

平成 4 年度人形峠事業所環境資源開発部
業務報告

1993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 岡山県苦田郡上斎原村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)

1993年 6月

平成4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5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4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. 資源技術開発係として、鉱石試験、鉱石処理試験を、また製錬技術開発では、イオン交換法によるウランの回収・処理技術及び過酸化水素沈殿法、乾式法によるウラン・不純物の分離精製の基礎試験を行った。
2. 地質環境調査技術開発は、深部地下水調査、水・岩石反応試験、カソードルミネンスを用いたウラン鉱床の物質移行解析技術開発及び地下深部における微生物影響調査等を行った。
3. ウラン廃棄物処理研究では、ウラン廃棄物のインベントリー調査及び中和剤物の減容化をめざした物性測定及び乾燥試験を行った。
4. 鉱山後処置技術開発では、環境保全対策技術開発の一環として鉱滓を安全に処置するため鉱滓の脱水、溶出試験、パソコンを用い鉱滓中の核種濃度及びそれによる被ばく線量率の経時変化を計算した。また、バクテリア、微細藻類及び骨炭によるダム水中のウランラジウムの吸着試験を行った。

鉱害対策として、事業所周辺の旧鉱山跡地、露天採掘場跡地及び鉱滓堆積場の鉱害防止のための維持管理を行うとともに、方面捨石堆積場措置工事の準備を行った。

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. 回収ウラン実用化試験に係る監督官庁への許認可申請を行い許可を得た後、改造工事契約を

締結するとともに、自営工事として解体撤去工事に着手した。

2. 脱硝工程高度化確証試験に係る試験設備の据付け工事を終了し、官庁検査合格後に天然ウランを使用しての試験を開始した。

目 次

1. 環境資源開発課関係業務報告

1-1	平成4年度環境資源開発課成果概要	1
1-2	原子力交流制度に基づくインドネシアへの技術指導	2
1-3	不整合関連型ウラン鉱床からのウラン回収、処理技術開発	7
1-4	過酸化水素によるイエローケーキ沈澱試験	13
1-5	イオン交換樹脂による砒素(As)分析法の確立	20
1-6	カナダ、クリスティーレイク鉱床における鉱化の特徴(I)	29
1-7	THE MINERALOGICAL STUDY CONCERNING GENESIS OF URANIUM DEPOSITS OF TONO MINE, JAPAN	43
1-8	固結、充填に用いる樹脂等の評価	59
1-9	薄片作成に用いる樹脂等の特性調査	66
1-10	ウラン鉱滓の処置に係わる調査研究(娘核種の影響)	82
1-11	鉱滓処置試験	88
1-12	骨炭によるウラン吸着試験	93
1-13	微生物によるウラン等放射性物質の吸着試験研究	99
1-14	地下水の化学組成の成因(水・岩石反応試験によるイオン交換反応の検討)	111
1-15	ウラン鉱床の物質移行解析技術開発(2)	122
1-16	釜石地域の地下深部におけるバクテリアの存在調査	135
1-17	廃水処理施設の運転と維持管理	143
1-18	放射性廃棄物の焼却と貯蔵管理	147
1-19	鉱害対策の概要	153
1-20	方面地区ラドン等調査に係わる土壤分析の解析	162
1-21	捨石たい積場措置概要	168

2. 転換技術開発課関係業務報告

2-1	平成4年度転換技術開発課業務概要	175
2-2	脱硝工程高度化確証試験概要(III)	177
2-3	回収ウラン転換実用化試験研究(III)	187

2—3—① 共同研究概要	187
2—3—② 許認可概要	208
2—3—③ 改造計画概要	218

1. 環境資源開発課関係業務報告

1-1 平成4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

環境資源開発課の業務は大きく分けて、資源関係と、環境関係に分けられる。今日はこれを5つのカテゴリーに分けてその概要を報告する。

まず、鉱石処理試験、製錬技術開発では不整合関連型鉱床の製錬試験を中心に報告するが、今回特に原子力交流制度に基づくインドネシアへの技術指導についても発表する。

鉱物試験では、従来の堆積岩型ウラン鉱床の成因プロセス試験に代って、不整合関連型鉱床の成因プロセス試験を開始したのでそれについて報告する。また、今回は特に昨年10月から人形峠に来ている中国からの研修生王さんにも報告をお願いしている。

次の環境保全技術開発は、平成3年度に資源開発室を中心に策定された研究開発5ヶ年計画の重点項目とされており、4年度はその初年度として4件の発表を予定している。

昼食をはさんで、午後からは地球科学研究として主に地下水の調査を行う。

最後には研究開発とは違い、いわゆるルーチンワーク的なものであるが廃水処理及び廃棄物の焼却のデータをとりまとめたものを発表する。また、方面を中心とした捨石堆積場等、旧鉱山施設の管理も発表する。今回は特に方面地区におけるラドン等の調査のための土壤分析も行っているのでそれについて報告する。

以上、21件の報告を行うが、環開課では50名の課員がおり、この外にも計量管理、許認可、特に廃棄物貯蔵庫の建設、新技術開発、ウラン廃棄物処理研究を行っている。いずれも若い人が多いが、彼らは確実に育って来ており、将来の人形峠を背負ってくれるものと思っている。最後までじっくりと聴いていただきて忌憚のないご意見、ご指導をお願いしたい。

1-2 原子力研究交流制度に基づくインドネシア国への技術指導

報告者 環境資源開発課

1. はじめに

平成4年度原子力研究交流制度に基づき、インドネシア原子力庁核原料物質開発センターから動燃、人形峠事業所に派遣された研究者（Mr. kosim）に対して、「ウラン鉱石の前処理と抽出」に関して技術指導を行った。派遣目的は、インドネシアが建設した粗製錬プラント（処理量：150 kg/hr）を経済性の高いパイロットプラント（現在のウラン回収率50～60%）に改良するために必要な鉱石処理試験データの取得及び処理技術の習得である。そのために、平成4年9月から平成5年2月にかけて環境資源開発課の所有する機器を使用して動燃の指導の基に、インドネシア、カラム鉱石を用いて主に浮遊選鉱試験とウランの浸出試験を行った。

試験の実施にあたっては、海外研究者と動燃職員と打合せした上で、試験計画を作成した。また、インドネシア国からの要請に基づきインドネシア原子力庁核原料物質開発センターを訪問し、難溶性鉱石からのウラン抽出および選鉱に関して、同センターの技術者との研究交流を平成5年3月2日から19日までおこなった。

2. 技術指導項目

人形峠事業所に派遣された研究者に対しての技術指導項目

- (1) 鉱物試験
- (2) 鉱石に含有する硫化鉄鉱とモリブデンを回収するための浮遊選鉱試験
- (3) 最適なウラン浸出条件を把握するための浸出試験
- (4) 上記試験に必要な分析法

インドネシア国を訪問した際の技術指導項目

- (1) 人形峠事業所で実施した鉱石処理試験結果についての意見交換
- (2) 鉱石中の硫化鉄鉱、硫化モリブデン鉱回収および緑泥石除去のための浮選法
- (3) ウラン浸出法
- (4) ウラン浸出液中のウランと不純物元素の分離・精製法
- (5) 今後の鉱石処理試験計画についての意見交換

3. インドネシア国が抱える粗製錬上の問題点

インドネシア国は、カリマンタン島に粗製錬プラント（パイロットプラント、処理量150kg/hr）

を建設しテスト運転を行っている。図一に粗製錬プラントの概略フローシートを示す。連続試験を行った結果、次のような問題点が明らかとなった。

- ① ウラン回収率が低い (50~60%)
- ② 浸出工程での多量の硫酸および酸化剤の消費
- ③ 固液分離性の悪さと、この工程でのウラン損失が大きい
- ④ 浸出液にシリカが溶解することによるイオン交換工程での操業上のトラブル
- ⑤ 経済性を高めるために、有価金属を副産物として回収する処理技術の検討

このような問題点を解決することを目的に、インドネシアから派遣された研究者とともに、鉱石処理試験を行った。

4. 鉱石処理試験

鉱石処理試験として主に以下の項目について行った。

(1) 鉱物試験

- ・ウラン鉱物および共生鉱物の同定

(2) 浮選試験

- ・硫化鉄鉱を分離して、硫酸を製造することの経済的可否を決定するための予備試験
- ・モリブデンを副産物として回収する可能性を見るための予備試験
- ・硫酸を消費する緑泥石分離の可能性を見るための予備試験

(3) 浸出試験

- ・composite sample鉱石による最適な浸出条件を設定するための基礎試験
- ・浸出液中へのシリカの生成調査

(4) 固液分離試験

- ・濾過特性の調査 (濾過比抵抗の測定)

5. 試験結果

試験結果の概要は次の通りである。

(1) 鉱物試験

- ・BM鉱石（インドネシアで呼ばれているサンプル名）は、硫化モリブデン鉱、緑泥石、石英、硫化鉄鉱を多く含有し、ウランはウラニナイトとして存在している。
- ・RIRANG鉱石（インドネシアで呼ばれているサンプル名）は、硫化モリブデン鉱、モナザイ

トを多く含有し、ウランはウラニナイトとして存在している。

(2) 浮選試験

- ・捕收剤としてサンセート、起泡剤としてパインオイルを添加することにより、Mo=78.8%，Fe=50%，S=84.4%の回収率を得ることが出来た。

(3) 浸出試験

- ・インドネシア国は鉱石中のウランは、ウラニナイトとプラネライトの2つの鉱物種が存在していると報告されているが、日本に持参したサンプルではプラネライトの存在を確認することが出来なかった。
- ・硫酸を用いた大気圧法によるウランの最適と思える浸出条件を設定した。

(4) 固液分離試験

- ・濾過比抵抗値を測定した結果、 $\sim 3 \times 10^{10} \text{m/kg}$ 程度であり抵抗は小さいことが分かった。

6. 得られた成果

今回、原子力研究交流制度に基づき、インドネシア国に対して技術指導を行いくつかの知見を得た。技術指導の期間が短いこともあり充分な試験は行えなかつたが、今回得られた成果を基に更に基盤試験を行い、経済性のある粗製錬パイロットプラントに改良していく必要があると考える。そのためにも動燃は、今後も出来る限りの技術交流を継続していく必要があろう。

技術交流で得られた成果の概要を以下に述べる。

- ① 予察試験ではあるが、浮選により鉱石中の硫化鉄鉱を回収する可能性を見いだした。
- ② 最適と思える浸出条件が把握された。
- ③ 人形峠事業所での指導によるコシム氏の研究成果と訪問によって、現在のパイロットプラントで検討すべき課題が明らかとなった。
- ④ 訪問によって、センター側の作業環境（スタッフ、器具、装置、試薬等）を知ることができ、今後のインドネシア国との研究交流において、有益な情報となつた。
- ⑤ インドネシア国は動燃の技術力を高く評価しており、今後も本制度の基に技術協力を期待している。

以上

質 疑 応 答

Q-1 緑泥石と硫酸との反応により生成される物は何か。また浮選により緑泥石は除去できたのか。

A-1 生成物については、後ほど調べてお答えする。浮選による緑泥石の除去結果については、現在インドネシア国で分析中であり結果はまだ得られていない。

Q-2 経済性については、どのように考えているのか。

A-2 インドネシアはあまり経済性のことは考えていないようである。経済性よりは技術的な面での可能性を検討したい意向のようである。

(要望) 国際部は発展途上国に対する技術協力の在り方について、WGを作り方針を検討しその検討結果に基づき、部としての方針をまとめる計画である。WGに対し積極的に意見を提出して欲しい。今回のインドネシアの場合、技術指導内容を良く考え、経済的にも技術的にもあまり意味のない試験は実施しないほうが良いと考える。その場合には、相手国に対して提言し理解させる必要があると考える。

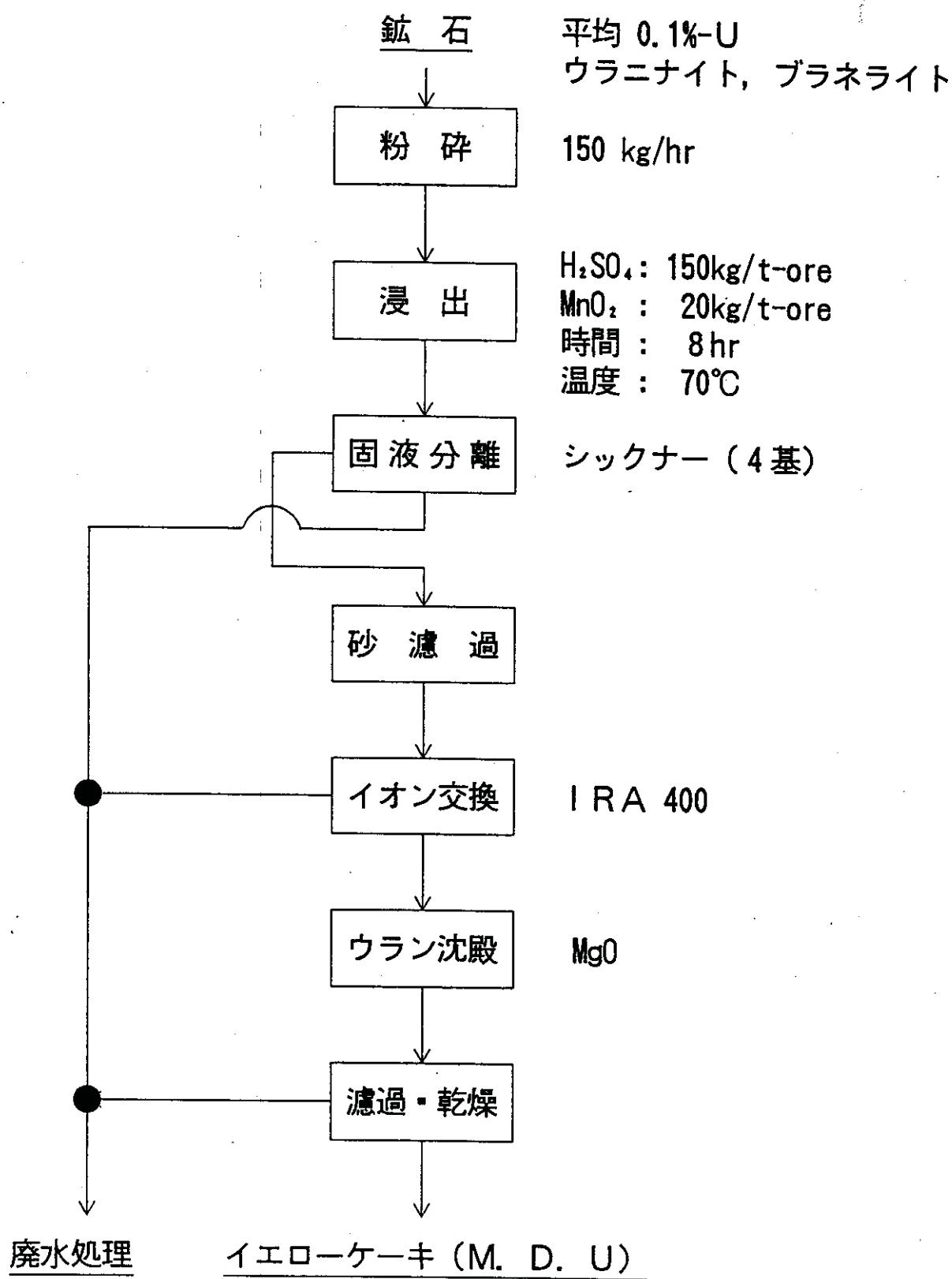


図-1 インドネシア、粗製錬パイロットプラントフローシート

1-3 不整合関連型ウラン鉱床からのウラン回収、処理技術開発

報告者 環境資源開発課

1. はじめに

動燃事業団が進めている海外ウラン探鉱で最も有望視されているカナダ、アサバスカ地方の不整合関連型ウラン鉱床の高品位ウラン鉱石には、砒素、ニッケル、モリブデン、ジルコニウム等の不純物元素が多く含まれている。一般的に硫酸浸出法では、ウラン浸出の際にこれら不純物元素も多く浸出するために、製錬所から出る廃水は化学沈殿法による処理が行われている。しかし、ウラン鉱山開発における環境規制は年々厳しくなる傾向にあり、従来の処理方法だけで対処していくことは困難なことが予想される。また、鉱石中には有価金属も含まれているが、ウランとの分離、精製技術が無いために副産物としての回収をあきらめ、鉱滓として処理している。

そこで、このような現状を踏まえ、鉱石中のウランと有価金属を回収する新しい処理プロセスを確立するための技術開発を行う。その一環として、吸着剤によるウラン溶液中のウランと高濃度不純物との分離試験を行い、有価金属を回収する処理プロセスの適用性を確認し、実用化への展開を図る。

今回は、イオン交換樹脂を用いた分離精製法として、市販樹脂によるウランとその他金属イオンとの分離性についてバッチ試験及び一部カラム試験を行ったのでその結果を報告する。また、本テーマは熊本大学と委託研究を結んでおり、その結果についても合わせて報告する。

2. 実施内容

- (1) 市販樹脂の選択
- (2) 市販樹脂によるスクリーニングテスト（バッチテスト）
- (3) 市販樹脂によるカラム試験
- (4) 熊本大学委託研究成果との比較検討

市販樹脂の選択にあたっては、過去に動燃で実施したウラン吸着試験結果を参考にした。ウランの吸着剤としてKEX-202、スマキレートMC-30、ダイヤイオンPA-318、デュオライトC-467を、モリブデンの吸着剤としてユニセレックUR-50、デュオライトCS-346を、ニッケルの吸着剤としてユニセレックUR-3700をそれぞれ選択した。

3. 試験条件と結果

- (1) バッチ試験

バッチ試験条件は、ミッドウェスト鉱石を硫酸で浸出した液（液組成を表一1に示す）を50mL使用し、樹脂量は1g（乾燥樹脂）用いた。ビーカーに樹脂を入れ、マグネットスターラーにより樹脂が浮遊する程度に24時間攪拌した。温度は常温で行った。試験液の分析は、イオン交換樹脂と接触させた後の液中の元素分析（U, Mo, Ni, As）を行って吸着容量を求めた。その結果を表一3に示す。

ウラン吸着に優れた樹脂としては、KEX-202, デュオライトC-467であるが、KEX-202がC-467に比べて、高い吸着容量を示していることが分かる。

砒素は殆どの樹脂に吸着されなかったが、若干量ユニセレックUR-3700に吸着がみられた。

ニッケルについては、唯一ユニセレックUR-3700に吸着がみられたが、吸着容量が小さいことから高濃度のニッケル吸着用樹脂としては適さないことが分かった。

モリブデンについては、デュオライトCS-346, ユニセレックUR-50が優れた吸着容量を示した。中でもユニセレックUR-50は、選択的にモリブデンを吸着することから、ウランとモリブデンを吸着する樹脂との組合せによって、ウランとモリブデンの分離精製に使用できると考えられる。

(2) カラム試験

バッチ試験結果から、カラム試験に使用する樹脂として、ウラン吸着容量の高かったKEX-202, デュオライトC-467の2点を選定してカラム試験を行った。

内径12mmのカラムにイオン交換樹脂2mL（湿潤樹脂）を充填し、試験液（ミッドウェスト鉱石を硫酸で浸出した液、液組成を表一2に示す）を通液速度SV=10で流し、試験温度は室温で行った。カラムを通過した液はフラクションコレクターにより連続採取し、各フラクション毎にウランとモリブデンの分析を行った。

デュオライトC-467のカラム試験結果を図一1に、KEX-202のカラム試験結果を図一2に示す。

グラフは、横軸に通液量をとり、縦軸はカラムを通過した浸出液中のウラン及びモリブデンの濃度を示す。横軸の立ち上がり点がリークポイントとなり、リークポイントの現れるベッド数が大きい程吸着性に優れ、また、通液曲線の傾きが小さいほど、吸着容量の高いことを示す。図から分かるように、KEX-202のほうがデュオライトC-467より優れた吸着容量を示した。

(3) 熊本大学で合成した新規樹脂と市販樹脂との比較

熊本大学で合成された樹脂は、RGP及びRCSPと命名され、RGPは磷酸型の樹脂であり、RCSPはホスホン酸基を有するキレート樹脂である。カラム試験は、表一2の浸出液組成と同様

のものを使用した。

ウランの吸着特性比較を図一3に、モリブデンの吸着特性比較を図一4に示す。図一3から、ウランの吸着能力は市販樹脂に比べてはるかにRGP及びRCSPが高いことが分かる。また、RCSP樹脂はRGP樹脂よりも吸着能力が高いことを示した。

モリブデンは、市販樹脂及び熊本大学で合成した樹脂とともに吸着することから、ウランとモリブデンの分離が今後の課題である。

4.まとめ

- (1) 7種類の市販樹脂によるパッチ試験の結果、ウランは強塩基性アニオン樹脂(KEX202)とアミノリン酸基を有するデュオライトC467が良く吸着することが分かった。
- (2) モリブデンは、ユニチカ製のジアミノカルボン酸型キレート樹脂が非常に選択性的に吸着することを確認した。
- (3) ニッケル、砒素はほとんど吸着されない。
- (4) 熊本大学で合成した樹脂でウランの吸着は、RGPよりもRCSPの方がより高い吸着容量を示し、モリブデンも吸着するがニッケル、砒素は吸着しないことが分かった。
- (5) ほぼ同じカラム試験条件下で、市販樹脂と熊本大学で合成した樹脂とのウラン吸着容量の比較を行ったところ、RCSP > RGP > KEX202 > C467であった。

5.今後の課題

- (1) ウランとモリブデンの分離条件の確立
- (2) ウランとモリブデンを吸着分離した後の、ニッケル、砒素を含む酸性溶液からのニッケルと砒素の分離回収方法の確立

以上

質疑応答

Q-1 樹脂のコストについてはどのように考えているのか。

A-1 熊本大学で新規に合成した樹脂は、特殊な樹脂ではなく用途もいろいろ考えられることから、市販されている塩基性イオン交換樹脂とあまり変わらない価格になると予想している。また、樹脂の評価については、ライフ試験を行った上で評価する計画である。

表一 1 バッチ試験通液中の主要成分

元素	含有量 (g/l)
U	4.984
As	0.185
Ni	1.983
Mo	1.000
F-SO ₄	51.4

表一 2 カラム試験通液中の主要成分

元素	含有量 (g/l)
U	2.35
As	8.96
Ni	5.39
Mo	0.246
F-SO ₄	43.1

表一 3 バッチ法による吸着試験結果

No.	樹脂名	化 学 性	吸着量 (g/L-Re)				備 考
			U	As	Ni	Mo	
1	ユニセレック UR-50	キレート樹脂 ポリフェノールホルマリン	N.D.	N.D.	N.D.	>9.0	ユニチカ
2	ユニセレック UR-3700	キレート樹脂	6.0	1.4	>7.4	N.D.	ユニチカ
3	デュオライト CS-346	キレート樹脂 第一級アミドオキシム基	3.3	N.D.	N.D.	10.2	ダイヤモンド シャムロック
4	デュオライト C-467	キレート樹脂 アミノリン酸基	>71.1	N.D.	N.D.	>3.7	ダイヤモンド シャムロック
5	KEX-202	キレート樹脂 3級アミン系	>124.3	N.D.	N.D.	>5.8	広栄化学
6	スミキレート MC-30	キレート樹脂 イミノジ酢酸基	>35.4	N.D.	N.D.	>6.8	住友化学
7	ダイヤイオン PA-318	キレート樹脂 スチレン系	>39.3	N.D.	N.D.	>4.6	三菱化成

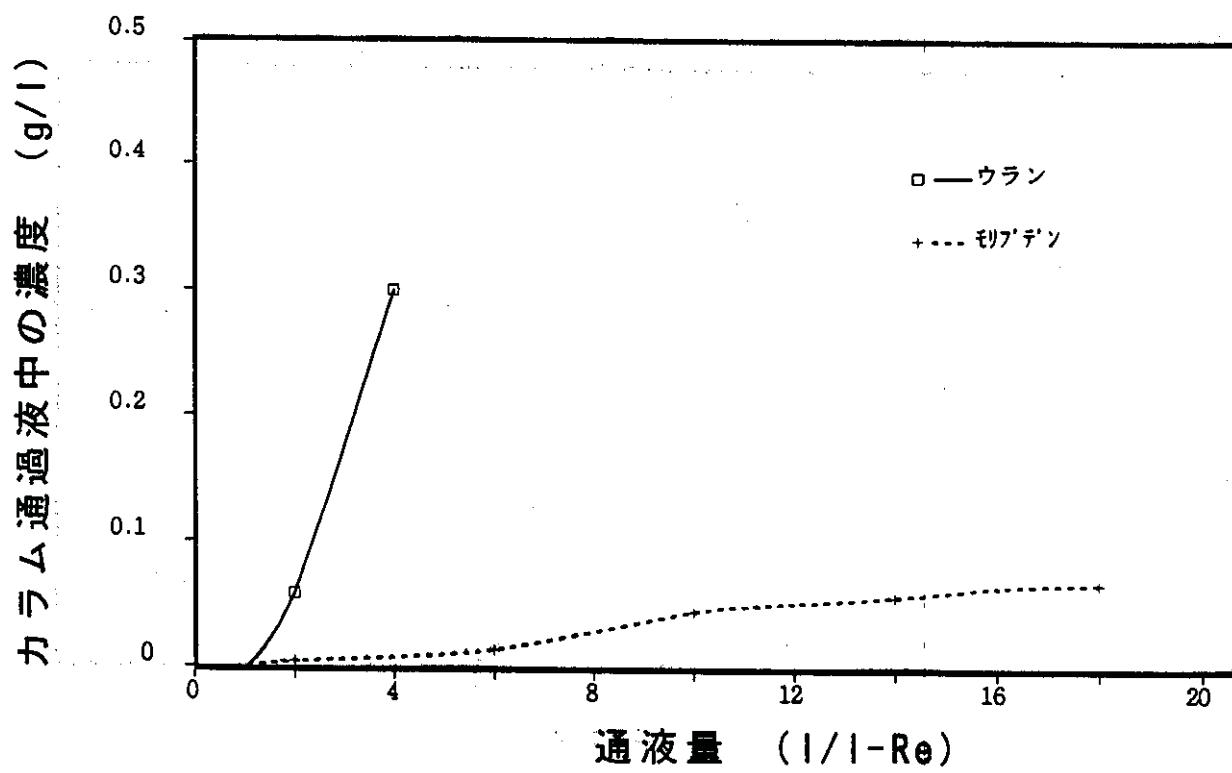


図-1 カラム試験結果 (樹脂名: デュオライトC-467)

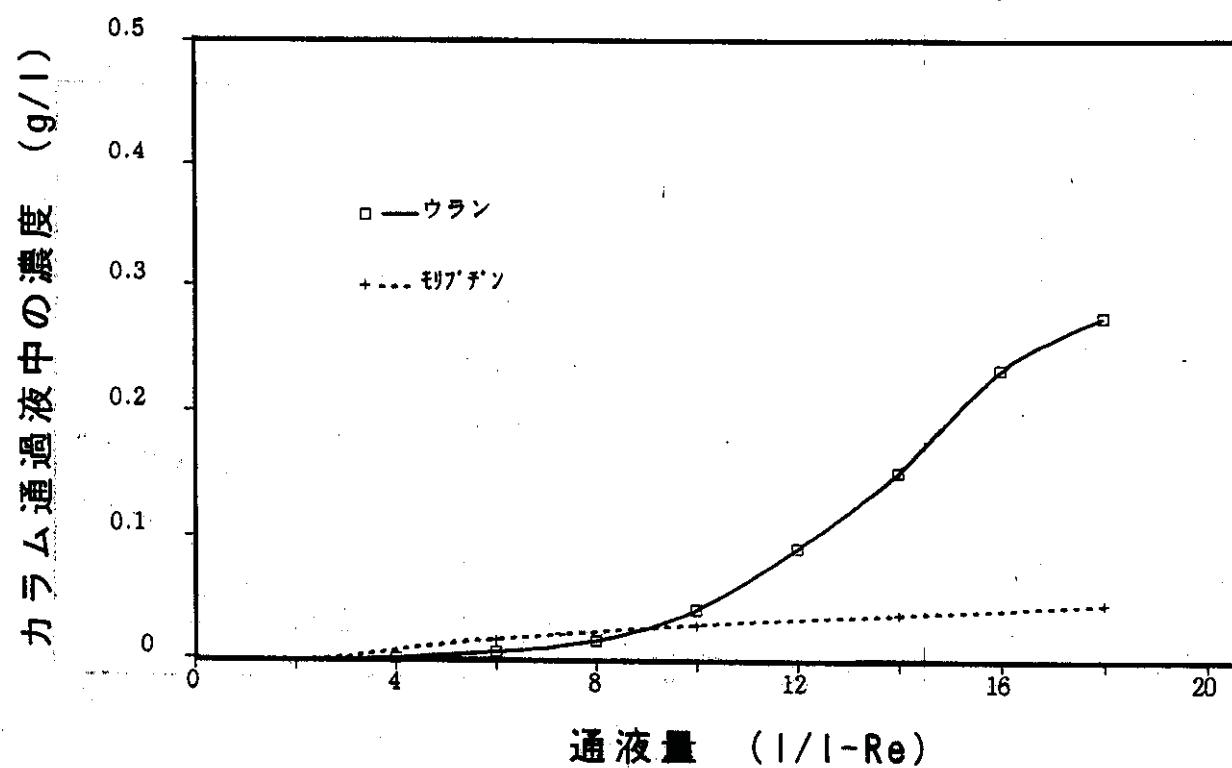
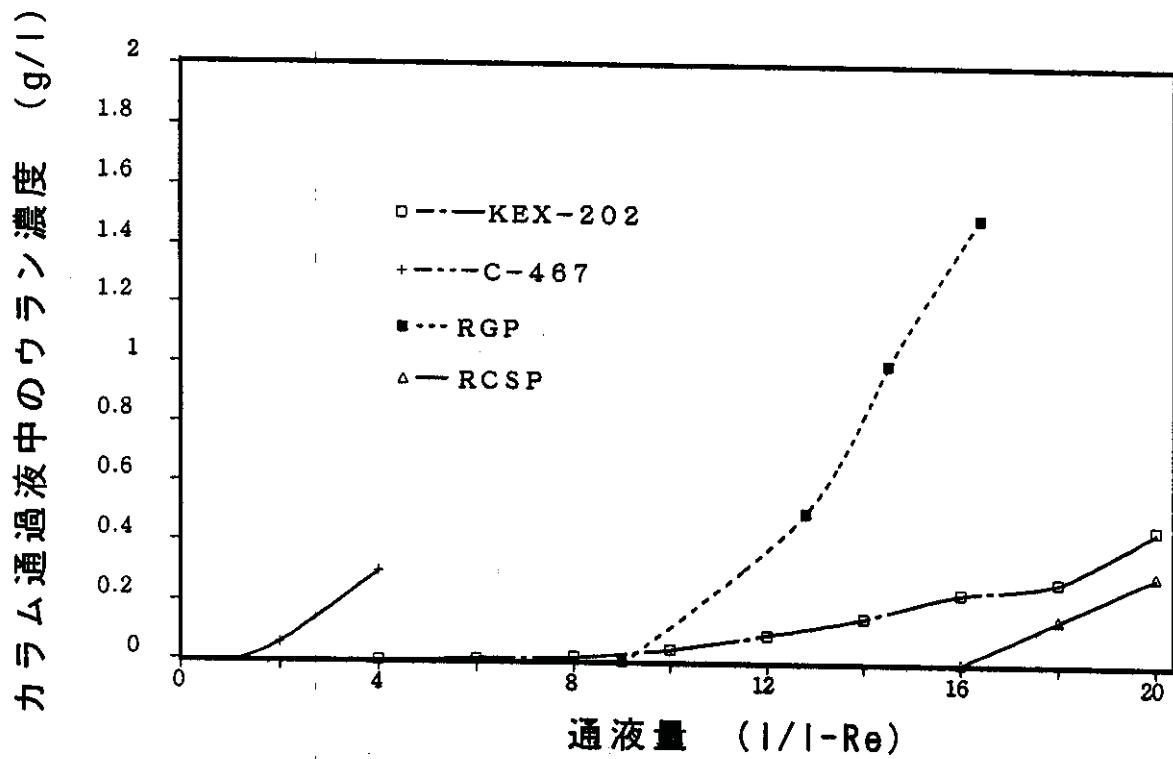
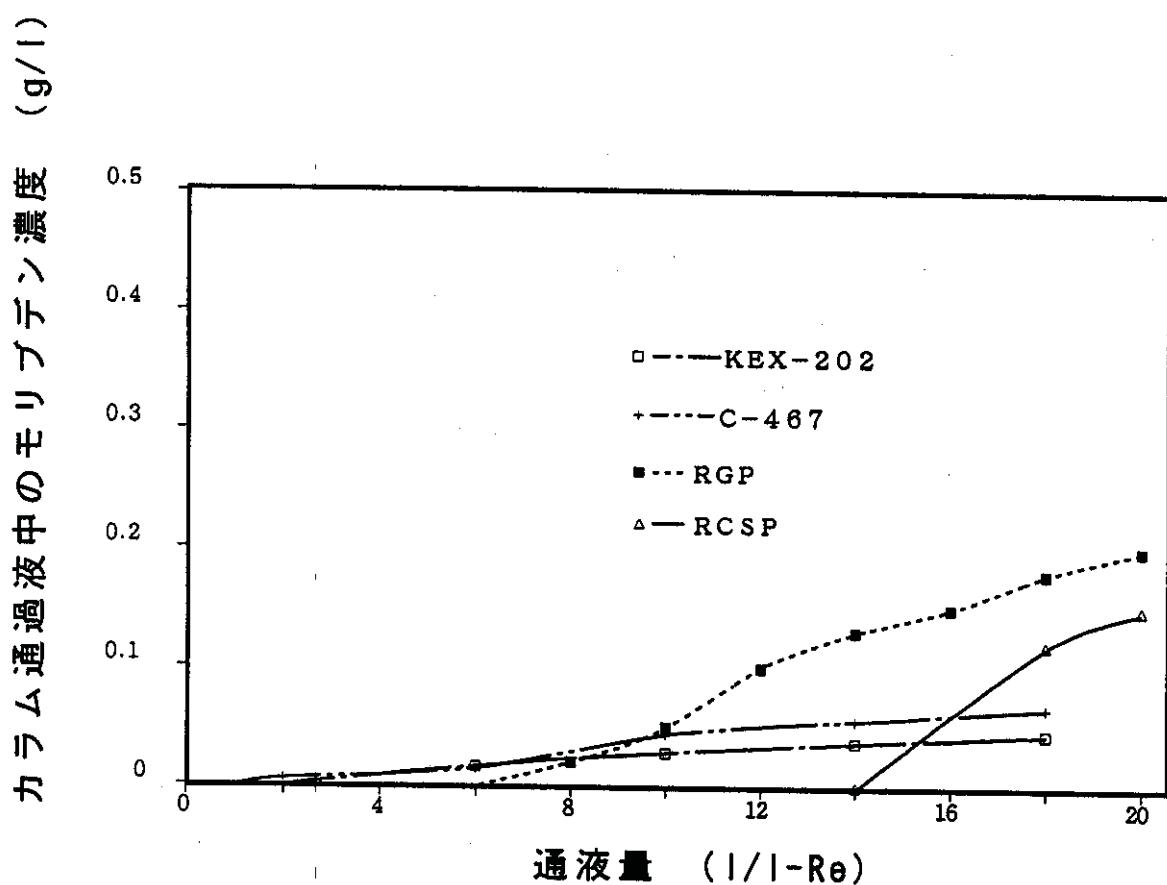


図-2 カラム試験結果 (樹脂名: KEX-202)



図一3 市販樹脂と熊本大学新規合成樹脂とのU吸着比較



図一4 市販樹脂と熊本大学新規合成樹脂とのMo吸着比較

1-4 過酸化水素によるイエローケーキ沈澱試験

報告者 環境資源開発課

1. はじめに

不整合関連型ウラン鉱床においては、ウランの他に、ニッケル、砒素、モリブデン、コバルトなどの元素を多く含有するために、これら不純物元素の存在はウランの精製とイエローケーキの製造工程を複雑化する。そこで、最近では、①非常に純度の高いイエローケーキが製造できる、②不純物をコントロールできる、③固液分離が容易である、等の理由から過酸化水素によるイエローケーキ製造法を現在いくつかの粗製錬所で採用している。今後、不純物含有量の多い鉱石の場合、過酸化水素によるイエローケーキ製造プロセスを採用する粗製錬所が多くなると予想されることから、経済性のある過酸化水素法の確立を目的に試験を開始した。

これまでに基礎的なデータの収集として、各種要因のウラン沈澱に与える影響を調査した。その結果、次のようなことが分かった。①初期pHの違いによるウラン回収率への影響はほとんどない、②目視観察から、初期pHは、イエローケーキの濾過性に影響を与える。③ウラン回収率を100%得る為には、過酸化水素添加量は理論量に対して151%添加する必要がある。

今回は、イエローケーキを製造する上での重要なパラメーターのうち、最終pH、反応時間、及び液中のAs濃度の影響について試験を行ったので、その結果について以下に述べる。

2. 試験方法

今回行った試験方法を図-1に示す。硫酸ウラニル溶液に、不純物元素として、砒素、モリブデン、ジルコニウム、バナジウムの分析試薬をそれぞれ添加し含ウラン模擬液を調整した。この濃度は、ミッドウェストプロジェクトで計画した溶媒抽出後の含ウラン逆抽出液の液組成とほぼ同じである。この硫酸ウラニル溶液50mlに酸化マグネシウムスラリーを添加して初期pH調整を行い、初期pHを調整した後、すばやく30%過酸化水素を添加する。pHを安定させるために15分間放置した。pHが安定した後、さらにマグネシウムスラリーを添加して、反応pHを調整した。次に、一定時間放置した後、最終pHをチェックし製造したイエローケーキをろ過した。ろ過後、0.2%過酸化水素50mlと純水で洗浄した。

0.2%過酸化水素で洗浄するのは、イエローケーキのコロイド状を防ぐため用いた。洗浄後イエローケーキを乾燥しイエローケーキ及び洗浄液中のウラン、砒素、モリブデン、マグネシウムの分析を行い、各元素の挙動を調査した。

3. 結果、及び考察

3-1 最終pHの影響調査

反応条件のうち、初期pH2.0、過酸化水素添加量151%、反応時間1h、温度は常温に固定し、最終pHを変えて試験を行った時のイエローケーキ中の各元素の挙動を調査した。まず、ウラン回収率の結果を図-2に示す。ウランの回収率は、イエローケーキ中のウラン量と濾紙、及びブナロートに付着しているイエローケーキ中のウラン量の和を硫酸ウラニル溶液中のウラン量で除して算出した。最終pH2.7から3.5までは、最終pHが高くなるに従ってウラン回収率も高くなる。そして、最終pH3.5以上になるとウランの回収率は、ほぼ100%となった。

次に、イエローケーキ中の不純物元素を分析した結果を図-3に示す。イエローケーキ中の各元素の品位は対U%で示し、カナダの転換工場、CAMECOの受入れスペック値と比較した。図中には、マグネシウムの受入れスペックを示していないが、マグネシウムの受入れスペックは対U%で3である。

イエローケーキ中の砒素、マグネシウムは最終pHが高くなるにつれて濃度も高くなるが、受入れスペックは充分クリヤーしている。

イエローケーキ中のモリブデンは分析の検出限界値以下であり、モリブデンはイエローケーキ中には、殆ど含まれない。

以上の試験結果から、ウランを100%回収し、転換工場の受入れスペックをクリヤーできるイエローケーキを得るためには最終pHを、3.5以上に保持しなければならない。

3-2 反応時間の影響調査

反応条件のうち、初期pH2.0、過酸化水素添加量151%、反応pH3.5、温度は常温に固定し、反応時間を変えて試験を行った時のイエローケーキ中の各元素の挙動を調査した。まず、ウラン回収率の結果を図-4に示す。

図からも分かるように、反応時間を0.25から2.0hと変えても、ウランはほぼ100%回収されている。

次に、イエローケーキ中の不純物元素を分析した結果を図-5に示す。イエローケーキ中の各元素は対U%の値である。イエローケーキ中の砒素、マグネシウムは反応時間が長くなるにつれて砒素、マグネシウムともに含有量は低くなる。しかし、反応時間0.25hでは砒素の対U%は受入れスペックをクリヤーできないが、反応時間0.5h以上であればスペックをクリヤーできる。又、イエローケーキ中のモリブデン、マグネシウムは受入れスペック

クを充分クリヤーしている。

反応時間が長くなるにつれて、イエローケーキ中の不純物元素の濃度が低くなる原因としては、反応時間がイエローケーキ生成時の粒径に影響を与え、その結果不純物元素がイエローケーキに巻き込まれにくくなつたためと推察される。今後、生成したイエローケーキの物性を調査し、原因を明らかにしていきたいと考えている。

以上の試験結果から、ウランを100%回収し受入れスペックをクリヤーできるイエローケーキを得るための反応時間は、0.5h以上あれば充分であることが分かった。

3-3 模擬液中の砒素濃度の影響調査

反応条件のうち、初期pH2.0、過酸化水素添加量151%，反応pH3.5、反応時間2h、温度は常温に固定し、模擬液中の砒素濃度を変えてイエローケーキ中の各元素の挙動を調査した結果を図-6に示す。図から分かるように、模擬液中の砒素濃度が高くなるにつれてイエローケーキ中の砒素濃度も高くなり、模擬液中に砒素濃度1.886g/l以上含まれると、砒素の対U%は転換工場CAMECOスペックをクリヤーできなくなつた。イエローケーキ中のモリブデン、マグネシウムは転換工場CAMECOスペックを充分クリヤーしている。

4.まとめ

- (1) 最終pH3.5以上であればウランは100%回収され、イエローケーキ中の砒素、モリブデンは転換工場の受入れスペックを充分許容する。
- (2) 反応時間は0.5h以上であればウランは100%回収され、イエローケーキ中の砒素、モリブデンは転換工場の受入れスペックを充分許容する。
- (3) 粒度を0.166g/lから1.886g/lに変えて試験した結果、ウランは100%回収されるが転換工場の受入れスペックを許容するためには、液中の砒素濃度は0.836g/l以下にコントロールしなければならない。

5.今後の課題

- (1) 実液によるイエローケーキ製造条件の設定、及びイエローケーキ中の各元素の挙動調査
- (2) イエローケーキの物性調査
- (3) イエローケーキの濾過特性調査

以上

質 疑 応 答

Q—1 現在、取り組んでいる過酸化水素法は、世界の精練所で採用されている手法と異なるのか。

A—1 手法的には違いはない。我々は過酸化水素法について技術を有していないこともあり、基礎的データの蓄積を目的に試験を行っている。その上で、コスト低減化に向けた沈殿プロセスを検討していきたいと考えている。

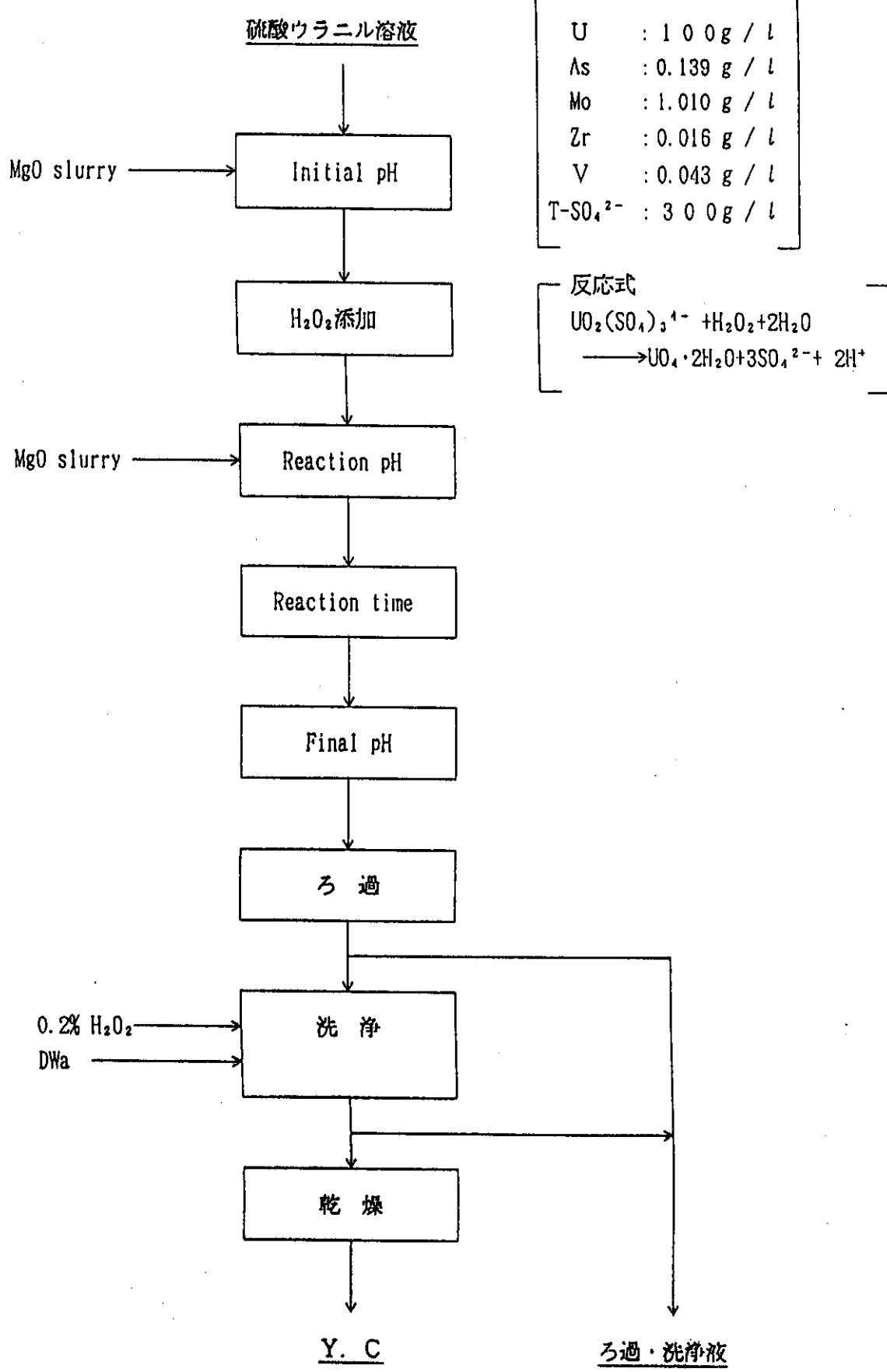
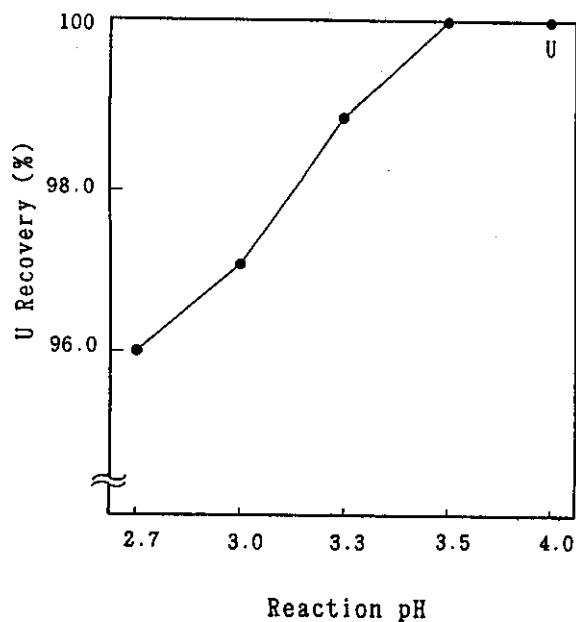
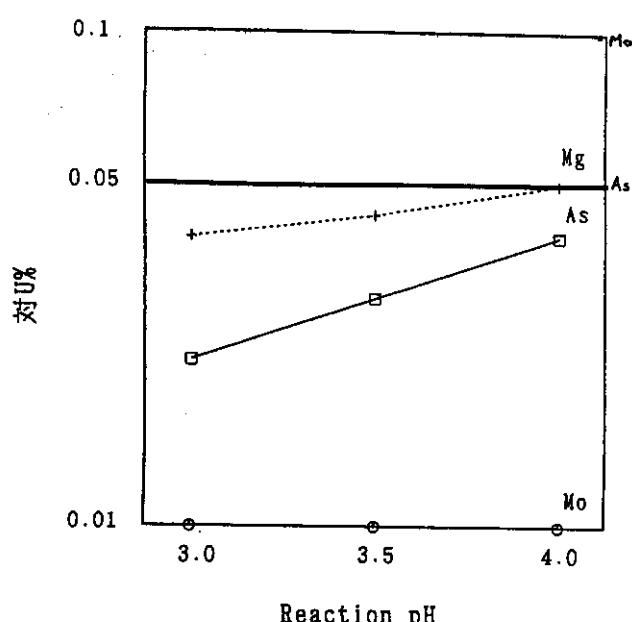


図-1 イエローケーキ沈殿試験フローチャート



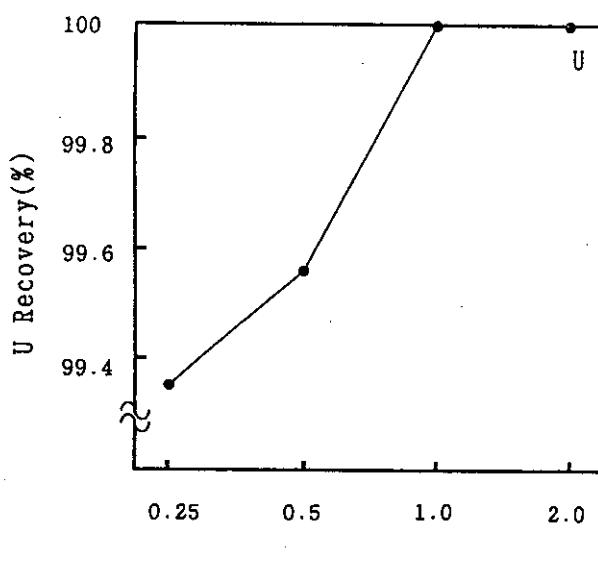
$H_2O_2-g/U-g:0.236$ Initial pH:2.0
Reaction time:1h Temperature:Ambient

図-2 U回収率



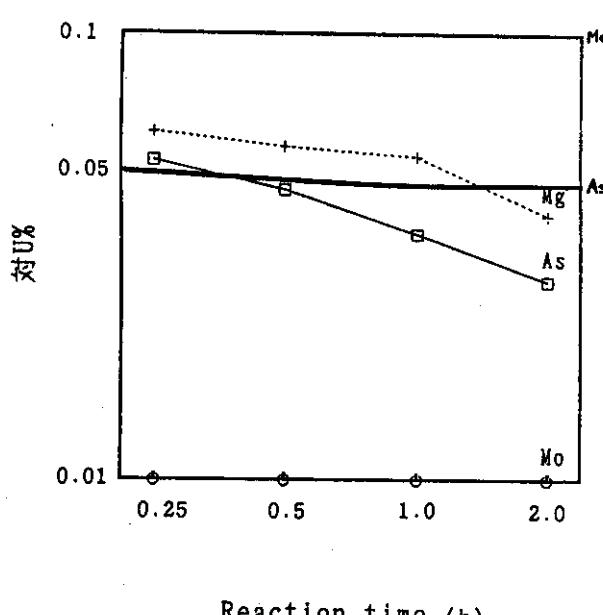
$H_2O_2-g/U-g:0.236$ Initial pH:2.0
Reaction time:1h Temperature:Ambient

図-3 最終pHの影響



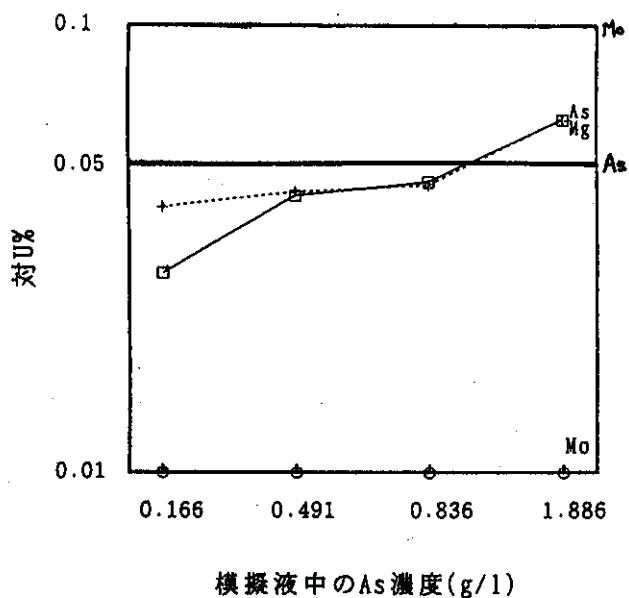
Initial pH:2.0 $H_2O_2-g/U-g:0.236$
Reaction pH:3.5 Temperature:Ambient

図-4 U回収率



Initial pH:2.0 $H_2O_2-g/U-g:0.236$
Reaction pH:3.5 Temperature:Ambient

図-5 反応時間の影響



Initial pH: 2.0 H₂O₂-g/U-g: 0.236
 Reaction pH: 3.5 Reaction time: 2.0h
 Temperature: Ambient

図-6 模擬液中のAs濃度の影響

1-5 イオン交換樹脂による砒素(As)分析法の確立

報告者 環境資源開発課

1. はじめに

不整合関連型ウラン鉱床には、ウランの他にニッケル、砒素等の不純物を多く含有し、ウラン浸出の際これら不純物も多量に溶解する。砒素分析法としては重量法、容量法、吸光光度法、原子吸光法、ポーラロ法等があり、それぞれの多くの分析法が報告されている。しかし、対象とする試料中の砒素濃度は0.X%～数%と広い範囲に及ぶ為、低濃度域では吸光光度法、高濃度域においては容量法のいずれかを適用している。このような広い濃度範囲の分析を行う場合、同一の分析法では、例えば吸光光度法で高濃度域分析を行う場合希釈倍率誤差が、また一方容量法においては低濃度域分析では適定量が少なくなるため分析精度面に問題がある。

そこで本試験では、陽イオン交換樹脂を用いて妨害元素から砒素を分離し、容量法にて低濃度から高濃度の砒素を簡便迅速に定量できる分析方法と、合わせて浸出液中のAs(III)とAs(V)の定量法を確立した。その結果について以下に述べる。

2. 試験目的

- (1) 鉱石等の砒素含有量、0.X%～数%に適した分析法の開発
- (2) 液中のAs(III)とAs(V)の分別定量法の開発

3. 検討項目

- (1) 鉱石試料の分解方法
- (2) 妨害元素との分離方法
- (3) 砒素の酸化剤と過剰分の酸化剤分解方法
- (4) 滴定時の塩酸濃度の影響
- (5) As(V)とようかカリウムとの反応時間
- (6) 定量下限と分析精度
- (7) 陽イオン交換樹脂の再生方法

4. 結果および考察

4-1 鉱石試料の分解方法

鉱石の分解方法は、王水と過塩素酸を用いれば可能であることが分かった。

4-2 妨害元素との分離方法

(1) 妨害元素の調査

表-1は、強塩酸溶液中でようかカリウムと反応して、沃素を遊離する妨害元素を調べた結果である。ようかカリウムと反応する妨害元素は、Cu, Fe, Se, Te, Sb⁺⁶, H₂O₂であることが分かった。

(2) 陽イオン交換樹脂分離試験結果

表-2は、陽イオン交換樹脂を用いて、砒素と陽イオン妨害元素との分離試験を行った結果である。

使用した樹脂は、アンバーライト (IR-120) とダウエックス (50W-X8) を1:1に混合して用い、試料原液の硫酸濃度を0.3~0.7Nと変化させて、樹脂通過液中の各元素を調べた。

この結果から、各元素ともMoを除いて完全に吸着除去されていることがわかる (Moは妨害元素でないことから、除去する必要はない)。

Se, Te, Au等の陰イオン系妨害元素は文献調査した結果、塩酸ヒドロキシルアミン、チオ尿素等の還元剤を用いることにより沈殿除去出来ることがわかった。

4-3 砒素の酸化剤と過剰分の酸化剤分解方法

(1) 還元剤による5価砒素イオンへの影響調査

表-3は、Se, Te, Au等を分離するため、還元剤として用いた塩酸ヒドロキシルアミン、チオ尿素による5価砒素イオンの還元の影響を調べたものである。

この表からわかるように、両還元剤とも5価砒素を3価砒素に還元することがわかった。

従って、イオン交換前に酸化剤を用いて砒素を5価に酸化しておかなければならぬことがわかる。

(2) 砒素の酸化剤と還元剤

砒素を5価に完全酸化するため酸化剤としてKMnO₄と臭素水を用いたのち、過剰の酸化剤を分解するため、還元剤として硫酸第一鉄アンモニウムと過酸化水素水を用いて砒素検出量に与える影響を調べた結果を表-4に示す。

この表からわかるように酸化剤としてKMnO₄、臭素水の何れを用いても良いが過マンガン酸イオン色の方が酸化状態を判定し易い。硫酸第一鉄アンモニウムは5価砒素を還元することなく過剰の酸化剤のみを還元できる。しかし、KMnO₄の還元剤としての過

酸化水素はブランク値が大きく誤差を生じやすい。

(3) 硫酸第一鉄アンモニウムのAs (V) の還元に与える影響

表一5は、硫酸第一鉄アンモニウム溶液(16%)添加量と放置時間を変化させてAs(V)検出量に与える影響を調べた結果である。検出As (mg) からもわかるように硫酸第一鉄アンモニウム溶液はAs (V) に対して還元力はなく、放置時間の影響も全く無いことがわかった。なお、生成した硫酸第二鉄と過剰の硫酸第一鉄は、陽イオン交換樹脂で除去出来るため問題はない。

4-4 滴定時の塩酸濃度の影響

表一6は、As (V) とようかカリウムとの反応時の最適塩酸濃度を調査するため、塩酸濃度を1N～6N変化させてAs(V)検出量を調べた結果である。塩酸濃度1～3Nでは沃素の遊離が不完全で、As (V) 検出量が悪く終点も不明瞭である。一方、塩酸濃度4～6Nでは沃素の遊離は完全でAs (V) 検出量が良く、終点も明瞭であることがわかる。

4-5 As (V) とようかカリウムとの反応時間

表一7に、6N塩酸溶液中でようかカリウムとAs (V) との反応時間の影響を調査した結果を示す。ようかカリウムを添加直後から120秒間まで反応させて、As (V) 検出量をみたが、As (V) はようかカリウムとただちに反応して沃素を遊離することがわかった。したがって、滴定直前にようかカリウムを添加すれば良いことを確認した。

5. 確立した鉱石中の砒素分析方法

図一1に確立した鉱石中の砒素分析方法のフローチャートを示す。また、図一2に液中のAs (III) とAs (V) の分別定量のフローチャートを示す。

6. まとめ

- (1) 鉱石（岩石）の分解は王水と過塩素酸で処理可能
- (2) 共存する陽イオン系妨害元素は陽イオン交換樹脂により分離可能
- (3) 陰イオン系妨害元素は文献等の調査から、還元剤として塩酸ヒドロキシルアミン等を用いることにより分離できる。
- (4) 砒素の酸化剤としては、過マンガン酸カリウム又は臭素水が最適である。
- (5) 過剰分の酸化剤の分解には、硫酸第一鉄塩によりAs (V) を還元することなく行なえる。
- (6) 浸出液中のAs (III) は、陽イオン交換樹脂で妨害元素を除去することにより定量できる。

(7) 浸出液中のAs (V) は滴定により全As量を求め、全As量からAs (III) を差し引くことにより求めることが可能。

(8) 定量下限と分析精度

As 含有量	0.1~1 %	CV < 5 %
	1 ~ 3 %	CV < 2 %
	3 %以上	CV < 0.5

(9) 陽イオン交換樹脂の再生方法

陽イオン交換樹脂の再生方法としては、約3N塩酸で容易に再生できる。但し鉛、銀が吸着している場合は塩酸による難溶性塩の析出を防止するため、塩酸再生の前に稀硝酸を用いて溶出させて行う。

以上

表-1 強塩酸々生でようかカリウムと反応する元素

元素名	判 定	元素名	判 定	元素名	判 定	元素名	判 定
Cu	○	Co	×	Ag	△	Hg	△
Pb	×	Fe	Fe ⁺² × Fe ⁺³ ○	Au	○	Mn	×
Zn	×	Se	○	Bi	×	H ₂ O ₂	○
Cd	×	Te	○	Sb	Sb ⁺³ × Sb ⁺⁶ ○	U	×
Sn	Sn ⁺² × Sn ⁺⁴ △	Ca	×	NO ₃ -	×	Mo	×
Ni	×	Mg	×	HClO ₄ -	×	Zr	×

○印：よう素を遊離 △印：非常に暖慢なもの ×印：よう素を遊離しないもの

表-2 陽イオン交換樹脂分離実験結果

成 分 硫酸濃度	通過液中の各元素の検出量 (mg)													
	Ca	Fe ⁺²	Fe ⁺³	Zn	Mn	Sn	Sb ⁺⁶	Ni	Co	Pb	U	Mo	Zr	
原 液	300	100	100	100	10	10	20	100	10	100	100	10	5	
樹脂 通過 液	H ₂ SO ₄ 0.7N	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	—	0.0	3.3	0.0	
	0.5N	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	—	0.0	3.1	0.0	
	0.3N	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	—	0.0	2.8	0.0	

樹脂名：アンバーライトIR-120B (50~100メッシュ)

ダウエックス 50W×8 (50~100メッシュ)

混合割合 1 : 1

表-3 還元剤による5価砒素イオンの還元への影響

還元剤	As ⁺⁵ 添加mg	還元剤(1%)溶液 添加量ml	還元剤添加後の溶 液中のAs ⁺⁵ mg
チ オ 尿 素	25.0	0	25.14
	25.0	0.5	22.56
	25.0	1.0	20.41
	25.0	2.0	12.03
	25.0	4.0	9.20
塩 酸 ヒ ド ロ キ シ ル ア ミ ン	25.0	0	23.55
	25.0	0.5	17.21
	25.0	1.0	10.82
	25.0	2.0	5.11
	25.0	4.0	1.63

表-4 砒素の酸化剤と還元剤

As mg	酸化剤 の種類	還元剤	N/20 Na ₂ S ₂ O ₃ 溶液滴定 ml	補正後のN/20 Na ₂ S ₂ O ₃ 溶液ml	検出As mg
0	KMnO ₄	FeSO ₄	0.20	—	—
		(NH ₄) ₂ SO ₄	0.15	—	—
30.0	KMnO ₄	FeSO ₄	14.00	13.825	30.4
		(NH ₄) ₂ SO ₄	14.05	13.875	30.5
0	KMnO ₄	H ₂ O ₂	0.75	—	—
			1.05	—	—
30.0	KMnO ₄	H ₂ O ₂	15.00	14.20	31.2
			15.20	14.40	31.7
0	臭素水	FeSO ₄	1.00	—	—
		(NH ₄) ₂ SO ₄	0.80	—	—
30.0	臭素水	FeSO ₄	14.90	14.00	30.8
		(NH ₄) ₂ SO ₄	14.80	13.90	30.6

表—5 硫酸第1鉄アンモニウムのAs (V) の還元

添加 As ⁺⁵ mg	FeSO ₄ (NH ₄) ₂ SO ₄ 16%溶液 ml	還元剤添加後の 放 置 時 間 分	検出As mg	
			滴定 ml	As mg
20.0	3.0	0	9.45	20.3
	5.0	0	9.60	20.7
	10.0	0	9.70	20.9
20.0	3.0	2	9.70	20.9
	5.0	0	9.60	20.7
	10.0	2	9.70	20.9
20.0	3.0	5	9.60	20.7
	5.0	5	9.65	20.8
	10.0	5	9.60	20.7
20.0	3.0	10	9.50	20.5
	5.0	10	9.65	20.8
	10.0	10	9.50	20.5
20.0	3.0	20	9.60	20.7
	5.0	20	9.60	20.7
	10.0	20	9.60	20.7

表-6 5価砒素とようかカリウムの反応時の塩酸濃度の影響

塩酸濃度	添加 As ⁺⁵ mg	N/20 Na ₂ S ₂ O ₃ 溶液 ml	N/20 Na ₂ S ₂ O ₃ 溶液空試験 ml	検出 As mg	備考
1 N	50.0	8.30	0.15	17.7	終点不明瞭
		7.60		16.2	終点不明瞭
2 N	50.0	19.20	0.25	41.2	終点不明瞭
		16.70		35.8	終点不明瞭
3 N	50.0	21.75	0.25	46.7	終点不明瞭
		21.80		46.8	終点不明瞭
4 N	50.0	23.30	0.30	50.0	終点明瞭
		23.50		50.4	終点明瞭
5 N	50.0	23.40	0.30	50.2	終点明瞭
		23.35		50.1	終点明瞭
6 N	50.0	23.40	0.30	50.2	終点明瞭
		23.30		50.0	終点明瞭

表-7 ようかカリウムによる5価砒素の反応時間(6 N 塩酸, 酸性)

添 加 As ⁺⁵ mg	反応時間 秒	N/20 Na ₂ S ₂ O ₃ 溶液 ml	N/20 Na ₂ S ₂ O ₃ 溶液空試験 ml	検出 As mg
30.0	直後	13.80	0.20	29.9
		13.80		29.9
30.0	5	13.70	0.20	29.7
		13.60		29.5
30.0	10	13.60	0.20	29.5
		13.60		29.5
30.0	30	14.00	0.20	30.3
		14.00		30.3
30.0	60	14.05	0.30	30.2
		14.20		30.6
30.0	120	14.20	0.30	30.6
		14.20		30.6

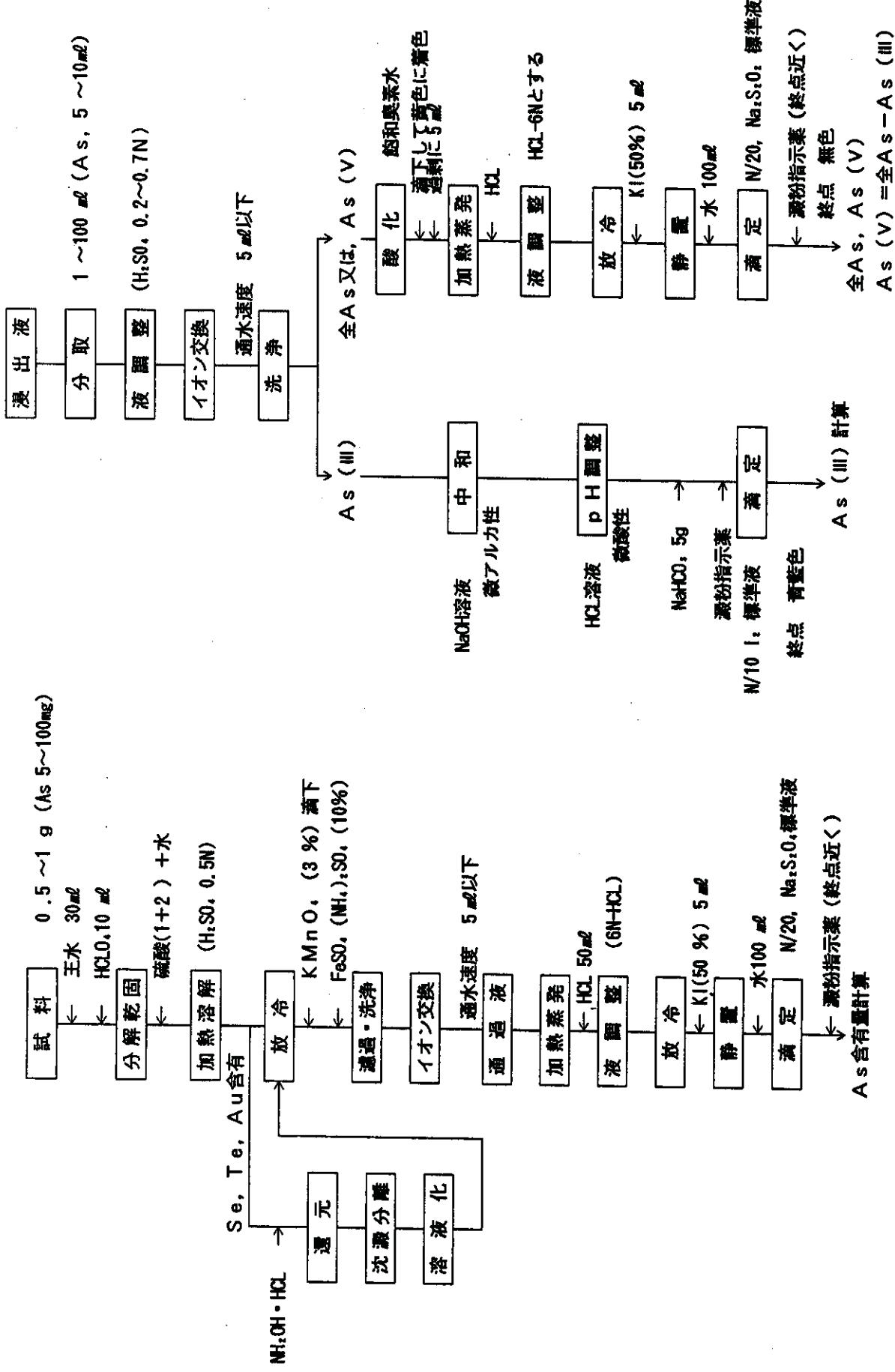


図-1 確立した鉱石(岩石)中の元素分析法

図-2 浸出液中のAs(III), As(V)分析

1 - 7 THE MINERALOGICAL STUDY CONCERNING GENESIS OF URANIUM DEPOSITS OF TONO MINE, JAPAN

WANG SHOUCHUN

Waste Isolation and Ore Processing
Technology Development Section

1 . INTRODUCTION

About the resources of uranium and genesis of uranium deposits of Tono mine (Fig. 1), comprehensive researches have been done, but efficient evidences are essential. This study is aimed to verify the emigration of uranium from Toki granite basement and deduce the genesis of uranium deposits from the point of minerals and their genesis.

