

焼却設備における揮発性核種の除染性能試験

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1986年 7 月

日立造船株式会社

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

1986年 7月

焼却設備における揮発性核種の除染性能試験

※	※
橋本靖郎	小野瀬研二
※	※
石川孝康	越智英治

要 旨

動力炉・核燃料開発事業団東海再処理工場に既設の放射性廃棄物焼却設備 (Unit No.U-341) を用いて、プロセス機器の揮発性核種であるルテニウムに対する除染性能を評価するための試験を実施した。

各機器の除染性能は、その機器の入口及び出口におけるオフガス中のルテニウム濃度によって評価できるので、焼却設備のオフガス処理系の5箇所、特に本試験のためにオフガス中のルテニウムを捕集する目的で製作したルテニウムサンプリング装置を設置して、各オフガス中のルテニウム濃度を測定し、プロセス機器の除染係数 (DF) を算出した。

なお本試験時の焼却設備の運転は、廃希釈剤を7ℓ/hr、バックグラウンドレベルのβγ-固体可燃物を10kg/hrという混焼モードにて行われた。

結果は以下の通りであった。

本報告書は、日立造船株式会社が、動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

契約番号：600D252

事業団担当者名：庄司賢二 (処理部化学処理第3課)

※日立造船株式会社 陸本部 原子力事業部 設計部

- | | | | |
|-----|--------------------|----|-----------|
| | 注1 | 注2 | |
| (1) | 焼却炉+H.T.+L.T. | | DF=45~126 |
| (2) | サイクロン+アンチスパークルフィルタ | | DF=~1.2 |
| (3) | バッグフィルタ | | DF≥211 |

また、本試験で得られたデータより、オフガス系へ移行したルテニウムのうち気体状になっているものはごくわずかであることも判明した。例えば、バッグフィルタ入口部のオフガス中で気体となっているルテニウムは約0.4%にすぎなかった。

このことは、これまでオフガス中に移行したルテニウムのかなりの部分が気体状であると考えられてきたものの、実際にはその大部分は煤や灰に付着しており、ダストとして挙動することを意味している。

注1：高温熱交換器

注2：低温熱交換器

PNC TJ4125 86-001

JULY , 1986

Studies on the Ruthenium Decontamination Factors
across the LLW Incineration Facilities
in Tokai Reprocessing Plant

※	※
Yasuo Hashimoto ,	Kenji Onose
※	※
Takayasu Ishikawa ,	Eiji Ochi

Abstract

The ruthenium decontamination factors (DF's) across various parts of the incineration off-gas treatment system were evaluated using the Incineration Facilities(Unit no.U-341) in the Reprocessing Plant at the Tokai Works of the Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

The DF's were obtained by the ruthenium concentration in the off-gas stream which were determined with ruthenium-sampling apparatuses set up at five points of the system.

Work performed under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison : Kenji Syoji

※ Design Department , Nuclear Division ,

Plant & Machinery Headquarters, Hitachi Zosen Corp.

The engineering test lasting 10 days was performed under the conditions of the mixed-combustion mode : feeding 70 /hr-waste diluent and 10kg/hr-combustible solid waste.

The results were as follows ;

	※1	※2
(1) Incinerator + H.T.+ L.T.		DF = 45 ~ 120
(2) Cyclone + Antisparcle Filter		DF = ~ 1.2
(3) Bag Filter		DF ≥ 200

According to the data obtained by this experiment, it is also found that the ratio of gaseous ruthenium to particle forms in the off-gas stream is quite low. For example, the ratio was approximately 0.4% at the point of Bag Filter's inlet.

The fact means that most of the ruthenium in the off-gas stream adheres to the soot and the ash and behaves itself as particle, however it has been supposed in general to be gaseous.

※1 High Temperature Heat Exchanger

※2 Low Temperature Heat Exchanger

目 次

1. まえがき	1
2. 試験の概要	4
2.1 試験目的	4
2.2 試験内容	4
3. 試験方法	6
3.1 試験条件の検討	6
3.1.1 再処理工場既設焼却設備の概要	6
3.1.2 除染性能測定対象機器と測定点の検討	11
3.1.3 各部におけるルテニウム量測定方法の検討	15
3.1.4 焼却設備運転条件の検討	15
3.2 ルテニウムサンプリング装置	17
3.2.1 装置の概念設計	17
3.2.2 装置及び機器の仕様	20
3.2.3 機器の選定と装置の製作	23
3.2.4 ルテニウムサンプリング装置の運転操作方法	34
3.3 試験方法	43
3.3.1 概要	43
3.3.2 バックグラウンド試料の採取	43
3.3.3 除染性能試験	43
3.3.4 試料中のルテニウム量の測定	46
4. 焼却設備運転時のルテニウム試料の採取	47
4.1 実施概要	47
4.2 焼却設備運転状況	47
4.2.1 運転日程	47
4.2.2 炉内温度	47

4. 2. 3	焼却処理物：D i におけるデータ	47
4. 2. 4	オフガス流量	49
4. 2. 5	プロセス機器メンテナンスの実施	49
4. 3	ルテニウムサンプリング装置による試料の採取	50
4. 3. 1	ルテニウムサンプリングに使用した試薬類	50
4. 3. 2	ルテニウムサンプリング装置の設備	51
4. 3. 3	ルテニウムサンプリング装置の運転状況	56
4. 3. 4	試料の採取	58
4. 3. 5	バグフィルタにおける煤漏れの影響について	67
4. 4	焼却設備運転終了後の試料の採取	68
5.	試料中の ^{106}Ru 量測定データとその検討	69
5. 1	概要	69
5. 2	計測データ	69
5. 3	プロセスオフガス中のルテニウム濃度	73
5. 3. 1	評価条件	73
5. 3. 2	オフガス中の ^{106}Ru 濃度の計算	73
5. 3. 3	検討	75
5. 4	プロセス機器のルテニウムに対する除染係数の算出	77
5. 4. 1	除染係数の算出方法	77
5. 4. 2	除染性能評価対象機器の再検討	78
5. 4. 3	各プロセス機器のD F 値の算出	79
5. 4. 4	検討	81
5. 5	焼却プロセスにおけるルテニウムの挙動と機器の除染性能	82
5. 5. 1	概要	82
5. 5. 2	灰・煤等へのルテニウムの付着	82
5. 5. 3	オフガス中のルテニウムに占める揮発ルテニウムの割合	86
5. 5. 4	ルテニウムの挙動と除染機構	87

6. 結論	89
6.1 焼却設備における揮発性核種の除染性能試験結果	89
6.1.1 プロセス機器のルテニウムに対する除染性能	89
6.1.2 焼却プロセスにおけるルテニウムの挙動	89
6.1.3 各機器のルテニウム除去機構と除染性能の評価	90
6.2 今後の課題	92
6.2.1 焼却炉運転モードによる機器の除染性能の変化の把握	92
6.2.2 新規焼却施設の設計への反映	93
7. 参考文献	95

表 一 覧

表-3.1	測定対象と測定項目	12
表-3.2	試験装置 機器仕様一覧表	21,22
表-3.3	装置構成機器の製品名及びメーカー名	23
表-3.4	DA-60S型ダイヤフラム真空ポンプ仕様	32
表-3.5	NOP-2A-T型乾式ガスメータ仕様	33
表-3.6	ルテニウムサンプリング装置の仕様	34
表-3.7	吸収液試料採取スケジュール	45
表-4.1	Diにおける測定データ	48
表-4.2	ルテニウムの吸収液	50
表-4.3	試験に使用した試薬類	50
表-4.4(1)	SO-1 Data Sheet	59
表-4.4(2)	SO-2 Data Sheet	60
表-4.4(3)	SO-3 Data Sheet	61
表-4.4(4)	SO-4 Data Sheet	62
表-4.4(5)	SO-5 Data Sheet	63
表-4.5	Di及びSO-1～5以外の試料採取箇所	68
表-5.1	インラインフィルタ濾紙試料計測結果	70
表-5.2	液体試料中の ¹⁰⁶ Ru濃度測定結果	71
表-5.3	プロセスダスト等のルテニウム濃度測定結果	72
表-5.4	オフガス中の ¹⁰⁶ Ru濃度計算結果	76
表-5.5	廃希釈剤中の ¹⁰⁶ Ru量のオフガス中濃度への換算	77
表-5.6	焼却設備プロセス機器の ¹⁰⁶ Ruに対するDF値	80
表-5.7	SO-1におけるオフガス中のダスト濃度とダスト中の ¹⁰⁶ Ru濃度	84
表-5.8	SO-2におけるオフガス中のダスト濃度とダスト中の ¹⁰⁶ Ru濃度	85
表-5.9	揮発したルテニウムの割合	86

写 真 一 覧

写真-4. 1	サンプリングノズル取付例 (SO-1)	52
写真-4. 2	サンプリングノズル取付例 (SO-4)	52
写真-4. 3	SO-1 設置のルテニウムサンプリング装置	53
写真-4. 4	SO-2 設置のルテニウムサンプリング装置	53
写真-4. 5	SO-3 設置のルテニウムサンプリング装置	54
写真-4. 6	SO-4 設置のルテニウムサンプリング装置	54
写真-4. 7	SO-5 設置のルテニウムサンプリング装置	55
写真-4. 8	真空ポンプとガスメータ等の設置例	55
写真-4. 9	運転中のルテニウムサンプリング装置	57
写真-4. 10	凝縮水の捕集状況	57
写真-4. 11	インラインフィルタろ紙試料の例	65
写真-4. 12	コンデンサにおける析出物	65
写真-4. 13	採取したルテニウム測定用試料の例	66

図 一 覧

図 - 3. 1	焼却炉系概略図	8
図 - 3. 2	再処理工場焼却設備における揮発性核種の測定箇所	14
図 - 3. 3	ルテニウムサンプリング装置フロー図	18
図 - 3. 4	インラインフィルタ容器	24
図 - 3. 5	コンデンサ構成機器	25
図 - 3. 6	275 mℓ インピンジャ	26
図 - 3. 7	PVC製容器類	27
図 - 3. 8	ルテニウムサンプリング装置収納箱	28
図 - 3. 9	サンプリングノズル取付用フランジ (1/2)	29
図 - 3. 10	サンプリングノズル取付用フランジ (2/2)	30
図 - 3. 11	オフガスヘッダ	31
図 - 3. 12	真空ポンプ	32
図 - 3. 13	乾式ガスメータ	33
図 - 3. 14	ルテニウムサンプリング装置組立外形図	35

