング処理技術開発，ミルテーリング処分技術開発，安全評価システムの確立，モニタリング技術開発を行っている。本研究は，ミルテーリング処理・処分技術開発の一環として処分場及びその周辺の安全性の評価システムの確立を目指して業務を遂行している。平成2年度は特に安全評価手法の検討及びその一手法として新たに独自で創案した吸着容量を用いる評価手法の試算解析を行った。

2. 評価システムの検討

従来の安全評価の考え方は，処分場の人間環境への被曝評価のみである。しかし，安全評価結果を鉱山後処置工事へ反映させるためにも安全評価システムは，緊急を要するものから最終的に安全保証するものまで目的に応じて簡易なものから理想的なものまで段階的に選択できる必要性がある。そこで，概略的ではあるが比較的短時間に処分場の安全評価が可能な吸着容量を用いた手法を創案した。

次に創案した手法を盛り込んで，現段階でのミルテーリング処分場周辺の安全性の評価手法の考え方を検討した。結果として，安全評価システムは表—1に示すように，評価時期及び評価目的に応じて，現地踏査点検による応急対策用評価，処分場周辺の土壌・岩石の吸着容量を用いる概査的な核種移行抑止評価，物性値及び化学特性等をもとに核種移行解析による人間環境への被曝評価，その他新評価手法の中から選定するものを提案した。今後は，安全性を評価した結果必要となる措置工事の選定及び設計までできる評価システムを構築していく。

3. 吸着容量を用いる評価手法

概略的にでも比較的短時間に処分場の安全評価ができ，その結果をミルテーリング処分場の処置工事に反映できる新しい評価手法として吸着容量を用いた評価手法を創案した。

今回創案した手法の概要は，図—2に示すように，ミルテーリング処分場周辺を地形をもとにブロック区分し，各ブロック毎にウラン・ラジウム最大吸着容量及びウラン・ラジウム流出量を算出し，安全裕度を求めるものである。ここで，安全裕度とは，最大吸着容量を流出量で除した値で，処分場周

辺の土壌・岩石の核種移行抑止性能を概略的な評価・検討に資するものである。

ミルテーリング処分場は，採掘場跡地等の鉱山敷地内で場所が選定されているため，その場所の評価が必要となる。本手法は，必要データの中で，地形・地質データは鉱床探査時に，処分場のインベントリは粗製錬工程で得られるため，ウラン・ラジウム分配係数測定及び地下水流出量比の算出を行えば良いと言う利点がある。しかし，地下水に接触しない上位にある土壌・岩石も地下水に接触するものと同様に取り扱うため，ウラン・ラジウム最大吸着容量が実状より大きくなるという欠点が考えられる。

4. 吸着容量を用いる評価手法の試算結果

今回新たに創案した吸着容量を用いた評価手法の現地適応性を調査するために，露天採掘場跡地及びその周辺を対象地区として安全裕度の試算解析を行った。

まず，図―3に示すように，露天採掘場跡地及びその周辺を地下水流動方向を考慮して8ブロックに区分し，ブロック内の地表部の土壌，泥岩，礫岩及び風化花崗岩の体積及びそれらのウラン・ラジウム吸着特性をもとに地域ブロック別にウラン・ラジウムの最大吸着容量を求めた。また，露天採掘場跡地内のウラン・ラジウムのインベントリを図―4に示す地下水流動解析結果をもとに流出量比で分配し，各ブロックへのウラン・ラジウム流出量を求めた。ここで，Wブロックはミルテーリング処分場への地下水の起源であり，Cブロックはミルテーリング処分場の直下であることから，これら2ブロックを除く6ブロックを解析対象ブロックとした。

各ブロック別に保持できる最大ウラン・ラジウム量を露天採掘場跡地からのウラン・ラジウム流出量で除した安全裕度を試算した結果，図―5に示すように，全てのブロックにおいてウランで１９０以上，ラジウムで８０以上であった。さらに現実にはありえないが，保持容量の最も少ないNブロックへ露天採掘場跡地内の全ウラン・ラジウムの流出を想定して計算した結果，安全裕度はウランで２６，ラジウムで１１であった。

今回の試算結果で安全裕度が各ブロックともほぼ3桁以上，最悪の事態を想定した場合でも2桁以上と比較的大きな数値だったことより，露天採掘場跡地周辺に分布する土壌・岩石は，露天採掘場跡地内のウラン・ラジウムの移行を抑止するのに十分な能力を有していることが判明した。これは，ウラン・ラジウムが露天採掘場跡地から周辺環境への優位な移行は認められないと言うこれまでの結果と一致していた。

次に，地下水に接触しない上部の土壌・岩石も接触するものと同様に取り扱うため，ウラン・ラジウム最大吸着容量が実状より大きくなるという欠点について検討した。表―2に示すように，露天採

掘場周辺の泥岩の分配係数は他の地層と比較して，ウランで約10倍，ラジウムで約2倍と吸着特性に優れていた。しかし，地層別の吸着容量を比較すると，他の地層と比較して体積が1桁程度多い風化花崗岩の吸着容量が他のものより1桁程度多かった。これより，ウラン・ラジウムの最大吸着容量は，表層に位置する吸着特性に優れた小量の土壌・岩石量にではなく，吸着特性に乏しくても多量に存在する土壌・岩石量に依存すると言える。つまり，地下水に接触しない上部の土壌・岩石については，この手法が比較的短時間での概略的な評価を目的とすることを考えると，特に考慮する必要はないと言える。

5. 今後の方針

今後は，地下水流動解析と合わせた現実的な核種移行解析を行い，今回創案した吸着容量を用いた評価手法とあわせて，安全性を評価した結果必要となる措置工事の選定及び計画まで含めたウラン鉱山のミルテーリング処理・処分における安全評価システムを確立する。