2 . SAMPLES

A set of core samples from Tsukiyoshi deposit, with uranium slightly mineralized (the maximum 280 ppm) (Fig. 2), and a ore sample are systematically studied.

3 . PRINCIPAL RESULTS

A . Geochemical Study

The uranium anomalies occur mainly in granite and in the lower member of Toki formations. Mineralized granites contain anomalous amounts of Zr and Y, in some forms of hydrous zirconium oxide. Uranium scatters in biotite, accessory minerals and pyrite. In Mizunami group the characteristic minerals associated with uranium mineralization are smectite and zeolite. Accessory minerals of granitic origin occur exclusively.

B . Mineralogical Study

In biotite, a lot of uranium-bearing accessory minerals, such as zircon, monazite, xenotime and allanite have been found structurally destroyed (Fig. 3 and 4), especially metamicted zircon, from which U has been liberated during the alteration of biotite into chlorite and sphene. In biotite from ores, Large amounts of granular, star-shaped and spindle-shaped crystals of coffinite are discovered in accretionary masses on the (001) planes of biotite (Fig. 5) accompanied by pyrite, calcite, feldspar and clay minerals. In both crystalline and frambooidal pyrites, as well as around pyrite grains coffinite and

uraninite are often identified (Fig. 6). Uranium minerals and pyrite perhaps precipitated at the same time or later under reducing environments. In calcite veins, uranium and thorium-bearing supergene monazites have been revealed (Fig. 7).

4. DISCUSSION

Through the research, it can be concluded that Toki biotite granites have provided considerable uranium. Ground water and reducing agent-riched Toki lignite-bearing formations have played important roles in the formation of uranium deposits. But the mechanisms of absorption and migration of uranium by zeolite and ground water are still remained to be studied further.

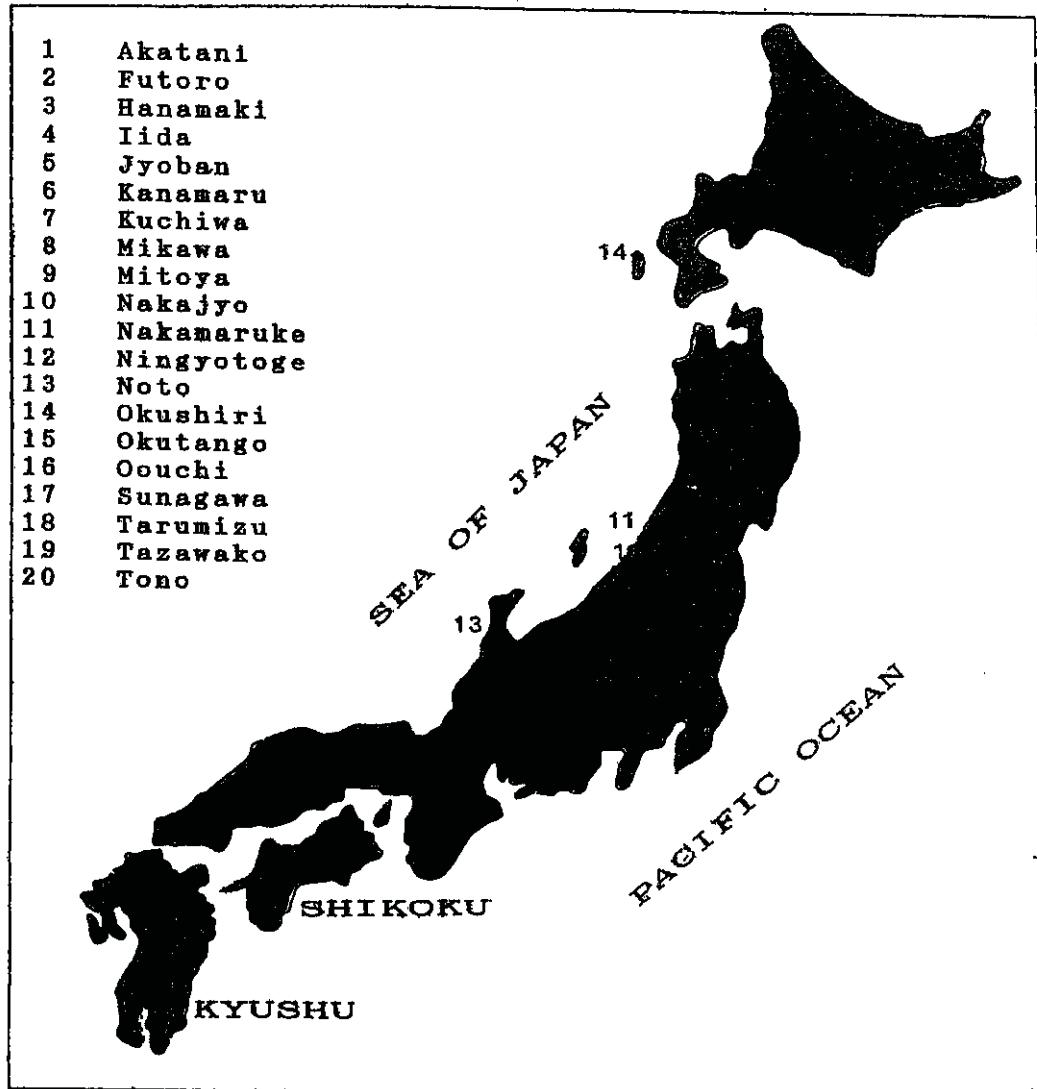


Fig. 1 Uranium are deposits in Neogene sediments in Japan.
 (According to K. Doi, 1975)

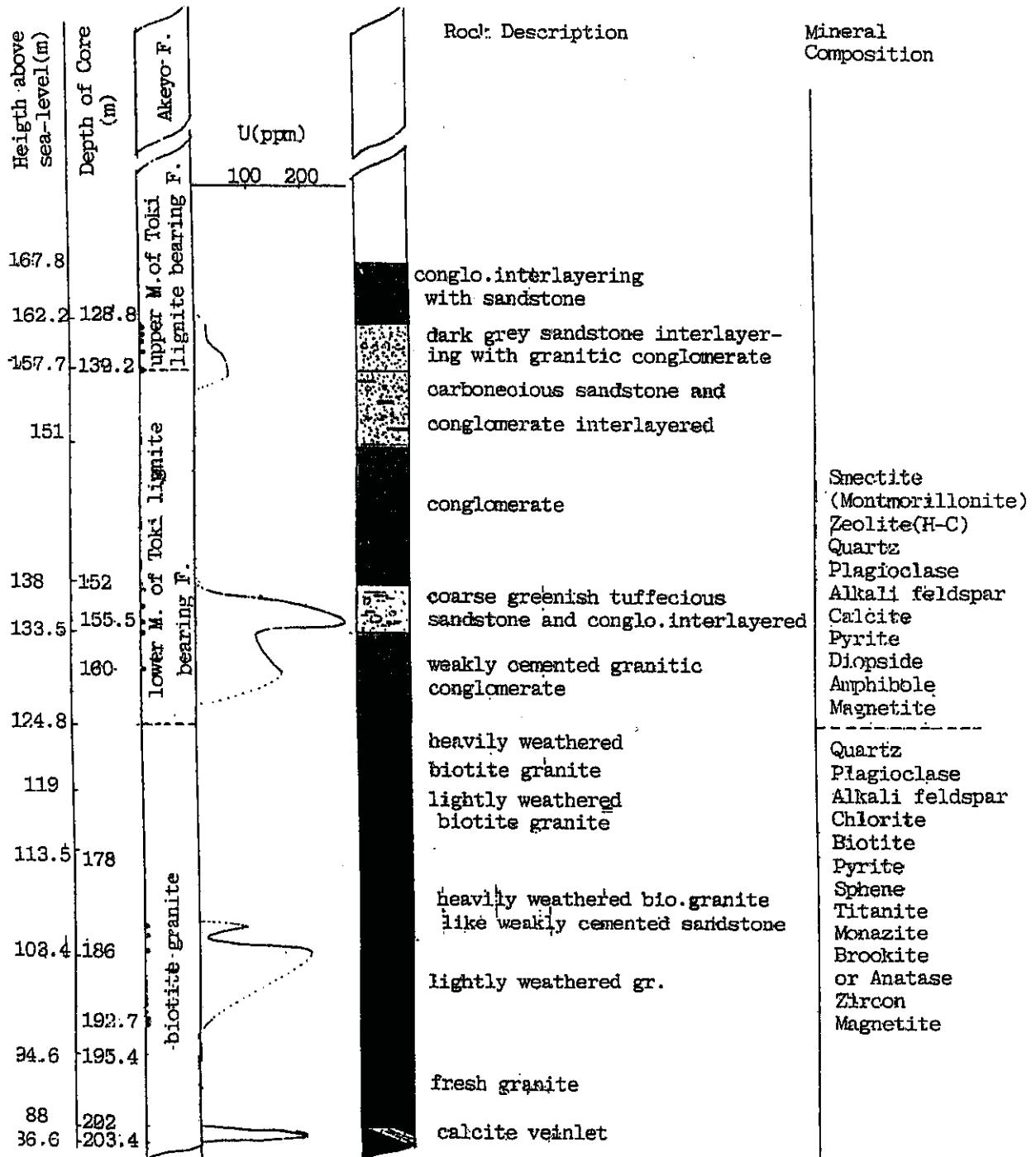


Fig. 2 TH5 COMPREHENSIVE DIAGRAM

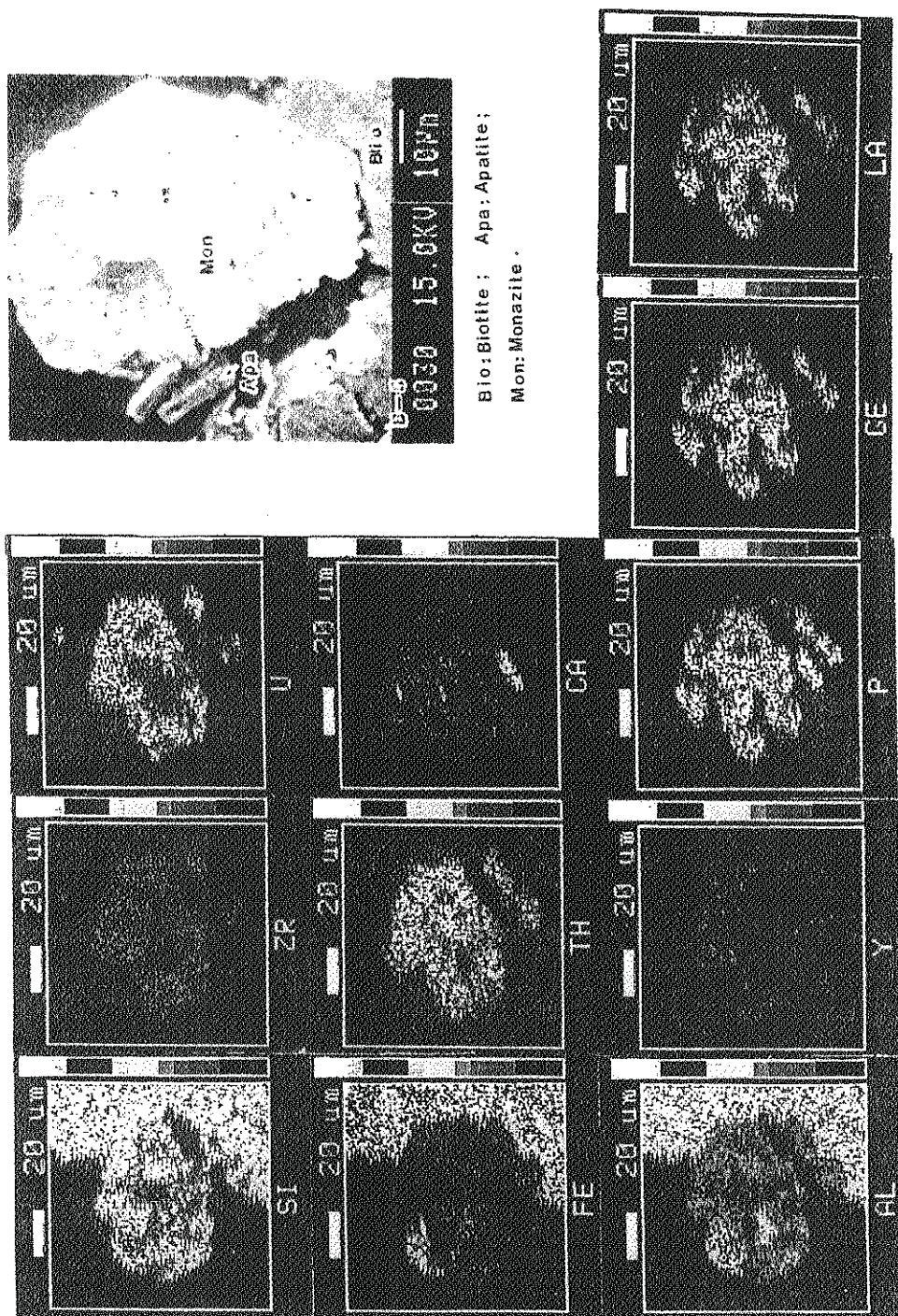


Fig. 3 The qualitative composition mapping of accessory minerals [monazite (Mon), matamicted zircon (Zir)] in biotite (Bio). Apatite (Apa) is common in Biotite.

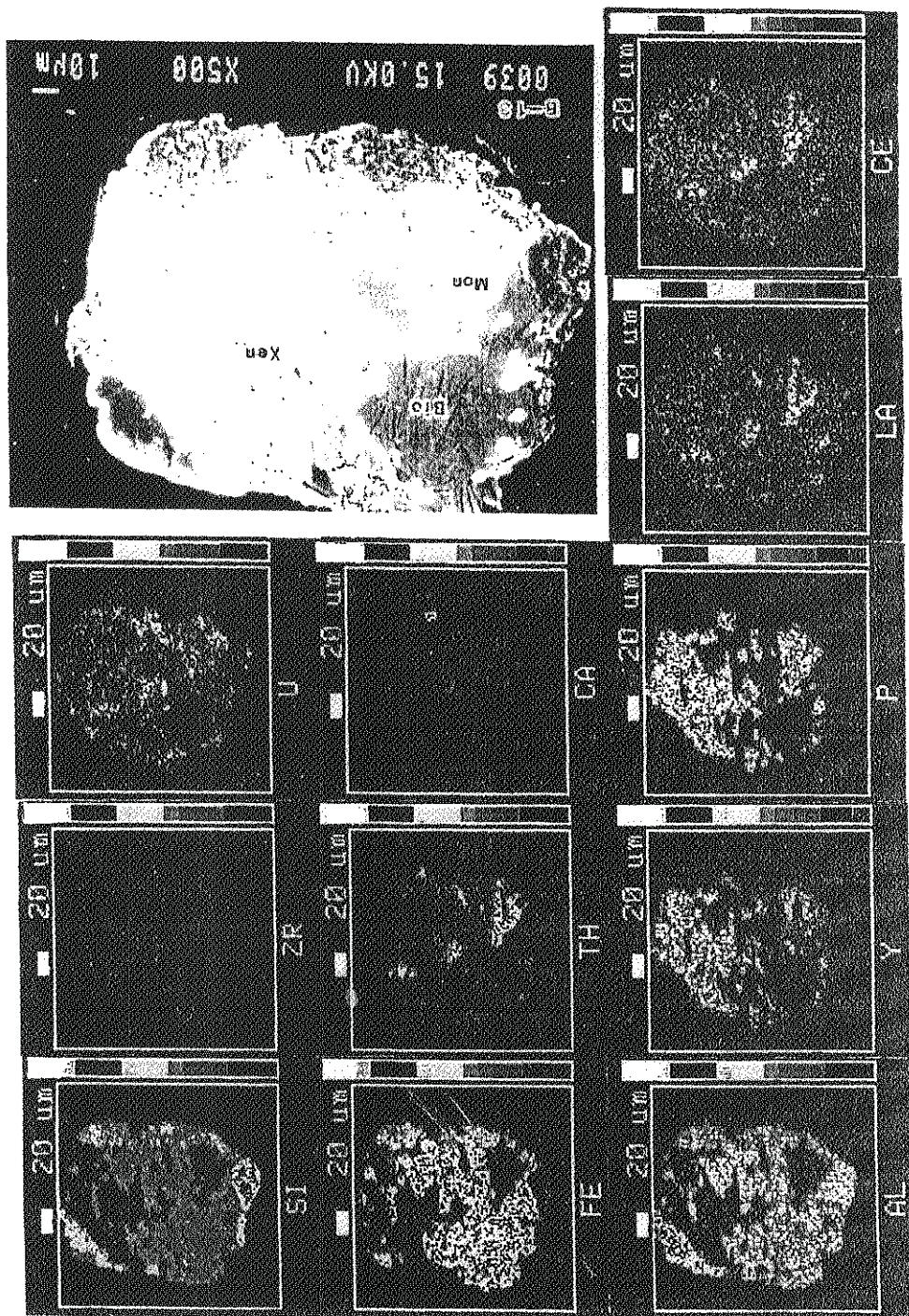
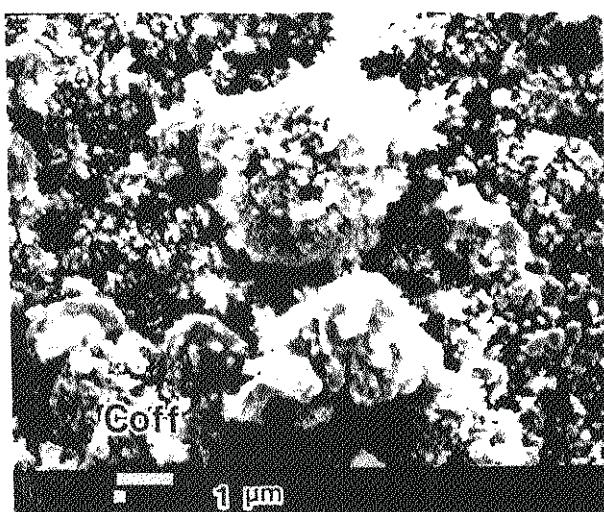
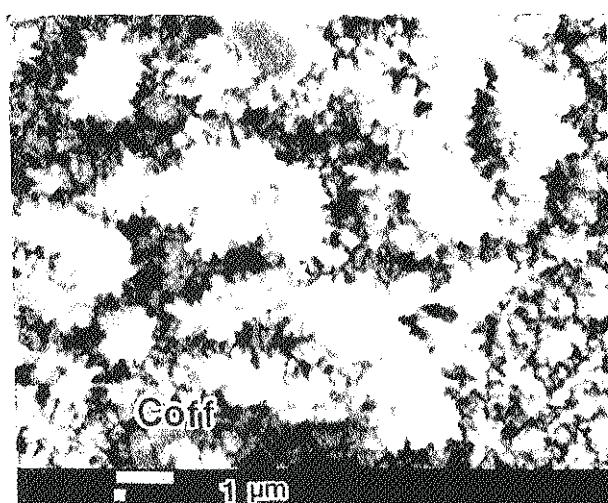
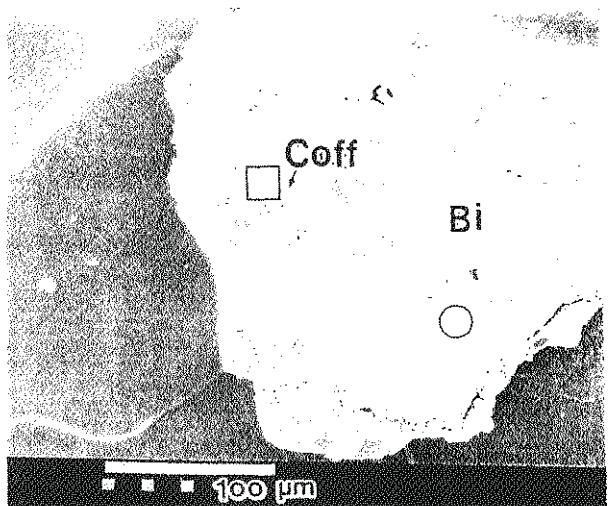


Fig. 4 The qualitative composition mapping of biotite (Bio) containing accessory minerals, like monazite (Mon) and xenotime (Xen). The distribution of U is identical with Y.



- A. Detail of circle area showing star-shaped and spindle-shaped crystals of coffinite (Coff) in accretionary masses.
- B. Detail of square area showing that spindle-shaped crystals of coffinite attaches to granular concretionary masses of coffinite (Coff).

Fig. 5 Cleavage plane of biotite (Bi) along which biotite had been altered and dissolved into bar-like spaces by chlorite and groundwater. Coffinite (Coff) precipitated and filled in them.

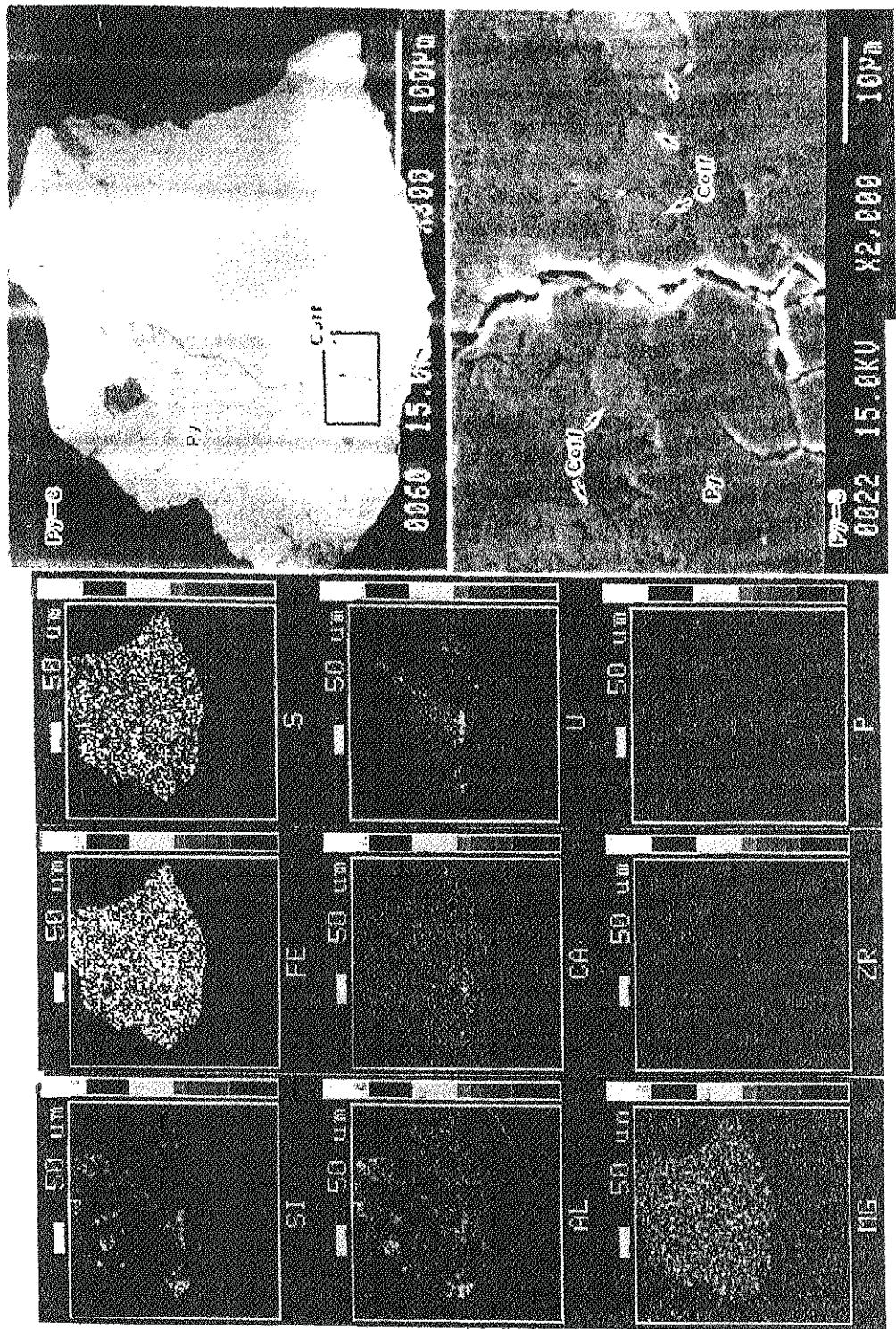


Fig. 6 The qualitative composition mapping of pyrite (Py). Cofinite (Coff) is included in it. The black square in the upper composition photo is enlarged as the lower photo shows. By EPMA.

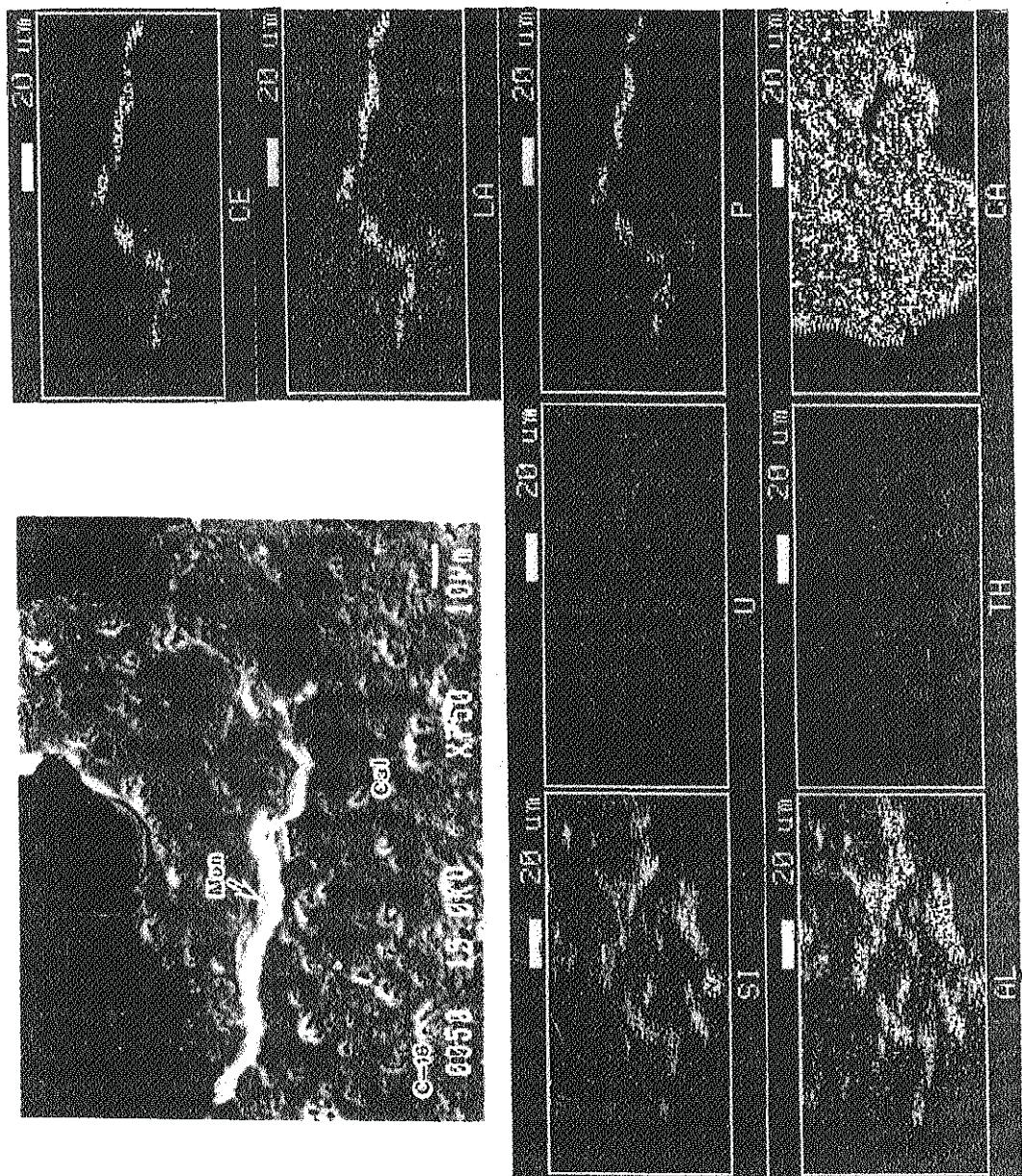


Fig. 7 The qualitative composition mapping of calcite (Ca) from calcite veins which have heavy mineral veinlets in it, maybe monazite (Mon). By EPMA.

1-8 固結、充填に用いる樹脂等の評価（試料、目的に応じた充填剤の選定）

報告者 環境資源開発課

1. はじめに

探鉱活動によって得られる岩石試料は、風化、変質によって脆弱な場合が多い。岩石薄片作成においては、これらを壊すことなく作成する必要がある。そのような粘土質岩石や変質岩などの薄片作成においては、通常、固結、充填のために樹脂等を用いるが、充填剤の性質や多様な試料に対する相性と、利用目的に応じた充填剤の選定を行う必要がある。最適条件で、薄片を作成するために現在市販されている様々な充填剤を対象に、固結、溶剤による希釈、溶剤との相性、再固結などについて検討を行い、適応性について評価した。

2. 試 料

充填剤は、①ボンドEセット、②セメダインスパー、③エポセメント、④ペトロポキシ154、⑤シアノボンド、⑥P-レジン、⑦リゴラック、⑧ニカワ、⑨水ガラスを用いた（表-1）。浸透などの評価には実試料として、⑩凝灰質粗粒砂岩、⑪礫岩、⑫頁岩、⑬含水礫岩、⑭泥質粘土、⑮中粒砂岩を用いた。⑩は東濃産、⑪⑫⑬は人形峠産、⑭はオーストラリア・マルガロック産、⑮はジンバブエ産を用いた（表-2）。

3. 主な成果

- (1) 固結に必要な温度は、④以外は常温で固結するが、④は80°Cまで加熱しなければならない（表-3）。水分条件を見ると、⑤⑧⑨は若干の水が存在しても固結するが、他は固結しない。
- (2) 試料に対する浸透力は、ほとんどの充填剤が加熱することで向上するものの充分とは言えない。さらに、浸透力を向上するためにアルコール、キシレンなどによる希釈が必要である。希釈に際しては充填剤と溶剤の相性を考慮しなければならない。溶剤と充填剤の希釈を見ると、アルコールに対しては①②③④⑥⑦は良く混和するのに対し、⑤⑧⑨は混和しない。キシレンに対しては、①②③④⑤⑥⑦はよく混和し、変質も認めらない。希釈は粘性が低下するので極めて好都合である（表-4）。
- (3) 再固結に用いる充填剤と始めに用いた充填剤との相性は、相互の反応性に加え、固化作業条件の選択、研磨に用いる潤滑剤、研磨時の洗浄に用いる溶剤の選択上からも制限を受ける。これらを考えあわせると、基本的に異なった充填剤との混合は好ましくない。しかし、⑤については、作業が簡便なことに加え、研磨に用いる潤滑剤、研磨時の洗浄に用いる溶剤の選択上に

おいても大きな問題はなく、試料の一部の脱落防止など修繕に適している（表一5）。

- (4) 希釈したものの中には再固結が必要なものもある。これらについては、その都度確認しつつ作業をすすめる。再固結が必要な場合は、浸透している範囲内で面出しが出来るよう再固化作業、研磨剤の選択が必要である（表一6）。
- (5) 以上、充填剤としての性能は、試料内部への浸透が最も重要で、洗浄に用いる溶剤に侵されない組合せにする必要がある（表一7）。

表一 1 試験に用いた充填剤

①	ボンドEセット	エポキシ系
②	セメダインスーパー	
③	エポセメント	
④	ペトロポキシ154	
⑤	シアノボンド	ポリエステル系
⑥	P-レジン	
⑦	リゴラック	
⑧	ニカワ	水溶性
⑨	水ガラス	

表一 2 試験に用いた試料

	試 料 名	保存状態	性 状	産 出 地
a	凝灰質粗粒砂岩	乾燥試料	緑灰色中粒～粗粒砂岩	岐阜県東濃産
b	礫 岩	乾燥試料	多孔質：弱固結粘土を含む	岡山県人形峠夜次産
c	頁 岩	乾燥試料	細粒粘土質：剝離しやすい	岡山県人形峠夜次産
d	含 水 矶 岩	含水試料	多孔質：弱固結粘土を含む	岡山県人形峠夜次産
e	泥 質 粘 土	乾燥試料	微細粒粘質：割れやすい	オーストラリア・マルガロック産
f	中 粒 砂 岩	乾燥試料	弱固結：石英粒空隙粘土質	ジンバブエ・カニヤンバ産

表一3 溫度による効果

充 填 剂		粘 性 (固結時間)				
		常 温	40°C	60°C	80°C	120°C
①	ボンドEセット	D (24)	C (16)	C (2)	—	—
②	セメンダインスーパー	D (16)	C (8)	C (2)	—	—
③	エポセメント	D (48)	C (24)	C (2)	—	—
④	ペトロポキシ154	—	—	—	B (1)	A (0.5)
⑤	シアノボンド	A (1)	A (1)	A (1)	A (1)	—
⑥	P-レジン	C (24)	B (24)	B (1)	—	—
⑦	リゴラック	C (24)	B (24)	B (1)	—	—
⑧	ニカワ (水1:1)	C (24)	C (24)	C (24)	—	—
⑨	水ガラス	C (72)	C (72)	—	—	—
※	カナダバルサム煮込	—	—	—	—	C (0.5)

A 水状

B オイル状

C カタクリ状

D 水アメ状

— 今回作成せず

表一4 希釀による効果

充 填 剂	粘 性			
	未希釀	アルコール	キシレン	水
① ボンドEセット	D	B	B	×
② セメンダインスーパー	D	B	B	×
③ エポセメント	D	×	B	×
④ ペトロポキシ154	—	—	—	—
⑤ シアノボンド	A	—	—	—
⑥ P-レジン	C	B	B	×
⑦ リゴラック	C	B	B	×
⑧ ニカワ	C	×	×	B
⑨ 水ガラス	C	×	×	B

A 水状

B オイル状

C カタクリ状

D 水アメ状

× 混和しない

— 今回作成せず

表—5 再固結使用充填剤との相性

充 填 剂		再 固 結 充 填 剂									適 用 温 度
		①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧	⑨	
エ ポ キ シ 系	① ボンドEセット	○	×	×	×	○	×	×	—	—	常温～60°C
	② セメンダインスーパー	×	○	×	×	○	×	×	—	—	常温～60°C
	③ エポセメント	×	×	○	×	○	×	×	—	—	常温～60°C
	④ ペトロポキシ154	×	×	×	○	○	×	×	—	—	80～120°C
ポリエ スチ ル系	⑤ シアノボンド	○	○	○	○	○	○	○	—	—	常温～100°C
	⑥ P-レジン	×	×	×	×	○	○	○	—	—	常温～60°C
	⑦ リゴラック	×	×	×	×	○	○	○	—	—	常温～60°C
水 溶 性	⑧ ニカワ	—	—	—	—	—	—	—	○	—	常温～60°C
	⑨ 水ガラス	—	—	—	—	—	—	—	—	○	常温～60°C

○ 使用できる
 × 使用できない
 — 今回作成せず

表一 6 実試料を用いた適用試験

充 填 剂 (常温)	希 釀	粗粒砂岩	礫岩	頁岩	含水礫岩	泥質粘土	中粒砂岩
		a	b	c	d	e	f
① ボンドEセット	アルコール	○	○	×	×	×	○
	キシレン	○	○	×	×	×	○
② セメンダインスーザー	アルコール	○	○	×	×	×	○
	キシレン	○	○	×	×	×	○
③ エポセメント	キシレン	○	○	×	×	×	○
⑤ シアノボンド	未希釀	○	○	○	○	○	○
⑥ P-レジン	未希釀	○	○	×	×	×	○
	キシレン	○	○	×	×	×	○
⑦ リゴラック	未希釀	○	○	×	×	×	○
	キシレン	○	○	×	×	×	○
⑧ ニカワ	水	—	—	—	—	—	○
⑨ 水ガラス	未希釀	—	—	—	○	—	○
	水	—	—	—	○	—	○
(80°C)							
④ ペトロポキシ154	未希釀	○	○	○	×	○	○

○ 適用可

× 適用不可

— 今回作成せず

表一 7 試験結果

充 填 剂		常 温				温 度	
		未希釀	アルコール	キシレン	水	60°C	80°C
①	ボンドEセット	×	○	○	×	△	—
②	セメンダインスーパー	×	○	○	×	△	—
③	エポセメント	×	×	○	×	△	—
④	ペトロポキシ154	—	—	—	—	×	○
⑤	シアノボンド	○	—	—	—	○	○
⑥	P-レジン	△	○	○	×	○	—
⑦	リゴラック	△	○	○	×	○	—
⑧	ニカワ	△	×	×	○	○	—
⑨	水ガラス	△	×	×	○	○	—

○ 良い △ やや良い × 使用不可 —今回作成せず

abf	多孔質試料	⑤▲△	①②⑥⑦	①②③⑥⑦	—	△△△	④⑤
ce	緻密試料	⑤	—	—	—	⑤	④⑤
d	含水試料	⑤⑧⑨	—	△△△	⑧⑨	⑤⑧⑨	⑤

○ 最適 △ 適している

1-9 薄片作成に用いる樹脂等の特性調査（接着剤としての基本的特性のまとめ）

報告者 環境資源開発課

1. はじめに

探鉱活動などにおける鉱物試験研究では、一般的にX線マイクロアナライザ、カソードルミネッセンス観察、流体包有物観察、透過型電子顕微鏡観察用など岩石薄片を用いて実施している（図-1）。従来、薄片作成における試料のスライドグラスへの接着には接着剤を用いるのが一般的である。使用する接着剤の選択は、ビームダメージの影響や、加熱を避けなければならないもの、試料をはずす必要のあるものなどの試料の性状や薄片利用の目的に応じ薄片作成技術者が経験的に選択するのが常であった。接着剤の特性を定量的に把握することができれば、未経験者においても作業がスムーズに進展する。今回は、いくつかの接着剤について基本的特性を調査、分析することにより、試料の性状や薄片利用の目的に応じた接着剤を選び出せるよう整理、検討した。

2. 試験方法

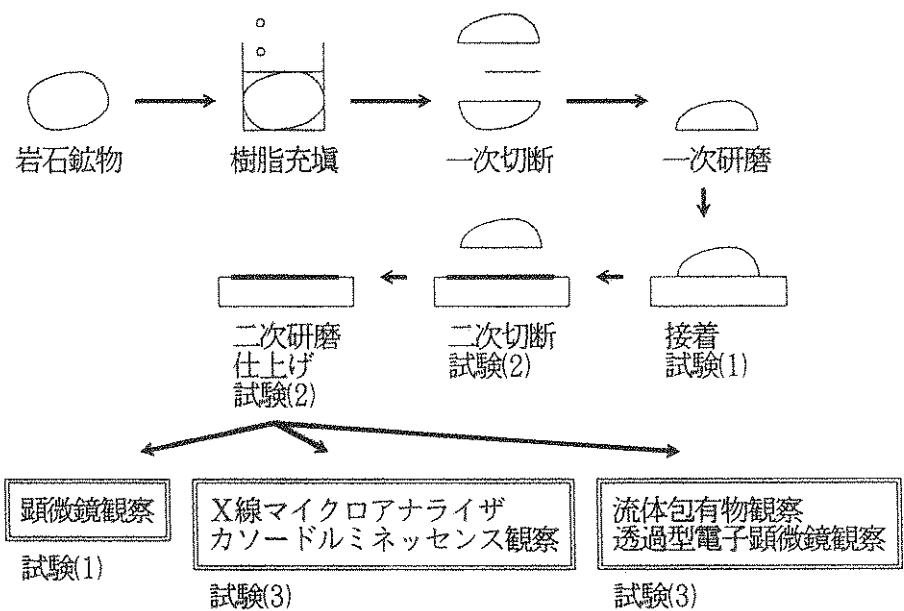
接着剤として、通常の薄片作成で用いる①ボンドEセット、②セメダインスーパー、③エポメント、④ペトロポキシ154、⑤シアノボンド、⑥アロンアルファー、⑦プリット、⑧セメダインC、⑨リゴラック、⑩P-レジン、⑪光硬化接着剤、⑫レーキサイトセメント、⑬ニカワ、⑭水ガラスを用い、以下の試験を実施した。

- (1) 2枚のスライドグラスを張り合わせ、固結時間、顕微鏡観察、偏光顕微鏡観察などを行い、接着剤としての基本的特性を把握する。
- (2) スライドグラスに岩石を張り付け、薄片作成時の二次切断や潤滑剤への耐久性、多様な性質の試料への適応性などの実際の薄片作成における実用性の評価を行う。
- (3) 多様な目的の薄片の利用、例えば電子線などを用いた分析時のビームダメージの影響や、溶解度、剥離し易さなどの性質を把握する。

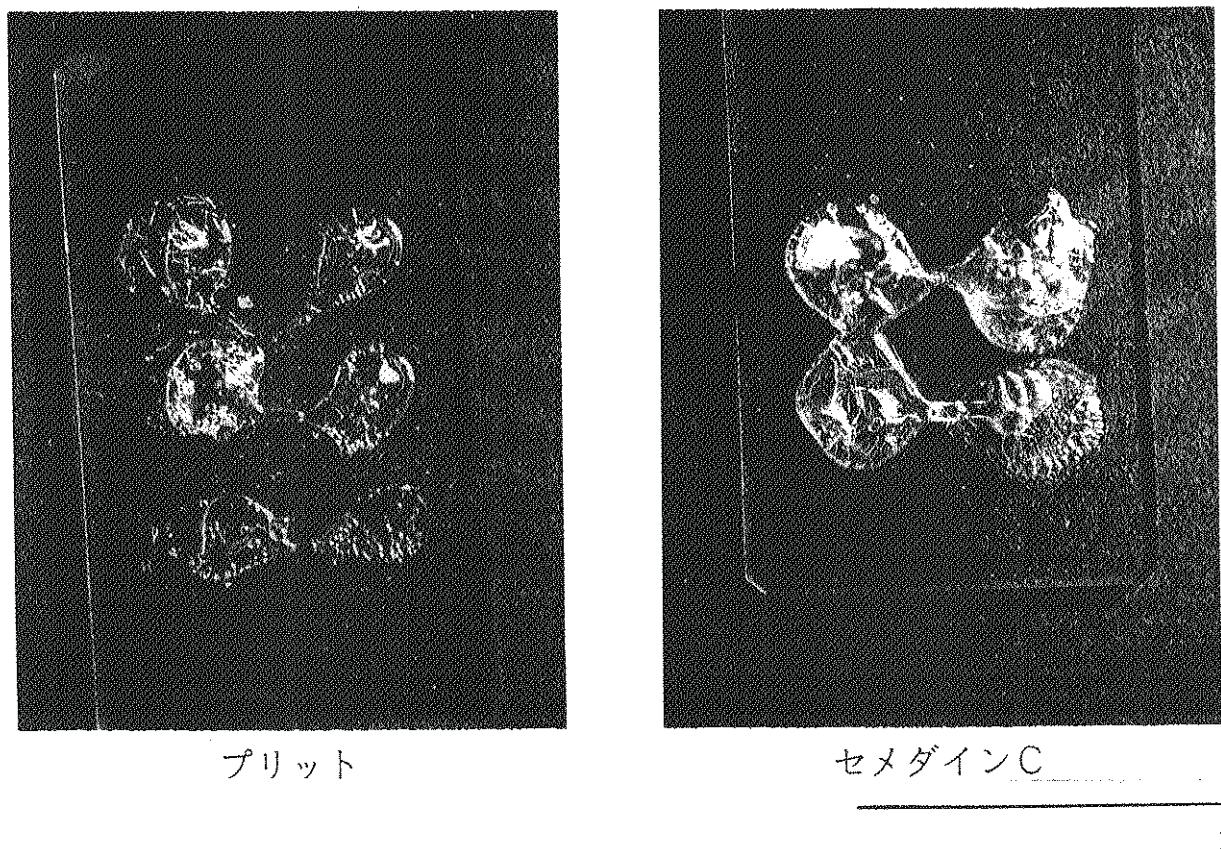
3. 主な成果及び今後の方針

- (1) 固結時間については、⑤⑥⑦⑧⑪は一般に常温でも短時間で固結するのに対し、①②③④⑨⑩⑬⑭は常温では固結に時間を要するが、加熱すれば短時間で固結する。また⑪は紫外線をあてないと固結しない。顕微鏡観察での色はいずれも透明から黄色を呈し、亀裂などは観察されない。泡は⑦⑧に比較的多くみられる（図-2）。偏光顕微鏡観察において顕著な差異は認められない（表-1）。

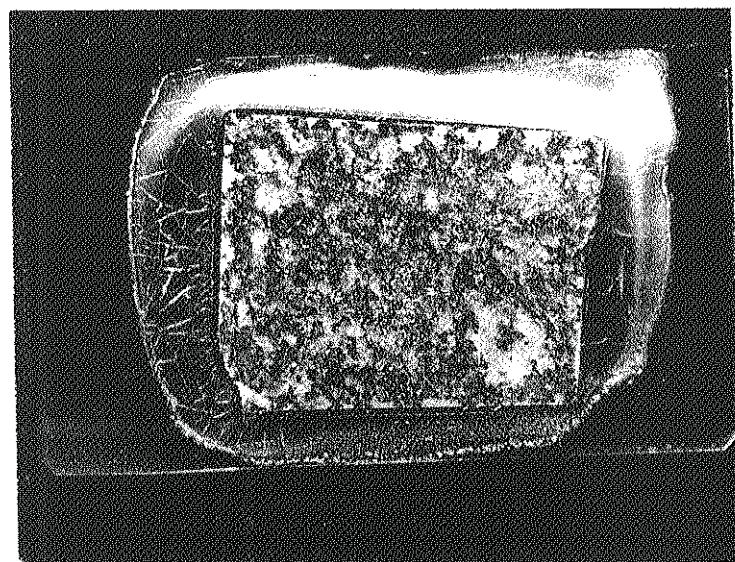
- (2) 薄片作成時の二次切断の耐久性は①②③④⑪が強い(図一3)。潤滑剤への耐久性は、ケロシンには全てが強く、アルコールには①②③④⑤⑥⑦⑧⑬⑭が、水には①②③④⑦⑧⑨⑩⑪⑫が強い(表一2)。
- (3) ビームダメージは、①②③④⑪は影響が小さい(図一4, 5, 6, 7)。接着剤の剥離は、⑨⑪⑫はアセトン、アルコールで、⑤⑥⑬は温水で可能であるが、①②③④⑦⑧⑩⑪⑭は剥離しにくい(表一3)。
- (4) 薄片利用の目的に応じて選択をすると、X線マイクロアナライザやカソードルミネッセンス観察などの化学分析には、ビームダメージの影響が小さい①②③④⑪が適し、試料をはずす必要のある流体包有物観察や透過型電子顕微鏡観察用の試料調整には、溶け易くはずし易い⑨⑪⑫⑬が適しているものと考えられる。一方、試料の性状では、加熱をさけなければならない試料については①②③⑤⑥⑪が適している(表一4)。
- (5) 多様な試料、各種分析機器に対応した薄片を効果的に作成して行きたい。



図一 1 薄片作成手順及び各種分析機器



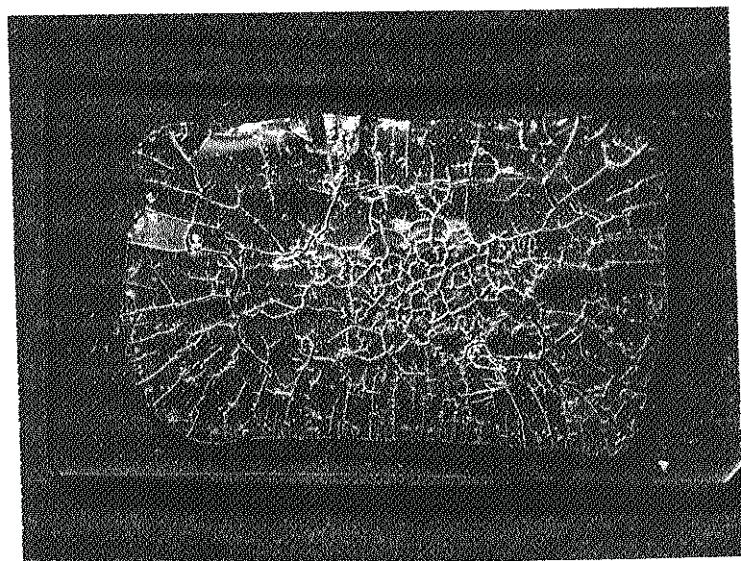
図一 2 加熱固結 (60°C)