1. ま え が き

核燃料サイクルの一環である使用済核燃料の再処理工程から発生する廃棄物は、使用済核燃料中に含まれる多種のF.P. (Fission Product: 核分裂生成物)によって汚染されている。

これらのF.P.のうち、放射性ルテニウム(^{103}Ru 、 ^{106}Ru)は生成量が多いことや半減期が比較的長いこと(^{106}Ru で半減期は367 day)などにより再処理工程から発生する廃棄物の放射能中に占める割合が高く、そのため再処理工程で発生する廃棄物の処理においていかにルテニウムを除去するかが、重要なポイントである。

ところが、このルテニウムはその物性や挙動があらゆる元素のうちで最も複雑かつ不明瞭であると言われており、例えば再処理工程で発生する硝酸廃液中だけでさえ、30数種類以上の化合物が確認されている¹⁾ほどであり、これはルテニウムが0価から8価までのあらゆる酸化状態をとりうる唯一の元素であることに由来している。

また、高温下で生成する酸化物は揮発性を示す。すなわち、ルテニウムの酸化物として RuO_2 、 RuO_3 、 RuO_4 等が存在するが、このうちの RuO_4 、 RuO_3 は気体なのである。しかも、これらの酸化物の生成は可逆過程であるが、その反応の各種定数等は研究者によってまちまちの値が報告されており、未だに確かなものはない。

以上の様なルテニウムの物性により、これまで焼却施設を対象としたプラント規模でのルテニウム除去方法は全く確立されておらず、ほとんど評価もされていなかった。

近年、高レベル放射性廃液の処理方法としてガラス固化法が有力視され、一部実用化されるに至って、プロセス中で揮発してしまうルテニウムの挙動や、この揮発ルテニウムの除去方法についても各国の研究者によって鋭意研究される様になった。文献によれば揮発ルテニウムの除去方法としてシリカゲル²⁾や $\text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ ³⁾等による吸着が有効なことなども報告されている。

さて、動力炉・核燃料開発事業団の東海再処理工場には使用済核燃料の再処理工程から発生する低レベルの可燃性廃棄物を処理するための焼却処理設備が設置されており、10年以上にわたり雑固体廃棄物や廃希釈剤(主成分: ドデカン)を処理してきた。この設備はワンソン型の焼却炉と高温熱交換器、低温熱交換器、サイクロン、バグフィルタ、

HEPAフィルタおよびスクラバ等のオフガス処理系機器から成っており、ルテニウム除去のための特別な装置は設置されていない。

現在、本焼却設備の能力が大量に発生する廃棄物に対して十分でないことや設備が老朽化してきたことから、新規焼却施設の設計が進められている。この新規焼却施設は既設焼却設備の実績をふまえて、基本的にはこれと同様のシステムのスケールアップで計画されているが、オフガス処理系には新たにルテニウム除去のための吸着フィルタを設置することになっている。

この新規焼却施設の詳細設計を行うにあたり、ラボスケールの工学試験“オフガス処理系機器のRuに対する除染性能確認試験”が実施された。この試験によりルテニウム吸着剤としてシリカゲルが最も適していて除染係数 10^3 程度を確保できることや、各システム機器がルテニウムに対して下記の様な除染性能を有していることが確認された。

焼 却 炉 : $DF = 1$

バグフィルタ : $DF = 1$

HEPAフィルタ : $DF \geq 10$

ス ク ラ バ : $DF \geq 10^2$

しかし、これらの結果は $CO_2 \cdot NO_x$ 等の標準ガスを混合して作成した模擬排ガスに RuO_4 を混入したガスを用いて測定したものであって、実際の焼却炉プロセスを模擬してオフガスに温度履歴を与えたりすると、このDF値がかなり変動することも確認されている。

このことと、有機物や金属等に付着しやすいというルテニウムの性質を考慮すると、実際の焼却炉プロセスオフガス中に含まれているルテニウムに対する各機器の除染性能が、温度履歴やオフガス中の灰・煤等の存在により、上記工学試験結果とかなり大きく異なる可能性がある。

現在、新規焼却施設詳細設計では設備の除染性能評価のために前述の試験結果を安全側に評価して用いているが、設計の妥当性を証明するためのバックデータとして、既設の焼却設備における各プロセス機器のルテニウムに対する除染性能の実測データを収集することは非常に有意義である。

そこで、今回実際の焼却炉における各プロセス機器のルテニウムに対する除染性能を動力炉・核燃料開発事業団殿の東海再処理工場に既設の焼却設備を用いて実測することとなった。

この試験によれば実機における各プロセス機器のルテニウムに対する除染性能評価が行えるだけでなく、これまでデータがほとんど無いため100%としていた廃棄物中のルテニウムの気相への移行率等についての参考データも得られることが期待できる。

本書は“焼却設備における揮発性核種の除染性能試験”の成果についての報告書である。

2. 試験の概要

2.1 試験目的

新規焼却施設の詳細設計の一環として先に行われた工学試験“オフガス処理系機器のRuに対する除染性能試験”では、オフガス中のルテニウム除去のためにシリカゲルを用いた吸着フィルタが有効であって温度湿度条件等を整えれば、DF値(除染係数)が 10^3 以上確保できるということの他に、従来オフガス中に移行したルテニウムに対する除染性能は期待できないとされていたHEPAフィルタのDF値が10以上あることや、スクラバのルテニウムに対するDF値が 10^2 以上あること等が確認された。また、完全に揮発してオフガス中に移行したルテニウムに対しては、焼却炉本体やバグフィルタには、その使用条件下においては除染性能を期待できないこともわかった。そして更に、これらの機器の除染性能はオフガスの組成や温度履歴によって大きく変化することも判明したが、ラボスケールで実際の焼却炉のプロセス条件を正確に再現することは非常に難しく、これ以上の考察はできなかった。

従って上記工学試験では各プロセス機器の除染性能評価として安全側のDF値は得られたが、この結果が実際の焼却設備におけるプロセス機器のルテニウムに対するDF値を大きく下回っている可能性がある。

そこで本試験は動力炉・核燃料開発事業団東海再処理工場に既設の放射性廃棄物焼却設備(Unit No. U-341)を実際に運転し、その際揮発性核種であるルテニウムに対する各プロセス機器の除染係数を実測することを目的として実施する。

この試験により、実際の放射性廃棄物中のルテニウムが焼却処理プロセス中でどのような挙動を示すかがごく部分的にでも解明されることも期待でき、今後同様な焼却設備を設計する上での貴重なデータが得られる。

2.2 試験内容

一般に、ある機器(若しくは設備)の、物質Aに対する除染性能は次式で定義されるDF値によって評価される。

$$DF = \frac{\text{物質Aの INPUT量}}{\text{物質Aの OUTPUT量}}$$

従って、本試験においてプロセス機器のルテニウムに対する除染性能を評価するためには対象としている機器の前後におけるルテニウム量を測定する必要がある。つまり、具体的にはオフガス処理プロセスの各部分におけるオフガス中のルテニウム濃度を測定しなければならない。

そこで今回、前述した工学試験で蓄積した知見をもとに、JIS Z-8808、JIS K-0095等を参考にして、オフガス中のルテニウムを吸収してトラップするルテニウムサンプリング装置を製作して、これを焼却設備の各部に設置し、オフガス中のルテニウム濃度を測定することにした。

また、焼却設備に対するルテニウムの総 INPUT 量を把握するために廃棄物中のルテニウム濃度および廃棄物処理量も測定しておく。

これらのデータとプロセスオフガス総量等からプロセス機器へのルテニウムの INPUT 量及び OUTPUT 量が算出でき、それによりプロセス機器のルテニウムに対する除染性能の評価が可能になる。

なお、廃棄物中に含まれるルテニウム同位体は数種類あり、これらは全て化学的に同じ挙動をする。そのため本試験における除染性能の評価は、これらの同位体の中で比放射能の最も高い ^{106}Ru を定量することによって実施することにした。

3. 試 験 方 法

3.1 試験条件の検討

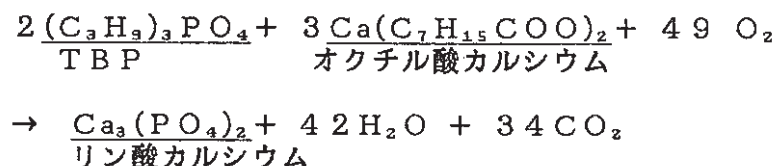
3.1.1 再処理工場既設焼却設備の概要

(1) 概 論

再処理工場に設置されている放射性廃棄物焼却処理設備は、再処理工場内で発生したβγ-固体可燃物と、ドデカンが主成分である廃希釈剤を主な焼却対象としている。本焼却炉はフランスのSGN社のもとにドイツのワンソン社が設計した横型空気調整式焼却炉で、昭和49年3月に日揮㈱-大野化学機械㈱の施工により完成した。それ以後、施設検査、試運転を経て燃焼性能の改良、オフガス系の腐食対策等多くの不具合箇所の改善が行われ、運転モードの検討等も含めた関係者の不断の努力の結果、現在までに一応の運転技術が確立されるに至った。

本焼却炉運転初期に発生した不具合点の多くは、廃希釈剤、廃溶媒に数%~30%程度含まれるTBP(トリブチルフォスフェイト)が燃焼する時に生成する腐食性のリン酸化合物に由来するものであった。すなわち、この腐食性物質により炉材及びオフガス処理系機器構成材が侵され、機器故障の原因となったのである。

このため燃焼時にTBP中のリン分を安定なリン酸カルシウムにするための方法が検討され、カリシウムオクチエイト法が確立された。これは廃希釈剤(若しくは廃溶媒)にオクチル酸カルシウムを含む試薬(ニッカオクチックスカルシウム等)を混合して焼却するという方法で次の様な反応によりリンが固定化される。



また、この時試薬の添加量はカルシウムがリン当量の1.2倍になる様に調整され、必要に応じてケロシンによる希釈も行われる。

このカルシウムオクチエイト法により機器の腐食による問題はほとんど無くなった反面、大量に発生するリン酸カルシウムや酸化カルシウムの付着・目詰り等の問題が新たに発生したが、これに対しては機器の改良等の方法で対処し、現在では定常的に廃希釈剤も焼却できるようになった。

