

平成8・9年度人形峠事業所環境資源開発部
業務報告

1998年6月

動力炉・核燃料開発事業団
人形峠事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせ
ください。

〒708-0698 岡山県苫田郡上斎原村1550番地

核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター
環境保全技術開発部 管理課

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

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

目 次

1. 転換技術開発課

1.1 平成8,9年度転換技術開発課業務概要	若林 修二	1
1.2 回収ウラン転換実用化試験 (VII)		
1.2.1 生産計画と実績		2
1.2.2 運転実績		
1.2.2.1 連続運転実績		4
1.2.2.2 副原料及びユーティリティの消費実績		7
1.2.2.3 原料UO ₂ 等の粉碎作業		10
1.2.2.4 製錬転換施設の排水処理実績		11
1.2.2.5 製品UF ₆ 分析結果 (役務分析)		12
1.2.2.6 核燃料物質管理の手法		16
1.2.2.7 払出フィーダの改善		17
1.3 脱硝工程高度化確証試験概要		18
1.4 製錬転換施設における不具合事象		
1.4.1 廃棄物焼却施設スクラバ廃水の処理	田中 克幸	20
1.4.2 脱硝試験設備解体作業における靴底汚染		23

2. 環境資源開発課

2.1 平成8,9年度環境資源開発課業務概要	高橋 義明	25
2.2 夜次鉍滓ダム処置に係わる事前調査		26
	(他3名)	
2.3 ウラン廃棄物処理研究		35
	(他2名)	
2.4 原位置ガラス固化処理試験		43
	(他2名)	
2.5 水-岩石-バクテリア反応試験		53
	(他3名)	
2.6 平成8年度委託研究		56
	(他3名)	

1.1 平成8・9年度転換技術開発課業務概要

転換技術開発課 若林 修二

平成8年度の主な業務としては、まず平成7年度に引き続き、日本原燃㈱から平成7年1月に受託した脱硝工程高度化確証試験の継続として、総合確認試験・システム試験を実施した。

また、回収ウラン転換実用化試験も試験を継続し、前年度の順調な運転を引き継ぎ、計画通りの原料 UO_3 の処理と UF_6 の生産・出荷を達成できた。

平成9年度の主な業務としては、脱硝工程高度化確証試験の継続として、試験設備の高性能化試験を実施した後、工程内滞留量の把握並びに試験設備の解体・撤去を実施した。

また、回収ウラン転換実用化試験は、原料輸送の開始が遅れたものの、何とか年度内に転換処理を終了し、フェーズ1を予定通り完了した。（表1.1-1参照）

これらの業務の成果は、人形峠事業所のみならず、本社並びに東海事業所の関係部署から多大な御尽力と御協力を賜った結果であり、この場を借りて深く感謝の意を表したい。

1. 脱硝工程高度化確証試験

8年度は、前年度に実施した改造工事後の設備を使用して、総合確認試験・システム試験を実施し、従来よりも稼働率及び1日あたりの処理バッチ数が向上していることを実証することができた。その中で若干の不具合事象を摘出し、次年度への課題とした。

9年度は、前年度のシステム試験等での課題の解決に重点をおいた「試験設備の高性能化確認試験」を実施し、適正な条件設定により課題を解消できることを確認した。

9年度の後半は、試験設備の解体・撤去を実施し、装置内の滞留量を把握することができ、平成6年に開始した脱硝工程に係る一連の試験を終了した。

2. 回収ウラン転換実用化試験

8年度は、各種改良処置の効果が見られた7年度の安定運転を引き継ぎ、不具合事象の発生がかなり減少したことにより、7年度以上の年間処理量を達成することができた。

運転体制として、運転グループは1班あたり1名減の8名で4班3交替勤務とし、日勤業務担当として、運転管理、保守、分析、計画、管理の各グループを配置した。運転期間も昨年度と同様に年間を3キャンペーンに分けて交替勤務を実施した。

9年度は、東海事業所でのトラブルにより原料輸送が7月、8月と大幅に遅れ、運転は8月～11月に実施した。運転体制は前年度と同じである。

平成6年に開始した実用化試験は、平成9年度までに、原料 UO_3 の累積受入量は222.6tU、転換 UF_6 累積量は214.5tUとなり、フェーズ1は完了した。

8年度途中から、実用化試験の延長について電力と交渉し、平成8年2月末に契約変更した際の差量約120tUを、平成10、11年度で転換処理する（フェーズ2）ことが決定した。

平成8、9年度は、脱硝工程高度化確証試験の終了、回収ウラン転換実用化試験フェーズ1の終了とフェーズ2の実施決定と、確実な成果を達成するとともに、区切りの年度となった。

今後も安全第一で運転をする決意であり、関係各位の変わらぬ御指導をお願いしたい。

1.2 回収ウラン転換実用化試験研究 (VII)

1.2.1 生産計画と実績

転換技術開発課

1. はじめに

回収ウラン転換実用化試験（フェーズ1）は平成6年8月から転換試験を開始し，平成9年度末までに約 216tU のUF₆を生産し，各種データに基づく研究成果を得て完了した。

本項では，平成8年度及び9年度の運転計画と実績について報告する。

2. 結果実績

(1) 運転実績

平成8年度及び9年度における原料受入量 (UO₃)，転換製品量 (UF₆)及び製品払出量 (UF₆)の計画と実績を表-1に示す。

表-1 平成8年度と9年度の運転計画と実績

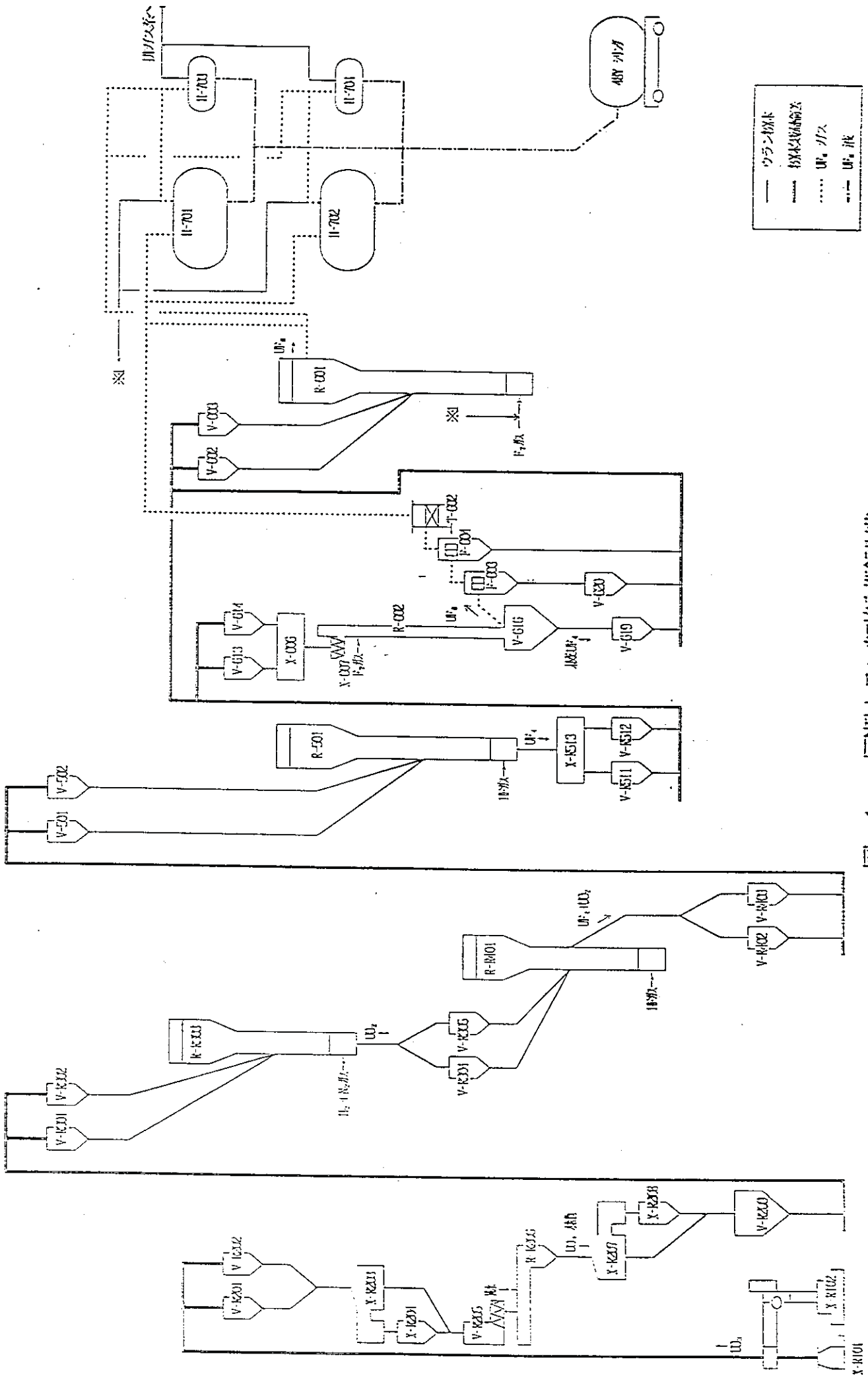
		原料受入量	転換製品量	製品払出量
平成8年度	計画	90 tU	<input type="text"/> tU	<input type="text"/> tU
	実績	88 tU	<input type="text"/> tU	<input type="text"/> tU
平成9年度	計画	14 tU	<input type="text"/> tU	<input type="text"/> tU
	実績	14 tU	<input type="text"/> tU	<input type="text"/> tU

平成9年度に製品払出量が原料受入量を上回る理由は，前年度までに施設内に保有していた原料，工程内滞留物及び製品を，平成9年度に製品として払出しを行ったためである。

運転に伴って発生した放射性固体廃棄物のうち，工程廃棄物は製錬転換施設内で一時保管，可燃性廃棄物及び難燃性廃棄物は廃棄物焼却施設で焼却処理，不燃廃棄物は廃棄物貯蔵庫で保管管理している。また，気体及び液体廃棄物は処理設備により処理した後，排気及び放流水槽に排出した。

(2) 安全管理の実績

回収ウラン転換実用化試験に係わった放射線作業従事者の線量当量，管理区域内の空気中の放射性物質濃度並びに表面汚染密度は全て法令値以下であった。



図一 回流ウランの連続式精製フロー

1.2.2 運転実績

1.2.2.1 連続運転実績

転換技術開発課

1. はじめに

回収ウラン転換実用化試験では、安定した全工程の連続運転を目標としている。平成8・9年度の運転実績では、水和前処理工程の原料粉碎機内スクリーン網の目詰まり、HFふっ化炉分散板の目詰まりによる処理量の低下、UF₆充填フィルタの目詰まりによる充填時間の超過等の各工程における不具合により、全工程を連続運転（水和前処理工程からF₂転換までの工程を同時に運転）した最長時間は、約31時間であった。全工程連続運転を長時間継続するためには、各工程の不具合発生頻度の低減化と運転員の適切な対応が重要である。

2. 設備概要

回収ウラン転換実用化試験設備は、ユーティリティー設備、原料三酸化ウランの気流輸送及び水和処理から成る水和前処理工程(UO₃→UO₃・nH₂O)、水素による脱水還元工程(UO₃・nH₂O→UO₃)、HFによるHFふっ化工程(UO₂→UO₄)、F₂によるF₂転換工程(UF₄→UF₆)、ウランを捕集する捕集充填工程、以上の主工程と、ふっ素製造工程、廃液処理工程、ユーティリティー工程から成る。

水和前処理工程からHFふっ化工程までの各工程の処理速度は140mol/hrで、F₂転換工程の処理速度は、180mol/hrとなっている。

工程間の粉体移動は、脱水還元工程から第1HFふっ化炉までの重力落下以外は、貯槽間で気流輸送を行っている。また、F₂転換工程と捕集充填工程ではUF₆ガス移送、捕集充填工程では、コールドトラップから48Yシリンダへは、UF₆液体移送を行っている。(図-1参照)

3. 全工程連続運転時の運転員の役割

全工程連続運転時は特に、運転員の適切な判断が要求される。

運転員が全工程連続運転を継続するため、特に注意して監視しているCRT及びグラフィック盤の要所を記す。

- (1) 各工程に粉体供給槽、製品受槽（中間受槽）がそれぞれ2基（水和前処理工程の製品受槽は1基）設けられている。粉体供給槽では、供給と粉体貯留、また、製品受槽では、粉体貯留と粉体気流輸送が同時操作となるため、全工程運転時には、供給と貯留、製品拔出と製品気送のバランスを保つよう逐次監視し、運転員が時間調整を行っている。
- (2) F₂転換工程は他工程に比べ処理能力が大きいため、粉体供給槽に原料の粉体を十分に溜めて運転を開始している。また、捕集充填工程のコールドトラップはA、B系の2系列で切替捕集しており、コールドトラップの捕集終了後から次回の捕集可能状態までの、1サイクルに要する時間に余裕がない。従って全工程連続して長時間運転するには、F₂転換工程の運転状況と、コールドトラップの状況を常に把握し工程停止が最小限となるよう努めている。
- (3) 粉体の物性が均一でないため、運転員は装置内での粉体の音、供給する時の供給状態を注意深く監視し、未然に不具合の防止に努めている。

4. 工程の不具合

連続運転を中断させる各工程の主な不具合について記す。

(1) ふっ素製造工程

本工程のふっ素電解槽は4槽運転であるが、平成8年度は、1槽が機械的不具合のため3槽による運転を余儀なくされ、電解槽の電圧電流の異常を早期に見つけ、安定運転を行った。F₂ガス昇圧機では、F₂リーク（F₂臭気）が検出され、バルブ交換で解消している。

(2) 水和前処理工程

工程は、ロボットによる原料気流輸送装置、原料供給槽、原料分級機、原料粉碎機、原料受槽、連続水和から構成されている。

平成8年度・9年度の主な不具合として、

- ① ロボットの動作不良
- ② 原料供給槽原料フィーダの過負荷停止
- ③ 連続水和機原料受槽内粉体塊状化及び粉体切り出しスクリュウの切損
- ④ 粗大粉体による粉碎機内スクリーン（200μm網）の破れ及び、微小粉体による粉碎機内保持量増加による過負荷停止

が発生した。連続運転を中断させたのは、③と④が大きかった。

(3) 脱水還元工程

工程は、原料供給槽、脱水還元塔、製品中間受槽等から構成されている。不具合としては、製品フィーダの過負荷停止が発生したが、手回しで解消できる程度であった。付属設備の不具合として、アンモニア変成装置触媒管リークにより水分が熱交換器内に凝縮として溜まる現象が生じた。

(4) HFふっ化工程

脱水HFふっ化塔では、平成8年度第1キャンペーンで塔下部からの製品抜き出しができなくなる現象及び分散板の目詰まりによる流動不良・差圧上昇が発生し、夏期のインターキャンペーン中に予備品と交換した。他の不具合としては、製品抜き出しフィーダの過負荷停止が頻繁に発生し、その都度分析・点検を行い解消している。

(5) F₂転換工程

F₂転換工程は、フレームタワー型と流動床型のF₂ふっ化炉の併用システムである。

平成8年度第1キャンペーンでフレーム炉下部UF₄受槽～バックアップフィルター間が中間ふっ化物で閉塞する現象が生じ運転を停止した。フレーム炉頂部壁及び分散羽根部へのふっ化物の付着を減少させる目的で、夏期インターキャンペーン中に改良型分散羽根と交換した。粒径の大きな粉体が多く、連続運転を継続するために、流動床炉の単独運転が多くなった。

(6) 捕集充填工程

コールドトラップで温度計の電氣的接触不良が発生したが、運転及び安全上問題となる不具合はなかった。

5. まとめ

全工程をより安定した連続運転するための、現設備に対する検討課題を以下に示す。

- (1) 工程間に適切なバッファが必要であり、工程に設けられた粉体供給槽、製品受槽（中間受槽）を1基およびコールドトラップを1系列追加する。
- (2) 粉体物性を自動的に分析評価するシステムの構築、運転状況を示すデータを解析評価し、各工程のシーケンスへフィードバックするシステムを導入して、自動制御化を図る。
- (3) 粉体系の自動バルブは使用時間が長くなると著しく気密性が悪くなる保守性の容易なバルブを製作する。
- (4) 粉体物性に起因すると考えられる不具合が多く発生し、その度にメンテナンスに人を要している。原料の品質管理を厳しくする。

1.2.2.2 副原料及びユーティリティの消費実績

転換技術開発課

1. はじめに

回収ウラン転換実用化試験を行うにあたって副原料及びユーティリティは不可欠である。副原料としては、主として無水ふっ酸、液化アンモニア、液体窒素、吸着剤があげられる。また、ユーティリティは、工程設備及び建屋を管理していくために必要なもので、主に水、電力である。

ここでは副原料及びユーティリティを使用量について8年度と9年度の消費実績を報告する。

2. 副原料の概要

製錬転換施設で使用している副原料は、

液化アンモニア	活性アルミナ	液体窒素
無水ふっ酸	不活性アルミナボール	
ふっ化ナトリウム	焼結アルミナ	
塩酸	消石灰	苛性ソーダ
		亜硫酸ソーダ

である。

液化アンモニアは、アンモニア変成装置で水素と窒素に分離され、脱水還元塔に供給される。

無水ふっ酸は、HF蒸発器によってガス化したHFをHFふっ化塔へ、また電解槽で電気分解して発生したF₂ガスをF₂ふっ化炉へ供給する。

ふっ化ナトリウム、活性アルミナは、吸着剤としてF₂ふっ化炉の廃ガス処理に用いる。

不活性アルミナは、ふっ化ナトリウム、活性アルミナ吸着塔の分散盤が目詰まりを起こさないよう充填するものである。1回の使用量は、ふっ化ナトリウムは約200kg、活性アルミナは約100kg、不活性アルミナは約15kgである。

焼結アルミナは、第1F₂ふっ化炉の流動媒体として使用され、1回の使用量は約175kgである。

液体窒素は、温水式蒸発器で気化させた後、主に流動ガス、ページガス、ブローバックガス、気流輸送ガスに使用している。

塩酸及び消石灰は、廃液処理工程においてpH調整用として使用している。

苛性ソーダは、各工程の排ガス処理設備（スクラバ）の洗浄液として使用している。

亜硫酸ソーダは、ふっ素製造工程のふっ化ナトリウム再生時に発生する残留F₂ガスを、効率良く吸収する為にスクラバ液に添加する。

3. ユーティリティの概要

主なユーティリティは

工業用水	高温水	電力
------	-----	----

である。

高温水は、施設内で使用する蒸気の熱源で、蒸気は、暖房、配管の加熱保温及びコールドドラップ等の昇温に使用されている。

工業用水は、冷却水の補給等に使用されている。

電力は、プロセス電力、建屋電力に分けられ、プロセス電力は、主に各工程の反応炉に付帯する電気炉に給電される。また、建屋電力は主に給排気・空調設備、コンプレッサ、冷却水設備、照明等に給電される。

4. 実績

① 副原料

	平成8年度使用量	平成9年度使用量
活性アルミナ (t)	12.4	2.4
ふっ化ナトリウム (t)	6.5	1.6
不活性アルミナ (t)	0.2	0.1
焼結アルミナ (t)	2.7	0.4
液化アンモニア (t)	11.5	2
無水ふっ酸 (m ³)	61.2	12.5
液体窒素 (m ³)	664.349	248.336
35%塩酸 (m ³)	230.4	58.6
消石灰 (t)	10.9	1.7
苛性ソーダ (m ³)	22.4	12.8
亜硫酸ソーダ (m ³)	11.5	3.3

② ユーティリティ

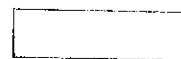
	平成8年度使用量	平成9年度使用量
工業用水 (m ³)	19,885	11,472
高温水 (Gcal)	5,481.8	3,576.9
建屋電力 (MWh)	4,550	4,042
プロセス電力 (MWh)	3,458	1,985

5. まとめ

- ・ 副原料の使用量が増減する主な原因として、原料の粉体物性によって反応性が変化することと、トラブル発生により処理を中断して長い待機状態を余儀なくされることがあげられる。
- ・ 塩酸、消石灰、液化アンモニアは、平成8年度と平成9年度の使用量差が大きいですが、処理量の違いによるプロセスの運転時間の違いに、起因すると考えられる。
- ・ 平成8年度に比べ平成9年度の運転中に交換する副原料（アルミナ、ふっ化ナトリウム等）の使用量が少ないのは、処理量の違いの他に、粉体(UF₄)物性が良くなり、廃ガス系に逃げるUF₆及びF₂ガスが減少したため、交換頻度が少なくなったと考えられる。
また、焼結アルミナについては、粉体(UF₄)物性が良くなったことで、1バッチの媒体の使用時間が長くなったことによると考えられる。
- ・ 冷却水設備は建設当時の設備をそのまま転用しているため、必要以上に能力が大きい。経済性から考えると、設備を小型化して電力使用量を抑えることが好ましい。

1. 2. 2. 3 原料UO₃等の粉碎作業

転換技術開発課



1. はじめに

- (1) 原料UO₃の中でロータリバルブで給鉱が不良となった粉体、ロボットでの気送が出来なかった粉体等について、CTFフード内に設置した粉碎機において粉碎を行い、ロータリバルブの給鉱性能を改善する。
- (2) 反応性が悪く未反応UF₄となった粉体は、CTFフード内に設置した粉碎機において粉碎を行い、再度HFふっ化又はF₂ふっ化工程の原料とする。

2. 結果、実績

粉碎の方法は、①3階フードに設置しているホッパーに原料を気流輸送法により貯留する。②1階フード内に、粉碎機下部の粉碎品払出し配管にポットを取り付ける。③粉碎機を運転する。④ホッパー下部の給鉱用バルブを開にし、ロータリバルブを運転する。

(1) UO₃の粉碎

H8～9年度にかけて、粒径が大きくロボットでの気送ができなかったもの、気送ができて原料供給槽からロータリバルブでの給鉱ができなかったもの、あるいは気送後ポットに残った残留粉等、合計約4.3トンの粉碎を実施した。

粉碎前後の粒径分布測定を行い、粉碎の効果を確認した。

粉碎した粉体は全量原料として工程に戻して使用した。

(2) 未反応UF₄の粉碎

UF₄約1,350kgの粉碎（ホッパー5本）を実施した。粉碎後の粒径（写真）測定及びDTAによるF₂ふっ化試験を実施した。

測定結果を別添15～25に示す。

粉碎した粉体は、全量原料として使用した。

3. まとめ

本粉碎作業を実施したことで、原料として使用できなかった粉体及び未反応となった粉体を、使用可能とすることができた。

平成10年度から予定されている回収ウラン転換実用化試験（フェーズ2）においても、フェーズ1同様に、粉碎作業を必要とする粉体が発生する恐れがある。しかし、現在のところ、工程設備の改造・追加工事は計画していないため、もし発生した場合は、今回と同様な方法で粉碎処理を行う。