水ガラス

3cm

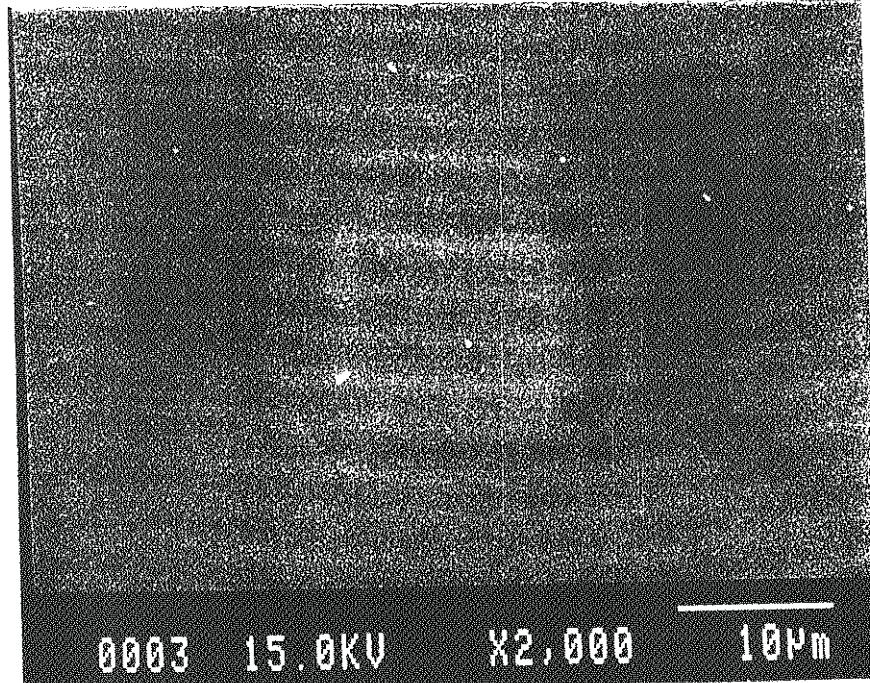
図一3 二次切断時のダメージ



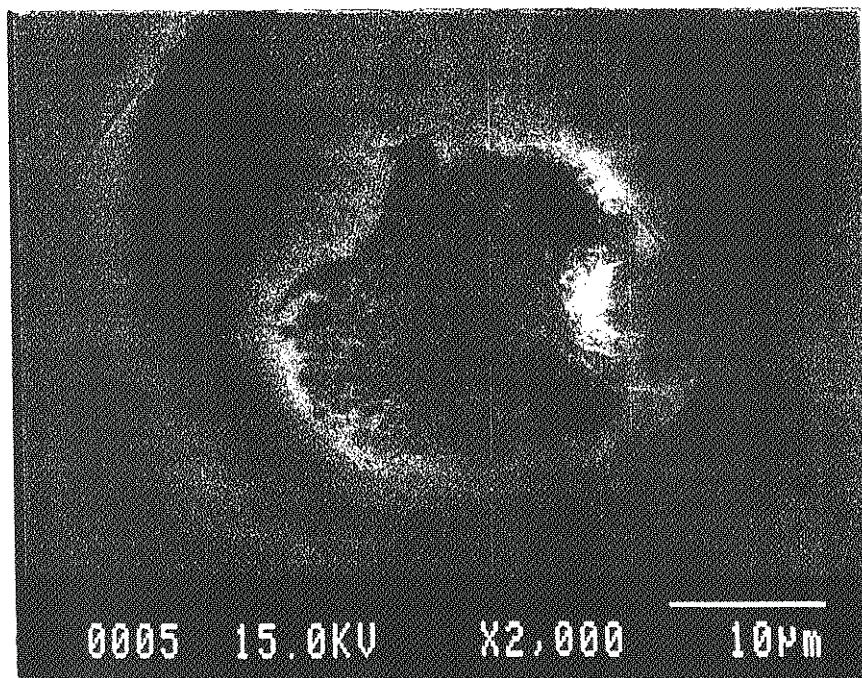
ニカラワ

3cm

図一4 真空時のダメージ

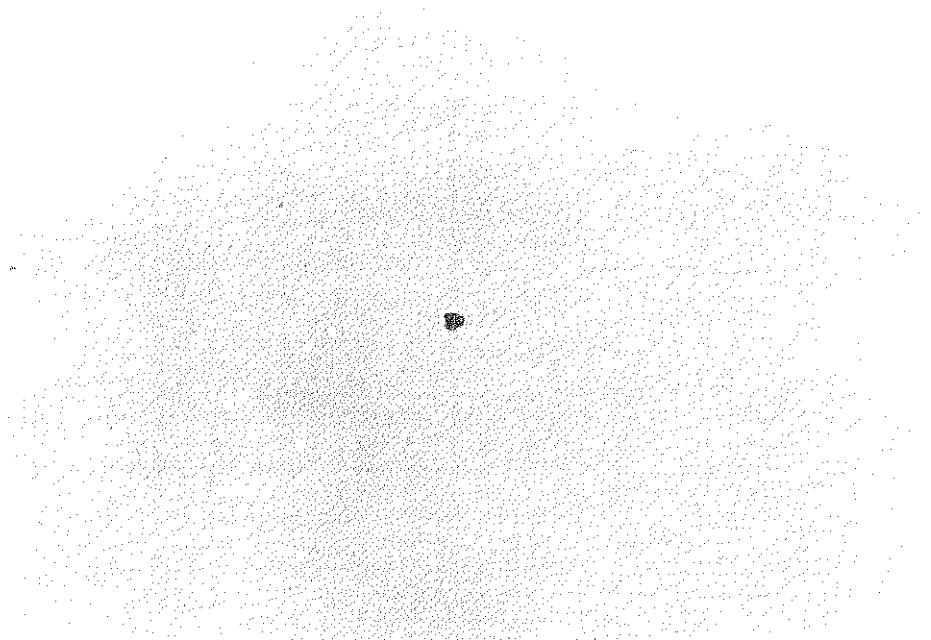


エポセメント
ビームダメージ（小）

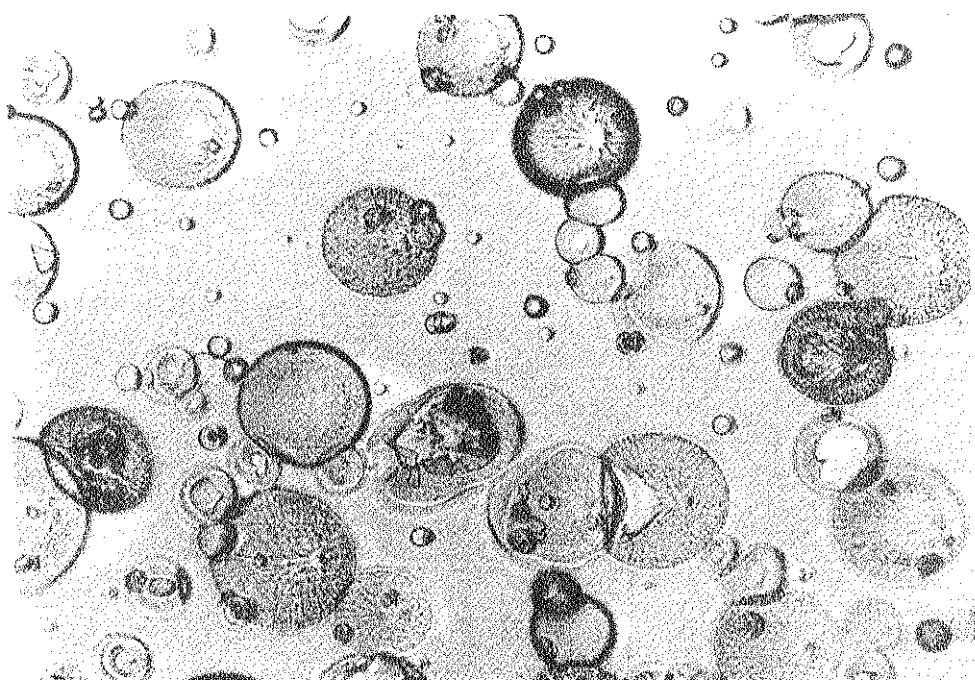


シアノボンド
ビームダメージ（大）

図-5 X線マイクロアナライザのビームダメージ



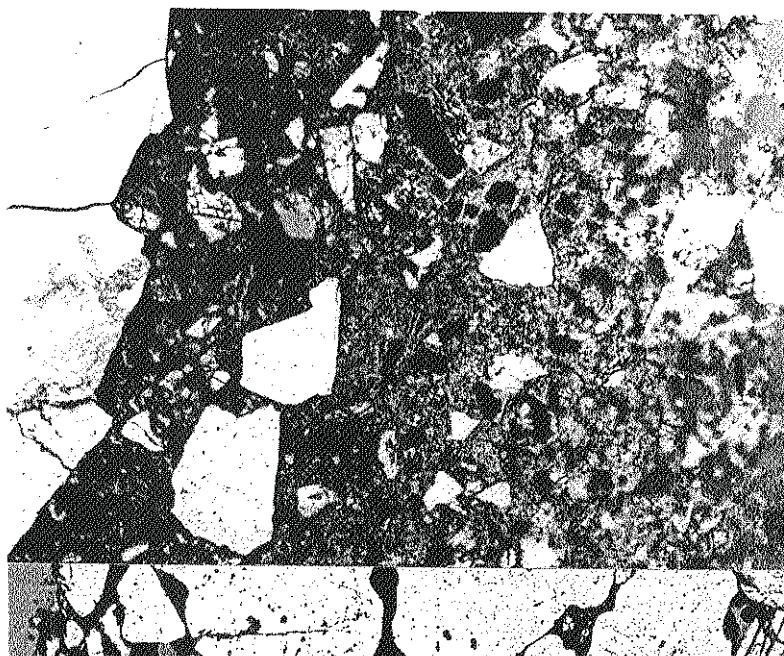
セメダインC（ビーム照射前）



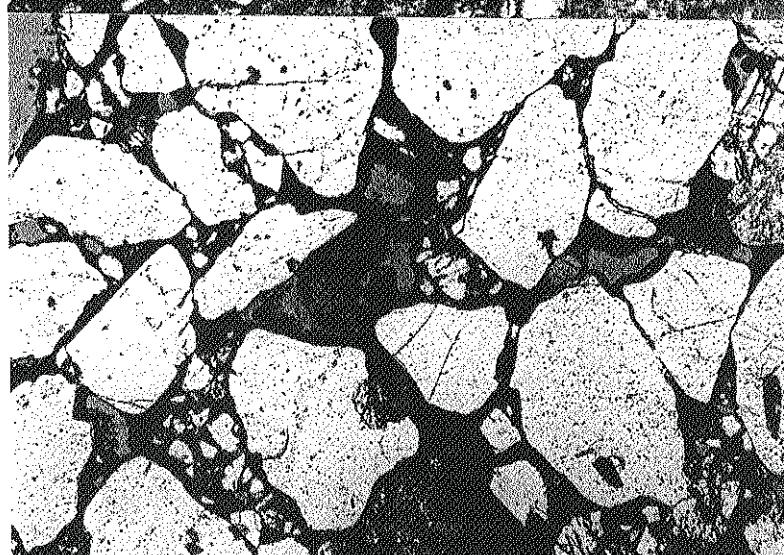
セメダインC（ビーム照射後）

0.5mm

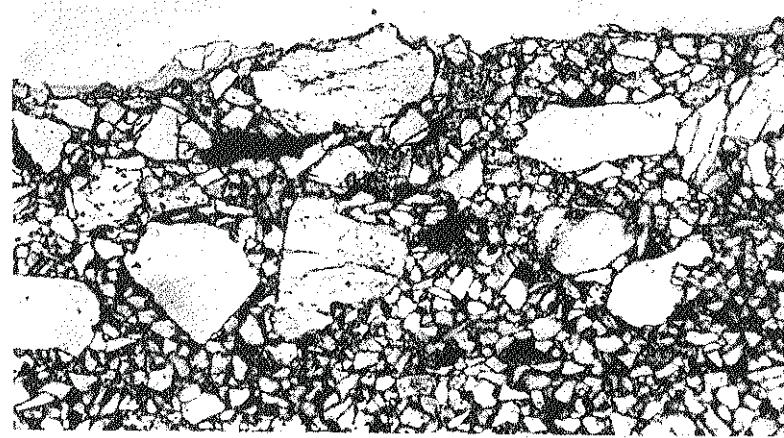
図一6 カソードルミネッセンスのビームダメージ



ビーム照射



ビーム照射



ビーム未照射

0.5mm

図一7 実際の薄片によるカソードルミネッセンスのビームダメージ
(ボンドEセット)

表一1 スライドグラスを張り合わせた試験の結果

接着剤名	混合比	固結時間			観察（常温処理）					備 考
		常温	60°C	100°C	色	亀裂	均質	泡	異方性	
① ボンドEセット	1 : 1	24	2	—	薄黄	○	○	少	○	
② セメンダインスーパー	1 : 1	8	1	—	薄黄	○	○	少	○	
③ エポセメント	1 : 1	48	16	—	薄黄	○	○	少	○	
④ ペトロポキシ154	10 : 1	—	—	2	薄黄	○	○	なし	○	
⑤ シアノボンド	1液	1	1	—	透明	○	○	少	○	
⑥ アロンアルファー	1液	1	1	—	透明	○	○	少	○	
⑦ プリット	1液	1	—	—	透明	○	○	多	×	沸騰 (60°C)
⑧ セメンダインC	1液	1	—	—	透明	○	○	中	×	沸騰 (60°C)
⑨ リゴラック	10:1:1	24	20	—	薄緑	○	○	なし	○	
⑩ P-レジン	10 : 1	>96	>96	24	薄黄	○	○	少	○	
⑪ 光硬化接着剤	1液	96	—	—	透明	○	○	なし	○	太陽光
⑫ レーキサイトセメント	1液	1	—	—	黄	○	○	少	○	HPで溶かす
⑬ ニカワ	1:水1	(1)	—	—	乳白黄	○	○	少	○	HPで溶かす
⑭ 水ガラス	1液	(1)	(1)	—	透明	○	○	少	○	

HP : ホットプレート

表一2 スライドグラスに岩石を張り付けた試験の結果

接着剤名	二次切断時の耐久性 (精密切断機使用)	潤滑剤への耐久性		
		水	アルコール	ケロシン
① ボンドEセット	○	○	○	○
② セメダインスーパー	○	○	○	○
③ エポセメント	○	○	○	○
④ ペトロポキシ154	○	○	○	○
⑤ シアノボンド	○	△	○	○
⑥ アロンアルファー	○	△	○	○
⑦ プリット	○	○	○	○
⑧ セメンダインC	○	○	○	○
⑨ リゴラック	○	○	×	○
⑩ P-レンジ	○	○	×	○
⑪ 光硬化接着剤	○	○	×	○
⑫ レーキサイトセメント	○	○	×	○
⑬ ニカワ	× 一部剥離	×	○	○
⑭ 水ガラス	× 一部剥離	×	○	○

表一 3 多様な利用目的に合わせた試験の結果

接着剤名	真 空	ビームダメージ		化学組成 (EPMA)★	剥 離
		EPMA	カソルミ		
① ボンドEセット	○	小	こげ	C	×
② セメンダインスーパー	○	小	こげ	C, Si	×
③ エポセメント	○	小	こげ	C	×
④ ペトロポキシ154	○	小	こげ	C	×
⑤ シアノボンド	○	大	こげ泡少	C	○温 水
⑥ アロンアルファー	○	大	こげ泡少	C, Si, Ca, Na	○温 水
⑦ プリット	○	大	こげ泡少	C, Cl, Al	×
⑧ セメンダインC	○	大	こげ泡多	C, Al	×
⑨ リゴラック	○	大	こげ泡多	C	○アセトン
⑩ P-レンジ	○	大	こげ泡少	C	×
⑪ 光硬化接着剤	○	大	こげ泡多	C	○アセトン
⑫ レーキサイトセメント	○	大	こげ泡中	C	○アセトン
⑬ ニカワ	× 亀裂, 剥離	—	—	—	○温 水
⑭ 水ガラス	○	中	こげ	Si, Na, Al	×

EPMA: X線マイクロアナライザ, カソルミ: カソードルミネッセンス

★スラドグラスの化学組成: Si, Ca, Na, Mg, Al

表一 4 接着剤の基本的特性のまとめ

使 用 目 的	真 空	ビームダメージ	分析	剥離	加 热 可		加 热 不 可	
					最 適	適	最 適	適
通常観察					④⑤⑥	①②③⑪	①②	③⑤⑥⑪
EPMA分析★	○	○	○		④	①③	①	③
カソードルミネッセンス観察	○	○			④	①②③⑪	①②	③⑪
流体包有物観察				○	⑨⑬	⑪⑫	⑨⑬	⑪⑫
透過型電子顕微鏡観察								

★: 硅酸塩鉱物の分析

1-10 ウラン鉱滓の処置に係わる調査研究（娘核種の影響）

報告者 環境資源開発課

1. はじめに

環境保全技術開発の一環として、ウラン鉱滓を安全に処置するための技術開発を行っている。ウラン鉱滓が含有するウラン、ラジウム及びトリウムには、特徴的な放射能の崩壊系列があるため、その娘核種の特性の把握と環境への影響の検討が必要である。このため、本研究は基礎的な研究として、ウラン及びトリウムを親核種とする娘核種それぞれの被ばく線量当量率への相対的寄与度を時系列的に明らかにした。得られた成果は、ウラン鉱滓処置概念及び安全評価に与える影響の検討資料に供する。

2. 実施内容

Batemanの公式と各核種の放出エネルギーを基に以下の条件で計算を行った。計算条件の概要を図-1に示す。

- (1) 検討項目：ウラン鉱滓による被ばく線量当量率の経時変化。
- (2) モデル概要：ウラン鉱滓は、無限の広がりを持ち、かつ覆土はされていない。
また、粉塵は均一に飛散しているものの外界との接触はない。
- (3) 鉱滓初期条件：ウランを2000ppm、トリウムを30ppm及びラジウムを28.6Bq/g含有するウラ
鉱石からウラン95%、トリウム30%、ラジウム10%が抽出された残渣。この
時、鉱滓はウランを100ppm、トリウムを21ppm及びラジウムを25.8Bq/g含有
している。これ以外の放射性核種を含有していないものとする。
- (4) 被ばく形態：
 - ① ウラン鉱滓からの放射線による外部被ばく。
人が1年間処置場内に滞在したときに、地上1mの高さでの外部被ばく
線量当量率の経時変化を求める。
 - ② 鉱滓から舞い上がった粉塵の吸入摂取による内部被ばく。
空気中の粉塵濃度を $0.1\text{mg}/\text{m}^3$ とし、 $23\text{m}^3/\text{d}$ の呼吸率で1年間の内部被
ばく線量当量率を求める。計算には、この条件で $1\text{mSv}/\text{y}$ の被ばくに相当す
る空气中濃度限度値を用いた。
 - ③ 鉱滓処置場内の井戸水の飲用（経口摂取）による内部被ばく。
ウラン鉱滓と分配平衡に達している地下水を $1000\text{ml}/\text{d}$ 飲用したときの
1年間の内部被ばく線量当量率を求める。計算には、分配係数及び摂取量

を考慮して、 1mSv/y の被ばくに相当する水中濃度限度値を用いた。

(5) 対象核種： ^{238}U , ^{235}U 及び ^{232}Th を親核種とする全娘核種。

3. 結果

ウラン鉱滓の核種濃度及び被ばく線量当量率の経時変化は、図-2に示すように地下水による経口摂取経路の場合を除いて100年から1000年の間が当初に比較して最高1.4倍程度の増加があるものの、1000年以降低下し、100万年弱で当初の2分の1から10分の1に低下することが明確になった。ウラン鉱滓堆積場内の井戸水を飲用する経口摂取経路は必然的ではないので詳細な検討をさけ、その次に被ばく線量当量率の大きい外部被ばく経路の内訳を検討する。外部被ばく線量当量率の時系列変化は、図-3に示すように ^{238}U の崩壊系列に支配されていることが判る。また、 ^{238}U による外部被ばく線量当量率の時系列変化は、図-4に示すように ^{214}Bi 及び ^{214}Pb に支配されていることが判る。 ^{214}Bi 及び ^{214}Pb は、 ^{238}U の崩壊系列の ^{226}Ra の娘核種である。このため、 ^{214}Bi 及び ^{214}Pb による被ばく線量当量率の時系列変化は、親核種である ^{226}Ra 濃度の時系列変化に依存して1000年頃より減少している。このことは図-5に示す ^{238}U 系列の核種濃度の経時変化からも判る。 ^{238}U 系列における核種濃度の時系列変化は、 ^{238}U , ^{230}Th 及び ^{226}Ra に依存するもの並びに ^{226}Ra の娘核種の中で半減期が比較的長い ^{210}Po , ^{210}Pb 及び ^{210}Bi の4グループに大別される。本計算で設定した核種濃度比のウラン鉱滓による被ばく線量当量率の経時変化をこの図をもとに説明すると以下の通りである。

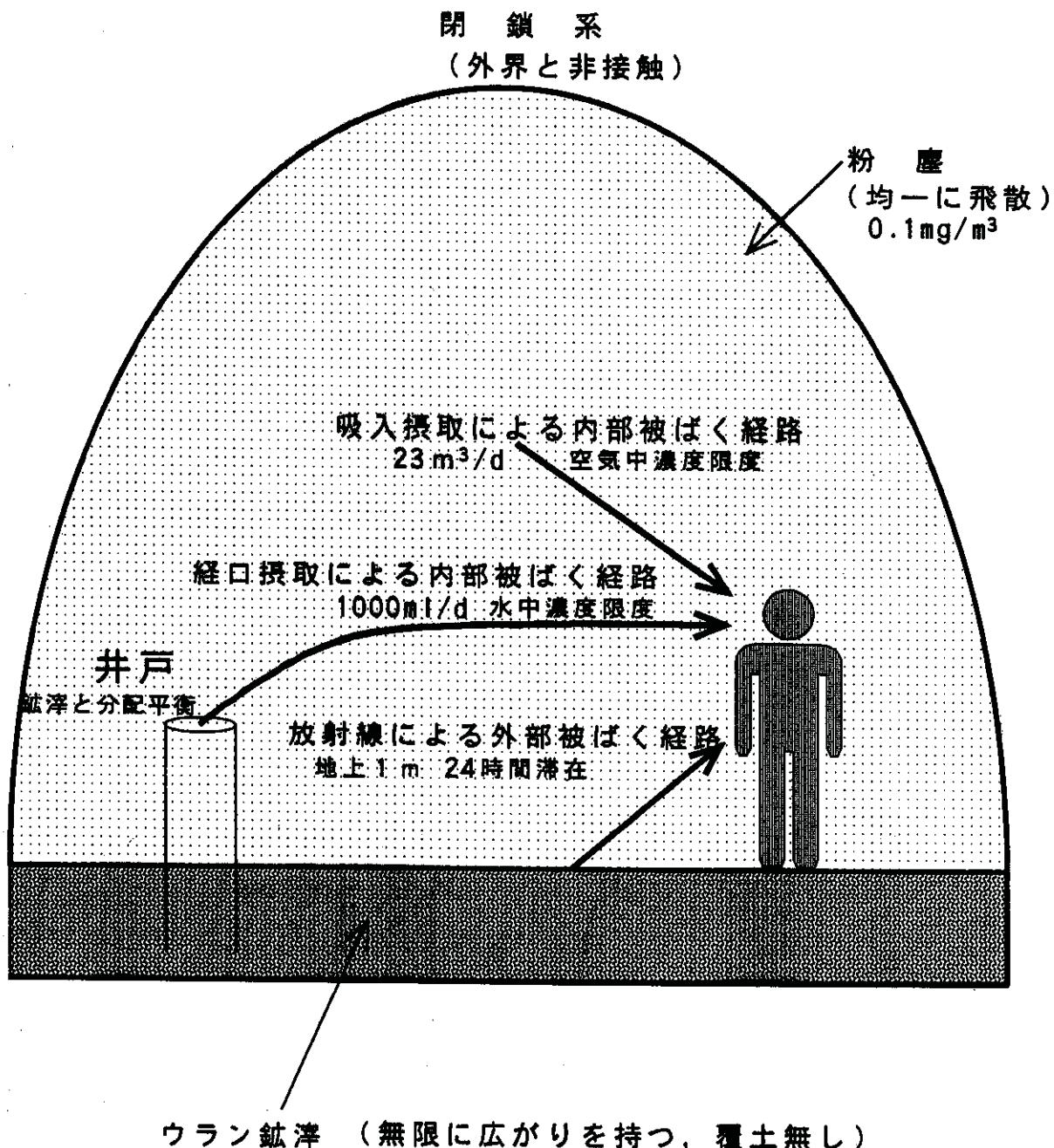
- ・ 100年までの上昇 ^{210}Po , ^{210}Pb 及び ^{210}Bi の増加。
- ・ 1000年からの緩やかな減少 ^{226}Ra （半減期約1600年）の崩壊による減少。
- ・ 5万年以降の減少 ^{230}Th （半減期約8000年）の崩壊による減少。
- ・ 10億年までの平衡状態 ^{238}U 系列の全核種の放射平衡状態
- ・ 10億年以降の減少 ^{238}U （半減期約45億年）の崩壊による減少。

なお、今回の計算において、ウラン鉱滓が含有するラドンの影響を考慮しているもののウラン鉱滓から離脱したガスとしてのラドンの影響を考慮していない。ラドンガスは比較的短半減期なのでその形態が変化する上に、ガスとしての挙動及び地下水媒体による挙動により広範囲に崩壊を伴って移行し影響をおよぼす等、取扱いが非常に難しいため今回の計算で考慮しなかった。この点については別途検討していく。

4. 今後の予定

今回の計算結果で、図一6に示すウラン鉱滓処置概念の中でも、保守的な条件でのウラン鉱滓の経時変化のみを検討した。この結果、今後より現実的なものとしていくためには、ラドン及びその娘核種の挙動の把握及び取扱い、トリウムの取扱い、ラジウムの取扱い、分配係数の測定の検討及びデータの蓄積等の研究開発が必要である事が明確になった。今後は、これら娘核種の処置方策における位置付け及び安全評価に与える影響を検討する必要があると考えられる。

想定した被ばくシナリオ



	鉱石濃度	抽出率 (%)	鉱滓濃度	
ウラン	2000	95	100	ppm
トリウム	30	30	21	ppm
ラジウム	28.6	10	25.8	Bq/g

図-1 計算条件

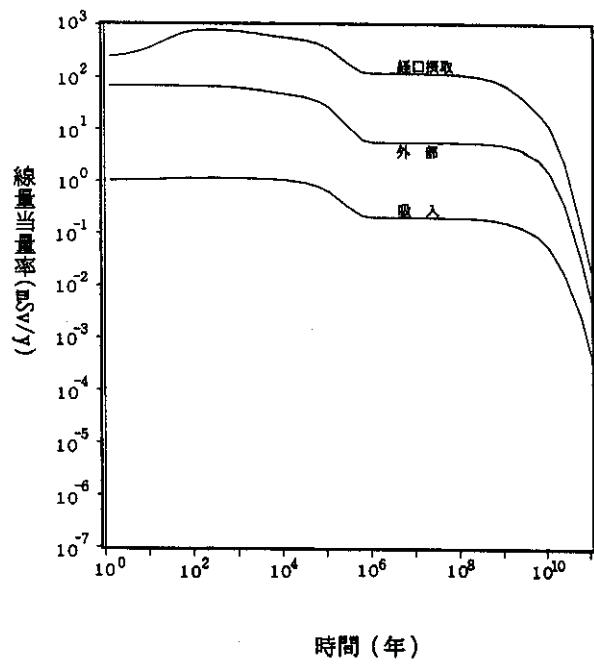


図-2 被ばく線量当量率の経時変化

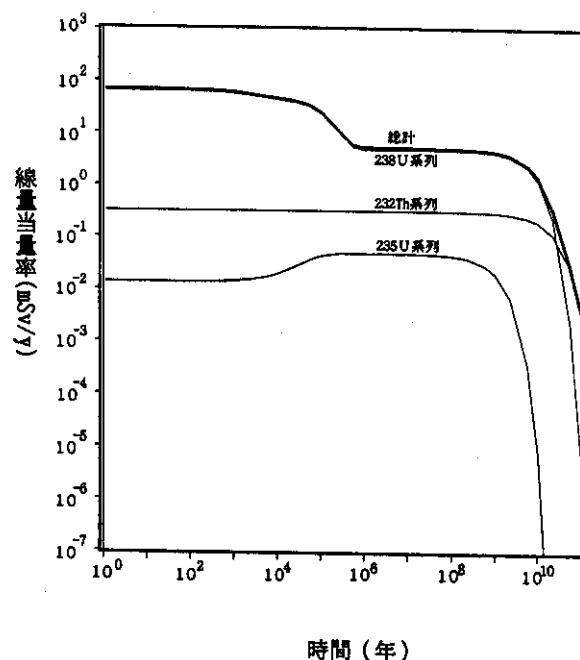


図-3 外部被ばく線量当量率の経時変化 (壊変系列別)

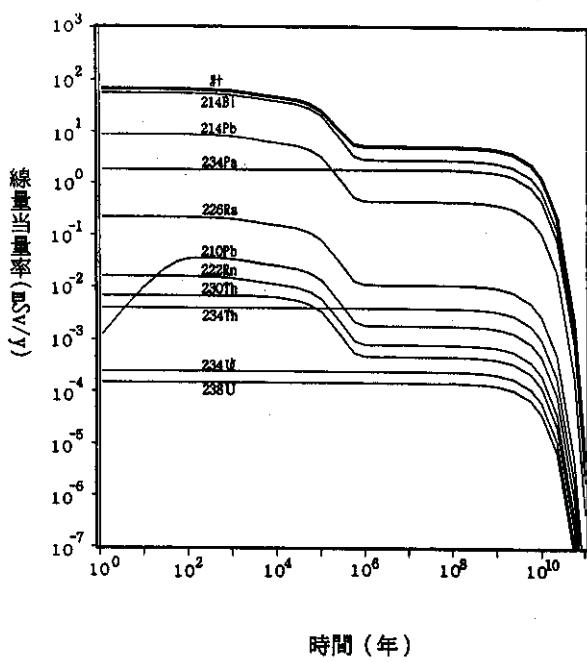


図-4 外部被ばく線量当量率の経時変化 (ウラン: 4n+2 系列)

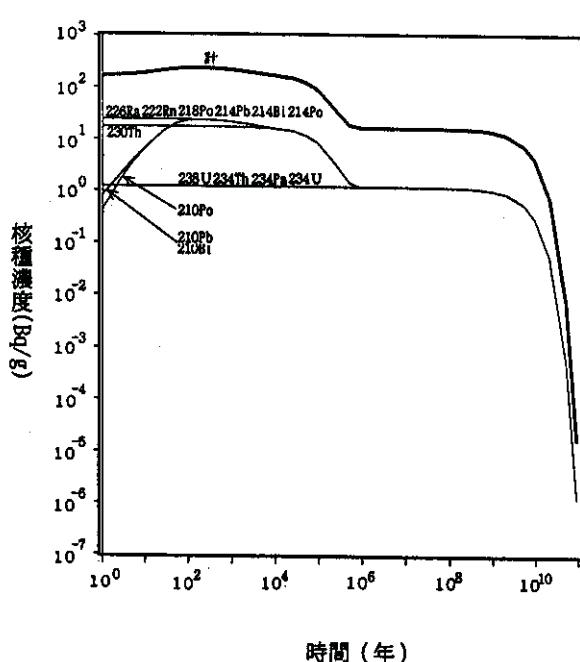


図-5 ウラン鉱滓中の核種濃度の経時変化 (ウラン: 4n+2 系列)

鉱滓処置場概念図

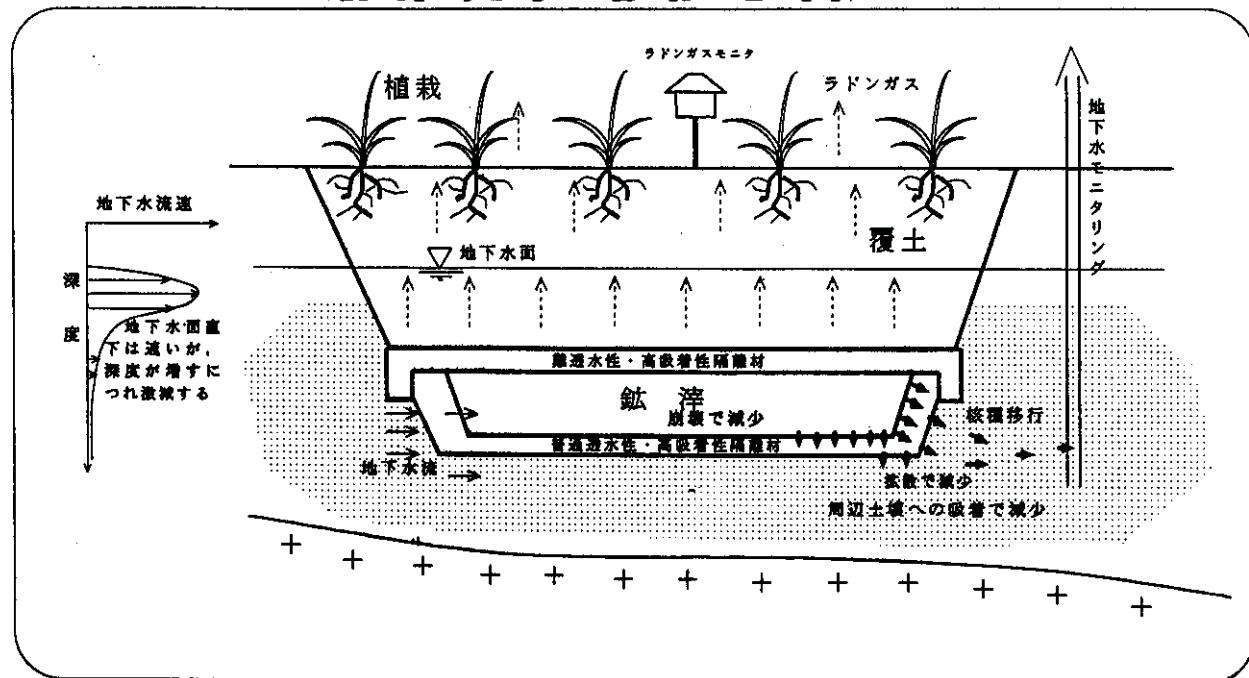


図-6 ウラン鉱滓処置概念図

1-11 鉱滓処置試験

報告者 環境資源開発課

□

1. はじめに

環境保全技術開発の一環として、ウラン鉱山の閉鎖時に跡地の超長期にわたる安全性を確実に担保する技術を確立するために、特に諸外国においても貯蔵管理のみで明確な処置方法がなく対応に困っている鉱滓に重点をおいた鉱滓処置技術開発を行う。この技術開発を行うに当たり、人形町事業所は日本で唯一のウラン鉱滓堆積場を構内に所有しているという利点がある。平成4年度は特に、夜次鉱滓堆積場のウラン鉱滓を用いて、ウラン鉱滓の基礎的な特性の把握、ウラン鉱滓と混和している水を除去する脱水試験及びウラン鉱滓が含有しているウラン・ラジウムの溶出特性を把握する溶出試験を行った。

2. 平成4年度実施内容

① ウラン鉱滓の基礎的な特性の把握

各種試験の基礎データとして活用するために、夜次鉱滓堆積場の泥状の鉱滓、砂状の鉱滓及びヒープリーチング残査の3試料を採取し、含水比、粒度分布、ウラン・ラジウム濃度、鉱物組成等を測定した。

② ウラン鉱滓と混和している水の脱水試験

ウラン鉱滓堆積場の安定化を図るために、図-1に示すように自然乾燥による脱水方法及び排水パイプを用いた脱水方法の適用性試験を行った。

③ ウラン鉱滓が含有しているウラン・ラジウムの溶出試験

鉱滓処置場及び周辺環境中でのウラン・ラジウムの挙動を把握するための基礎試験として、図-2に示すようにパッチ法及びカラム法で溶出試験を行った。

3. 結 果

① ウラン鉱滓の基礎的な特性の把握

表-1に示すように、泥状の鉱滓、砂状の鉱滓及びヒープリーチング残査は、それぞれのウラン濃度が、506ppm, 264ppm, N.D., ラジウム濃度が、15Bq/g, 6.8Bq/g, 0.3Bq/gだった。ウラン鉱滓の処置に係わる調査研究（娘核種の影響）で報告した鉱滓と比較するとウラン濃度が高く、ラジウム濃度は低い値になった。これは、ウラン鉱滓の処置に係わる調査研究（娘核種の影響）で設定したウラン鉱石よりも品位が低い上にウラン抽出率が低い事に起因すると

思われる。また含水比は、164%，23%，12%だった。泥状の鉱滓は、多量の水分を含んでいた。これは、泥状の鉱滓の粒度が小さい事に起因すると思われる。ヒープリーチング残査の含水比が低いのは、屋根のあるヒープ槽内に保管されているため試験以前にある程度乾燥している事に起因すると思われる。鉱物組成では、特殊な鉱物は認められなかった。

② ウラン鉱滓と混和している水の脱水試験

図一3に示すように、自然乾燥試験（水分比）の結果は、泥状の鉱滓は40日弱で、97%の水分が蒸発した。また、砂状の鉱滓は10日強で95%の水分が蒸発した。ここで蒸発率は、図中の式で求めている。泥状の鉱滓は、含有している水分が多いものの脱水時間を短縮すれば蒸発による脱水に期待ができると思われる。また、ヒープリーチング残査が早い時期に低い蒸発率で完了したのは、屋根のあるヒープ槽内に保管されているためにこの試験以前にある程度、乾燥している事に起因すると思われる。排水試験は、孔明管の穴径による脱水状況の顕著な差異は認められなかった。今後は加圧試験が必要と思われる。

③ ウラン鉱滓が含有しているウラン・ラジウムの溶出試験

図一4に示すようにパッチ試験で、鉱滓と蒸留水の固液比を25g/1000ml、攪拌後1日静置したところ、ウランの溶出率は、泥状の鉱滓で9%だった。繰り返し行ったところ、溶出率は減少していくものの同様の結果が得られた。また、砂状の鉱滓及びヒープリーチング残査は、ほとんど溶出は認められなかった。ラジウムの溶出は全試料とも認められなかった。

カラム試験は、通液速度を遅くするとウランの溶出は遅くなったという傾向がわかった。今回は鉱滓の量が不足しており、今後試料を增量して定量的な把握を行う必要がある。

4. 今後の予定

今回の試験は、鉱滓の基礎的な特性を把握するための予備試験として実施した。次年度は、今回得られた試験結果を基に条件を変えた溶出及び脱水試験、さらに小規模試験を行っていく。

今後の予定として、

脱水・固定化技術開発及び処置場の形態保持を行う鉱滓安定化技術開発、

地下水挙動解析技術及び溶出・吸着特性把握を行うウラン・ラジウム等の核種移行解析、

モニタリング技術開発及びシミュレーション解析を行う鉱滓安定化技術開発

を行っていく。

6. 質疑応答

Q：ヒープリーチング残査のウラン、ラジウムとも濃度が低いのはなぜか？

A：中津河の捨石をヒープリーチングしたものがヒープ槽にあり、これを採取したため他の鉱滓と比較して低いと思われる。

Q：中津河の捨石は、100%ウランがとれたのか？

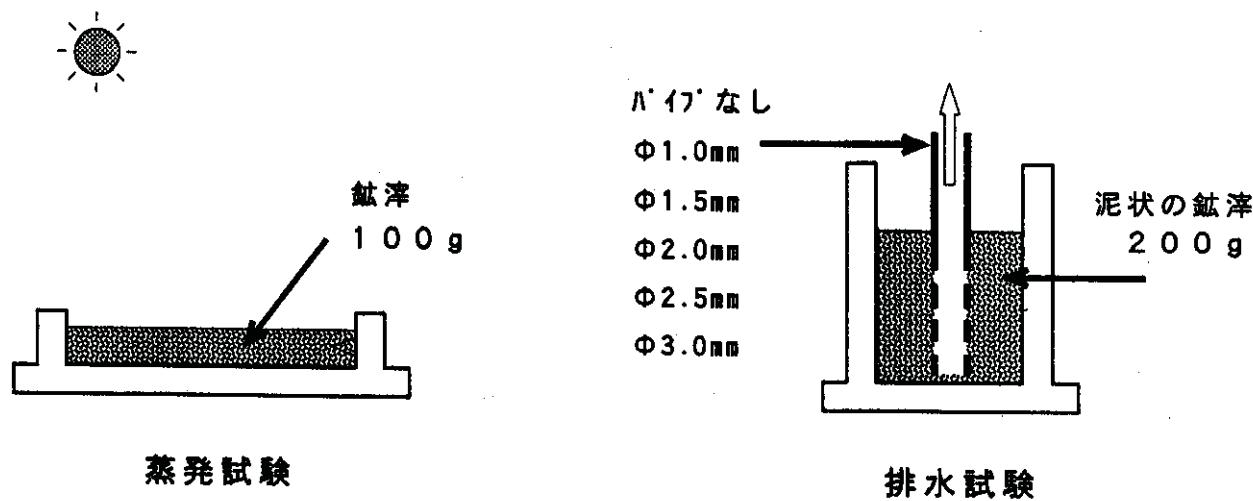
A：概略的なデータを得るためにサンプリングしたため、今回の試料は中津河の捨石をヒープリーチングした残査を代表するものとは考えられない。サンプリングした試料が、ウラン濃度及びラジウム濃度の低いものであったと考えられる。

表一 1 測定結果

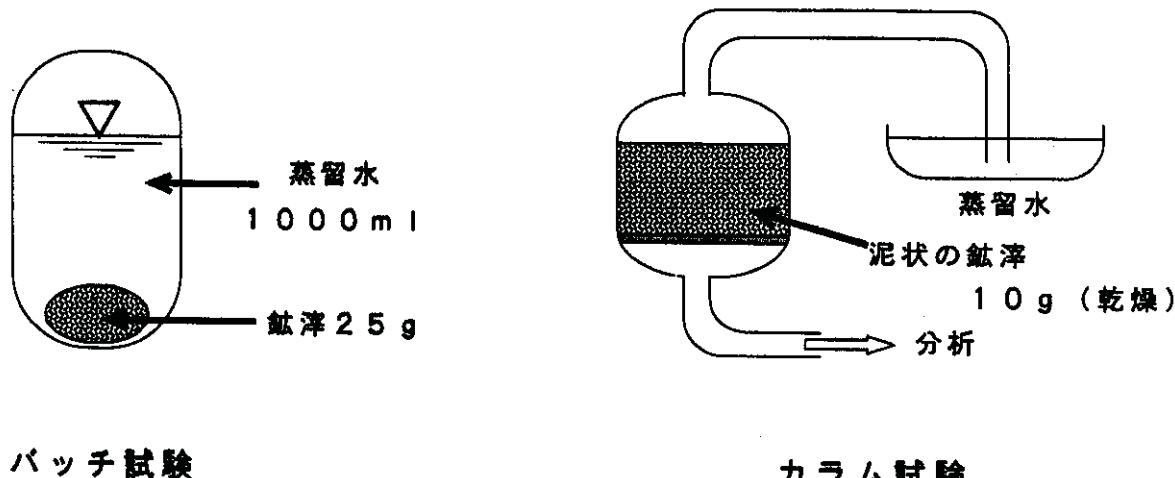
試 料 名	ウラン濃度 (ppm)	ラジウム濃度 (Bq/g)	含水比* ¹ (%)
泥状の鉱滓	506.20	15.01	164.10
砂状の鉱滓	263.90	6.87	23.24
ヒープリーチング残査	N.D.	0.34	11.91

N.D. 検出せず

* 1 : 含水比 = $\frac{\text{湿潤土中の水の質量}}{\text{炉乾燥土の質量}} \times 100 (\%)$



図一 1 蒸発及び排水試験の概要



図一 2 バッチ及びカラム試験の概要

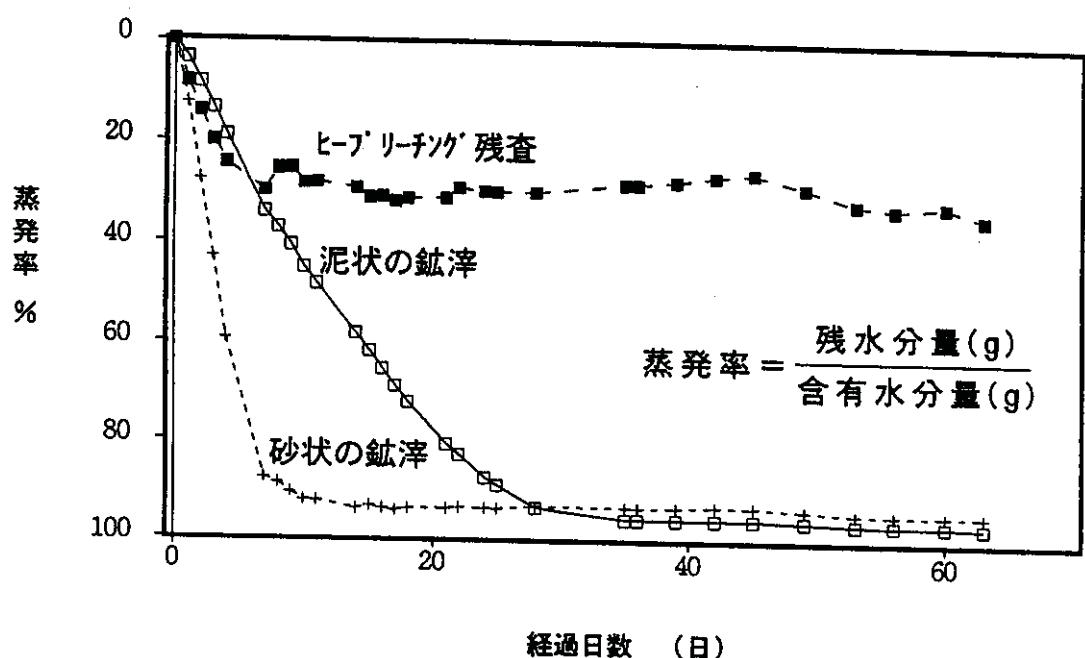


図-3 自然乾燥試験結果 (水分比)

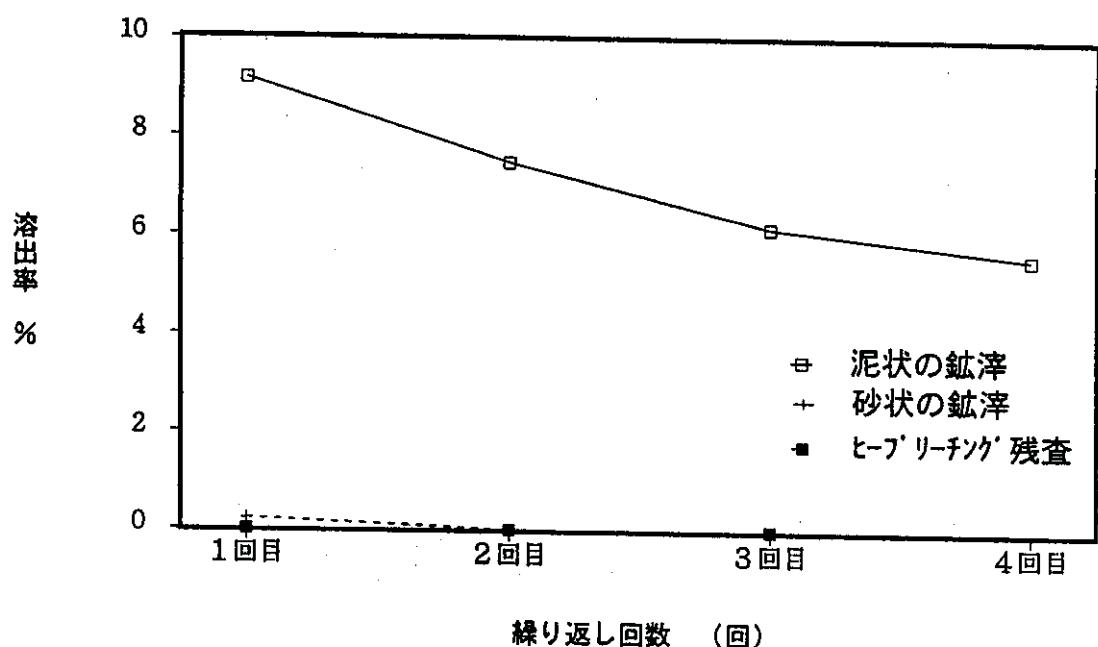


図-4 バッチ試験結果 (ウラン溶出率)

1-12 骨炭によるウラン吸着試験

報告者 環境資源開発課 []

1. 概 要

環境保全技術開発の一環として、ウラン鉱山開発に伴い発生する坑廃水の処理技術開発を行っている。これまでに多数の吸着剤開発を行っており、その中に牛の骨を乾留して製造した「骨炭」がある。現在骨炭は、主に砂糖の精製に使用されており、廃棄時には肥料などに利用される。価格は200円/kg程度で、樹脂と比較しても非常に安価である。骨炭の化学組成は、主にリン酸カルシウムと炭酸カルシウムである。ウランとリンとは非常に親密性が高いことから骨炭へのウランの吸着が十分に期待できるため、坑廃水中に含有するウランの除去・回収を目的としたウラン吸着試験を実施する。

2. 実施内容

(1) ウラン吸着に及ぼす各種要因試験

- ① 供試液のpHによる骨炭のウラン吸着性の影響
- ② 吸着等温線作成による、骨炭の単位重量当たりのウラン吸着量の把握
- ③ 骨炭の粒度の違いによる吸着速度への影響
- ④ カラム法によるウラン吸着試験

(2) ウラン溶離試験

- ① 骨炭のウラン溶離液の検討
- ② カラム法によるウラン溶離試験

3. 結 果

(1) ウラン吸着に及ぼす各種要因試験

- ① 供試液のpHによる骨炭のウラン吸着性の影響

ウラン吸着に及ぼす供給液のpHの影響を確認し、今後の試験で使用する供試液のpHを決定することを目的として行った。その結果、骨炭はpH 3～9の間でウラン吸着を行うことがわかった。また、吸着域以外のpH 2以下pH 9以上の液により、溶離を行うことができると考える（図-1）。

- ② 吸着等温線作成による、骨炭の単位重量当たりのウラン吸着量の把握

骨炭のウラン吸着等温線を求めた結果、ウラン吸着量は最大で 10mg-U/g-Born となり、

樹脂(CR-50)の約2倍のウラン吸着量があることがわかった。また、平衡ウラン濃度とウラン吸着量には直線関係が得られ、これは、フロイントリッヒの吸着等温線に従うことがわかった(図-2)。

③ 骨炭の粒度の違いによる吸着速度への影響

バッチ法により骨炭の粒度の違いによるウラン吸着速度への影響を検討することを目的として行った。その結果、粒度の細かいものほど、吸着速度、吸着量とも良い(図-3)。

④ カラム法によるウラン吸着試験

カラム法による漏出曲線を作成して、骨炭に最適な流速の把握を行い、今後のウラン吸脱着繰り返し試験及びスケールアップ試験に反映させることを目的として行った。その結果、ウラン濃度1.0ppmの溶液で、SV=10の吸着条件で、効率良くウラン吸着を行うことがわかった(図-4)。

(2) ウラン溶離試験

① 骨炭のウラン溶離液の検討

溶離液の検討し表にまとめた結果、1N-硝酸及び0.1M-及び1M炭酸ナトリウムが適していることを確認した(表-1)。しかし、1N-硝酸は骨炭と接触した際に発泡したり白い殿物ができる為、不適当だと判断した。

② カラム法によるウラン溶離試験

カラム法による漏出曲線を作成して、骨炭に最適な流速の把握を行い、今後のウラン吸脱着繰り返し試験及びスケールアップ試験に反映させることを目的として行った。その結果、10ベットまでは理想的な溶離曲線が得られたが、10ベット以降に若干のテーリングがみられたため、今後の検討が必要である(図-5)。

4. 今後の課題

- (1) 小型カラムによる骨炭のウラン吸脱着繰り返し試験
- (2) 骨炭のラジウム吸着試験
- (3) 骨炭の固定化による吸着剤の開発

質 疑 応 答

Q1: 骨炭は最終的に使い終わったらどうするのか、そのまま廃棄するのか?

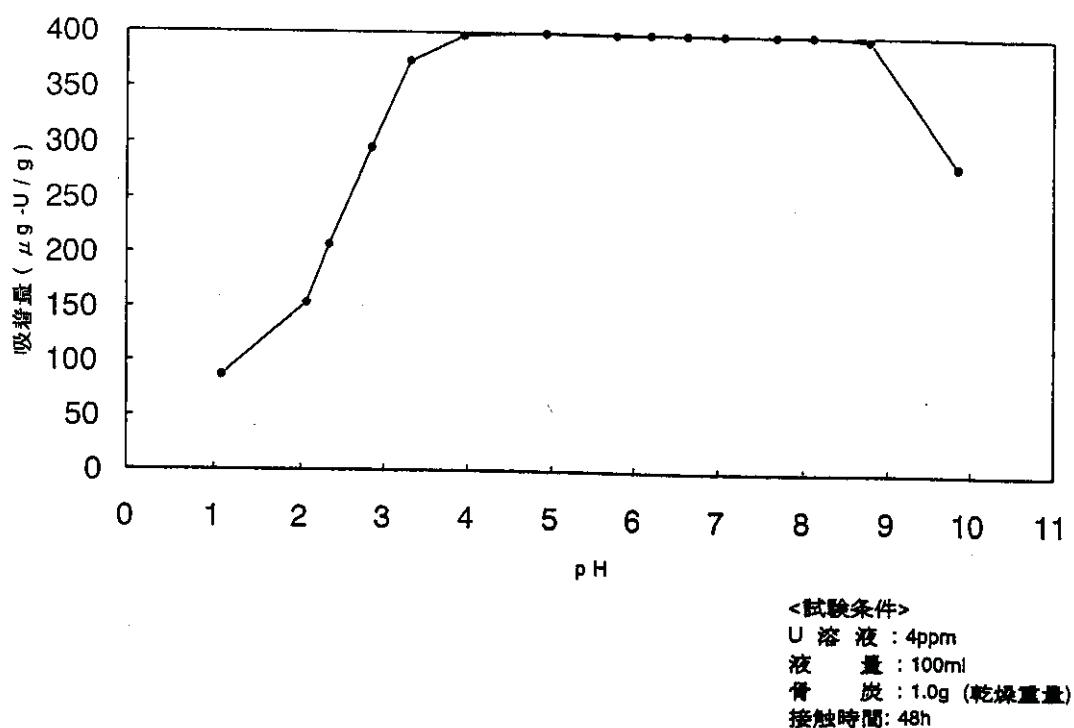
A 1 : 吸脱着繰り返し試験を行ったうえで判断する。

Q 2 : 東濃鉱山の坑廃水処理の考え方は、イオン交換樹脂によるウラン吸着を行い、ウラン量を鉱山保安法の規定外である74Bq/g以下に抑えて、溶離しないでそのまま貯蔵する。骨炭は非常に安いので、吸脱着繰り返し試験する必要があるのか？

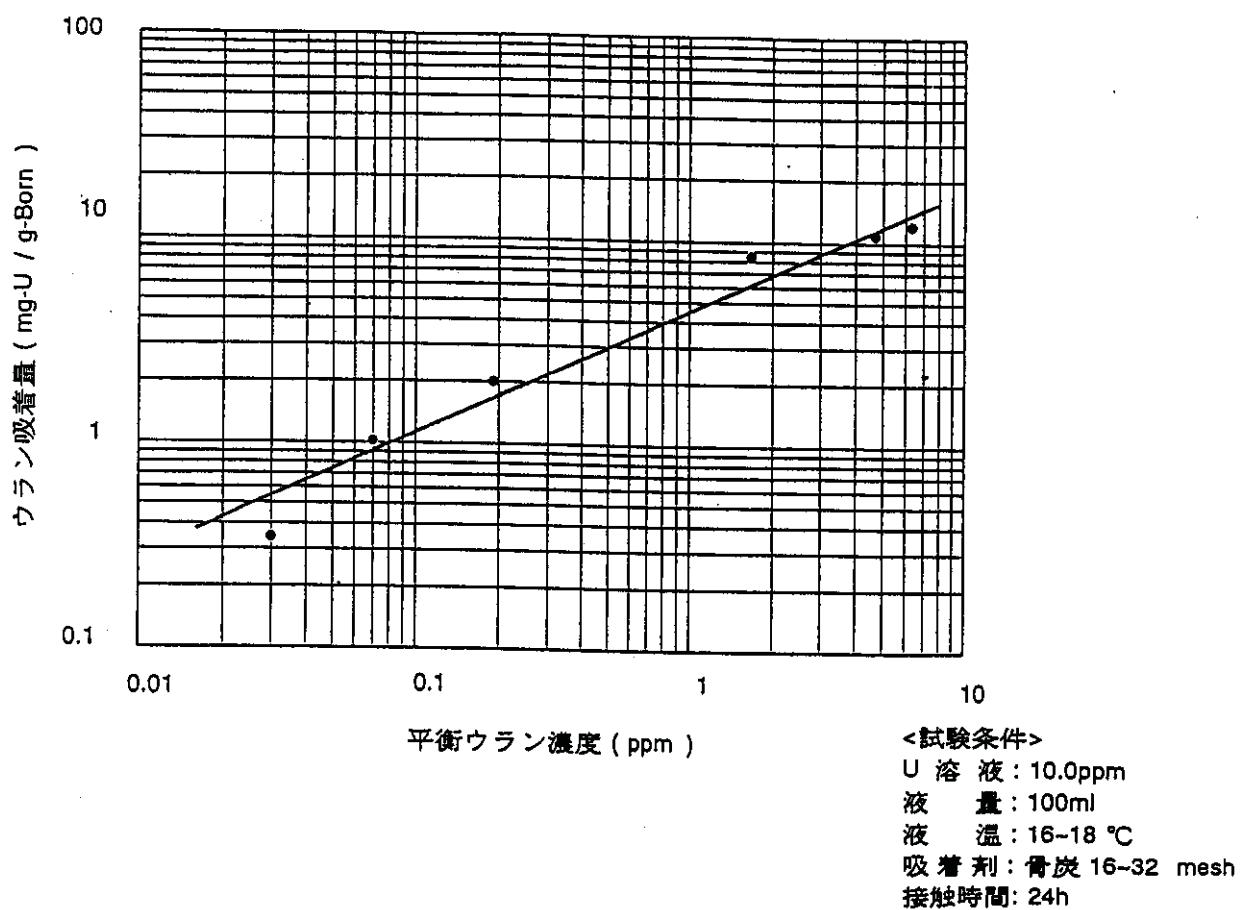
A 2 : コスト計算をしなければいけない。

Q 3 : 試験に使用しているウラン濃度が高いのはどうしてか？

A 3 : 現在のダム廃水のウラン濃度は、非常に低くなっていて処理する必要がないが、濃度を1 ppmにしたのは廃水基準が0.1 ppmなので、その10倍で試験することによって、吸着するかどうかを調べるため。



図一1 ウラン吸着性におよぼすpHの影響



図一2 ウラン吸着等温線

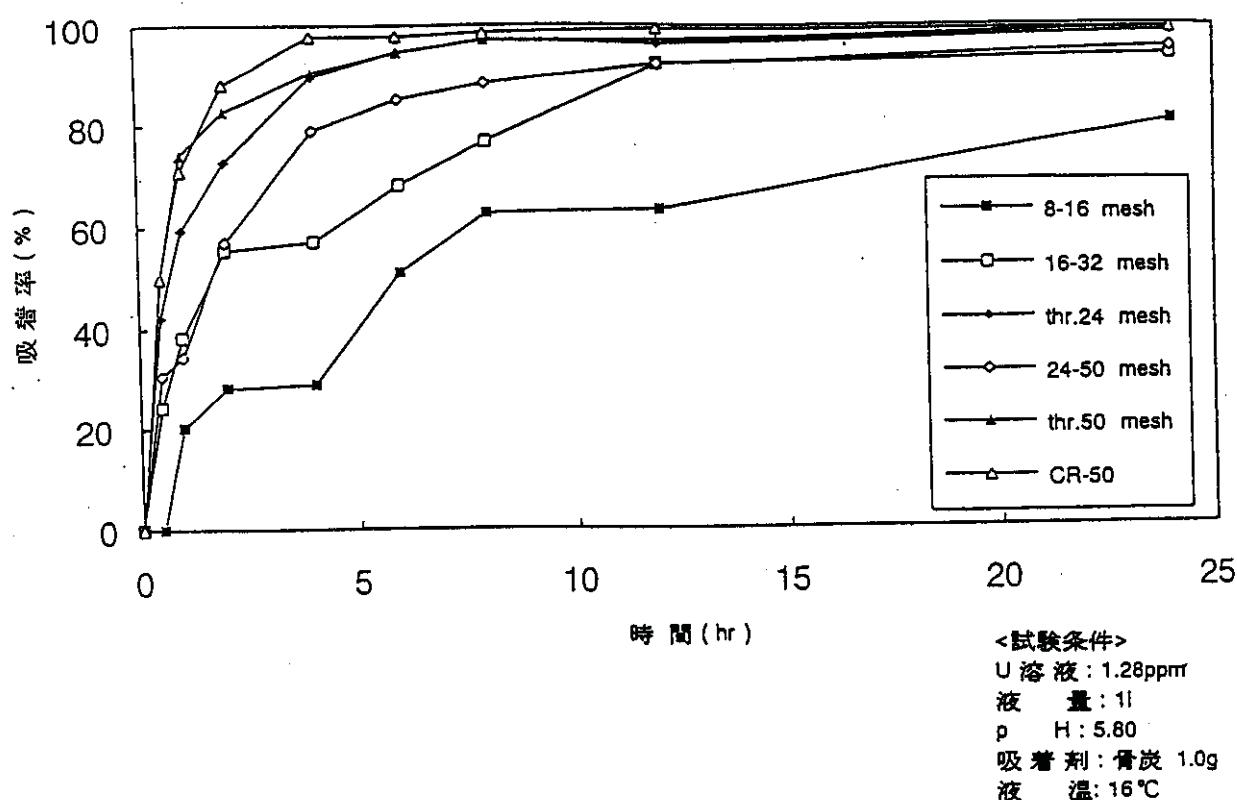


図-3 粒度別ウラン吸着速度

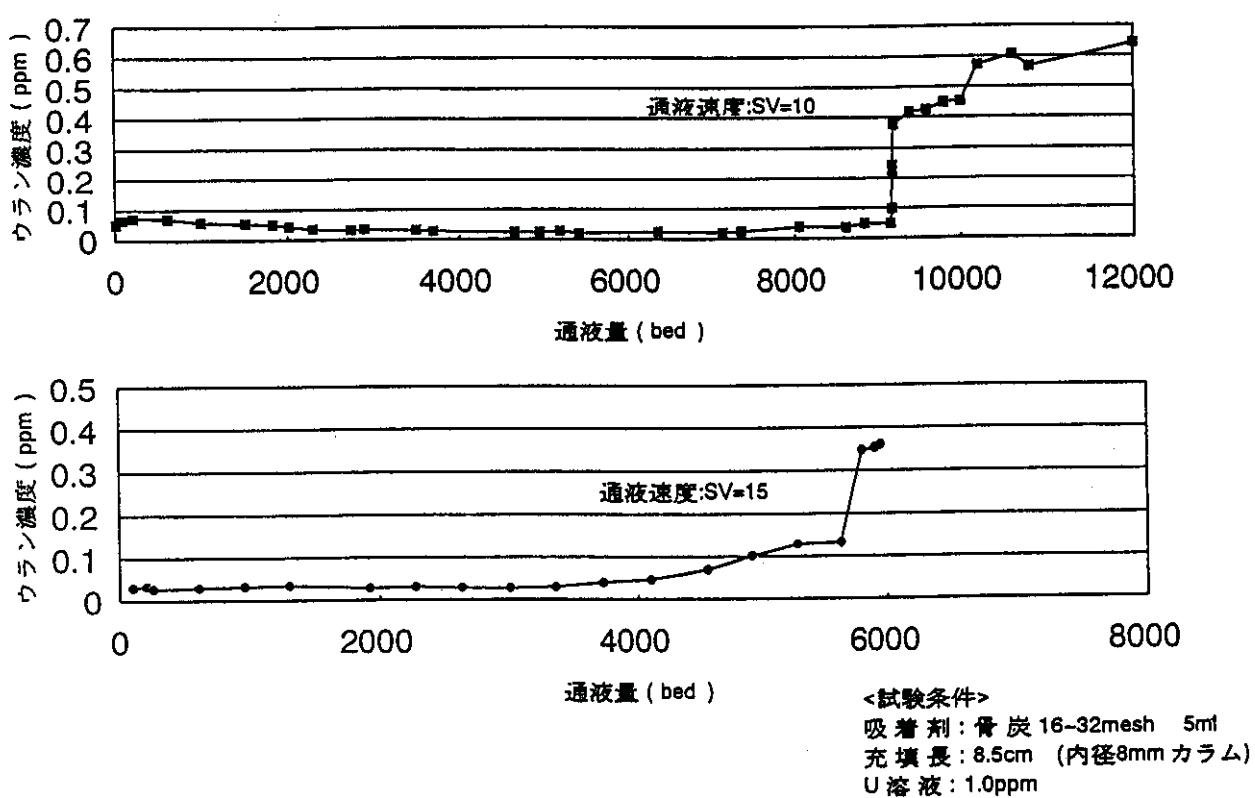


図-4 カラム吸着試験

表一 1 溶離液の検討

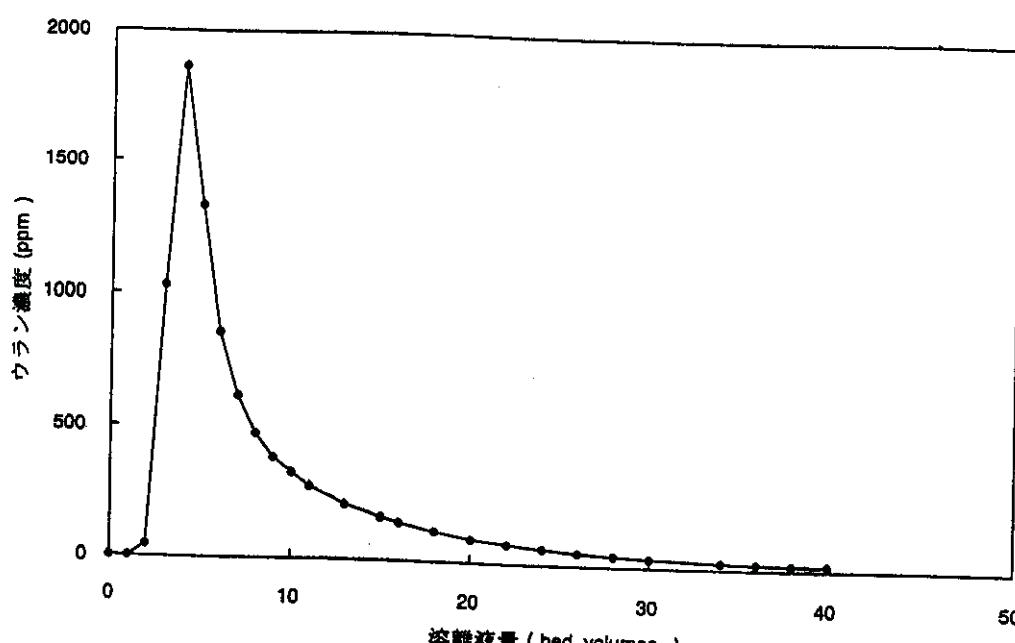
溶離液	ウラン吸着量 (μg)	ウラン溶離液 (μg)	溶離率 (%)
0.01N—硫酸	49.7	1.25	2.5
0.1N—〃	49.1	24.05	49.0
1N—〃	49.5	37.05	74.8
0.01N—硝酸	49.5	1.80	3.6
0.1N—〃	49.5	23.60	47.7
1N—〃	49.0	54.60	111.4
0.01N—塩酸	49.0	1.80	3.7
0.1N—〃	48.7	21.60	44.4
1N—〃	49.0	44.30	90.4
0.1M—炭酸ナトリウム	49.0	53.40	109.0
1M—炭酸ナトリウム	49.5	52.10	105.3
純水	49.5	0.00	0.0