(2) 焼却プロセスの概略説明

本焼却設備のプロセス概念図を図-3.1に示し、以下に焼却プロセスの流れと各プロセス機器の機能を簡単に説明する。

① 廃棄物自動装荷投入装置

本装置は、仕分けされて約10kgずつ紙袋詰めされたβγ-固体可燃物を自動的に焼却炉に投入するもので、廃棄物は4つのドアにより外部との気密を保ちながら供給される。

② 焼 却 炉

焼却炉は第1、第2、第3燃焼室から成り、内部はそれぞれ高アルミナ質耐火レンガ及び耐火断熱レンガを使用し、外部は耐密溶接鋼板を使用している。

βγ-固体可燃物は第1燃焼室の火格子上で一次燃焼する。(最大50kg/hr)

また、廃希釈剤燃焼用バーナ及びケロシンバーナが第1、第2燃焼室に各2基ずつ計8基設置されている。ただし、これまでに確立されたβγ-固体可燃物と廃希釈剤の連続混焼運転モードでは第1燃焼室の廃希釈剤燃焼用バーナは使用せずに、第2燃焼室の2基のバーナを一定時間ずつ交互に使用する。

(この場合の処理能力は、βγ-固体可燃物：10～20kg/hr、廃希釈剤：8～10ℓ/hrである)

ケロシンバーナは昇温及び助燃用に用いられる。

炉内で発生した焼却灰は、運転停止後に炉底部のアッシュパン上で十分冷却された後に、灰回収用グローブボックスからバッグアウト方式で取出される。

③ 高温熱交換器・低温熱交換器

焼却によって生ずる高温のオフガスは高温及び低温の2つの多管式熱交換器で冷却される。

高温熱交換器(H.T.)は耐熱ステンレス鋼製でオフガスを400℃程度まで冷却し、低温熱交換器(L.T.)はチタン鋼製でオフガスを更に100℃程度以下まで冷却する。

オフガス中には多量の粉塵、煤等が含まれており、特にリン酸カルシウムが

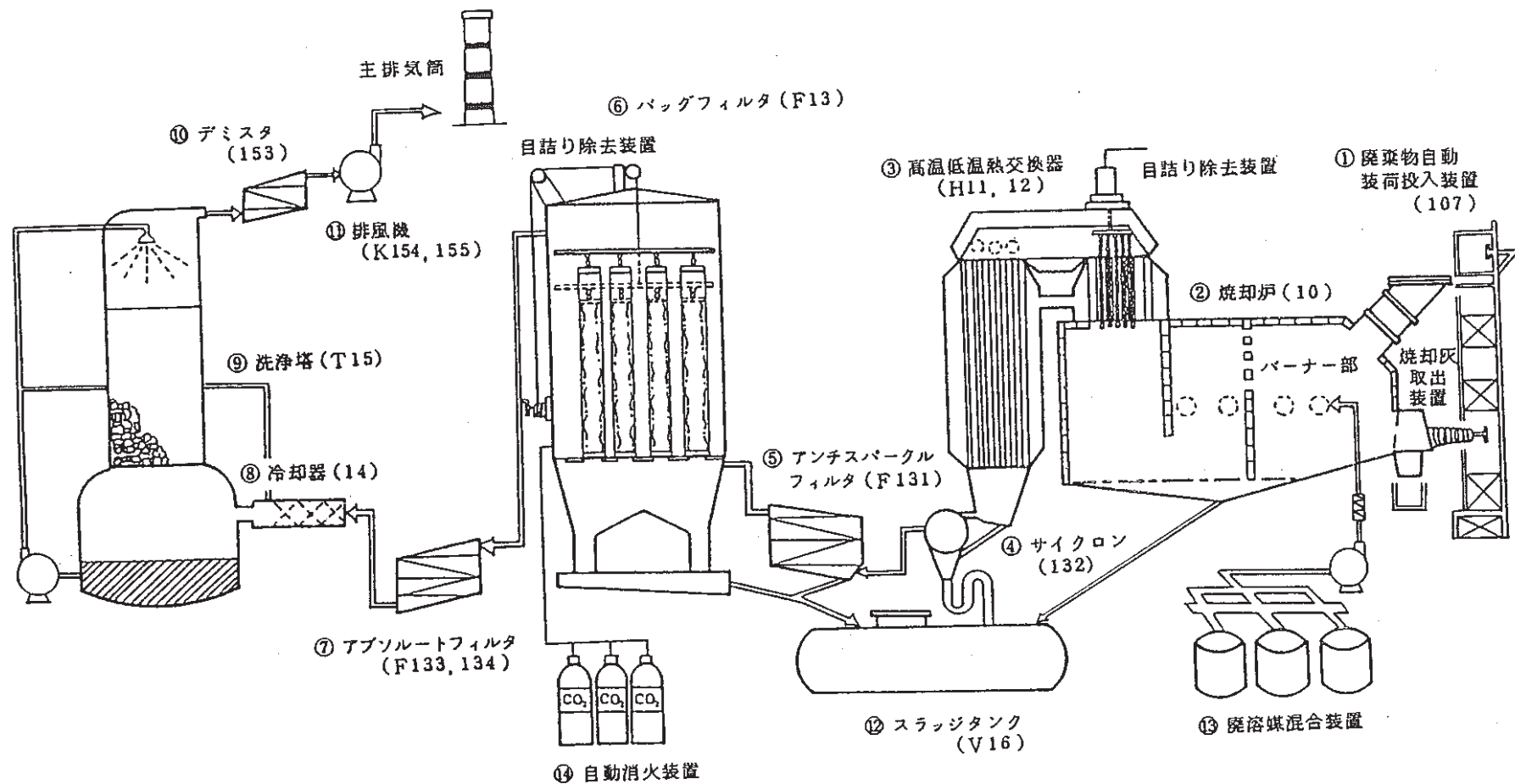


図- 3.1 焼 却 炉 系 概 略 図

伝熱管内に付着しやすく、目詰りや閉塞の原因となるため、H.T.にはチェーン上下式、L.T.には圧空吹込式の除塵装置が設置されている。これによって除去された粉塵はそれぞれ焼却第3炉室およびサイクロンに移行する。

④ サイクロン

オフガス中の灰・煤等はサイクロンで一次除去される。

このサイクロンはエポキシ内張炭素鋼製で平均直径 $10\mu\text{m}$ の粒子を90%捕集する。

サイクロン底部にたまった灰・煤等は、水洗によりスラッジとしてスラッジ貯槽(⑫=V16)に水流しされる。

⑤ アンチスパークフィルタ

アンチスパークフィルタはオフガス中の火の粉を除去してバグフィルタエレメントの火災を防ぐためのもので、ケーシング内に2枚の金網状のフィルタが設置されており平均径約 $10\mu\text{m}$ の火の粉を捕集する。

⑥ バグフィルタ

サイクロン、アンチスパークフィルタを通過した灰・煤等はバグフィルタで二次除去される。

フィルタエレメントは耐熱性ポリアミド繊維から成り、オフガス中の灰・煤等のほとんどがここで捕集される。

また、バグフィルタエレメントの目詰りを防いで長時間の連続運転を可能にするため、フィルタエレメントに上下動を与えて付着した粉塵を払い落とす機構が設置されており、払い落した塵は水洗によりスラッジ貯槽(⑫=V16)に排出される。

⑦ HEP Aフィルタ(アブソルートフィルタ)

HEP Aフィルタはダストに対する最終の除去機構であり、バグフィルタを通過した微細粒子を捕集する。(平均直径 $0.3\mu\text{m}$ の粒子に対し99.97%以上の除去性能を有する)

⑧ 冷 却 器

冷却器はエボナイト内張りした平行六面体の炭素鋼製で苛性ソーダ(pH～9)をオフガスに向流にスプレー噴霧することによりオフガス温度を約60℃程度以下まで降温する。

また、この時オフガス中の酸性成分の一部は苛性ソーダにより中和される。

⑨ スクラバ(洗浄塔)

スクラバはエボナイト内張りのラシヒリング充填塔であり、苛性ソーダ(pH～9)をポンプで循環して頭頂部からスプレー噴霧してオフガスを中和・洗浄する。

⑩ デ ミ ス タ

デミスタはステンレスウェーブを充填したインパクトフィルタ型でスクラバから飛散したミストを捕捉する。

⑪ 排 風 機

排風機は全装置において必要な負圧を維持し、オフガスを換気系へ送るためのものである。能力的には3000 m³/hrを有している。

3.1.2 除染性能測定対象機器と測定点の検討

前述した様に、ラボスケールの工学試験では、実際の焼却プロセスにおけるルテニウムの挙動が複雑かつ不明瞭であるために諸条件を完全に再現した試験を行うことが困難で、かなりに安全サイドの評価しかできなかった。すなわち、完全に RuO_4 に転換して気体となったルテニウムを模擬オフガスに混入し、これが高温下で Ig.loss が $\sim 0\%$ の焼却灰に付着しなかったことや、バッグフィルタエレメントをほとんど通過してしまうために焼却炉やサイクロン、バッグフィルタ等のルテニウムに対する DF は 1 であるとし結論できなかったのである。

しかし、ルテニウムは物質に非常に良く付着する性質を有しており、特に有機物に対しては著しい付着性を示す。従って、実際の焼却プロセスでは焼却灰中に未燃ハイドロカーボンが含まれ、また酢酸ビニル等のプラスチック類の焼却時には多量の煤も発生することから、これらの灰・煤等に付着してこれらと共に挙動するルテニウムが在存すると考えるのが妥当である。

つまり、炉内に残留する焼却灰にルテニウムが在存していれば、その分だけ焼却炉自体がルテニウムに対して除染性能を有すると評価できるわけである。

同様に考えれば、サイクロンやバッグフィルタにおいてもかなりの除染性能が期待できる。

また、HEPA フィルタやスクラバは、ラボスケールの工学試験においても DF 値がそれぞれ 10 以上、 10^2 以上というルテニウムに対する除染性能を有していることが確められたが、実際のプロセスにおいては異った結果が得られる可能性もある。