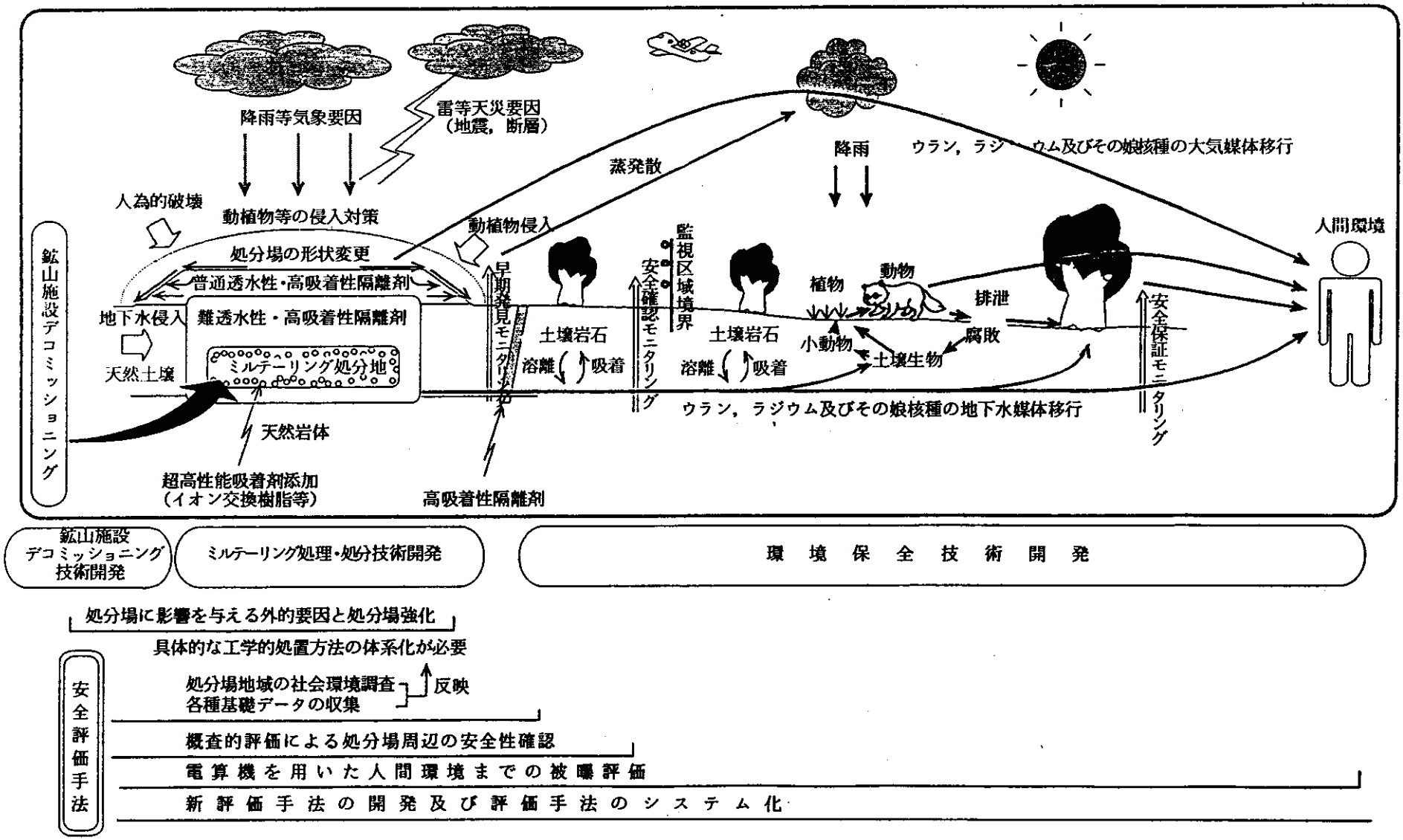
質 疑 応 答

Q．吸着特性は，どのようにして求めたのか？

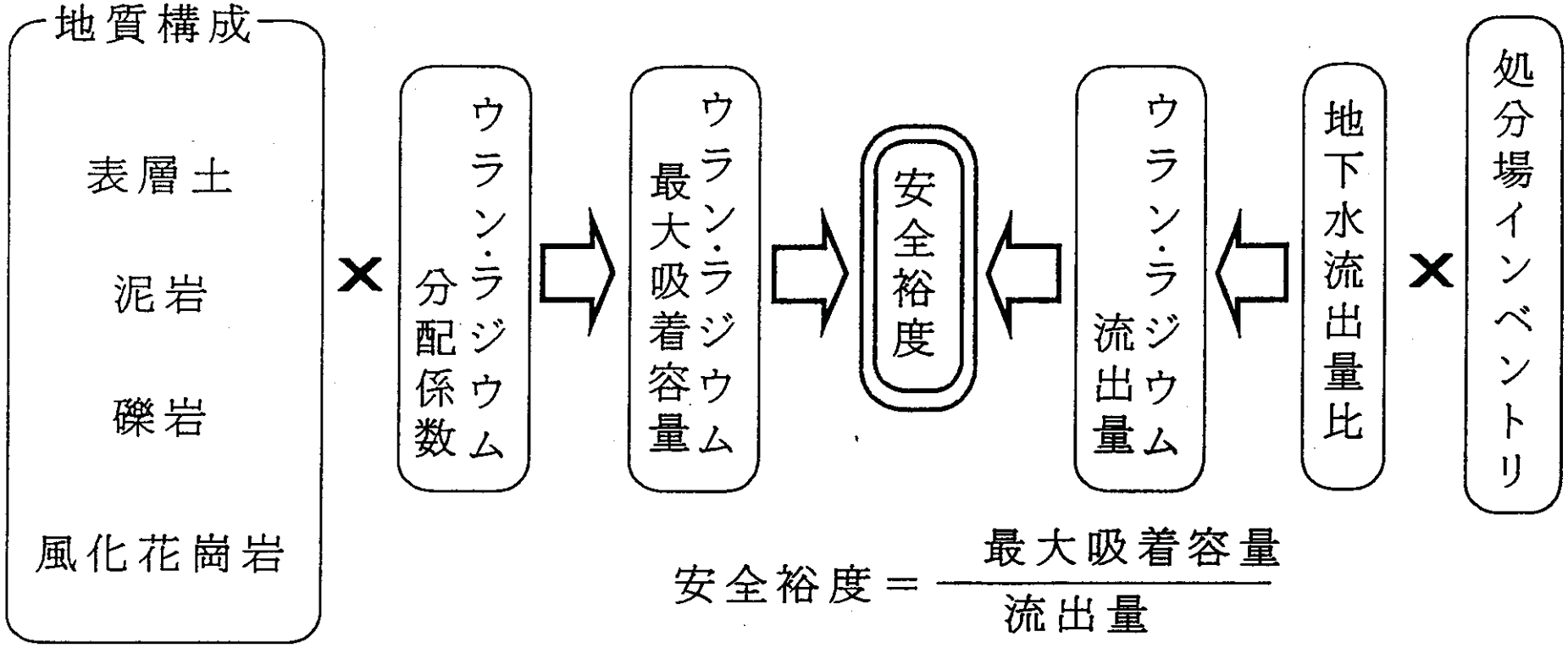
A．岩種別に実施したカラム試験の結果を用いた。

Q．処分場からのウラン・ラジウムの流出量は，全量流出としたのか？

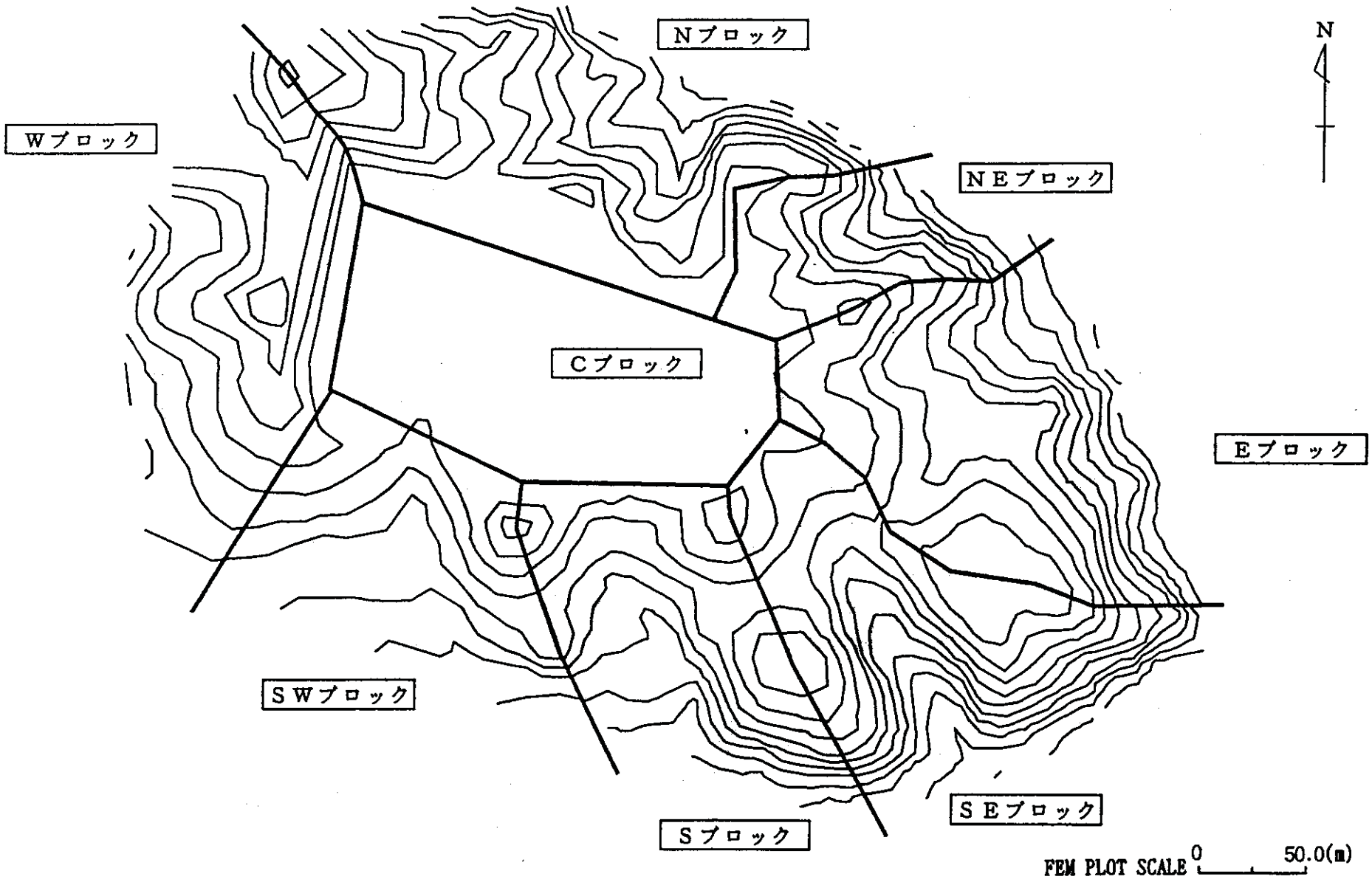