1.2.2.4 製錬転換施設の廃水処理実績

転換技術開発課

1. はじめに

製錬転換施設のプロセスで発生するオフガス処理のためのスクラバ廃液、HFふっ化工程のHF凝縮水及び手洗い水等は、製錬転換施設の廃液処理設備で中和沈殿、ふっ素吸着及びウラン吸着により処理し、施設内の排水ピットにてサンプリング及び分析（全 α 、全 β 、ふっ素、pH）して基準値以下であることを確認した後、事業所放流水槽に送液する。

本報告では、平成8、9年度の製錬転換施設からの排水実績等について報告する。

2. 実績

(1) 排水量

平成8年度の排水量は8470m³、平成9年度の排水量は3719m³であった。また、排水回数は、平成8年度は135回、平成9年度は62回であった。

(2) 分析結果

排水ピットでの分析結果は、全て放射線安全要領に定める自主管理基準値及び岡山県、上斎原村との環境保全協定に定める管理目標値を満足した。

(3) その他

廃液処理工程のふっ素吸着樹脂及びウラン吸着樹脂の溶離再生・交換を以下のように実施した。

年度	樹脂 処置	ふっ素吸着樹脂		ウラン吸着樹脂	
		T-942	T-943	T-944	T-945
平成8年度	溶離再生 交換	1回 —	— —	— —	1回 —
平成9年度	溶離再生 交換	1回* —	1回* —	— 1回	— 1回

*平成10年4月中旬に実施

3. まとめ

回収ウラン転換実用化試験に伴い発生した廃液を処理し、管理基準を満足して排水することができた。ふっ素吸着樹脂及びウラン吸着樹脂は、廃液処理量に基づき定期的に交換又は再生を実施しているが、今後、廃液処理工程各所のサンプリング分析・評価を定期的に行い、適切な交換時期を把握することにより、更に確実な設備の維持管理、溶離再生等の作業低減を図る必要がある。

1.2.2.5 製品UF₆。分析結果（役務分析）

転換技術開発課

1. はじめに

平成8年度及び平成9年度に実施した回収ウラン転換実用化試験に係る製品UF₆。の転換役務分析は、48Yシリンダ17本について実施し、回収ウラン転換実用化試験フェーズ1の転換役務製品である29本全ての分析を完了した。

本報告では、当年度及びそれ以前に実施した製品UF₆。について、サンプリング分析及び分析結果について報告する。

2. UF₆。サンプリング分析

2.1 製品UF₆。仕様及び分析対象シリンダ

UF₆。サンプリング分析の目的は、48Yシリンダに充填されたUF₆。の品質が役務契約で定められた仕様（以下、「役務仕様」という。）を満足しているか否かを確認することにある。

役務仕様は、蒸気圧、UF₆。純度、ウラン同位体組成、非放射性不純物及び放射性不純物についてそれぞれ定められている。

本研究において転換した製品UF₆。を充填した48Yシリンダは、P1-□からP1-□の□本であり、製品UF₆。量は約□tUである。

平成8～9年度のUF₆。サンプリング分析の対象である48Yシリンダは、P1-□からP1-□までの□本である。

2.2 サンプリング方法及び分析方法

(1) サンプリング方法

役務仕様項目の中で蒸気圧は、48YシリンダにUF₆。を充填した状態で測定するので、UF₆。試料のサンプリングは行わない。

ウラン同位体組成分析用試料は、均質後のUF₆。を48Yシリンダ均質化槽からガス状態で採取した。

純度及び不純物分析用試料は、液化したUF₆。をコールドトラップから48Yシリンダへ充填の都度コールドトラップと48Yシリンダ間を接続している配管（充填ラインと称す。）の途中から液体状態で採取した後、コールドトラップ毎の充填量に対応した量を混合し調整した。（P1-5～P1-22）

P1-1～4及びP1-22～29については、各コールドトラップUF₆。の充填量に対する加重平均重量又は、容量を同一のサンプルシリンダに採取したのち、それぞれの分析用として小分サンプリング装置により小分サンプリングした。

(2) 分析方法

蒸気圧は48Yシリンダ内圧を測定する方法によった。UF₆。純度は酸化重量法を適用し、ウラン同位体組成は質量分析法で行った。ただし、²³⁵Uの濃度は、質量分析法の検出下限値以下であるため放射能分析法（α線スペクトル法）を併用して求めた。

不純物濃度については、UF₆を加水分解し、脱F処理後、イオン交換、溶媒抽出、蒸留等により測定妨害となる元素を除去し、測定対象に応じて質量分析法、放射能分析法、発光分光分析法により分析した。

分析方法の概略を以下に示す。

① 蒸気圧

蒸気圧は、UF₆を充填した48Yシリンダを48Yシリンダ均質化槽で均質化処理を行った後、48Yシリンダ内圧測定器を用いて測定した。

② UF₆純度

UF₆純度は、ASTM C-761に基づき、酸化重量法で求めた。

③ ウラン同位体組成(²³⁴U, ²³⁵U, ²³⁶U, ²³⁸U)

UF₆を加水分解・脱F処理後、表面電離型質量分析計を使用して求めた。

④ ²³²U

²³²U濃度は、放射能分析法と質量分析法を併用して求めた。

⑤ 非放射性不純物

非放射性不純物濃度は、ICP発光分析法を適用して求めた。

UF₆試料を加水分解・脱F処理後、TBP抽出法でウランを分離除去し、ICP発光分光分析により定量した。

⑥ ²³⁷Np濃度

²³⁷Np濃度は、放射能分析法(α線スペクトル法)を適用した。

⑦ Pu(α)濃度 (²³⁸Pu, ²³⁹, ²⁴⁰Pu)

Pu(α)濃度は、放射能分析法(α線スペクトル法)で求めた。

⑧ Pu(β)濃度 (²⁴¹Pu)

Pu(β)濃度は、放射能分析法(β線スペクトル法)で求めた。

⑨ ⁹⁹Tc

⁹⁹Tc濃度は、放射能分析法(β線スペクトル法)で求めた。

[Redacted]

⑩ ^{106}Ru

^{106}Ru 濃度は、放射能分析法（ γ 線スペクトル法）を適用した。

[Redacted]

3. 分析結果

平成8～9年度生産した製品UF₆は、全て役務仕様を満足していることを分析により確認した役務仕様として定められている項目毎にその結果の詳細を以下に示すと共に分析結果の一覧を表-2に示す。

なお、回収ウラン転換実用化試験で、生産した全ての製品UF₆（48Yシリンダ：29本）は、各々の役務仕様値を全て満足している。

以下、各役務仕様毎については、平成8～9年度生産した製品UF₆（48Yシリンダ：17本）の結果について述べる。

(1) 蒸気圧

当年度生産した製品UF₆（48Yシリンダ）の蒸気圧は、35℃における値が21.5～52.1kPaの範囲であり、役務仕様として定められた値を満足している。

(2) UF₆純度

当年度生産した製品UF₆の純度は [Redacted] wt%であり、役務仕様として定められた値を満足している。

(3) U同位体組成

① ^{232}U 濃度

当年度に生産した製品UF₆の ^{232}U 濃度は、 [Redacted] ppb/Uで、役務仕様を満足している。

② ^{235}U 濃度

当年度生産した製品UF₆の ^{235}U 濃度は [Redacted] wt%であり、役務仕様を満足している。

(4) 不純物濃度

① 非放射性不純物元素濃度

当年度生産した製品UF₆中の非放射性不純物のうち、揮発性不純物であるAl, Cd, Ca, Cr, Cu, Fe, K, Li, Mg, Mn, Na, Ni, Pb, Znの14元素の合計は、最大でも55.2 $\mu\text{g/gU}$ 以下であった。また揮発性不純物の最大値は、Cr5.6 $\mu\text{g/gU}$, Mo0.6 $\mu\text{g/gU}$, Vは0.5 $\mu\text{g/gU}$ 以下であり、いずれの場合も役務仕様値を満足している。

② 放射性不純物元素濃度

(a) ^{237}Np 濃度

当年度生産した製品UF₆中の ^{237}Np 濃度は全て検出下限値以下であり、役務仕様を満足している。分析確認値間のばらつきは、主に α 線スペクトルに現れるウラン及びバックグ

ランドの計数の違いによるものである。

(b) Pu (α) 濃度

当年度生産した製品UF₆中のPu (α) 濃度は全て検出下限値以下であり、役務仕様を満足している。分析確認値間の違いは、主に α 線スペクトルに現れるバックグランド計数 (^{228}Th 計数を含む) の違いによるものである。

(c) Pu (β) 濃度

当年度生産した製品UF₆中のPu (β) 濃度は全て検出下限値以下であり、役務仕様を満足している。分析確認値間の違いは、試料計数率及びバックグランド計数率の違いによるものである。

(d) ^{99}Tc 濃度

当年度生産した製品UF₆中の ^{99}Tc 濃度は、全て検出下限値以下であり、役務仕様を満足している。分析確認値間の差は、試料計数率及びバックグランド計数率の違いによるものである。

(e) ^{106}Ru 濃度

当年度生産した製品UF₆中の ^{106}Ru 濃度は、全て検出下限値以下であり、役務仕様を満足している。分析確認値間のばらつきの理由は、前項と同じである。

4. UF₆ サンプルング分析評価

役務仕様確認分析に適用した本分析法は、仕様値を確認するための十分な精度を有しており、転換工程の分析方法としては妥当な方法といえる。

1.2.2.6 核燃料物質管理の手法

転換技術開発課

1. はじめに

平成6年8月に回収ウラン転換実用化試験を開始したが、この時点で製錬転換施設の核燃料物質管理に係わる詳細な管理マニュアル等が存在せず、健全な核燃料物質管理が不可能な状態であった。このため、従来からの暫定的な手法に従い、運転管理グループが核燃料物質の管理を行った。また、「炉規法」に基づく計量管理については、環境資源開発課の技術・核物質管理グループ（以下「計量管理Gr」という。）が行った。

2. 核燃料物質管理の手法

回収ウラン転換実用化試験（フェイズ1）の期間中に運転管理グループが行った核燃料物質の管理手法を以下に示す。

(1) 原料受入

東海再処理工場より受け入れるUO₃の重量データは、バードケージ込みのデータの為、製錬転換施設では使用出来ない。このため、輸送容器開梱時に取り出したUO₃貯蔵容器の計量を行い、製錬側の総重量とし、この値から東海側のUO₃正味重量を引いて風袋重量の算出を行い製錬側の受入データを作成した。

(2) 工程受入

UO₃貯蔵容器を気流輸送装置(X-R101)のターンテーブル上にセットした時点で「UO₃工程受入伝票」を作成し計量管理Grへ提出した。

(3) 工程払出し

48Yシリンダ充填完了後、工程より切り離し計量した後、仕様確認分析の結果が出た時点で「工程払出し伝票」を作成した。

(4) 製品払出し

48Yシリンダ均質化処理完了後、工程より切り離し計量した後、仕様確認分析の結果が出た時点で「製品払出し伝票」を作成した。

(5) 廃棄物保管廃棄

製錬転換施設で発生する廃棄物は、カートンボックスに封入する可燃・難燃物とドラム缶に封入する不燃物に大別される。

a. 可燃・難燃物

カートンボックスに封入した可燃・難燃物は、一定量ごとに運搬用ドラム缶に封入し、廃棄物焼却施設へ搬出した。発生した焼却灰は、保管廃棄とした。

1. はじめに

回収ウラン転換実用化試験プロセスの連続安定運転を目指して、機器の不具合による原因究明や異常停止対策について多種多様の保守・補修等整備作業を実施してきた。その中で連続安定運転に大きく影響する、中間製品を給鉱・払出するフィーダの不良について改善を実施したので内容について報告する。

2. 問題点と改善内容

第2 HFふっ化塔下部の払出フィーダにおいては、過負荷・シール低下等による原因にて、度々工程運転を停止し、補修・整備を実施してきた。その原因究明と改善内容について以下に示す。

2.1 〔問題点〕

- 1) ふっ化炉内の分散板下部が常に加圧であるとともに、分散板ブロー等の影響でフィーダのシール部に粉体が混入し、シール部やベヤリングを損傷させ、過負荷停止の原因となる。
- 2) フィーダの回転方向が一定方向だけでなく正転・逆転と運転されることにより、シール部分の摩擦面が安定しない。よってシール材の寿命も短くシール効率も低下する。
- 3) フィーダの回転方向が変わることにより、グランドパッキン締付ナットに弛みを生じる。
- 4) フィーダ部の点検・調整が容易に出来ない構造である。
 - ① ハウジング部の軸シール点検孔が狭いため、グランドパッキンの調整が困難である。
 - ② シール部の粉体漏洩防止対策カバーが設置されていることにより、グランドの押さえボルトナットの増締め調整が容易に出来ない構造である。

2-2 〔改善内容〕

- 1) フィーダのスクリー本体については既設の物を使用し、シール部のハウジングを全面改造し、ハウジングシール点検孔は上下方向を左右方向とし、密閉出来る構造とした。
- 2) シール部分にあるラビリンスの構造を縮小し、シールとの間にシールリングを入れシール力を強化した。
- 3) グランド締付けナットに皿バネを入れ、振動・熱等による弛みを自動調整する機構とした。
- 4) シール部は実質的に、グランド部への内圧より高い圧力の不活性ガスの供給により破壊があった時は、本体内へ粉体は押し戻される。更にグランド部を囲む外側のハウジングは従来の開口部を塞いで、Oリングシールされたカバーを持つ。このカバーは、透明アクリル製なので、内部の状況を確認することが出来、シール破壊が生じた時でもハウジング内にとどめ、外部を汚染することのない構造とした。さらにベヤリング側へもOリングを入れる漏洩防止対策を実施した。

3. 結果と今後の課題

払出フィーダの改善により、HFふっ化工程～転換工程への連続安定化運転の継続に貢献でき、稼働率の向上に繋がった。

また同一、類似箇所における他工程のロータリーフィーダ、関連機器等について、その粉体物性に起因するトラブルに対応できる設備機器の改善を進めていく必要がある。

1. はじめに

動燃が開発した「マイクロ波加熱法による混合転換技術」は、動燃東海事業所のプルトニウム転換技術開発施設において実用に供されており、設備の設計及び運転データは、商用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、混合転換技術を大容量のプラントに適用する場合の技術開発課題が残されていたことから、実規模相当の設備機器による電力共同研究「マイクロ波加熱法による混合転換技術開発試験研究」（平成2年度～平成6年度上期）を実施した。電力共同研究の成果を商用施設（六ヶ所再処理工場）へ適用する場合には、遠隔自動運転を想定して、より信頼性・安定運転性の高い設備が不可欠となることから、平成6年度下期から、高稼働率等を確認することを目的とした受託試験を開始している。

平成8年度から平成9年度は、試験設備の安定運転性能・設備稼働率等を確認するためシステム試験及び設備単体機器の高性能化に向けた運転条件の確認並びに系統内における粉末滞留量の把握、実機への適用性評価等を実施した。

2. 受託試験の概要

平成6年度～平成9年度に実施した受託試験の概要を以下に示す。

(1) 平成6年度の概要

- ①
- ②
- ③

(2) 平成7年度の概要

- ①
- ②
- ③
- ④

(3) 平成8年度の概要

- ① [Redacted]
- ② [Redacted]

(4) 平成9年度の概要

- ① [Redacted]
- ② [Redacted]

3. 成果

平成8年度及び平成9年度の成果を以下に示す。なお、詳細については、「受託試験報告書」(マイクロ波加熱法による混合転換技術確認試験(その3)〔平成8年度〕及びマイクロ波加熱法による混合転換技術確認試験(その4)〔平成9年度〕)を参照されたい。

(1) システム試験(平成8年度)

実機模擬運転を行ったシステム試験Ⅲにおいて、稼働率及び脱硝処理バッチ数が電力共同研究を超える数値を実証した。

ただし、不具合により工程を停止させる事象が発生しており、安定運転性において課題が残ることとなった。

(2) 試験設備の高性能化確認試験(平成9年度)

システム試験等で発生した課題を、適正な条件設定によって解消できることを確認した。

(3) 試験設備の解体・撤去(平成9年度)

① 試験設備全体で有意料の滞留粉末が回収されており、実機では適切な検認手法が必要であることを確認した。

② 混合機内滞留量は大幅に低減され、滞留量低減対策の有効性を確認した。

4. 今後の計画

本試験は、平成2年度から平成9年度にかけて実施され、計画された全ての試験を終了し、期待どおりの成果を得ることができた。

これらの成果は、商用施設の実機設計に反映されることになる。

1.4 製錬転換施設における不具合事象

1.4.1 廃棄物焼却施設スクラバ廃水の処理

転換技術開発課 田中 克幸

1. はじめに

平成9年9月、「人形峠事業所において、基準を超える排水の不法な放流が行われた」との指摘を受け調査したところ、同年8月下旬に事業所内の廃棄物焼却施設からスクラバ廃水（非管理区域）を製錬転換施設に受け入れ、ふっ素含有量を低減させた後、夜次鉍滓堆積場に放流したことが判明した。また、本経路による排水運搬は、昭和58年5月の第1回目から1～5回/年の頻度で毎年のように行ってきたことも判明した。

事業所外への不正な放流ではなかったが、原子炉等規制法に基づく保安規定や鉍山保安法に定められた条項に抵触する事実であり、監督官庁に報告するとともに、その詳細を調査し、対応処置並びに再発防止策を実施した。

2. 発生状況

(1) スクラバ廃液処理の依頼

8月19日、環境資源開発課から約5 m³のスクラバ液の処理の依頼を受け、課内で検討の結果、通常の排水処理を行い夜次鉍滓堆積場（鉍滓ダム）へ排出することになった。

その理由は以下の通りである。

- ① 元液のF、COD濃度が高く、製錬転換施設での廃液処理工程では、Fは除去できるが、CODの低減はできない。
- ② ウランがほとんどなかった。（発生元が非管理区域、製錬転換施設から施設外の放流水槽への送液の管理目標値（ $1 \times 10^{-3} \text{Bq/cm}^3$ ）以下）
- ③ 処理後の排水はCODが目標値を超える可能性が高いため、分析せずに鉍滓ダムへ送液することとした。
- ④ ダムであれば希釈効果が大であり、ダムの上澄水はウラン、ラジウムの除去を行った後、最終的に事業所の放流水槽に送液され、分析確認できる。

(2) 処理の経緯

- ① 8月21日 スクラバ液約5 m³を施設内廃液貯槽（集液槽（V-901））に受入
施設内で発生した他の廃液（18.5 m³）と混合
- ② 8月25日 施設内で発生した他の廃液（6.5 m³）をV-901に追加
- ③ 8月26日 集液槽（V-901）の廃液を処理し、排水ピットAへ貯留開始
- ④ 8月27日 施設内床ドレンピットの排水約6 m³を集液槽（V-901）へ移送
非管理区域スクラバ液約2 m³を集液槽（V-901）へ移送
- ⑤ 8月28日 集液槽（V-901）内の液をほぼ全量処理→排水ピットA
排水ピットBの排水を分析確認後、放流水槽へ排出

- ⑥ 8月29日 第1回鉾津ダムへの送液 58.9m^3 (排水ピットA)
 - ⑦ 8月30日 第2回鉾津ダムへの送液 61.2m^3 (排水ピットB)
 - ⑧ 8月31日 第3回鉾津ダムへの送液 23.4m^3 (排水ピットA)
- 鉾津ダムへの送液合計量 144m^3

3. 法令，規程の適用（監督官庁の指示事項等）

(1) 鉾山保安法

① 平成9年9月5日付け監督指示書（鉾務監督官）

- 1) 放射性廃棄物焼却場のスクラバ廃液の廃水処理管理体制を見直し，整備すること。
- 2) 各施設の廃水処理施設及び廃水処理系統の総点検を実施すること。

② 平成9年9月22日付け監督部指示事項（監督部長）

- 1) 製錬転換施設の廃液処理施設に廃棄物焼却施設から生じたスクラバ廃液を受入れ，処理し，夜次鉾津堆積場へ放流していたが，これは製錬転換施設の認可内容と相違するので改善すること。（関連条項 鉾山保安規則第83条第1項第24号及び25号）
- 2) 製錬転換施設廃液処理施設から工程排水を放流する場合は，保安規程第74条第3項の規程を遵守すること。（関連条項 鉾山保安法第12条）
- 3) 上記鉾山保安法違反に鑑み，鉾山保安法規違反事項の改善，保安管理体制，作業方法及びその他所要事項に係る再発防止策を策定するとともに，鉾山保安法規の遵守状況を再確認するため，一斉総点検を実施すること。

(2) 原子炉等規制法

① 平成9年10月20日付け原子力安全局長指示事項

- 1) 排水処理について保安規定に定める手続きを経ず排水が行われるとともに，核燃料物質使用許可申請書の記載と異なった方法が取られるなど，不適切な処置が行われた。
今後，このようなことがないように直ちに改善を図り，安全管理を徹底するとともに，速やかに再発防止策を含めた改善計画を取りまとめ報告されたい。

(3) 瀬戸内法

① 平成9年9月5日付け岡山県環境指導課指示事項

- 1) 廃棄物焼却施設のスクラバ廃水を，放流水槽に運搬せず，製錬転換施設に運搬して処理したこと及び申請書では1日 1m^3 と記載していたところを 5m^3 運搬したことは，瀬戸内法に基づく許可申請書に記載した内容と異なるので，許可を受けた方法で処理すること。

4. 対応処置及び再発防止策

各監督官庁の指示事項に対して，以下に示す対応処置及び再発防止策を実施する。

(1) 許認可手続き

廃棄物焼却施設のスクラバ廃水は，F濃度が高いので製錬転換施設の廃液処理設備で低減処理を行うものとし，製錬転換施設内に専用の受入設備を設置する。

このため、原子炉等規制法に基づく使用許可変更申請、鉱山保安法に基づく施設変更認可申請、さらに瀬戸内法に基づく特定施設の構造等変更許可申請の手続きを行う。

(2) 製錬転換施設から鉱滓堆積場への送液配管の撤去（図－1 参照）

製錬転換施設から鉱滓堆積場への排水の放出が可能であったのは、放流水槽への送液配管の途中に凍結防止用のドレン抜きバルブ及び鉱滓堆積場への配管が設置されていたためであり、今後は放流水槽への排出を確実にを行うため、このドレンバルブ及び配管を撤去する。

(3) 従業員の再教育

今回の事例は、法令、規程、要領、手順等の遵守に対する認識不足に起因するところが大きいと判断し、各種法令、規則、規程、要領書、マニュアル等の再教育を実施し、排水の排出時の安全管理課長の承認並びに統括者の許可取得等、決められた手順を確実に励行するように管理する。

1.4.2 脱硝試験設備解体作業における靴底汚染

転換技術開発課

1. はじめに

平成10年1月7日（水）16時00分頃、製錬転換施設管理区域出口のハンドフットクローズモニタによる退出サーベイにおいて作業員3名の足部の警報が発報した。調査の結果、脱硝試験室(2)で実施中の脱硝試験設備の解体作業において、作業衣及び靴底に汚染があったことが判明した。

しかし、汚染レベルは法令値以下であり、作業員の身体汚染や体内への吸入はみられなかった。

2. 発生状況

「マイクロ波加熱法によるウラン脱硝試験」に係わる設備の運転終了に伴って、設備の解体撤去作業を平成9年11月より実施中であった。

平成10年1月7日は、立ち会い者も含め7名で混合機解体の準備作業を行った。作業終了後、管理区域から退出する際、ハンドフットクローズモニタにて汚染検査を行ったところ、3名の作業員の靴底及び衣服に汚染が検出された。