〈試験条件〉 吸着剤：骨炭16~32mesh 1.0g

液量：100ml

液温：常温

搅拌时间：2時間



〈試験条件〉

吸着剤：骨炭 16~32mesh 5ml

充填長：8.5cm (内径8mm カラム)

通液速度：SV=2 (10cc/hr)

図一 5 0.1M炭酸ナトリウムによる溶離曲線

1-13 微生物によるウラン等放射性物質の吸着試験研究

報告者 環境資源開発課

1. 概 要

ウラン鉱山開発に伴って、堆積場や製錬所等の鉱山に係わる一連の施設より様々な廃棄物が発生する。この廃棄物の中の廃水について、自然環境から保護し、安価で適切な処理技術の開発を行っている。この坑廃水処理技術開発において、微生物がウランを選択的に吸着する能力があることを見出しており、この様な微生物を用いたウラン吸着試験を行い、微生物のウラン吸着特性の把握を行うことを目的として試験を行っている。

2. 実施内容

(1) 昨年度分離菌によるウラン吸着試験

平成3年度には、微生物のスクリーニングを実施しており、夜次鉱滓ダムより84種の微生物を分離している。この微生物のウラン吸着能の調査結果を図-1に、優れたウラン吸着能力をもった微生物の形態を図-2に示す。図-1の結果より、最も優れたウラン吸着能力を持っている微生物は5W-2菌であり、平成4年度は、この菌を用いて以下のウラン吸着試験を実施した。

- ① ウラン吸着の経時変化
- ② ウラン吸着に及ぼすpHの影響
- ③ ウラン吸着に及ぼす溶液ウラン濃度の影響
- ④ ウラン吸着平衡

(2) 固定化微生物によるウラン吸着試験

微生物の菌体そのものをカラム法によるウラン吸着試験に使用した場合、カラムから菌体の一部が溶出したり、カラム内で目詰まりを起こしたりすることがある。そこでこの様な欠点を解決する方法として、微生物の菌体をポリアクリルアミド法による固定化を行った（図-3）。この固定化した微生物（以下は固定化微生物という）のウラン吸着能力を調査するために、以下の試験を実施した。

- ① 固定化微生物の最大ウラン吸着量
- ② 固定化微生物のウラン吸着に及ぼすpHの影響
- ③ 固定化微生物によるウラン吸脱着

3. 結 果

(1) 昨年度分離菌によるウラン吸着試験

① ウラン吸着の経時変化

微生物のウラン吸着速度を調査するために、微生物とウラン溶液との接触時間を5分、10分、20分、40分及び60分の5段階として、ウラン吸着の経時変化について試験を行った。その結果、微生物はウラン溶液と5分間の接触によりウラン吸着平衡に達しており、微生物のウラン吸着は極めて短時間で行われることがわかった（図-4）。

② ウラン吸着に及ぼすpHの影響

微生物のウラン吸着に最適なpHを調査するために、ウラン溶液のpH 3～8の6段階に変えて、ウラン吸着に及ぼすpHの影響について試験を行った。その結果、ウラン吸着はpH 6で最大値を示し、pH 5～8の範囲でウラン吸着剤として利用できることがわかった（図-5）。

③ ウラン吸着に及ぼす溶液ウラン濃度の影響

溶液ウラン濃度による微生物のウラン吸着を調査するために、ウラン濃度100ppmまでの溶液を用いて、ウラン吸着に及ぼす溶液ウラン濃度の影響について試験を行った。その結果、微生物のウラン吸着量はウラン濃度が高くなるにつれて増加することを確認した。また、ウラン濃度100ppmのときの微生物のウラン吸着量は504mg-U/gである（図-6）。

④ ウラン吸着平衡

③の微生物のウラン吸着量の結果を用いてウラン吸着平衡図を求めた。その結果、ウラン吸着量と平衡ウラン濃度は直線関係があることがわかった。これはフロイントリッヒの吸着等温式 $X = kc^{1/m}$ に従うことより、微生物のウラン吸着は細胞物質への物理化学的吸着であることを確認した（図-7）。

(2) 固定化微生物によるウラン吸着試験

① ウラン吸着量

微生物の菌体を固定化した場合のウラン吸着量を調査するため、内径5mmのカラムを用いて固定化微生物のウラン吸着量について試験を行った。その結果、固定化微生物の最大ウラン吸着量は259mg-U/gであることを確認した（図-8）。

② ウラン吸着に及ぼすpHの影響

固定化微生物のウラン吸着に最適なpHを調査するために、固定化微生物のウラン吸着に及ぼすpHの影響について試験を行った。その結果、ウラン吸着はpH 6で最大値を示すことがわかった（図-9）。しかし、固定化しない微生物のpHの影響と比較した場合、ウラン吸着を行

うpH領域は変化しないが、ウラン吸着量が低下することを確認した（図-10）。

③ ウランの吸脱着

内径7mmのカラムを用いて、10ppmのウラン溶液15mlをSV 20h⁻¹で吸着させ、0.1M炭酸ナトリウム溶液10mlで脱着し、ウラン吸脱着繰り返し試験を行った。その結果、ウラン吸脱着を5回繰り返しても固定化微生物のウラン吸着能力の劣化は認められなかった。

4. 今後の課題

昨年度分離した微生物及び固定化微生物は、優れたウラン吸着能力を持っていることが明らかとなった。以上の基礎的な知見に基づいて今後次の事項を検討し、実用化への展開を図っていきたいと考えている。

- (1) ppmレベルの微量ウランを含む実廃液（夜次鉱滓ダム水）について、ウラン回収試験を行う。
- (2) 微生物のスクリーニング時期が冬期で、微細藻類の収集が不十分だったため、微細藻類が良く繁殖している夏期に調査を行う。
- (3) 微生物の増殖する温度、栄養等の条件を調査し、スケールアップ試験を行う。
- (4) 微生物のラジウム吸着能力を調査し、ラジウム回収除去の可能性について検討する。

質 疑 応 答

Q 1 : 微生物のウラン吸着試験の結果は、固定化微生物には当てはまらないのか？

A 1 : 固定化しない微生物と固定化微生物では、ウラン吸着量が若干異なるが、その他の能力は、固定化微生物にも当てはまる。

Q 2 : このような研究は諸外国で行われていないのか？ その研究されている微生物と比較して、今回分離した微生物はどのような性能なのか？

A 2 : 微生物の研究は、諸外国においても行われている。今回分離した微生物の同定は行っていないので、同定を行う必要がある。また、ウラン吸着能力の優れているBacillus subtilis（枯草菌）と昨年度分離菌との比較を行っている。この結果、昨年度分離菌は枯草菌と同様の優れたウラン吸着能力を持っていることがわかっている。

Q 3 : 微生物の吸着性能やメカニズムが解明できたら、バイオテクノロジーを用いて大幅に性能がアップした微生物を作り出すことができるのではないか？

A 3 : 今後の課題のなかには含んでいないが、今後は遺伝子組み換え微生物を作り出す計画をしている。

Q 4 : 微生物の組み換えを行う場合、微生物の専門家と提携して行うのがよいが、微生物の研究会には参加されているのでは？

A 4 : 人形峠事業所の微生物研究は今回が始めてでなく、昭和40年代に硫酸還元菌を用いたバクテリアリーチングを実施している。また、微生物の工業面における応用の研究会に参加しており、今後はその研究会で活発に活動したいと考えている。

Q 5 : 物理化学的な細胞物質への吸着とはどういうことか？

A 5 : フロイントリッヒの吸着等温式に従い、ウラン吸着量と平衡ウラン濃度が直線関係があることより、生物学的な細胞への吸着ではなく、吸着剤と同様な吸着であるとして、物理化学的な吸着と表現した。

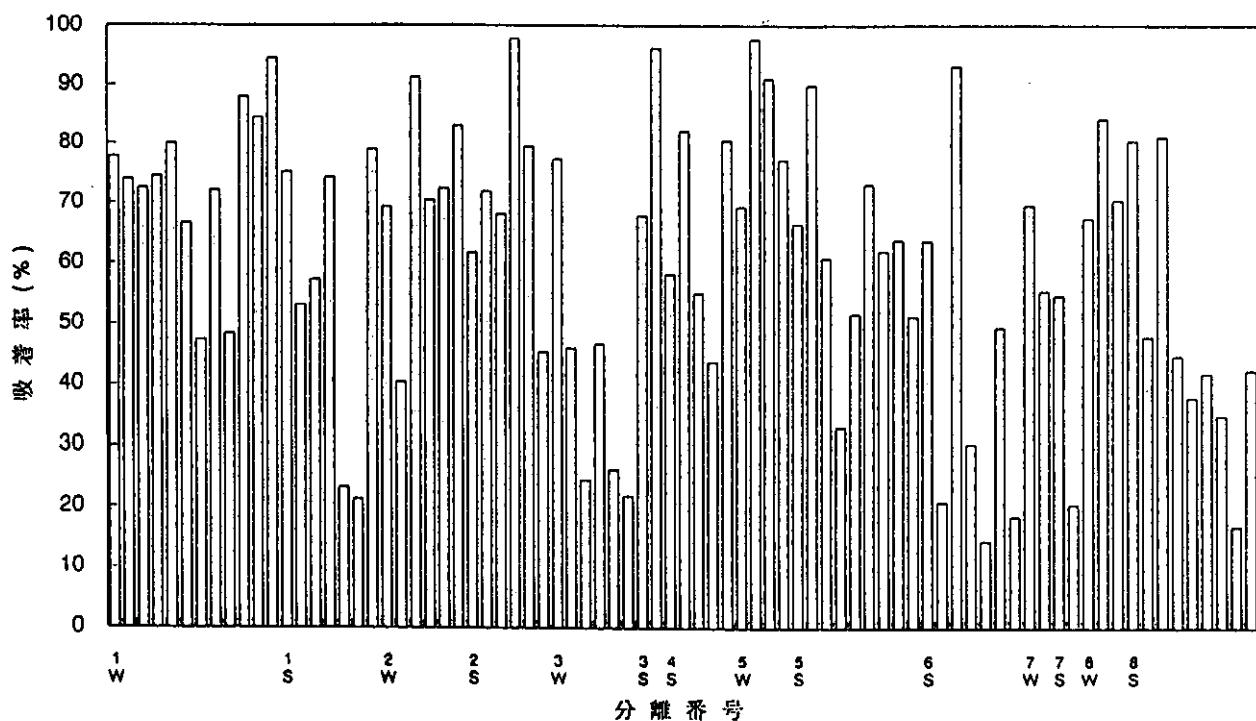
夜次鉱滓ダムで分離した微生物のウラン吸着は、細胞の表面への吸着なのか、又は体内への取り込みなのかは不明であるため、今後の調査が必要である。

Q 6 : 吸着試験のウラン濃度が10ppmであるのは何故か？

A 6 : 実廃液（夜次鉱滓ダム水）を用いたウラン回収試験のみならず、製錬廃水等の比較的ウラン濃度の高いものにも応用できるため。

Q 7 : 微生物を生き物として扱っていないため、生物学的な捉え方がされていない。

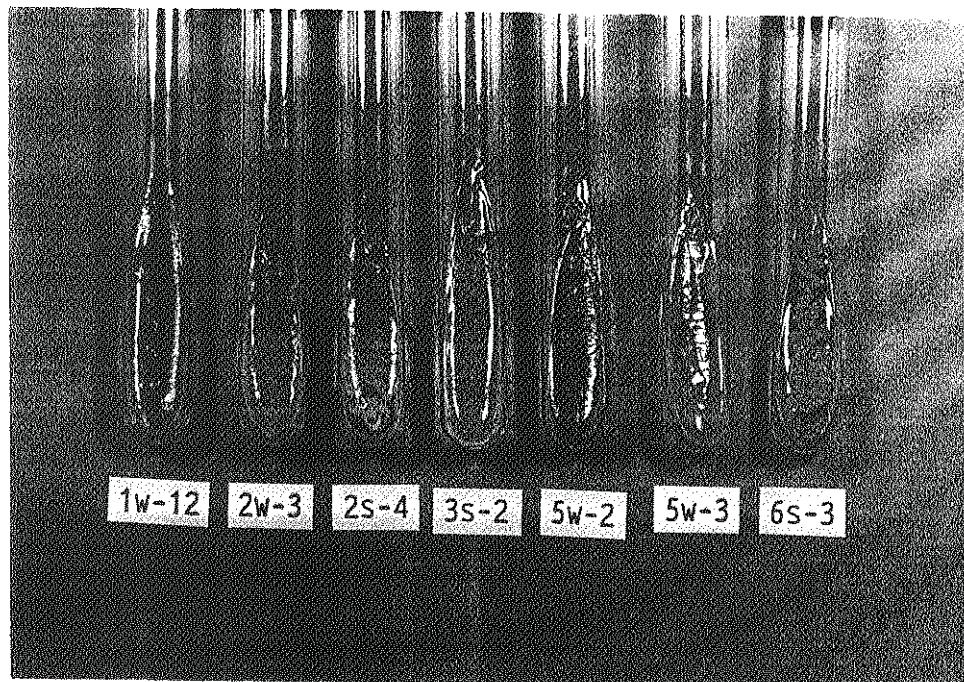
A 7 : 吸着試験に用いた微生物は、乾燥させて死んでいるため、吸着剤として扱っている。



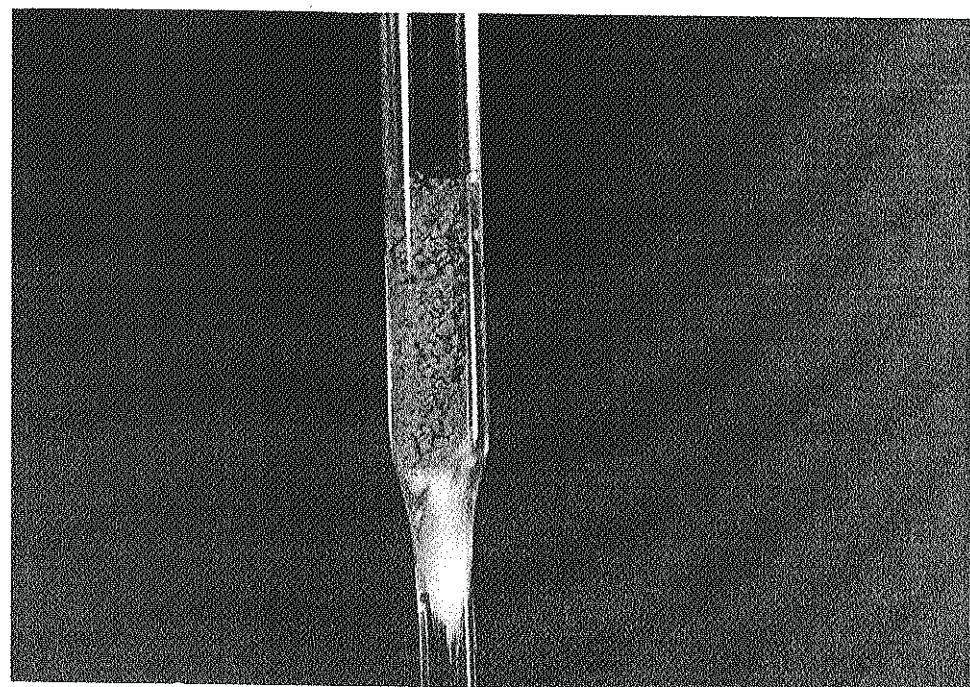
図一1 平成3年度の分離微生物のウラン吸着試験

20ppmのウランを含む水溶液100mlに、菌体15mg（乾重量として）を、室温で、1時間攪拌しながら接触させた。遠心分離後、上清中ウラン量をICP法で定量した。

分離番号：左端の数字は夜次鉱滓ダムからの採取地点を、Wは水系からの、Sは土壤系からの分離を示す。また、右端の番号は分離番号を示す。



図一 2 分離微生物の形態



図一 3 微生物の固定化

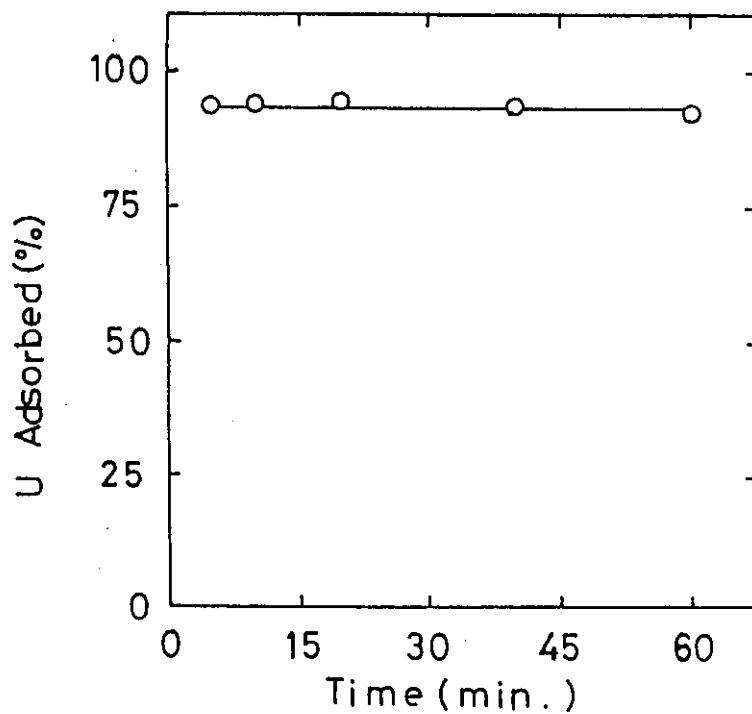


図-4 微生物のウラン吸着の経時変化
10ppmのウランを含む水溶液200ml (pH6) に、菌体（乾重量：15mg）を、室温で、攪拌しながら一定時間接触させた。遠心分離後、上清中のウラン量をICP法で定量した。

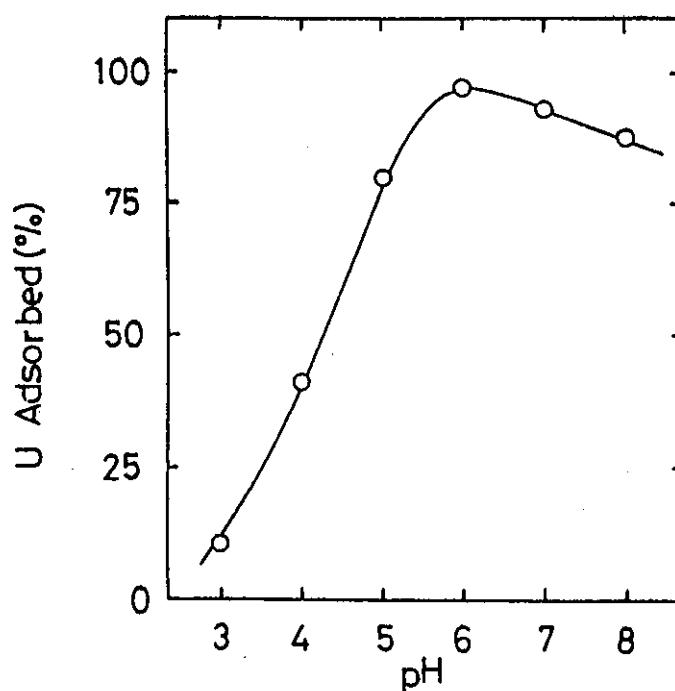


図-5 微生物のウラン吸着に及ぼすpHの影響
10ppmのウランを含む水溶液200mlに、菌体（乾重量：15mg）を、室温で、攪拌しながら1時間接触させた。遠心分離後、上清中のウランをICP法で定量した。

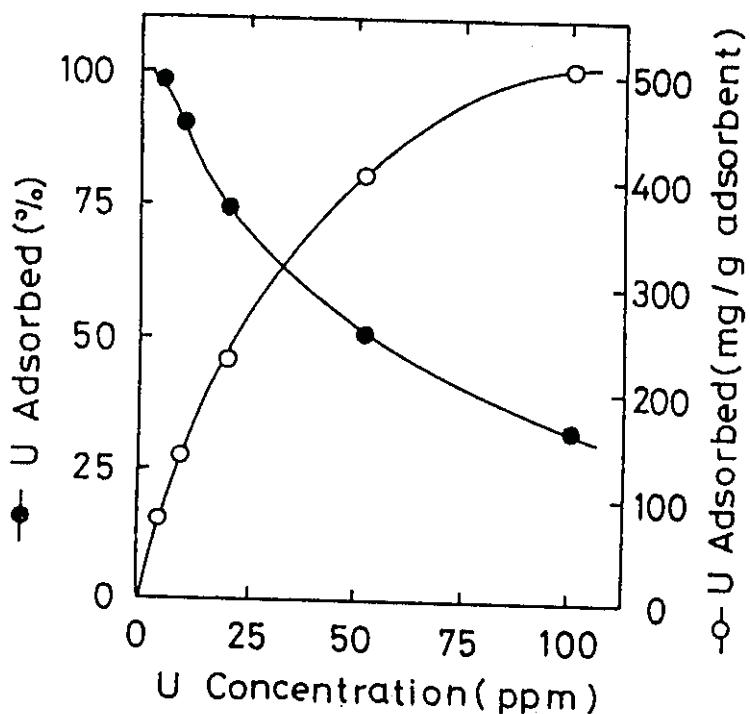


図-6 微生物のウラン吸着に及ぼす溶液ウラン濃度の影響

所定量のウランを含む水溶液200ml (pH6) に、菌体(乾重量: 15mg)を、室温で、攪拌しながら1時間接触させた。遠心分離後、上清中のウラン量をICP法で定量した。

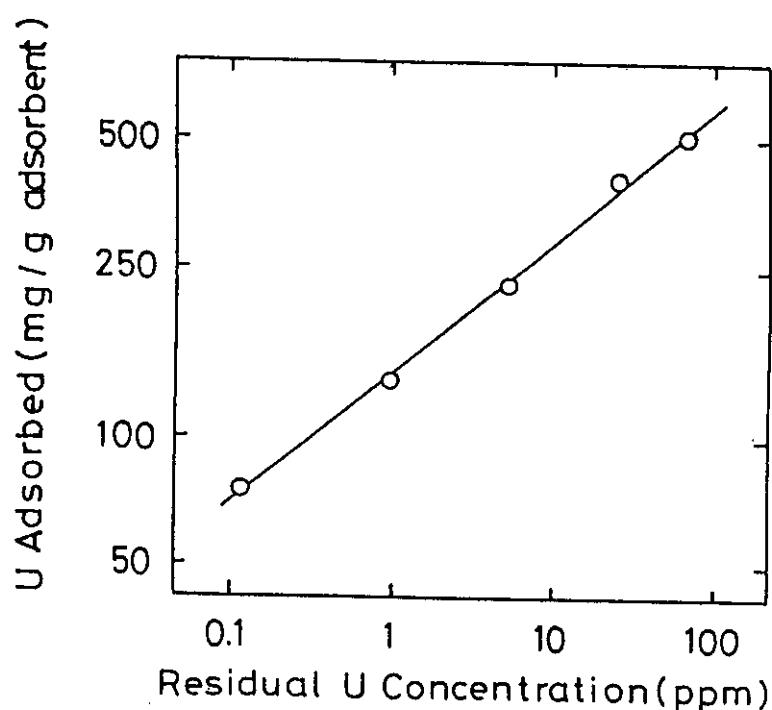
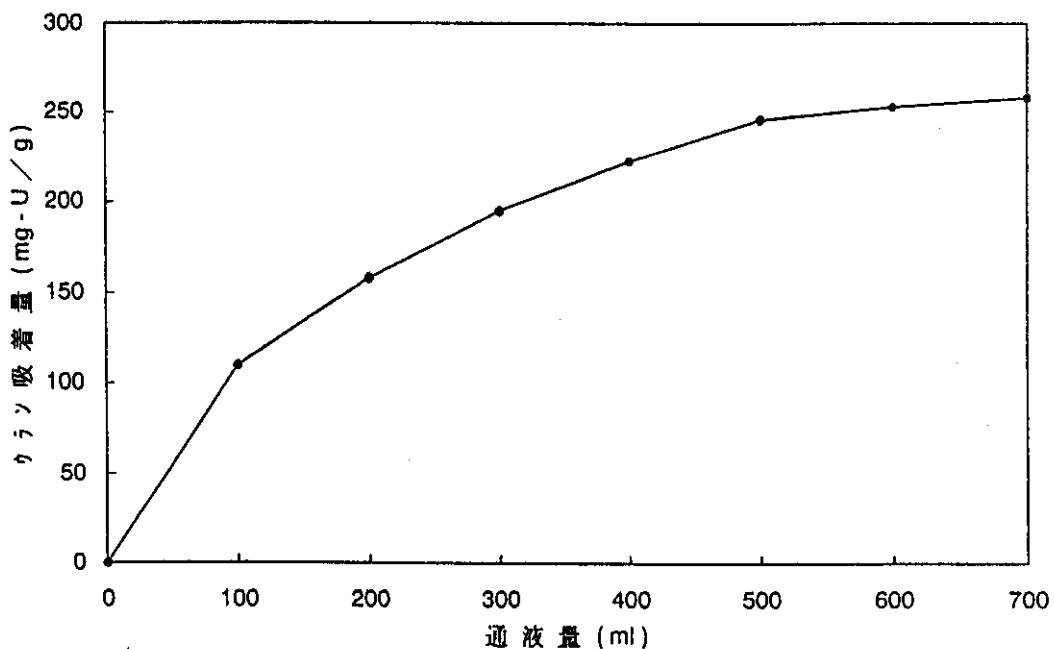
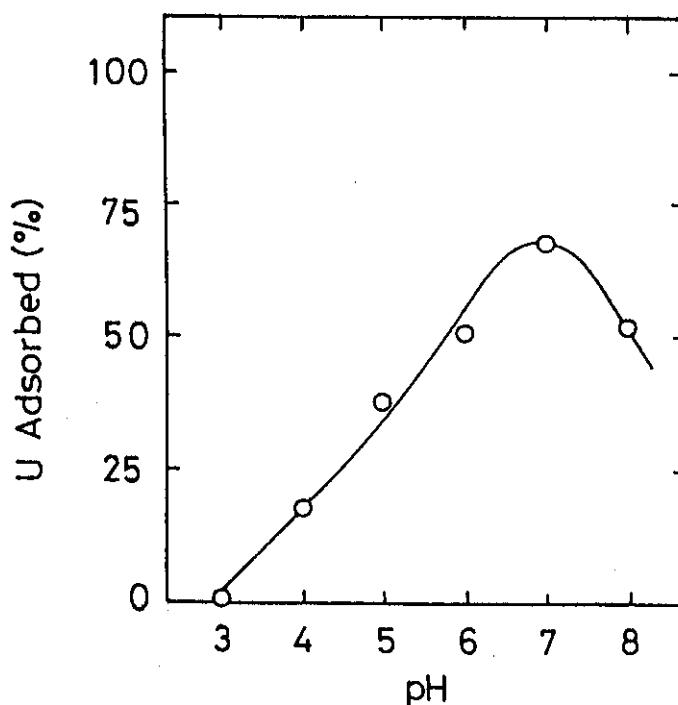


図-7 微生物によるウラン吸着平衡



図一8 固定化微生物の最大ウラン吸着量

ポリアクリルアミド法で固定化した微生物菌体（菌体含有率64.9%）を、内径5mmのカラムに充填し（床容積0.4mℓ）、50ppmのウランを含む水溶液（pH5.8）をSV 25h⁻¹で流下させた。なお、溶液は100mℓずつ分取し、ウランをICP法で定量した。



図一9 固定化微生物のウラン吸着に及ぼすpHの影響

10ppmのウランを含む水溶液200mℓに、菌体（乾重量：15mg）を室温で、攪拌しながら1時間接触させた。遠心分離後、上清中のウランをICP法で定量した。

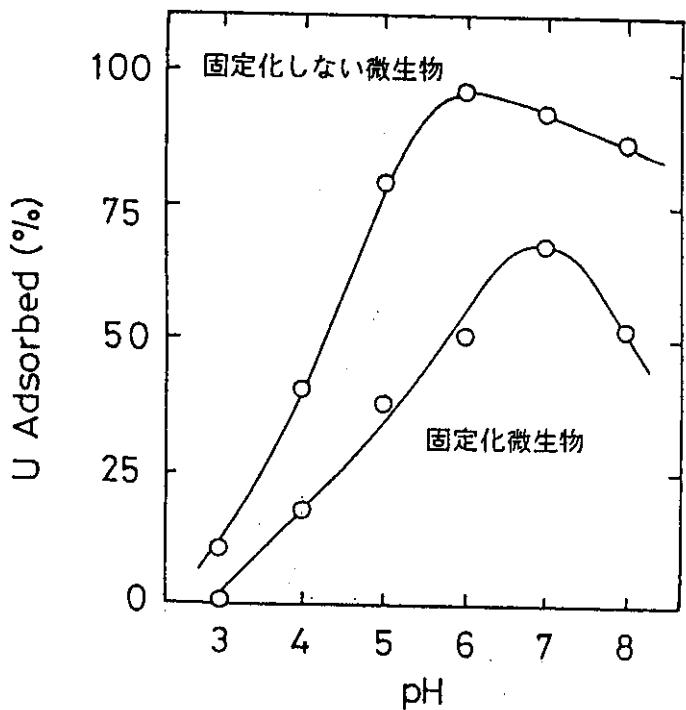


図-10 微生物の固定化によるpHの影響の比較

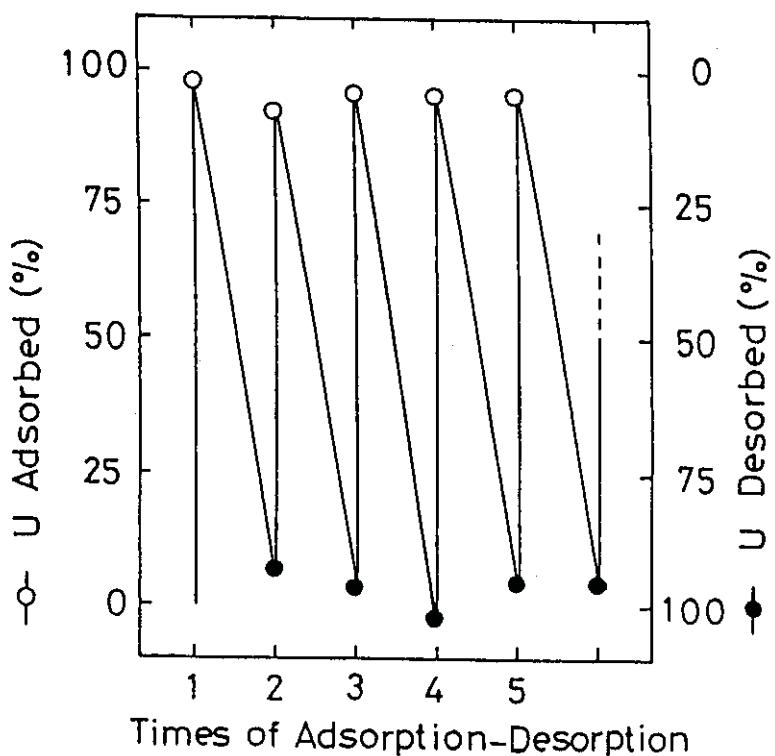


図-11 固定化微生物によるウランの吸脱着繰り返し試験

固定化微生物を内径 7 mm のカラムに充填し (床容積 1 mL), 10 ppm のウランを含む水溶液 (pH 6) 15 mL を, SV 20 h⁻¹ で流下させた。吸着されたウランは 0.1 M Na₂CO₃ 溶液 10 mL で脱着した。

1-14 地下水の化学組成の成因（水・岩石反応試験によるイオン交換反応の検討）

報告者 環境資源開発課

1. はじめに

深部地下水の化学組成の成因の解明は、地下深部の水理地質環境を把握する上で重要な課題となっている。結晶質岩地域における天水起源の地下水は、節理、断層、破碎帯などの岩盤中の割れ目を流動していることが知られている。岩盤中の割れ目には、閉じた割れ目や開いたものがあり、そこには沸石類や粘土鉱物を始めとする様々な鉱物が普遍的に充填している。したがって、地下水の水質形成機構においては、基質の岩石のみならず、割れ目およびその周辺部に見られる鉱物との反応が重要である。特に、結晶質岩地域において広く見られる $\text{Na}^+-\text{HCO}_3^-$ 型の地下水の水質形成では、これまでの試験によりスメクタイトおよび沸石類によるイオン交換反応の寄与が大きいことが分かってきた。平成4年度においては、平成3年度までの試験結果をもとに、スメクタイトおよび沸石類によるイオン交換反応について検討を行った。

2. 実施内容

結晶質岩中の割れ目に普遍的に存在するスメクタイトおよび沸石類を対象にした以下の測定および試験を実施した。

- (1) 基質の岩石および一般的な割れ目充填鉱物の陽イオン交換容量および交換性陽イオンの測定
- (2) スメクタイトおよび沸石類を用いた常温常圧下、バッチ式の水・岩石反応試験
溶液試料：イオン交換水、 $\text{Ca}^{2+}-\text{HCO}_3^-$ 型溶液
雰囲気：大気、水素
- (3) 試験結果と野外調査の結果との比較

3. 主な結果

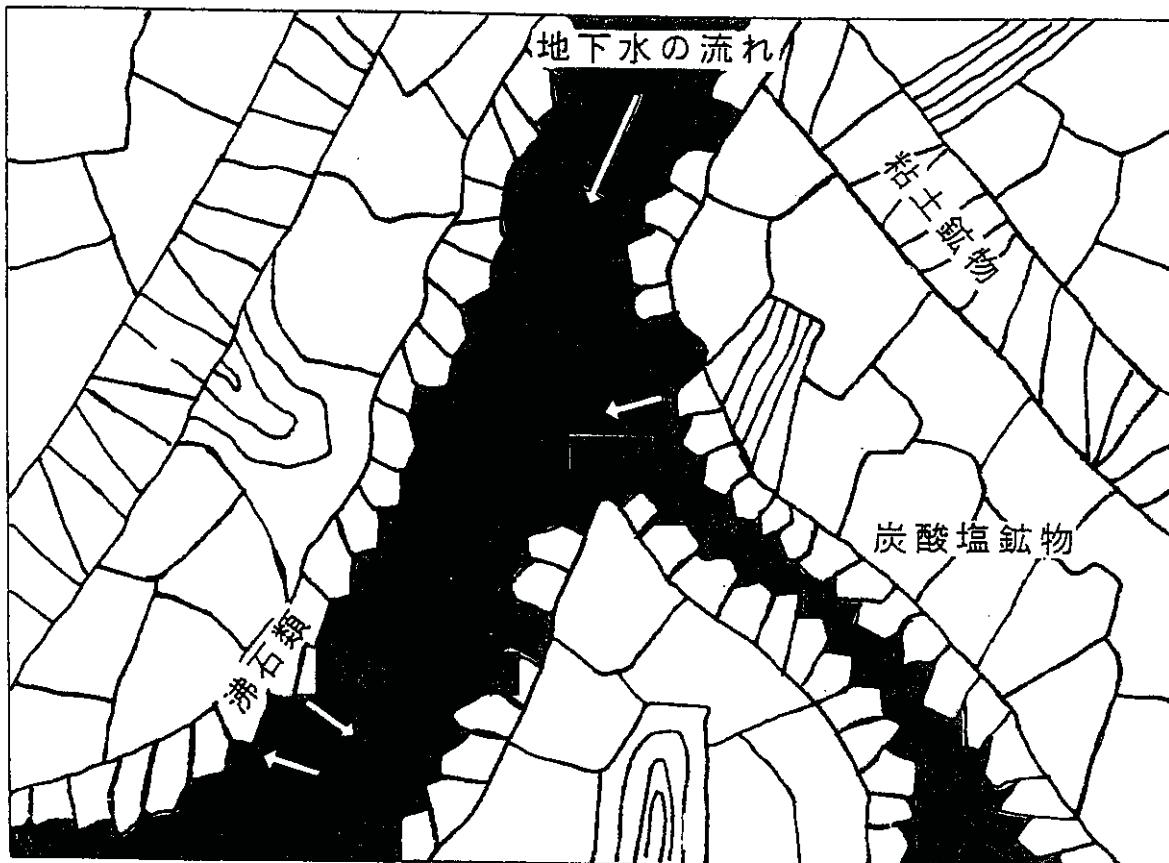
- (1) スメクタイトおよび沸石類の陽イオン交換容量は、それぞれ76.2, 26.0 me/100gである。またこれらの鉱物は、他の基質の岩石および割れ目充填鉱物に比べ、交換性陽イオンの Na^+ を多く含んでいる。
- (2) 蒸留水とスメクタイトを用いた試験結果は、大気雰囲気下では $\text{Na}^+-\text{SO}_4^{2-}$ 型、水素雰囲気下では $\text{Na}^+-\text{HCO}_3^-$ 型の水質になる。また、蒸留水と沸石類では、 $\text{Ca}^{2+}-\text{HCO}_3^-$ 型の水質になる。
- (3) $\text{Ca}^{2+}-\text{HCO}_3^-$ 型溶液を用いた試験結果は、スメクタイトおよび沸石類いずれでも、溶液中の

Ca^{2+} が減り、 Na^+ が増加した。

- (4) 釜石および人形崎地域の花崗岩類中にみられる $\text{Na}^+-\text{HCO}_3^-$ -型の地下水は、溶液中の Ca^{2+} と割れ目充填鉱物中の交換性陽イオンの Na^+ によるイオン交換反応により形成したと考えられる。

4. 今後の予定

- (1) 様々な結晶質岩、堆積岩類と、地下水（天水起源、海水起源）を用いた水・岩石反応試験
- (2) 鉱物の溶解、イオン交換反応の水質への影響の定量的評価



図一1 地下水と鉱物の反応の模式図

花崗岩類などの結晶質岩中の割れ目として、閉じたものや開いたものが見られ、地下水の水みちとして重要である。また、割れ目には様々な鉱物が充填しており、これらの鉱物と水との反応により地下水の水質は変化すると考えられる。

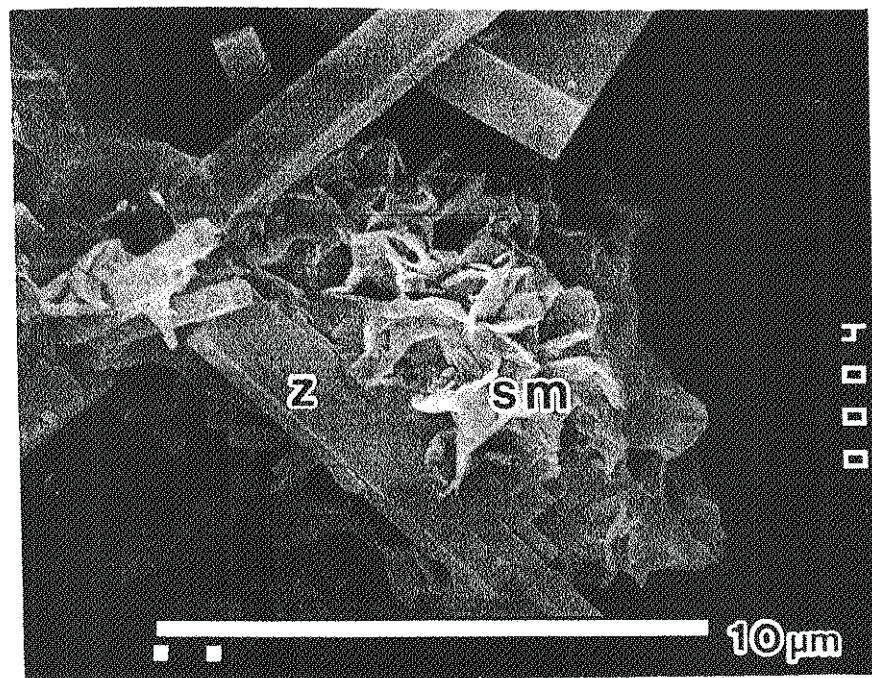
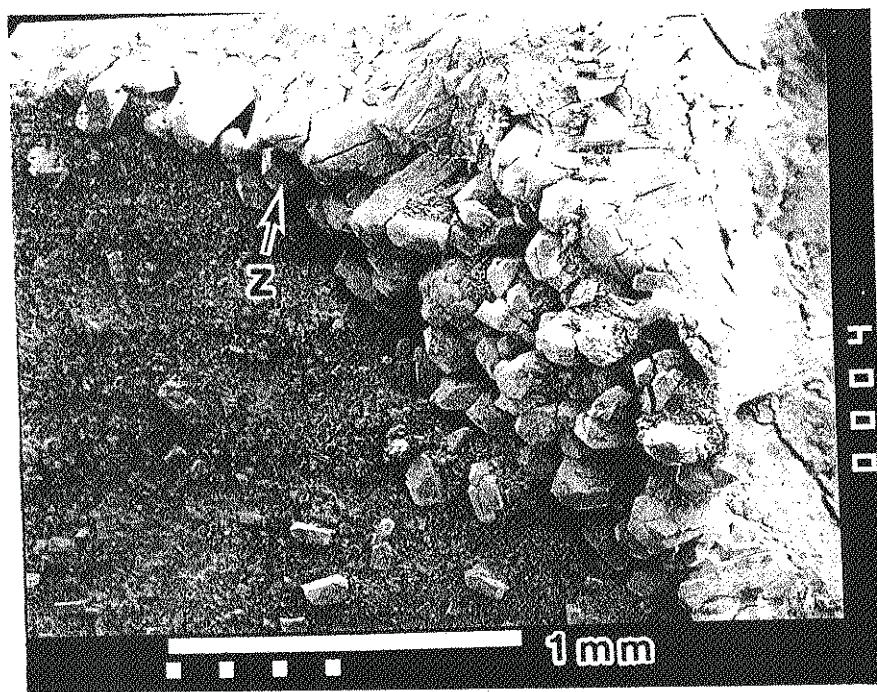


図-2 花崗岩類中の割れ目充填鉱物の走査型電子顕微鏡写真
釜石地域の栗橋花崗閃緑岩の例。割れ目の空隙には沸石類（z）や
スメクタイト（sm）が見られる。

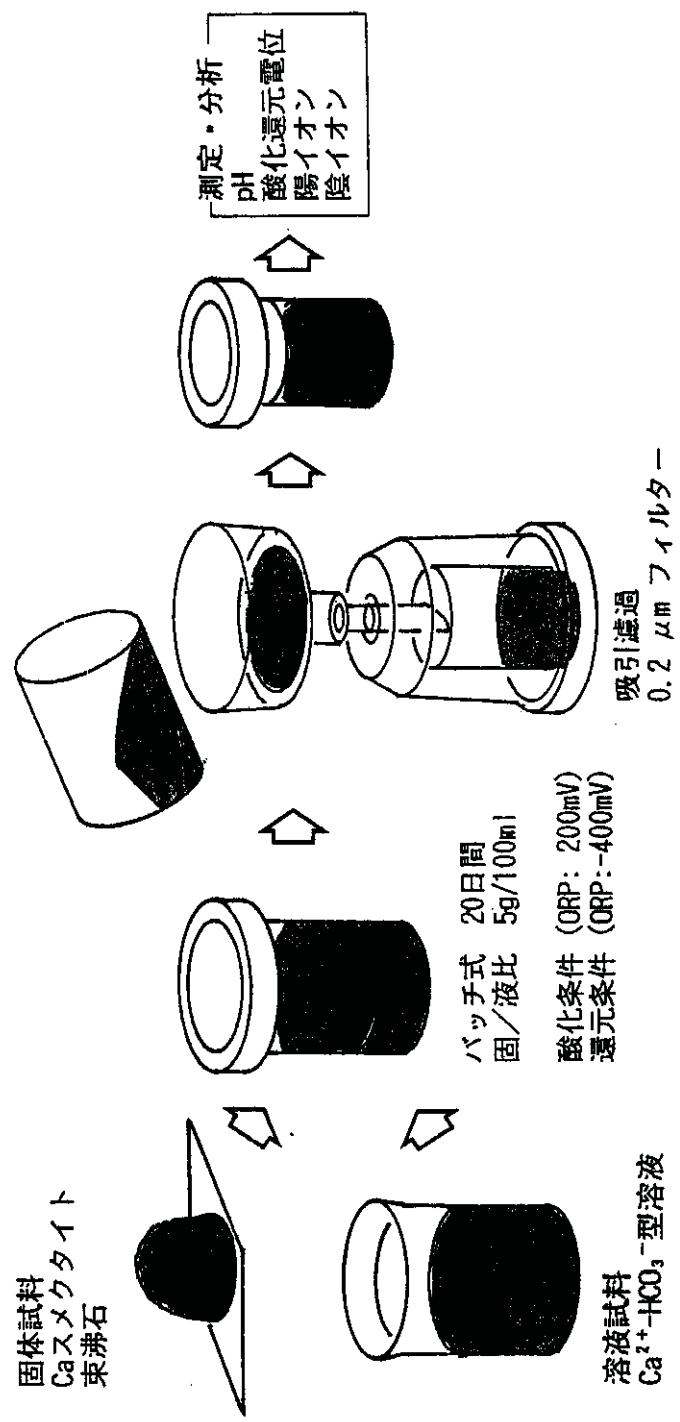


図-3 水・岩石反応試験の試験方法

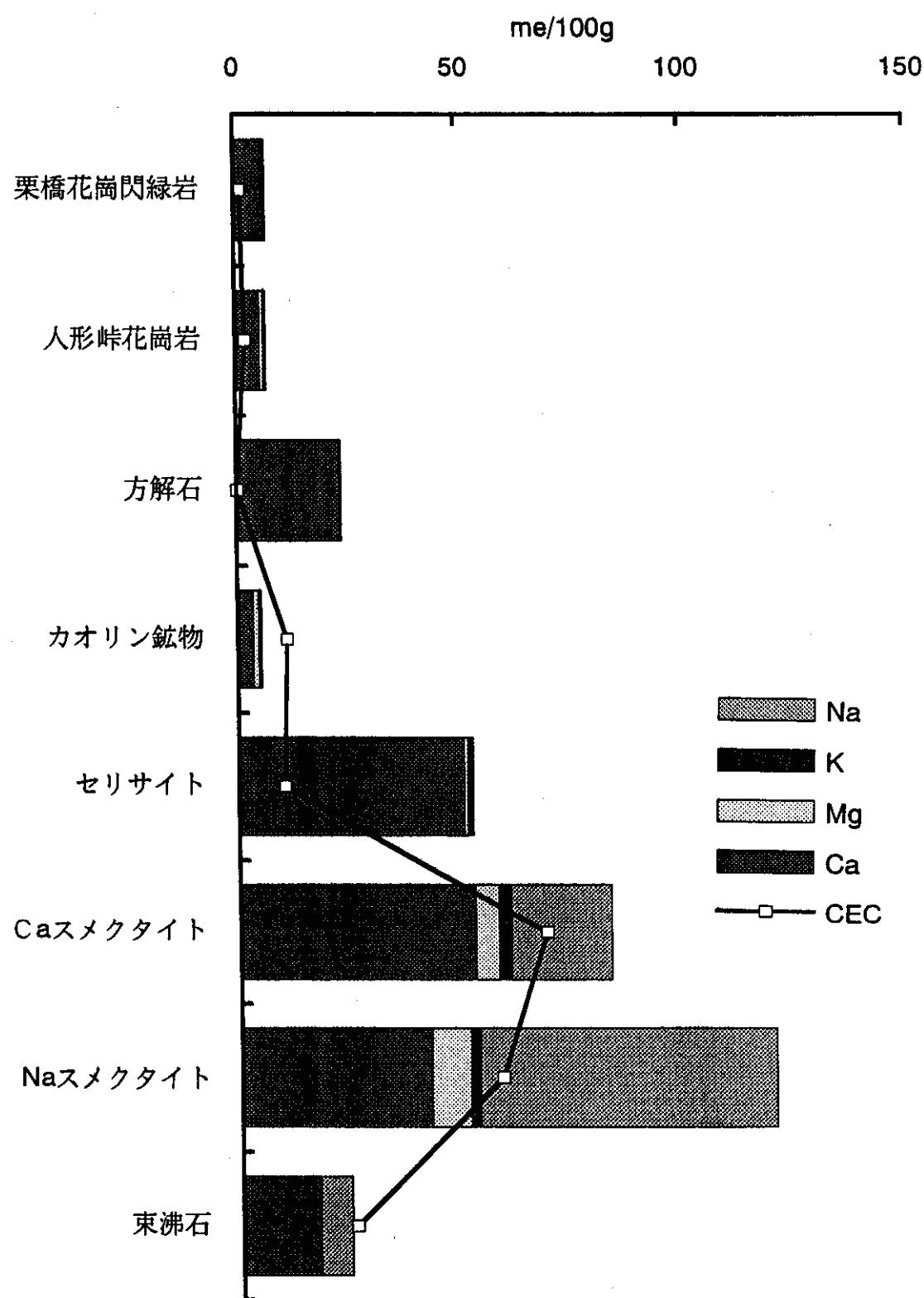


図-4 岩石鉱物のCECおよび交換性陽イオンの測定結果
スメクタイトおよび東沸石のCEC、交換性陽イオンとしての Na^+ が他の試料に比べて高い値を示す。

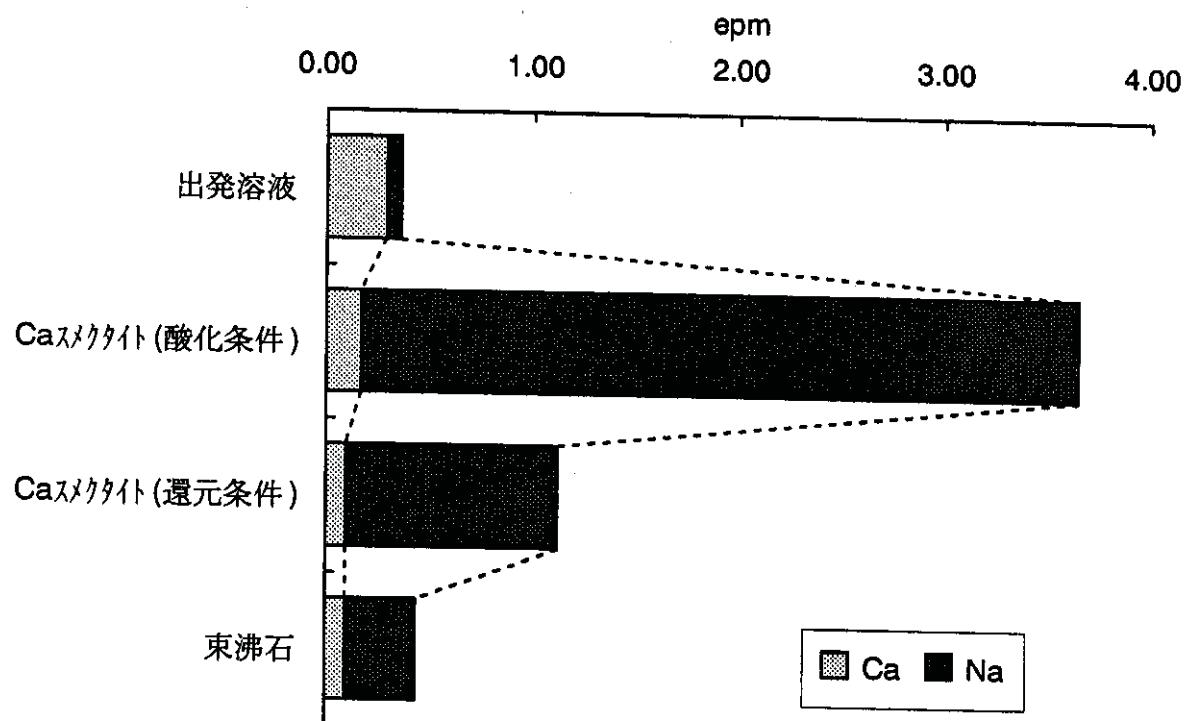


図-5 Ca^{2+} - HCO_3^- 型溶液を用いた水・岩石反応試験の結果

Ca^{2+} と Na^+ 濃度に注目すると、いずれの試験でも初期組成に比べて Ca^{2+} が減少し、 Na^+ が増加している。 Ca^{2+} と Na^+ の合計が初期濃度に比べ高いことは、鉱物-溶液間で溶解とともに Ca^{2+} と Na^+ のイオン交換反応が進んだ結果であると考えられる。

表-1 花崗岩類に伴う一般的な割れ目充填鉱物と主な鉱物・水反応

鉱 物	主 な 反 応	
炭酸塩鉱物		
方解石	方解石 + $H_2O + CO_2 = Ca^{2+} + 2HCO_3^-$	溶 解
苦灰石	苦灰石 = $Ca^{2+} + Mg^{2+} + 2CO_3^{2-}$	溶 解
沸石類		
束沸石	$Na\text{沸石} + 1/2Ca^{2+} = Ca\text{沸石} + Na^+$	イオン交換
濁沸石		
粘土鉱物		
スメクタイト	$Na\text{スメクタイト} + 1/2Ca^{2+} = Ca\text{スメクタイト} + Na^+$	イオン交換
カオリン鉱物	$Ca\text{オリナイト} + 5H_2O = 2\text{ギプサイト} + 2H_4SiO_4$	溶 解
雲母鉱物	$Ca\text{セリサイト} + 2H^+ + 3H_2O = 3Ca\text{オリナイト} + 2K^+$	溶 解

表-2 CECおよび交換性陽イオン測定に用いた試料と産地

	試 料	産 地
基 質	栗橋花崗閃綠岩 人形峠花崗岩	岩手県(釜石) 岡山県(人形峠)
割れ目充填鉱物	方解石 カオリン鉱物 セリサイト Caスメクタイト Naスメクタイト 束沸石	マリ 栃木県(関白) 島根県(鍋山) 宮城県(蔵王) 福岡県(遠賀) インド

1-15 ウラン鉱床の物質移行解析技術開発（2）

報告者 環境資源開発課 ○ [Redacted]

1. はじめに

地質環境中の長期間にわたる元素の移動・保持の解析は難しいと考えられている。これは、通常我々が分析できる対象は現存する岩石鉱物であり、過去に存在したものの溶脱などで移動・消失した元素などを分析することが不可能なことに起因している。ところが、ウランなどの放射性元素は周囲の鉱物に放射性損傷を与えるため、これらの放射性損傷を解析することができれば放射性元素が移動・消失した場所においても過去におけるこれらの存在を明らかにできる。平成3年度までの解析により、ウラン鉱化が認められるいくつかの地域の試料において、カソードルミネッセンスによる石英中の放射性損傷リム（以下リム）の観察とX線マイクロアナライザによる微小部分の元素分析を併せて行うことで、通常の岩石記載などでは把握できない過去の放射性核種の溶脱除去、移動濃集の解明を行えることが明らかになっている（図-1, 2）。平成4年度は、石英中のリム形成への核種量、保持時間の影響を詳細に解析するとともに、従来、 α 線による放射線損傷と考えられ、通常の顕微鏡で観察される黒雲母の多色性ハローと、カソードルミネッセンスによる石英中のリムとの関係を併せて検討した。以下に主な成果を示す。

2. 実施内容

工業技術院地質調査所地質標本館に登録されている年代が明らかな花崗岩類試料（表-1）を用い、放射性核種を含む鉱物のX線マイクロアナライザによる元素分析、その鉱物と接する石英のカソードルミネッセンスによるリムの観察および通常の顕微鏡による黒雲母の変質ハロー観察を行った（写真-1）。

3. 結 果

- (1) 今回検討した花崗岩類では、放射性核種を含む鉱物として、ジルコン、褐レン石、モナズ石およびリン酸イットリウム鉱などが見出された。これらは、有色鉱物、長石類に接して産する場合が多く、石英と接して産するものは数少ない。X線マイクロアナライザによるウラン、トリウム量は、粒子ごとにおいても、また一つの粒子内においても均質でなく顕著な差異が見られる。
- (2) ウラン、トリウム量を放射平衡を仮定し、 α 線放出量に換算すると、リムが観察される石英は、一般に α 線放出量が多い粒子に接するのに対し、リムが見出されない石英は、 α 線放出量が

少ない粒子に接する傾向がある。試料によりこの傾向が明瞭なものと不明瞭なものが見られ、古い時代の試料ほど不明瞭なものが多い。これは岩体の熱史などを反映しているものと考えられる（図-3）。

(3) 石英のリムの有無と α 線放出量の関係が比較的明瞭な試料について、黒雲母の多色性ハローと併せて検討した結果、石英のリム形成に必要な核種量と、黒雲母の多色性ハロー形成に必要な核種量はほぼ同程度であることがわかった（図-4）。

4. 今後の方針

固体物質中の放射性損傷の検出が可能な他の手法（ESR, TLなど）や放射非平衡などを組合せ、物質移行解析技術の体系化を目指す。



写真—1 花崗岩類試料の観察例

O : オープンニコル観察, C : クロスニコル観察, CL : カソード
ルミネッセンス観察, q : 石英, z : ジルコン, b : 黒雲母
ジルコンと接する石英にリムが見られる。黒雲母に、従来から α 線による損傷と考えられている多色性ハローが認められる。

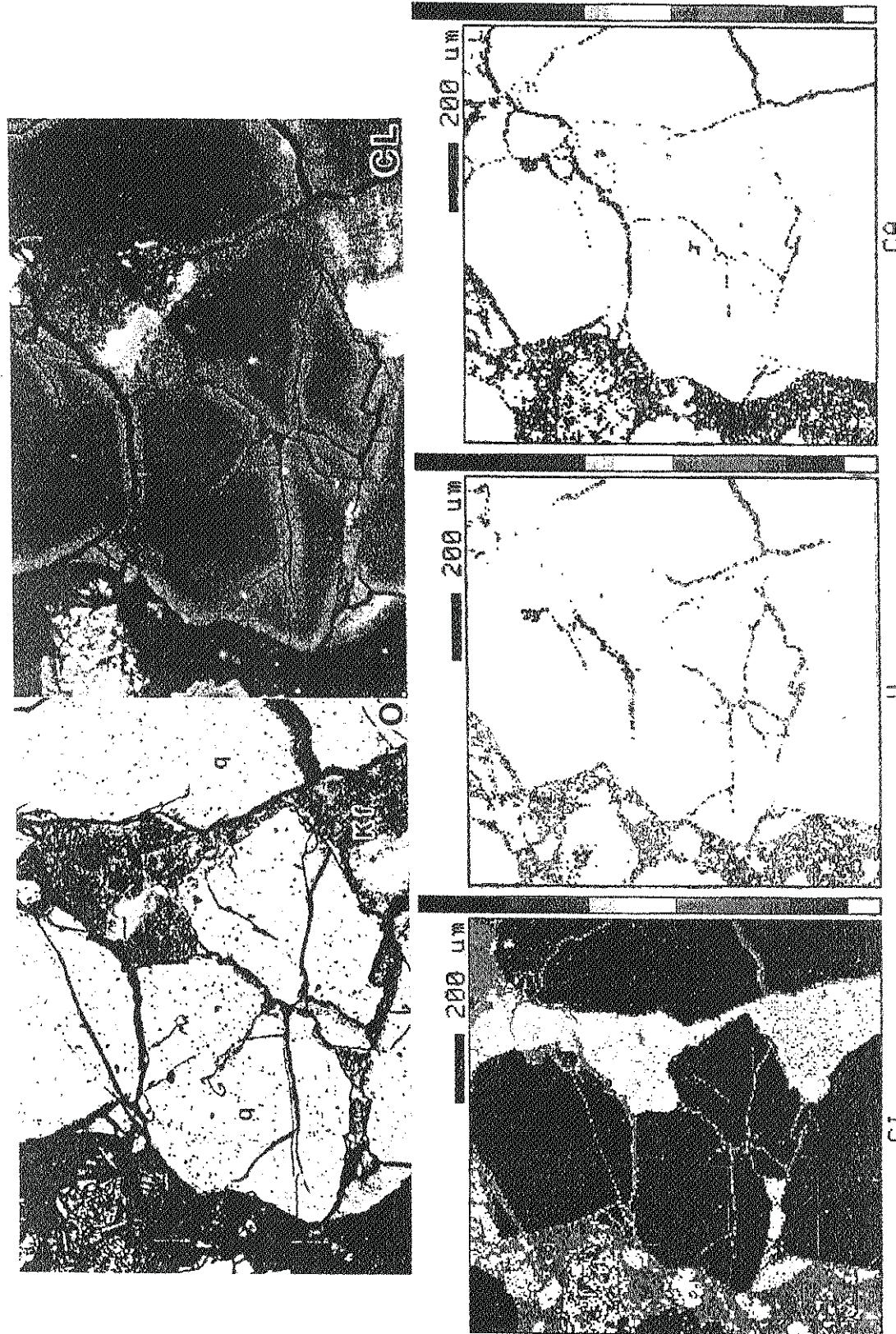


図-1 カソードルミネッセンスによるウラン鉱石の観察 (東濃月吉鉱床)
 O: オープンニコル観察, CL: カソードルミネッセンス観察, 下
 段: X線マイクロアナライザによる元素濃度マップ, q: 石英, K
 f: アルカリ長石, SI: シリカ, U: ヴラン, CA: カルシウム
 ウランの分布と石英のリムは対応し, 著なウランの移動は認めら
 れない。