A．安全サイドで評価するために全量流出と仮定して，試算解析を実施した。



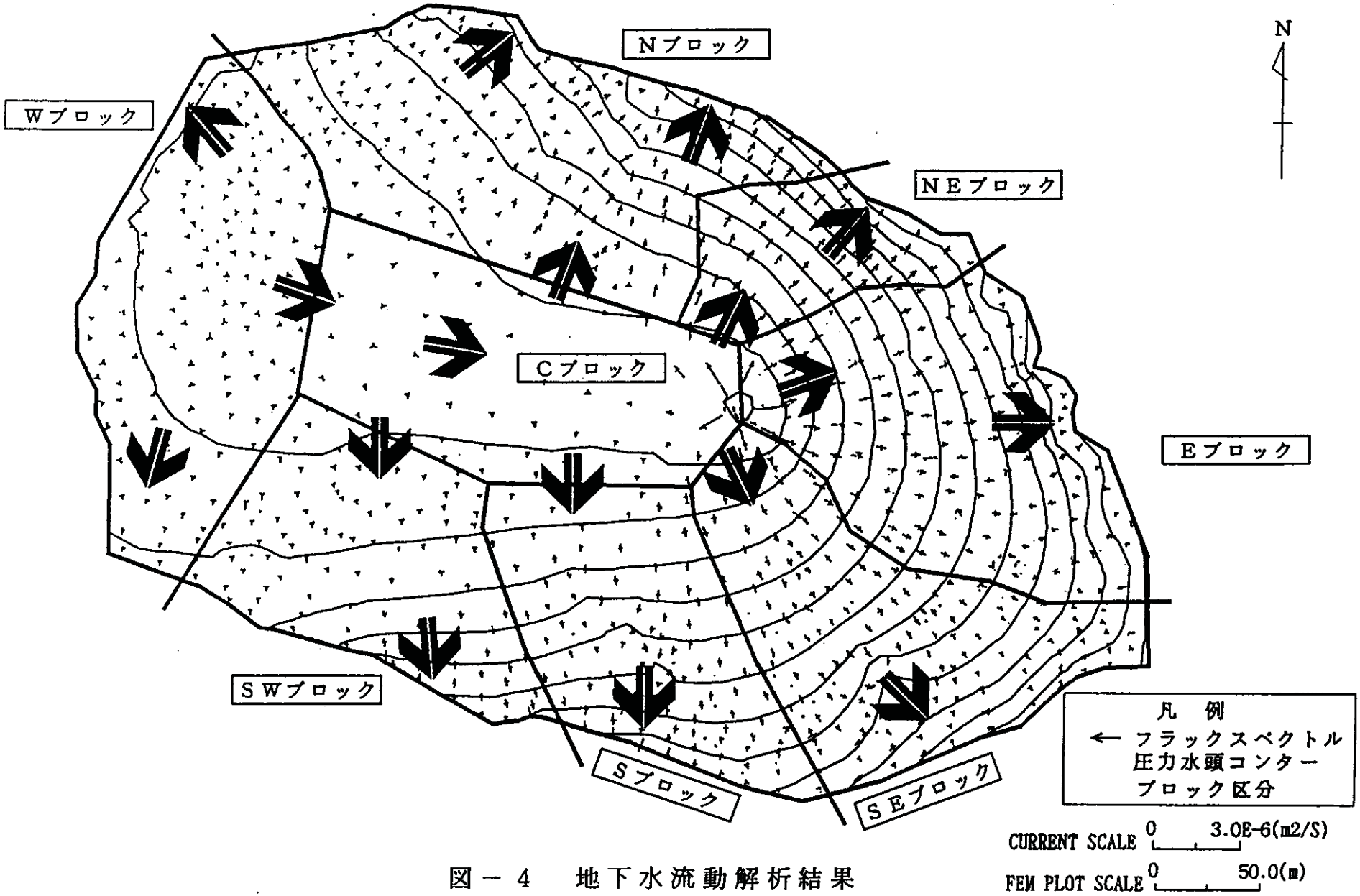
図－1　鉱山後処置技術開発概要


地質構成
表層土
泥岩
礫岩
風化花崗岩
×
ウラン・ラジウム分配係数
ウラン・ラジウム最大吸着容量
安全裕度
ウラン・ラジウム流出量
地下水流出量比
×
処分場インベントリ
安全裕度＝最大吸着容量／流出量
（流出ブロック毎に計算）