（当日の作業を行った混合機は、改良した混合機に更新するために平成7年11月に架台に組付けた状態で仮置きしておいたものである。混合機本体は、直径約1.5 m、厚さ約11.5cm（内寸約6.5cm）の円盤状である。混合機を解体するための準備作業として、円盤状の本体を架台から取外し床上に下ろす作業を行った。）

3. 汚染の状況

(1) 作業員の汚染状況

靴底等についてサーベイメータにより詳細測定したところ靴底（3人）、衣服（2人）に汚染を確認した。汚染レベルは、いずれも法令値（管理区域の設定又は人の退去及び物品の持出し）を下回る値であった。なお、身体（皮膚）汚染や放射性物質の吸入は認められなかった。

なお、鼻スミヤの結果は異常なかった。

(2) 作業環境の汚染状況

① 表面密度

作業場所である脱硝試験室2階及びハンドフットクローズモニタのある前室までの作業員の歩行経路をサーベイした結果、脱硝試験室2階混合機付近の床及び前室に汚染が検出された。

汚染レベルは作業環境の事業所の自主的な管理値（人が触れる場所の値）を下回る値であった。

② 空气中放射性物質濃度

脱硝試験室2階のエアスニッファ3箇所及び作業管理用の移動型ダストモニター（1台）の採取紙の測定の結果、いずれも検出限界値以下であり、空気汚染は認められなかった。

(3) 線量当量率

脱硝試験室2階及び混合機の線量当量率の測定の結果、通常と異なる値は確認されなかった。

(4) 施設外への影響

排気モニタの指示値の変化を監視した結果、変化が認められない。そのため、施設外への放射性物質の放出はないものと判断した。

4. 原因

作業員3名は、平成10年1月7日午後ウラン脱硝試験設備のうち混合機を架台から取り外し、解体場所へ移動する作業を行った。

この混合機は試験途中で更新された使用済みの機器である。更新時にグリーンハウス（ビニールシートで仕切った空間）内で解体・点検を行い、表面汚染のないことを確認後移動し、解体作業までの期間、保管していたものである。今回の取外しにあたっては、すでに表面汚染のないことが確認されているため、粉末飛散防止措置をとらなかったことから、混合機の付帯部品である軸受と架台の隙間に付着していた微量の天然ウラン粉末が作業服に付着、あるいは床面に落下して汚染が発生した。

この微量のウラン粉末は、平成6年に実施したグリーンハウス内における混合機の分解・点検作業の際に、軸受部の養生（ビニールシートで包む等の汚染防止対策）が不十分であったことから入り込んで付着し、作業終了後の汚染チェックで確認できなかったものと考えられる。

7. 対策

今後の設備解体作業において、汚染が再発することがないように、以下の対策を実施する。

(1) ウランの使用履歴のある機器の解体作業

ウラン脱硝試験設備の解体作業は、汚染及びその恐れのある機器の解体に対してはグリーンハウスの設営、あるいは既設のフード内で解体部位の養生を行った上で実施することとしており今後も継続して行う。今回移動した混合機は、過去の表面スミヤチェックで確認できなかった部位に汚染があったことから、今後、同様のケースの場合には、その機器の使用履歴を調査し、解体前に汚染の有無を検査するものとする。汚染のチェックができない部位を解体する場合は、汚染しているものと想定し、解体途中の汚染チェック、養生あるいはグリーンハウスの設置等の対策を講じる。

(2) 作業エリア退出時のサーベイ

ウラン脱硝試験設備の解体作業は、脱硝試験室1階及び2階（上下階）で実施しており、作業エリアからの退出時にサーベイチェックを確実にを行う。

① 作業立会者の立会いのもとで、作業者のサーベイを実施する。

② チェックシートにサーベイ結果を記録する。

(3) 事例研究、再教育

以下の内容で平成10年1月8日に製錬転換施設従業員を対象として再教育及び課内保安懇談会を実施した。

① ウラン脱硝試験設備の解体作業に従事する作業者については、当日の作業内容、作業方法を再確認し、問題点及び今後の対策について話し合った。

さらに、管理職、作業立会者より、汚染発生以降の対応状況、法令・規則の留意事項、今後の作業における注意事項について再教育を実施した。

② 転換技術開発課内保安懇談会を開催して、今回の汚染の事例研究を実施した。

2.1 平成 8 - 9 年度 環境資源開発課業務概要

環境資源開発課 高橋 義明

1. 鉱山処置技術開発及び鉱害対策関係の平成 8 年度の業務として、鉱山処置技術開発は、鉱滓堆積場処置研究として、鉱滓堆積場への流入水の発生源、流出量及び組成等の調査を行った。

また、外部委託による鉱廃水調査を行った。

坑廃水処理技術開発は、バイオテクノロジーの応用技術開発としてウラン濃縮機構の解明のため、鉄酸化バクテリアを用いて、生物試料の凍結乾燥方法の習得を行った。

また、動植物影響調査について検討、計画及び植物育成装置の納入を行った。

鉱害対策では、麻畑 2 号坑かん止堤補強工事、旧鉱山の捨石堆積場について、巡視、点検、線量測定等での維持管理、夜次鉱滓堆積場周辺、ヒープリーチング施設及び、露天採掘場跡の維持管理、廃水及びダム水などの処理を行った。

平成 9 年度の鉱山処置技術開発は、鉱滓堆積場処置研究として、鉱滓特性調査把握のための堆積物の採取を行った。

動植物影響に関する研究として、シロイズナズナを用いた植物移行試験として植物体の育成、及び DNA の確認作業を行った。

また、鉱害対策として、旧鉱山の捨石堆積場について、巡視、点検、測定等での維持管理、夜次鉱滓堆積場周辺、ヒープリーチング施設及び、露天採掘場跡の維持管理、ダム廃水などの処理を行った。

2. 鉱石試験関係の 8 年度の業務は、鉱物学的鉱化モデル開発として、URAFRM のプログラムの詳細解析及び数値鉱化モデル開発のためのビジュアル化の検討を行った。

また、製錬技術開発では、樹脂法によるウランと不純物の分離試験を行った。

平成 9 年度は、ベトナム、タイの試料の鉱物試験、及びラジウム吸着剤の開発について、吸着試験サンプルのラジウム分析の前処理を行った。

また、開発試験棟に一時保管されていた廃液の処理を行った。

3. 環境技術開発関係の 8 年度の業務は、ウラン廃棄物処理研究として殿物等の溶解試験を行った。また、生物、有機物に関する調査研究について、バクテリア-岩石-水反応試験を行った。廃棄物処理施設運転管理では、放射性廃棄物の焼却減容、貯蔵・管理を行った。

平成 9 年度は、岩石-水反応試として加湿、加圧試験を行った。

廃棄物処理施設の運転管理では、放射性廃棄物の焼却減容、貯蔵・管理を行った。

2.2 夜次鉍滓ダム処置に係わる事前調査

環境資源開発課

2.2.1 はじめに

昭和45年に建設された夜次鉍滓ダムは、人形鉍石を用いて粗製錬試験を行った後の廃滓である鉍滓を堆積するために作られたものである。しかし、昭和53年にその試験は終了しており、現在は旧坑道等による坑廃水と雨水だけが流入している。一方、夜次鉍滓ダムは建設以来27年が経過していることから堤体の老朽化による安全性と阪神大震災のような大地震による安全性が問われており、その安全対策が求められている。これらの状況を踏まえて夜次鉍滓ダムの使命は終了していることから、夜次鉍滓ダムを閉鎖して安定化する方向で処置計画を検討することとした。

夜次鉍滓ダムを処置するにあたっては、処置された鉍滓の一般公衆に与える影響を事前に評価し安全性を確保するとともに処置を行った後、モニタリングによって安全性が確保されることを実証し確認する必要がある。そのために、夜次鉍滓ダムの処置に係わる事前調査を充分に行い、鉍滓及びその周辺の現状を把握するとともに、夜次鉍滓ダムを処置する上での予期される事前の課題に対する検討を行う必要がある。そこで夜次鉍滓ダムへの流入水（露天採掘場跡地、見学坑道、大廃水溝）の内、流量が最も多い大廃水溝について流水データ、坑道図及び地形図等を基に、夜次鉍滓ダムへの流入水の遮水あるいは減量化の可能性を判断することを目的に調査を行った。その結果について報告する。

2.2.2 調査目的と内容

(1)大廃水溝への流入水調査

①峠2号坑鉍水調査（平成8年度調査）

峠2号坑の坑口部は、ウラン濃縮パイロットプラント用地の造成時に末端部に集水ピットが設置されて坑内水はポリエチレンパイプによって大廃水溝へ導水されていた。しかし、このポリエチレンパイプも土圧や土砂流入等によって閉塞され、坑内水はパイロット用地に浸透、滲水されて最終的には大廃水溝に流入しているものと考えられる。

そこで、峠2号坑集水ピットの貯留水を排水することによって峠2号坑の坑内水を露出させ、その水量及び水質を調査して峠2号坑と大排水溝の因果関係をつかむ。貯留水の排水については、仮設配管を峠2号坑集水ピットからウラン濃縮パイロットプラント施設の外側を通してウラン回収施設のスーパーサイフォンフィルター集水ピットに設け排水を行った。

②コルゲートパイプ流末部調査（平成8年度調査）

パイロットプラント東側の盛土法面の擁壁北端付近に末端を有するコルゲートパイプ（φ800mm）は、沢水の排水のために布設されたものであるが、現在はその流末部が沈砂池を法尻とする盛土法面に隠れており、大廃水溝への流入状況を把握できない状況にある。

そこで、コルゲート管の流末を露出させて水量を調査して大廃水溝への負荷水量を把握する。

(2)流域調査（平成9年度調査）

大廃水溝に流入する雨水の表流水を地形図から推定し、大廃水溝に対する負荷量を求める。

(3)水量調査（平成9年度調査）

大廃水溝に流入してくる経路として沈砂池、旧製錬所横配管（旧製錬所からの湧水）、コルゲートパイプ（流入地下水）及びポリエチレンパイプがある。昨年度の調査期間の終わり頃から流水が確認されたポリエチレンパイプについては、来歴が不明であるため断言できないが峠2号坑集水ピットから下流に設置されたポリエチレンパイプと口径が同じであることから、その末端であることは十分考えられる。但し、峠2号坑集水ピットのポリエチレンパイプには木栓が打たれていることから、仮にその末端であるとしても途中でパイプが破断しており、その破断箇所が峠2号坑集水ピットからの漏水の一部を再集水しているものと考えられる。そこで、これらの水量水質測定結果を基に雨水との関係を考察する。

(4)夜次鉦滓ダム地質調査（平成8年度、9年度調査）

夜次鉦滓ダムの堆積物の処置方法を検討するにあたり、堆積物の軟質層及び硬質層の不攪乱試料を採取して、化学試験及び土質試験の試料とする。

2.2.3 調査結果

(1)大廃水溝への流入水調査

①峠2号坑鉦水調査

峠2号坑集水ピットの排水工事に関わる仮設工事に時間を要し、調査期間が約1ヶ月と短かったため水量、水質のデータ数が少なく、調査の目的である峠2号坑と大廃水溝の因果関係を明確にすることはできなかった。

しかし、調査結果から次のようなことが考察された。

・峠2号坑集水ピット内で峠2号坑からの配管が2本確認（写真2.2-1、A配管及びB配管）されたが、A配管からの流出量はB配管に比べて2桁多く、全 α 値もA配管では検出されているがB配管では検出されなかった（図2.2-1）。この原因として、A配管は健在で峠2号坑に繋がっており、坑内水の排出を行っているが、B配管は途中何らかの理由で閉塞されており、峠2号坑集水ピットに近い地点の希釈された貯留水を排水していることと予想される。

・峠2号坑集水ピットからの排水を排出している期間のコルゲートパイプからの流量が、排出していない期間に比べて少なくなっていることから、峠2号坑の坑内水が地下浸透水として大廃水溝に流入しているものと予想される（図2.2-2）。

②コルゲートパイプ流末部調査

沈砂池から大廃水溝にそって北側の盛土法面の法尻を溝掘りした結果、大廃水溝に流入するヒューム管が擁壁まで続いておりコルゲート管は存在しなかったが、大廃水溝内に土蚕と堰堤と塩ビ管（ $\phi 200$ ）による流量調査点を設け、容器法によって流量調査を行った（図2.2-2）。

その結果次のようなことが考察された。

・ヒューム管方向から大廃水溝に入ってくる峠2号坑坑内水とコルゲートパイプからの流水量は、ヒューム管内で合流していることから峠2号坑坑内水とコルゲートパイプからの流入水を区分して、水質データを取得することは非常に困難である。

・コルゲートパイプ（峠2号坑内水を含む）の流入地下水の大廃水溝に対する負荷水量は、参考値にすぎないが約75%と試算された。

(2)流域調査

降雨水が大廃水溝に対して直線的に流入する流域面積と事業所内で測定された年間平均降雨量から大廃水溝へ流入してくる平均降雨量（流出係数で補正した雨量）を求め、大廃水溝からダムへ返送された廃水量で除して降雨による表流水の大廃水溝への負荷率を求めるた。その結果、約25%と試算された。表流水が大廃水溝に流入しないよう分離することができれば、処理水量の減量効果は十分期待できるものと考えられる。

具体的には、山腹斜面からの表流水が大廃水溝へ流入しないよう、山腹水路、集水路等を設ける等の工法が考えられる。

(3)水量調査

平成9年6月から8月までの大廃水溝に関する流量調査結果と、その間の日降雨量の関係からスポット的ではあるが、水量データ（図2.2-3.4）から流量の傾向を検討した。

その結果次のようなことが考察された。

①沈砂池からの流水は、ほぼ全量が降雨による表流水であり全 α 値の分析結果も検出限界値($0.5 \times 10^{-3} \text{Bq/ml}$)以下であり、水処理の必要性はないと考えられ、大廃水溝から分離し得る水量と考えられる。

②旧製錬所横配管は、流量傾向と現地状況から判断して沈砂池よりも地下水の影響を受けているが、ポリエチレンパイプ及びコルゲートパイプよりも表流水の影響は大きい。

表流水の影響については、旧製錬所横配管周辺の遮水工事（側溝の設置・舗装等）で減量化が期待できる。また、水質調査結果で全 α 値に有意値が検出されているが、放射線安全要領で定められている放流水槽からの放流に係わる管理基準値（全 α 値： $1 \times 10^{-3} \text{Bq/cm}^3$ ）よりも低い放射性物質濃度であった。

③コルゲートパイプの流量は、降雨量による影響（降雨量に対する反応が鈍い）が少ないと読みとれることから、かなりの地下水量を有するものと思われる。

④コルゲート管方向から大廃水溝へ入っているポリエチレンパイプの流量は、測定期間を通じて3000～5100L/h（平均4200L/h前後）と安定しており（降雨の影響が少ない）、ほぼ恒常的な地下水流であると考えられる。また、水質調査結果で放射線安全要領で定められている放流水槽からの放流に係わる管理基準値（全 α 値： $1 \times 10^{-3} \text{Bq/cm}^3$ ）を超えて全 α 値が検出されているため、水処理を回避することはできないと考えられる。

(4)夜次鉦滓ダム地質調査

夜次鉦滓ダムの堆積物を人力によるシンウォールサンプラの挿入によって、平成8年度はダム堤体側の軟質層（ヘドロ状態）及び硬質層を3点採取した。更に平成9年度は、20mグリッドで23点の軟質層及び硬質層の採取を行った（図2.2-5）。

採取した堆積物について今後、化学試験及び土質試験を行い固化処理試験等の具体的な処置に関わるデータを取得していく。

2.2.4 今後の課題

夜次鉾津ダムへの流入水の遮水あるいは減量化の可能性を判断するためには、これまでのデータ量では情報不足であり、調査目的の達成は今後の調査解析にかかっているといえる。そのためには、峠2号坑集水ピットの鉾水を排出することによる大廃水溝への流入水の影響をできるだけ長期間に渡って調査することが重要と考える。



写真2.2-1 峠2号坑からの配管，右からA・B配管

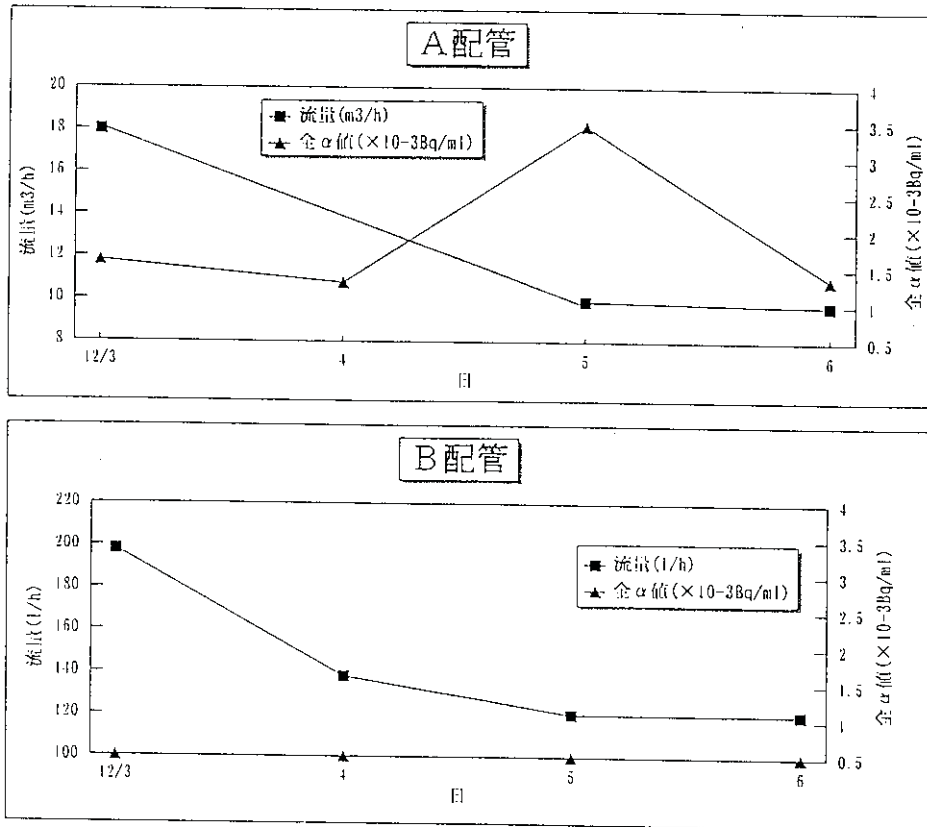


図2.2-1 峠2号坑から峠2号坑集水ピットへの流水量と全α値の経日変化

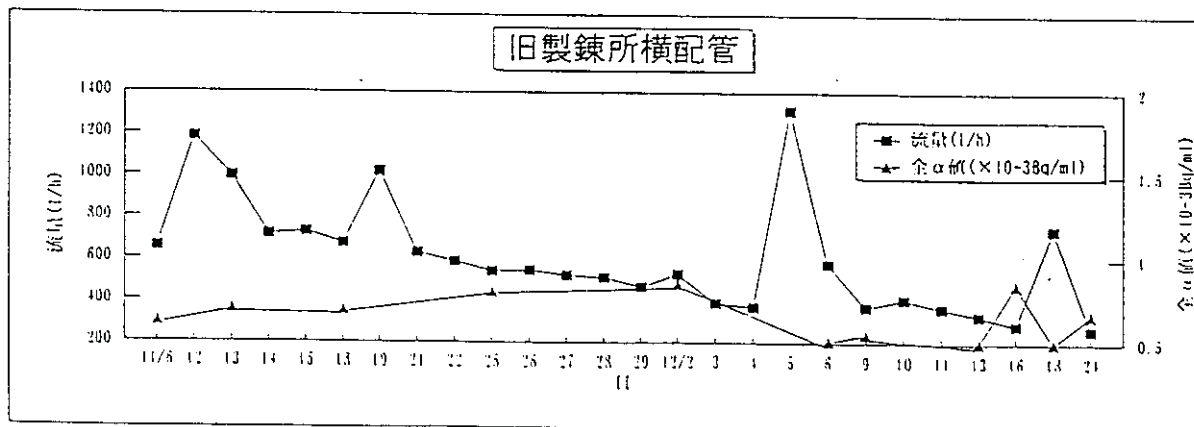
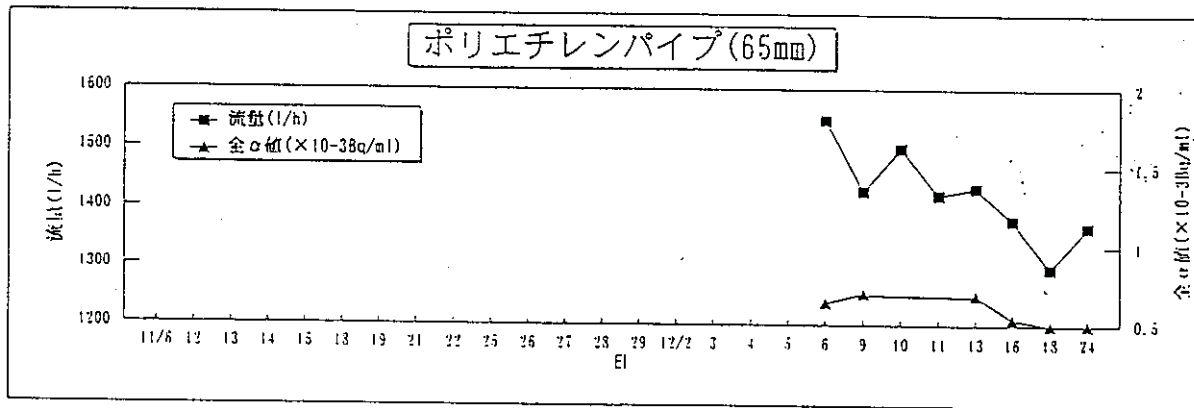
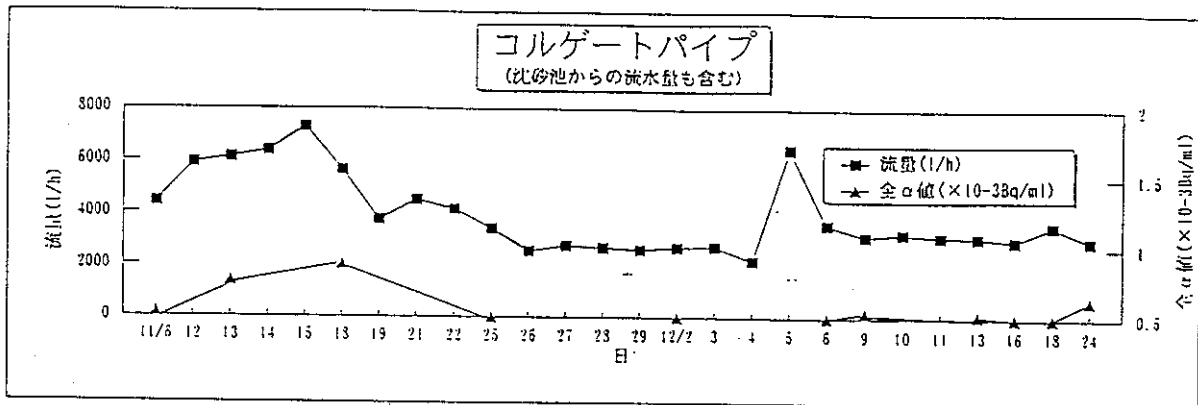
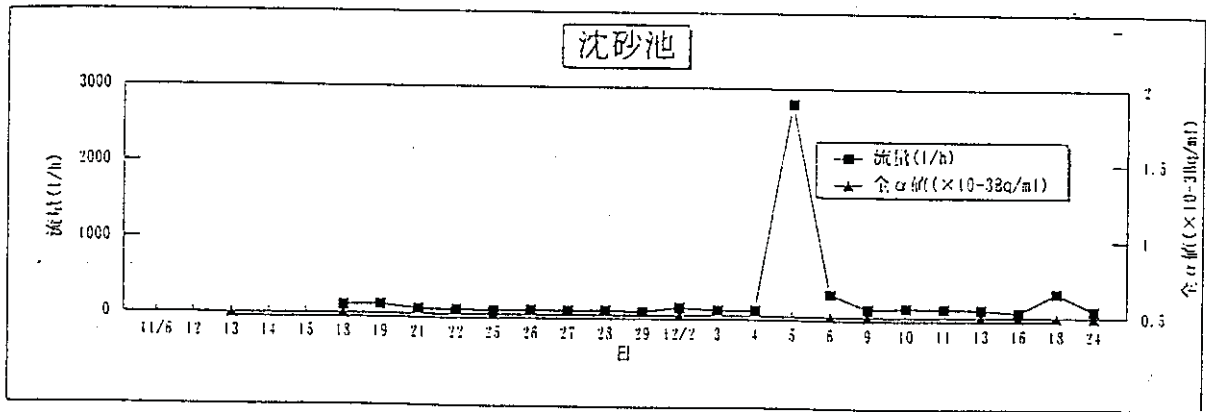