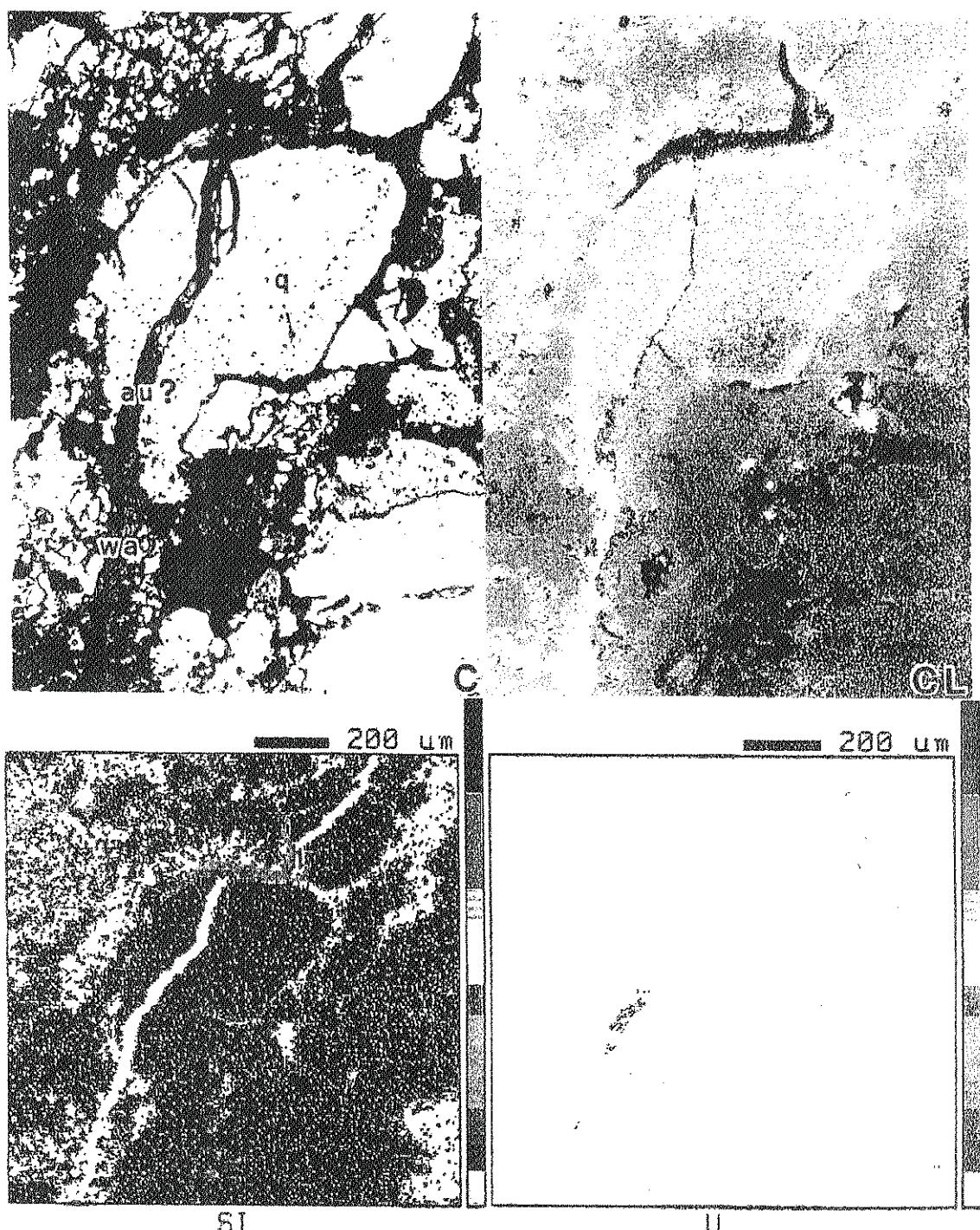


図-2 カソードルミネッセンスによるウラン鉱石の観察
(ニジェール, トゥーリクリーク)

C : クロスニコル観察, CL : カソードルミネッセンス観察, 下段 :
X線マイクロアナライザによる元素濃度マップ, q : 石英, au :
りん灰ウラン石, wa : 銀星石, SI : シリカ, U : ウラン
ウランの分布と石英のリムは対応しておらず, 石英(写真中央)の
外縁部にリムが見られるものの周囲にウランは認められない。石英
の割れ目中にリムは見られないがりん灰ウラン石が認められる。こ
れらは、過去に存在したウランが移動消失し、石英のリムが形成さ
れるほど古くない時期にウランが移動してきたことを示す。

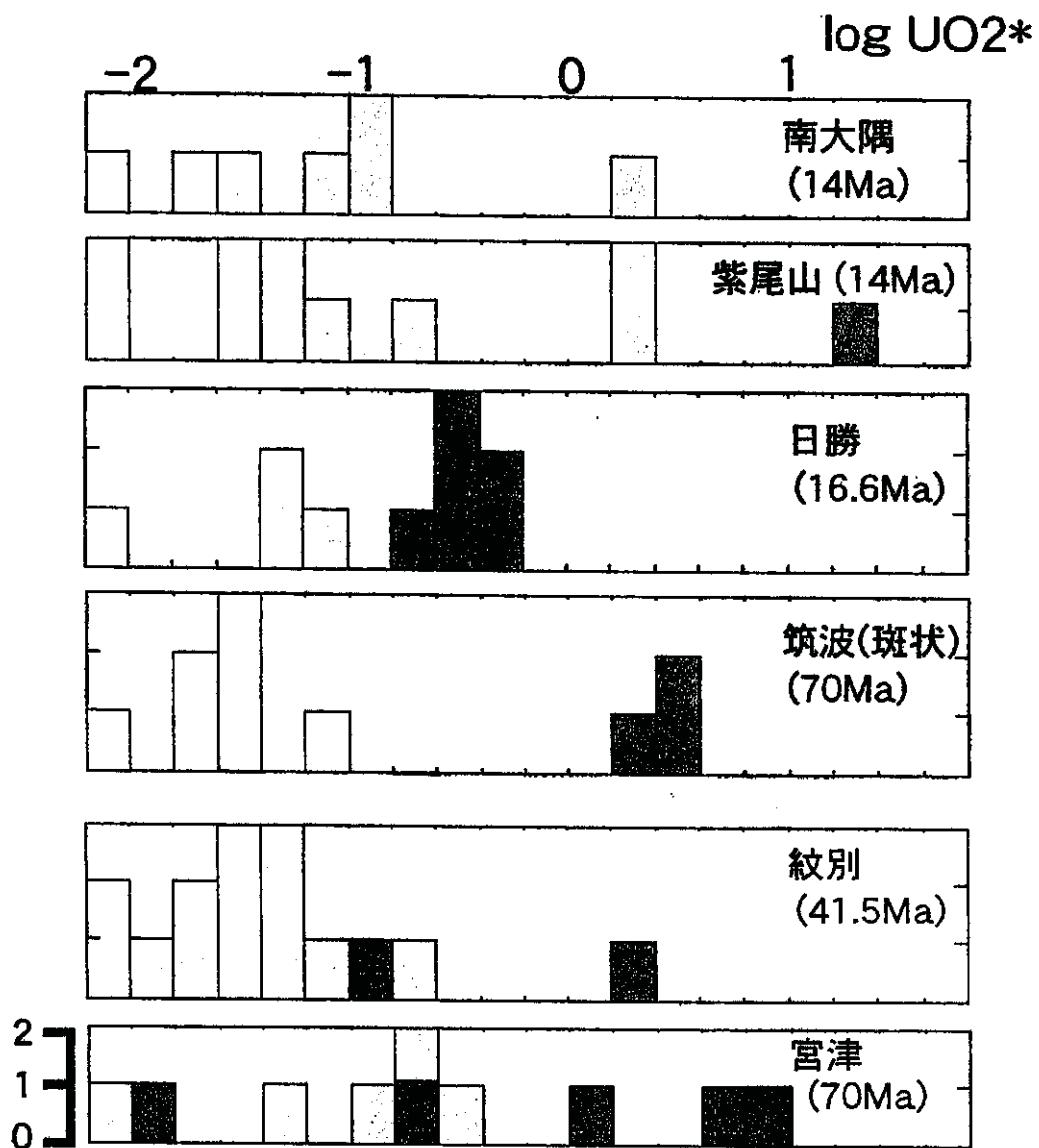
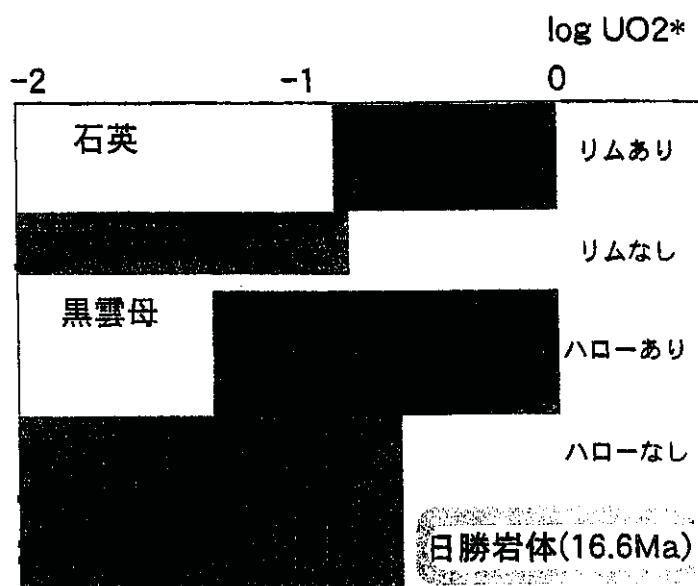


図-3 石英のリムの有無と放射性核種量・保持時間の関係解析結果

横軸 ($\log \text{UO}_2^*$)：放射平衡を仮定し、ウラン、トリウム量を α 線放出量から全ウラン量に換算、縦軸：測定点数、赤：リム有り、青：リム無し、黄：リムの有無と放射性核種量・保持時間の関係が不明瞭な試料

リムが観察される石英は全ウラン量が多い粒子に接し、リムが見出されない石英は全ウラン量が少ない粒子に接する傾向が見られる。



図一4 石英のリムと黒雲母の多色性ハローの関係解析結果

横軸 ($\log UO_2^*$)：放射平衡を仮定し、ウラン、トリウム量を α 線放出量から全ウラン量に換算、縦軸：測定点数、赤：リム有り、紫：リム無し

石英のリム形成と黒雲母の多色性ハロー形成に必要な核種量はほぼ同程度である。

表一1 解析に用いた試料

(Ma) : 100万年

試料番号	産地	岩体	年代(Ma)
S6	鹿児島県薩摩郡	紫尾山花崗閃綠岩	14
R37209	鹿児島県肝属郡	南大隅花崗岩	14
74HK76	北海道沙流郡	日勝岩体	16.6
74HK24	北海道紋別市	紋別岩体	41.5
10614	茨城県つくば市	筑波I型斑状花崗岩	70
73M16	京都府与謝郡	宮津花崗岩体	70

SHIBATA and ISHIHARA (1979), ISHIHARA and TERASHIMA (1985)

1-16 釜石地域の地下深部におけるバクテリアの存在調査

報告者 []¹⁾

1. はじめに

地下深部生物影響調査研究の一環として、釜石地域の生物活動の特性並びに地下水の性質が生物活動に与える影響について調査・解析したので報告する。

2. 実施内容

- (1) 岩手県釜石鉱山（図1）において栗橋花崗閃緑岩中に掘削した試錐孔KG-1孔の深度740.63～747.00mに設置された採水器(HGP-10)のテフロンチューブを簡易グローブパック内に導き、Arガス(99.999%以上)流送条件で地下水を採取した。また、試錐孔の近くを流れる沢から地表水を採取した。
- (2) 地下水試料について、各種の陽イオン・陰イオン、溶存ガス、フミン酸、フルボ酸並びに $\delta^2\text{H}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ の同位体分析を実施した。
- (3) 地表水および地下水試料について全菌数計数、生菌数計数(鉄酸化細菌、硫酸塩還元細菌、メタン生成細菌)及び一般細菌の分析を行った。
- (4) 地下水試料から分離した硫酸塩還元細菌の形態学的試験を実施し属名を決定した。

3. 主な成果

- (1) 採取した地下水は、水温11.6°CでpH10.2のアルカリ性を示した(表1)。また、溶存陽イオンは Na^+ (11.10) > Ca^{2+} (3.7) > K^+ (1.42) > Mg^{2+} (0.17)、陰イオンは HCO_3^- (6.56) > CO_3^{2-} (4.55) > SO_4^{2-} (2.6) > Cl^- (2.5) の順でそれぞれ高濃度となった(数値の単位はmg/l)。この地下水の溶存化学成分は、いわゆる“ $\text{Na}^+-\text{HCO}_3^-$ 型”として特徴づけられる(図2)。また、TOCは12.8mg/lで比較的高い濃度で検出された。そしてトリチウム濃度が4.4TRであり、核実験の影響を受けていると仮定するならば、40～14.7年前の地下水と考えられる(近藤他(1983)参照、図3)。
- (2) 地下水の $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ (表2)は松葉谷他(1983)の太平洋側と日本海側の天水の $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の直線の間にプロットされる(図4)。このことから、本調査地下水は天水起源であることがわか

1) 本社、環境技術開発推進本部、地層科学研究グループ

る。

- (3) 地下水, 地表水中の全菌数は, それぞれ 1.0×10^5 cells/ml, 2.1×10^4 cells/ml, 酸化細菌は双方ともに不検出($< 1.0 \times 10^{-2}$ MPN/ml), 硫酸塩還元細菌は, それぞれ 0.8×10^0 MPN/ml, 1.1×10^1 MPN/ml, メタン生成細菌は, それぞれ 0.4×10^0 MPN/ml, 不検出であった(表4)。
- (4) その他, 一般細菌として地下水中には*Pseudomonas acidvorans*, *Xanthomonas maltophilia*が存在し, 地表水中には*Pseudomonas putida*, *Pseudomonas cepacia*, *Pseudomonas vesicularis*, *Xanthomonas maltophilia*, *Enterobacter cloacae*, *Staphylococcus epidermidis*が存在することが判明した。
- (5) 形態学試験の結果, 地下水中の硫酸塩還元細菌は*Desulfovibrio*属であると考えられる(写真1)。
- (6) 地表水, 地下水ともに鉄酸化細菌*T. ferrooxidans*は見出されなかった。これは, 地下水, 地表水の水温およびpHが*T. ferrooxidans*の生育環境から大きく外れていたためと考えられる(Zajic (1969)参照, 図5)。
- (7) 地下水の方が地表水よりも硫酸塩還元細菌数が少ないのは, 地下水中のTOCは 12.8mg/l と多いものの, 水温及びpHが生息環境から大きくはずれているためと考えられる(Zajic (1969)参照, 図5)。
- (8) 地表水中のメタン生成細菌が不検出なのは, メタン生成細菌が絶対嫌気性細菌であるのに, 地表水の溶存酸素濃度が 11.6mg/l と高いことが要因と考えられる(Zajic (1969)参照, 図5)。

4. 今後の課題

地下深部におけるバクテリアの活動と水質との関係について, データを蓄積して行きたい。また, バクテリアの水質に対する影響を評価する観点から室内試験を実施していく予定である。

引 用 文 献

- 松葉谷治, 越中 浩, 小室昭一(1983) : 秋田県温泉の同位体地球化学的調査報告, 秋田大学鉱山学部地下資源研究施設報告, 48, pp11-24.
- 近藤昭彦, 鈴木裕一, 高山茂美(1983) : トリチウムによる地下水の停滞時間の推定—合津盆地北部の自噴井の場合—ハイドロジー, 13, pp60-65.
- Zajic J.E. (1969): Microbial biogeochemistry, Academic Press.

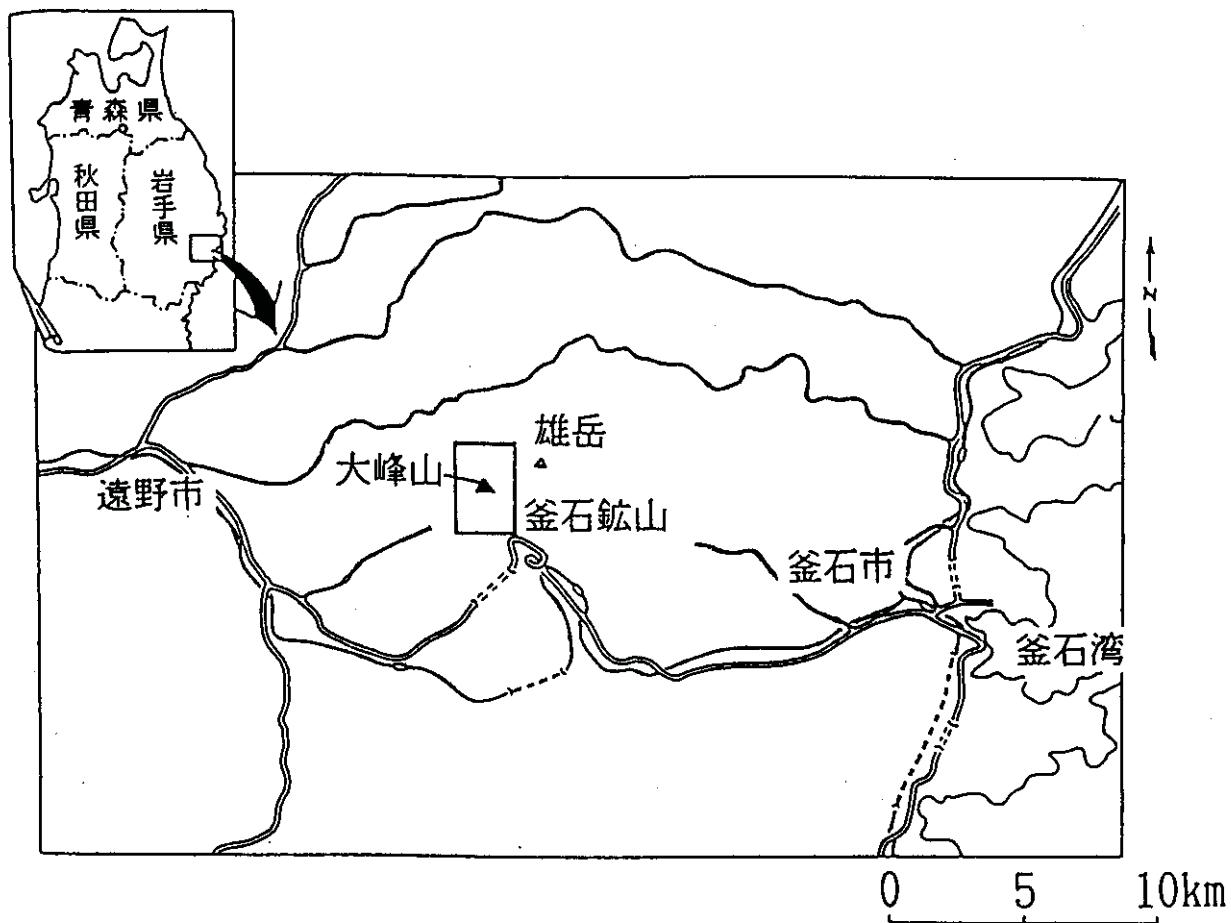


図1. 釜石鉱山の位置図

表1. 採取した地下水及び地表水の水温, pH,
ORP, 電気伝導度の測定結果

項目	単位	地下水	地表水
水温	°C	11.6	5.3
pH		10.2	7.7
ORP	mV	26	174
電気電導度	μS/cm	94.0	37.7

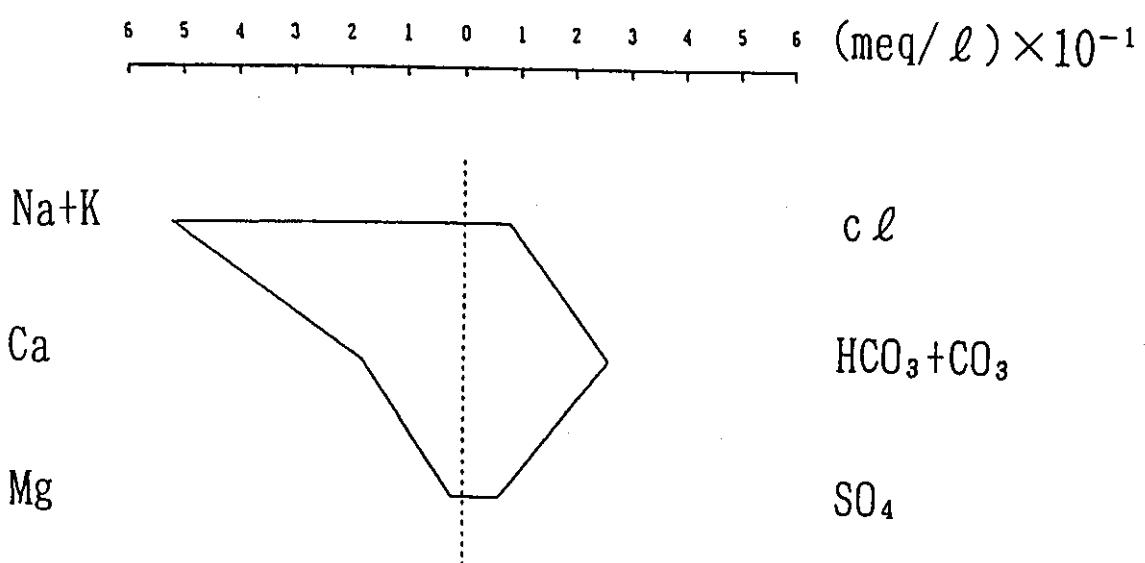


図2. 採取した地下水試料のヘキサダイアグラム Na^+-HCO_3 -型として特徴づけられる。

表2. 地下水試料の同位体分析結果

項目	単位	地下水
$\delta^2\text{H}$	‰	-65.9
$\delta^{18}\text{O}$	‰	-10.6
H	TR	4.4±0.1

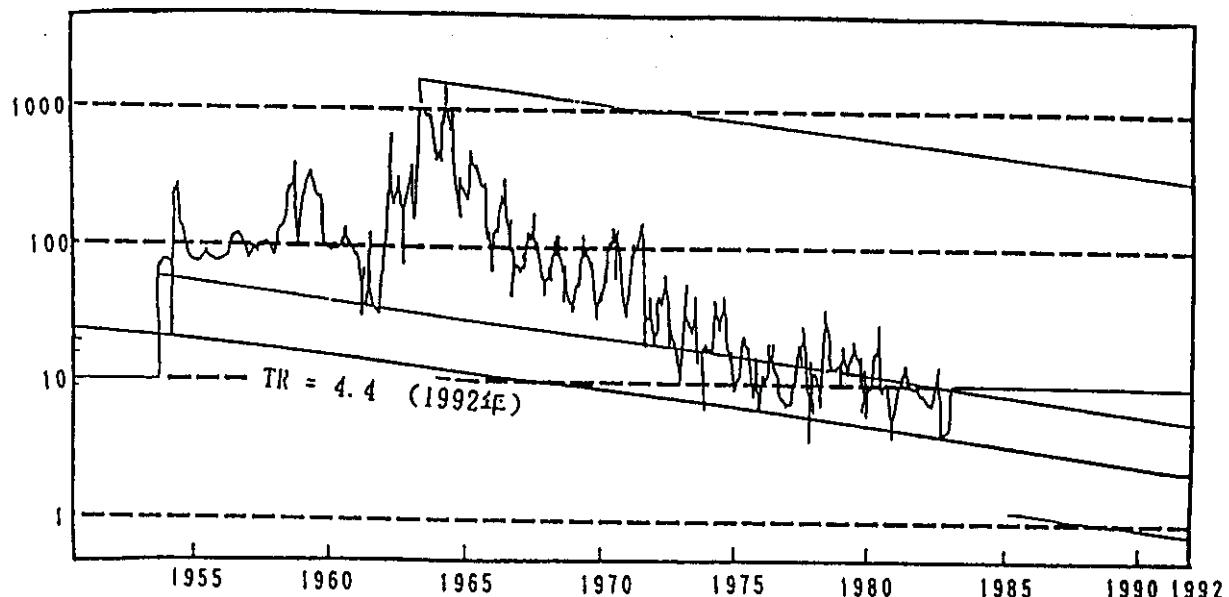


図3. 降水中のトリチウム濃度の経年変化 (近藤他 (1983))

TR : 4.4 の減衰曲線を併せて示した。

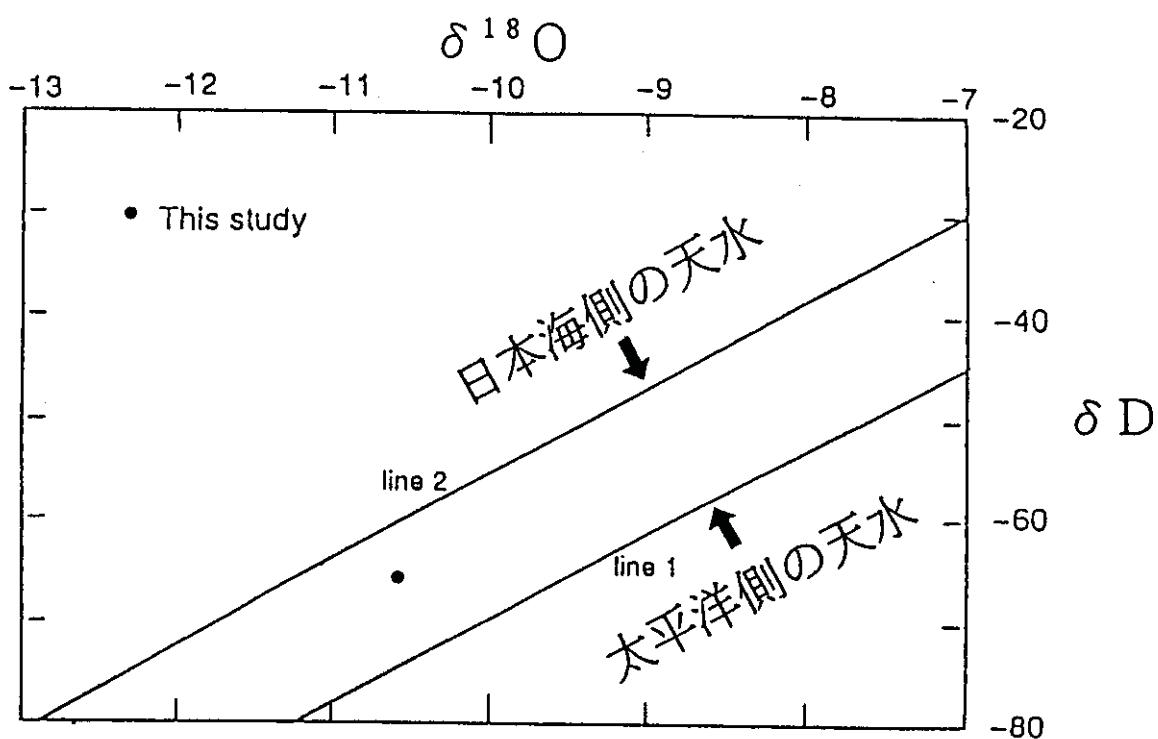


図4. 地下水試料の酸素と水素の同位体をプロットした2成分ダイアグラム
分析値は、松葉谷他（1983）が示した日本海側と太平洋側の天水の酸素と水素の同位体値が
示す直線の間にプロットされる。

表4. 地下水試料及び地表水試料中の各種細菌の計数結果

項目	単位	試料名称		計数方法
		地下水	地表水	
全 菌 数	cells/ml	1.5×10^6	2.1×10^4	AODC法
鐵 酸 化 細 菌	MPN/ml	N.D.*1	N.D.*1	MPN法
硫酸 塩 還 元 細 菌	CFU/ml MPN/ml	N.D.*2 0.8 $\times 10^0$	N.D.*2 1.1×10^1	二重皿法 MPN法
メ タ ン 生 成 細 菌	MPN/ml	0.4×10^6	N.D.*3	MPN法

*1 <2.0 $\times 10^{-3}$ MPN/ml

*2 <1 CFU/ml

*3 <4.0 $\times 10^{-3}$ MPN/ml

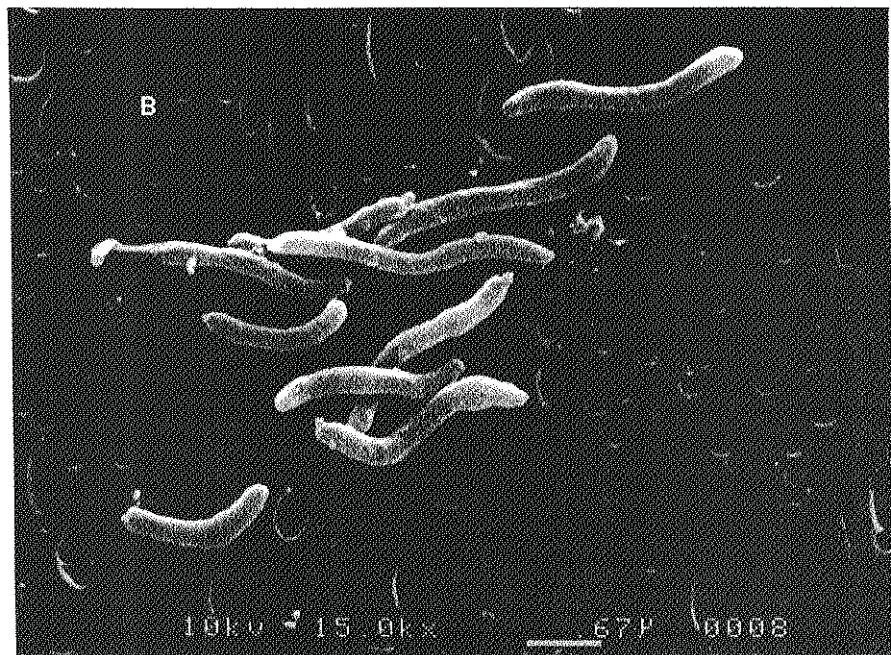


写真1. 地下水試料から分離された硫酸塩還元細菌の走査型電子顕微鏡写真
($\times 15,000$)

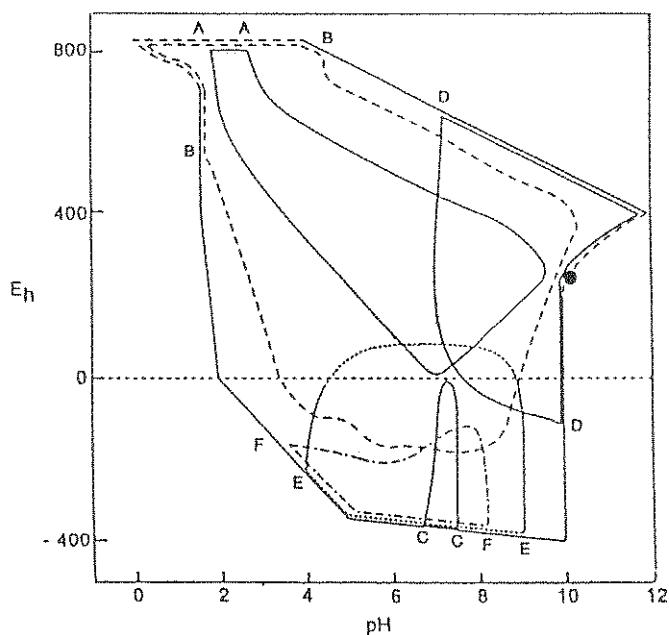


図6. 微生物を成育させるためのEhとpHの範囲 (Zajic, 1969)
を示すダイアグラムに地下水試料のEhとpHをプロット
A ; 鉄バクテリア B ; チオバクテリア C ; メタン生成細菌
D ; 脱窒菌 E ; 硫酸塩還元細菌 F ; 従属栄養細菌
●this study (釜石) ; 硫酸塩還元細菌とメタン生成細菌を検出

1-17 廃水処理施設の運転と維持管理

報告者 環境資源開発課

1. 概 要

夜次鉱滓ダム廃水（露天採掘場跡、見学坑道及び旧坑道の坑水含む）のウラン及びラジウム除去の処理を行っている。また各施設から発生する排水（製錬転換施設、濃縮工学施設、ウラン濃縮原型プラント、開発試験棟、総合管理棟）を年間を通じて受入れ管理し、排出基準値以下であることを確認して河川に放流している。

本施設は、ウラン吸着除去設備（キレート樹脂）、試薬添加室（化学沈殿法による試薬の添加設備）、沈殿池、サンドフィルタ、集水槽、及び放流水槽からなっており、これらの維持管理に努めている。

2. 主な業務実績

(1) 廃水処理量の実績

平成4年度の実績は以下のとおりである。なお廃水処理を行った処理水の発生別割合を図一1に、月別の処理実績を図一2に示す。また各施設からの排水の受入れ実績を図一3に示した。

参考として、昭和63年度からの年度別処理実績を表一1に示した。

鉱滓ダム廃水処理量 260,574m³

施設排水受入れ量 25,747m³

放流量 292,031m³

(2) 運転維持管理

運転を正常に維持するために行った主な作業は以下のとおりである。

① ウラン吸着除去設備の整備

樹脂塔3基（各4m³）の樹脂を抜き出し、樹脂の洗浄、塔内部の洗浄及び点検整備

② サンドフィルタの砂上げ

目詰まり砂31m³を削り取り砂捨場へ運搬

③ 槽類洗浄

放流水槽、大排水溝ピット、試薬添加槽、ウラン吸着除去設備地下ピットの洗浄及び点検

④ 配管洗浄

大排水及び試薬添加槽出口配管の洗浄

⑤ 管理分析

廃水処理工事の分析 (pH, U)

(3) 改修工事

以下の改修工事等を工務課の協力の基に行った。

- ① ダム導水管山越え部150m×2本を更新
- ② 第2試薬添加室入口配管の更新
- ③ 放流水槽のサンプリングの橋、補完工事

3. 今後の課題

- ① 設備の経年劣化対策
- ② 発生する廃棄物の処理

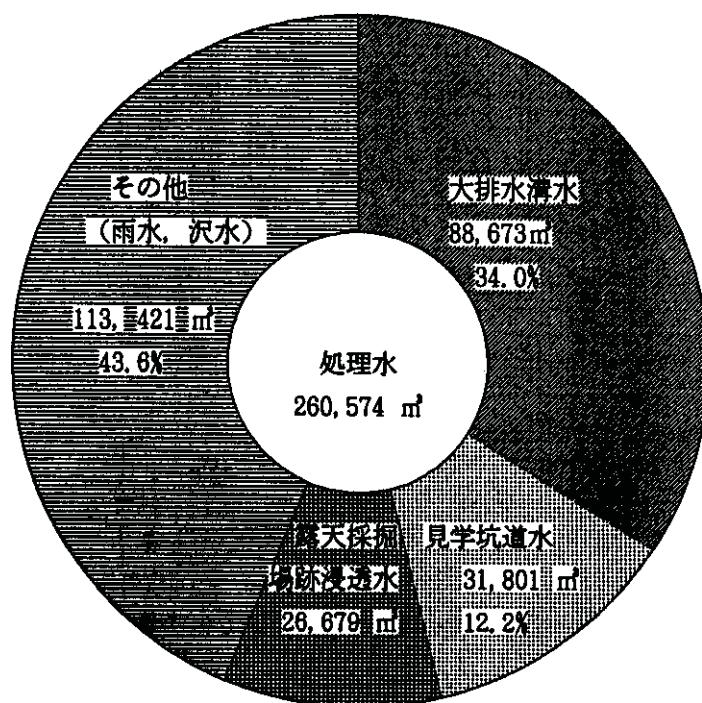
質 疑 応 答

Q：勤務の体系はどうなっているか。

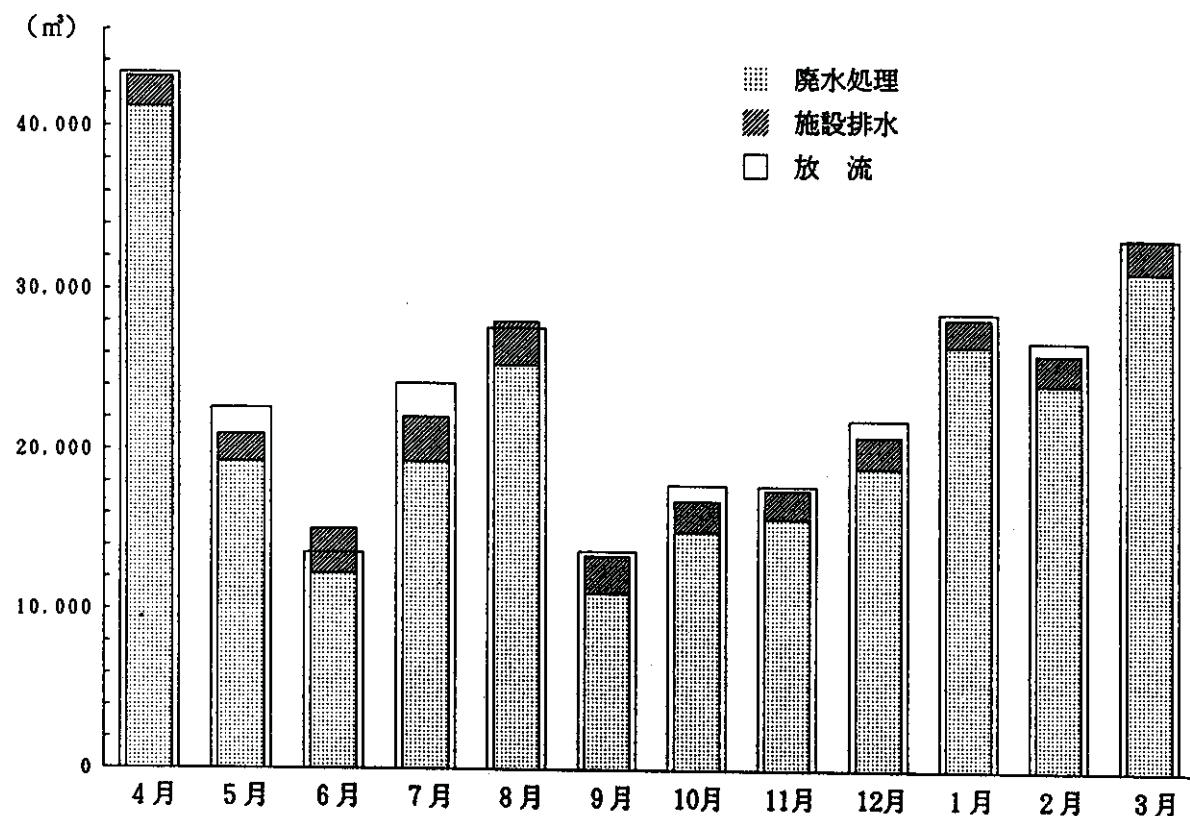
A：日勤業務で行っており、雪どけ時期、梅雨期等の増水時には適宜残業で対処している。

表一 1 年度別廃水処理量の実績

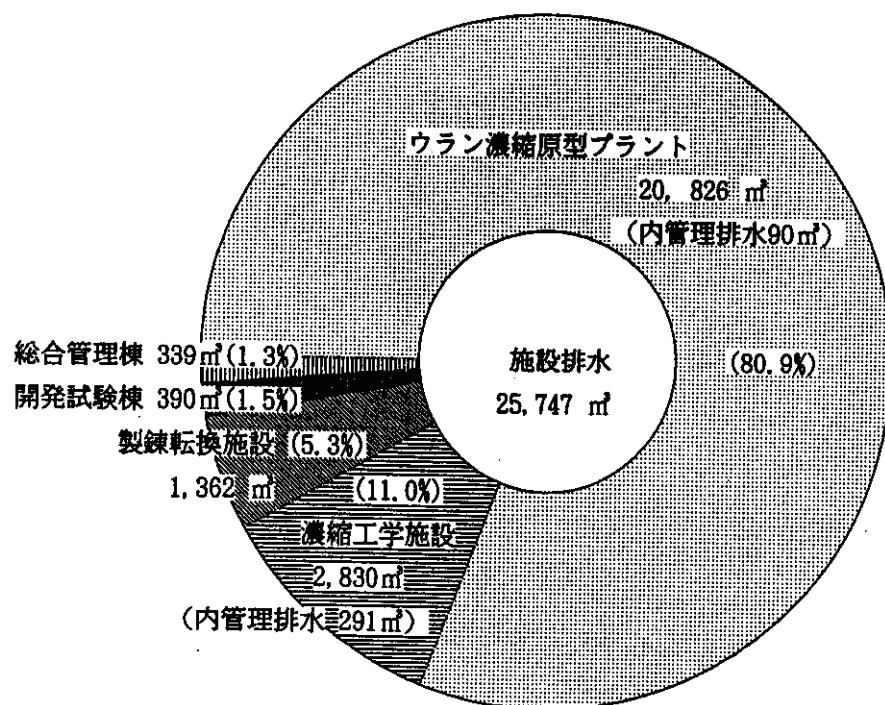
	昭和63年度	平成元年度	平成 2 年度	平成 3 年度	平成 4 年度
処理量 (m ³)	320,398	272,910	276,831	247,728	260,574
施設排水 (m ³)	35,378	31,276	28,068	29,505	25,747
放流量 (m ³)	355,975	303,451	333,293	285,527	292,031
降雨量 (mm)	2,782	2,574	2,998	2,495	2,550



図一 1 廃水処理水量の割合



図一2 月別廃水処理量の実績



図一3 施設排水の受け入れ実績

1-18 放射性廃棄物の焼却と貯蔵管理

報告者 環境資源開発課

1. 概要

各施設から発生する放射性廃棄物の焼却による減容と保管廃棄物の貯蔵管理を行った。また、付随の作業として焼却施設の設備の定期点検、主要機器の劣化調査及び必要な整備を行い、貯蔵施設については貯蔵庫（第2貯蔵庫）に保管中のドラム缶の点検整理を行った。

そのほか貯蔵庫の今後の増設棟の計画に関し、廃棄物の発生予測調査及び増設計画を立案した。現有の施設として以下のとおりとなっている。

焼却施設 一式 焼却能力35kg/Hr S57. 8建設

貯蔵施設（貯蔵庫）

使用施設 9棟 240m³/棟（約1,000本ドラム缶）S54. 9~H3. 9建設

1棟（廃油） 10m³/棟（約50本ドラム缶）S56. 3建設

加工施設 1棟 240m³/棟（約1,000本ドラム缶）S63. 3建設

保管庫 1棟 240m³/棟（約1,000本ドラム缶）S54. 12建設

2. 主な業務実績

(1) 廃棄物処理

平成4年度の実績は以下のとおりである。なお、平成4年度末までの焼却実績を図-1に、保管廃棄物の貯蔵状況について使用施設分を図-2に、加工施設分を図-3にそれぞれ示す。

① 可燃性、難燃性廃棄物の焼却

可燃物 249本 難燃物 677本 難燃フィルタ 719枚

② 保管廃棄物の受入れ貯蔵管理

使用施設 189本

加工施設 9本

(2) 焚却設備の点検、劣化調査及び整備

実施した内容と結果等を以下に示す。

1) 焚却設備の定期点検（第10回）

① 点検内容

点検内容としては以下のとおり実施した。

イ. 機器・煙道の腐食状況調査

ロ. 回転機器の点検調査

ハ. 熱交換器及びストレーナー類の清掃

ニ. 計装機器の点検と調査

② 点検結果

点検の結果、以下の対策が必要であることが判った。

イ. 電気集じん器のダストの排出装置であるスクリーパーチェーンの交換

ロ. 計空ユニットの分解整備

ハ. 指示計及び調整弁の応答性のにより

2) 焼却設備の主要機器の劣化調査

① 内容

設備を構成する機器のうち、主要な機器について劣化損傷状態の確認、及び更新時期の推定を行ない、調査の方法としては極値統計法を用いている。

② 調査結果

調査結果を表一1に示した。又その結果から寿命の一番早いと思われる電気集じん器の寿命予測を図一4に示した。それから、現在焼却設備の運転に支障を来す原因となるような腐食減肉は見られていない。しかしながら局部的な腐食、孔食等も発生している可能性も考えられ、今後数年にわたって同様な調査を続行し、腐食減肉の進行状況を把握した上で設備更新の必要性の有無を判断する必要があると思われる。

3) 機器の整備

定期点検の結果、特に電気集じん器のスクリーパーチェーンの交換時期であることが判ったので交換を行った。

(3) 貯蔵庫内の貯蔵ドラム缶の点検、整理

点検と表示シールによる表示を目的に第2貯蔵庫分について実施した。

① 対象貯蔵庫

第2貯蔵庫 904本 (55年3月～60年8月貯蔵)

② 点検結果

数年内に容器であるドラム缶の更新が必要と思われるものが認められる。

(4) 貯蔵庫の増設に関する調査

以下の調査及び検討を行った。

① 廃棄物の発生予測調査及び貯蔵庫建設計画

調査結果、平成5年度及び6年度において約1,000本（ドラム缶）／棟の貯蔵庫を1棟づつ建設する必要がある。

② 今後の貯蔵庫の建設場所の検討

候補地を選定するための検討資料を作成し、夜次露天採鉱表土堆積場に決定された。

3. 今後の課題

- ① 焼却設備の更新
- ② 既貯蔵ドラム缶の点検と容器（ドラム缶）の更新
- ③ 廃棄物管理システムデータベースの作成と運用

質 疑 応 答

Q：焼却設備の焼却能力はどのくらいか。

A：35kg/Hrである。

Q：勤務の体系はどうなっているか。

A：日勤業務で行っており、場合によっては適宜残業で対処している。

Q：貯蔵庫の焼却灰の貯蔵割合はどの位か。

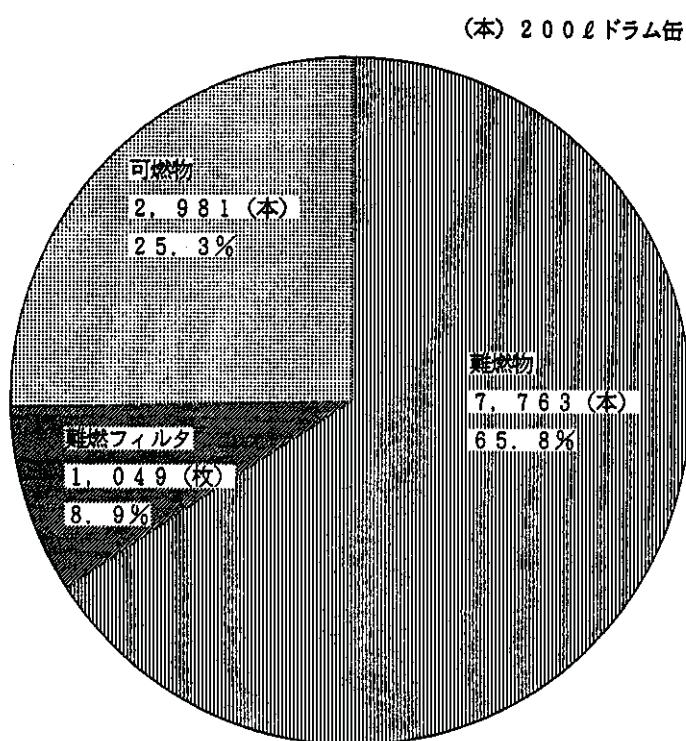
A：約7,800本中約170本である。

Q：今後、焼却設備の更新を検討するようであるが、東海等の設備を参考にしたらどうか。

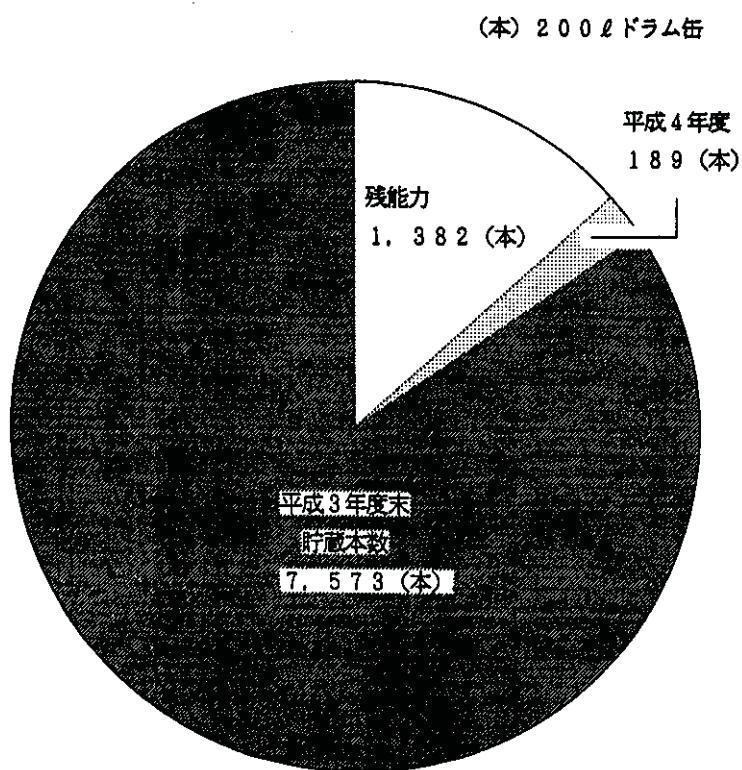
A：そうさせて頂きたいと思っている。

表一 1 焼却設備の腐食状況調査結果
(極値統計法による解析)

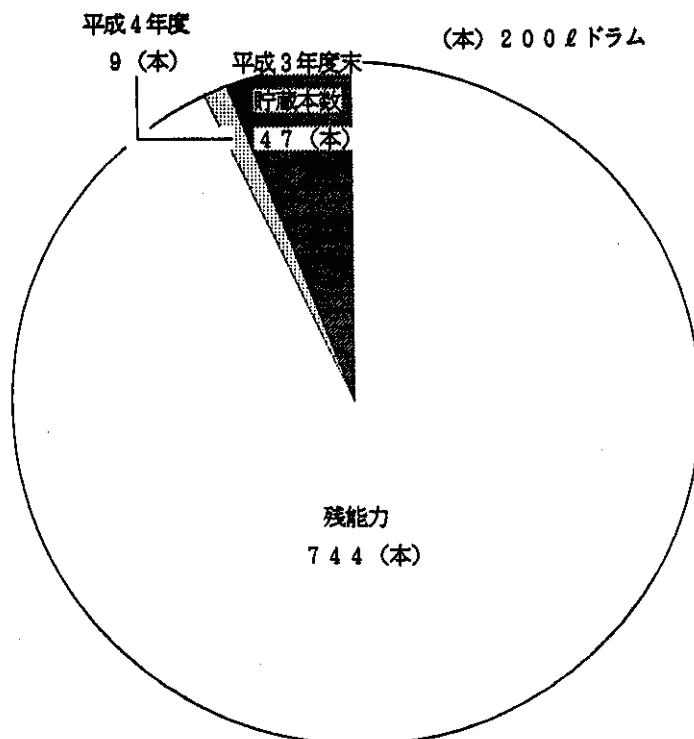
機器名称	計測部位	材質	初期板厚 [mm]	最大予想腐食深さ			板厚 [mm]	必要板厚 [mm]
				平成 2年 度	平成 3年 度	平成 4年 度		
電気集じん器	入口ホッパー	SS41	4.5	0.95	1.07	1.18	3.32	1.6
	出口ホッパー	SS41	4.5	0.73	0.98	1.09	3.41	
	底板	SS41	6.0	0.84	1.03	1.22	4.78	
	測板No1	SS41	4.5	1.00	1.20	1.27	3.23	
	測板No2	SS41	4.5	0.77	1.04	1.04	3.46	
焼却炉	炉本体内部	SS41	6.0	1.78	2.12	1.60	4.40	1.5
サイクロン	サイクロン入口	SUS310	6.0	0.41	0.47	0.45	5.55	1.3
ガス冷却器	排ガス入口	SUS316	6.0	0.20	0.37	0.44	5.56	1.07
空気加熱器	ダスト出口	SUS316	6.0	0.29	0.38	0.42	5.58	1.07
	上部	SB42	6.0	0.65	0.73	0.82	5.18	1.02



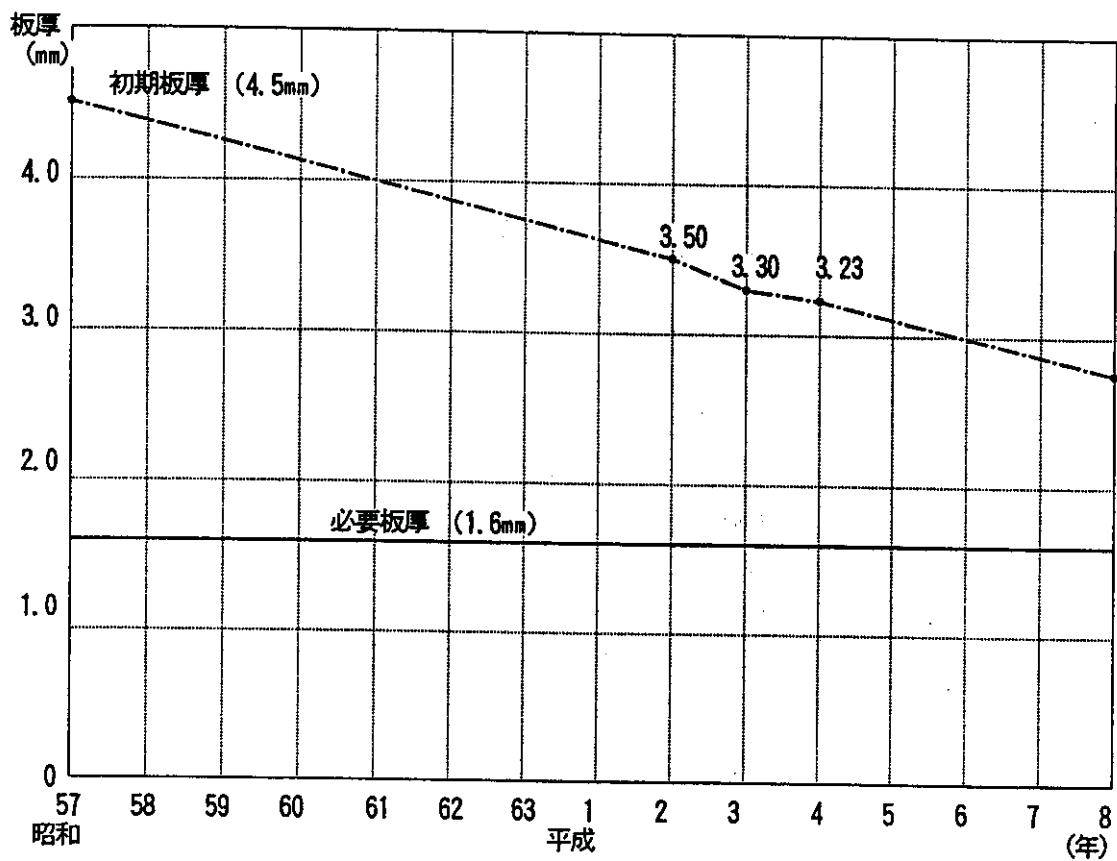
図一 1 放射性廃棄物（固体）の焼却実績
(昭和57年12月～平成5年3月31日)



図一 2 放射性廃棄物（使用施設）の貯蔵状況
(昭和55年～平成4年度末)



図一 3 放射性廃棄物（加工施設）の貯蔵状況
(昭和63年～平成4年度末)



図一4 電気集じん器（側板部）の寿命予測

1-19 鉱害対策の概要

報告者 環境資源開発課

1. はじめに

旧鉱山施設跡地について鉱害防止、危害防止のための処置・管理等を実施すると共に、休廃止鉱山捨石たい積場及び関連施設について鉱山保安法及び県協定に基づき鉱害の防止、環境保全のため自主点検の実施、施設の補修、点検等維持・管理を行った。

2. 鉱山処置グループの業務

(1) 各たい積場（図-1に示す24堆積場）の維持・管理

- ① 坑口、山腹水路、境界柵、警標等の異常の有無、点検と修理、補強、整備工事
- ② 外部放射線に係わる線量当量率の測定及び、坑水、浸透水、土壤等試料採取

(2) 構内各施設の維持・管理

露天採掘場跡、表土たい積場、水質監視設備、見学坑道等構内各施設の巡視・点検、維持・管理

3. 経緯及び措置の概要

経緯としては、岡山県内のたい積場及び鳥取県内の旧倉吉鉱山の捨石たい積場については、立入制限の設定、必要な対策工事等措置を終了している。また、人形峰鉱山の神倉地区及び鳥取県内の東郷鉱山（方面及び麻畑）の捨石たい積場については、立入制限の柵、警標の設置等を行い法律に基づく処置を完了し、維持・管理を継続実施している。

平成4年度は、先にあげた各たい積場と構内各施設の維持・管理の業務として、主な作業を列記すると次の通りである。（写真(1)(2)、及び表-1参照）

- (1) 各たい積場の柵補修 5,200m
- (2) 麻畑2号坑捨石たい積場補修 カナドレンパイプ布設 80m
- (3) 方面下1号坑口仮閉塞 密閉補修及び追加土のう積み
- (4) 施設整備（草刈等） 構内7,200m²、神倉3,940m²、麻畑1,730m²
- (5) 土壌分析調査
 - ① 平成3年度分

人形峰Th50試料、中部Th122試料

- ② 追加分

人形峠 (Ra, Th), 中部 (U) 各45試料

③ 調査結果の整理解析

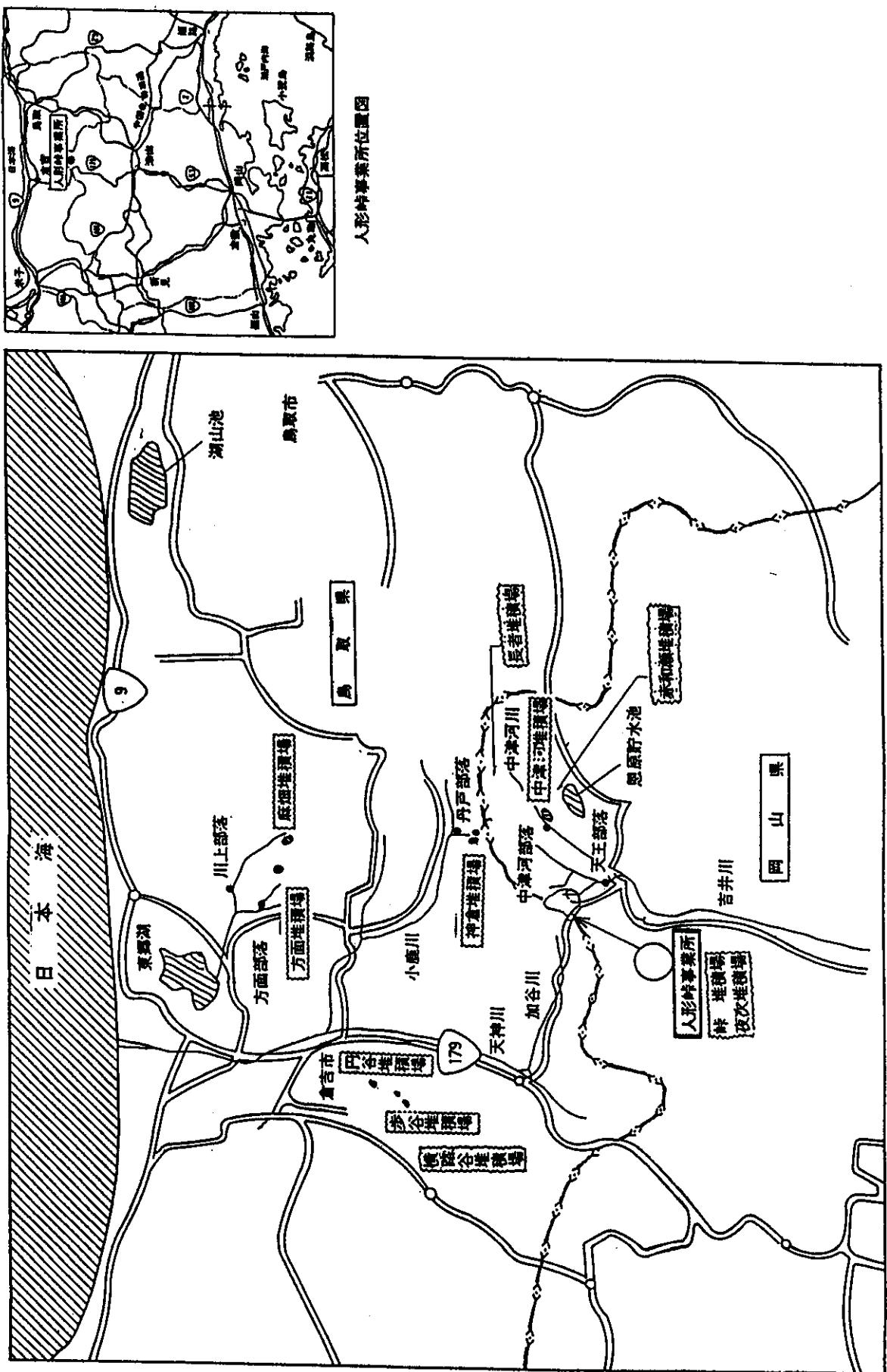
- (6) 方面, 麻畑旧坑口周辺補修 東郷鉱山休廃止鉱山一斉総点検の一環として実施
(7) 監視設備の補修・修理 露天採掘跡ポンプ類, 並びに計器類