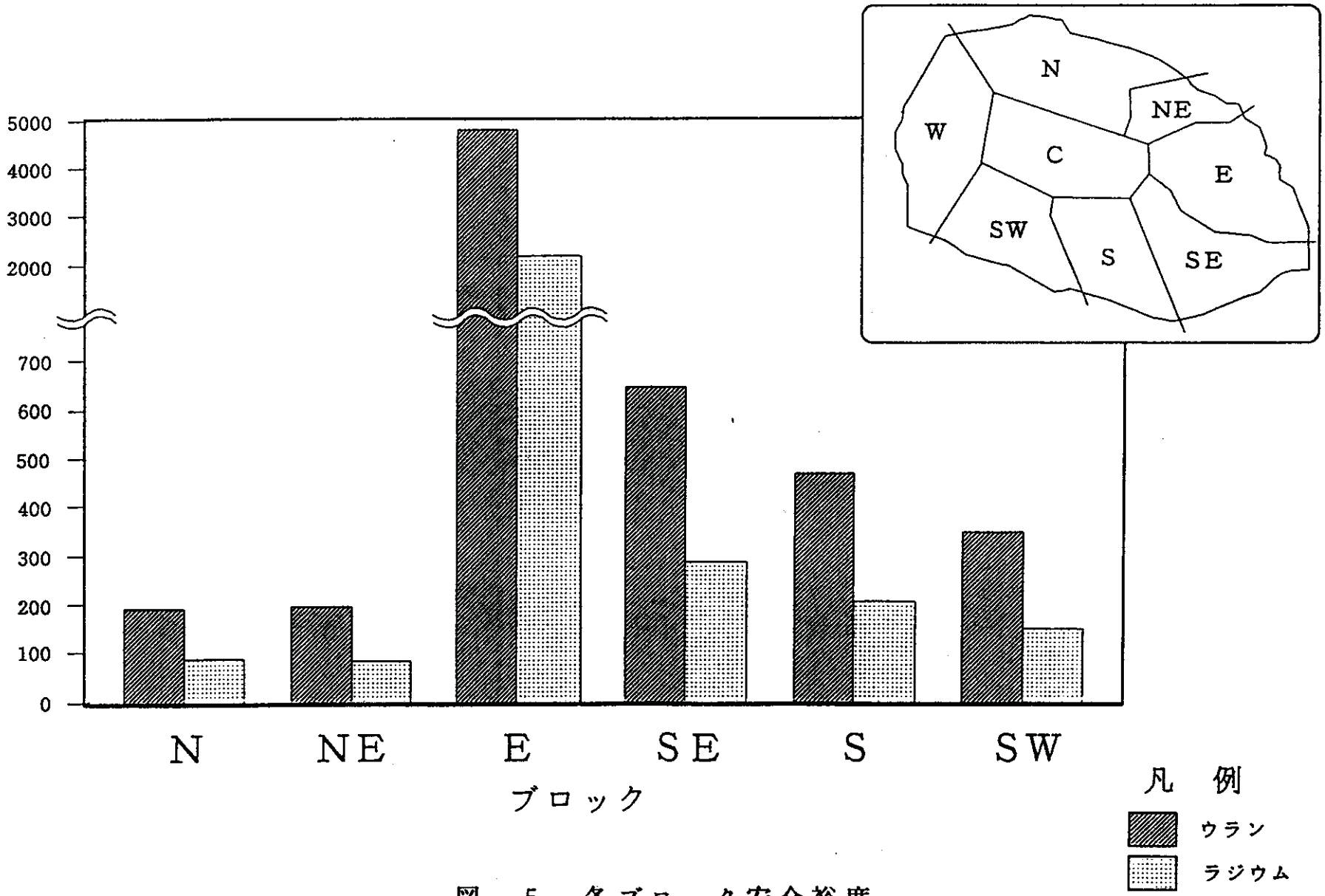
図－2　吸着容量計算方法



図－3　露天採掘場周辺地形図



図－4　地下水流動解析結果



図－5　各ブロック安全裕度

表－1　安全評価の考え方

目的	現地踏査 応急対策	吸着容量計算 大局的評価	電算機解析 安全保証
容易さ	◎	○	×
データ取得	◎	○	×
評価時間	◎	○	×
評価費用	◎	○	×
将来予測	×	×	○
希釈濃度	×	×	○
被曝評価	×	×	○
評価精度	×	△	○

表－2　吸着容量計算表（Eブロック）

	体積 $\times 10^3 m^3$	ウラン 分配係数	吸着容量 $\times 10^{10}$ Bq	ラジウム 分配係数	吸着容量 $\times 10^{10}$ Bq
表層土壌	12.0	81	24.5	1150	52.1
泥岩	27.5	976	55.3	2120	180.0
礫岩	26.9	47	29.5	1140	107.4
風化花崗岩	296.9	66	580.9	1060	1399.5
計	363.3		690.2		1739.0

2—14　捨石たい積場措置概要

環境資源開発部　増本　薫

1.　はじめに

捨石たい積場問題は昭和63年８月に発生し，その後関係箇所の御指導，協力を得ながら今日まで問題解決に当たって来た。その結果，岡山県側たい積場については必要な措置を完了し，鳥取県側たい積場については，敷地境界の設定を終了したが，一部たい積場の安定化工事を残したままとなっている。

たい積場の安定化工事は，鉱山保安監督部の指導と鳥取県，地元の要請によって早急に対処しなければならない事項であり，動燃事業団は鉱業権者として保安対策上必要な措置を行うこととなっている。人形峠周辺捨石たい積場位置関係は図—１の通り。

2.　たい積場措置工事の概要

たい積場に必要な措置計画は，たい積場への一般人の立入制限のための柵等の設置，線量率低減化のための部分除去・覆土，たい積場安定化工事の実施が基本であり，各たい積場については実情にあわせて表—１の様な工事を実施する。

(1)たい積場敷地境界柵の設置　　(2)かん止堤の補強，新設

(3)たい積場法面補修，除去・覆土，植栽工事　　(4)坑水，沢水排水工事

(5)坑口閉塞，貯鉱場跡処置　　(6)防災工事，道路改修工事等付帯工事

現在まで，人形峠鉱山中津河たい積場で行った措置工事は境界柵設置，かん止堤補強，河川敷整備，部分除去，覆土工事及び覆土植栽工事を平成２年４月まで実施した。又，鳥取県側旧倉吉鉱山歩谷ずり捨場においては，坑口閉塞，旧坑跡処置及びたい積場法面補修工事を平成２年３月に完了した。東郷鉱山方面地区，麻畑地区及び神倉地区については，警標及び立入制限のための柵の設置を平成３年３月末までに完了したが，安定化工事については諸般の事情により着手に至っていない。しかしながら，方面地区についてはたい積場の安定化工事に先がけて鉱害防止の観点からたい積場周辺について，側溝の設置，土留堤，沈砂池，編柵の設置等の防災工事を実施し，さらに安定化工事と将来にわたるたい積場の維持・管理のために方面道路改修工事を実施中である。

3.　たい積場措置工事における技術的検討事項

捨石たい積場は必要な措置工事を行った後，将来にわたって安全な維持・管理が必要であり，このためには現状調査から工事の設計，施工，検査，施設の維持・管理，安全評価まで所謂，鉱山後処置

管理技術の確立が重要である。特に，たい積場の現状調査においては表―2に示すように地形，地質地下水，たい積物の分布，放射能強度，植生分布の把握が大切であり，措置工事の実施に当たっては構造物の配置と強度，たい積場の安定性，地下水対策，除去・覆土と放射能強度の関係等が重要な事項である。さらに又，工事完了後にあってはたい積場の維持・管理の立場からモニタリング，安全評価手法の確立が必要となってくる。

これまで実施した措置工事の結果，除去・覆土と放射線量率の変化（図―2），覆土とラドン抑止効果（図―3），覆土材と植生の関係，土木工事における法面の安定性，坑内廃水の処置等いくつかの技術的知見が得られている。

4. 今後の方針

捨石たい積場問題は，今後残されている鳥取県側たい積場の措置工事をできるだけ早期に実施するため，関係箇所の御指導と協力を得ながら進めていかなければならない。

又，今後の措置工事に当たっては，各捨石たい積場の後処置のみならず，広く海外におけるウラン鉱山の後処置をも念頭におきながら技術の蓄積に取り組んでいくべきである。特に，措置工事前と工事後の周辺環境，放射線量率，ラドン湧出量の変化，工事中，工事後の地表水，地下水のコントロール，工事中の放射線管理，工事期間中の河川における河底土，水中のウラン，ラジウム濃度把握等表―3に示すような技術開発を指向した調査，措置工事の実施が重要と考えている。

表－1　各捨石たい積場に対して取るべき措置

（人形峠鉱山・東郷鉱山）　　凡例　◎実施済　○実施するもの　×実施の必要ないもの

	捨石たい積場名	鉱山名	たい積場最大空間線量率（1m高）（μR/hr）	立入制限等の措置		部分除去，覆土	備考
				警標	柵（場合によっては杭を設ける）		
（認可たい積場）							
1	中津河大切坑捨石たい積場	人形峠鉱山	320	◎	◎	◎	
2	神倉1号坑捨石たい積場	〃	40	◎	◎	○	
3	神倉2号坑捨石たい積場	〃	40	◎	◎	×	
4	夜次露天採鉱表土たい積場	〃	25	◎	◎	×	事業所内
5	夜次鉱滓たい積場	〃	180	◎	◎	×	事業所内
6	方面2号坑捨石たい積場	東郷鉱山	60	◎	◎	○	
7	麻畑1号坑捨石たい積場	〃	90	◎	◎	○	
8	麻畑2号坑捨石たい積場	〃	145	◎	◎	○	
（認可対象外たい積場）							
9	峠5号坑捨石たい積場	人形峠鉱山	40	◎	◎	×	事業所内
10	夜次1号坑捨石たい積場	〃	80	◎	◎	◎	事業所内
11	赤和瀬1号坑捨石たい積場（中津河南1号坑捨石たい積場）	〃	15	×	×	×	
12	長者捨石たい積場	〃	100	◎	◎	◎	
13	方面1号坑捨石たい積場（方面貯鉱場跡）	東郷鉱山	65（320）	◎	◎	○	
14	方面下2号坑捨石たい積場	〃	25	◎	◎	○	
15	方面3号坑捨石たい積場	〃	25	◎	◎	×	
16	麻畑3号坑捨石たい積場	〃	55	◎	◎	○	
17	峠4号坑捨石たい積場	人形峠鉱山	35	◎	◎	×	事業所内
18	夜次北1号坑捨石たい積場	〃	350	◎	◎	◎	事業所内
19	麻畑2号坑捨石たい積場（B）	東郷鉱山	20	◎	◎	○	