図2.2-2 流水量と全α値の経日変化

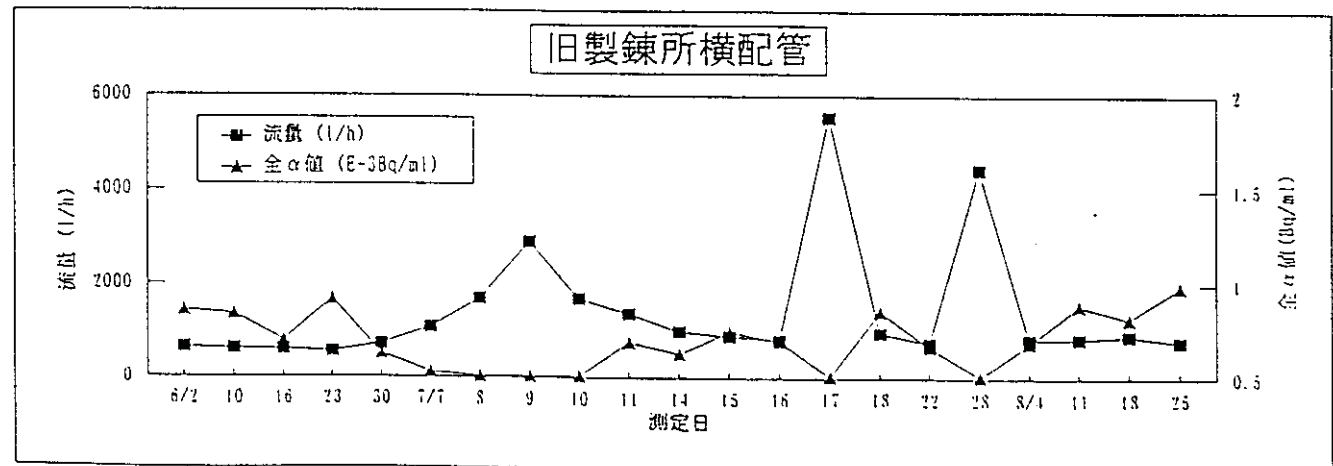
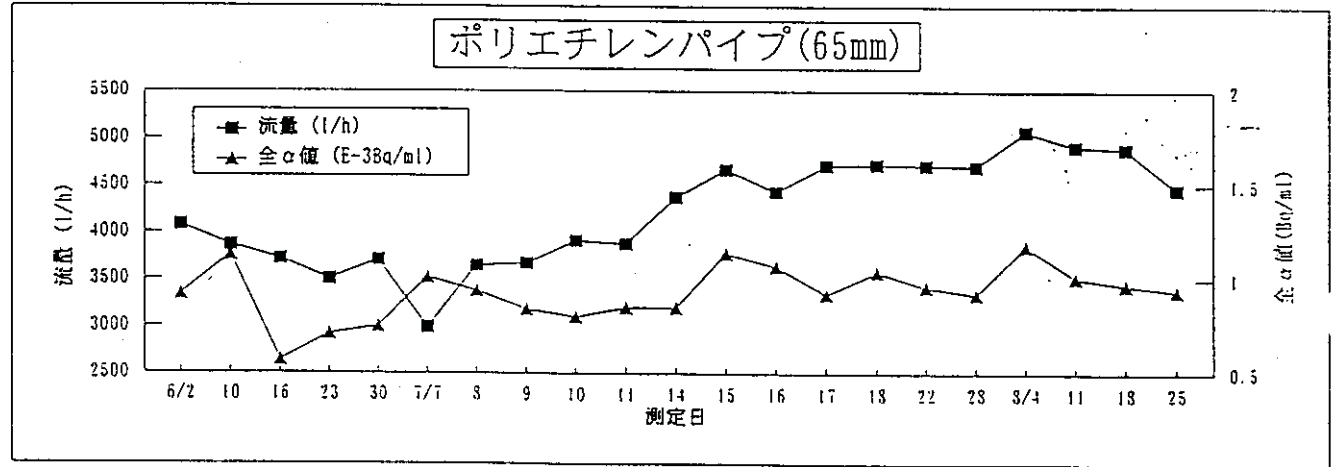
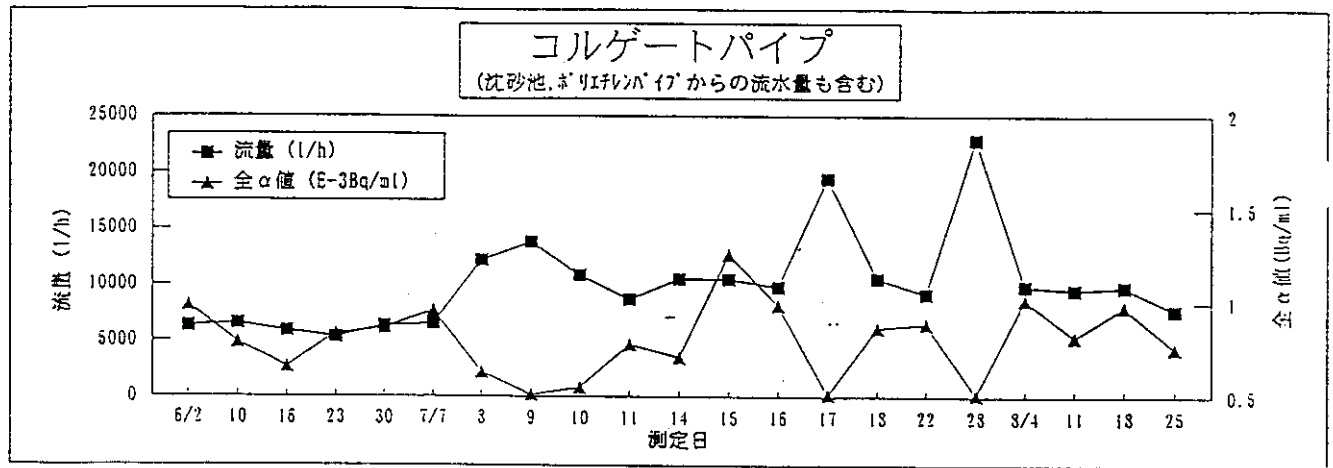
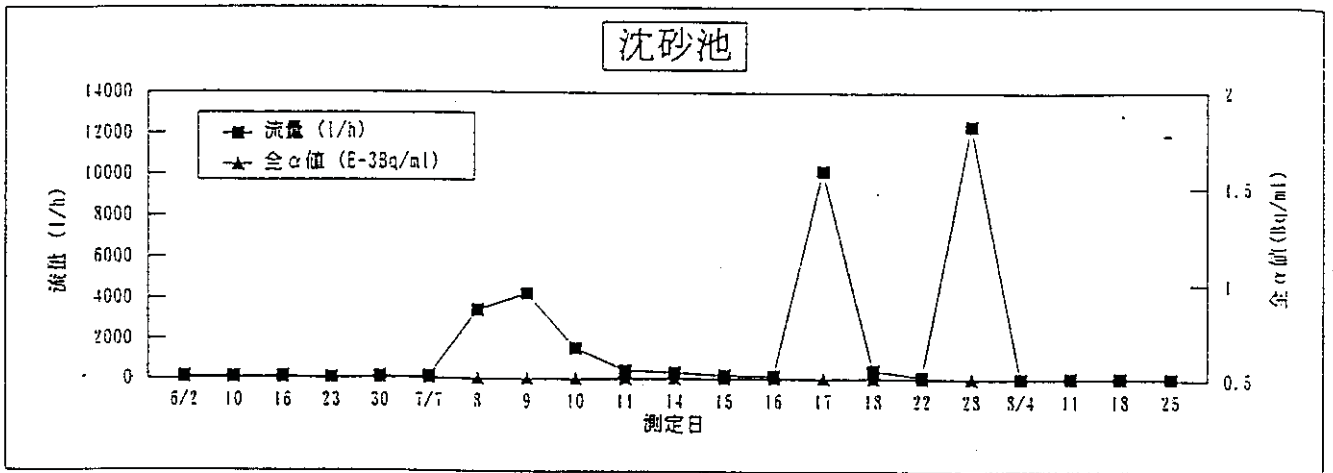


図2.2-3 流量と全α値の経日変化

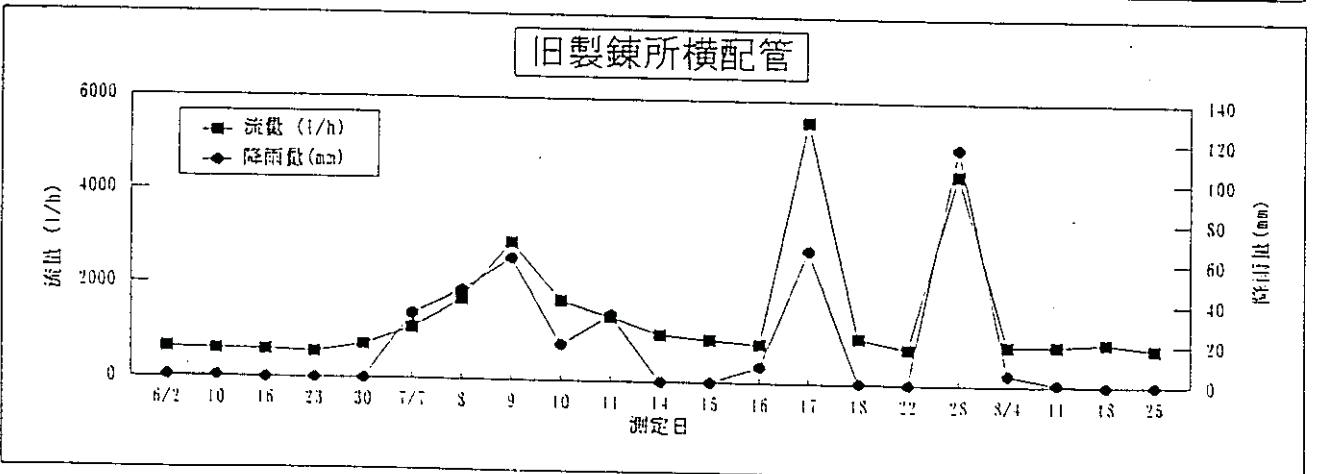
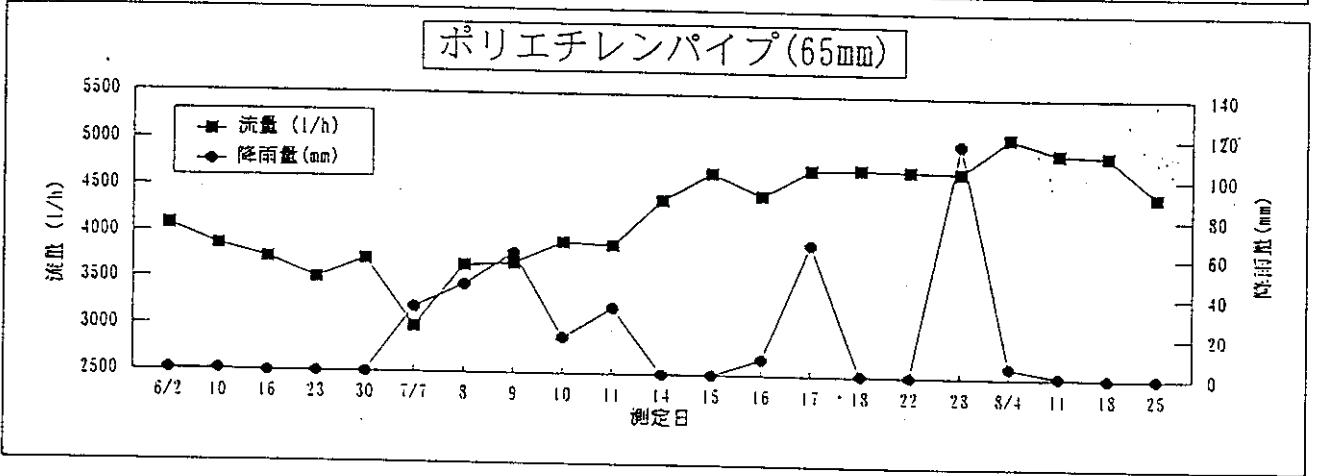
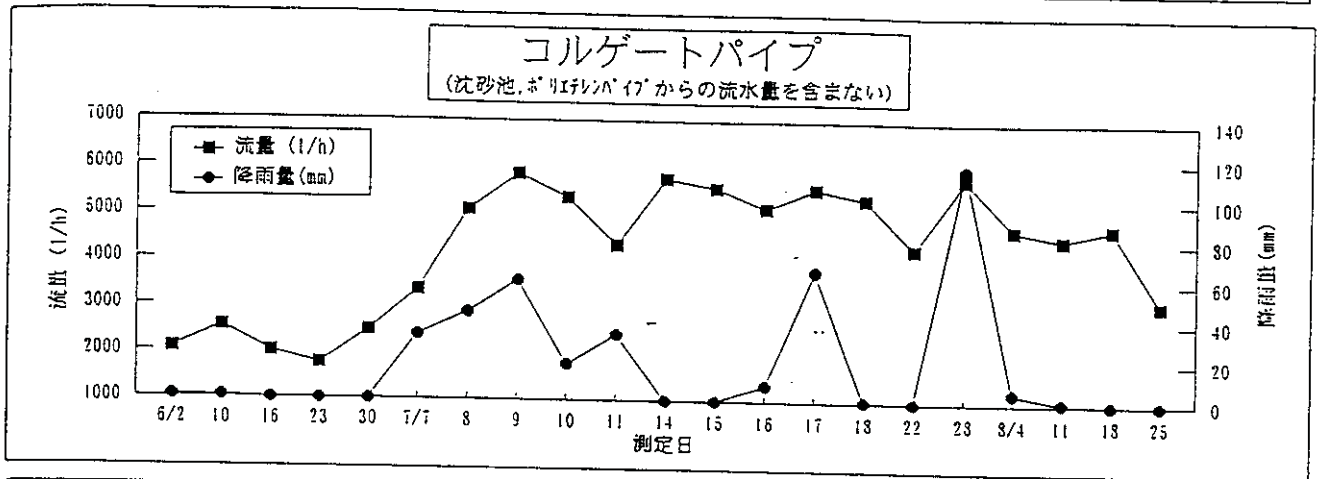
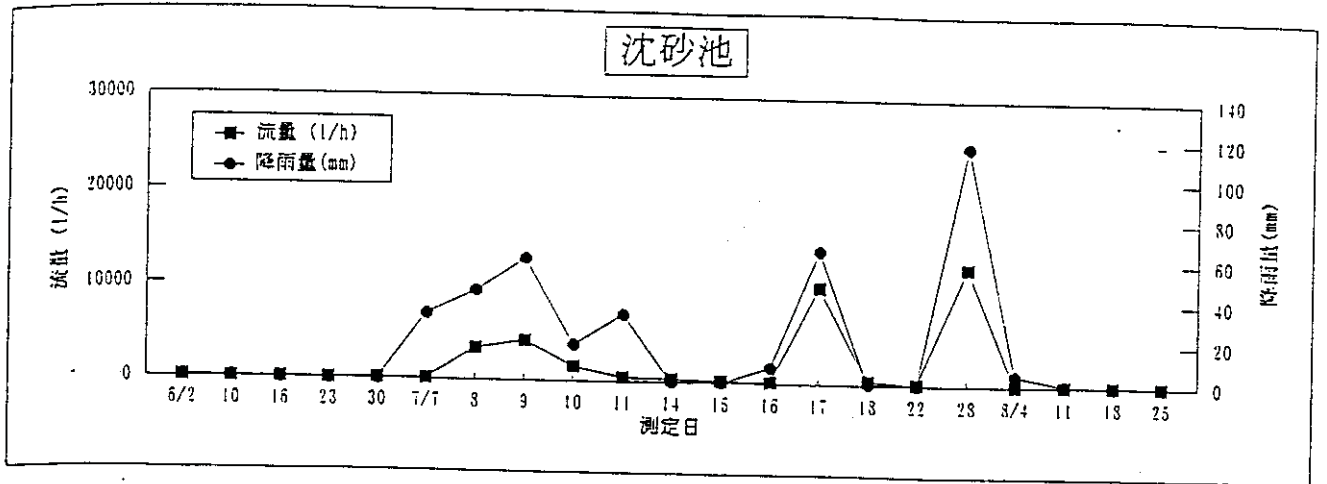
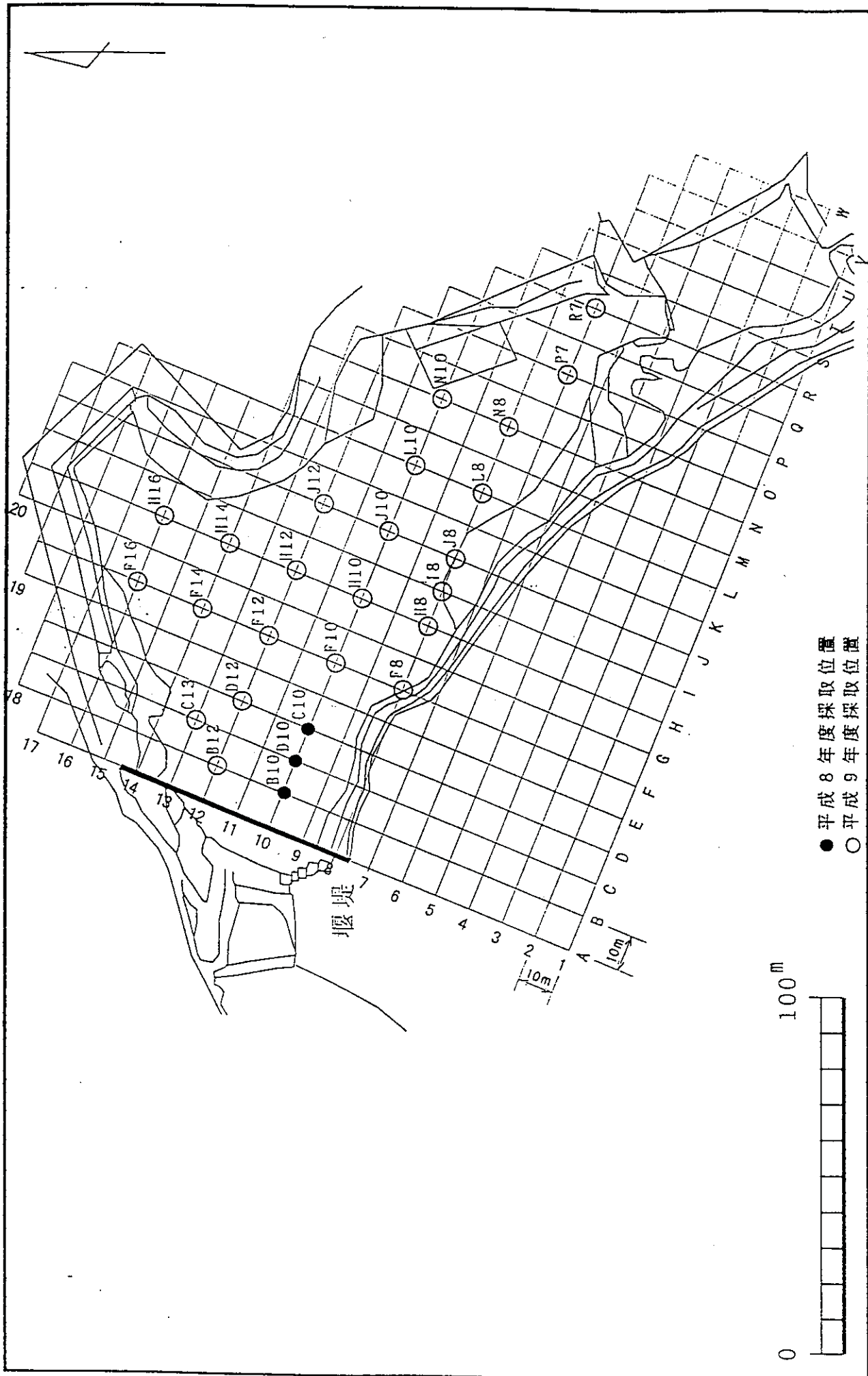


図2.2-4 流水量と降雨量の経日変化



2.3 ウラン廃棄物処理研究

環境資源開発課

2.3.1 はじめに

人形峠事業所では、ウラン廃棄物の貯蔵時の安全性確保と放射性廃棄物量の低減化並びに処理済廃棄物の安定化の観点から、ウランの回収・安定化及び減容化の研究を行っている。

処理対象物は、主に製錬転換施設から発生したフッ素化合物とともにウランを主とする放射性物質を含むウラン廃棄物（殿物）である。そのために、殿物を一旦溶解してウランを主とする放射性物質とフッ素を分離してウランはイエローケーキとして回収する。一方廃液中に含まれるフッ素は、除去あるいは安定化をはかり保管する計画である。

これまで殿物を塩酸で溶解した後、ウランとフッ素の分離法として晶析による分離、pH制御による分離及び錯化剤添加による分離を試みた。その結果、殿物の溶解液にアルミニウムを添加してフッ素をマスクングし、ウランのみを過酸化剤として沈殿させることによってウランとフッ素を分離できる見通しが得られた。