以上より、実際の焼却設備の構造等も考慮しながら、以下の 5 組のプロセス機器を除染性能測定の対象とすることにした。

(i) 焼却炉 + 高温熱交 + 低温熱交

INPUT 量：焼却処理物中のルテニウム量

OUTPUT 量：低温熱交換器出口オフガス中のルテニウム量

(ii) サイクロン+アンチスパークルフィルタ

INPUT 量：低温熱交換器出口オフガス中のルテニウム量

OUTPUT量：バッグフィルタ入口オフガス中のルテニウム量

(iii) バッグフィルタ

INPUT 量：バッグフィルタ入口オフガス中のルテニウム量

OUTPUT量：バッグフィルタ出口オフガス中のルテニウム量

(iv) H E P A フィルタ

INPUT 量：バッグフィルタ入口オフガス中のルテニウム量

OUTPUT量：H A P A フィルタ出口オフガス中のルテニウム量

(v) スクラバ+デミスタ

INPUT 量：H E P A フィルタ出口オフガス中のルテニウム量

OUTPUT量：デミスタ出口オフガス中のルテニウム量

従って測定すべき項目をまとめると下表-3.1の様になる。

表-3.1 測定対象と測定項目

測 定 対 象	記 号	測 定 す べ き 項 目
焼 却 対 象 物	D i	ルテニウム含有量、焼却処理量
L.T. 出 口 ガ ス	S O-1	ルテニウム濃度、オフガス量
バッグフィルタ入口ガス	S O-2	"
バッグフィルタ出口ガス	S O-3	"
L.T. 出 口 ガ ス	S O-4	"
デ ミ ス タ 出 口 ガ ス	S O-5	"
炉 内 焼 却 灰	S A-1	ルテニウム濃度、焼却灰量 ※)
バッグフィルタダスト	S A-2	" 、ダスト量 ※)
ス ク ラ バ 液	S L-1	" 、スクラバ液量 ※)
ス ラ ッ ジ	S S-1	" 、スラッジ量 ※)

なお、表-3.1中で、SA-1, 2、SL-1、SS-1は各機器の除染性能を評価する上で直接必要な量ではないが、評価した値の妥当性を確かめたりルテニウムの挙動を評価する上では非常に有要なデータである。

ただし、現実的には※印をつけた量を正確に把握することはできないため、SA-1, 2、SL-1、SS-1についてはルテニウム濃度だけを測定することにした。

具体的な測定箇所を 図-3.2 に示しておく。

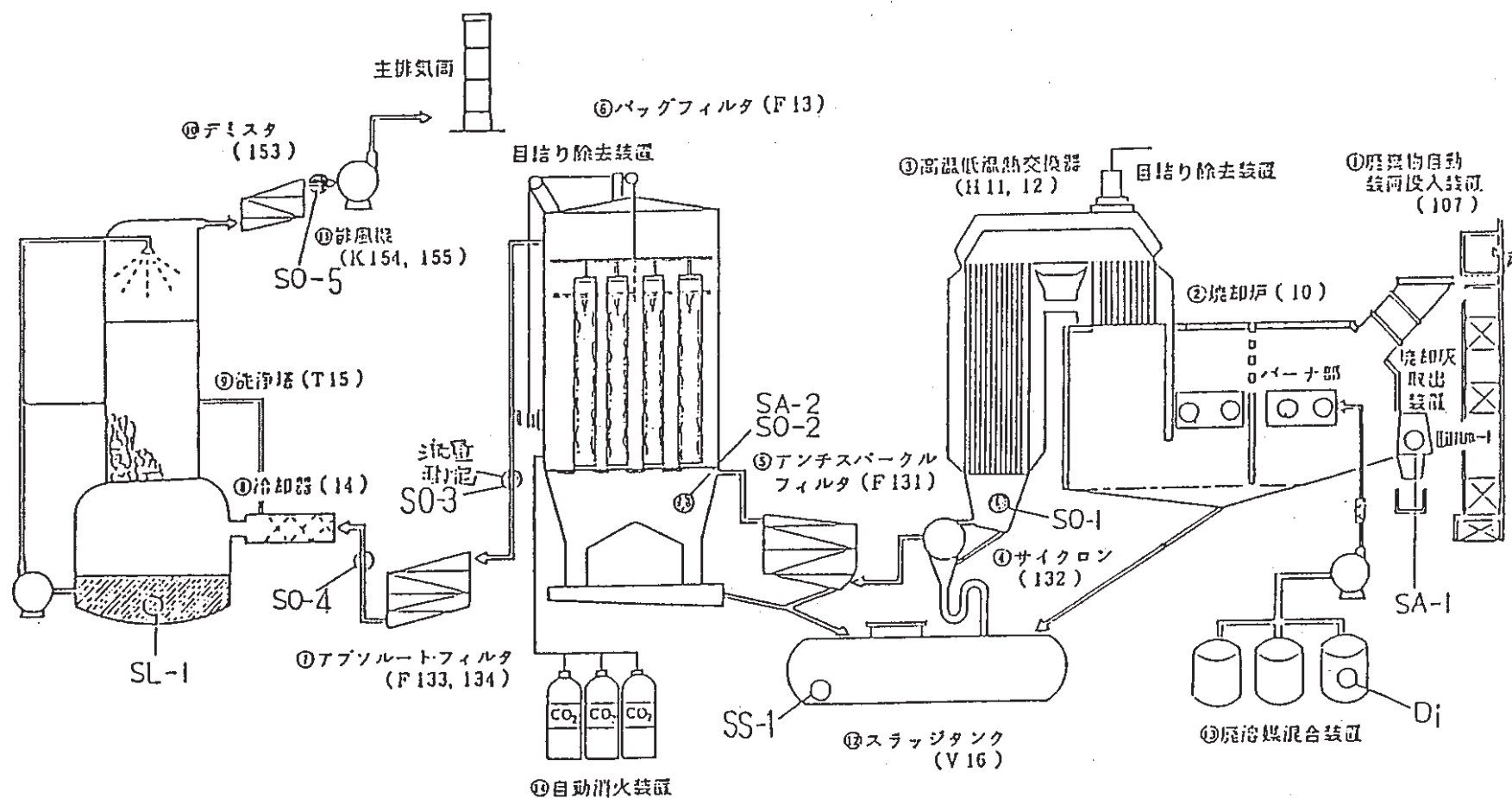


図-3.2 再処理工場焼却設備における揮発性核種の測定箇所

3.1.3 各部におけるルテニウム量測定方法の検討

表-3.1を見るとルテニウム量(若しくは濃度)を測定すべきものは大きく分けて、焼却対象物、プロセスオフガス、ダスト類、液体の4つに分けられる。

このうち、焼却対象物は表面線量率0.05mR/Hr以下のバックグラウンドレベルの $\beta\gamma$ -固体可燃物と廃希釈剤の2つであるが、相対的に見て固体可燃物中のルテニウム量は、廃希釈剤中の量に比して十分少ないこと、及び固体可燃物中のルテニウム量を把握するのは非常に困難であることから、廃希釈剤中のルテニウム量だけを測定し、固体可燃物中のルテニウムは無視することにする。

廃希釈剤を含む、液体中のルテニウムの測定は、その液体を直接サンプリングすることにより簡単に行える。

また焼却灰、ダスト等についても同様に直接サンプリングによって試料を採取すれば良い。

さて、オフガス中のルテニウムの測定であるが、これはラボスケールを実施した工学試験で蓄積した知見をもとにルテニウム吸収系を作り、JIS K-0095“排ガス試料採取方法”に準拠したオフガスサンプリング装置と組合せたルテニウムサンプリング装置を製作して対応することにした。本装置については3.2で詳しく述べるが、これによりオフガス中のルテニウムは吸収液中に移行し、他の液体試料と同様に取扱えるようになる。

3.1.4 焼却設備運転条件の検討

試験を実施する際、本試験の目的から考えても焼却設備の運転は通常の廃棄物処理時と同様に行うのが望ましい。

通常の焼却炉運転モードには次の3つがある。

① $\beta\gamma$ -固体可燃物専焼

35～50 kg/hr

② 廃希釈剤専焼

8～30 l/hr

③ $\beta\gamma$ -固体可燃物と廃希釈剤の混焼

固体可燃物 : 10~20 kg/hr

廃希釈剤 : 8~10 l/hr

ところが、各プロセス機器の除染性能に関して言えば、固体可燃物と廃希釈剤の焼却方法が大きく異なること等から、オフガス中のダスト組成が3つの運転モードによって大きく変化するため、各機器のルテニウムに対する除染性能も大きく変化することが予想できる。

この中で最も厳しい条件は②の廃希釈剤専焼モードであり、それは廃希釈剤のバーナースプレー燃焼では煤や未燃ハイドロカーボンはほとんど発生せず、しかも焼却灰は微粉末で発生するため、ルテニウムのオフガス中への移行率が最も高いと考えられるからである。

従って本試験は廃希釈剤専焼モードにて行うのが望ましく、またそうすることによって焼却物中のルテニウム量の測定・定量における誤差も小さくなる。

しかし、現実には廃希釈剤の専焼はほとんど行われていないため、最も運転頻度が高く、条件的にも比較的厳しい固体可燃物と廃希釈剤の混焼モードにて試験を行うことになった。

この時、焼却処理条件は次の様に設定することにした。

$\beta\gamma$ -固体可燃物 : 10 kg/hr (1袋/hr)
廃希釈剤 : ~7 l/hr

ところで、プロセス後段のオフガス中のルテニウム濃度は非常に低いことが予想される($\ll 10^{-13} \mu\text{Ci/cc}$) ため、試験によって得られた試料中のルテニウム量が計測機器の検出限界を下回ることが十分に考えられる。そこで試料中ルテニウム量の有意性を少しでも大きくとるため、処理する廃希釈剤は通常よりもややルテニウム濃度の高いものとすることにした。

・廃希釈剤中のルテニウム濃度 : $10^{-2} \sim 10^{-1} \mu\text{Ci/cc}$

3.2 ルテニウムサンプリング装置

3.2.1 装置の概念設計

本装置は焼却設備のプロセスオフガスをサンプリングして、その中に含まれるルテニウムを捕集して放射分析による定量のための試料を得るためのものである。従って以下の様な性能を有するものでなければならない。

- ① オフガス中のルテニウムを高い効率で捕集すること。
- ② オフガス中のルテニウム濃度がかなり低いため、長時間の連続運転が可能であること。
- ③ サンプリングオフガス量が指示されること。(できれば乾ガスベース)
- ④ 放射性を有する気体を取扱うため、系内が負圧に保たれること。

これらを考慮し、また JIS K-0095 “排ガス試料採取方法”を参考にして設計したルテニウムサンプリング装置の概念フローを図-3.3 に示す。

なお、前述した様に、ルテニウムは有機物等に付着しやすく、また金属表面に固着しやすいといった性質を有するため、ルテニウム吸収部以前の接ガス部は全てなめらかなガラス表面で構成する必要がある。そこでこれらの機器配管は全てガラス製とし、接続部分はノングリースタイプのボールジョイントにする。