（旧倉吉鉱山）　　凡例　◎実施済　○実施するもの　×実施の必要ないもの

	捨石たい積場名	鉱山名	たい積場最大空間線量率（1m高）（μR/hr）	立入制限等の措置		部分除去，覆土	備考
				警標	柵（場合によっては杭を設ける）		
（認可たい積場）							
1	歩谷坑ずり捨場	旧倉吉鉱山	45	◎	◎	◎	
2	円谷2号坑ずり捨場	〃	25	×	×	×	
（認可対象外たい積場）							
3	横路谷捨石たい積場	旧倉吉鉱山	15	×	×	×	
4	歩谷捨石たい積場（B）	〃	50	◎	◎	×	
5	円谷1号捨石たい積場	〃	40	×	×	×	

表－2　捨石たい積場措置の手順と検討事項

現状調査

地形、地質、気候、植生、河川、地下水、堆積物の分布
堆積場堤体、かん止堤、排水路、沈澱池、柵、旧坑道等
放射能強度、ラドン濃度、U，Ra，Th分布
法基準、協定、社会環境

↓

措置計画

措置計画　：　施設の処理処分、土木工事、放射線・ラドン対策
技術開発計画　：　跡地処理処分技術、廃水処理、放射線・ラドンモニタリング、安全評価
予算計画
組織・人員計画

↓

対策・措置

施設の処理処分　：　施設解体・処分、残鉱処分、廃水処理
土木工事　：　施設新設・補修、坑道閉塞、陥没処置、除去、覆土
：　植栽、グラウト
放射線・ラドン対策　：　外部放射線、ラドン抑止