そこで、これらの結果を基に引き続き①殿物からのウランとフッ素の分離条件の検討、②微量ウランの除去法の検討、③化学組成の異なる殿物の溶解条件の検討、を行ったのでその結果について報告する。

2.3.2 想定殿物処理プロセスの概要

塩酸系での想定殿物処理プロセスの概要を図2.3-1に示す。殿物を塩酸で溶解した後、塩化アルミニウムを添加し、ウラン濃度が比較的高い殿物は過酸化水素によりウランを過酸化物として回収しウランとフッ素を分離する。ウラン濃度が低い場合は、樹脂によりウラン濃度を高めた上でウランとフッ素を分離する。フッ素を含む廃液中には微量のウランを主とする放射性物質が残存することから樹脂により吸着除去し、非放射性廃液とする。非放射性廃液中に含まれるフッ素は、水酸化カルシウムを用いた中和処理によってフッ化カルシウムの沈殿物として回収し、安定化をはかる。フッ化カルシウムを濾過した後の廃液には微量のフッ素が含まれているため、フッ素吸着用キレート樹脂に通液してフッ素を除去した後、排出する。

2.3.3 殿物からのウランとフッ素の分離法の検討

試験に供した殿物の化学分析値を表2.3-1に示す。試験は、殿物(No.1) 15gを1N-HCl塩酸 250 mlで完全溶解し、pH調整を行った後に過酸化水素水を添加し、ウランを過酸化物（イエローケーキ）として沈殿させた。試験条件は、反応時間4時間、温度は常温、初期はpH 2.0に固定し、pH調整剤はNaOHを用いて、 H_2O_2/U のモル比、塩化アルミニウムの添加量（Al/Fのモル比）及び最終pHを変えて、イエローケーキ中の主要元素を分析して挙動を調べた。

主要元素の分析結果を表2.3-2に、イエローケーキ中のフッ素の含有量（対U%）を図2.3-2に示す。表2.3-2からわかるように、CAMECOの転換工場のY、C受入れ仕様を例に比較すると、塩化アルミニウムの添加量（Al/Fのモル比）を0.644以上にすれば、イエローケーキ中のウラン含有量は65%以上となりウランの回収率は約99.9%であった。また図2.3-2からわかるように、塩化アルミニウムの添加量に応じてイエローケーキ中のフッ素含有量は大幅に抑制できることが

わかった。しかし、塩化アルミニウムの添加量が増えることによりイエローケーキ中のバナジウムは標準値をこえ、チタン、鉄はその限界値をもこえることがわかった。一方、カルシウムについては、フッ素とはほぼ同じ傾向を示し塩化アルミニウムの添加量が多い程イエローケーキ中への混入量は減少する傾向にあった。また、それぞれの試験におけるアルミニウムの挙動を調べた結果、イエローケーキ中への混入は全く認められなかった。

次に塩化アルミニウム添加量 (Al/F のモル比) を 0.644 に固定し、 H_2O_2/U のモル比を 1.5、3.0、最終 pH を 2.7~3.5 と変えて試験を行った。その結果を表 2.3-3 に示す。この表からわかるように、 H_2O_2/U のモル比は 3 程度で最終 pH は 2.7 から 3 程度に調整することによって、純度の高いイエローケーキが得られる。またフッ素に着目すると、転換工場の受入れ仕様を満足するためには Al/F のモル比は、1 程度が望ましい。

2.3.4 微量ウランの除去法の検討

ウラン含有量の低い殿物の場合には、殿物を塩酸で溶解後直接晶析法でウランを回収することは困難なことから、ウラン濃度を高める操作として樹脂法が考えられる。また殿物を塩酸で溶解後、ウランを除去した廃液中には数 ppm のウランが含まれていることから、非放射性廃液とするには更にウランを除去しなければならない。そこで、数種類の樹脂を用いてウランの吸着性能を調べた。

(1) 樹脂のスクリーニング

ウランを吸着させる樹脂として、UR40H、CR20、CS346 (以上キレート樹脂)、PA316 (強塩基性樹脂) を選択し、スクリーニングテストを行った。吸着条件として、殿物 (No.1) 0.5 g を 0.5N-HCl 150 ml で溶解した液 (ウラン濃度 927 ppm) に塩化アルミニウムの添加量 (Al/F のモル比) を 0.644 とし NaOH で pH 調整した液にそれぞれの樹脂 1 g を室温で 2 時間振とう攪拌した。その結果を図 2.3-3 に示す。この図からわかるように、キレート樹脂はウラン吸着への pH 依存性が高く、pH を 2 から 2.5 に調整することによってウランの吸着量は増大するが、CR20 及び CS346 は振とう攪拌により樹脂が壊れ、溶液が黄色に変色するなどの劣化現象が見られた。また強塩基性樹脂である PA316 は、他の樹脂に比べてウランの吸着性はよくなかった。

(2) UR40H による殿物溶解液中のウラン除去試験

スクリーニングテストの結果を基に、UR40H についてカラム試験を行った。試験液は、No.1 の殿物 0.5 g を 1N-HCl 150 ml で溶解した液 (ウラン濃度 906 ppm) に塩化アルミニウムの添加量 (Al/F のモル比) を 0.644 とし NaOH で pH を 2 に調整した。樹脂高のウラン吸着に及ぼす影響を調べるためにカラム直径 5mm ϕ と 10mm ϕ のカラムに樹脂 2ml 充填し、通液速度 (SV) は 2/H で行った。その結果を図 2.3-4 に示す。この漏出曲線からわかるように、樹脂高を高くすることによって、ウランの漏出曲線は改善されることがわかった。

(3) UR40H による廃液中の微量ウランの除去試験

殿物 (No.1) を塩酸で溶解後、ウランを過酸化水素で除去した後の廃液を用いてバッチ試験を試みた。吸着条件は、試験液 50 ml を塩酸で pH 3.5 に調整し、UR40H 1 g で室温で 4 時間振とう攪拌した。その結果を表 2.3-4 に示す。この表からわかるように、廃液中のウラン濃度は 3.09 ppm

から0.30ppmに減少し、それに伴って $T-\alpha$ 値も $1.06 \times 10^{-1} \text{Bq/ml}$ から $8.58 \times 10^{-3} \text{Bq/ml}$ に減少した。また、この廃液中にはウランの他に多量のカルシウム、フッ素、ナトリウムイオンを含んでいるが、これらのイオンは殆ど吸着されなかった。

2.3.5 化学組成の異なる殿物の溶解条件の検討

これまでの一連の試験は、No.1の殿物を用いて行ってきたが、廃棄物貯蔵庫に保管されている殿物の化学組成は一定でないことから、表2.3-5に示す殿物を用いて殿物(No.1)の溶解条件を基に塩酸による溶解試験を行った。

溶解試験は、1N-HCl150mlに対して殿物を1g, 2g, 3gそれぞれ加えて、常温で2時間攪拌し濾過した後の不溶解残渣量を測定した。また、フッ素と塩化アルミニウムの錯体形成による殿物の溶解性の効果を見るために塩化アルミニウムをAl/Fのモル比で0.644になるよう添加した場合と無添加の場合の両方について試験を行った。その結果を表2.3-6に示す。

フッ素を多量に含有する殿物については、塩化アルミニウムを添加することにより不溶解残渣量が極端に少なくなる傾向からして、溶解し易くなることがわかる。これは、アルミニウムがフッ素と錯体を形成し易いための影響と考えられる。また、硫酸塩の濃度が高い殿物については、アルミニウムの添加の有無にかかわらず、不溶解残渣量に変化は認められなかった。これは、硫酸塩が主として硫酸カルシウムとして存在しているためであり、この殿物の溶解性は塩酸に対する硫酸カルシウムの溶解量に相当するものといえる。

以上の結果から、フッ素を含有する殿物については塩酸で溶解する際に塩化アルミニウムを加えることによって溶解性は高まることがわかった。

2.3.6 まとめ

- (1)殿物を塩酸で溶解する時に、錯化剤として塩化アルミニウムを添加しフッ素をマスクングすることにより、過酸化水素で直接ウランを回収できフッ素との良好な分離が可能であることがわかった。
- (2)純度の高いイエローケーキを得るためには、 $\text{H}_2\text{O}_2/\text{U}$ のモル比は3程度で最終pHは2.7から3に調整し更に、殿物中のフッ素濃度に対して添加する塩化アルミニウムは、Al/Fのモル比で1程度にすることが望ましい。
- (3)ウラン濃度の低い殿物を塩酸で溶解後ウラン濃度を高める方法として、キレート樹脂(UR40H)を充填したカラムの樹脂高を高くすることによって良好なウランの漏出曲線が得られたが、今後より詳細な吸着試験を行った上で、樹脂の適用性を評価する必要がある。
- (4)フッ素を含有する殿物については、塩酸で溶解する際に塩化アルミニウムを所定量加えることによって、より溶解し易くなることがわかった。

2.3.7 今後の課題

本殿物処理プロセスを確立するに、今後検討が必要と考えられる項目を以下に示す。

- (1)ウラン濃度の低い殿物からのウランとフッ素の分離手法の検討
- (2)ウランを除去した後の廃液に含まれる微量ウラン等の除去方法の検討
- (3)ウランを除去した後の廃液からのフッ素の除去又は安定化の検討
- (4)実処理プラントの概念検討

表2.3-1 殿物 (No.1) の化学分析値

(単位=mg/g-dry, 110°C乾燥)

元素	濃度	元素	濃度	元素	濃度
Ca	286.6	Na	11.2	Cl ⁻	64.1
K	N.D.	U	233.6	F ⁻	112.3
S	12.2	Y	0.2	SO ₄ ²⁻	2.1
P	0.5	Sr	0.1		
Si	0.3	Fe	1.2		
Al	0.7	Mn	0.2		
Mg	43.8	V	1.7		

表2.3-2 塩化アルミニウムの添加量の違いによる
イエローケーキ(110°C乾燥)の化学分析値

(原液濃度=5.48g-U/l, 8.95g-Ca/l, 2.40g-F/l, pH=0.34)

AlCl ₃ 6H ₂ O 添加量 (g)	Al/F (モル比)	Y.C 重量 (g)	Y.C 中の元素濃度 (対U%)						
			U	Ca	F	Ti	V	Fe	Cl
0		3.263	39.4	35.6	33.1	0.10	0.20	1.90	1.22
1.25	0.163	3.000	43.6	17.0	39.2	0.04	0.07	1.49	1.12
2.49	0.322	2.153	58.6	6.8	11.6	0.05	0.10	1.58	1.08
4.98	0.644	1.925	68.1	0.68	0.61	0.13	0.26	2.68	1.02
7.47	0.969	1.950	70.3	0.01	0.04	0.13	0.25	2.66	0.98
12.45	1.630	2.155	59.2	0.10	0.02	0.12	0.23	2.41	1.24
CAMCO転換工場の Y.C 受入仕様		標準	65	3.0	0.10	0.05	0.10	1.0	0.1
		限界	65	4.0	0.15	0.10	0.50	2.0	0.2

表 2.3-3 H₂O₂/U のモル比及び最終 pH の違いによる
イエローケーク (110°C 乾燥) の化学分析値

(原液濃度 = 4.90 g-U/l, 7.14 g-Ca/l, 3.03 g-F/l, pH = 0.30)

H ₂ O ₂ /U (モル比)	初期 pH	最終 pH	Y.C 重量 (g)	Y.C 中の元素濃度 (対 U %)							
				U	Ca	F	Ti	V	Fe	Cl	
1.5	1.5	2.7	1.588	70.2	0.02	0.22	0.05	0.50	0.96	1.01	
1.5	1.5	3.0	1.669	74.6	0.03	0.21	0.12	0.78	1.98	0.70	
1.5	1.5	3.5	1.700	85.1	0.05	0.17	0.12	0.22	2.55	0.94	
3.0	1.5	2.7	1.693	69.2	0.03	0.16	0.03	0.26	0.47	0.57	
3.0	1.5	3.0	1.701	68.6	0.05	0.21	0.07	0.28	0.57	1.41	
3.0	1.5	3.5	1.755	78.4	0.05	0.22	0.11	0.22	2.41	1.20	
CAMECO 転換工場の Y.C 受入仕様				標準	65	3.0	0.10	0.05	0.10	1.0	0.1
				限界	65	4.0	0.15	0.10	0.50	2.0	0.2

表 2.3-4 過酸化水素によりウランを除去された後の廃水から
UR40H でバッチ吸着した液の主要元素の化学分析値

元 素	吸着前の廃水中の濃度 (ppm)	吸着後の廃水中の濃度 (ppm)
U	3.09	0.30
Ca	4260	4064
F	1563	1536
Na	20780	21160
T-α	1.06E-1 Bq/ml	8.58E-3 Bq/ml

表2.3-5 溶解試験に用いた殿物の化学分析値

(単位=mg/g-dry, 110°C乾燥)

No.	色	Ca	F	SO ₄ ²⁻	U
1	黄色	286.6	112.3	2.1	233.6
2	白色	314.9	87.9	349.2	1.1
3	白色	319.9	102.2	217.3	6.4
4	白色	264.3	9.7	476.0	0.5
5	黄色	438.1	80.8	4.5	49.0
6	黄色	413.4	247.0	20.7	4.6
7	黄色	171.2	67.6	21.8	232.4

表2.3-6 殿物を1N-HClで溶解した時の不溶解残渣量

単位 (mg)

殿物量 番号	塩化アルミニウム添加 (Al ₂ O ₃ のモル比は0.644)			塩化アルミニウム無添加		
	1g	2g	3g	1g	2g	3g
No. 2	5	258	841	26	—	—
No. 3	2	2	277	11	60	—
No. 4	1	359	1093	1	362	1129
No. 5	4	6	8	3	146	358
No. 6	6	26	63	148	529	—
No. 7	5	7	6	—	—	—

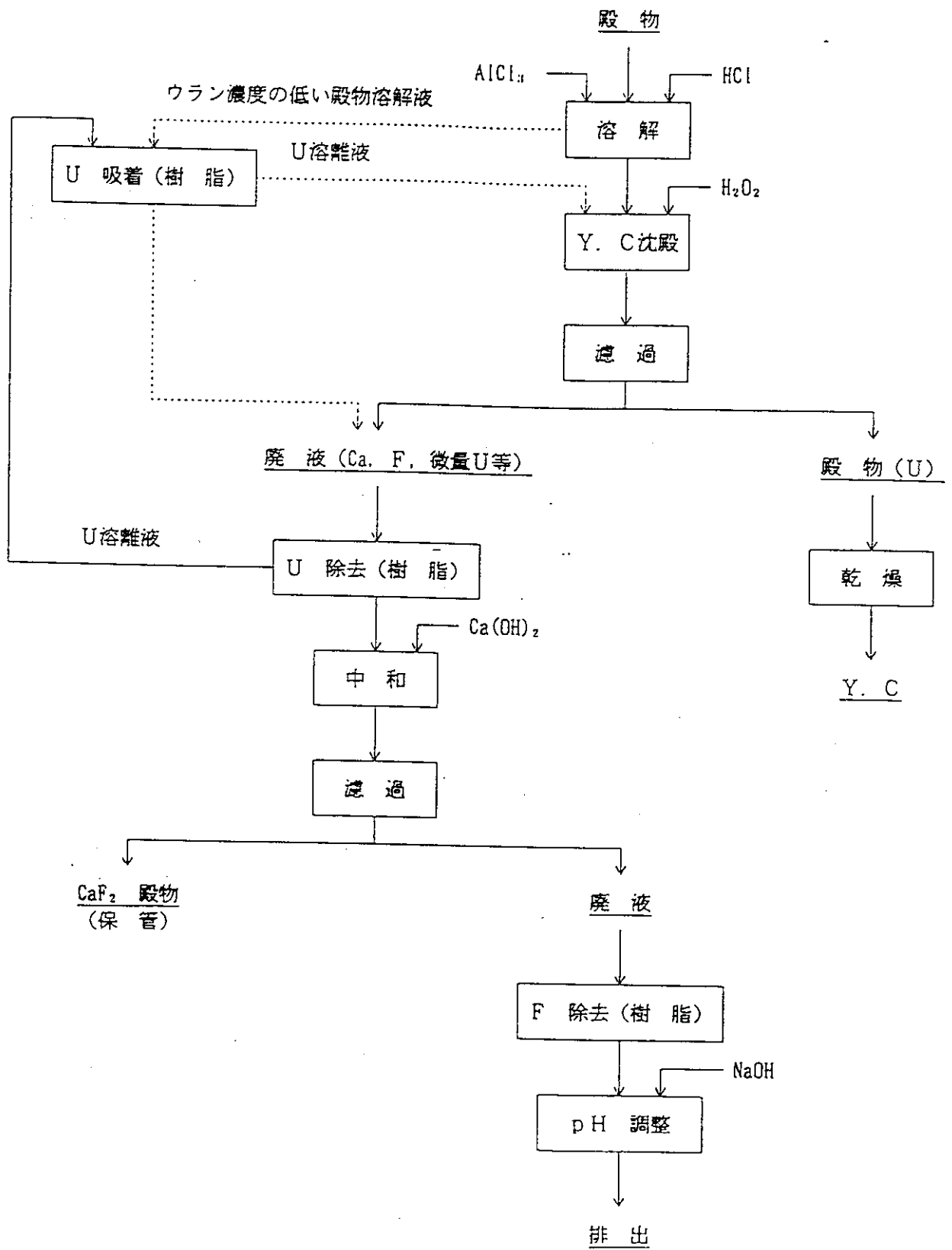


図 2.3-1 想定殿物処理プロセスの概要

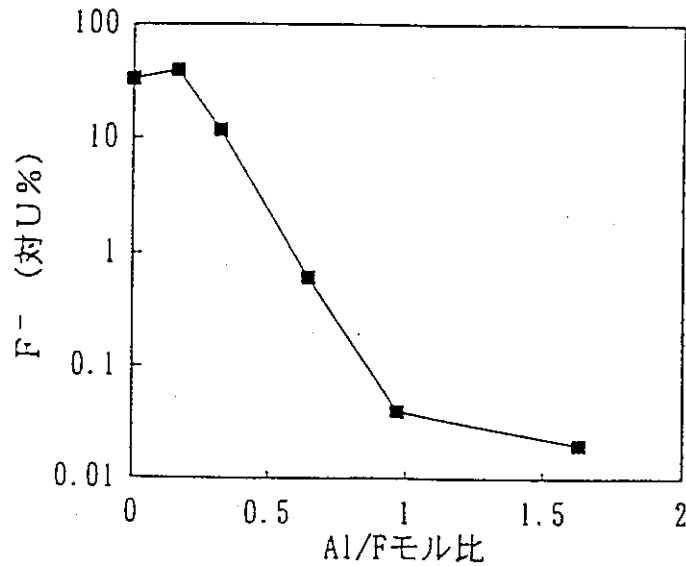


図2.3-2 塩化アルミニウムの添加量の違いによるイエローケーキ(110℃乾燥)中のF⁻濃度

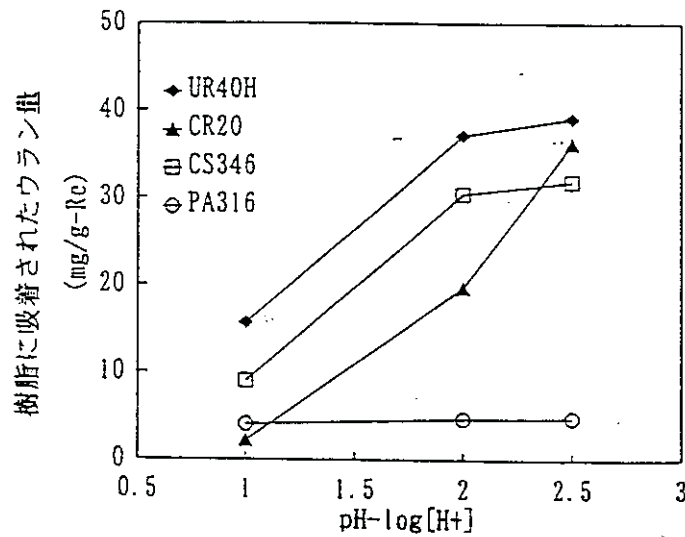


図2.3-3 殿物を塩酸で溶解した液からのウラン吸着量の水素イオン濃度への依存性

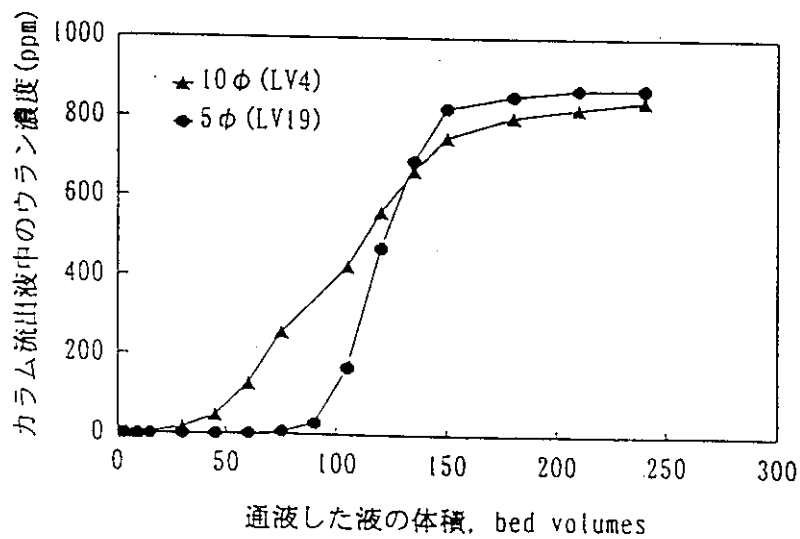


図2.3-4 殿物を塩酸で溶解した液をUR40Hカラムに通液した場合のウランの漏出曲線

2.4 原位置ガラス固化処理試験

環境資源開発課

2.4.1 はじめに

人形峠事業所構内の夜次鉍滓堆積場や露天採掘場跡地には、ヒープリーチング試験や製錬試験の結果発生した中和澱物や浸出残さ等の鉍滓が埋設されている。このような廃棄物を減容・安定化し恒久的な処置を図ることは、人形峠事業所での環境回復の観点で急務となっている。環境資源開発課では、恒久的処置の一つとして、米国等の放射性物質により汚染されたサイトの処置に適用されている原位置ガラス固化処理 (In-Situ Vitrification: ISV) 法の適用可能性についての評価を開始した。平成8年度では、ISV法の先進地事例調査と実際の人形峠の鉍滓を対象にしたISV法の適用性評価試験を実施した。

2.4.2 先進地事例調査

ISV法の適用可能性の検討を開始するにあたり、ウラン系廃棄物を対象にしたISV法の現状と応用例について先進地である米国における事例調査を実施した。

(1)調査内容

調査は、ISV法のライセンスを所有している米国Geosafe社にて聞き取りを主体に行った。主な調査項目は、ISV法の原理、適用範囲、除染率及び人形峠での適用の方向性等である。また、ガラス固化体の化学的特徴を把握するために、試験サイトで入手したガラス固化体の物性試験（主要化学組成、固相の化学種、顕微鏡観察）も実施した。