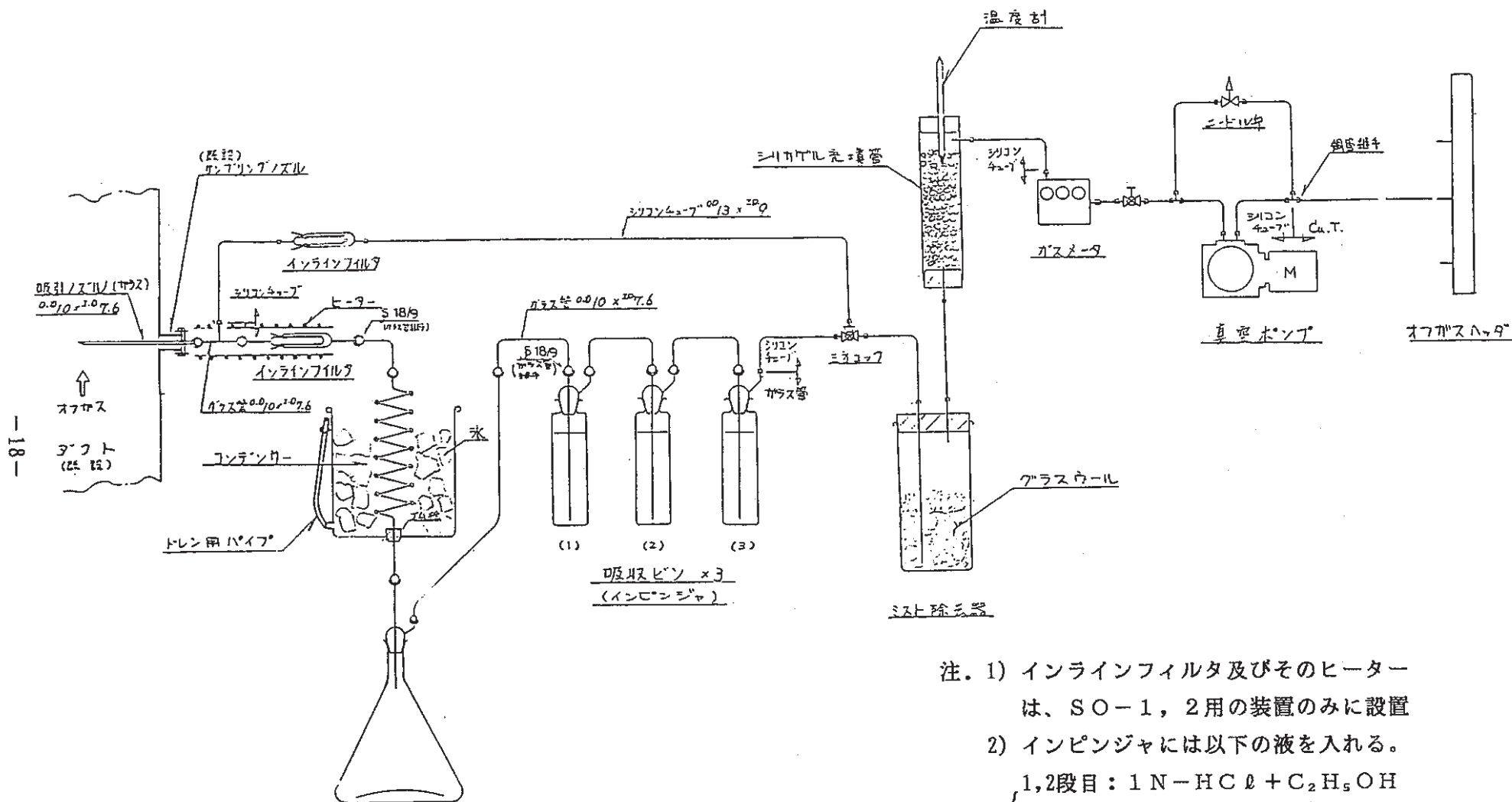
図-3.3 に示したルテニウムサンプリング装置の主要部の役割等について以下に説明する。

(1) ルテニウム吸収部

オフガス中のルテニウムは RuO_2 若しくは他の物質と化合物を作ってダスト粒子に付着しているか、 RuO_4 として気体になっているかのどちらかである。

ラボスケールの工学試験においては、気相にあるルテニウムの吸収装置としてインピンジャ方式を採用して高い効率を得ている。そこで今回のルテニウムサンプリング装置の吸収系も同様の構造・方式を採用することにした。

本吸収系は直列につないだ3個のインピンジャから成り、ルテニウム吸収液として、1段目と2段目のインピンジャには1N-HClと $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ の1:1混合液、3段目には1N-KOHを入れておく。



- 注. 1) インラインフィルタ及びそのヒーター
は、SO-1, 2用の装置のみに設置
2) インピンジャには以下の液を入れる。
1, 2段目: $1\text{N-HCl} + \text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$
3段目: 1N-KOH

図-3.3 ルテニウムサンプリング装置フロー図

実績によれば、これらのインピンジャは、 4 N l/min のガス流量時に、ガス中のルテニウムを1段で95%以上捕集・吸収する。

また、3段目の吸収液の 1 N-NaOH 溶液は、ルテニウム吸収の役割の他に、1段目、2段目で揮発した HCl をトラップして後段の機器を保護する役割もする。

(2) インラインフィルタ

オフガス中には灰・煤等のダストが含まれており、特にバグフィルタで1次除塵される以前のダスト濃度はかなり高いと考えられる。そこでSO-1及びSO-2に設置するルテニウムサンプリング装置にはインラインフィルタを設置してルテニウム吸収部や駆動部を目詰りから保護することにした。

フィルタにはガラス繊維製の円筒濾紙を用いて、濾紙へのルテニウムの付着をできるだけ避ける。また、捕集されたダストに水分が付着するとダストがペースト状になり圧損が非常に高くなるため、オフガス中の水分の凝縮が起こらないようにサンプリングノズルヘインラインフィルタの部分をヒータで加熱する。

(3) コンデンサ

オフガス中には数%の水分が含まれ、これをそのままインピンジャに通気するとインピンジャ中で水分の凝縮が生じて、オーバーフローにまで致る懸念があるため、コンデンサでこれを除去する。

この時、凝縮水中にルテニウムの一部が移行すると考えられるので、凝縮水を完全に捕集できる構造とする。

(4) ミスト除去器、シリカゲル充填管

これらの機器ではインピンジャを通過したオフガス中に含まれる吸収液のミストや水分を除去し、オフガスを乾きガスにして後段の機器を保護する。

(5) ガスメータ、真空ポンプ

オフガスを定量的に吸引し、そのガス量を記録する。

3.2.2 装置及び機器の仕様

ルテニウムサンプリング装置を構成する機器等の仕様をこれまでに述べてきた状況や下記の諸条件等から決定した。

- ① インピンジャは容量 275 ml のものを用いることにする。従って、オフガスサンプリング流量は最大 20 l/min 程度とする。
- ② 電源としては 100 V、50 Hz の交流電源等が得られる。
- ③ 現場で水道水を定常的に供給するのは困難である。
- ④ オフガス中のルテニウム濃度が低いため、できるだけ多くのオフガスをサンプリングできるよう 24 hr/day × 10 day 程度の連続運転を行う。
- ⑤ ルテニウムサンプリング装置を通過したオフガスは、S O-5 からプロセスに戻す。

決定した機器の仕様を表-3.2 “機器リスト” に示す。

なお、真空ポンプについては、安定した性能を有し、油やカーボンによりオフガスを汚染することの無いダイヤフラム式とし、また 20 l/min のサンプリング量に対し、機器の圧損等の余裕を見て 50～60 l/min の能力が必要である。

また、ガスメータの型式は長期間の連続運転等を考慮し、メンテナンスの容易な乾式とした。

表-3.2 試験装置機器仕様一覧表(1/2)

機器番号	機 器 名 称	基 数	仕 様			設 計 条 件							断 熱		設置場所		主要付属品	備 考
			形 式	主要材質	能力(容量)	主 要 寸 法 mm	取扱流体	圧力 kg/cm ² G	温 度 ℃	真(見掛) 比 重	粘 度 CP	ジ ョ イ ン ト	要	否	屋 内	屋 外		
	サンプリングノズル	5+5	質 式	ガ ラ ス		OD 10φ×1.2τ×300~500ℓ	オフガス	0.05	150			⑨ボールジョイント	○		○		シリコン栓、取付 フランジ	S0-1 S0-5 } 各1+1
	インラインフィルタA	2+1	炉紙ホルダ	"	20Nℓ/min以上	ID 40φ×250ℓ	"	"	"			"	○		○		TOYO No.86R40×150	S0-1, S0-2のみ
	インラインフィルタB	2+1	"	"	"	"	"	"	"			シリコンチューブ用		○	○		"	"
	コンデ ン サ	5+1	蛇 管 式	"	1.3g-H ₂ O/min	OD 90φ×250φ(CD10φ管)	"	"	"			⑨, 12/25	○		○		ゴム栓、 ドレンホース	
	コンデンサ用バット	5	堅 型 円 筒	PVC	~9ℓ	200φ×300H×5t	氷	常圧	○					○	○			
	凝 縮 水 受	10	三角フラスコ	ガ ラ ス	1000mℓ		凝縮水	0.05	常 温			12/25, 29/42, ④		○	○			
	Ru 吸 収 ビ ン	15+2	インピンジャ	"	275mℓ	50φ×300H	オフガス	0.05	"			⑨, 45/25, ⑨		○	○		中板付ノズル	3連×5列
	三 方 コ ッ ク	5+1	三方コック	"		質径 OD 10φ	"	"	"			シリコンチューブ用		○	○			
	ミスト除去器	5	堅 型 円 筒	PVC	750mℓ	70φ×300H	"	"	"			"		○	○		蓋(ゴム栓)	充填物: グラスウール
	シ リ カ ゲ ル 管	5	充 填 カ ラ ム	"	~2ℓ	100φ×300H	"	"	"			"		○	○		温度計、蓋(ゴム栓)	吸着剤: シリカゲル
	ガ ス メ ー タ ー	5	乾 式	C.S.	5~1,200ℓ/Hr	280W×240H×190D	"	"	"			"		○	○		ID 9φ用 ホースコネクター	
	真 空 ポ ン プ	5	ダイヤフラム式	A.D.C	60ℓ/min	210W×280ℓ×250H	"	0.3	"			"		○	○		"	
	ニ ー ド ル 弁	5	ニ ー ド ル 弁	Brass		1/4 B	"	0.3	"			"		○	○		"	
	ボ ー ル 弁	5	ボ ー ル 弁	"		1/4 B	"	0.3	"			"		○	○		"	
	収 納 箱	5		木 板		400W×520H×840H	-	-	-					○	○			
	オフガスヘッダ	1	単 管 式	Cu		220ℓ	オフガス	0.3	常 温			PT 3/4, OD 10φCuT用		○	○			
	リボンヒーター	2	電 熱 式	Ni-Cr	300W(100V)	40W×1,500ℓ	-	-	Max 400°					○	○		バリタ ッ プ	インラインフィルタ用 (S0-1, S0-2のみ)
	T 字 管 (継手)	5+5		ガ ラ ス		OD 10φ×現場合せ	オフガス	0.05	150			⑨×2, ST用×1	○		○		ノズル← バイパス 吸収ライン	
	短 管 (")	5+5		"		"	"	"	"			⑨×2	○		○		T字管← コンデンサ (フィルタ)	
	コ 字 管 (")	15+1		ガ ラ ス		OD 10φ×現場合せ	オフガス	0.05	常 温			⑨×2		○	○			インピンジャの連結
	チューブコネクタ(")	5		"		"	"	"	"			⑨・1, Si用×1		○	○			