↓

モニタリング

工事前・工事後及び工事中のモニタリング　：　項目、位置、頻度、精度

↓

評価

計画、基準と措置結果、モニタリングの対比

表－3　たい積場問題に関わる技術的課題

1．環境への影響について

(1)　ウラン系核種の溶出、汚染

①天然水への溶出量、速度

②溶出元素の天然バリアへの吸着、除去

③植物への取込、濃縮、メカニズム、人体への影響

(2)　ラドンの大気中への放出

①放出のメカニズム、程度、速度、拡散

②岩石、水、植物等による放出、拡散の抑止効果

③人体への影響

(3)　空間線量

①核種分布状況と空間線量率分布（エネルギースペクトル分析）

②土壌、水、人工遮蔽材等による遮蔽効果

(4)　自然災害による影響

①想定される災害規模

②災害時の環境汚染の程度（シュミレーション）

2．環境保全対策

(1)　環境測定、監視

①測定法、監視項目、頻度、期間、場所

②解析、評価（安全評価システム）

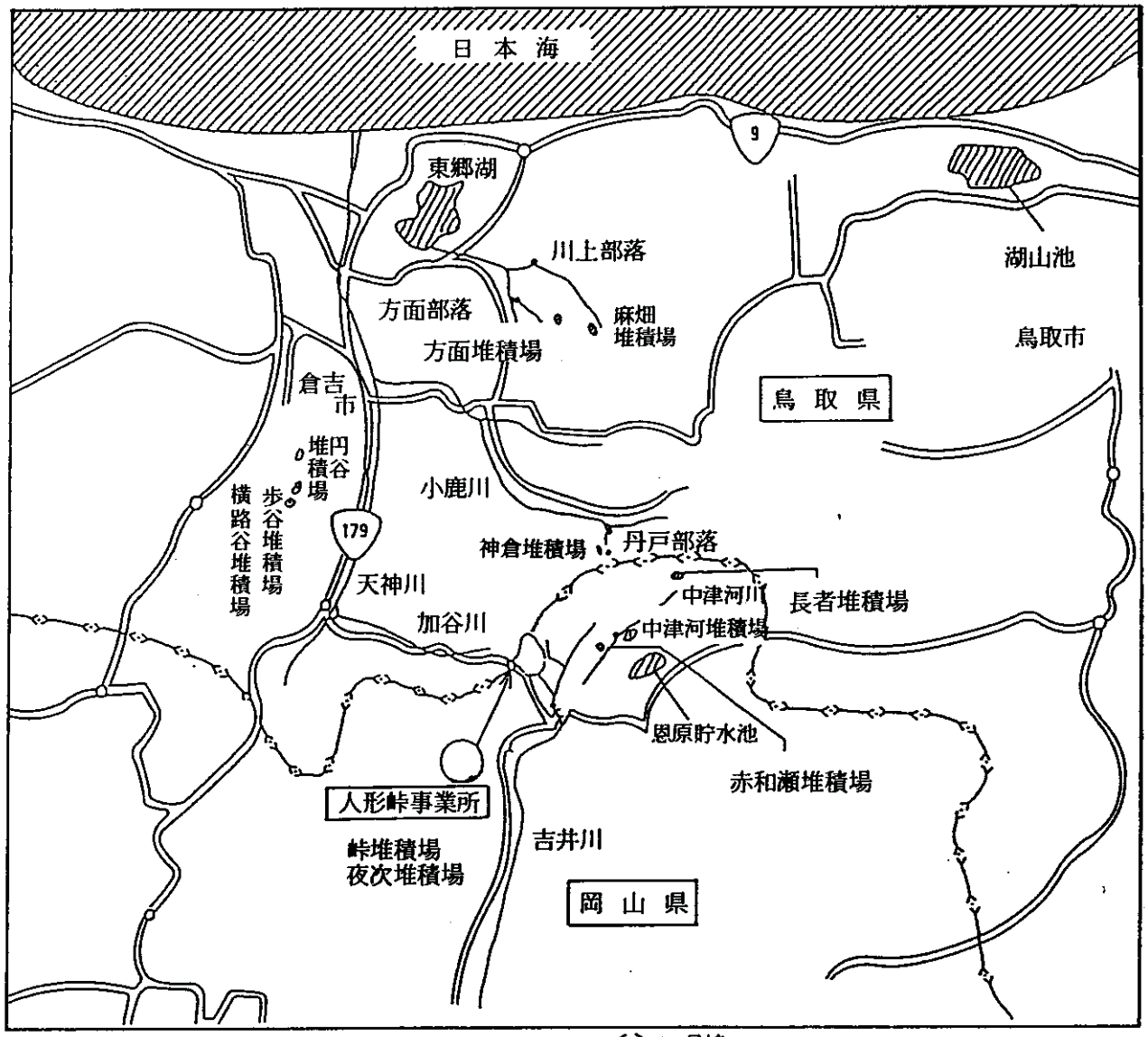
(2)　人工的対策

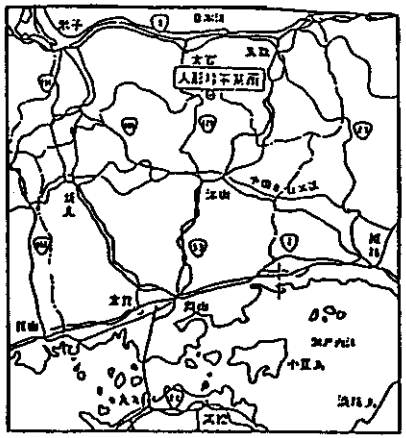
①溶出防止法とその効果（中和法、化学的処理法、物理的処理法）

②ラドン大気中放出防止とその効果（覆土、植栽、粘土、水没、その他）

③空間線量率低減対策とその効果（覆土、粘土、水没、その他）

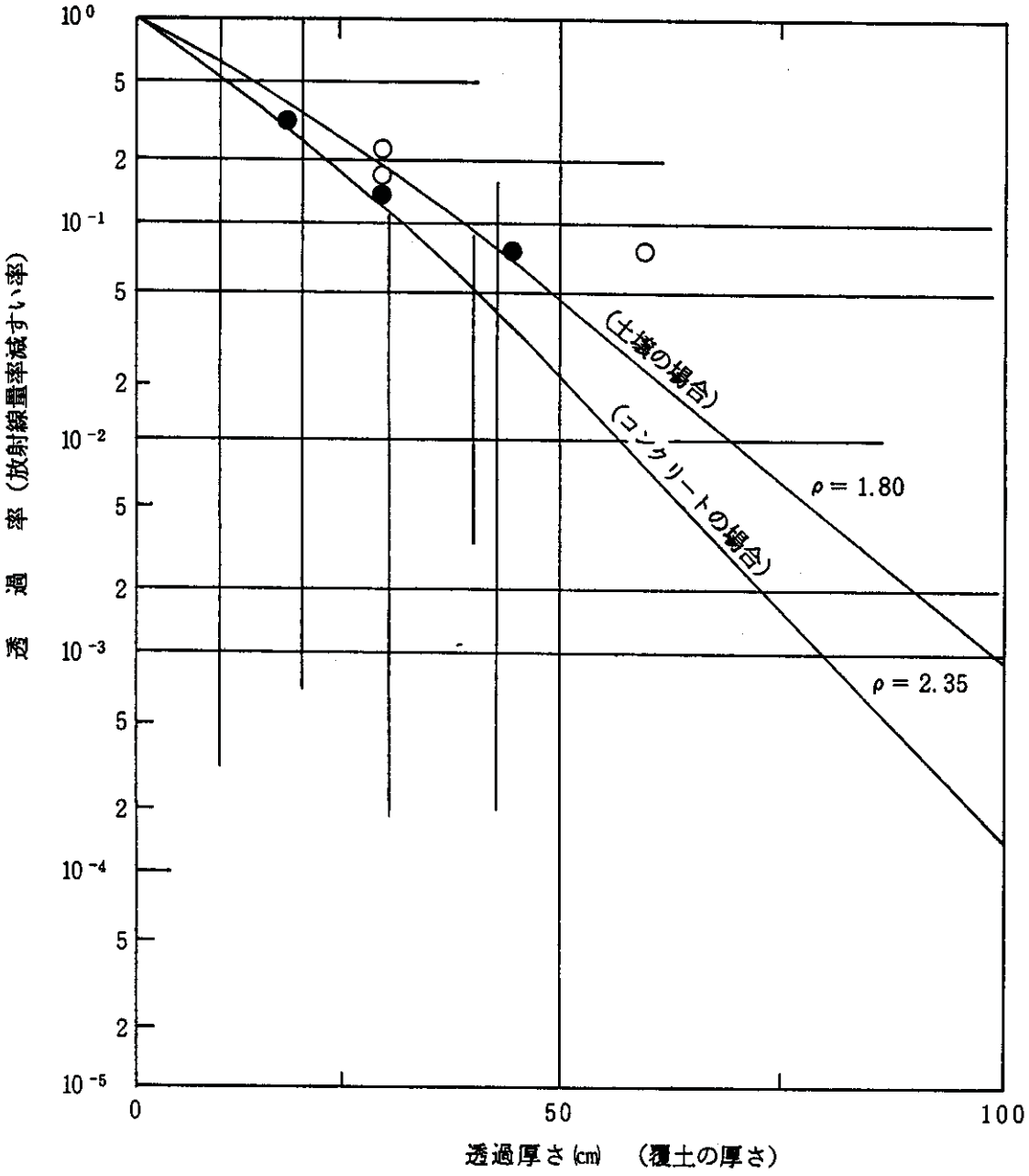
④自然災害防止法とその効果（植栽、固化、その他）





人形峠事業所位置図

図－1　人形峠周辺たい積場位置図



この表に密度の補正を加える。

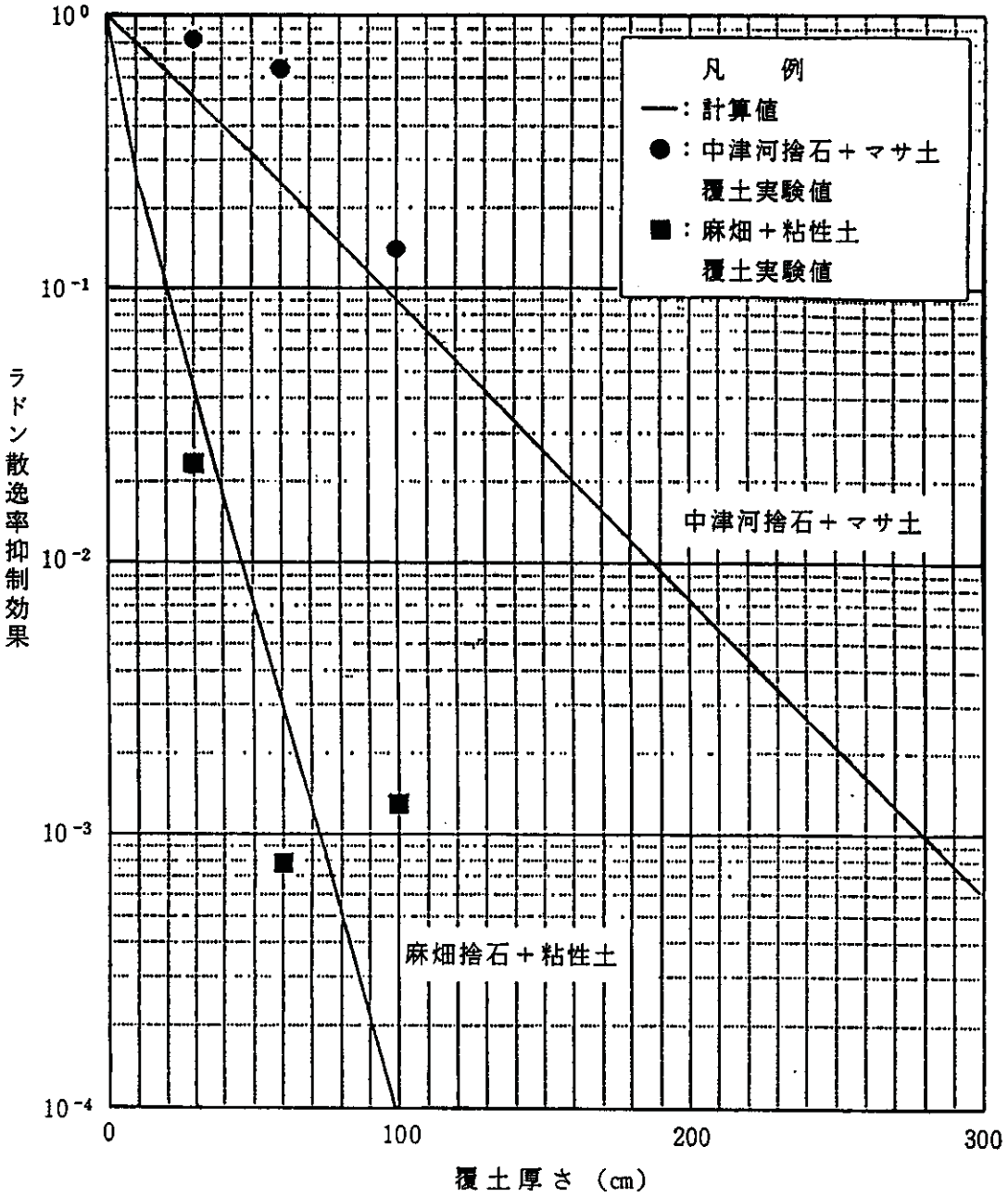
$$覆土厚さ＝コンクリート厚さ\times\frac{コンクリート比重(2.35)}{覆土材比重(1.80)}$$

凡例

○　中津河観測値

●　長者観測値

図－2　土壌及びコンクリート中における γ 線の1cm線量当量透過率(^{226}Ra)



図－3　覆土厚さに対するラドン散逸率抑制効果

2—15　捨石たい積場の管理

環境資源開発課

1、はじめに

平成元年4月1日付の金属鉱山等保安規則の改正により，捨石たい積場に周辺監視区域及びこれに準じた敷地境界を定めここにおいて境界に警標，柵囲等の設備を設けることにより業務上立入る者以外の者の立入を制限すること。又，区域外における実効線量当量限度を1 mSv／年に規制された。又，昭和63年8月に発生した捨石たい積場問題による中国四国鉱山保安監督部の指示が出され，これに基づいて捨石たい積場の対策工事が実施されている。これら捨石たい積場に関する対策工事及び維持管理を行うために綿密な巡視・点検が必要である。

2、捨石たい積場等の管理要綱

①管理・巡視の目的

「鉱山保安法」「金属鉱山等保安規則」及び「人形峠鉱山保安規程」等の“捨石たい積場の遵守事項”に基づいて捨石たい積場を安全に維持管理するため施設の巡視点検，保全及び記録を行う。