(2)主な調査結果

①ISV法の概要

ISV法は、多量の液体や固体の有害廃棄物により汚染された土壌やピットの様な施設等に直接電極を挿入し、ジュール熱を用いて高温熔融し、処置対象土壌を原位置でガラス固化・処置する方法である（図2.4-1）。高温（1,600～2,000℃）環境で熔融相に移動する重金属等はガラス中にその成分の一部として濃集・保持される。また、ガス化する有機物や水銀、ラドン等の成分は、熔融相から揮発・分離する。これらの揮発成分は、オフガスフードで集められ、オフガス処理系のヒータ、スクラバ及びフィルタにより無害化もしくは回収される。

ISV法によりガラス固化された処置対象土壌は、必要に応じて被覆材（粘土や土壌）で覆うことができ、さらにそこに植栽を施すことが可能である。ガラス固化体を建設用重機で破碎し、他の場所に移動することも可能である。

②適用範囲

ISV法の適用範囲を表2.4-1に示す。ISV法は、放射性物質や有機化学物質による地層汚染の修復法として、汚染物質及びサイト特性に対する許容範囲が広く、他の手法より優れているとされている（表2.4-2）。

③除染率

主な化学物質に対する除染率を表2.4-3に示す。おおむね重金属では、99.9%以上であり、Pu、Th及びUは99.99999%、²²⁶Raは99.9999%である。ただし、常温常圧で液体の水銀は熔融時の熱により揮発するため、>97%と他の重金属に比べて悪い。有機化合物は、ほ

とんどが分解（分解率98%以上）し、オフガス処理系で加熱分解され多くは二酸化炭素として放出される。硫酸ガスや塩素ガスはオフガス処理系で回収される。

④減容及び化学的安定性

処置対象土壌はガラス固化されることにより、有機物や水分が揮発し、また間隙率が小さくなることで減容化が図られる。

ガラス固化体の化学的安定性は、固体廃棄物の浸出試験法であるTCLP法（40 CFR 261）及びPCT法により地下水等への溶出の可能性を評価し、米国EPAの規制値（40 CFR 268）をクリアしている。また、間隙率が小さくなることで、Raの放射性崩壊により生成するラドンの様なガス成分の散逸が少なくなる。

⑤ISV法実施のフロー

ISV法は、1)現地調査に始まり、2)適用性評価試験、3)修復計画の策定、4)原位置ガラス固化の実施及び5)施工後の確認作業で終了する。特に、1)現地調査における処置対象土壌及びサイトの特性の調査と、2)適用性評価試験における重金属等の除去率、有害揮発性物質の回収率の把握が重要となる。

⑥ガラス固化体の物性試験

ガラス固化体の主要化学組成及び組織は、溶融試験に用いた土壌の化学組成と溶融温度条件を反映して、天然の黒曜岩と類似したものとなっている。また、試料の組織は、試料により若干の違いがみられ、残晶（土壌の融け残り）、晶子等の急冷相、反応縁、不均質なガラス相がみられる。この組織の違いは、処理対象土壌の化学組成、溶融時間、冷却時間等を反映しているものと考えられている。とくに、急冷相や不均質なガラスがみられる場合には、ISV法の適用に際して、処理対象土壌の種類や化学組成に合わせた溶融時間及び冷却方法・時間（空冷、水冷もしくは土壌による冷却）を検討する必要があることが分かった。また、気泡がみられる試料もあり、物理的な破壊に伴い割れ目が形成されることによる、ラドンの様なガス成分や可溶性成分の挙動を解析する必要があると考えられた。

⑦人形峠事業所内の鉍滓堆積場への適用案

実際に鉍滓堆積場にISV法を適用する上で考慮すべき項目として、次の各点が考えられる。

- 1)対象となる鉍滓の性状とその分布
- 2)放射性崩壊により発生するラドンガスの挙動
- 3)鉍滓堆積場に流入する地表水の遮蔽と鉍滓の脱水
- 4)鉍滓堆積場の整地及び区割り方法
- 5)ガラス溶融時の中和澱物（石膏）からの脱ガスの化学組成

2.4.3 適用性評価試験

鉍滓堆積場や露天採掘場に埋設している鉍滓や捨石には、中和澱物としての石膏や埋設時に混入した植物起源の有機物が含まれているものがある。ISV法の温度条件では、石膏は腐食性のガスを、そして有機物は塩素等と化合し揮発性有機化合物を発生させることが考えられる。この様なガス成分をはじめとする鉍滓等の物理化学特性は、ISV法の装置の設計や実施スケジュールの策定に必要なデータであることから、以下に示す実際の人形峠の鉍滓等を対象にした物理化学特

性測定及びISV法の熱環境を模擬した溶融・脱ガス室内試験を実施した。

(1)試験内容

①試料

試験に用いた試料は、鉍滓堆積場底質試料2件(No. B10及びNo. C10)及び露天採掘場跡地の土壌試料1件(H-1号孔)である(図2.4-2)。これらの試料には、石膏が含まれていると考えられるものを選んだ。

②鉍滓等の物理化学特性測定

各試料についての物理試験(密度、含水率及び粒度)及び化学試験(主要化学成分、強熱減量及び水溶性成分(陰イオン))を行った。

③鉍滓等の溶融・脱ガス試験

ISV法での熱条件下での化学特性を把握するために、熱分析装置にて1,600°Cで30分加熱・溶融し、生成したガス成分(揮発性有機化合物及び水溶性成分(陰イオン))を測定した。また、固化体の主要化学成分及び水溶性成分(陰イオン)の測定も行った。

(2)主な試験結果

①鉍滓等の物理化学特性測定

物理化学特性の測定結果を表2.4-4に示す。含水率は、No. B10, No. C10, H-1号孔の順にそれぞれ130.6, 128.8, 21.8wt%である。ISV法の適用の標準的な土壌の水分が75wt%であること(表2.4-1)から、ISV法を実施する際には事前に水分を除去する必要がある。

試料中の有機物、炭酸塩、硫酸塩、吸着水及び結晶水等の量を示す強熱減量は、No. B10, No. C10, H-1号孔の順にそれぞれ5.47, 5.25, 3.61wt%である。また、強熱減量の値と、主要化学成分の SO_3 濃度及び水溶性成分の SO_4^{2-} 濃度から、鉍滓堆積場からの試料には、比較的多くの有機物と硫黄成分が含まれていることが分かった。なお、同じ試料には、ウランが約0.1wt%含まれていた。

②鉍滓等の溶融・脱ガス試験

溶融・脱ガス試験の結果を表2.4-5に示す。加熱時に生成したガスから11種類の揮発性有機物が確認され、そのうち6種が危険物、2種が特定化学物質、1種が悪臭物質であった。また、硫黄を伴うガス成分は、化学種は特定できなかったものの、溶融残さの SO_3 濃度及び水溶性成分の SO_4^{2-} 濃度からその発生を確認した。また、試験装置が腐食したことから、腐食性ガスが発生することが確認された。以上の結果から、ISV法のオフガス処理系では、これらの有害な揮発性有機物や腐食性ガスの除去システムに関わる設計が必要であることが分かった。

2.4.4 今後の課題

今回の結果を踏まえ、ISV法を適用するには、対象となる鉍滓等の性状と分布状況を継続して把握するとともに、今後、オフガス処理系等のシステム設計や安全性の評価を含めて適用性の評価を行う必要がある。

所要電源規模：平均3.2MW，最大4MW
 （12.5または13.8kV，三相）
 電力消費量：700～1,000kWh（1t当たり）

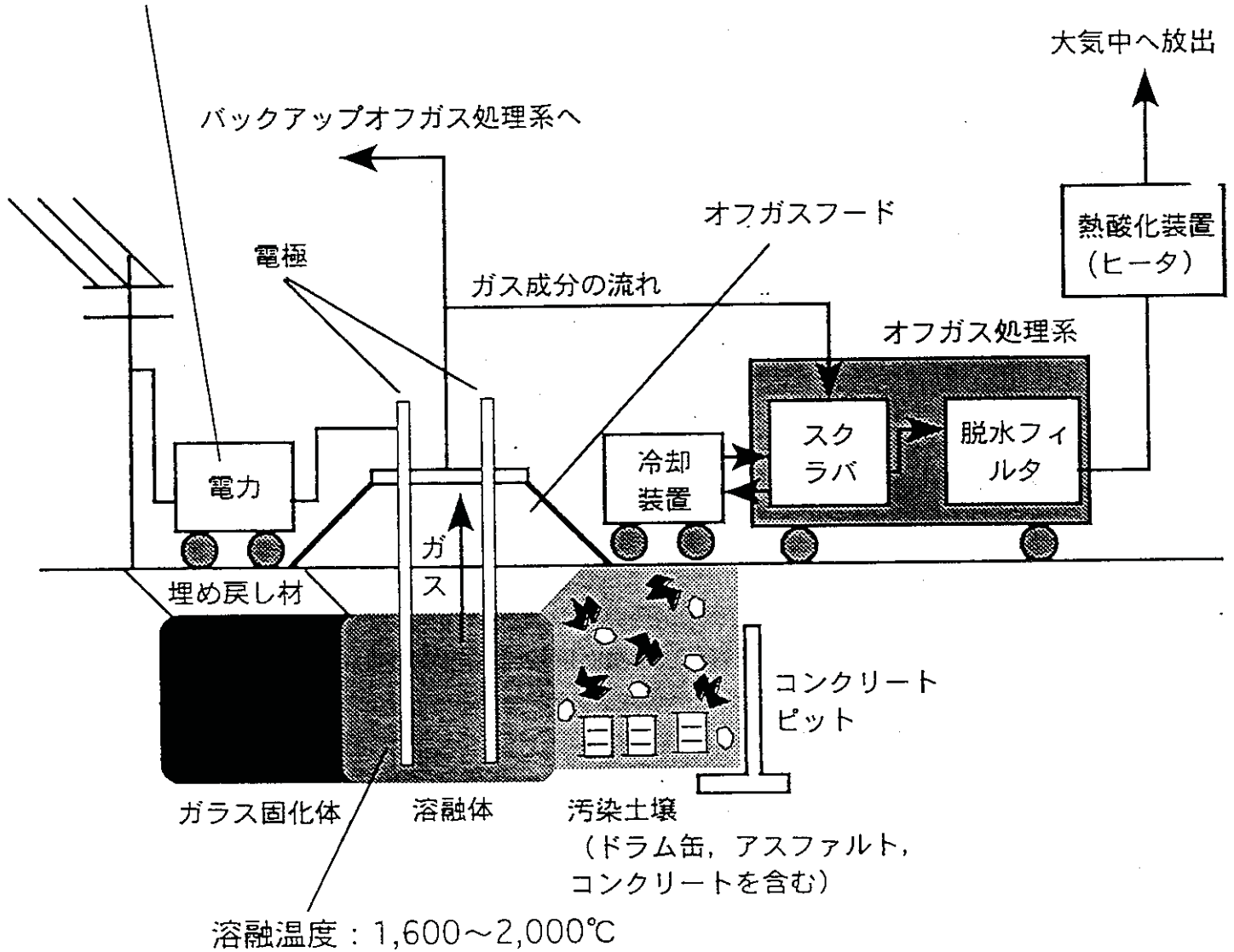


図2.4-1 ISV法の概要

図には，最も一般的なLarge Size Equipmentの構成を示している。

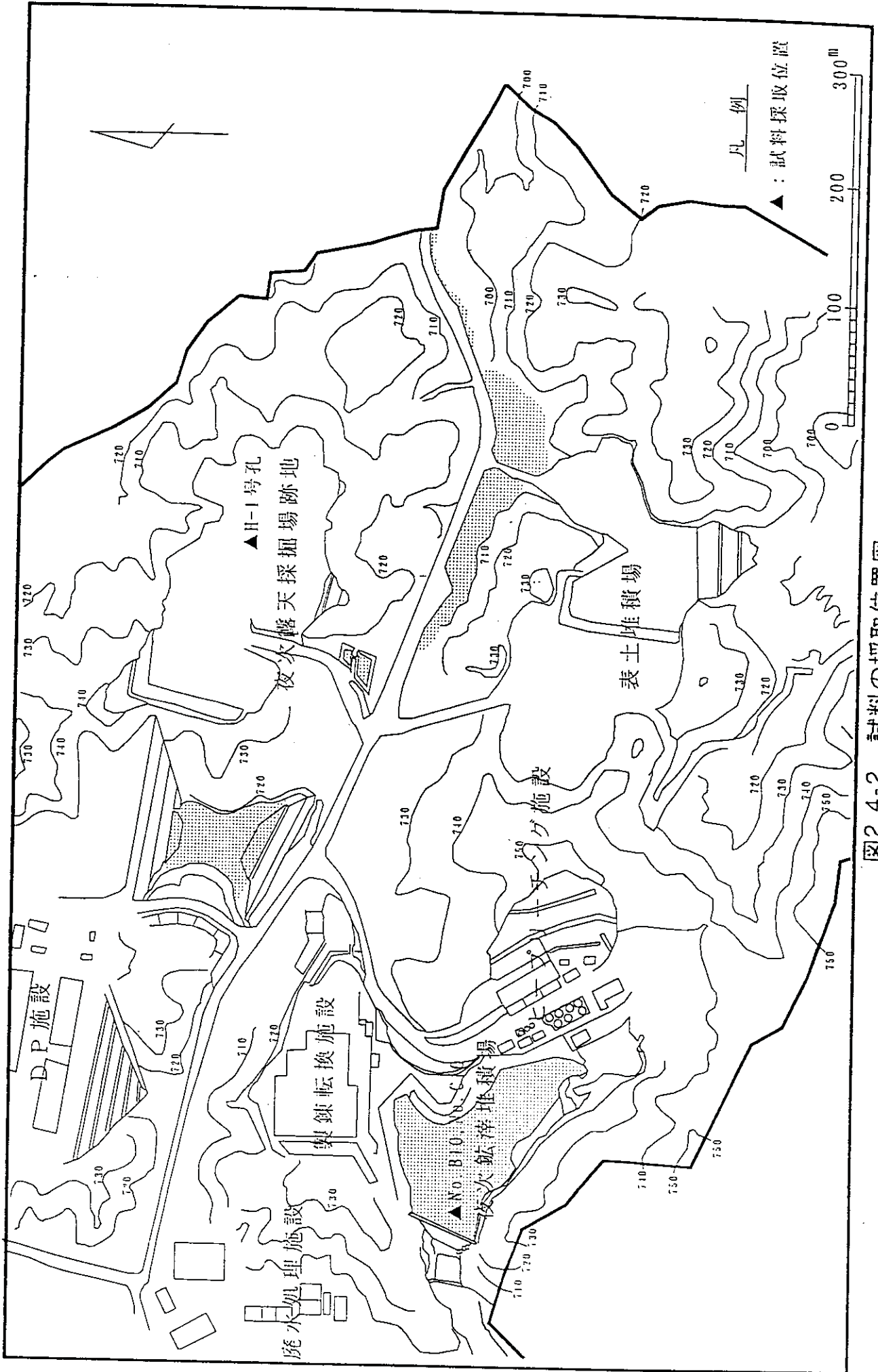


図2.4-2 試料の採取位置図

表2.4-1 ISV法の適用範囲

混合する土壌の組成	SiO ₂ +Al ₂ O ₃ >60~90wt%, Na ₂ O+K ₂ O>3wt%
金属	40wt%以下(一個の長さは電極間隔の90%以下)
瓦礫	20wt%以下(コンクリートがらでは100%の実績あり)
可燃性物質	15wt%以下(一個当たり容積は0.8m ³ 以下)
空隙	一個当たり容積は4.0m ³ 以下
水分	75wt%以下(周辺土壌の透水係数は10 ⁻⁴ cm/s以下)
放射性物質の種類	Pu, Ra, U, Cs, Co, Sr等
重金属の種類	Cr, Pb, Ni, Cd, As, Ba, Zn, Hg, Cu等
有機物(液体)の種類	PCB, ダイオキシン, トリクロロエタン, キシレン, トルエン, グリコール, メチルエチルケトン, フラン等
有機物(固体)の種類	DDT, DDD, DDE, アルドリン, ジェルドリン, クロルデン, 塩化ビニル, BHC等

表2.4-2 他の土壤汚染修復法との比較

対象物質	ISV法	低温脱着法	焼却法	溶媒抽出法	固化法	土壤洗浄法	微生物分解法
無機物							
放射性物質	○	■	■	■	●	●	■
揮発性物質	□	■	■	■	□	●	■
半揮発性物質	○	■	■	■	□	●	■
アスベスト	○	■	■	■	○	■	■
有機物							
揮発性物質	○	○	○	●	■	■	○
半揮発性物質	○	○	○	●	■	●	○
殺虫剤	○	●	○	●	●	●	○
PCB	○	●	○	●	●	●	●
ダイオキシン	○	■	●	●	●	●	●

○(優)>□(良好)>●(普通)>■(劣)

表2.4-3 主な汚染物質の除染率

無機物		保持率(%) ⁽¹⁾	除去率(%) ⁽²⁾	総合除染率(%) ⁽³⁾
放射性物質				
	Pu, Th, U	99.99	>99.9	99.99999
	²²⁶ Ra	99.9	>99.9	99.99999
	Cs	90~99.9	>99	99.99
	Co	90~99.9	>99	99.99
揮発性物質				
	Hg	0	97~99	>97
半揮発性物質				
	As	75~85	>99.9	99.98
	Cd	67~75	>99.9	99.96
	Pb	90~99	>99.9	99.99
不揮発性物質				
	Ba	99.9	>99.98	99.9999
	Cr	99.9	>99.9	99.9999
	Cu	90~99	>99.9	99.99
	Zn	90~99	>99.9	99.99
有機物		分解率(%) ⁽⁴⁾	除去率(%)	総合除染率(%)
揮発性物質				
	燃料油	>99	>99.9	99.999
	MEK	>99	>99.9	99.999
	トルエン	99.996	>99.9	99.99999
	トリクロロエタン	99.995	>99.9	99.99999
	キシレン	99.998	>99.9	99.99999
半揮発性物質				
	PCP	99.995	>99.9	99.99999
殺虫剤				
	DDD, DDE, DDT	99.9~99.99	>99.9	99.9999
	アルドリン	>97	>99.9	99.99
	クロルデン	99.95	>99.9	99.9999
	ジエルドリン	98~99.9	>99.9	99.99
	ヘプタクロル	98.7	>99.9	99.99
不揮発性物質				
	グリコール	>98	>99.9	99.99
	PCB	99.9~99.99	>99.9	99.9999
	ダイオキシン	99.9~99.99	>99.9	99.9999
	フラン	99.9~99.99	>99.9	99.9999

(1): ガラス固化体中の濃度/処置対象土壌中の濃度 × 100

(2): オフガス処理系で回収される濃度/溶融体からのオフガス中の濃度 × 100

(3): 保持率(分解率) + (1 - (保持率または分解率)/100) × 除去率

(4): 溶融熱により分解される濃度/処置対象土壌中の濃度 × 100

表2.4-4 鉱滓等の物理化学特性測定結果

項目	単位	鉱滓堆積場		露天採掘場跡地	石膏
		No.B10	No.C10	H-1号孔	
密度(平均値)	g/cm ³	2.75	2.71	2.62	
含水率(平均値)	wt%	130.6	128.8	21.8	110.6
主要化学成分					
SiO ₂	wt%	52.0	54.9	71.6	0.025
TiO ₂	wt%	0.47	0.55	0.44	
ZrO ₂	wt%	0.02	0.023	0.02	
Al ₂ O ₃	wt%	15.4	16.7	15.6	
Fe ₂ O ₃	wt%	5.83	5.60	3.20	0.019
MnO	wt%	0.20	0.16	0.073	0.006
MgO	wt%	0.67	0.72	0.37	0.022
CaO	wt%	8.17	6.35	0.24	38.1
CuO	wt%	0.006	0.008	0.005	
ZnO	wt%	0.002	0.019	0.01	0.005
BaO	wt%	0.041	0.044	0.041	
SrO	wt%	0.021	0.023	0.012	0.012
Na ₂ O	wt%	2.12	2.43	2.52	
K ₂ O	wt%	2.99	2.22	2.10	
P ₂ O ₅	wt%	0.30	0.26	0.33	
V ₂ O ₅	wt%	0.008	0.01	0.006	
SO ₃	wt%	9.17	6.42	0.17	55.2
U	wt%	0.10	0.09	<0.01	<0.01
total	wt%	97.5	96.5	96.7	93.4
強熱減量	wt%	5.47	5.25	3.61	
水溶性成分					
F ⁻	mg/kg	2	<2	3	<2
Cl ⁻	mg/kg	620	210	28	<10
NO ₂ ⁻	mg/kg	<10	<10	<10	<10
NO ₃ ⁻	mg/kg	<10	<10	<10	<10
Br ⁻	mg/kg	<10	<10	<10	<10
PO ₄ ³⁻	mg/kg	<20	<20	<20	<20
SO ₄ ²⁻	mg/kg	75,000	60,300	330	165,000

表2.4-5 鉍滓等の溶融・脱ガス試験結果

項目	単位	鉍滓堆積場		露天採掘場跡地	石膏
		No.B10	No.C10	H-1号孔	
500°C加熱時の脱ガス組成					
アセトアルデヒド ⁽¹⁾	ng/g ⁽⁴⁾	>10	37	28	60
2-メチル-1-プロペン	ng/g ⁽⁴⁾	75	44	>10	>10
エチルアルコール ⁽²⁾	ng/g ⁽⁴⁾	>10	44	42	83
アセトニトリル ⁽²⁾	ng/g ⁽⁴⁾	>10	47	34	>10
2-プロパノン ⁽²⁾	ng/g ⁽⁴⁾	460	230	370	2,400
アクリロニトリル ⁽³⁾	ng/g ⁽⁴⁾	110	50	17	250
n-ヘキサン ⁽²⁾	ng/g ⁽⁴⁾	17	28	13	16
ベンゼン ⁽³⁾	ng/g ⁽⁴⁾	580	180	27	83
チオフェン	ng/g ⁽⁴⁾	120	51	>10	>10
n-ヘプタン ⁽²⁾	ng/g ⁽⁴⁾	27	24	>10	>10
トルエン ⁽²⁾	ng/g ⁽⁴⁾	46	50	34	55
1600°C加熱時の脱ガス中の水溶性成分					
F ⁻	μg/g ⁽⁴⁾	>0.5	>0.5	>0.5	>0.5
Cl ⁻	μg/g ⁽⁴⁾	1.9	10	1.3	4.3
Br ⁻	μg/g ⁽⁴⁾	>1	>1	>1	9.8
PO ₄ ³⁻	μg/g ⁽⁴⁾	>2	>2	>2	>2
SO ₄ ²⁻	μg/g ⁽⁴⁾	3,300	13,000	1,800	79,000
溶融残さの主要化学成分					
SiO ₂	wt%	57.9	55.5	75.7	
TiO ₂	wt%	0.59	0.63	0.37	
ZrO ₂	wt%	0.041	0.039	0.032	
Al ₂ O ₃	wt%	20.2	19.9	14.5	
Fe ₂ O ₃	wt%	7.08	7.49	3.11	0.51
MnO	wt%	0.17	0.20	0.069	
MgO	wt%	0.88	0.76	0.25	0.67
CaO	wt%	8.07	10.4	0.35	96.4
CuO	wt%	0.006	0.004	0.001	
ZnO	wt%	0.017	0.019	0.006	
BaO	wt%	0.049	0.05	0.050	
SrO	wt%	0.022	0.028	0.012	0.009
Na ₂ O	wt%	2.47	2.40	2.48	
K ₂ O	wt%	2.32	2.15	3.02	
P ₂ O ₅	wt%	0.28	0.34	0.14	
V ₂ O ₅	wt%	0.007	0.011	0.007	
SO ₃	wt%	0.22	0.19	0.05	2.40
U	wt%	0.15	0.10	<0.01	
total	wt%	100.5	100.2	100.1	100.0
溶融残さの水溶性成分					
F ⁻	μg/g	2	3	18	
Cl ⁻	μg/g	5	3	6	
Br ⁻	μg/g	<5	<5	<5	
PO ₄ ³⁻	μg/g	<10	<10	<10	
SO ₄ ²⁻	μg/g	42	84	56	