表-3.2 試驗裝置機器仕様一覽表 (2/2)

[illegible]

3.2.3 機器の選定と装置の製作

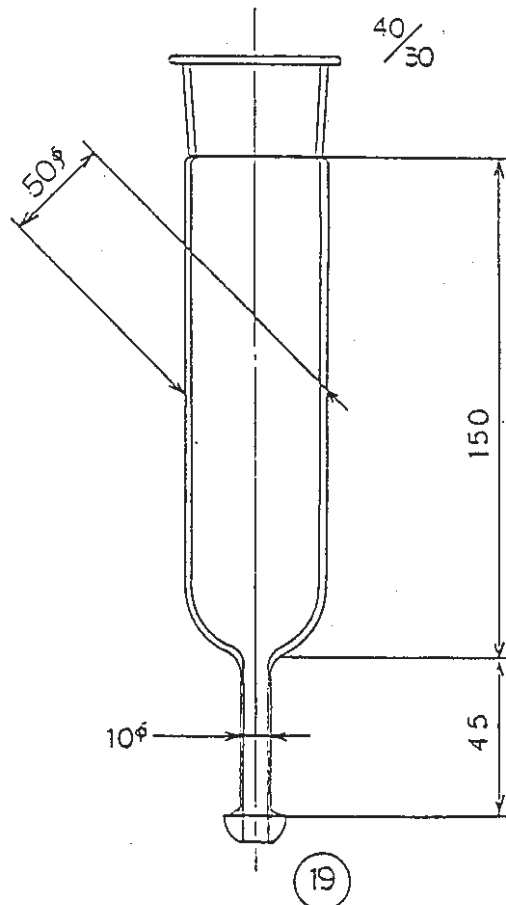
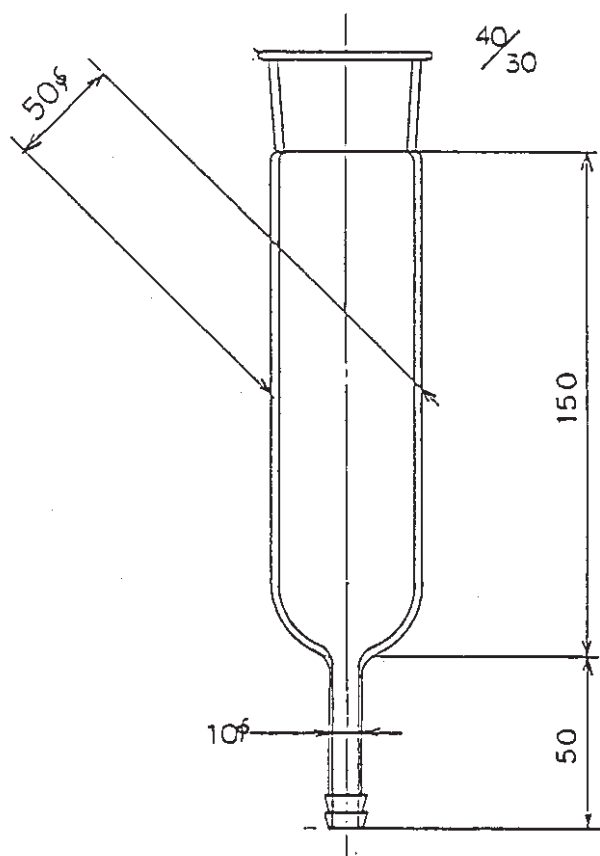
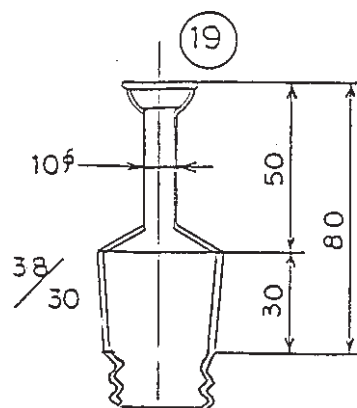
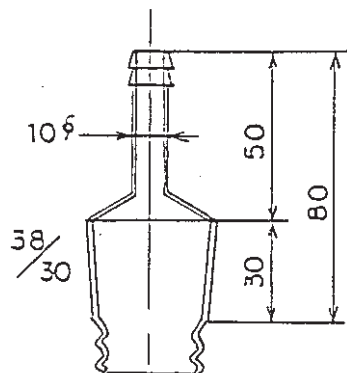
ルテニウムサンプリング装置構成機器及びメーカーを下表-3.3の様に選定した。

表-3.3 装置構成機器の製品名及びメーカー名

機 器 名 称	仕 様	製 品 名	メーカー名
ガラス製機器及び配管	特 注 品	特 注 品	大科工業㈱
P V C 製 容 器	〃	〃	〃
リ ボ ン ヒ ー タ	〃	〃	大科電器㈱
ノズル取付フランジ	現 場 合 せ	〃	大科工業㈱
乾 式 ガ ス メ ー タ	ダイヤフラム式	NDP-2A-T	品川精器㈱
真 空 ポ ン プ	ダイヤフラム式	DA-60S	真空機工㈱
シリコンチューブ	ID $\phi 9$	—	市 販 品
銅 管	OD $\phi 10$	—	〃
バルブ、継手類	Brass 製 $\frac{1}{4}$ B	—	㈱フジキン

特注品であるガラス製機器及び配管部品、PVC製容器、木製収納箱等の外形図を図-3.4~3.11に示す。

また、購入品のうち真空ポンプと乾式ガスメータの仕様及び外形図をそれぞれ表-3.4,3.5と図-3.12,3.13に示す。



バイパスライン接続用

吸収ライン接続用

図-3.4 インラインフィルタ容器

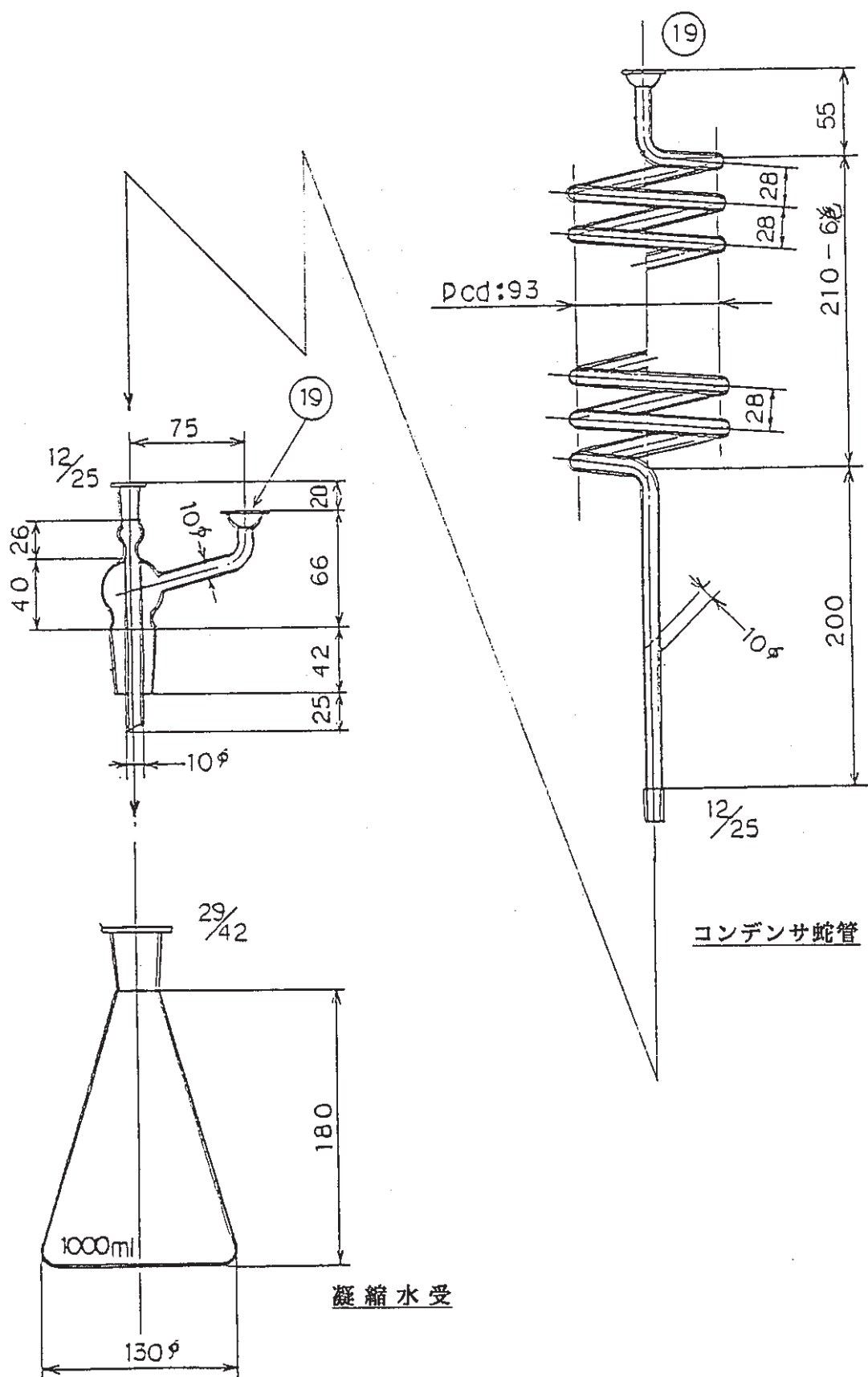
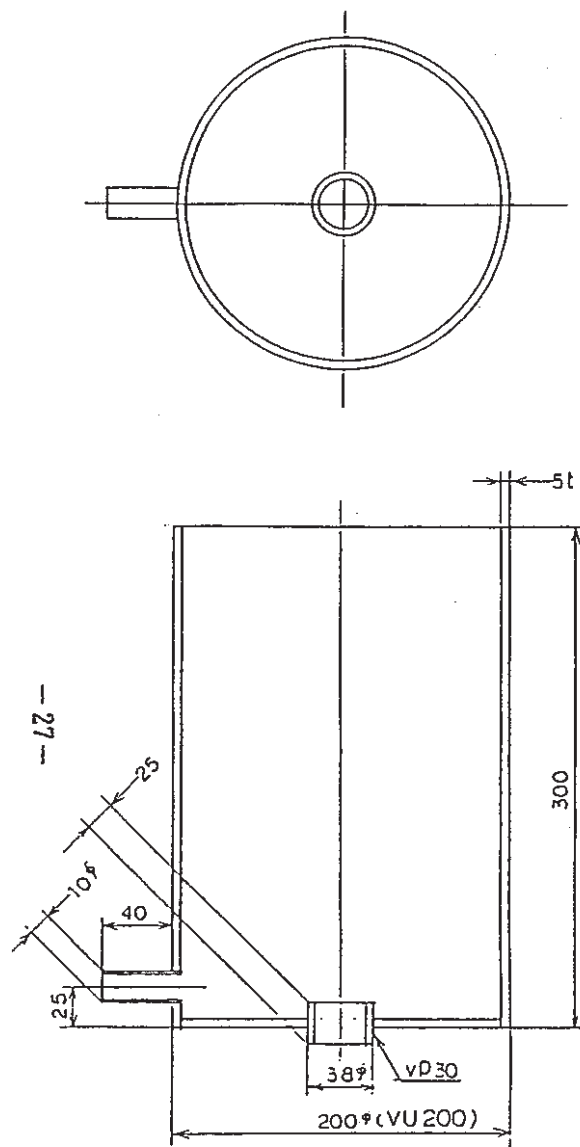
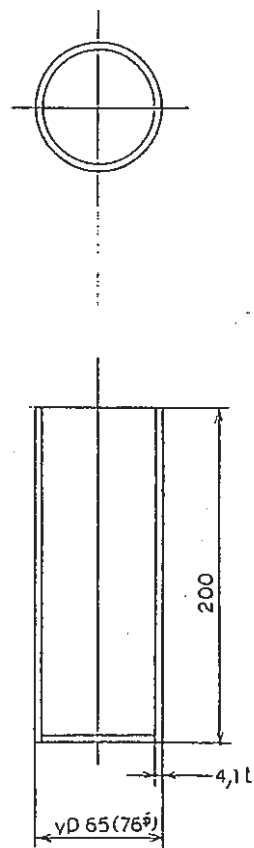