②施　　設

（イ）旧坑道跡　　（ロ）たい積場堤体（法面，堤内平坦部）

（ハ）排水路（山腹水路，場内排水路，盲排水路，沈砂池）（ニ）かん止堤（ホ）柵及び警標

③巡視点検

各施設について定期的に巡視を行い，その機能と異常の有無について点検を行う。

（イ）旧坑道路の状況，閉塞状態

（ロ）たい積場（亀裂発生，崩壊，洗掘，溜水，浸透水，植栽等の異常の有無）

（ハ）排水路，堤体法面，基礎かん止堤

（ニ）かん止堤（堤体の損傷，劣化の有無，堤体基盤，地下水の状況，周辺の異常の有無）

（ホ）境界柵及び警標（柵杭，被覆鉄線門扉の機能損傷の有無，1回／3ヶ月定点の放射性物質濃度等の測定）

④巡視の頻度

（イ）定期的に3ヶ月に1回（但し積雪期間は除く）実施

（ロ）豪雨時，融雪時はその都度実施

⑤巡視結果の記録，対応

（イ）当該保安係員は点検の結果を保安日誌に記録，報告する。

（ロ）当該保安係員は異常を認めた場合は適切な応急処置を行い，保安管理組織に従って関係箇所へ連絡する。

3. 今後のたい積場の管理について

たい積場の管理については，鉱山保安法，環境保全協定及び鉱業権者の鉱害防止の立場からより安全な施設の維持・管理が肝要であるため，たい積場のかん止堤，排水設備及び坑廃水処理設備等における鉱害発生要因をできる限り排除するため，設備の設置・点検の励行を図るとともに必要な対策を適宜に実施して行く方針である。

別添資料　捨石たい積場に関する法令等

Ⅰ．巡視の目的

1. 鉱山保安法

第１条　この法律は，鉱山労働者に対する危害を防止するとともに鉱害を防止し，鉱物資源の合理的開発を図ることを目的とする。

第３条　この法律において「保安」とは，鉱業に関する次の各号の事項をいう。

一、鉱山における人に対する危害の防止

二、鉱物資源の保護

三、鉱山の施設の保全

四、鉱害の防止

2　前項第一号の鉱山における人に対する危害の防止には，衛生に関する通気及び災害時における救護を含む

第４条　鉱業権者は，次の各号のため必要な措置を講じなければならない。

一、落ばん，崩壊，出水，ガスの突出，ガス又は炭じんの爆発，自然発火及び坑内火災の防止

二、ガス，粉じん，捨石，鉱さい，坑水，廃水及び鉱煙の処理に伴う危害又は鉱害の防止

六、機械，器具，建設物及び工作物の保全

七、土地の掘さくによる鉱害の防止その他の保安

第９条の２　鉱業権者は，この法律又はこの法律に基づく省令により措置を講じなければならないとされる捨石又は鉱さいの集積したもの，坑道その他の省令で定める物件については，これを譲渡し又は放棄した後であっても，その措置を講じなければならない。

2　鉱業権の移転があったときは，鉱業権の承継人は，当該鉱業権者の集積場等に係る義務を承継

する。

3　租鉱権の消滅があったときは，採掘権者は，当該租鉱権者の集積場等に係る義務を承継する。

第10条　鉱業権者は，鉱山における保安を確保するため，省令の定めるところにより保安規程を定めなければならない。

第11条　保安規程は，この法律及びこの法律に基づく省令その他の法令の規定並びに第25条第1項の規定による鉱山保安監督局長又は鉱山保安監督部長の命令に違反することができない。

第12条　鉱業権者及び鉱山労働者は，保安規程を守らなければならない。

2. 金属鉱山等保安規則

第52条　鉱業権者は，次の各号の建設物，工作物その他の施設について，これを設置し，又は別に告示する事項を変更しようとするときは，法第8条第1項の規定に基いて，様式第6号により鉱山保安監督局長又は鉱山保安監督部長に認可を申請しなければならない。

11　捨石たい積場（地盤面からその直上の捨石面までの鉛直高の最大値が十メートル未満のものを除く）

第53条　鉱業権者は，次の各号の建設物，工作物その他の施設について，これを設置し，又は別に告示する事項を変更しようとするときは，法第8条第2項の規定に基づき，様式第6号によりその計画を鉱山保安監督局長又は鉱山保安監督部長に届け出なければならない。ただし当該施設が前条各号の施設の一部をなすときは，この限りでない。

9の5　捨石たい積場（特別措置法第2条第3項に規定する特定施設に該当するものに限り，前条第10号及び第11号に掲げるもの及びのり尻からたい積面までの高さの最大値が3メートル未満のものを除く）

9の8　坑道の坑口の閉塞施設（特別措置法第2条第4項に規定する坑道の坑口の閉塞事業により設置されるものに限る）

第287条の4　鉱業権者は，特別措置法第4条第1項に規定する使用済特定施設について第295条の3及び第303条から第305条の4まで（第309条第1項において準用する場合を含む）の規定により講じなければならない措置については，同法第5条第1項の規定に基づき鉱山保安監督局長又は鉱山保安監督部長に届け出た使用済特定施設鉱害防止事業計画（同項の規定による変更の届出があったときは，その変更後のもの）に従い行わなければならない。

第301条　鉱業権者は，捨石又は鉱さいのたい積による鉱害を防止するため適当な施設を設けなければならない。

第303条　第52条第10号若しくは第11号又は第53条第９号の５の捨石又は鉱さいのたい積場は，たい積物の崩壊又は流出を防止するため，よう壁，かん止堤等適当な防護施設を設けなければならない。ただし，鉱害のおそれが少く，鉱山保安監督局長又は鉱山保安監督部長の許可を受けたときは，この限りでない。

第304条　前条のよう壁，かん止堤等を設けた土状又は泥状の捨石又は鉱さいのたい積場においては，沢水，山腹水その他そのたい積場内に流入するおそれが多い場外水及びそのたい積場内の捨石又は鉱さいの含有水，雨水，湧水その他の場内水を排除するため，沢水排水路，山腹水路，上澄水排除装置，暗きょ，盲溝等適当な施設を設けなければならない。

第305条　沢水排水路は，堤体外の地山に設けなければならない。

2　地形上前項の規定によることができないときは，基礎地盤を切り込み，堅固で，流量に対し余裕のある構造とし，かつ，その内部を検査ができるようにしなければならない。

3　沢水排水路には，流木，土石等による埋そくを防止するため，上流部に適当な施設を設けなければならない。

第305条の２　特別措置法第２条第３項に規定する特定施設に該当する土状又は泥状の捨石又は鉱さいのたい積場であって，使用を終了したものについては，廃水又はたい積物の流出等による鉱害を防止するため，当該たい積場の覆土，植栽等の措置を講じなければならない。

第305条の３　第303条のよう壁，かん止堤等を設けた泥状の捨石又は鉱さいのたい積場においては，第304条に掲げる施設のほか，多量の場外水の流入する危険に備えてたい積場の適当な位置に非常排水路を設けなければならない。但し，集水面積の小さい区域等特別の事由があって，鉱山保安監督局長又は鉱山保安監督部長の許可を受けたときは，この限りでない。

第306条の２　鉱業権者は，前７条の規定によるほか，鉱山保安監督局長又は鉱山保安監督部長が，捨石又は鉱さいのたい積による危害又は鉱害を防止するため特に必要があると認め指示したときは，これによらなければならない。

Ⅱ．管理の基準

1．鉱山保安法

第10条　鉱業権者は，鉱山における保安を確保するため，省令の定めるところにより保安規程を定めなければならない。

2. 金属鉱山等保安規則

第1条　この規則は，鉱山保安法（以下「法」という。）に基づいて，鉱業に関する保安について規定する。

第2条

2　この規則において「建設物」とは，坑外においては，建築物，えん堤その他の築造物をいう。

17　この規則において「鉱業廃棄物」とは，鉱業の実施により生じた不要物であって次に掲げるもの（放射性物質及びこれによって汚染されたものを除く）をいう。

一、捨石（金属鉱業等鉱害対策特別措置法施行規則第3条第2号及び第3号の捨石を除く。）

二、鉱さい

三、沈でん物

第21条　保安統括者は，次の各号の事項を守らなければならない。

一、施設，材料又は鉱業の実施の方法を保安のために検査し，これを整備すること。

三、鉱害の発生のおそれが多いとき，又は鉱害が発生したときは，直ちに応急の措置又は適当な鉱害防止の措置を講ずること。

第22条の2　坑外保安係員は，次の各号の事項を守らなければならない。

一、露天掘採場，多数の鉱山労働者が就業する箇所，鉱山道路その他特に危険のおそれが多い箇所を毎作業時間に1回以上巡視し，崩壊，爆発，火災，自然発火その他の危険の有無を検査すること。