(1): 悪臭物質
 (2): 危険物
 (3): 特定化学物質
 (4): 試料1g当たりの発生量

2.5 水-岩石-バクテリア反応試験

環境資源開発課

2.5.1 はじめに

地下深部は、低栄養かつ低～無酸素状態であるにも係わらず、様々な微生物が生息可能なことが、年々明らかになってきている。人間が掘削した坑道等の地下空間では、微生物マットとして微生物の活動が簡単に確認できる場もある（例えばPedersen and Karlsson, 1995）。このような坑道周辺のバクテリアの活動による水質変化と酸化還元電位（Eh）への影響を明らかにすることを目的として、鉄酸化細菌による水質への影響についての室内実験を平成7年度から実施している。平成8、9年度では、平成7年度に引き続き、以下に示す鉄酸化細菌に係わる室内試験を実施した。

2.5.2 実施内容

酸性坑内水中に確認されている鉄酸化細菌である *Thiobacillus ferrooxidans*（以下 *T. ferrooxidans* とする）は、酸性溶液中では Fe^{3+} や SO_4^{2-} を鉱物相から浸出し、液相中の Fe^{3+}/Fe^{2+} 比及び Eh を高くすることが昨年度の室内実験から確認できた。一方、中性～アルカリ性の地下水でも *T. ferrooxidans* 等の鉄酸化細菌が確認されている（Toran, 1987など）。このバクテリア活動により中性～アルカリ性の地下水でも同様のプロセスが起き、地下水の水質や Eh の変化にも影響を及ぼすことが想定される。これらのプロセスを実験的に把握するために、試料として黄鉄鉱及び地下水等を用いた不活性雰囲気下でのバクテリア-岩石反応試験を行った。

鉱物試料：黄鉄鉱（柵原鉱山産）をアクリル樹脂で包埋、接液部を研磨した。

バクテリア：*T. ferrooxidans*、鉄酸化細菌標準株を用いた。

雰囲気：窒素（99.99%）を用いた。

条件1：鉱物試料＋地下水（pH11, Na-HCO₃型）＋バクテリア

条件2：鉱物試料＋模擬地下水（pH9, Ca-HCO₃型）＋バクテリア

条件3：鉱物試料＋地下水＋鉄酸化細菌用培地＋バクテリア

条件4：鉱物試料＋模擬地下水＋鉄酸化細菌用培地＋バクテリア

条件5：鉱物試料＋鉄酸化細菌用培地＋バクテリア

実験開始時の液相の菌体濃度は 1.32×10^6 cells/ml、温度は25℃である。所定時間後溶液を分取し、菌体濃度（直接計数法）、全Fe及び Fe^{2+} 濃度の測定（吸光度分析）及び鉱物試料の表面観察（走査電子顕微鏡）を行った。

2.5.3 主な成果

(1) 菌体濃度測定結果

条件1及び2の液相の菌体濃度とその経時変化に大きな差は認められず、菌体濃度は実験開始後から徐々に減少し、14日以降は 2×10^5 cells/ml でほぼ一定になる（図2.5-1）。この変化は、吸着平衡に達した後、バクテリアが顕著に増殖しないことを示していると考えられる。

(2)全Fe濃度及びFe²⁺濃度測定結果

液相の全Fe濃度は条件1～5ともほぼ類似した経時変化を示し、約3日で約0.8～1 ppmまで増加した後、5日以降ほぼ一定の値に減少する(図2.5-2)。液相のFe²⁺濃度は全ての条件で類似した経時変化をし、14日後では0.0～0.2 ppmとなった(図2.5-3)。一方、液相のEhに影響を与えると考えられるFe³⁺/Fe²⁺比は、酸化条件での実験結果と比較して0.0～1.0と低く、不活性雰囲気下でのバクテリア活動による黄鉄鉱のFeの浸出が低いことから、Fe²⁺からFe³⁺への酸化が活発でないことが分かった。

(3)鉱物試料の表面観察

条件1～5では表面にFeからなる被膜がみられる。また、条件1及び2ではこの被膜上にバクテリアの外形が残されている。このことから、黄鉄鉱表面からFe及びSO₄²⁻が浸出された後に、Eh、pH条件によりFeOOH等が沈殿するとともにバクテリアが黄鉄鉱から隔離され、バクテリア活動が不活発になったものと考えられる(図2.5-4)。

(4)バクテリアの活動による水質変化に関する考察

今回の実験より、Toran (1987)などの報告と矛盾しない、中性～弱アルカリ性の液相でも*T. ferrooxidans*が生存することが認められた。中性～弱アルカリ性の液相中で、バクテリアの活動による黄鉄鉱の酸化とFe³⁺濃度の増加が抑制されることは、中性～弱アルカリ性の地下水中でバクテリア活動が酸性地下水のものに比べて低いことを表しており、地下水の水質やEhの変化への影響は少ないといえる。

2.5.4 今後の予定

バクテリアの活動が、鉄鉱物や硫酸塩鉱物の沈殿、地下水水質の変化及びEhに与える影響を把握するために、硫酸還元菌を用いた室内実験を行う。

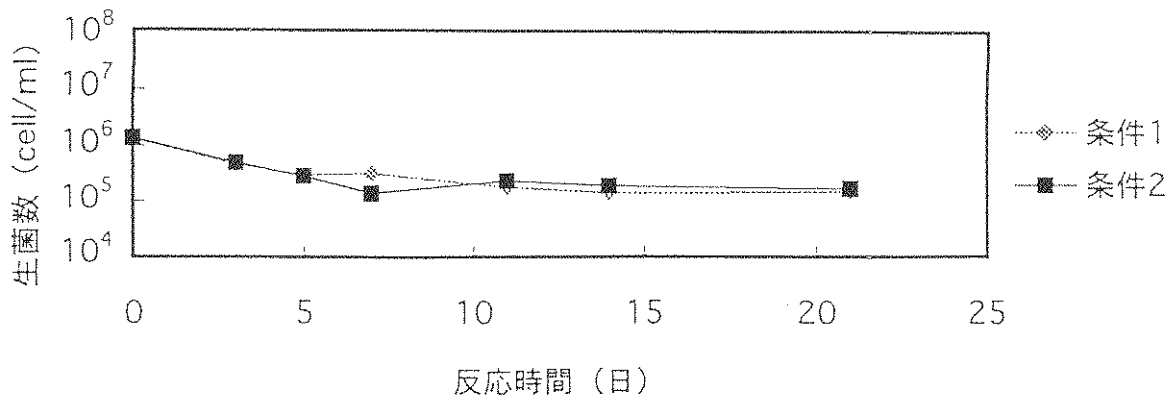


図2.5-1 菌体濃度の経時変化

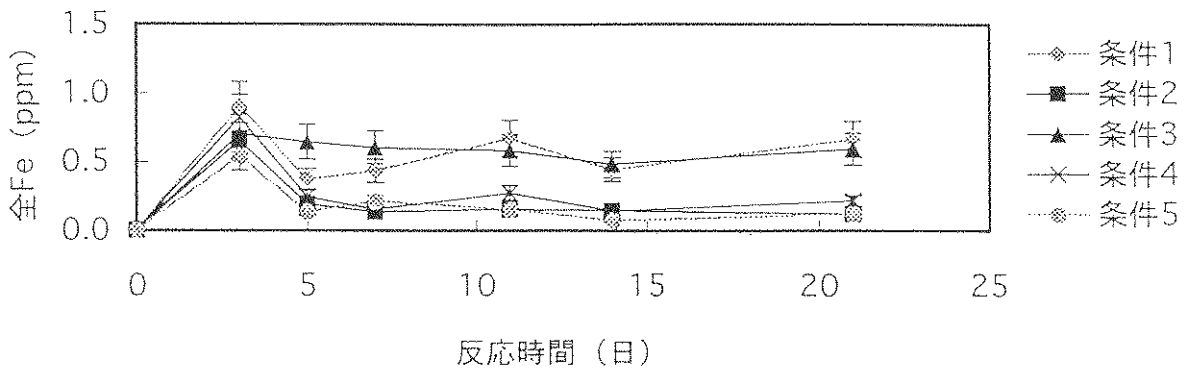


図5.5-2 全Fe濃度の経時変化

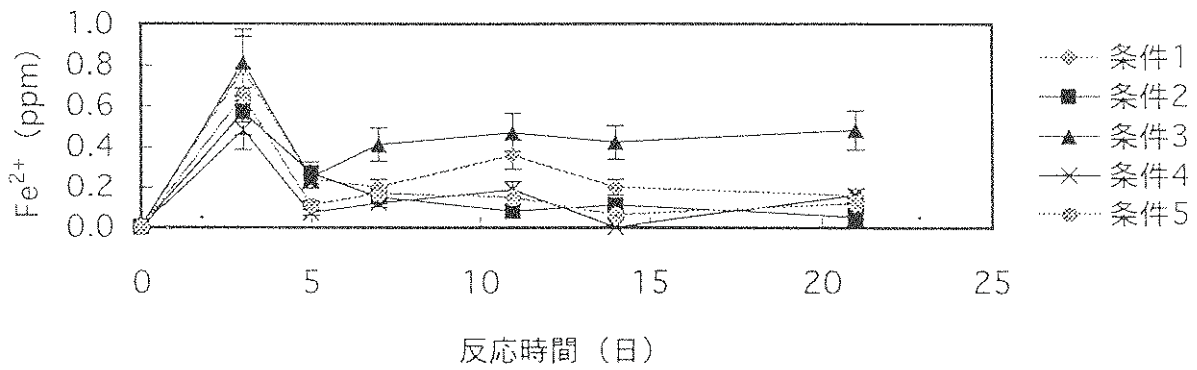


図2.5-3 Fe²⁺濃度の経時変化

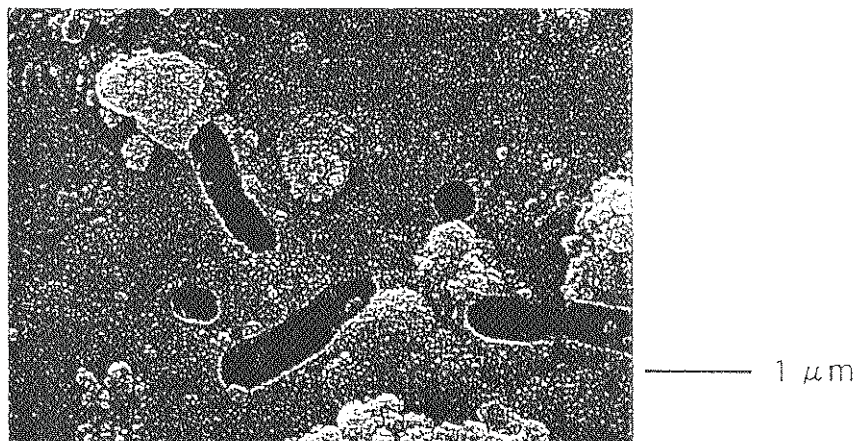


図2.5-4 実験後の黄鉄鉱表面の電子顕微鏡写真 (条件2)

2.6 平成8年度委託研究

環境資源開発課

2.6.1 はじめに

環境資源開発課では、人形峠事業所及びその周辺の鉱山等の捨石堆積場から発生するラドンについて、土壌中（地層中）や地下水中で挙動を把握することは極めて重要な課題となっている。特に夜次露天採掘場跡地の捨石の長期にわたる安全性を評価するためには、ウラン廃滓の堆積層部分の水理地質構造や地層中におけるウランの挙動を明らかにすることと、さらに土壌及び地下水への微生物の影響について検討する必要がある。

このため、捨石堆積場における土壌中のラドン挙動などをテーマとして研究を進めているが、ここでは、その内平成8年度に実施した5件について報告する。尚、この5件については大学への委託研究として実施した。

2.6.2 研究項目の概要

(1)土壌中のラドンの挙動の理論的な解析に関する研究

例えば、方面捨石堆積場でのラドンの大気放出を長期予測するために必要とされる土壌中のラドン移動解析スキームについて、土壌圏のガス移動理論に基づいて検討を実施した。

(2)土壌中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究

ラドンの拡散係数測定装置を製作するにあたり、文献による情報収集を行い、その後製作した装置を用いて、土壌の物理パラメータをいろいろ変えて、そのときの状態での土壌中のラドンの拡散係数を求める実験を行った。実験では、乾燥土壌サンプルを用いてラドンの拡散についての基礎実験と密封容器内でのラドン濃度測定を行うとともに、ラドンの拡散係数の評価を実施した。

(3)地下水中の原位置ラドン測定手法に関する研究

地下水中のラドンの挙動を解析するために、地下水中の原位置ラドン測定装置の開発とその実用性を確認するための連続観測を夜次露天採掘場跡のモニタリング試錐孔のうちの2ヵ所を利用して実施した（図2.6-1 参照）。また、装置製作の際に重要となる検出器は、①AC電源等の設備の整っていない屋外で測定ができる、②一ヵ月以上の長期間にわたって自動車鉛蓄電池を使って連続測定ができる、③持ち運びが容易にでき、口径65mmの井戸に投入可能となるようにした。さらに測定データを読み込めるようにデータローガ方式を基本として研究を実施した。

(4)カラム内土壌中のウラン移行試験と評価コード(Dtransu)による解析

地盤の地下水での汚染物質の移流・拡散現象を把握するのに必要な分散パラメータを同定するため、飽和不飽和浸透流-移流・拡散プログラム「Dtransu2D-BL」とともにLevenberg-Marquardt Methodによる最適化手法を用いた逆解析手法を開発し、その妥当性について検証を実施した。

(5)微生物活動の土壌・地下水への影響評価に関する研究

夜次露天採掘場跡H-1 試錐孔の土壌サンプルに対して鉄酸化細菌、硫黄酸化細菌、硫酸還元菌の存在を検討するとともに、鉄酸化細菌数評価に関する基礎的研究を実施した。

2.6.3 研究成果

(1)土壌中のラドンの挙動の理論的な解析に関する研究

本研究では、解析を実施するにあたり、以下のように構成した。土壌中のラドンの移動形態として不飽和状態にある水中の溶解移動と通気間隙内のガス移動を考える。さらに通気間隙ガス移動の経路はマトリクス間隙とマクロ間隙に分割する。不飽和水中の溶解移動は溶解ラドンが通気間隙内ガスと溶解平衡が成立しているものと見なし、マトリクス間隙に成立する水移動と連成した拡散・移流型の溶質移動として扱う。通気間隙内ガス移動は、マトリクス間隙とマクロ間隙の各々に移流・拡散フラックスを適用し、両間隙の相関関係は一次近似の拡散移動を設定した。土壌圏におけるラドンの発生・崩壊は、超長期にわたる発生源と大気放出の挙動予測を想定し、 ^{238}U あるいは ^{232}Th からの崩壊系列の基づいて固相、液相、気相の各々の相内で設定し、相間の交換輸送を濃度依存の形で考慮している（土壌中のガス挙動の概念図を図2.6-2に示す）。

(2)土壌中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究

- ① 本研究では、これまでにどのような装置を用いて実験が行われてきたかを海外等の文献調査した。その結果、通常、拡散係数を求める実験は容器内のラドン濃度が平衡になる3週間程度待たなければならないため、土壌水分量をパラメータとして変化させ、測定期間中に一定に保つ必要があり、本研究の土壌中のラドンの拡散係数を求める測定系としては、図2.6-3に示す系が一番適している。
- ② ラドン濃度測定法について検討した結果、検出効率が湿度依存にあまり依存しなく、比較的感度が良く、保守が簡単なZnS(Ag)シンチレーション・セルが適している。
- ③ 土壌試料やラドン発生源等を内蔵する中央の容器と試料プレート部分からシンチレーション・セル内蔵部分までをステンレスで製作し、残りの部分を軽量化のためアルミニウムで製作した（装置の概略図を図2.6-4に示す）。
- ④ 製作した装置を用いて、密封系内でのラドン濃度の測定と乾燥土壌試料を用いた拡散実験を行った。その結果、簡単な解析から土壌中のラドンの拡散係数として $D=1.04 \times 10^{-7} \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ を求めることができた。今回測定した係数は、土壌中のラドンの拡散係数として期待される $2 \times 10^{-9} \sim 7 \times 10^{-6} \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ の範囲に含まれており、十分に土壌中の拡散係数を測定できることを示している。

(3)地下水中原位置ラドン測定手法に関する研究

- ① 検出器は特に深井戸内の地下水中に長期間沈めることから水圧による膜の損傷と水漏れが起こる可能性がある。そのために、焼結金属フィルタのサポート板を用いて補強した（小型水中ラドン検出器の概略図を図2.6-5に示す）。
- ② 製作した2台の小型水中ラドン検出器を予め、岐阜大学の水道水中に沈めて、水中のラドン濃度を測定した結果、 α 線による2つのピークが見られ、これは水中の ^{222}Rn を観測

していることを確認できた。その後、水中のラドン濃度を求めるために、ラドンデータローガから得られる ^{222}Rn の娘核種による α 線のカウント数と液体シンチレーション法により求めたラドン濃度からラドン濃度校正係数を求めた。液体シンチレーション法による結果、採取した岐阜大学の水道水中のラドン濃度 Q は、 $Q=9.30\pm 0.26(\text{Bq/l})$ であり、さらに水温等を考慮した上でラドン濃度校正係数 f を求める、 $f_1=C_1/Q=14.7\pm 1.3[(\text{RaC}'/\text{h})/(\text{Bq/l})]$ （検出器1-焼結金属板使用）、 $f_2=C_2/Q=3.6\pm 0.8[(\text{RaC}'/\text{h})/(\text{Bq/l})]$ （検出器2-穴あき板使用）となった。

③ 岐阜大学で試験した2台に夜次露天採掘場跡地周辺のNo.17No.18号孔のモニタリング孔の水深約1mに沈めて水中ラドン濃度についての観測を行った。その結果、平成8年12月17日から平成9年3月31日の観測期間では冠雪と雪解けによる水中ラドン濃度の変動が顕著である。No.18号孔では水中ラドン濃度は約10倍の50(Bq/l)に急激に増加し、No.17号孔では水中ラドン濃度は約10分の1の0.06(Bq/l)に大きく減少した（図2.6-6参照）。

④ 平成9年4月1日から平成9年7月21日の観測期間では水中ラドン濃度は ^{222}Rn の崩壊曲線に従って減衰する時期と、降雨によって急に増加する時期が繰り返し観測された。

No.18号孔では、降雨による水中ラドン濃度のはっきりした増加が観測され、そのうち、平成9年6月28日と7月8日の降雨において、日雨量によるラドン濃度増加率を求めると、約15[(Bq/m³)/mm]と測定結果となった。

(4)カラム内土壤中のウラン移行試験と評価コード(Dtransu)による解析

① 密度依存を考慮した飽和不飽和浸透流における基礎理論、移流・拡散の基礎方程式及びEulerian-Lagrangian Numerical Methodの概説を示した。

② 最適化手法として用いたLevenberg-Marquardt Methodにおけるアルゴリズムを示した。

③ Bruch(1970)による室内実験の濃度の非定常データを用いて分散パラメータを同定し、破過曲線の一致により本解析手法の妥当性が検証された。

④ 本解析手法の検証として数値モデルから得られた観測値を用い、分散パラメータの同定を行った。その際、分散パラメータの観測点(数、位置)が同定結果に及ぼす影響について検討した。以上により、本解析手法は繰り返し計算を必要とし、計算時間は長くなるが有効な解析手法であることが検証された。

(5)微生物活動の土壌・地下水への影響評価に関する研究

① 土壌1g中に存在する菌数を推定するための実験を行った結果、鉄酸化細菌特有の微生物反応は、二価鉄酸化反応である。鉄酸化細菌が単離された土壌サンプルすべてに対して二価鉄依存性の酸素吸収活性が確認された。二価鉄依存性の酸素吸収量(鉄酸化活性)菌体数を求め、こうして得た検量線から供試土壌1gに存在する鉄酸化細菌の菌数を推定した(表2.6-1参照)。

② 地表10cmまでの表土に最も多数の鉄酸化細菌が存在していた(17.2×10^6 個/g土壌)一方、地表10cmから90cmに存在する鉄酸化細菌の数はほぼ一定の約 7×10^6 個/gであった。地表180cmより深くなると鉄酸化細菌数は減少し、270cm以下になると 10^6 個/g以下になった。

- ③ 地上から20cmの深さの土壌に存在している鉄酸化細菌は本土壌に強く結合し、酸性緩衝液で振とう処理する程度では溶離されないことが明らかになった。この結果は、土壌中の菌数を評価する方法として従来用いられてきた平板培地を用いてのコロニー計測法が使えないことを示している。

2.6.4 今後の課題

(1)土壌中のラドンの挙動の理論的な解析に関する研究

今後は、諸係数を検索し、数値表示による解析スキームの有効性の検証が必要となる。

(2)土壌中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究

容器内の土壌中でのラドンの挙動を知るためには、土壌の高さ、表面積、密度、空隙率、土壌中のラジウム濃度といった物理パラメータが必要となる。その他に、ここでの解析では含めなかった土壌の含水率も土壌中のラドンの拡散現象に大きな影響を与える。さらに温度、湿度、気圧といった気象条件も問題となることが考えられる。

(3)地下水中の原位置ラドン測定手法に関する研究

- ① 将来的には本装置を夜次露天採掘場地の既設の試錐孔に設置し、本格的な水中ラドン挙動解析と地下水挙動解析を目的とした連続観測を実施することが望まれる。
- ② 水中ラドン検出器の検出効率の水温依存性について、より広い水温範囲で精密な校正実験を実施することが必要である。
- ③ モニタリング孔には水中ラドン検出器と同時に、水温計や水位計を設置し、水温や水位のデータを取得することも水中ラドン挙動解析する上で重要パラメータとなるので、是非とも必要となる。