4. 今後の方針

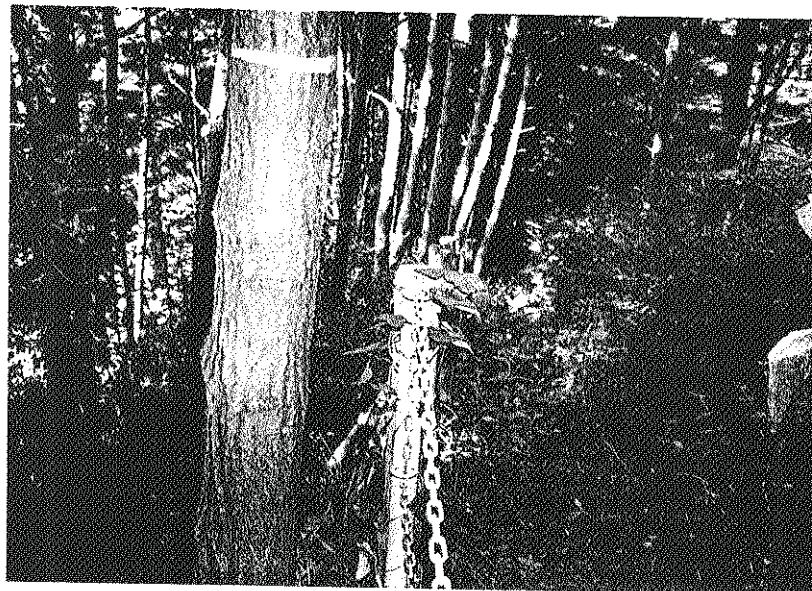
人形峠鉱山(事業所内旧鉱山跡地を含む), 東郷鉱山, 旧倉吉鉱山捨石たい積場及び関係施設について鉱山保安法及び県協定に基づき鉱害の防止, 危害の防止のために必要な措置, 巡視・点検等維持管理を行う。又, 金則に基づく, 周辺監視区域敷地境界における外部放射線に係わる線量当量率の測定等たい積場の安全管理を実施する。

図-1 人形峠周辺たい積場位置図

—>—県境



(1) 各たい積場の柵補修

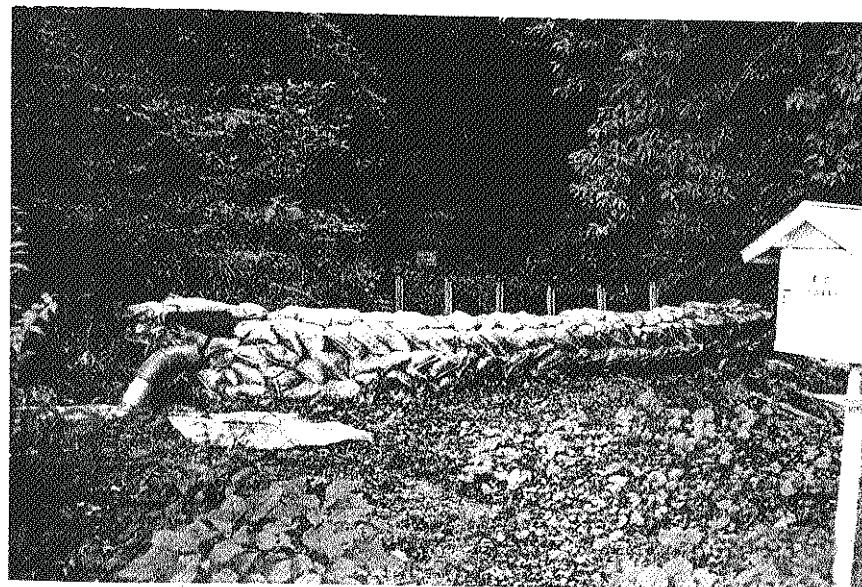


補修前



補修後

(2) 麻畑 2号坑捨石たい積場補修



坑口及びその周辺の谷から流れ出た水を一旦集水し200φのカナドレンパイプで側溝沿いに排水する。



排水呑み込み口

表-1 鉱山維持・管理の工程表

実 施 項 目	第1四半期			第2四半期			第3四半期			第4四半期			備 考
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	
1. 各たいたい積場の維持・管理													
(1) 棚、警標補修													
(2) 方面旧坑口補修													
(3) 麻糸2号坑捨石たいたい積場補修													
(4) たいたい積場施設等整備													
(5) 旧廃止鉱山一齊総点検													
(6) 巡視・点検 ① 定期(放射能測定含む) ② 自主巡視													
2. 構内施設の維持・管理													
(1) 露天採掘場跡、表土たいたい積場等													
(2) 見学坑道及び関係設備													
(3) 巡視・点検													
3. 方面ラドン等調査													
(1) 土壤・岩石分析													
(2) 解析・評価													
4. 外部対応													
(1) 中国鉱山保安監督部検査 (2) 岡山県・鳥取県調査	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	

1-20 方面地区ラドン等調査に係わる土壤分析の解析

報告者 環境資源開発課

1. はじめに（調査目的）

方面たい積場の周辺環境への影響調査を目的として、従来からの調査に加えて周辺地域の地質調査（図-1）、土壤サンプリング（図-2）・分析、ラドン濃度測定等を集中的に行い、これらのデータを解析評価してたい積場からのラドン等の影響の有無を考察する。また、たい積場措置工事に先立って、関係箇所のデータを取得し、工事中・工事後の環境への影響評価に役立てる。

2. 調査・測定内容

- ・土壤岩石採取試料 図-3に示す表層、下層、基層に区分して採取

127地点239試料

分析成分	U同位体（TBP抽出- α 線波高分析）	239件
	Ra-226（液体シンチレーションカウンタ法）	239件
	Ac-228（ゲルマニウム半導体検出器法）	42件
	Th-232（イオン交換分離アルセナゾIII吸光光度法）	197件

（追加分析—U同位体、Th-232について同仕様。Ra-226はエマネーション法）

・22地点45試料

- ・ラドン散逸量測定 88地点（捕集箱を使用）
- ・ γ 線量率測定 105地点（地表及び地上1m）
- ・土壤中ラドン測定 145地点（図-4、図-5に示す携帯型 α 線検出器[RD-200]を使用）
- ・大気中ラドン・ラドン娘核種測定（安全管理課が実施）
CN型モニタによるラドン濃度測定、連続測定（ラドン濃度、ラドン娘核種濃度、風向風速）、トレーサーガス拡散実験

3. 主な成果

- ・方面地区・周辺地域における核種濃度と、発生するラドンの分布・バックグラウンドを把握した。
- ・土壤中の核種や発生するラドンの量は、基本的には地質母岩によって支配されているが、土壤からのラドン散逸量は、土質や地形・気象条件等によって異なる。
- ・方面地区内のラドン発生源として周辺土壤・岩石中のウラン・ラジウム濃度は、たい積場周辺部を除けば、幅はあるものの有意に高いものは認められない。

- ・たい積場周辺（敷地出入口まで）はウラン鉱床地帯という地質特性から、もともと岩石中に比較的高濃度のウラン・ラジウムを含んでいる。

4. 今後の課題

- ・土壤岩石中のウラン—ラジウム—ラドン—大気中のラドン—娘核種の挙動を解明していかなければならない。とくに、ラドンが地下水に溶けて移動している可能性があり、今後水の分析等も実施する必要がある。

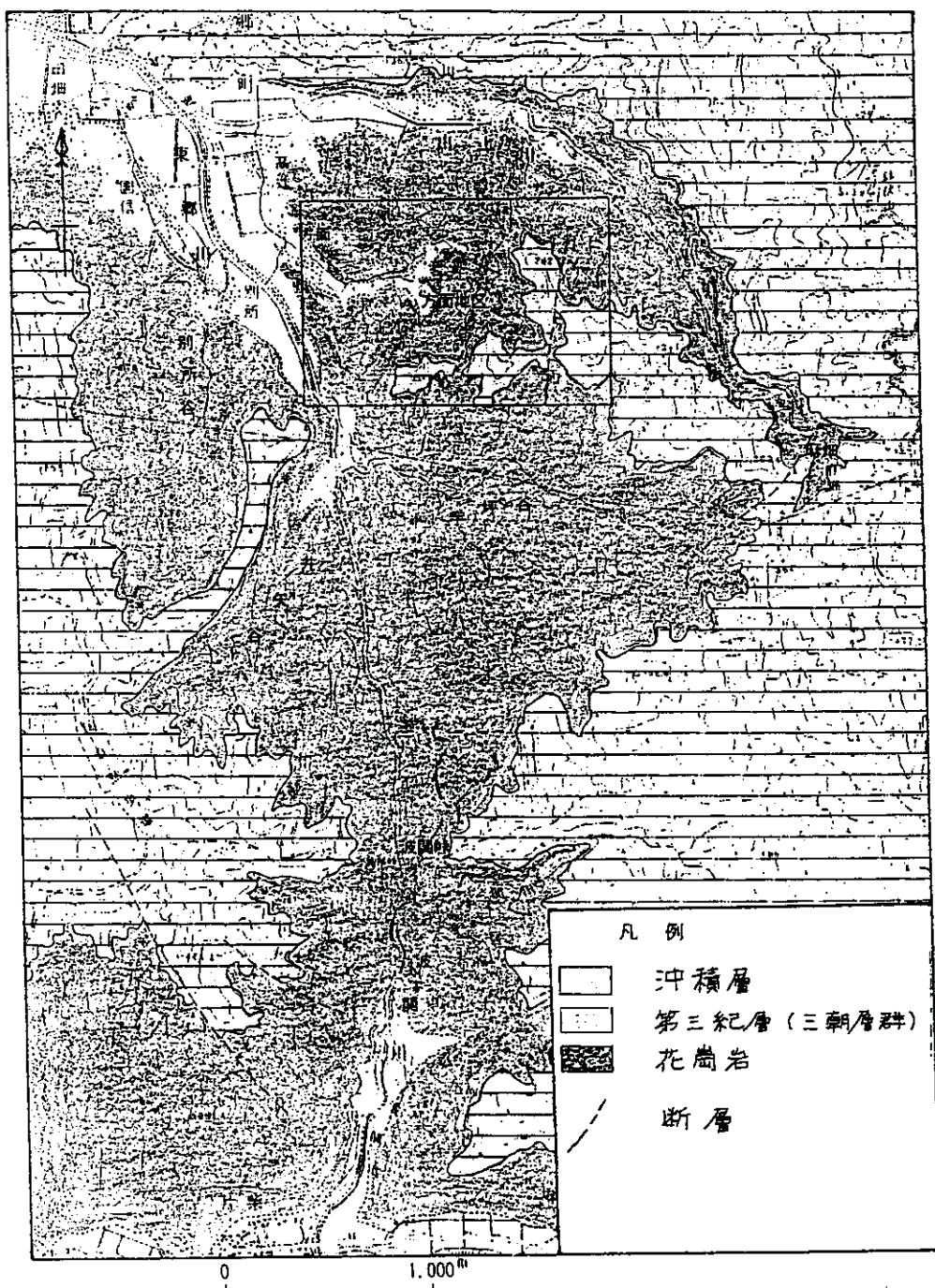
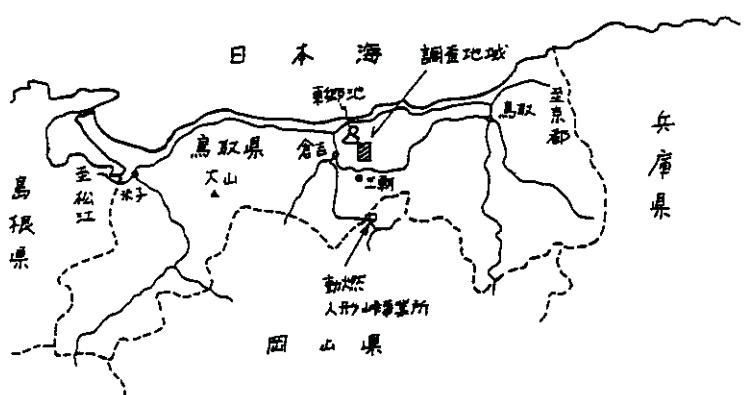


図-1 地質概略図

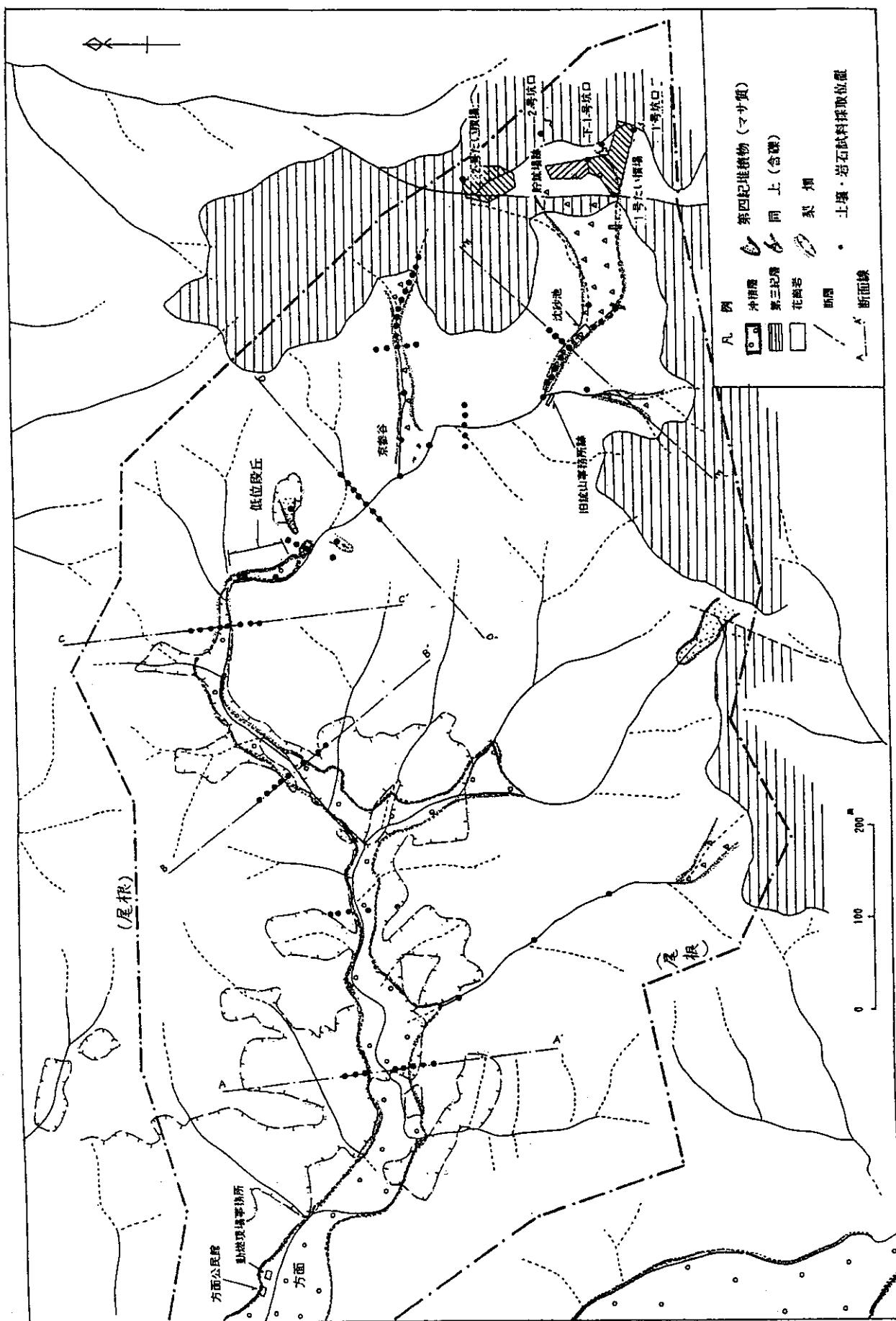
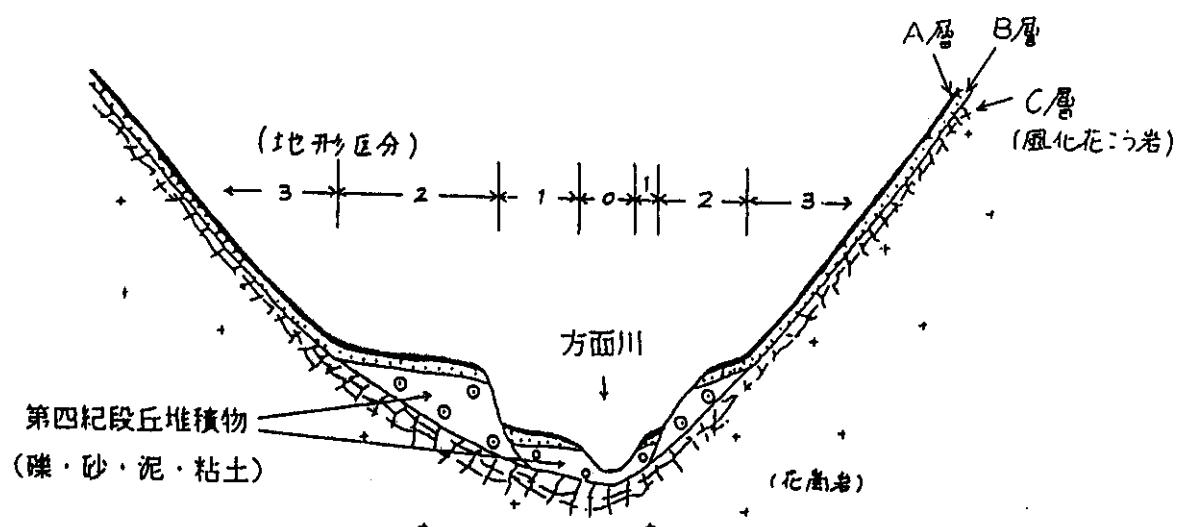
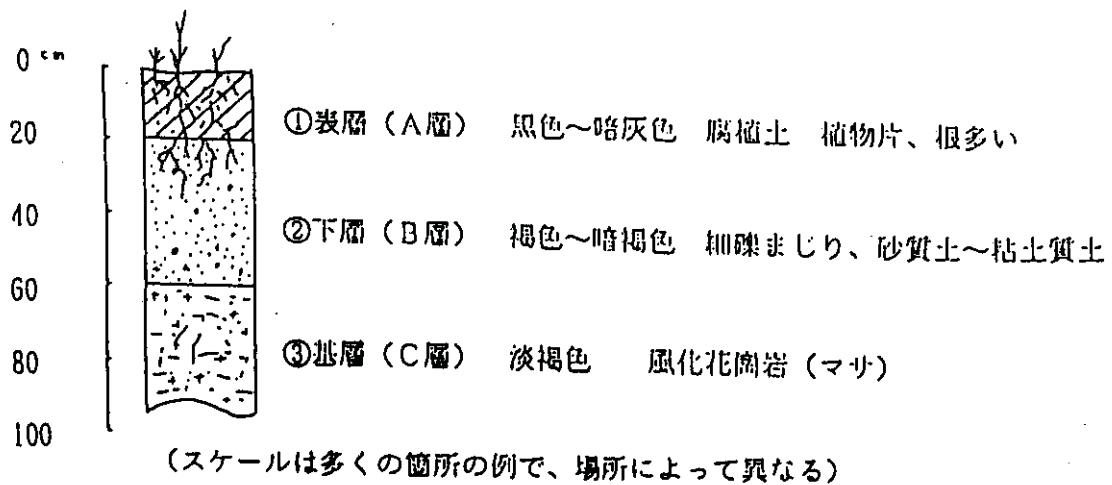
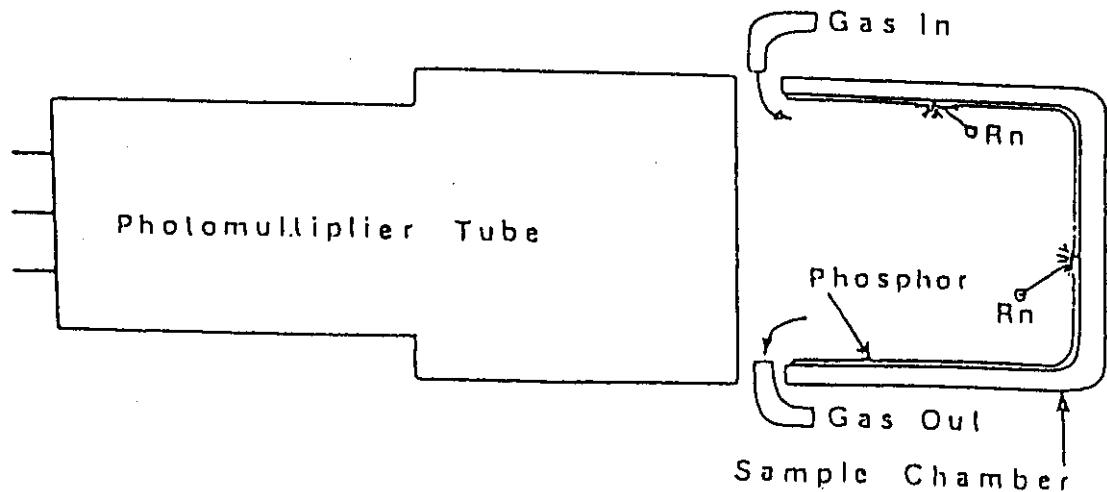


図-2 方面地区の地質と土壤・岩石試料採取位置

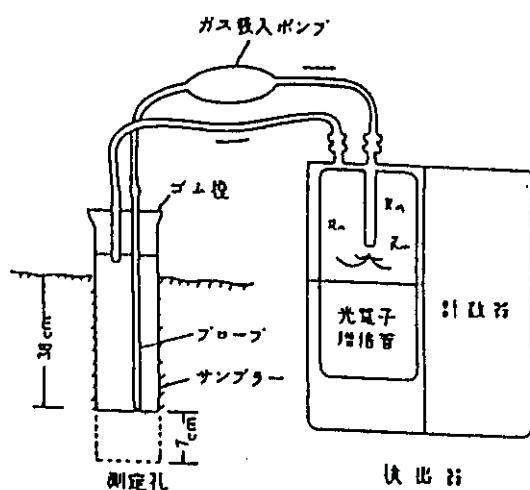


	地形区分	備考
0	河川水路	河床より河底土を採取
1	低位段丘	河床からの高さは0～150cm 古い水田の跡が見られる。
2	高位段丘	河床からの高さは50～200cm あるいはそれ以上あり、過去30数年間に河川水の影響は段丘面までは及んでいないと推定される。 現在は、梨畑として利用されている。
3	地山斜面	大部分の地質は花崗岩からなる。梨畑あるいは雑木林となっている。

図-3 土壤試料採取概念図



図一4 携帯型ラドン計測定概略図



図一5 土壤中Rn-222濃度測定図

1-21 捨石たい積場措置概要

報告者 環境資源開発課

1. はじめに

捨石たい積場の措置は、昭和63年の問題発生以来人形崎事業所が所掌する各捨石たい積場について関係機関の御指導、御協力を得ながら、必要な措置を進めてきており、その結果岡山県側及び鳥取県側の旧倉吉鉱山については必要な措置をすべて完了し、鳥取県側の方面地区及び麻畠地区、神倉地区の措置工事を残すのみとなっている。

平成4年度については、懸案となっていた方面地区捨石たい積場の安定化工事の一貫として方面貯鉱場跡処置工事を実施すべく調査設計等を終了し、関係機関との調整を図ってきたが了解が得られず、諸般の事情から工事の着工は平成5年度以降で実施することとなった。

また、神倉地区については、捨石たい積場に通じる維持・管理用道路の補修と仮橋の塗装を実施した。また、2号かん止堤付近の土砂の堆積がみられたので、土砂の越流を未然に防止する為、嵩上げ補強を実施した。

2. 措置工事概要

1) 神倉2号かん止堤嵩上げ工事(図-1)

神倉2号坑捨石たい積場には、1号かん止堤及び2号かん止堤があり、昭和63年の監督部の指導により堤体上部付近の堆積物を取り除く等の処置を行い維持・管理にあたってきたが、2号かん止堤については、その後の雨水等による土砂の堆積がみられたので、堤体上部からの土砂の越流を未然に防止する為、既設かん止堤を高さ1m嵩上げ補強する工事を当初予定どおり竣工した。(写真)

(1) 工事期間 平成4年8月17日～平成4年11月16日

(竣工 平成4年11月16日)

(監督部落成検査 平成4年12月9日)

(2) 主な項目 ① 土工(切盛土) (約150m³)
② 擁壁工(コンクリート) (約100m³)
③ 法覆工(植生ネット工) (約130m²)

2) 神倉道路補修工事(図-2)

神倉道路補修工事は、丹戸地区から神倉地区捨石たい積場へ通じている維持・管理用道路のうち雨水による路面損傷が激しい区間(415m)を粒調碎石を使用して補修すると共にその他区

間についての部分補修を行った。又道路に設置されている仮設橋（6ヵ所）の塗膜の劣化が見受けられた為、主桁、覆工板等のケレン及び塗装を行うと共に手摺の設置等の工事を当初予定どおり竣工した。（写真）

(1) 工事期間 平成4年11月16日～平成5年3月25日

(竣工 平成5年3月25日)

(2) 主な項目 ① 道路工 $L = 415m, W = 2.5m$

② 補修工 約 $1100m^2$

③ 手摺工 $H = 0.9m, L = 66m$

④ 塗装工 約 $280m^2$

3) 方面貯鉱場跡処置工事

本工事は、貯鉱場跡の堆積物全量を除去するものであり、伐採、仮設道路工事を経て、除去工事に入り、除去した堆積物については、フレコンバッグに収納して、貯鉱場跡に隣接して設ける素堀ピット内に仮置する。除去後の跡地は客土工、排水工、張芝等必要な処置を施し安定化を図る。工事は、平成4年度着工を目標とし、調査・設計の作業を実施してきたが、地元及び関係機関の了解を得られなかった等の為、工事着工が平成5年度以降となった。特に、調査・設計の段階では、監督官庁への説明資料をはじめ、地元・関係ヶ所等への説明として数多くの関係資料の作成を行った。

3. 今後の方針

平成5年度は、方面貯鉱場跡処置工事が実施できるよう、地元及び関係機関の同意取付けに全力を傾注すると共に、1、2号坑捨石たい積場の安定化工事実施に向けて事業団の方針決定及び関係機関との調整を図る為の資料の作成等に努力していく。

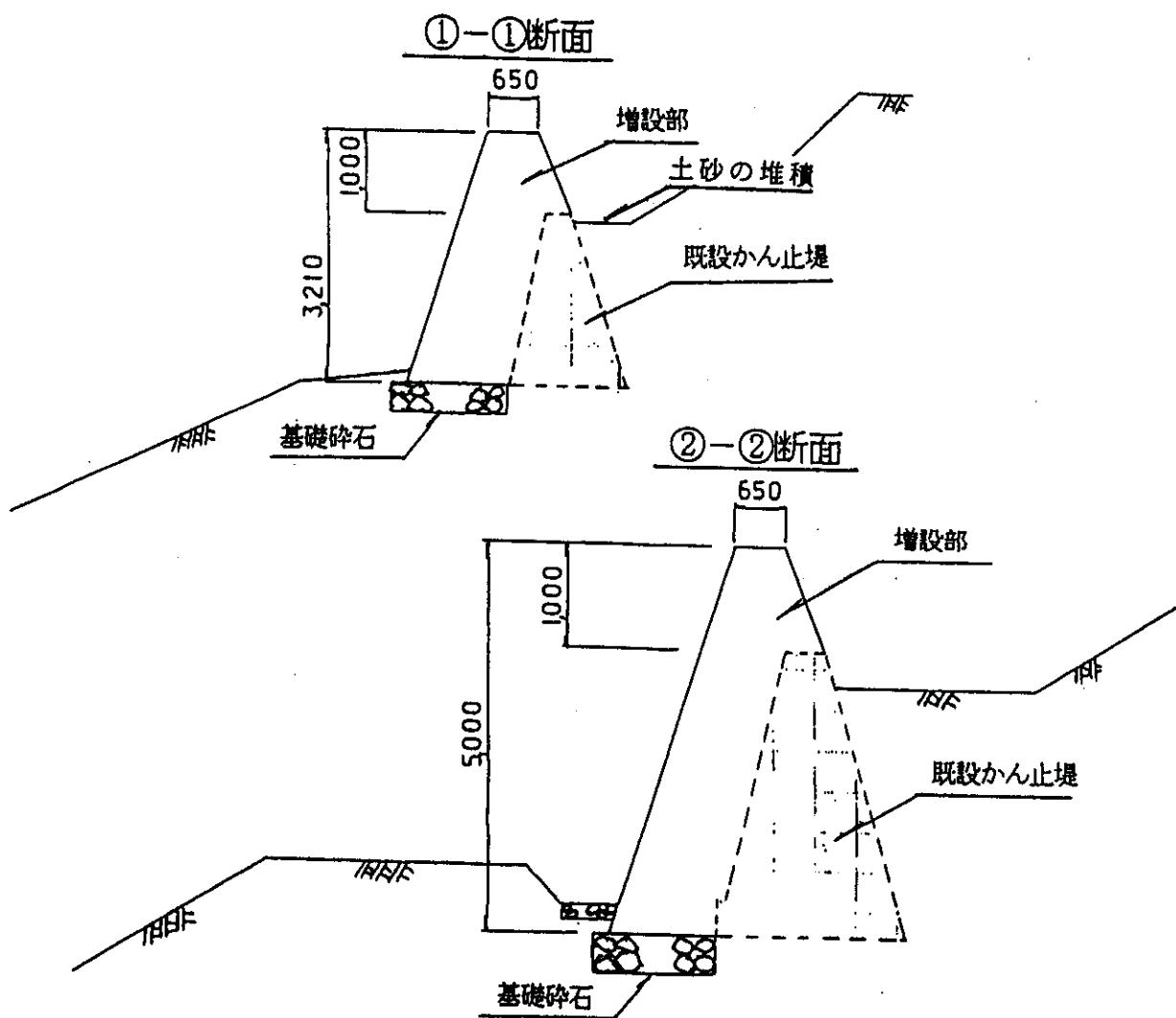
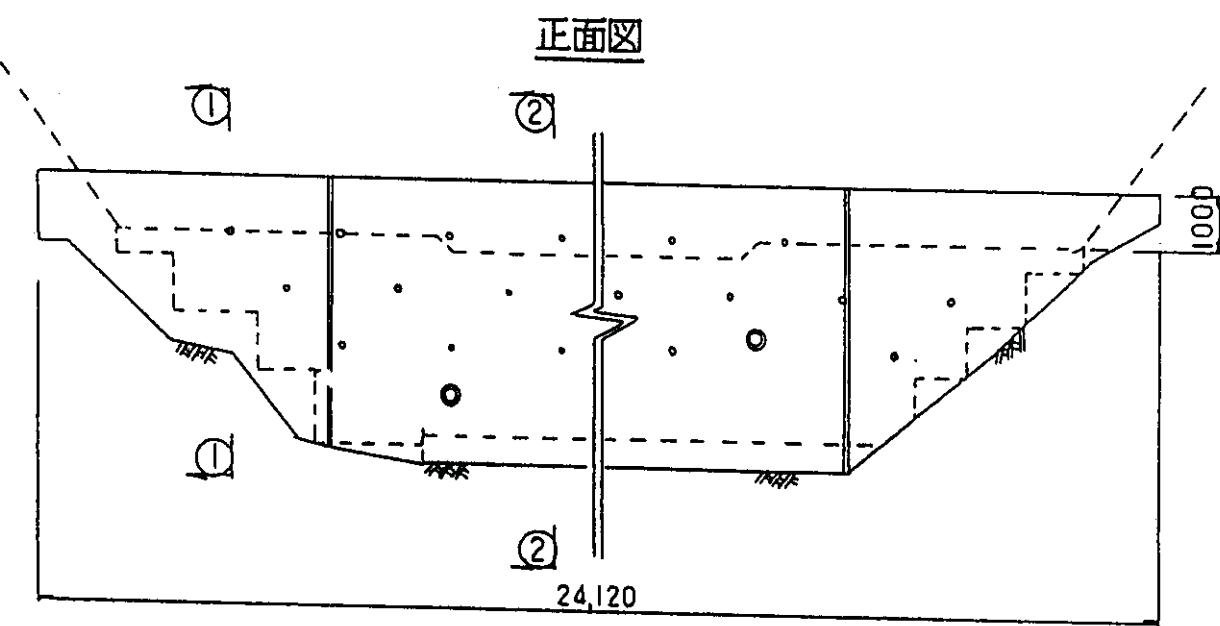


図-1 神倉2号かん止堤嵩上げ工事概要図

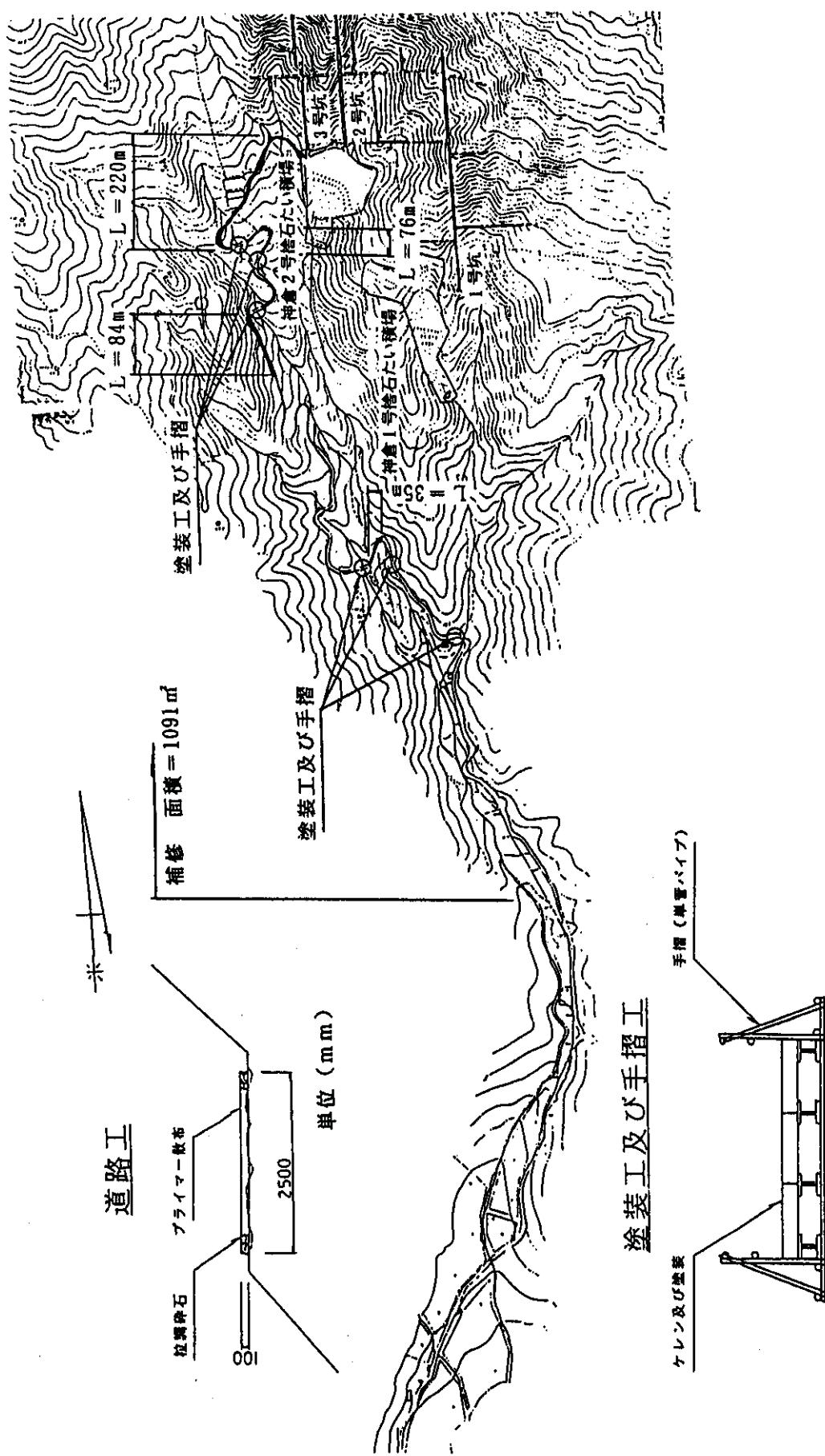
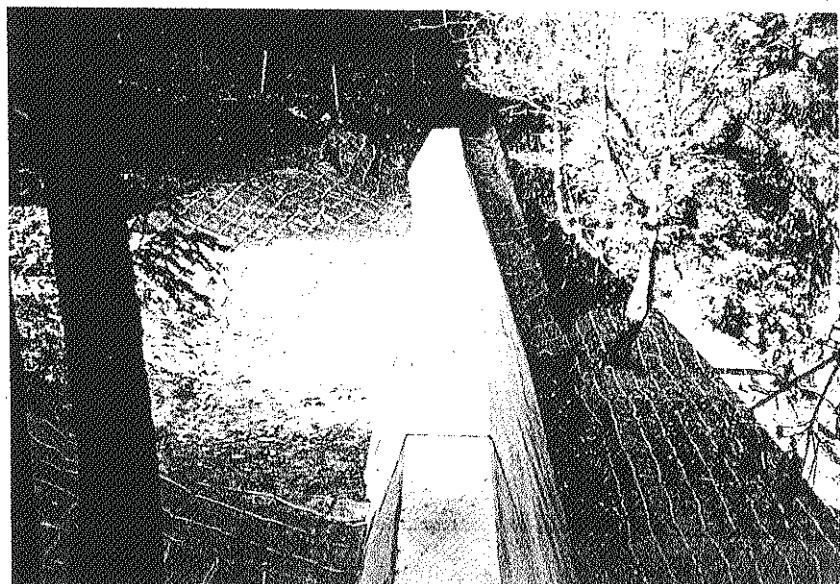
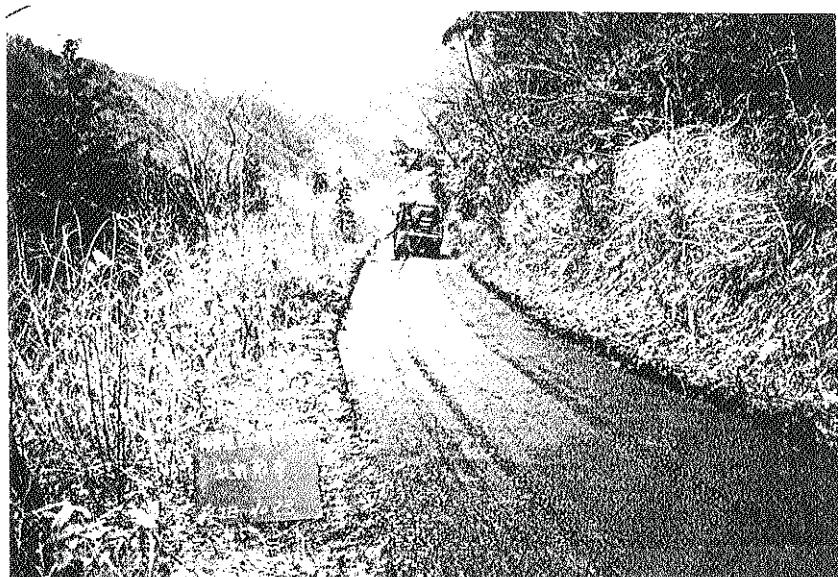


図-2 神倉道路補修工事概要図

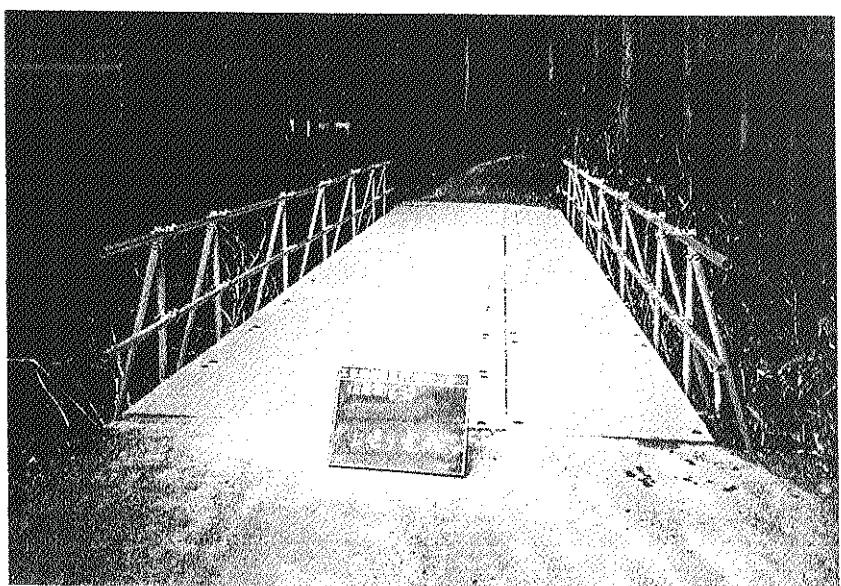
神倉 2号かん止堤
嵩上げ工事



神倉道路補修工事
道路工



塗装工及び手摺工



2. 転換技術開発課関係業務報告

2-1 平成4年度転換技術開発課業務概要

報告者 転換技術開発課 松田 健二

平成4年度は昨年に引き続き、回収ウラン転換実用化試験研究の許認可及び改造に係る業務を継続した。その間、関係各部署からの協力をいただき、その成果として監督官庁の許可を得ることができた。また、脱硝工程高度化確証試験については、試験設備の据え付け工事を終了して、官庁検査合格後に天然ウランを使用しての試験を開始した。

1. 回収ウラン転換実用化試験研究

回収ウラン転換実用化試験研究については、昨年から継続してきた監督官庁等（科技庁、監督部、岡山県）への事前説明を実施し、平成4年11月～12月にかけて許認可申請を行った。それぞれの許可は平成5年3月下旬に得ることができたため、その後改造工事の契約手続きを開始し、平成4年度分の改造工事契約を締結するとともに、自営工事として解体撤去工事に着手することができた。また、電力との共同研究、役務の変更契約締結を3月に行うとともに同3月には共同研究報告を行った。

2. 脱硝工程高度化確証試験

試験装置は、装置間の接続を終了した後に試運転・調整を行い、官庁検査の合格後に天然ウランによる単体機器性能試験を開始した。これらの成果は、当該年度の9月と3月の2回にわたって電力へ報告を行った。今後は、装置全体を同時に運転し、システム全体としての性能を確証する試験を平成5年度上期に実施するとともに許認可手続きを行い、同下期には装置を解体撤去する計画となっている。

最後に、回収ウラン転換実用化試験研究の許認可業務ならびにプロジェクトを推進するにあたり、人形崎のみならず本社、他事業所の皆様からいただいた並々ならぬ暖かい御支援と適切なアドバイスに対し、ここに心からの感謝を表したい。

転換技術開発業務実績及び計画

平成5年6月

項目	年月	平成4年度												平成5年度												
		4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12				
1. 回収ウラン転換 実用化試験																										
(1) 許認可																										
(2) 解体撤去																										
(3) 移設																										
(4) 改造工事準備																										
(5) 改造工事設計・ 製作据付																										
(6) 検査対応																										
(7) 輸送準備																										
(8) 岡山県了解条件対応																										
2. 脱硝工程 高度化確認試験																										
(1) 据付工事・試運転 ・検査																										
(2) 試験																										
(3) 解体・保守試験																										

2-2 脱硝工程高度化確証試験概要 (III)

報告者 転換技術開発課 []

1. はじめに

使用済燃料の再処理によって分離精製された硝酸ウラニル及び硝酸プルトニウムを原子炉の燃料として再利用するためには、混合酸化物への転換技術が不可欠である。

混合転換技術の一つであるマイクロ波加熱直接脱硝法の開発は、昭和53年より東海事業所において進めており、この技術はプルトニウム転換技術開発施設(10kgMOX/d施設)にて実用に供されているとともに設備の設計・運転データは日本原燃株(以下JNFLという)再処理工場のウラン・プルトニウム混合転換施設[]の設計に反映されている。

しかしながら、動燃のプルトニウム転換技術開発施設とJNFLウラン・プルトニウム混合転換施設では処理能力、設備構造、運転方法等に異なる点もあり、大型化・大容量化・連続化に向けていくつかの技術開発課題が残されている。

この技術開発課題を解決するために平成2年度から共同研究を開始し、実規模プラント相当の設備機器を平成3年度から4年度にかけて製錬転換施設内に設置した。

本試験は、天然ウランを用いて脱硝工程の高度化確証試験を実施するものであり、平成4年度は単体機器の性能試験を実施し処理能力及び粉末物性を確認した。

2. マイクロ波加熱直接脱硝法による混合転換工程

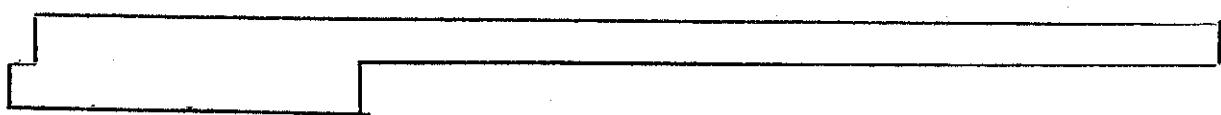
マイクロ波加熱直接脱硝法による混合転換技術は、動燃が世界に先駆けて開発した技術であり、使用済燃料を再処理して取り出される硝酸ウラニル溶液及び硝酸プルトニウム溶液を、燃料ペレットの原料であるUO₂・PuO₂の混合粉末へ転換するものである。

(図-1 ウラン・プルトニウム混合転換施設概略系統構成図を参照)

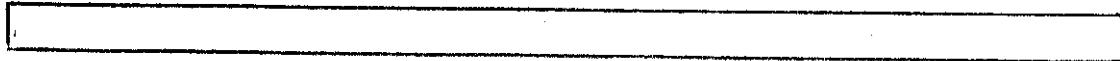
(1) 受入・貯蔵・混合工程



(2) 脱硝工程



(3) 焙焼工程



(4) 還元工程

(5) 粉碎工程

(6) ロット混合・粉末充填

3. 試験構成

平成4年度の試験項目を以下に示す。(表-1 試験構成を参照)

(1) 試運転

通水、通気による機器の作動確認及び運転員の運転操作訓練を実施した。

(2) 単体機器試験

① 予察試験

初期状態及び基本的な性能等を確認するための予察試験を単体機器試験前に実施した。

② 単体機器試験

試験機器の処理能力等を確認するため、各試験機器による単体機器試験を実施した。

4. 試験結果

単体機器試験を実施し、

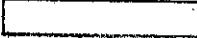
単体機器試験の評価結果を以下に示す。

(1) 混合槽

(図-2 溶液混合試験、図-3 溶液混合試験結果を参照)

(2) 脱硝装置

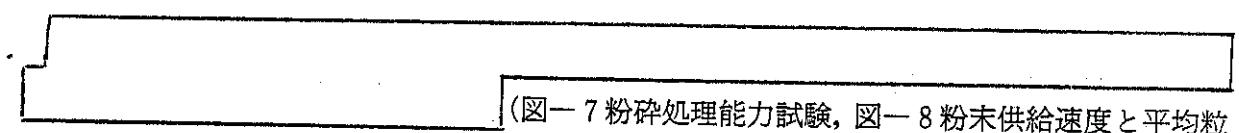
(図-4 処理能力確認試験を参照)

(3) 粉末移送装置 



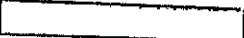
(図-5 粉末移送試験, 図-6 X-M420粉体移送試験結果を参照)

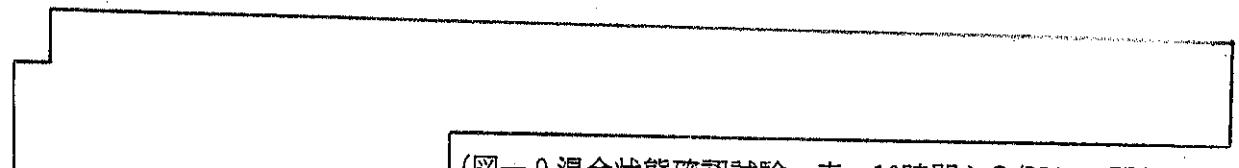
(4) 粉碎機 (粉碎処理能力試験)



(図-7 粉碎処理能力試験, 図-8 粉末供給速度と平均粒

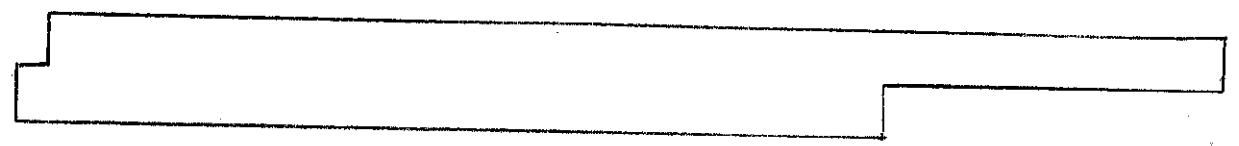
径を参照)

(5) 混合機 



(図-9 混合状態確認試験, 表-10時間とO/Uとの関係を参
照)

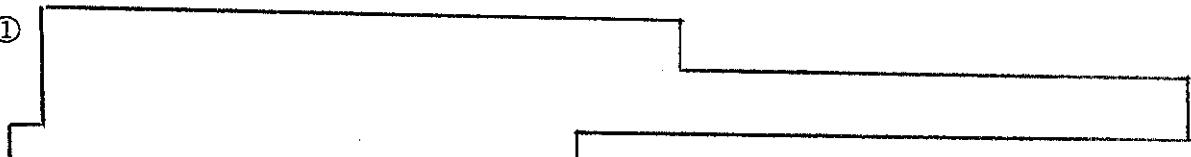
(6) 粉末物性



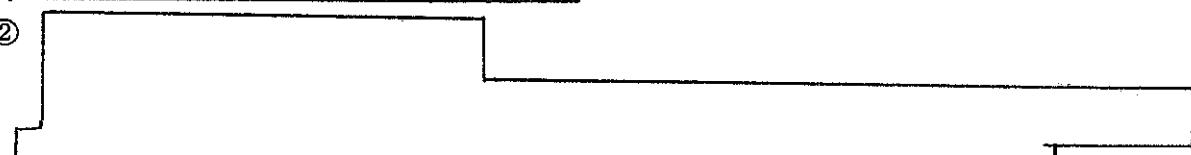
(表-2 ウラン粉末の比表面積, 表-3 ウラン粉末の平均粒径, 表-4 ウラン粉末の安息角
及び圧縮度を参照)

(7) 装置機能上の発生事象

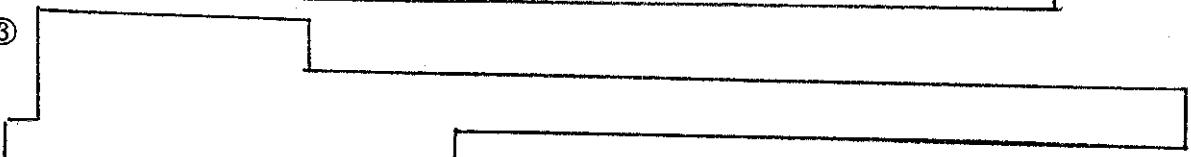
①



②



③



5. 今後の計画

平成5年度は、以下に示す試験等を実施する。

(1) システム試験

一連の工程を連続運転（自動運転）し、システムとしての処理能力を確認する。

また、非定常状態及び工程裕度に関する試験を実施する。

(2) 保守試験

試験装置のメンテナンス作業について、グローブボックスを模擬して作業性の確認を行う。

(3) 解析評価

試験データの解析及び評価を実施する。

6. 質疑応答

なし

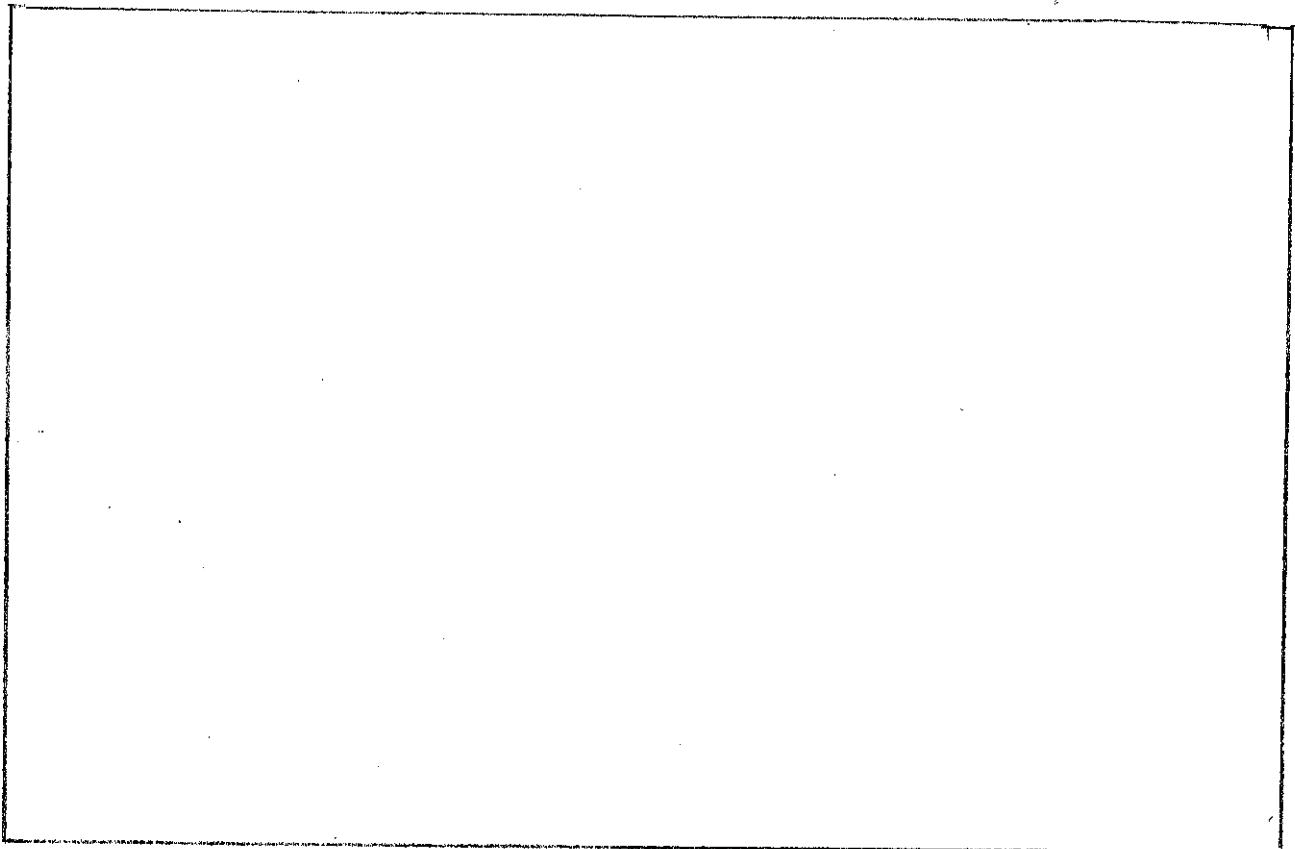


図-1 ウラン・プルトニウム混合転換施設概略系統構成図

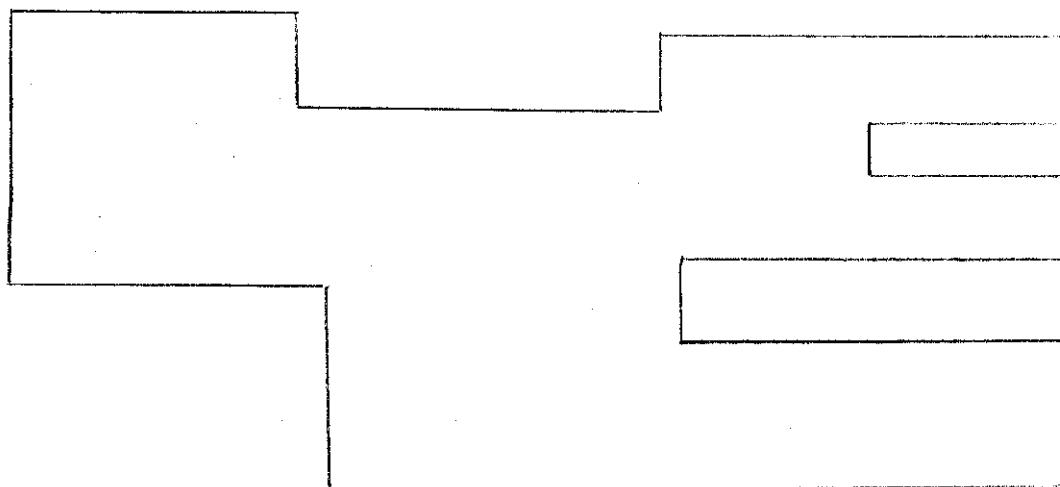
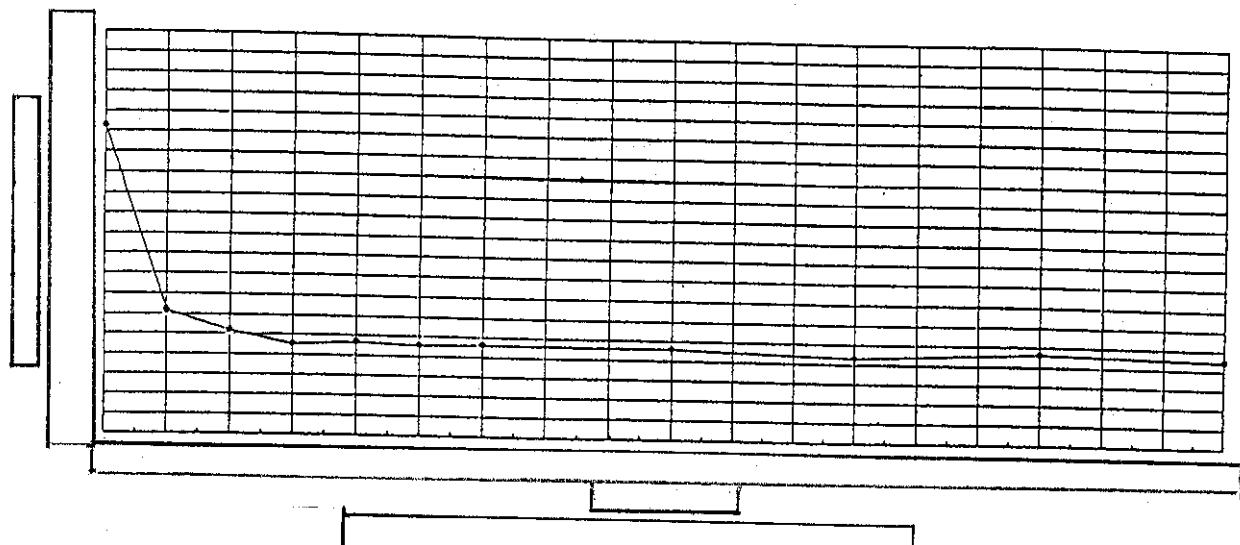
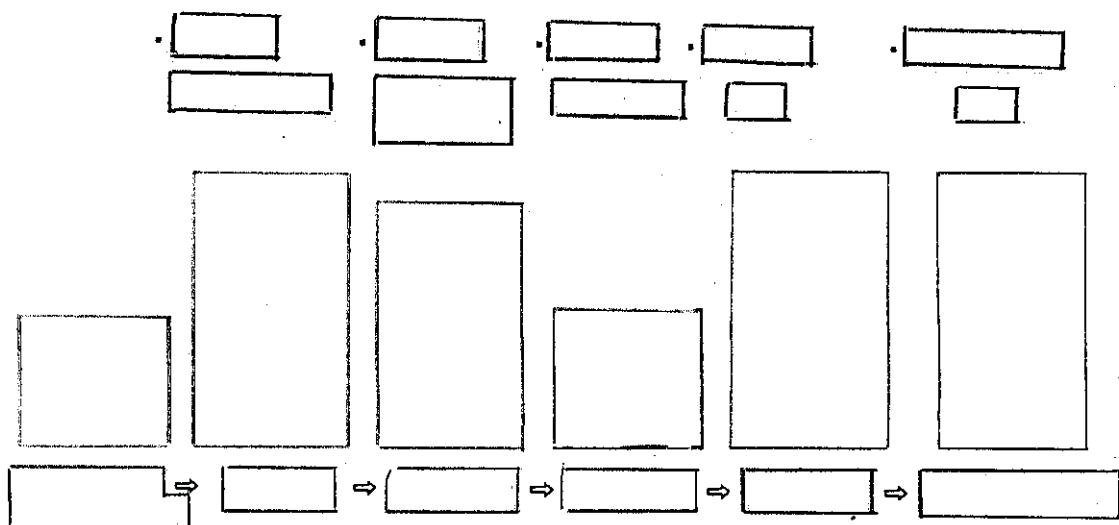