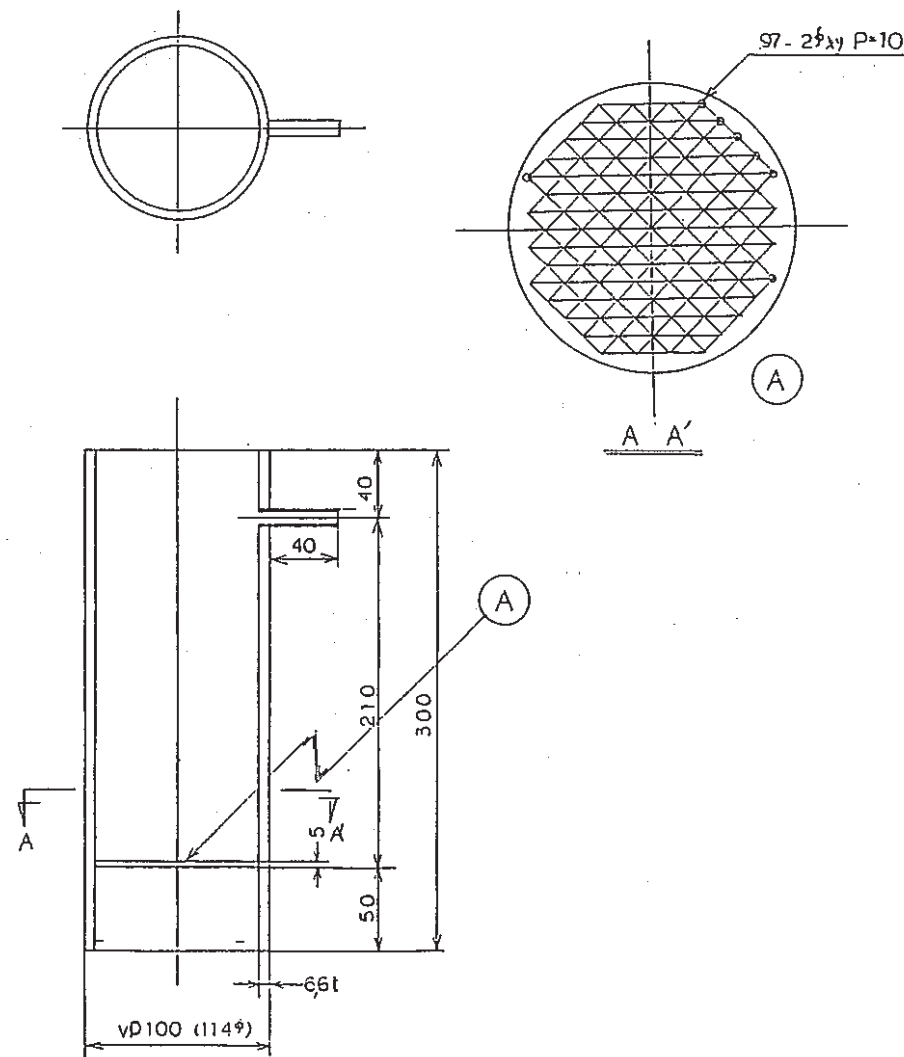
図-3.5 コンデンサ構成機器



コンデンサーバット



ミスト除去器



シリカゲルタンク

図-3.7 PVC 製 容 器 類

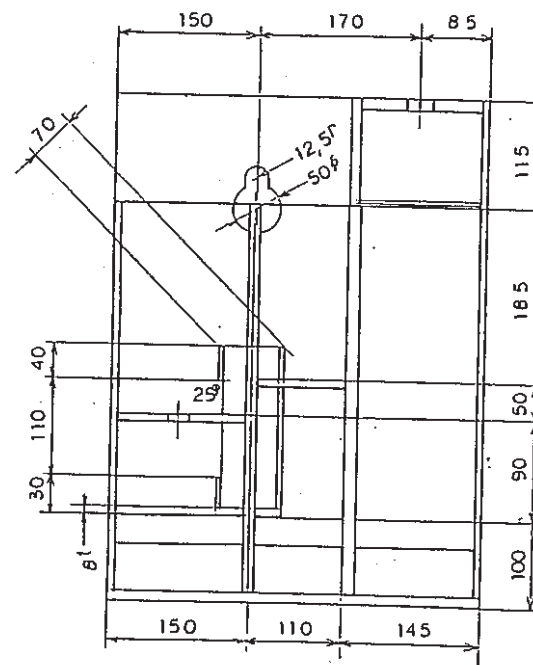


図-3.8 ルテニウムサンプリング装置収納箱

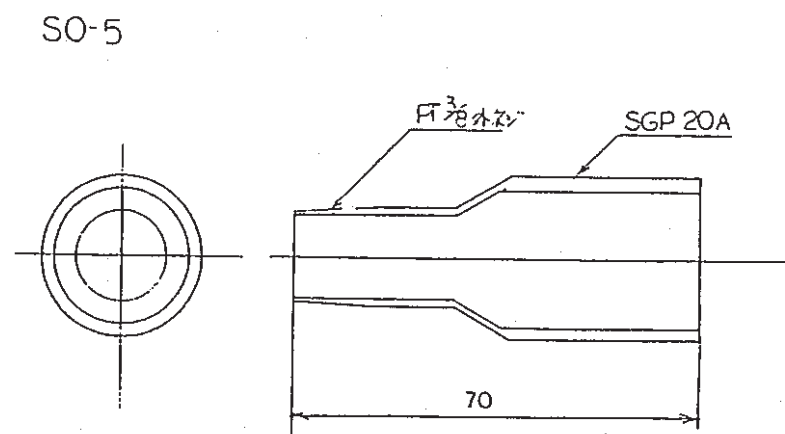
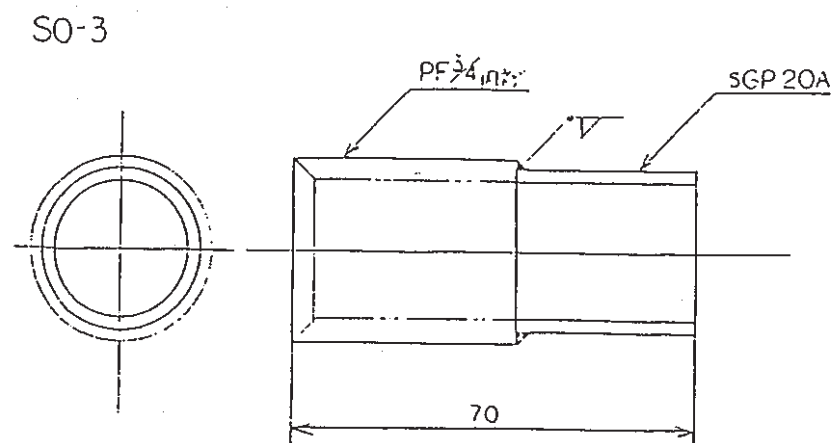
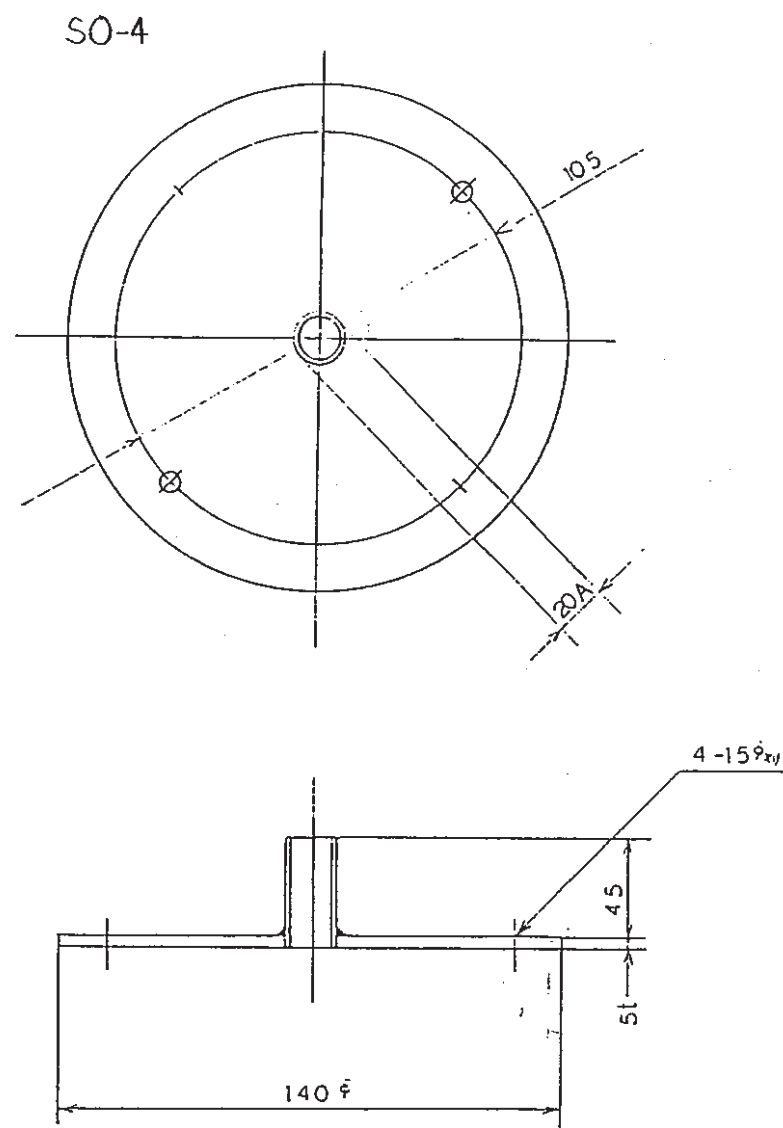