三、前号2号以外の箇所を定期的に巡視し，第1号の危険の有無を検査すること。

第24条の2　鉱害防止係員は，次の各号の事項を守らなければならない。

一、鉱業廃棄物の処理施設その他鉱害を防止するため必要な施設を定期的に巡視し，異常の有無を検査し，且つ，必要な事項について定期的に測定すること。

第300条　捨石又は鉱さいのたい積場については，次の各号の事項について，その細目を保安規程に定めなければならない。

一、捨石又は鉱さいのたい積場の管理に関すること

二、降雨、積雪又は融雪の際の措置に関すること

三、応急の際の用具，材料及び措置に関すること

四、捨石又は鉱さいのたい積場の保護林に関すること

第307条　坑外保安係員は，捨石又は鉱さいのたい積による鉱害の防止について，次の各号の規定を守らなければならない。

一、捨石又は鉱さいのたい積場においては，たい積を完了し，かつ，鉱害のおそれがないときは定期的に，その他の場合は毎日巡視し，その結果を保安日誌に記載すること。

2　降雨，積雪又は融雪の際には，前項第一号の巡視回数は，増加しなければならない。

3. 人形峠鉱山保安規定

第82条　保安統括者は，捨石又は鉱さいのたい積場及びその境界を鉱山労働者に周知しなければならない。

2　上席副保安技術管理者は，捨石又は鉱さいのたい積場の出入口，その他必要な箇所に管理責任者の氏名を表示し，必要に応じ境界にさく囲，なわ張り等を施して区画するとともに立入の制限をしなければならない。

3　坑外保安係員は，使用中のたい積場については，毎日1回以上，その他鉱害のおそれのないたい積場については，3箇月に1回（但し，積雪期間は除く。）次の各号について巡視を行いその結果を保安日誌に記載しなければならない。

(1)　たい積物の亀裂，雨水等による洗掘等の有無の点検

(2)　すべりの有無の点検

(3)　山腹水路，雨水の流入等の点検

(4)　坑口又は坑口跡周辺の点検

(5)　その他保安上必要な事項

第83条　上席副保安技術管理者は，降雨，積雪又は融雪時等による異常事態の発生を防止するために必要な措置をしなければならない。

4. 東郷鉱山保安規則

第4条　人形峠事業所長は東郷鉱山の「坑口又は坑口跡及び捨石たい積場」を人形峠鉱山の東郷鉱山に係わる鉱山労働者に周知しなければならない。

2　環境資源開発部長は，捨石たい積場の出入口，その他必要な箇所に管理責任者の氏名を表示し，必要に応じ境界にさく囲，なわ張り等を施して区画するとともに人の立入の制限をしなければならない。

3　環境資源開発課長は，坑外保安係員を指揮し，たい積場等を3箇月に1回（但し，積雪期間は除く。）下記の項目について巡視を行なわせ，その結果を保安日誌に記載させなければならない。保安日誌の保存は2年間とする。

(1) 捨石たい積場の亀裂，雨水等による洗掘等の有無の点検

(2) すべりの有無の点検

(3) 山腹水路，雨水の流入等の点検

(4) 坑口跡周辺の点検

(5) その他保安上必要な事項

Ⅲ．周辺監視区域

1. 金属鉱山等保安規則

第２条

15 この規則において「周辺監視区域」とは，管理区域の周辺の区域であって，当該区域の外側のいかなる場所においてもその場所における線量当量が告示で定める線量当量限度を超えるおそれがないものをいう。

第315条 核原料物質鉱山においては，鉱業権者は，周辺監視区域を定め，周辺監視区域において次の各号に掲げる措置を講じなければならない。

一、人の居住を禁止すること。

二、境界に警標，さく囲その他の設備を設けることにより，周辺監視区域に業務上立ち入る者以外の者の立入りを制限すること。ただし，当該区域に人が立ち入るおそれがないことが明らかな場合は，この限りでない。

（注…平成元年通産告示第83号第２条）

第319条 周辺監視区域の外側における空気及び水の中の放射性物質の濃度については，告示で定める濃度限度を超えないようにしなければならない。

（注…平成元年通産告示第83号第６条）

2. 人形峠鉱山保安規定

第90条 保安統括者は，周辺監視区域を設定し，その範囲を明示しなければならない。なお，周辺監視区域とは，管理区域の周辺の区域であって，当該区域の外側のいかなる場所においてもその場所における線量当量が告示第２条に定める周辺監視区域外の線量当量限度を超えるおそれのないものをいう。

2 前項の周辺監視区域は，第１０図のとおりとする。

第91条 保安統括者は，管理区域，一時管理区域，立入制限区域及び周辺監視区域を鉱山労働者に周

知させなければならない。

2　保安統括者は，管理区域及び周辺監視区域の出入口，その他必要な箇所に第１１図及び第１２図に示す標識を設置し，必要に応じ境界さく囲，なわ張り等を施して区画しなければならない。

第92条

2　保安統括者は，周辺監視区域内にみだりに人及び車両を立ち入らせてはならない。

第110条　当該副保安技術管理者は，たい積場の敷地境界の線量当量率を３カ月に１回（積雪期間は除く）測定し，その結果を保安日誌に記載しなければならない。

3.　東郷鉱山保安規則

第８条　環境資源開発課長は，捨石たい積場の敷地境界の線量当量率を３カ月に１回（積雪期間は除く。）測定し，その結果を記録しなければならない。測定結果の記録の保存は１０年間とする。

資料－1　坑外・鉱害防止保安日誌（休廃止鉱山）による点検様式

平成　年　月　日 天候	保安統括者	保安技術管理者	副保安技術管理者	保安係員

巡視箇所：	巡視者名：	巡視時刻：

点検項目			異常有無	備考
坑外		旧坑口の状況		
		旧坑口閉塞状況		
		山腹水路		
		警標・柵等		
鉱害防止（たい積場）	堤内	たい積場の亀裂・崩壊		
		雨水・沢水の浸透		
		雨水・沢水の溜水		
		雨水・沢水による洗掘		
		植栽の状況		
	堤体・法面	滑動状況		
		雨水洗掘		
		堤体の損傷		
		植栽の状況		
		堤体の下流		
	排水路	木の葉，枯木等異物の詰り		
		排水路状況		
		盲排水路		
		排水路周辺の洗掘		

空間線量率

坑内水水質等

記事

資料－2　捨石たい積場名一覧表

認可たい積場	
1	中津河大切坑捨石たい積場
2	神倉1号坑捨石たい積場
3	神倉2号坑捨石たい積場
4	夜次露天採鉱表土たい積場
5	夜次鉱滓たい積場
6	方面2号坑捨石たい積場
7	麻畑1号坑捨石たい積場
8	麻畑2号坑捨石たい積場
9	歩谷坑ずり捨場
10	円谷2号坑ずり捨場

認可対象外たい積場	
11	峠4号坑捨石たい積場
12	峠5号坑捨石たい積場
13	夜次1号坑捨石たい積場
14	夜次北1号坑捨石たい積場
15	赤和瀬1号坑捨石たい積場 （中津河南1号坑捨石たい積場）
16	長者捨石たい積場
17	方面1号捨石たい積場
18	方面下2号捨石たい積場
19	方面3号捨石たい積場
20	麻畑2号坑捨石たい積場（B）
21	麻畑3号坑捨石たい積場
22	横路谷坑捨石たい積場
23	歩谷捨石たい積場（B）
24	円谷1号捨石たい積場