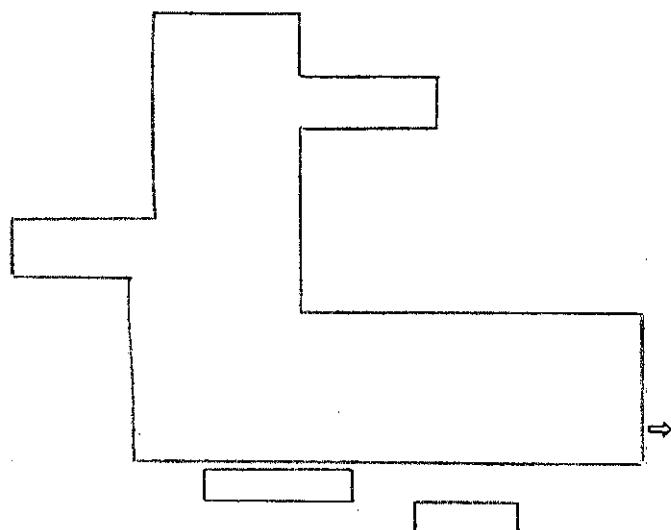
図-2 溶液混合試験



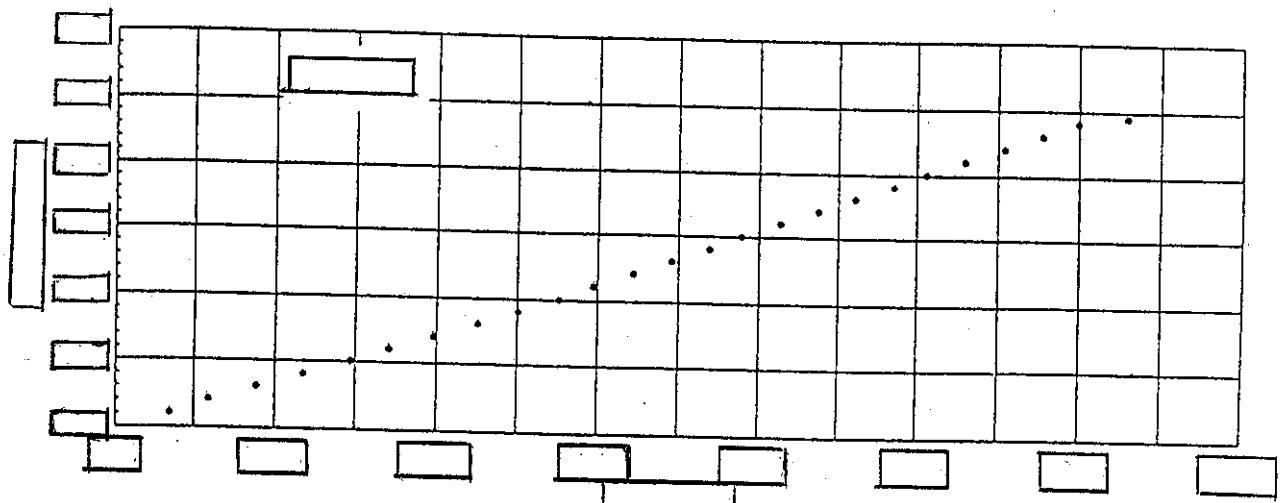
図一3 溶液混合試験結果



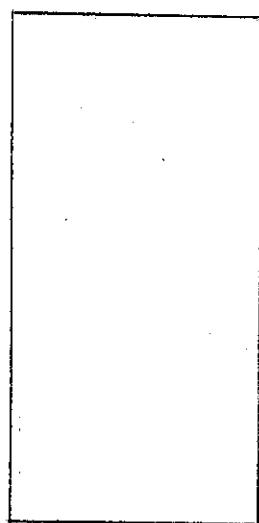
図一4 処理能力確認試験



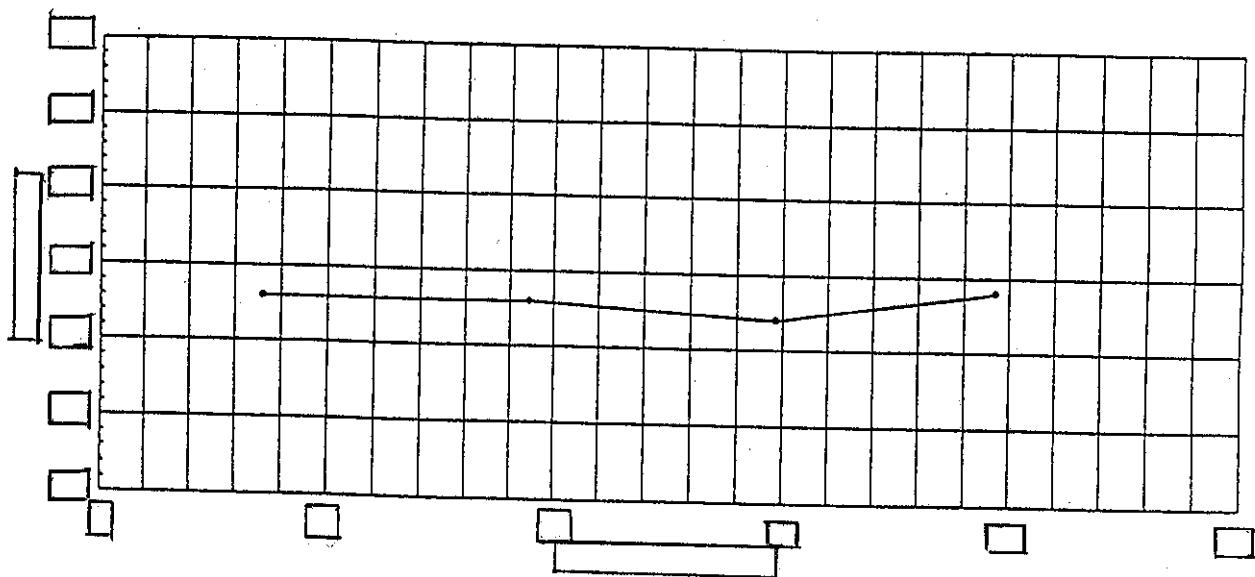
図一5 粉末移送試験



図一 6 X-M420粉体移送試験結果



図一 7 粉碎処理能力試験



図一 8 粉末供給速度と平均粒径

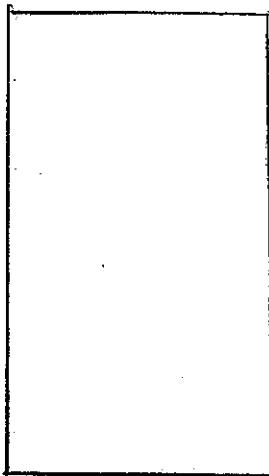


図-9 混合状態確認試験

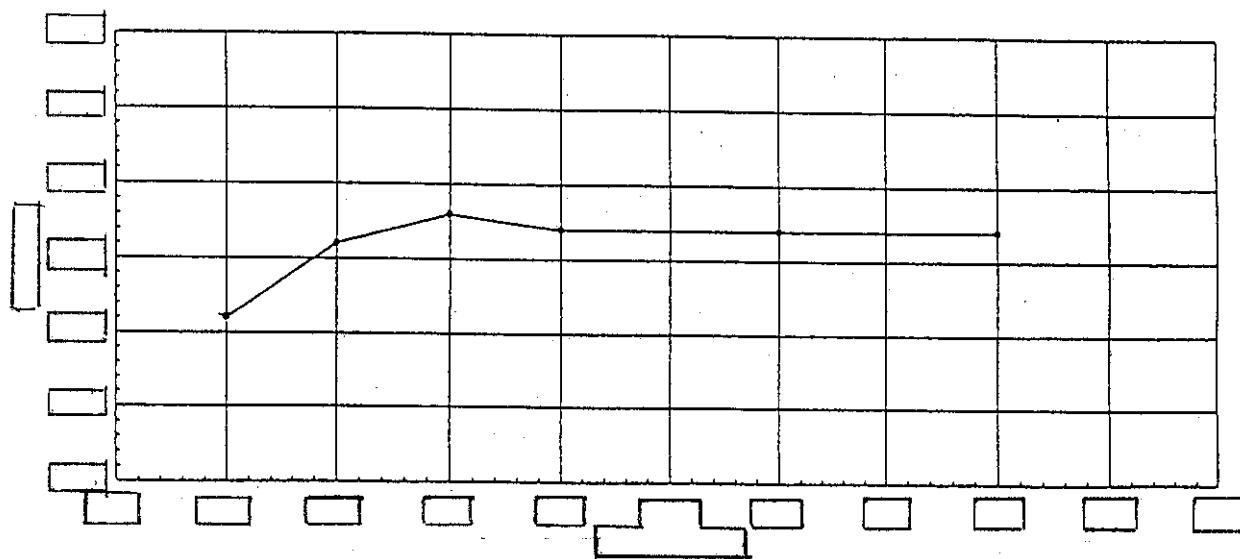


図-10 時間とO/Uとの関係

表一 1 試験構成

試験項目	主な実施内容	
試運転	<ul style="list-style-type: none"> ・通水、通気による機器作動確認 ・運転操作訓練 	
単体機器試験	予察試験	・初期状態及び基本的な性能の確認
	単体機器試験	・処理能力の確認
システム試験	予察試験	<ul style="list-style-type: none"> ・代表条件での連続処理機能の確認 ・運転操作訓練
	システム試験	・処理能力の確認
保守試験	<ul style="list-style-type: none"> ・保守性及び作業性の確認 	

表一 2 ウラン粉末の比表面積 (m²/g)

確証試験設備	10kgMOX転換施設	
	ウラン粉	MOX粉
[]	[]	[]
[]	[]	[]
[]	[]	[]

表一 3 ウラン粉末の平均粒径 (μm)

確証試験設備	10kgMOX転換施設	
	ウラン粉	MOX粉
[]	[]	[]
[]	[]	[]
[]	[]	[]
	[]	[]
	[]	[]

表一 4 ウラン粉末の安息角 (deg) 及び圧縮度 (%)

	確 証 試 験 設 備	10kgMOX転換施設	
		ウラン粉	MOX粉

2-3-① 回収ウラン転換実用化試験研究（III）－共同研究概要－

報告者 転換技術開発課

1. 緒言

回収ウラン転換実用化試験研究を平成3年度から実施し（1. 研究目的、2. 研究スケジュールを参照のこと）、平成6年度から再処理工場に保管してある電力会社所有の回収ウラン(UO_3)を（図1、2を参照のこと）、製錬転換施設に輸送して転換試験を行う。

平成4年度の研究は、 UO_3 貯蔵ポットの製錬転換施設への受入れ仕様に対する評価、輸送順序及び転換順序に対する評価、転換工程内における UO_3 中不純物の挙動把握に対する評価を行うデータに資することを目的として、 UO_3 貯蔵ポットのサンプリング、 UO_3 の一部分析及び解析を行った。

2. 研究結果

(1) UO_3 サンプリング計画の策定

- ① UO_3 サンプリング対象ポットの選定（図3、5、6、7及び表1、2、3を参照）



- ② UO_3 サンプリング分析項目（表-4を参照）

回収ウラン UO_3 の転換役務契約に基づき、分析対象核種を決定した。

a. ウラン同位体： ^{232}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U

b. 超ウラン元素：Np (α), Pu (α), Pu (β)

c. 核分裂生成物： ^{106}Ru , ^{99}Tc

- (2) UO_3 サンプリング（再処理工場 化学処理第2課が実施）（3. 研究組織を参照のこと） 収去了した□個の試料を縮分し、残り□個の UO_3 貯蔵ポットの封印解除手続き等を行った後、 UO_3 貯蔵ポットから UO_3 をサンプリングし、縮分した。

- (3) UO_3 分析（再処理工場 分析課が実施）

収去了した□個の試料に対し、 UO_3 中のウラン同位体組成比を質量分析法により、不純物含有率の分析を放射能分析法により、分析した。

- (4) データの解析評価

- ① 製鍊転換施設への受入れ仕様に対する確認を9ポットについて実施した。(表一5を参照)
 - ② ^{232}U の濃度推定
- ^{232}U の濃度と ^{236}U の同位体比の相関について検討した。(図9, 10を参照)

3. 今後の課題

残りの□ポットの分析を行い、全データについて解析評価を進める。

- ① 製鍊転換施設への受入れ仕様に対する評価
 - a. 受入れ仕様の確認
 - b. ^{232}U の濃度推定
 - c. サンプリングしないポットの核種濃度推定方法
- ② UO_3 輸送順序及び転換順序に対する評価

4. 質疑応答

(質問) ポット処理して得られる製品UF₆の仕様に影響する要因を何と考えるか。

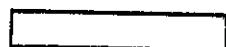
(応答) ポットの輸送順序及び処理順序が転換試験に影響を及ぼす。

UO_3 ポットの分析結果を基に、ポットの輸送順序及び処理順序を考慮して、製品UF₆の濃度を計算上予想できる。

回収ウラン転換実用化試験研究（III）

共同研究概要

転換技術開発課



報告内容

- 1 研究目的
- 2 研究スケジュール
- 3 研究組織
- 4 結果
 - (1) UO_3 貯蔵容器データの解析
 - (2) サンプリングポット選定方法
 - (3) 分析結果
- 5 考察
- 6 まとめ

1 研究目的

平成6年度から回収ウラン転換実用化試験を実施する前に、

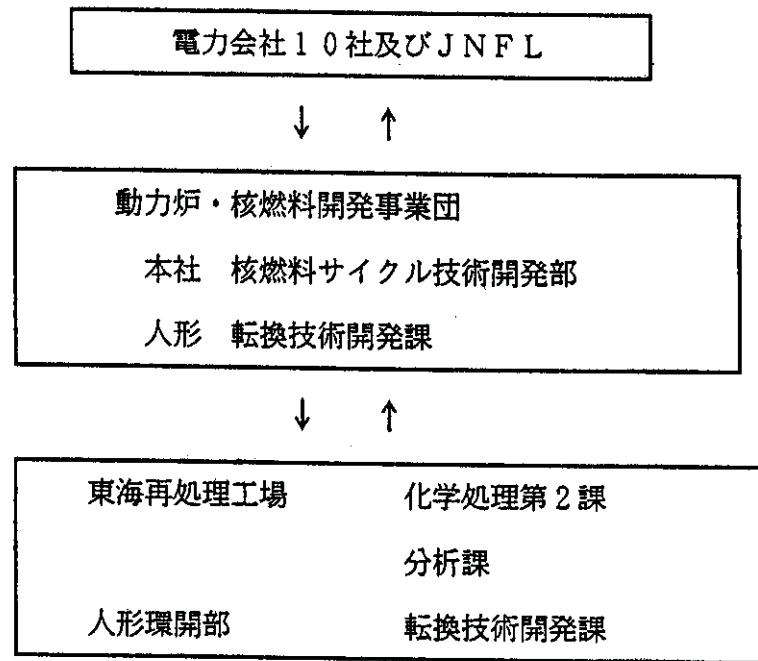
- ① UO_3 貯蔵容器の製錬転換施設への受入れ仕様に対する評価
- ② 輸送順序及び転換順序に対する評価
- ③ 転換工程内における UO_3 中不純物の挙動把握に対する評価

を行うデータに資することを目的とする。

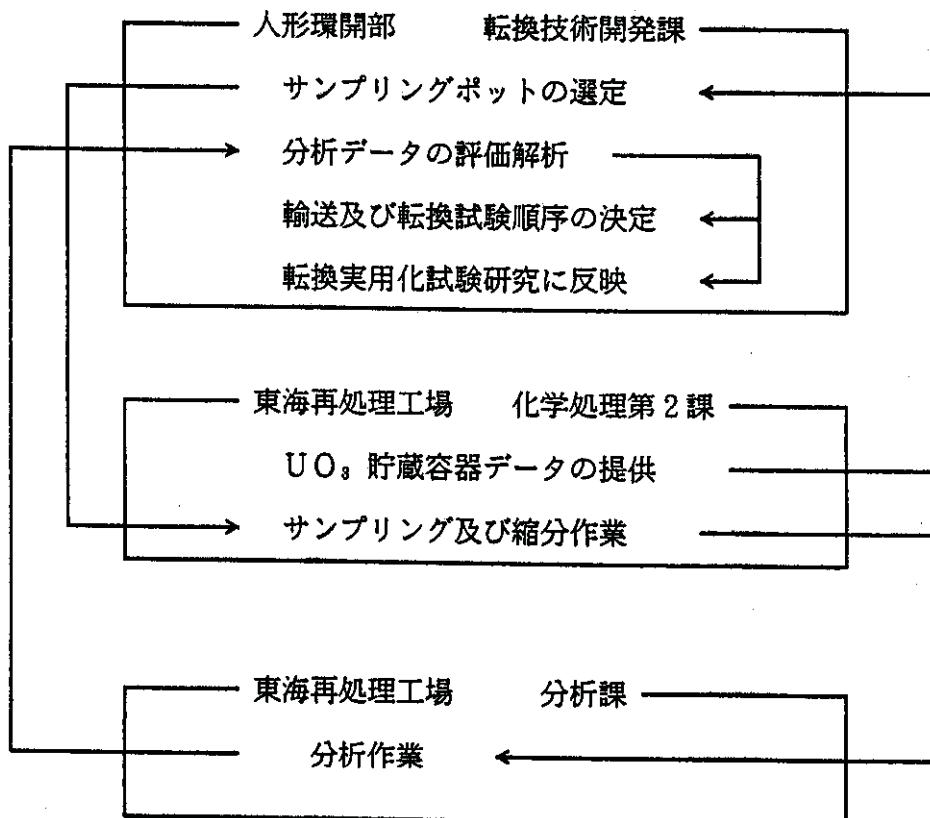
2 研究スケジュール

項 目	年 度	平成 3	平成 4	平成 5	平成 6	平成 7	平成 8	平成 9
1 試験設備の整備								
(1)								
(2)								
(3)			許認可 等					
(4)								
2 転換試験								
(1)								
(2)								
(3)								
(4)								
(5)								
(6)								
(7)								
(8)								
3 総合評価								
(1)								
(2)								
(3)								

3 研究組織



3.1 研究分担



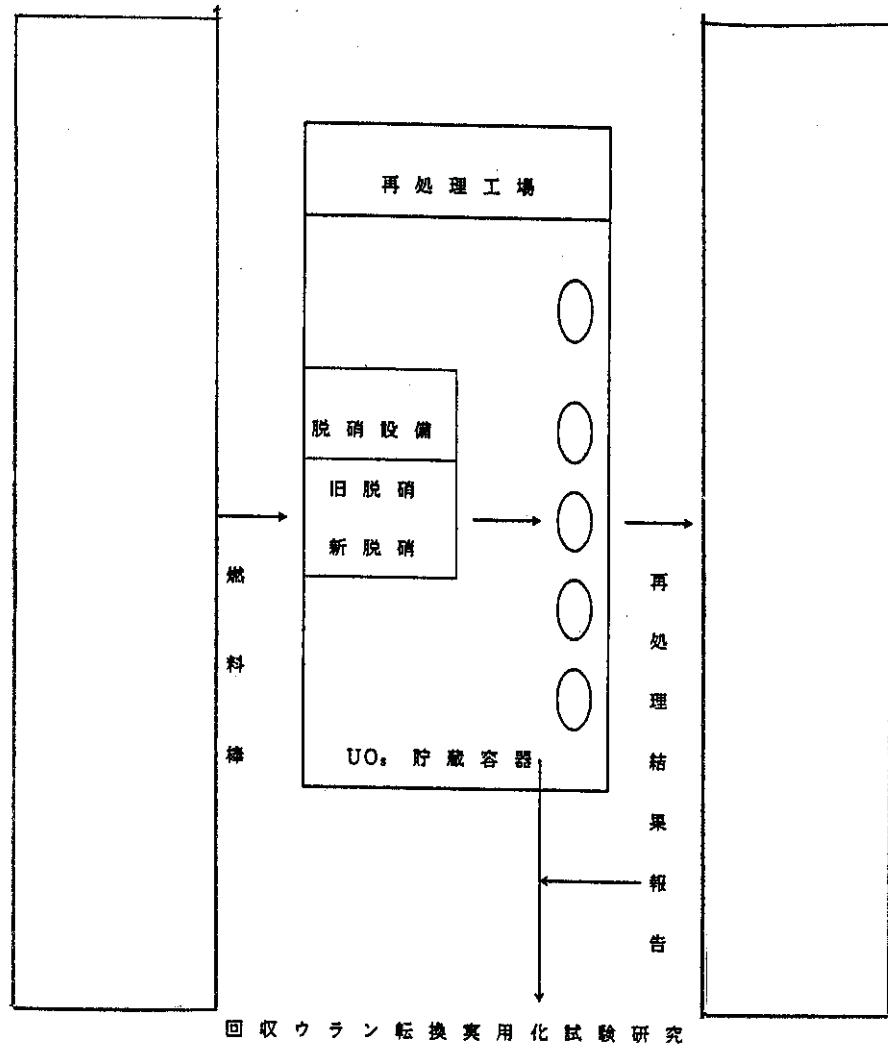


図1 回収ウラン転換実用化試験研究と再処理結果報告

圖 2-1 再處理工程圖

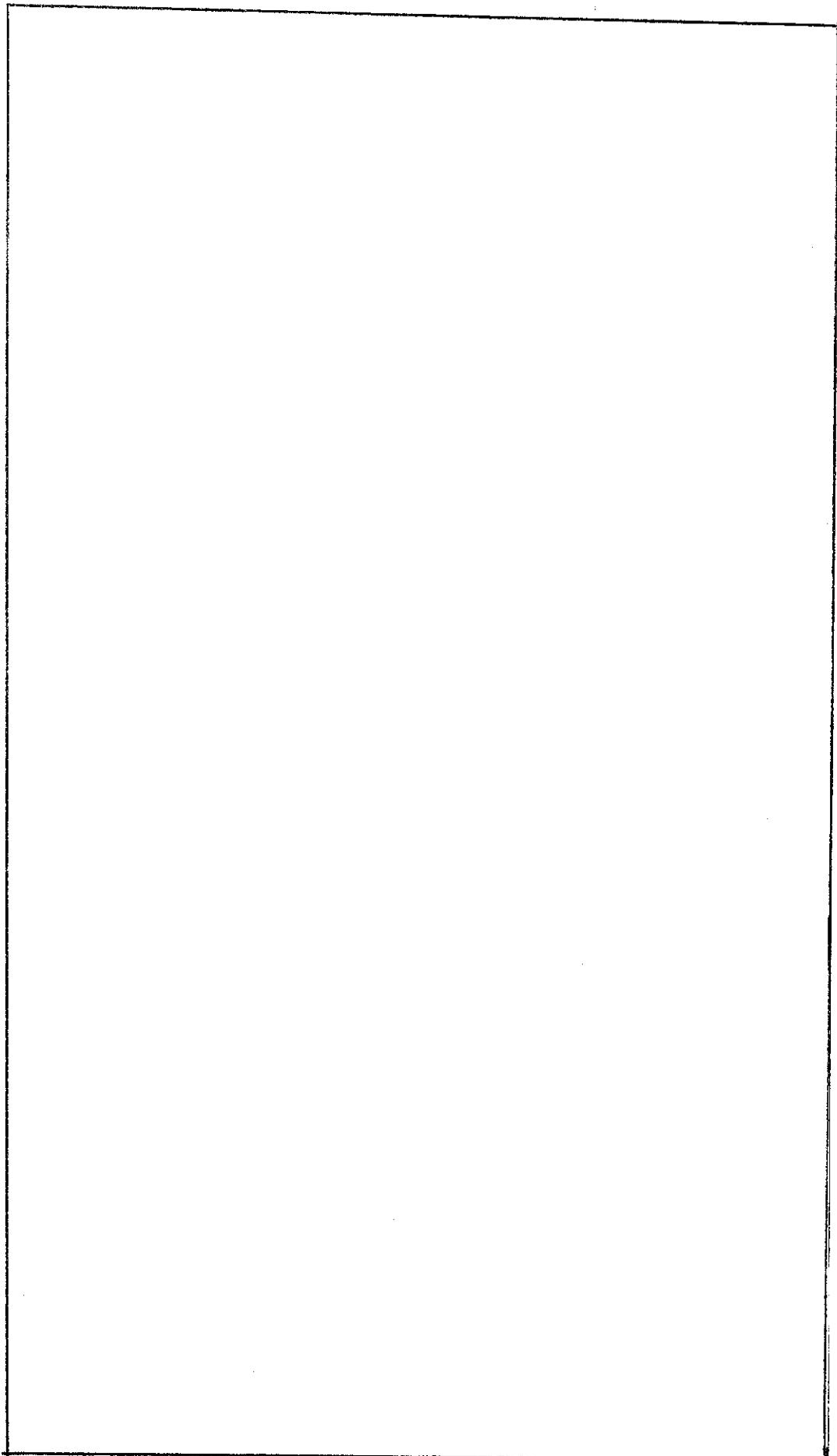


図 2-2 旧脱硝工程と新脱硝工程の拡大図

4 結 果

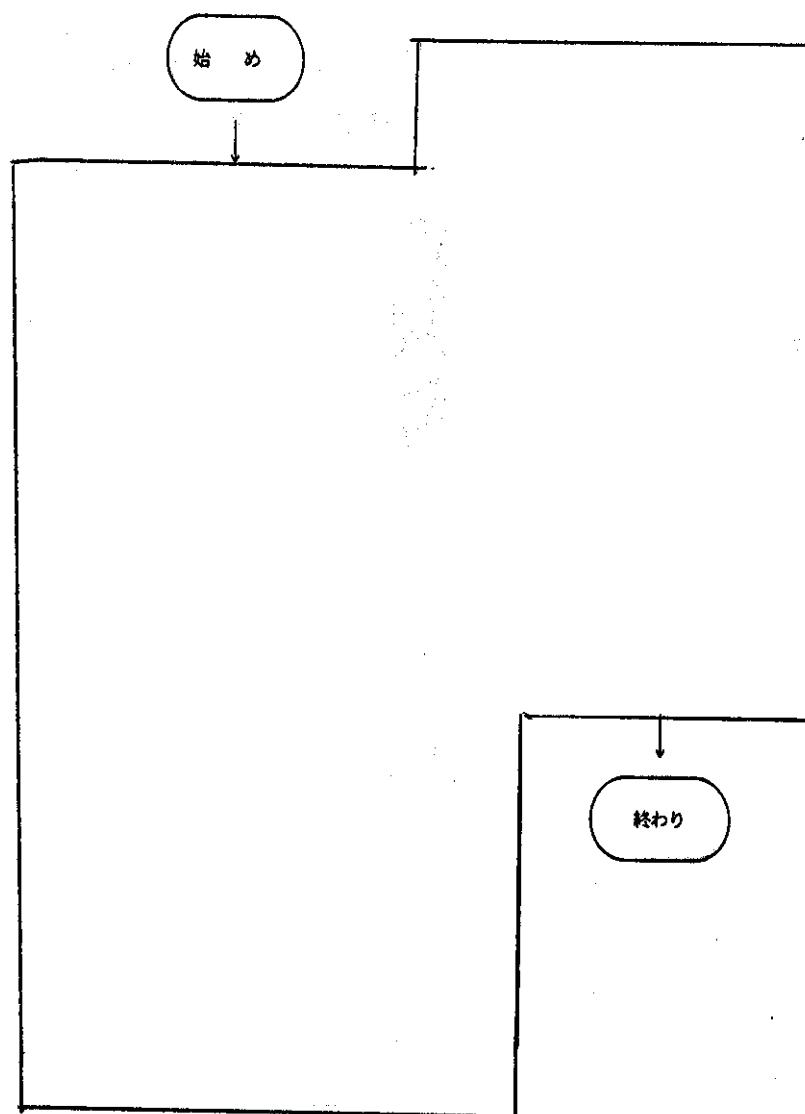


図3 サンプリングポットデータのまとめ方

表1 再処理で処理した燃料の種類及び量

キャンペーン	原子炉 名 称	平均燃焼度 燃焼度範囲 MWD/T	比出力 MW/D	初 期 濃縮度 wt %	冷却 日数 日	再処理量	処理期間

表2 UO₃貯蔵容器データ

脱 硝 日 付	容 器 番 号	ウラン 重 量	U - F I S S	ウラン 品 位	組 成 比			
					²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U

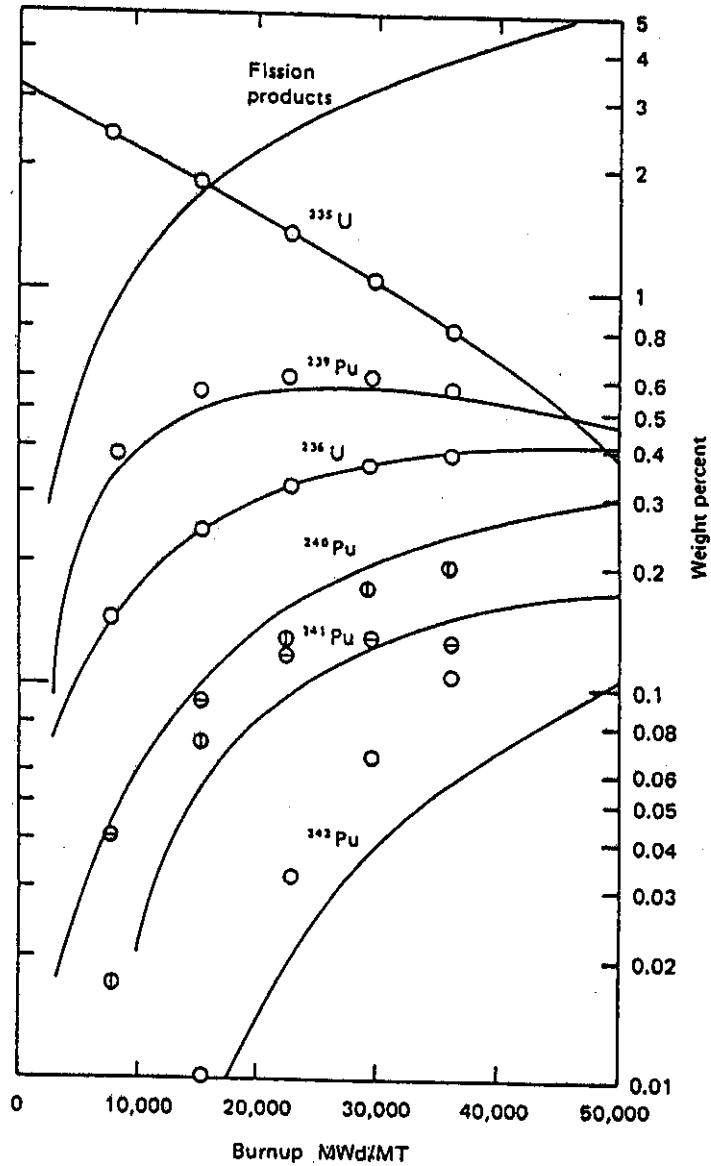


Figure 3.29 Change of nuclide concentrations in PWR with burnup. (○) Equations of this chapter; (●) ^{240}Pu , equations of this chapter; (◎) ^{241}Pu , equations of this chapter; (—) computer code CELL

図 4 燃焼度による核種の濃度変化

'BENEDICT, M., PIGFORD, T., and LEVI, H.: NUCLEAR CHEMICAL ENGINEERING, 2nd ed., McGraw-Hill'から引用

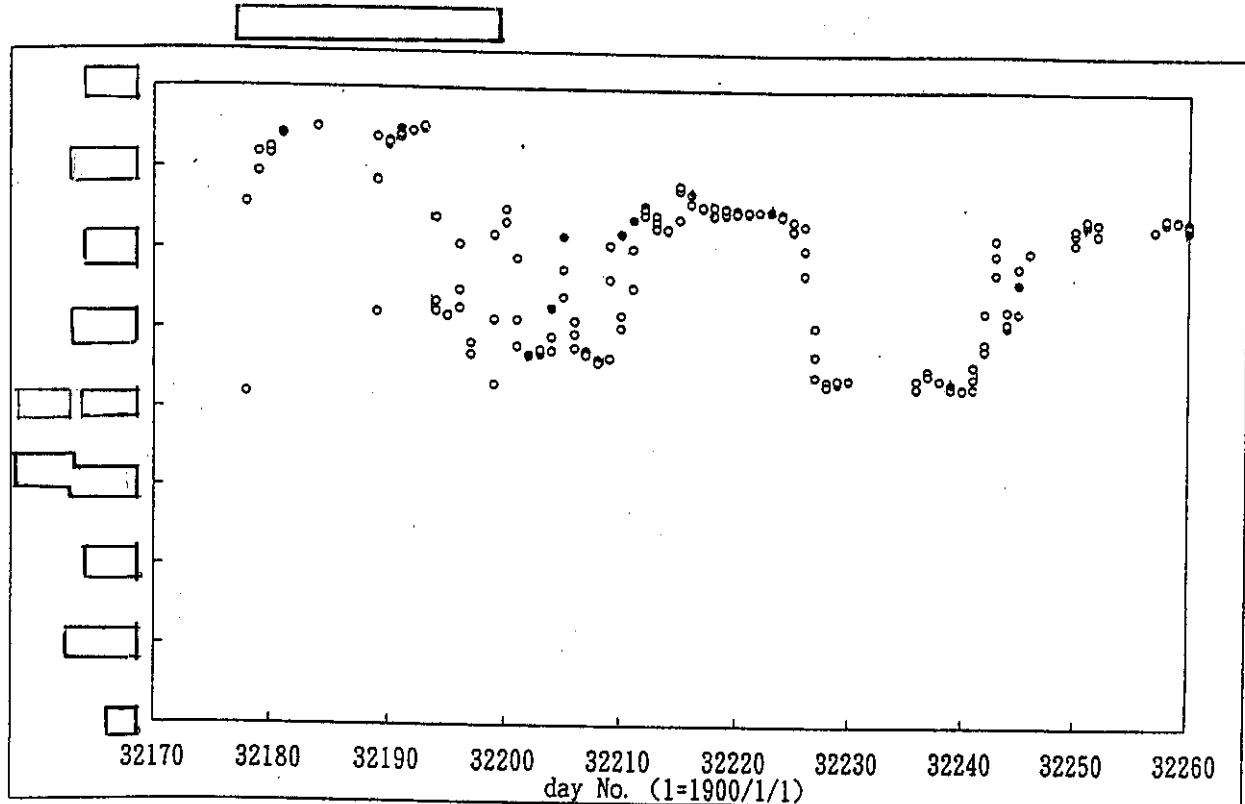


図 5-1 UO_3 貯蔵容器の□組成比（旧脱硝工程）

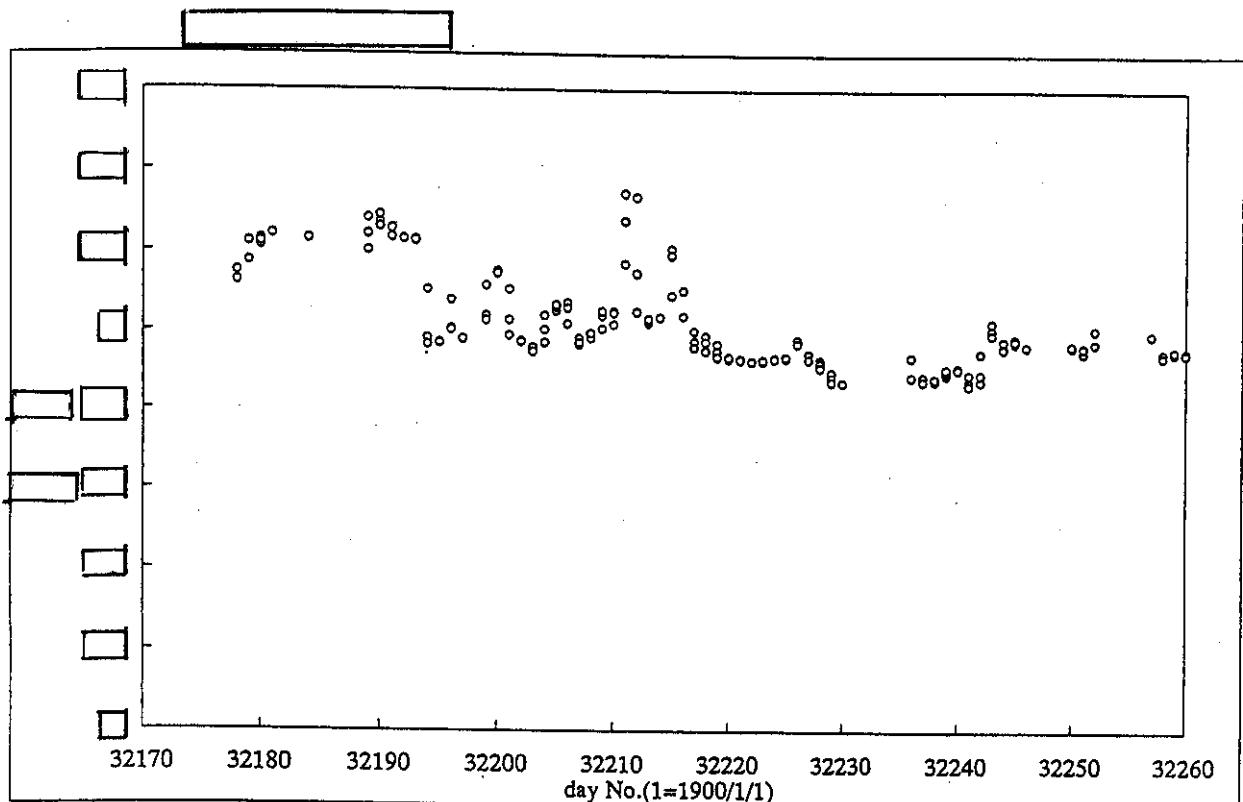


図 5-2 UO_3 貯蔵容器の ^{235}U 組成比（旧脱硝工程）

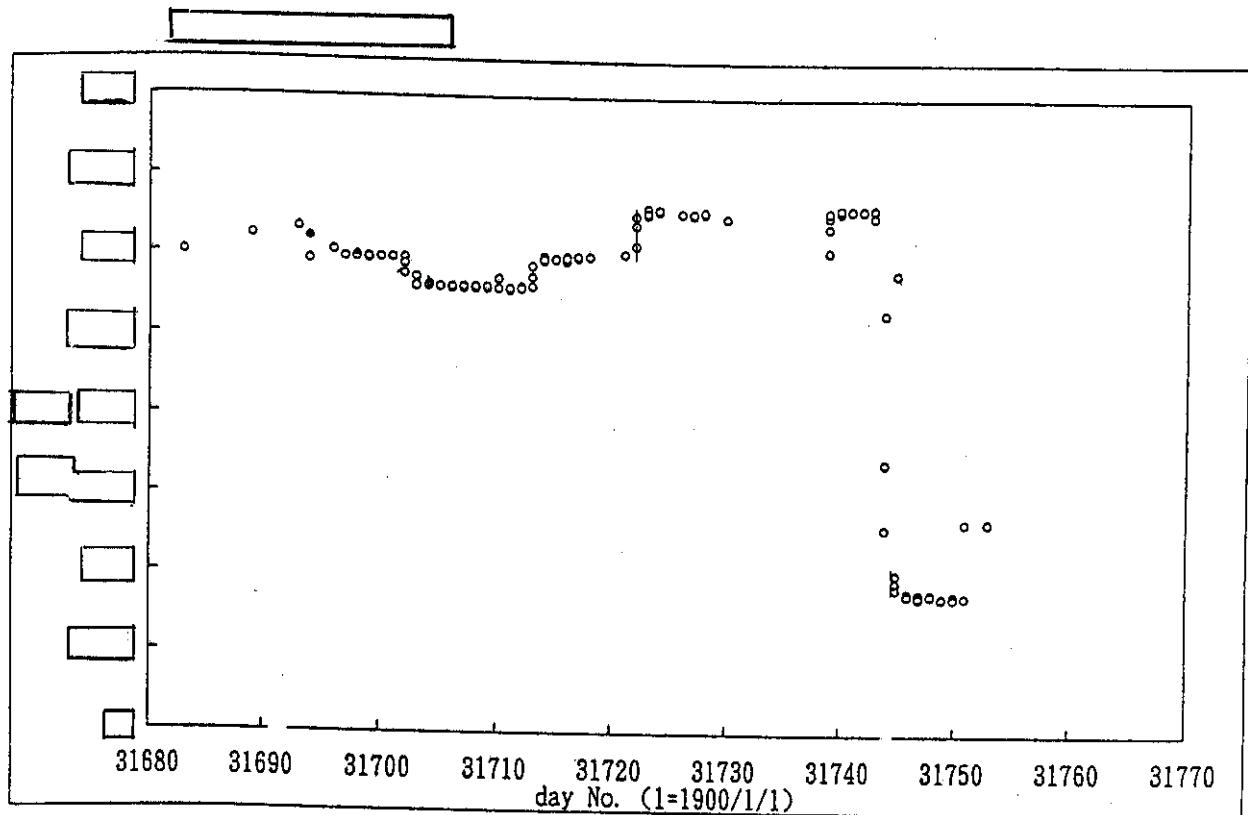


図 6-1 UO_3 貯蔵容器の□組成比（新脱硝工程）

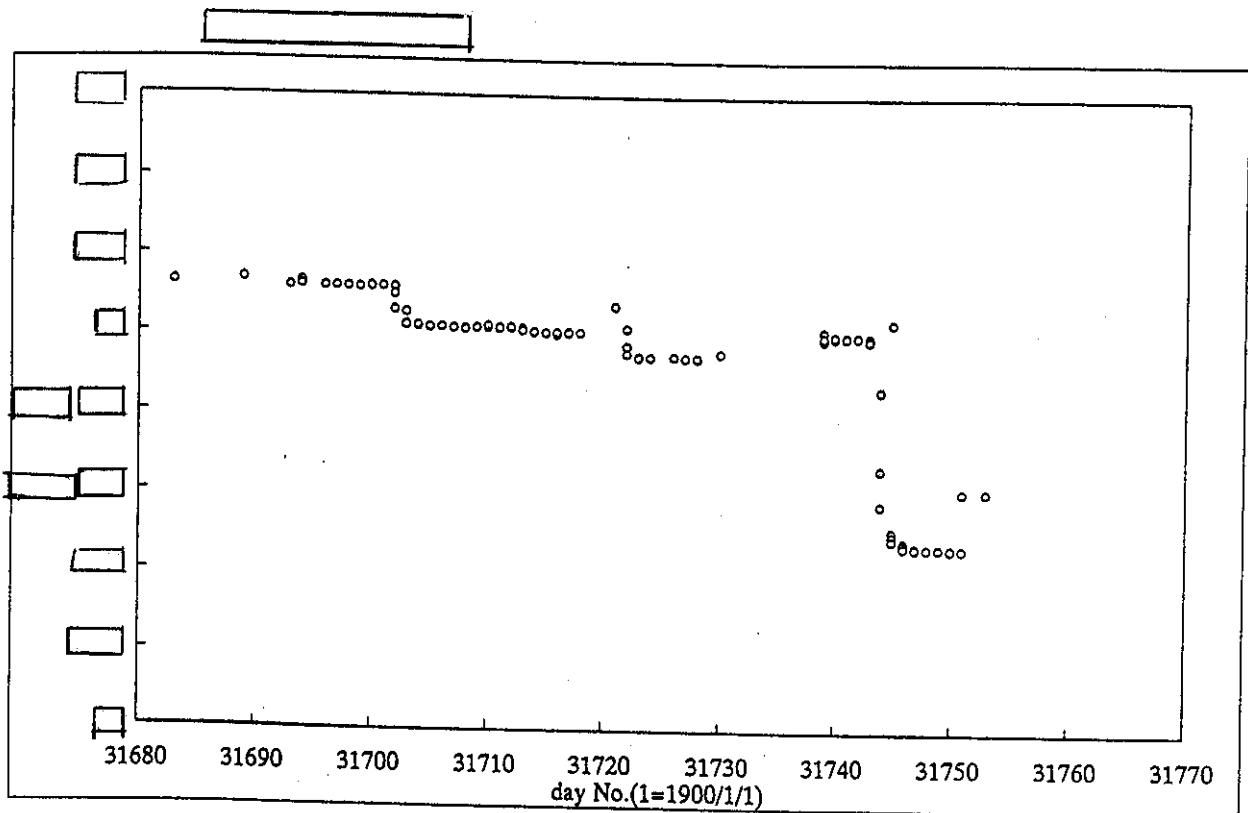


図 6-2 UO_3 貯蔵容器の ^{235}U 組成比（新脱硝工程）

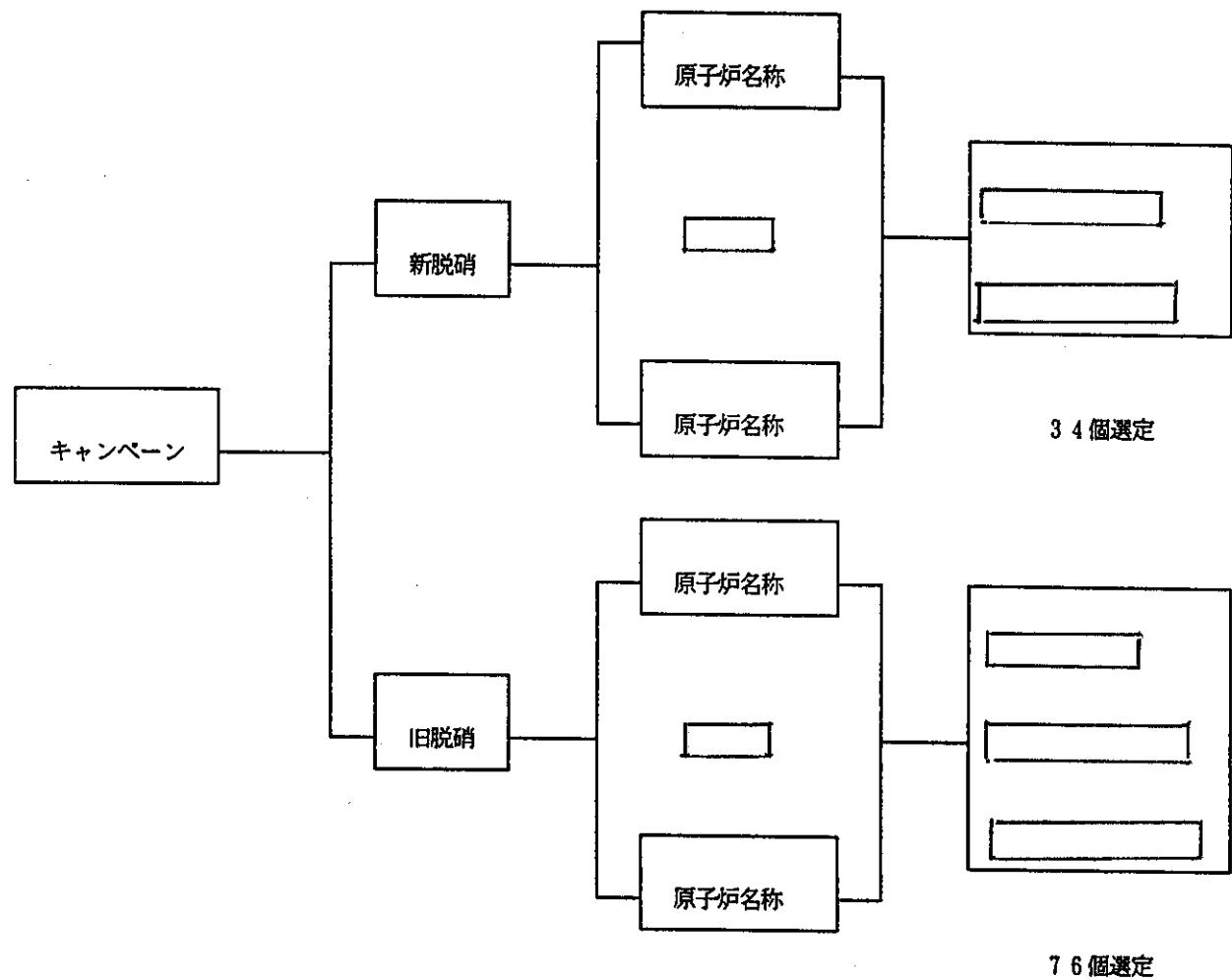
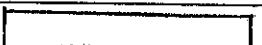
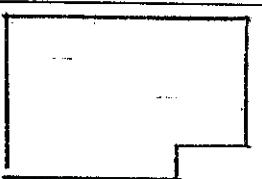
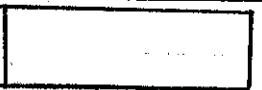


図7 UO₃サンプリングポート選定基準

表3 サンプリングポット選定結果

キャンペーン	脱硝方法	原子炉名称	炉装荷したU量(tU)	数量	回収ウラン転換実用化試験研究に基づくサンプリングポットNo
C-1	MP	原研JPDR	0.8	—	[]
		福島1-1 (B)	11.6	3	[]
		島根1 (B)	13.3	3	[]
		浜岡1 (B)	2.8	1	[]
C-2	MP	玄海1 (P)	5.6	2	[]
		美浜1 (P)	13.9	3	[]
81-1	A	福島1-1 (B)	4.7	1	[]
		浜岡1 (B)	1.9	1	[]
	B	浜岡1 (B)	14.5	3	[]
		福島1-2 (B)	5.7	2	[]
81-2	A	MP	玄海1 (P)	5.6	[]
	B	MP	島根1 (B)	8.4	[]
82-1	A	MP	島根1 (B)	14.8	[]
			伊方1 (P)	4.0	[]
	B	MP	東海2 (B)	4.1	[]
	C	MP	伊方1 (P)	7.2	[]
			美浜2 (P)	0.8	[]
82-2	MP	東海2 (B)	3.4	1	[]
		美浜2 (P)	8.7	2	[]
		玄海1 (P)	6.0	2	[]
		島根1 (B)	2.0	1	[]
83-1	MP	玄海1 (P)	1.2	1	[]
83-2	MP	東海2 (B)	1.9	1	
85-1	A	MP	玄海1 (P)	5.2	[]
	B	MP	島根1 (B)	8.0	[]

85-1	B	MP	東海 2 (B)	7.6	2	
			伊方 1 (P)	5.6	2	
			美浜 2 (P)	1.6	1	
85-2	C	DN	美浜 2 (P)	7.1	2	
			東海 2 (B)	5.2	1	
			福島 1-2 (B)	8.8	1	
86-0	DN	MP	福島 1-2 (B)	1.1	1	
			浜岡 1 (B)	12.8	3	
			福島 1-1 (B)	6.4	2	
			玄海 1 (P)	9.2	2	
86-1	MP	伊方 1 (P)	5.2	1	□	
86-2	DN	DN	美浜 1 (P)	7.6		
			福島 1-1 (B)	12.7		
			福島 1-2 (B)	6.3		
			浜岡 1 (B)	6.3		
			福島 1-1 (B)	2.2		
			ふげん (A)	5.2	-	
87-1	DN	DN	伊方 1 (P)	4.7	1	
			島根 1 (B)	6.6	2	
			東海 2 (B)	22.2	4	
	MP	MP	浜岡 1 (B)	6.3	2	
			福島 1-1 (B)	8.8	2	
87-2		伊方 1 (P)	1.2	-	□	
88-1	MP	伊方 1 (P)	5.6	2		
		美浜 1 (P)	9.4	2		
		福島 1-2 (B)	6.3	2		
		島根 1 (B)	6.7	2	□	

88-1	MP	福島 1-1 (B)	1.5	1	
		福島 1-3 (B)	6.3	2	
		東海 2 (B)	3.7	1	
		原研JPDR	(4.8)	—	
89-2	MP	福島 1-2 (B)	5.2	1	
		美浜 1 (P)	6.0	2	
		東海 2 (B)	6.7	2	
90-1	DN	福島 1-1 (B)	6.3		
		福島 1-5 (B)	11.4		
		玄海 1 (P)	6.4		
		伊方 1 (P)	5.5		
		美浜 1 (P)	18.2		
		女川 1 (B)	6.3		
		浜岡 2 (B)	11.1		
90-2	MP	東海 2 (B)	14.9	3	
		浜岡 2 (B)	1.5	1	
		福島 1-5 (B)	1.1	1	
		福島 1-2 (B)	1.1	1	
		美浜 1 (P)	15.3	3	
91-1	DN	玄海 1 (P)	11.2		
		伊方 1 (P)	5.6		
		美浜 1 (P)	11.9		
		島根 1 (B)	6.3		
		女川 1 (B)	6.3		
		東海 2 (B)	15.3		

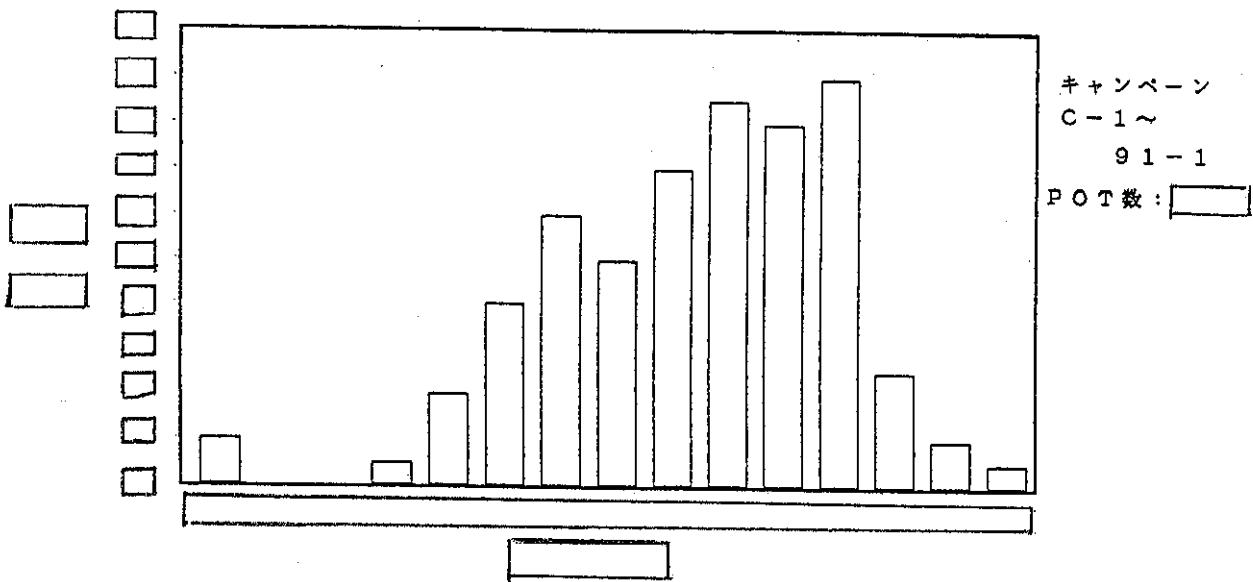


図8 サンプリングポットの ^{235}U 濃縮度分布

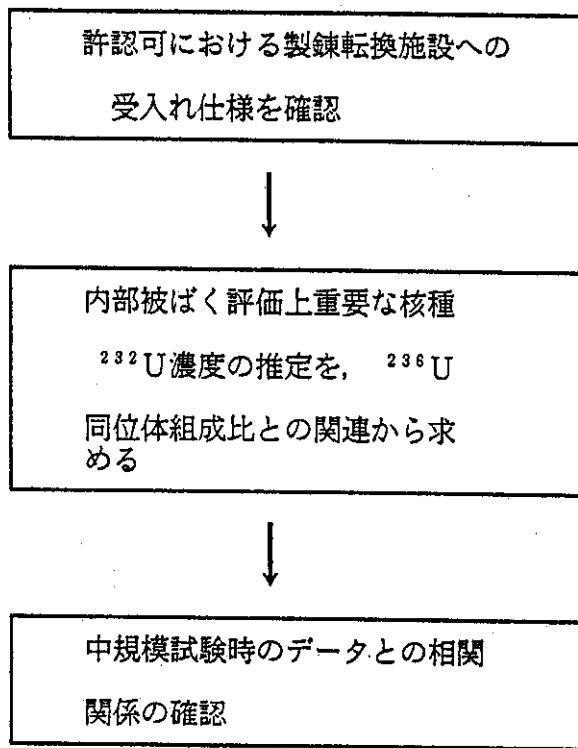
表4 UO₃サンプル分析核種

対象核種名	選定理由
²³² U	従事者被ばく, 排気排水中濃度評価
²³⁴ U ²³⁵ U ²³⁶ U ²³⁸ U	従事者被ばく, 排気排水中濃度評価 燃料設計 (²³⁶ U)
Np (α) Pu (α) Pu (β)	排気排水中濃度評価
¹⁰⁶ Ru ⁹⁹ Tc	排気排水中濃度評価

表5 回収ウラン分析結果

ポットNo	ウラン同位体				超ウラン元素 (Bq/gU)			核分裂生成物 (Bq/gU)	
	²³² U (ppb/U)	組成比 (%)			Np (α)	Pu (α)	Pu (β)	¹⁰⁶ Ru	⁹⁹ Tc
		²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U				
1									
2									
3									
4									
5									
6									
7									
8									

5 考 察



6 まとめ

(成果)

- ・ [Redacted]
- ・ [Redacted]

(今後の課題)

- ・ 残り[Redacted]の分析結果と合わせ, データの解析を行う。
- ・ 解析結果を基に, 受入れ仕様, 輸送及び転換順序, 不純物の挙動把握について評価する。

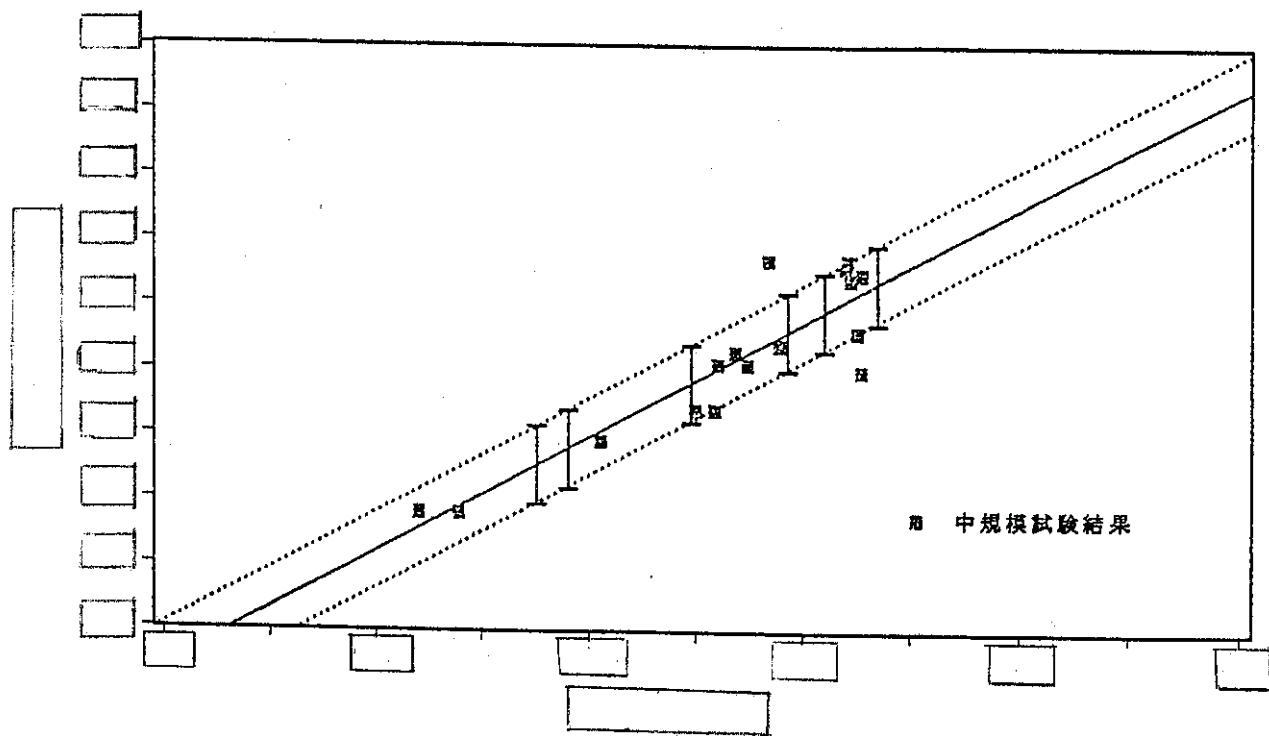


図9 ^{236}U の組成比に対する ^{232}U 濃度の推定 (BWR)