(4)カラム内土壌中のウラン移行試験と評価コード(Dtransu)による解析

- ① 本解析手法は間接法により逆解析を行っているため、多くの繰り返し回数を要し、計算に膨大な時間を費やしてしまうことが考えられる。
- ② 分散パラメータを同定する際に必要となる感度のよい観測データを得るためにどのような観測点を設置するのか、あるいは、原位置におけるデータの集積が必要である。

(5)微生物活動の土壌・地下水への影響評価に関する研究

本研究で示した方法は、土壌中の鉄酸化細菌の菌数を推定する方法としては比較的優れたものである。今後、本方法の適正性を評価するためには、さらに多数の土壌サンプルに対して本法を検討していく必要がある。

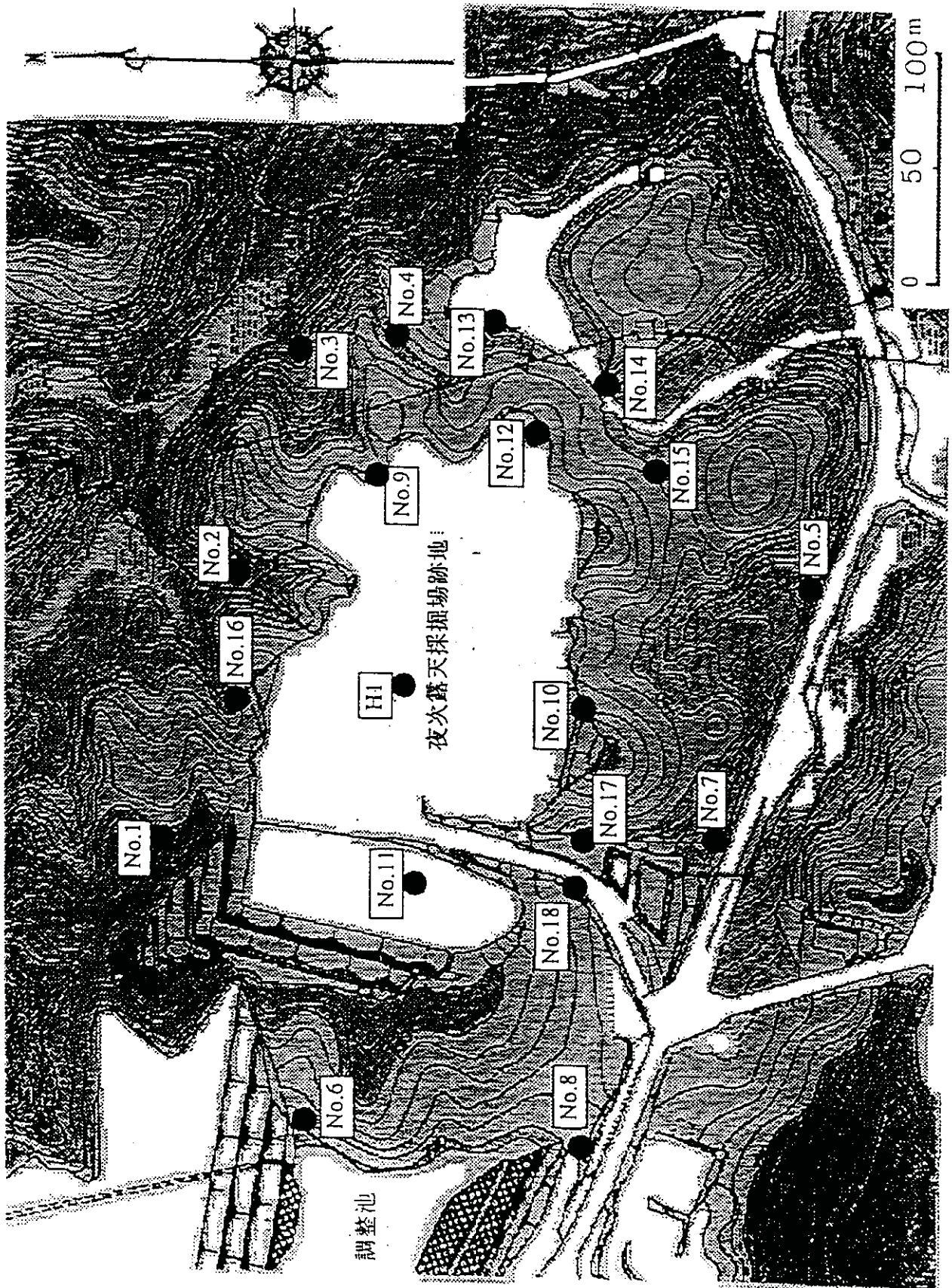
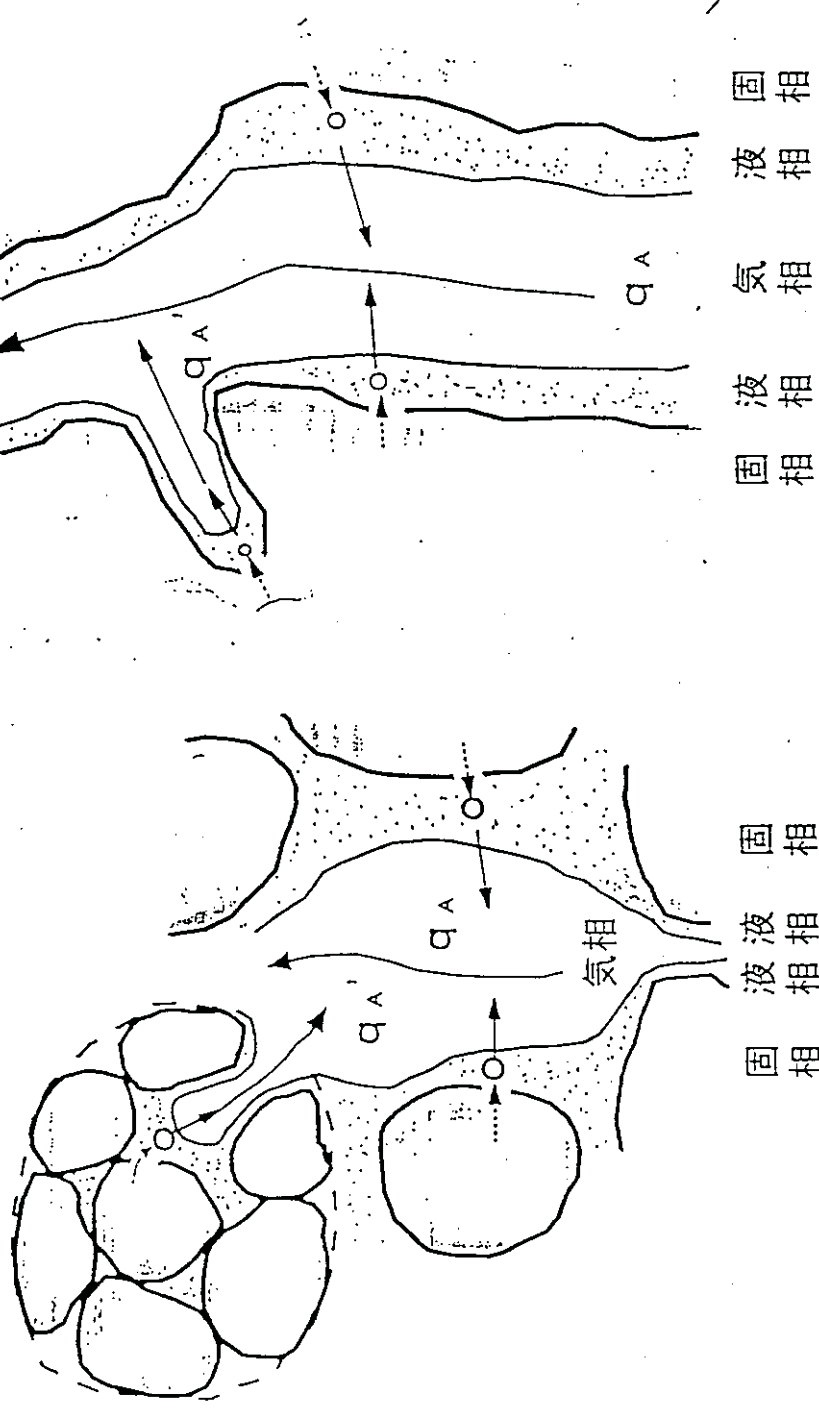


図2. 6-1 夜次露天採掘場跡地モニタリング孔配置図
 (平成8年度モニタリング孔 No.17とNo.18)



(a) 粒子・団粒間隙 (b) クラック・パイプ状間隙

図2.6-2 土壌中のガス挙動の概念図

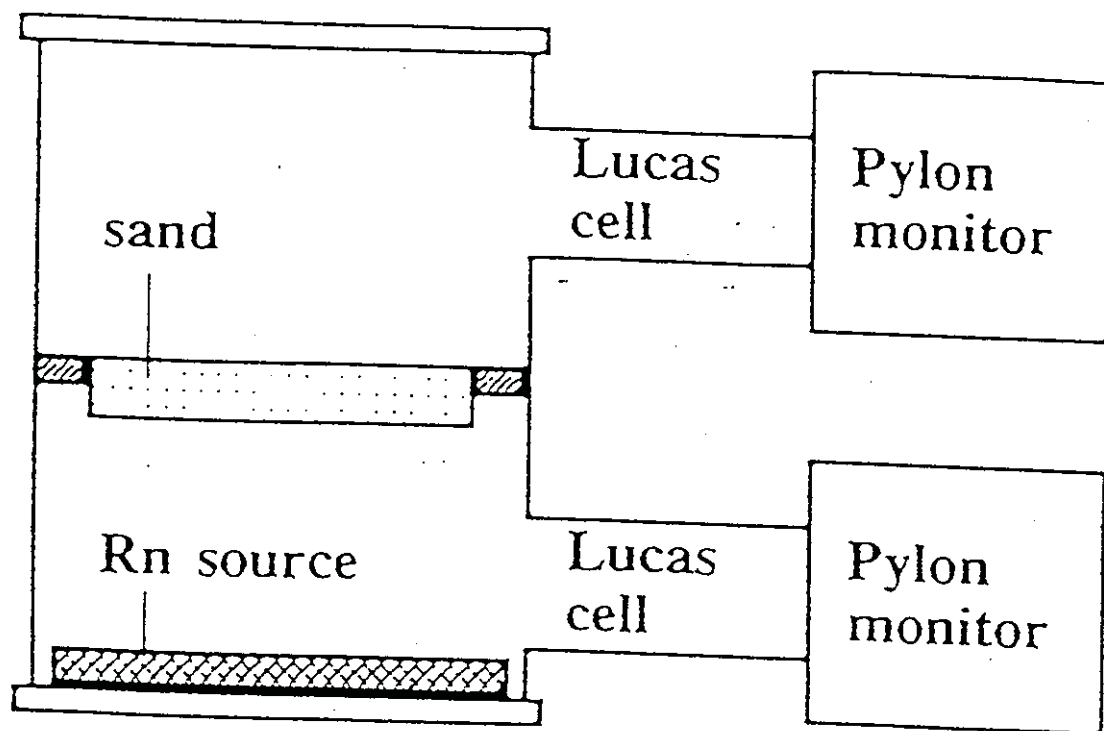


図2.6-3 オランダのde Meijerらのラドンの拡散係数測定装置

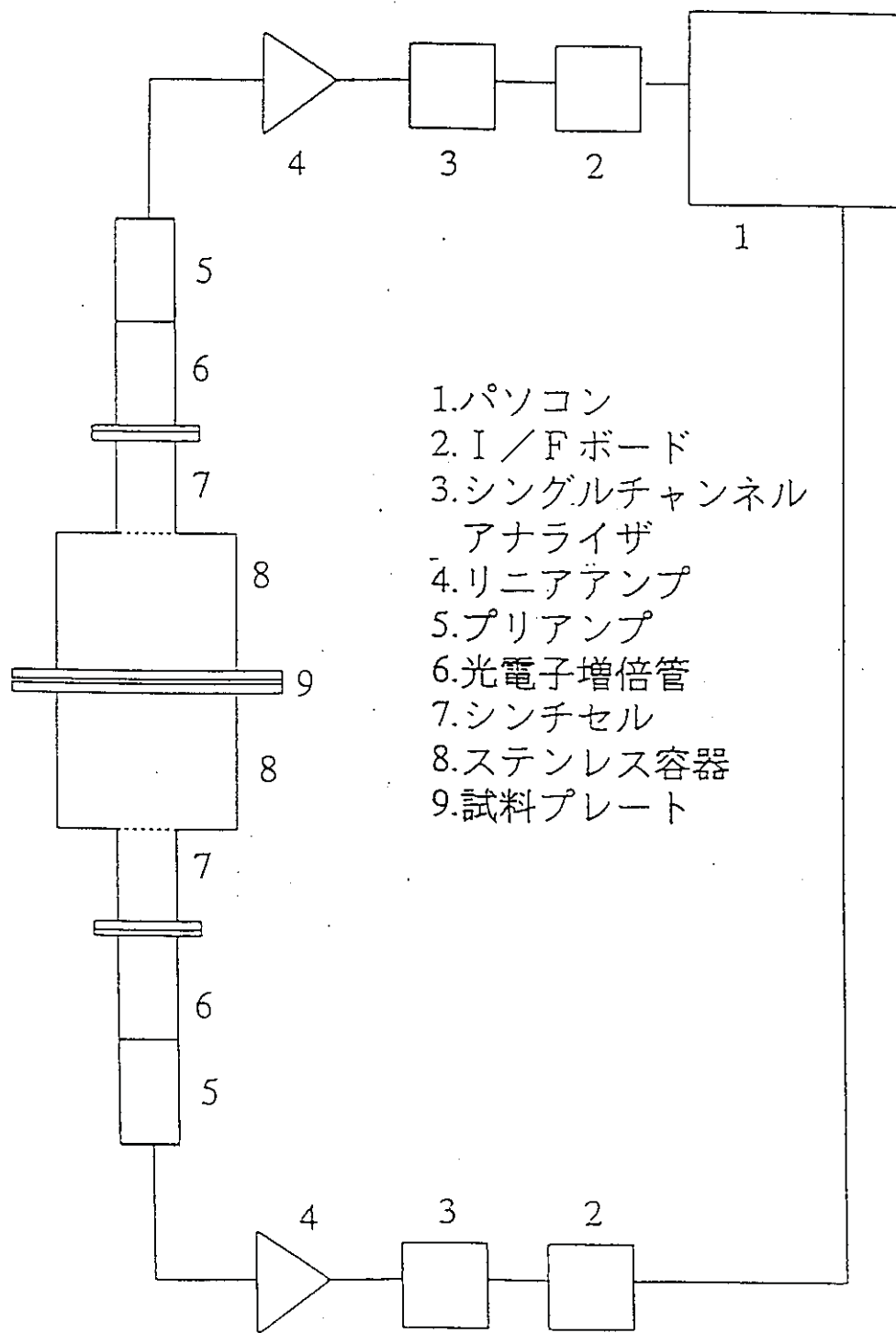


図2.6-4 ラドンの拡散係数測定装置の概略図

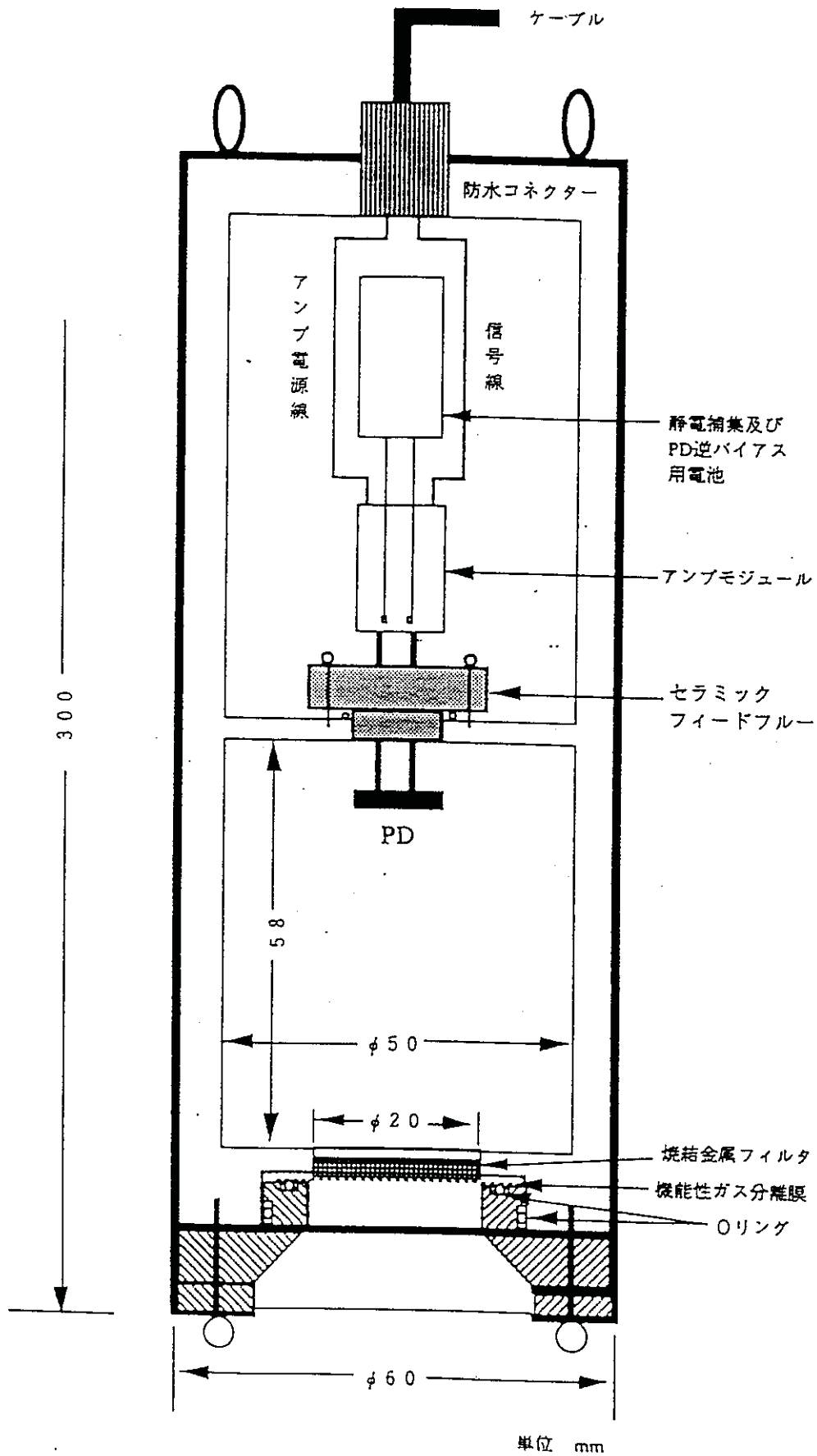


図2.6-5 小型水中ラドン検出器の概略図

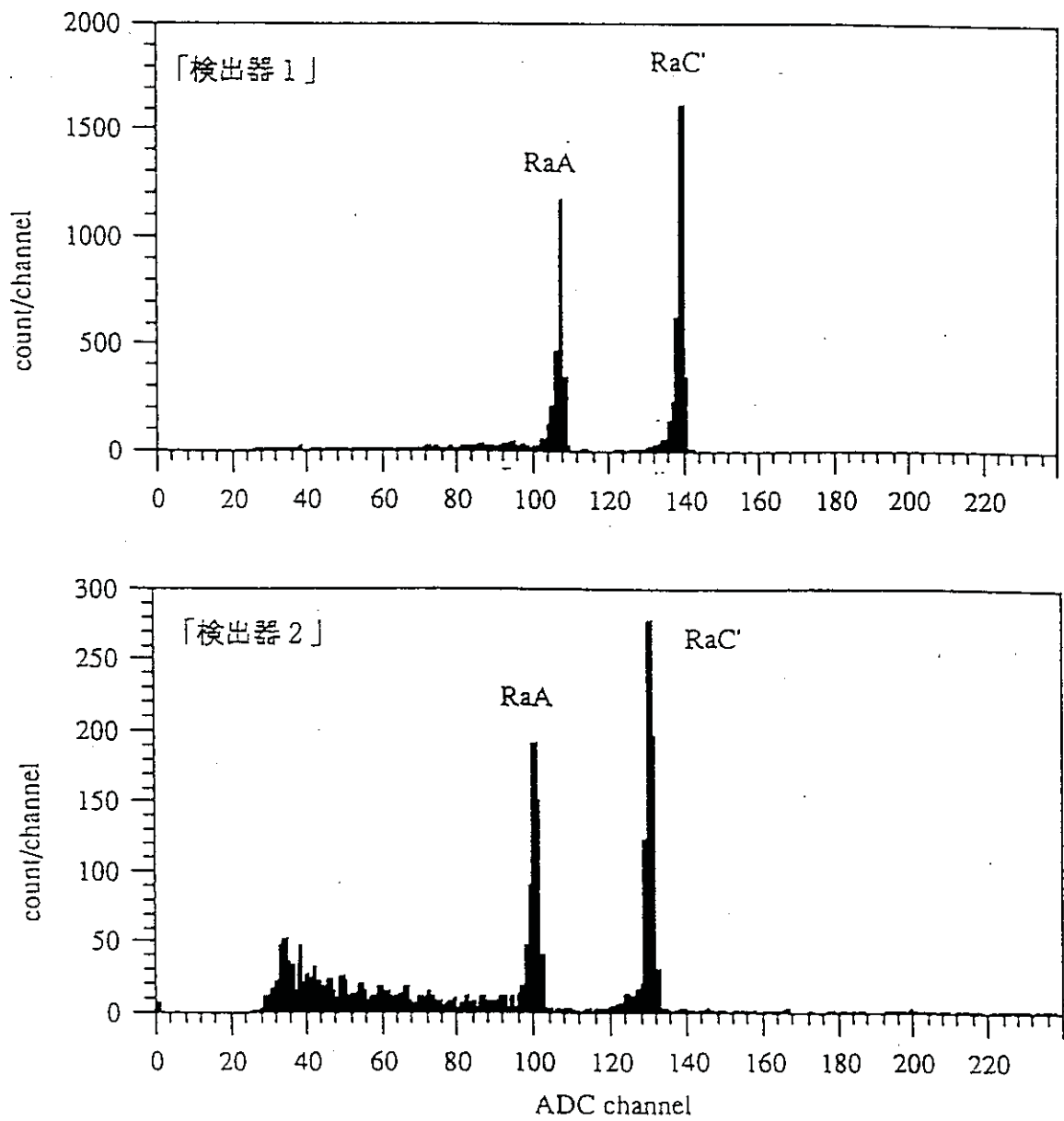


図2.6-6 小型水中ラドン検出器(検出器1)と(検出器2)からの電圧パルス

表2.6-1 土壌1gに存在する推定鉄酸化細菌数

土壌サンプル	地上からの深さ (cm)	二価鉄依存性酸素吸収量 (μ l/1g 土壌 /15 h)	鉄酸化細菌 存在数(cells/ml)
R001	10	102.3	17.2×10^6
R002	20	45.7	7.7×10^6
R009	90	36.0	6.1×10^6
R018	180	13.2	2.2×10^6
R027	270	1.4	0.2×10^6
R033	330	5.6	0.9×10^6