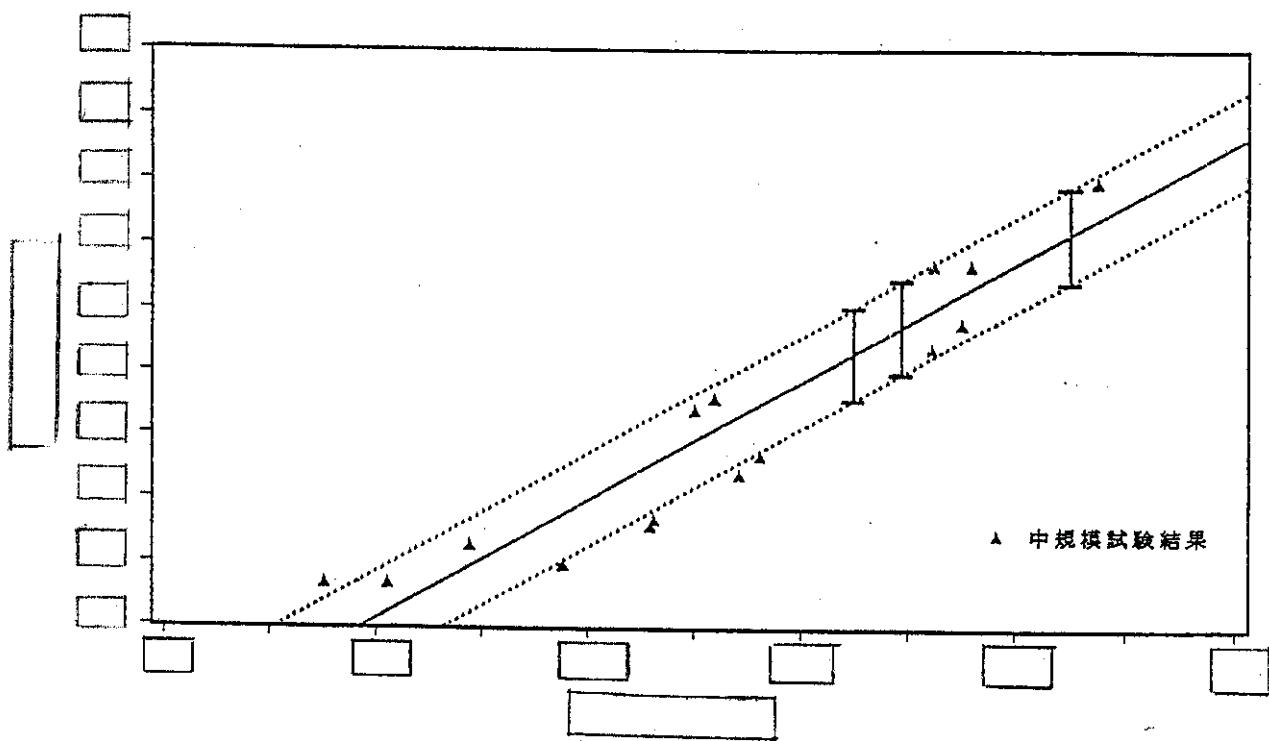


図10 ^{236}U の組成比に対する ^{232}U 濃度の推定 (PWR)

2-3-② 回収ウラン転換実用化試験研究（III）－許認可概要－

報告者 転換技術開発課

1. はじめに

人形峠事業所において、昭和54年11月に建設を開始し、昭和56年10月に竣工した製錬転換施設は、原子炉等規制法上の核燃料使用施設として、また、鉱山保安法上の製錬場として関係法令の規制の下にある。

更に、これらの規制とは別に地元の自治体との環境保全協定に基づき、施設の新增設計画及びその変更について了解を得る必要がある。

現在、転換技術開発課は「回収ウラン転換実用化試験研究」を主たる業務の一環として実施しているが、同試験研究に係る許認可等についても各種安全評価を行った後、平成3年度から事前説明等を開始し、平成4年度末に許可等を得ることができた。また、核燃料物質輸送に係る法律改正（平成3年1月1日施行）に伴い、回収ウランの輸送をIP-2型核分裂性輸送物として行うため、輸送物設計承認申請を行った。

以下に「回収ウラン転換実用化試験研究」に係る安全評価及び許認可等の概要について述べる。

2. 許認可等申請の概要

(1) 施設等変更の概要

今回の核燃料物質使用変更許可申請をはじめとする許認可等は、「回収ウラン転換実用化試験研究」に係る製錬転換施設等の変更によるものである。今回の製錬転換施設等の変更の概要を図-1に示す。

変更の内容は、大きく分けて以下の5点である。

- ① 設備機器の撤去、移設及び新設とそれに伴う機器及び部屋名称の変更
- ② 核燃料物質の使用量の変更
- ③ 施設の使用目的及び使用方法の変更
- ④ 取り扱う核燃料物質の仕様の変更
- ⑤ 核燃料物質の輸送物の変更

(2) 許認可申請等の種類及び内容

表-1に今回の製錬転換施設等の変更に伴って必要となる許認可申請等の種類及び内容を示

す。なお、輸送物については、平成4年度実施した輸送物の設計承認申請についてのみ記載した。

(3) 許認可申請等の経緯

許認可申請等の経緯を表一2に示す。

全体として、平成3年度下期に始まった「回収ウラン反対運動」の影響で許認可申請等の審査が慎重となつたため、安全評価に係るヒアリング等に多くの時間を費やすこととなつた。また、岡山県の新增設協議については、協議の他に岡山県が安全審査のために設置した環境放射線専門家会議の対応を行つた。

許認可申請等のヒアリング等の回数は以下の通りである。

- ① 核燃料物質使用許可申請 : プレヒアリング 37回、ヒアリング 45回、顧問会等 7回
- ② 採掘権に関する変更合併 : プレヒアリング 4回、ヒアリング 7回
(追加) 施業案申請
- ③ 施設(変更)許可申請 : プレヒアリング 5回、ヒアリング 1回
- ④ 岡山県環境保全協定に基づく新增設協議 : 事前協議 22回、協議 4回、定例打合せ 10回
専門家会議対応 20回、レクチャー等 10回
- ⑤ UOX/C型核燃料輸送物 : 事前説明 4回、ヒアリング 5回
設計承認申請 顧問会 3回

3. 回収ウラン転換実用化試験研究に係る安全評価

許認可申請等に際して行った安全評価の概要を以下に述べる。

(1) 安全評価の条件

今回の安全評価では、「回収ウラン反対運動」の影響により許認可申請等の審査が慎重となり、科技庁より以下の指導があつた。

- ① 耐震性及び周辺監視区域境界での被ばく評価が核燃料物質加工施設の評価基準に適合すること。即ち、耐震性については、機器の重要度に応じて剛構造とする。また、周辺監視区域境界での被ばく評価については、基準を現在の $1000\mu\text{Sv}/\text{年}$ 以下から $50\mu\text{Gy}/\text{年}$ 以下とする。
- ② 人形峠事業所の周辺監視区域境界の γ 線による被ばく評価において、核燃料物質使用施設及び加工施設の合算評価を行うこと。

このため、安全評価に際し、これらの条件を満たすよう新たに評価条件等の見直しをはかる必要が生じた。

(2) 安全評価の概要

安全評価の条件に対し、以下のような評価条件の見直しを行った。

- ① 耐震性については、機器の重要度分類を行った後、分類に応じて機器を剛構造とした。
- ② 被ばく評価については、計算モデル及び線源の見直しを行った。概要を図一2に示す。

(3) 安全評価結果

周辺監視区域境界における一般公衆の外部被ばく、内部被ばく及び排水の濃度限度比について見直し評価を行った結果、前述の条件を満たすことができた。結果を表一3に示す。

4. 岡山県新增設協議の概要

(1) 岡山県新增設協議の経緯

岡山県の新增設協議についても、前述した「回収ウラン反対運動」の影響で岡山県の審査が慎重となり、分析データ公開の要求、環境放射線専門家会議による審査等が行われ、事前協議から了解まで1年半の長期を要した。経緯の概要を図一3に示す。

岡山県の審査は、主に環境放射線専門家会議において、回収ウラン転換実用化試験の安全性について検討する形で行われた。環境放射線専門家会議の検討の状況について以下に述べる。

(2) 環境放射線専門家会議

① 検討項目

環境放射線専門家会議では、原子力安全委員会の核燃料施設安全審査基本指針を参考に定めた15項目について検討が行われた。検討項目を表一4に示す。これらの検討項目の中で、特に回収ウラン中の微量成分及び排気・排水の管理と安全評価に係る部分が検討の焦点となった。これらに係る環境放射線専門家会議での説明経緯について以下の②及び③に述べる。

② 回収ウランに含まれる微量成分及び微量成分の挙動についての説明

回収ウランに含まれる微量成分及びこれ等の挙動については、中規模試験時の実績及び回収ウラン転換実用化試験での受入仕様についての説明を行った。その結果、回収ウランについて放射線防護上の問題はなく、監視測定法についても従来通りで良いとの結論を得ることができた。説明の概要を図一4に示す。

③ 排気・排水についての説明

排気・排水については、管理方法及び安全評価についての説明を行った。その結果、排気・排水は、十分に管理されており、またその評価結果からみて環境に影響を与えるものではないとの結論を得ることができた。説明の概要を図一5に示す。

(3) 協議了解条件

環境放射線専門家会議等による審査を経て、回収ウラン転換実用化試験について岡山県及び上齋原村の了解を得ることができた。但し、了解にあたっては安全評価及び施設の管理の担保、環境中のプルトニウムの監視等に係る以下の7項目の条件が付されることになった。

〔協議了解条件（要約）〕

- ① 運転要員の教育・訓練の充実
- ② 排気・排水処理施設の検査点検マニュアル及び検査点検結果の確認
- ③ 事故時訓練の強化
- ④ 排水に係る地下埋設配管の漏水検査の強化
- ⑤ 受け入れる回収ウランの分析結果の報告
- ⑥ 施設稼働前後の環境中プルトニウムの監視
- ⑦ 施設稼働に係る環境影響評価のための環境中プルトニウムの調査・研究

5. 輸送物設計変更

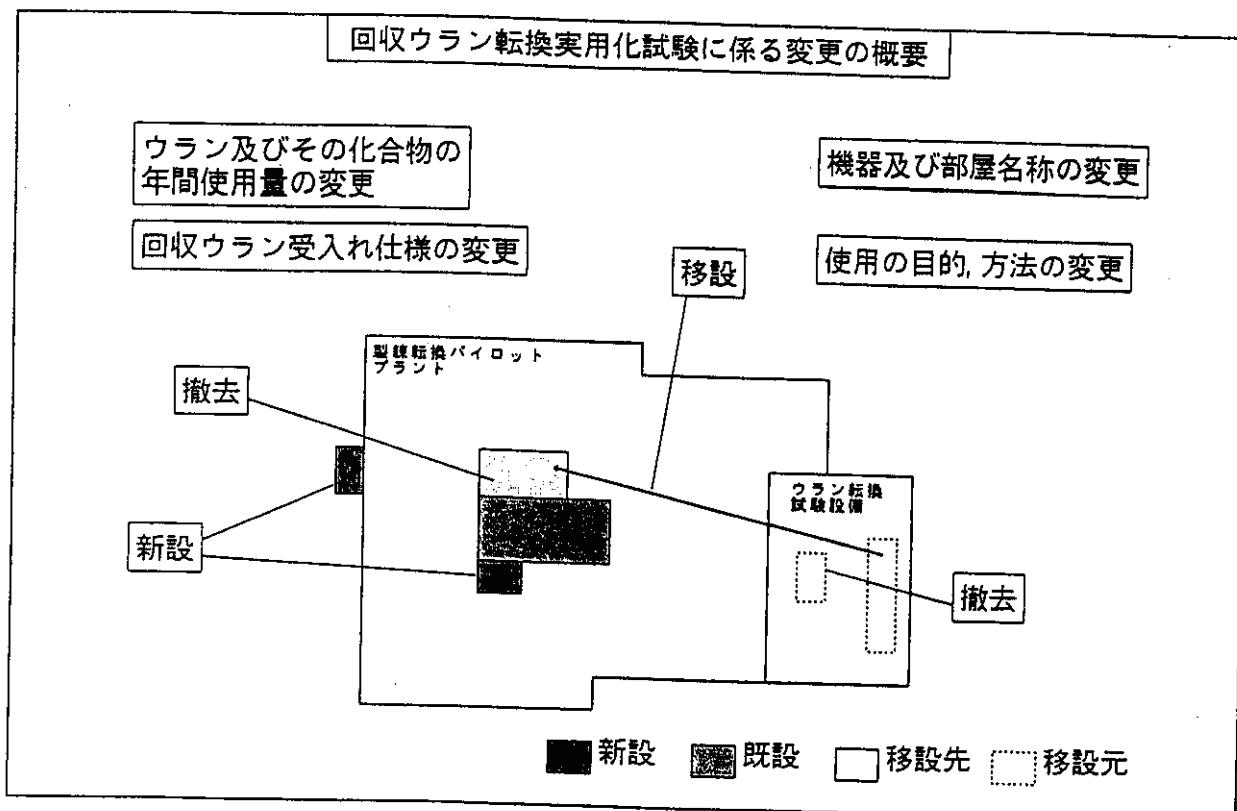
1985年に改訂されたIAEAの放射性物質安全輸送規則を取り入れた核燃料物質に係る法律改正が（平成3年1月1日施行）が行われた。

新法律では、A型輸送とするよりもIP-2型とする方が一基あたりの回収ウラン輸送量を多く出来るため、IP-2型（UOX/C型核燃料輸送物）としての現設計の見直し及び設計承認申請を行った。

6. 今後の予定

今後、引き続き回収ウラン転換実用化試験に係る許認可として以下の業務を行っていく予定である。

- ① 施設検査に関するヒアリング及び申請・検査の手続きを行う。
- ② 輸送容器承認申請を行う。
- ③ FA、DIQの改訂交渉及び計量管理規定見直しに必要な情報の取りまとめを行う。



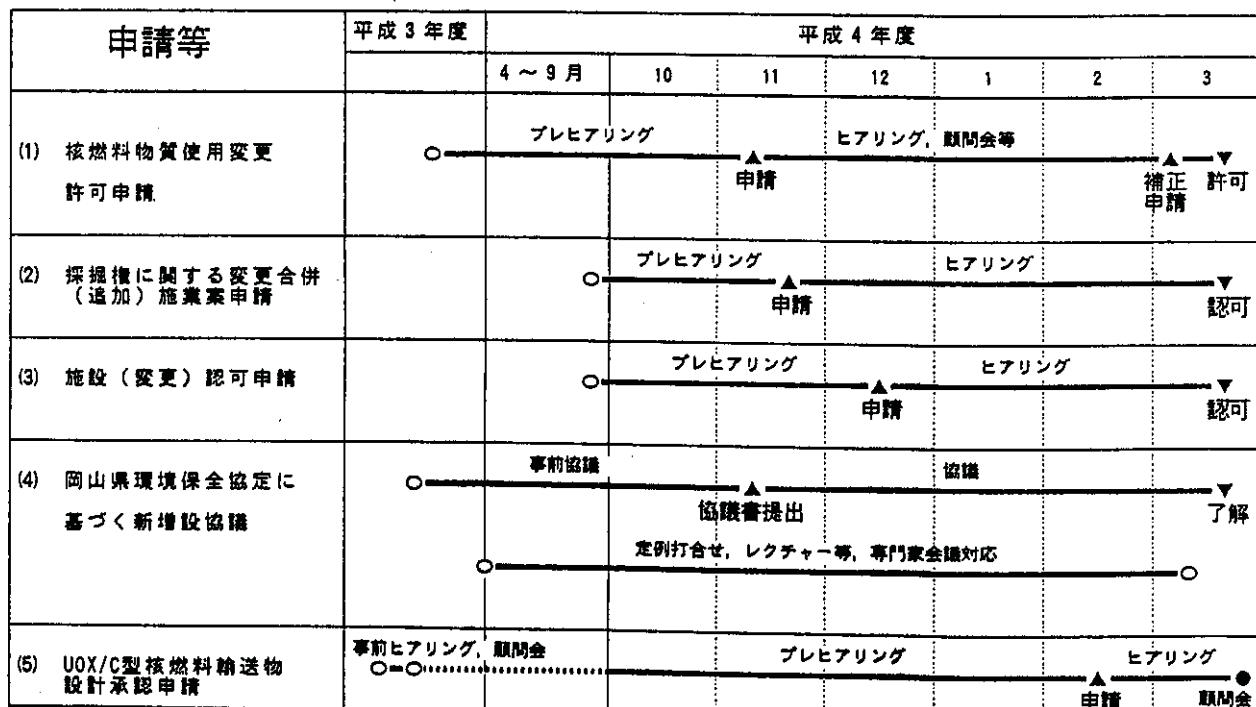
図一1 回収ウラン転換実用化試験に係る変更の概要

表一 1 回収ウラン転換実用化試験に係る許認可申請等

施設に係る許認可申請等	
申請等の種類	申請等の内容
(1) 核燃料物質使用変更許可申請	<ul style="list-style-type: none"> ・核燃料物質の種類、使用期間及び予定使用量の変更 ・施設の構造及び設備の変更 ・安全評価の変更
(2) 採掘権に関する変更合併（追加）施業案申請	<ul style="list-style-type: none"> ・鉱産物の産出予定量及び予定品位の変更 ・選鉱及び製錬の方法
(3) 施設（変更）認可申請	建設物、工作物、その他の施設の変更
(4) 岡山県環境保全協定に基づく新增設協議	<ul style="list-style-type: none"> ・核燃料物質の種類、使用期間及び予定使用量の変更 ・施設の構造及び設備の変更 ・安全評価の変更
(5) UOX/C型核燃料輸送物設計承認申請	<ul style="list-style-type: none"> ・輸送容器の設計 ・輸送容器に収納する燃料物質の仕様

表一 2 許認可申請等の経緯

許認可申請等の経緯



被ばく評価

計算モデルの見直し

- ・ 点線源 → 体積線源
- ・ 壁一枚 → 評価点方向での実効厚
- ・ 年間フル稼働
→ 稼働日数を考慮

線源の見直し

- ・ 再処理条件の考慮
- ・ 分析実績値の加味

使用変更許可申請

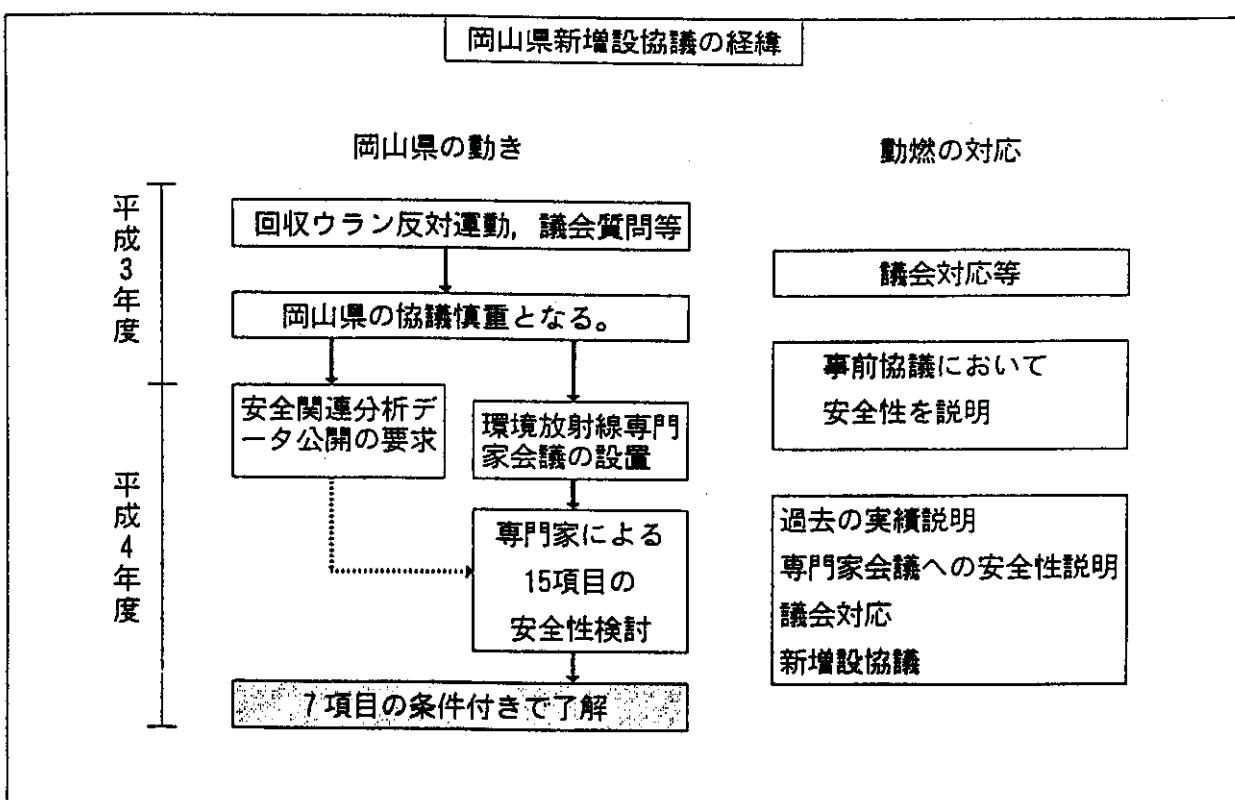
図-2 被ばく評価に係る見直し

表一 3 安全評価結果

安全評価結果（一部）			
評価項目		評価値	備 考
一般 公 衆	外部被ばく	41 $\mu\text{Sv}/\text{年}$ (46 $\mu\text{Sv}/\text{年}$)	周辺監視区域境界における直接7線＋スカイシャイン7線
	内部被ばく	26 $\mu\text{Sv}/\text{年}$ (29 $\mu\text{Sv}/\text{年}$)	周辺監視区域境界における空氣吸入年間135トン処理
排水の濃度限度 との比の合計		0.42 (0.044)	

()：人形岬 核燃料物質使用施設としての評価値

使用変更許可申請

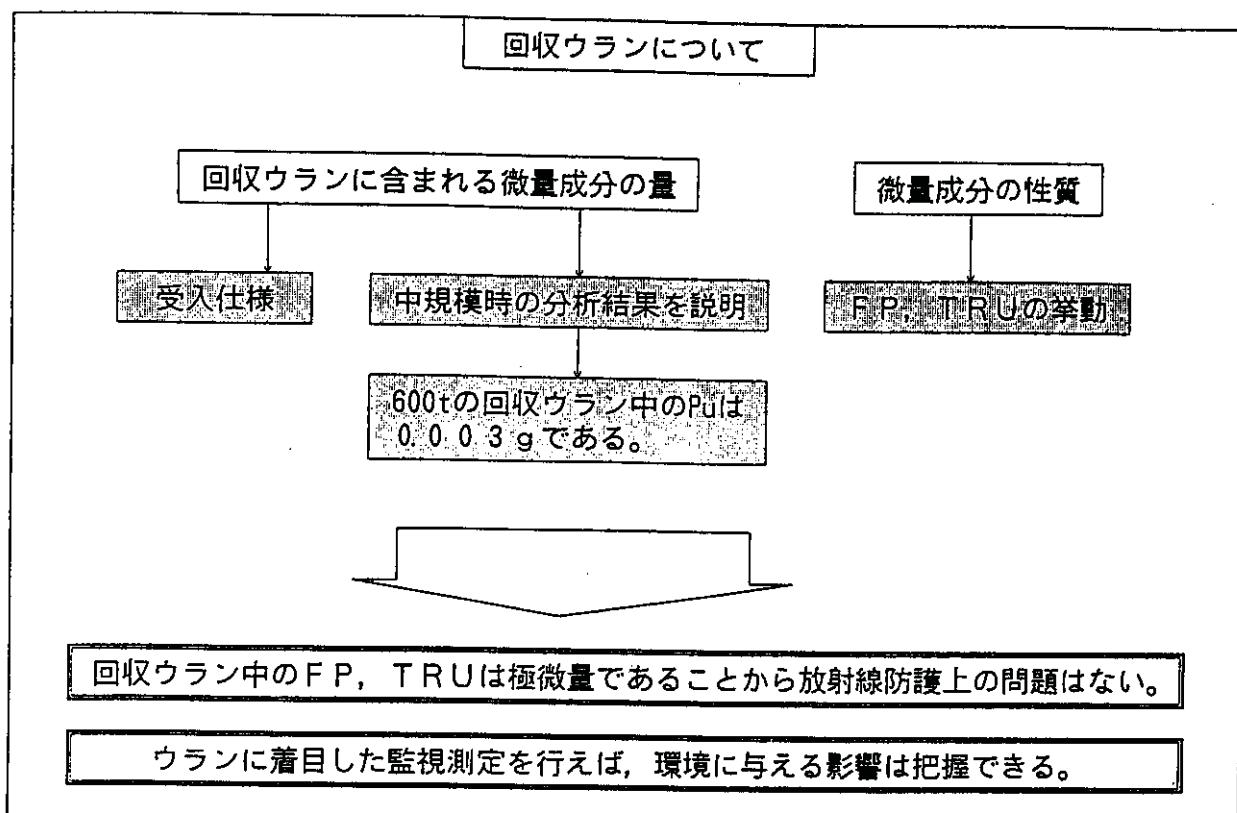


図一 3 岡山県新增設協議の経緯

表一 4 環境放射線専門家会議検討項目

環境放射線専門家会議検討項目	
1. 閉じ込めの機能	8. 放射線等監視
2. 回収ウランの受入仕様並びに回収ウランに含まれる微量成分の性質及び挙動	9. 臨界安全対策
3. 排気、排水の管理	10. 地震に対する考慮
4. 排気、排水に係る周辺環境の安全評価	11. 地震以外の自然現象に対する考慮
5. 固体廃棄物の管理	12. 火災、爆発に対する考慮
6. 貯蔵に対する考慮	13. 電源喪失に対する考慮
7. 事故時の評価	14. 運搬に対する考慮
	15. 再濃縮に対する考慮

関山東新設設備



図一 4 回収ウランに含まれる微量成分及び微量成分の挙動についての説明

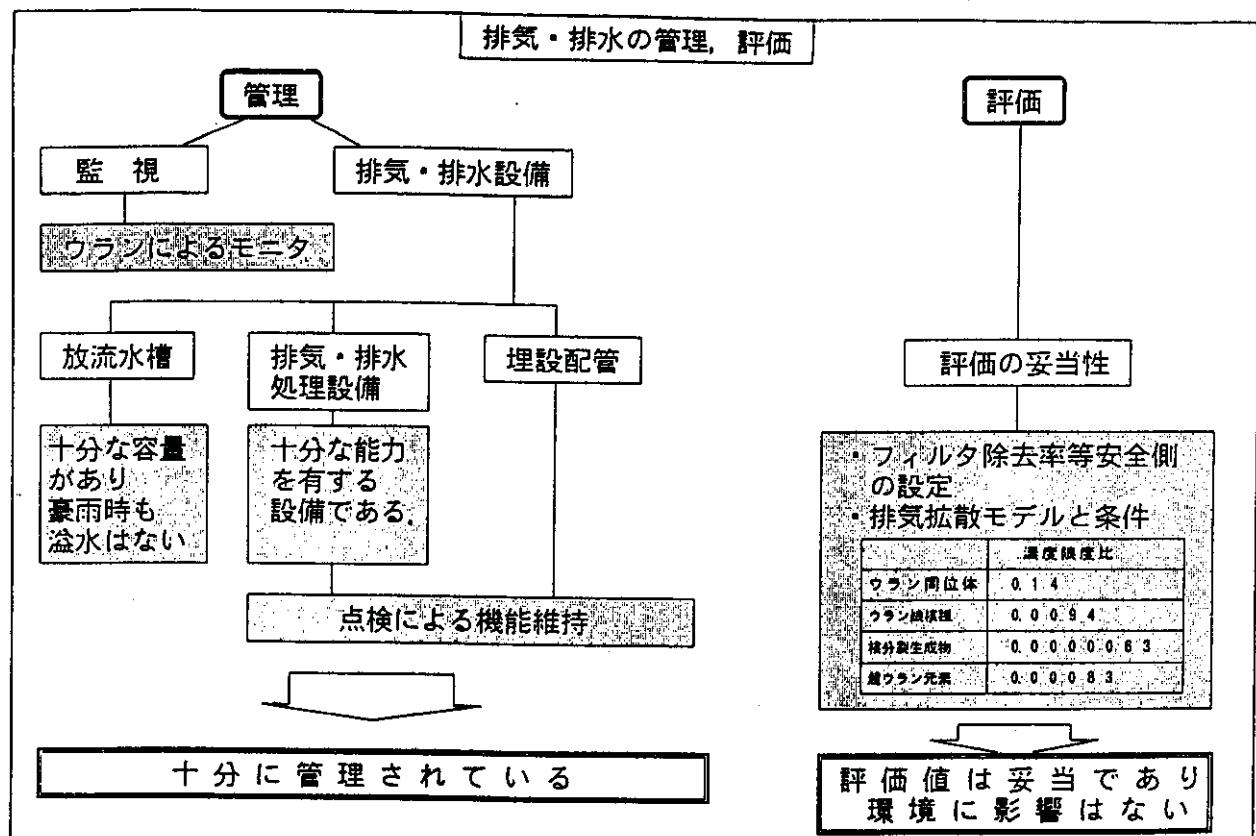


図-5 排気・排水の管理及び安全評価の説明

2-3-③ 回収ウラン転換実用化試験研究（III）－改造計画概要－

報告者 転換技術開発課

1. はじめに

回収ウラン転換実用化試験研究を実施するための設備改造について概要を述べる。中規模試験において製鍊転換施設内のウラン転換試験室で使用した設備、機器を製鍊転換パイロットプラントに移設、据え付けを行う。さらに同設備、機器を既設の転換設備と連結し連続運転が可能となるよう設備改造を行う。また、回収ウラン転換実用化試験設備全体を中央操作室から集中監視制御できるよう、計装制御システムの改造を行う。

（図一1 回収ウラン転換試験工程改造計画を参照）

2. 設備改造の概要

回収ウラン転換実用化試験研究を実施するための設備改造の概要は以下のとおりである。

(1) 製鍊転換施設内の機器解体及び機器基礎撤去

回収ウラン転換実用化試験設備・機器の移設、新設場所である製鍊転換施設内の酸回収室1F、2F、3Fとふっ化沈殿室1Fとシリンドラ処理室に設置している既設機器及びその基礎を解体撤去する。

（図一2～4 製鍊転換施設主要機器配置平面図（1階～3階）を参照）

(2) 機器設備の移設

中規模試験において製鍊転換施設内のウラン転換試験室で使用したUO₃気流輸送設備、連続水和前処理設備、脱水還元設備、HFふっ化設備をウラン転換試験室から製鍊転換パイロットプラント内の酸回収室1F、2F、3Fとふっ化沈殿室1Fに移設、設置する。

（図一2～4 製鍊転換施設主要機器配置平面図（1階～3階）と、図一5～6 装置配置計画（B-B、C-C断面）を参照）

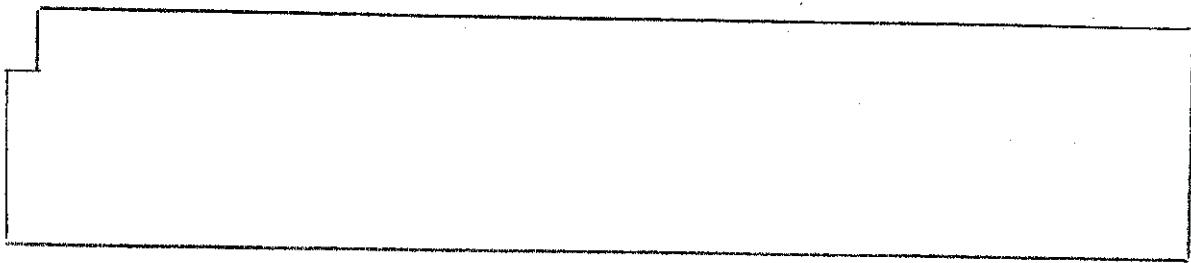
(3) 既設機器の改造

① 全工程連続運転を可能とするため、全工程連結化を行う。

（図一1 回収ウラン転換試験工程改造計画を参照）

② HFの利用効率の向上、UF₄への転換率の向上、廃棄物発生量の低減化を図るため、既設の脱水塔を改造しHFふっ化の第2塔とし、HFふっ化設備を□する。

（図一1 回収ウラン転換試験工程改造計画を参照）



(4) 機器設備の新設

① 原料貯蔵容器供給設備(ターンテーブル)：原料貯蔵容器 6 基を連続的に気流輸送ロボットに搬送し、気流輸送終了後搬出する等を遠隔操作及び自動運転ができるようとする。

(図一 1 回収ウラン転換試験工程改造計画と、図一 7 製鍊転換施設主要機器配置平面図(1階)を参照)

② 48Yシリンドラ均質化設備：48Yシリンドラ充填後にUF₆の均質化を行うため、48Yシリンドラ均質化槽を製作し、均質化運転データの収集が可能な設備を設置する。

(図一 1 回収ウラン転換試験工程改造計画と、図一 7 製鍊転換施設主要機器配置平面図(1階)を参照)

③ UF₆吸脱着試験装置：NaFトラップでNaFに吸着したUF₆を脱離するための試験装置を設置する。また、脱離したUF₆を回収するため、既設の第1 F₂ふっ化塔に導入するために配管を接続する。

(図一 1 回収ウラン転換試験工程改造計画を参照)

④ F₂昇圧設備：



(図一 1 回収ウラン転換試験工程改造計画を参照)

3. 平成 4 年度実績

平成 4 年度は改造計画の検討と外注工事関係の仕様書作成を行い、一部契約締結を行った。また、官庁許認可取得後 3 月 25 日から直営の解体撤去作業に着手した。

(表一 1 回収ウラン実用化試験研究設備改造工事 工程表を参照)

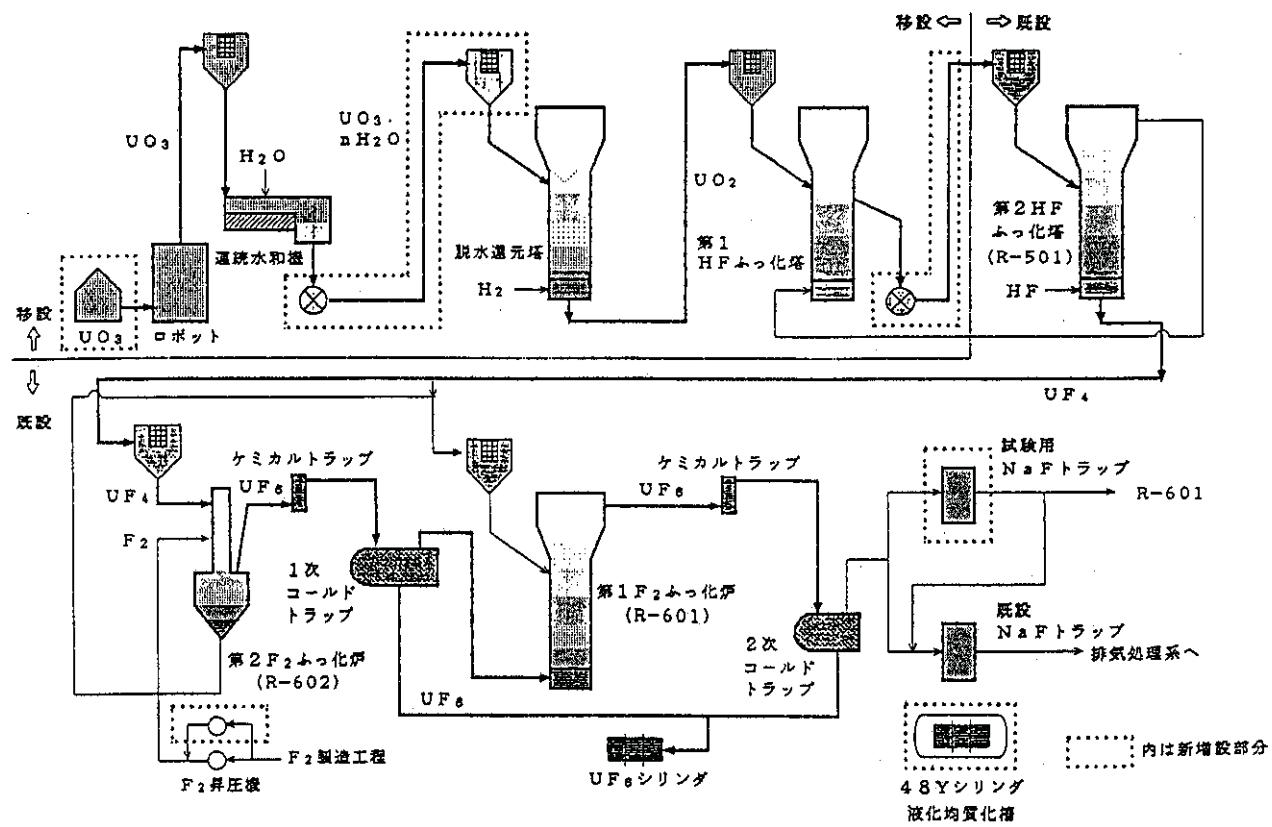
4. 工事予定

平成 5 年 3 月末から直営関係の機器解体撤去作業に着手し、平成 5 年 4 月中旬から外注関係の機器解体撤去及び基礎撤去作業を着手した。また、平成 5 年度現地工事着手は平成 5 年 7 月に開始し、平成 6 年 3 月に工事完了予定。

(表一 1, 2 回収ウラン実用化試験研究設備改造工事 工程表を参照)

5. 質疑応答

なし



図一1 回収ウラン転換試験工程改造計画

図-2 製鍊転換施設主要機器配置平面図（1階）

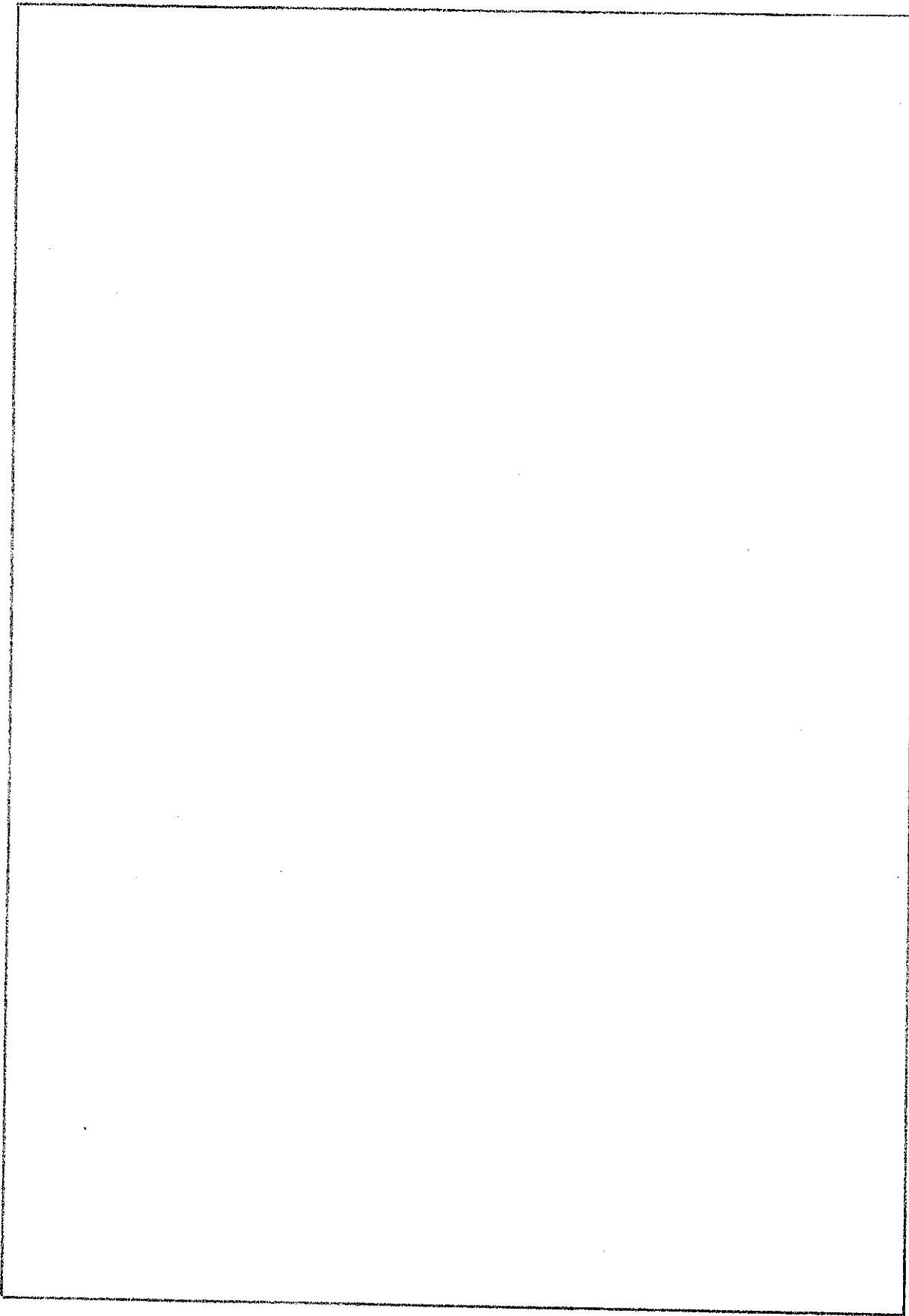
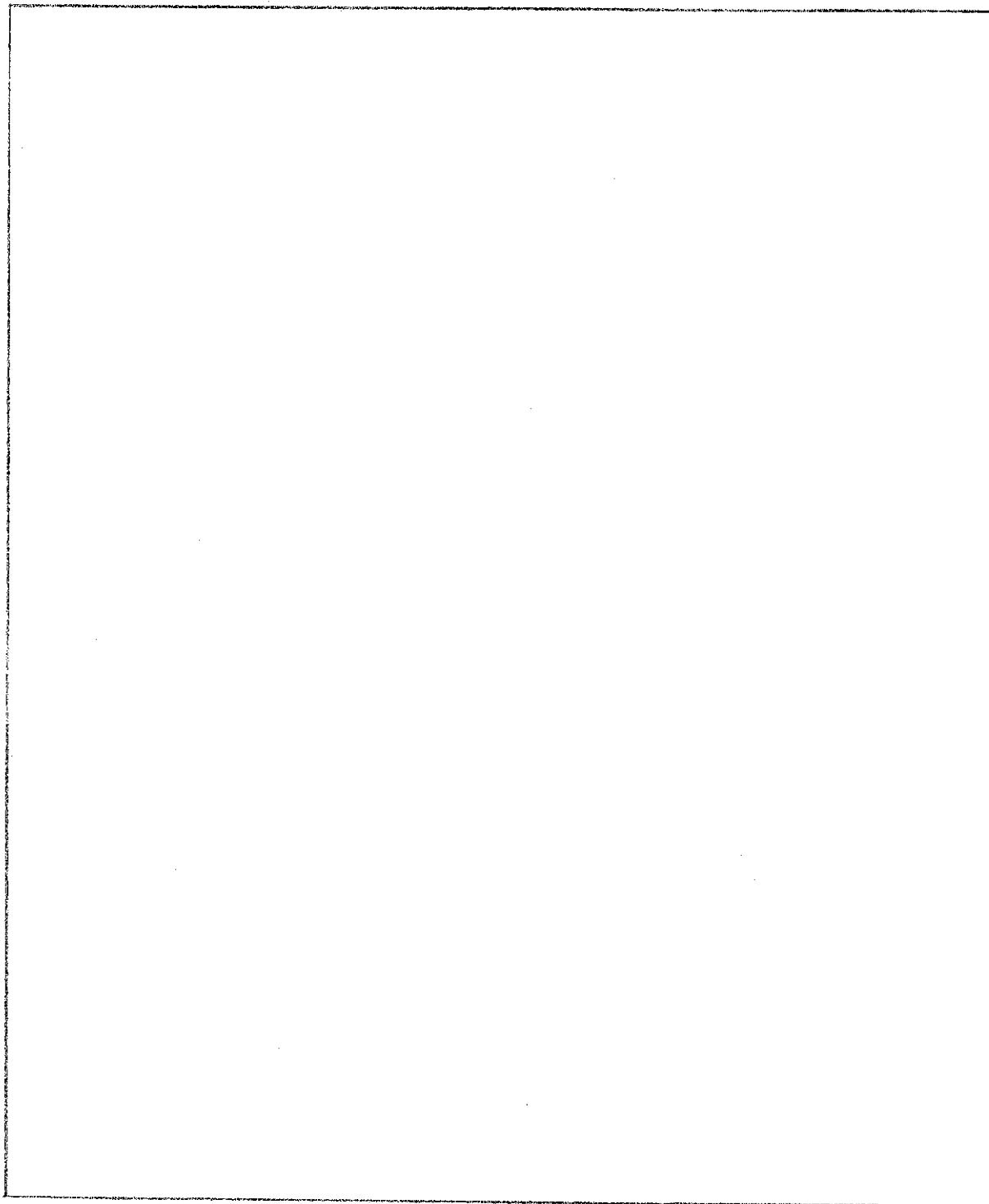
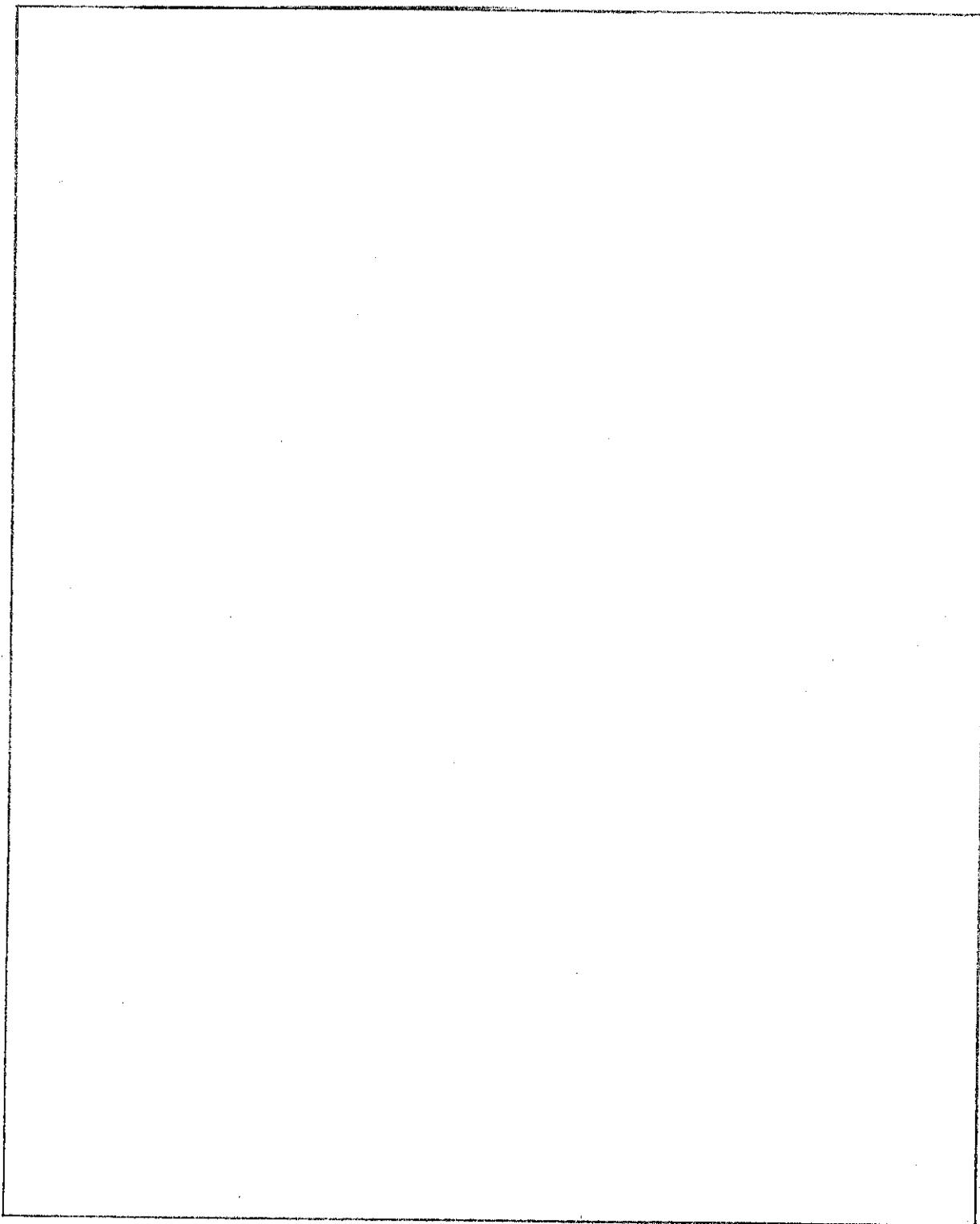


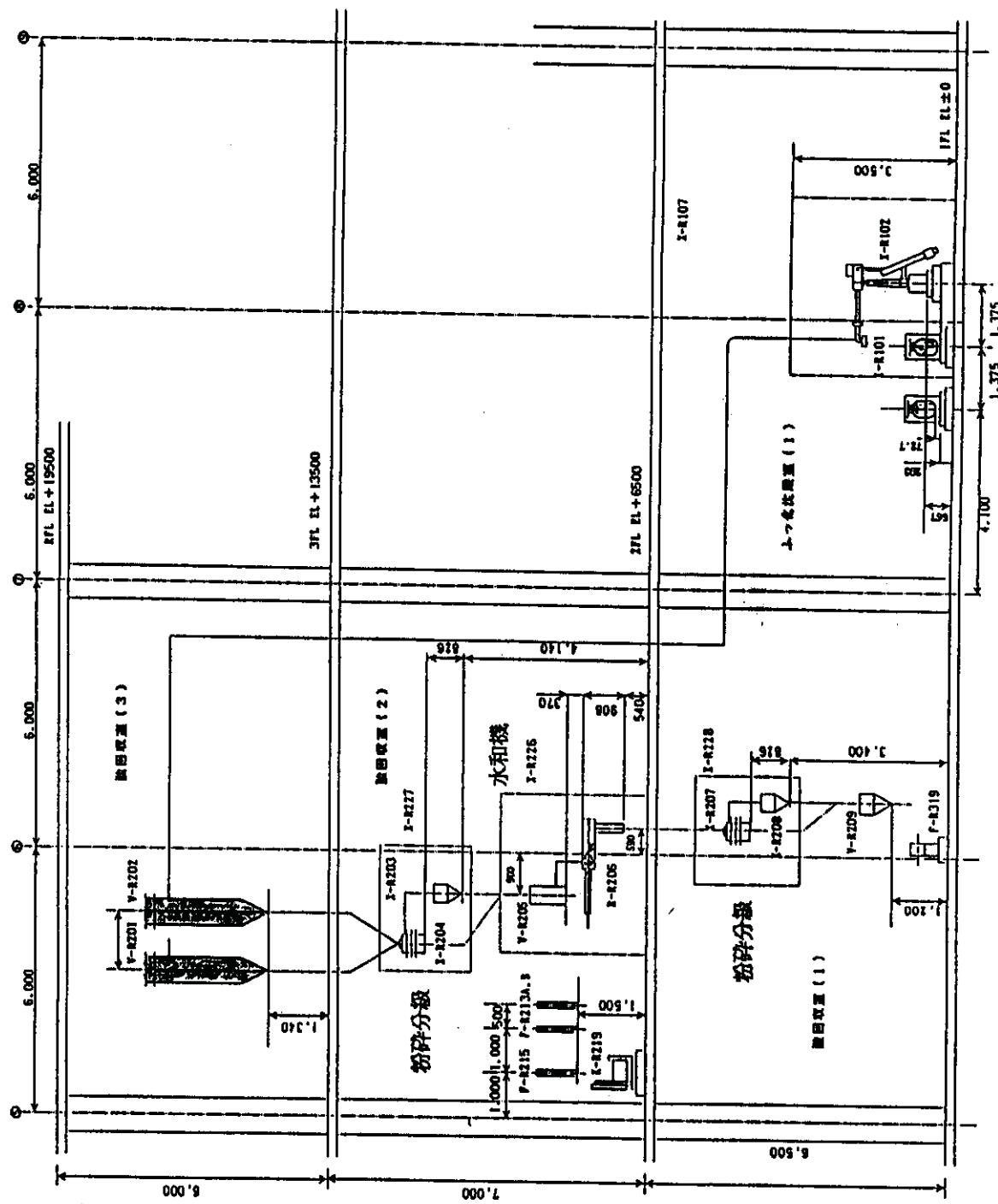
図-3 製錆転換施設主要機器配置平面図（2階）



図一4 製鍊転換施設主要機器配置平面図（3階）



図—5 装置配置計画 B—B断面



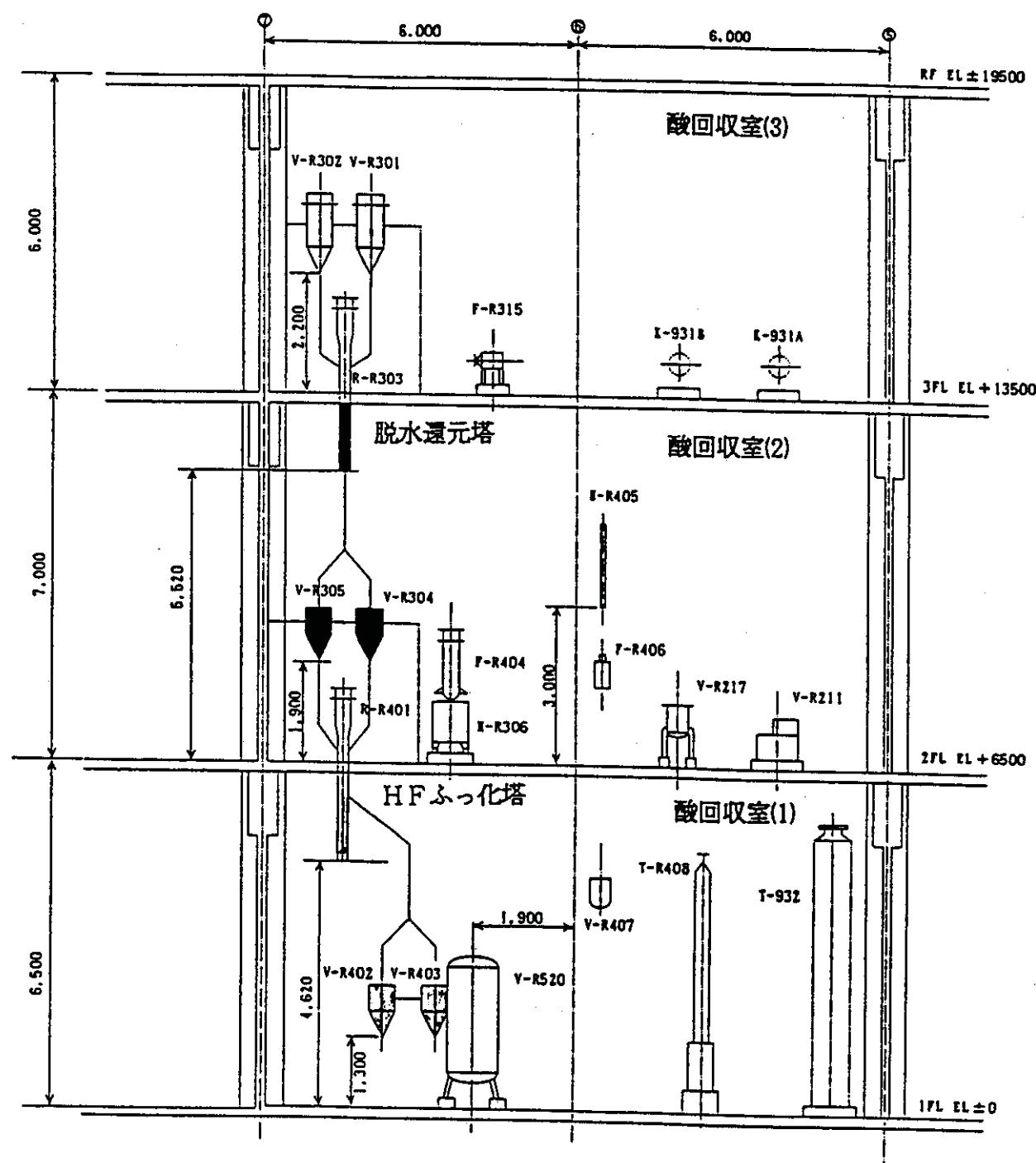


図-6 装置配置計画 C-C断面

圖一七 製鍊軸換施設主要機器配置平面圖（1階）

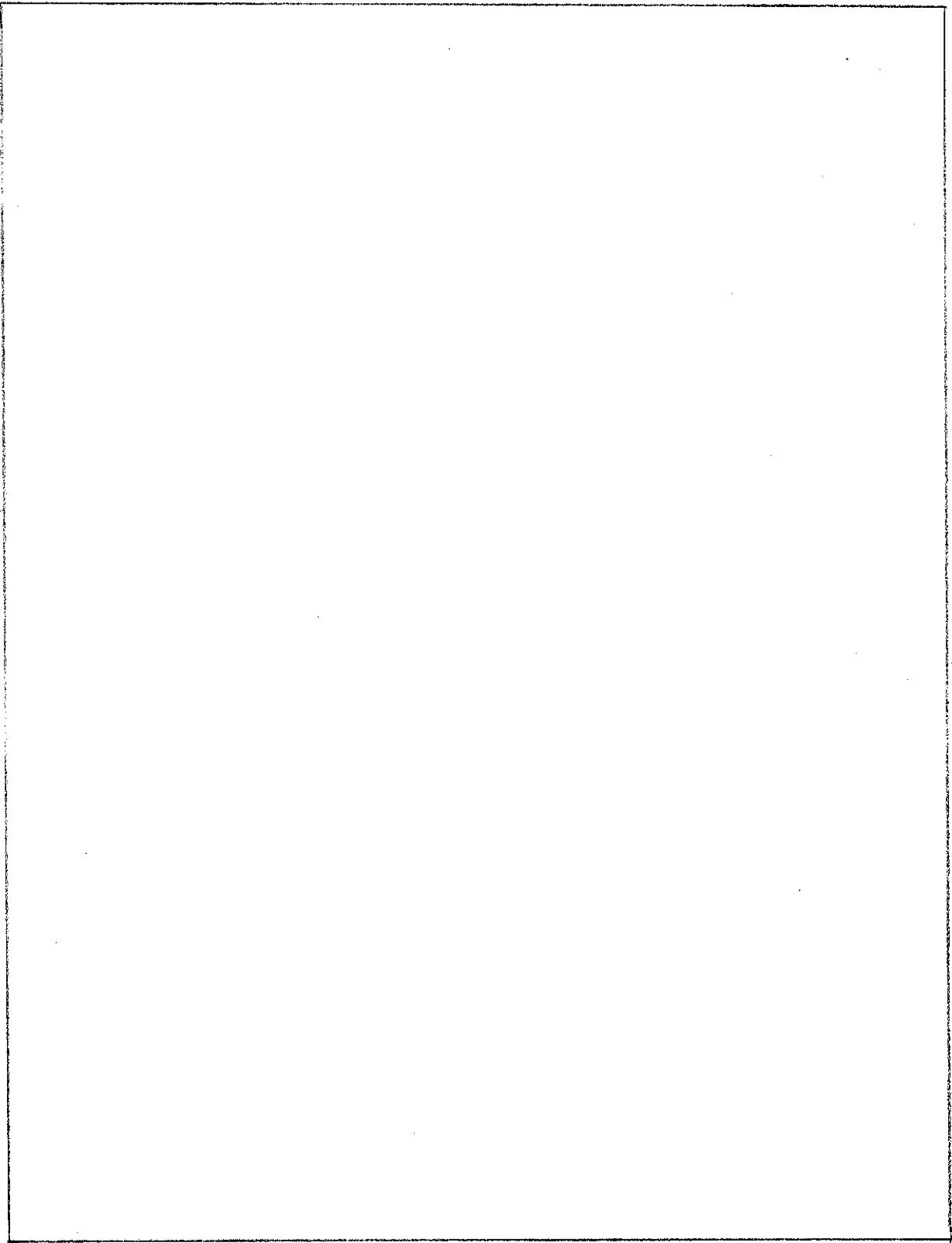


表-1 回収ヴァラン実用化試験研究設備改造工事 工程表

平成4年度

項目	年月	平成4		平成5年度									平成6年度				
		2.3月	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	4	5	6
(1) 既設設備解体撤去																	
①機器解体撤去																	
②基礎解体撤去																	
(2) 電気設備改造																	
(3) 転換設備 設計・製作																	
(4) 連続前処理設備 設計・製作																	
(5) HF, F, 供給設備 設計・製作																	
(6) 既設機器除染解体 (PNC)																	
(7) 移設機器除染、組立 (PNC)																	

記号 ◆ 設約日 ▲ 現地着工 ● 計約期(檢査日)
▲ 現地工事完了日

平成 5 年度

表—2 回収ラン用化試験研究設備改造工事 工程表

項目	年月	平成4	平成5年度										平成6年度				
			2.3月	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	4	5
(6) 48V リサイクル化機器 設計・製作																	7
(7) 原料貯蔵容器供給 設計・製作																	
(8) H: 供給設備 設計・製作																	
(9) 試運転、調整、運転																	
10 機器（部分）改造																	
11 耐震補強																	
既設機器及び空調																	
12 輸送容器開梱設備 設計製作																	
13 移設機器補修																	
14 既設機器除保解体 (P N C)																	
15 移設機器染、組立 (P N C)																	

記号 ●○契約日 ▲△現地着工 ●○契約納期(接収日)
 △現地着工 ▲△現地工事完了日