図-3.9 サンプリングノズル取付用フランジ(1/2)

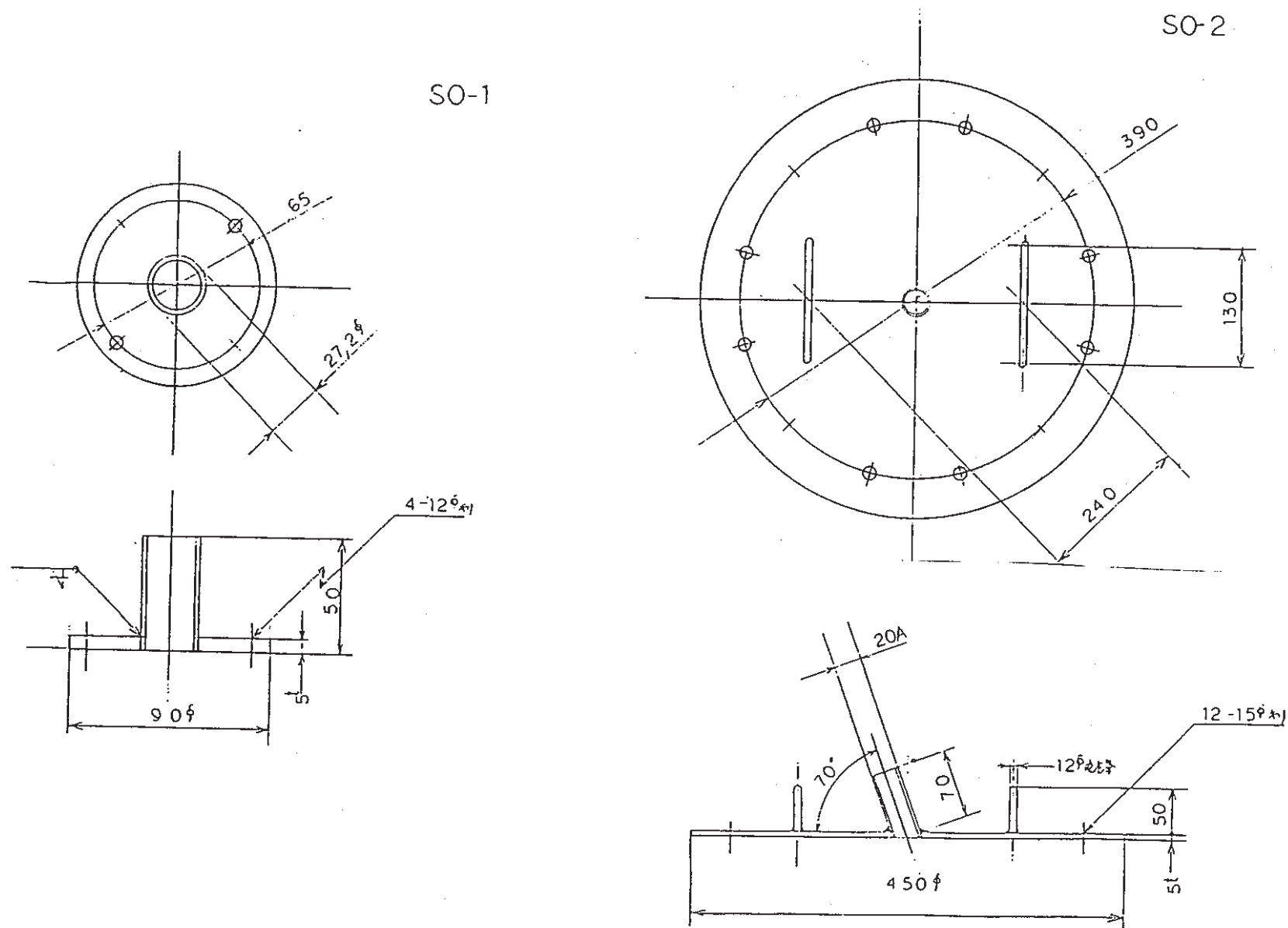


図-3.10 サンプリングノズル取付用フランジ(2/2)

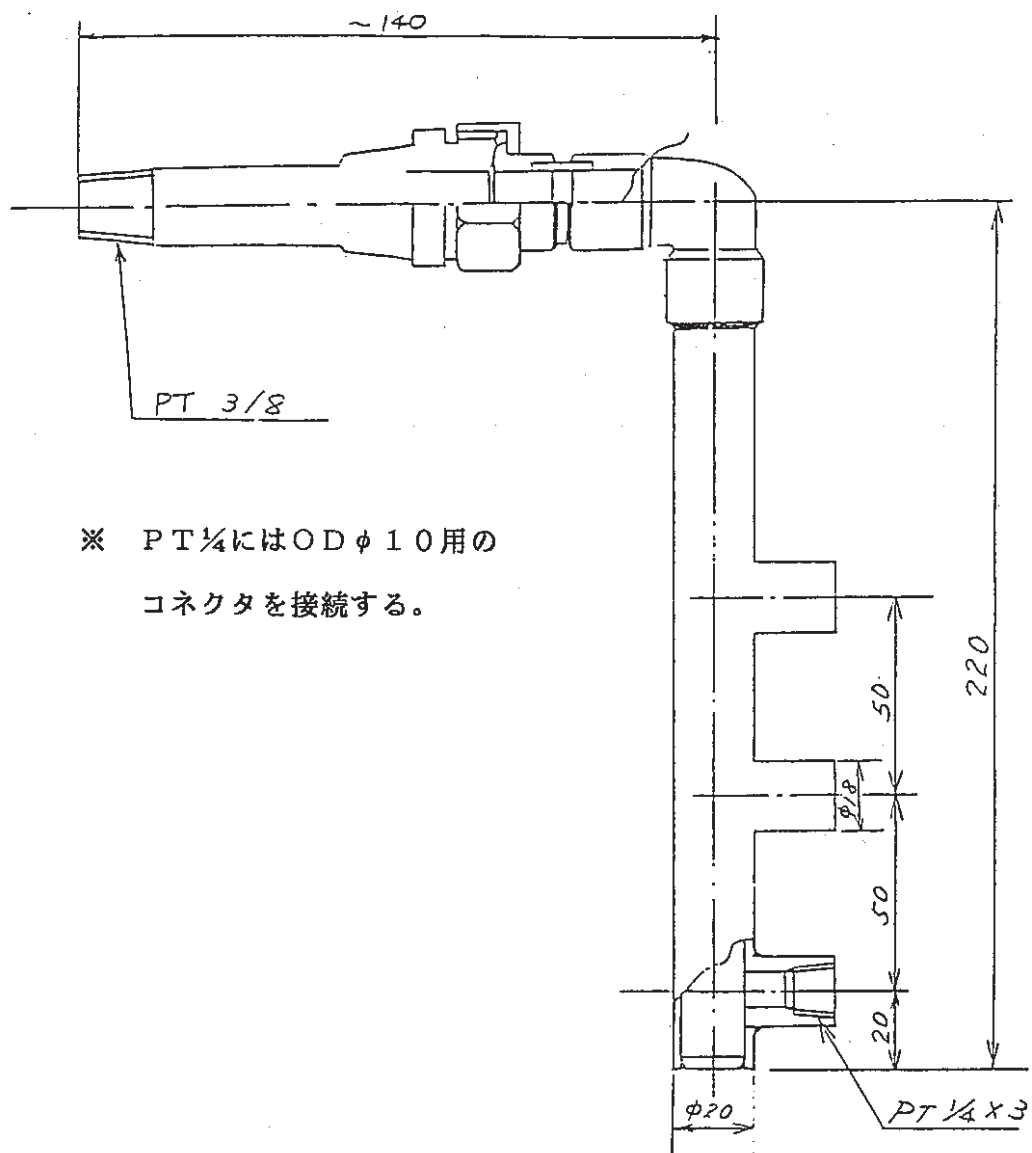


図-3.11 オフガスヘッダ

表-3.4 DA-60S型ダイヤフラム真空ポンプ仕様

項 目	型 式
	DA-60S
	50Hz
1. 排 気 速 度	60ℓ/min
2. 到 達 圧 力	160 Torr (21.28 Kpa)
3. モ ー タ ー	1φ. 100V. 200W. 4P. 分相始動
4. 電 源	1φ. AC100V. 50Hz
5. 定 格 電 流	5.6A
6. 回 転 数	144 r.p.m.
7. 重 量	11.8 kg
8. 吸 排 気 管	O.D.φ9 × I.D.φ5
9. 吸 引 対 象 物	
10. 雰 囲 気 温 度	7℃ ~ 40℃
11. 外 観 寸 法	W212×L275×H250(ゴム脚含む)

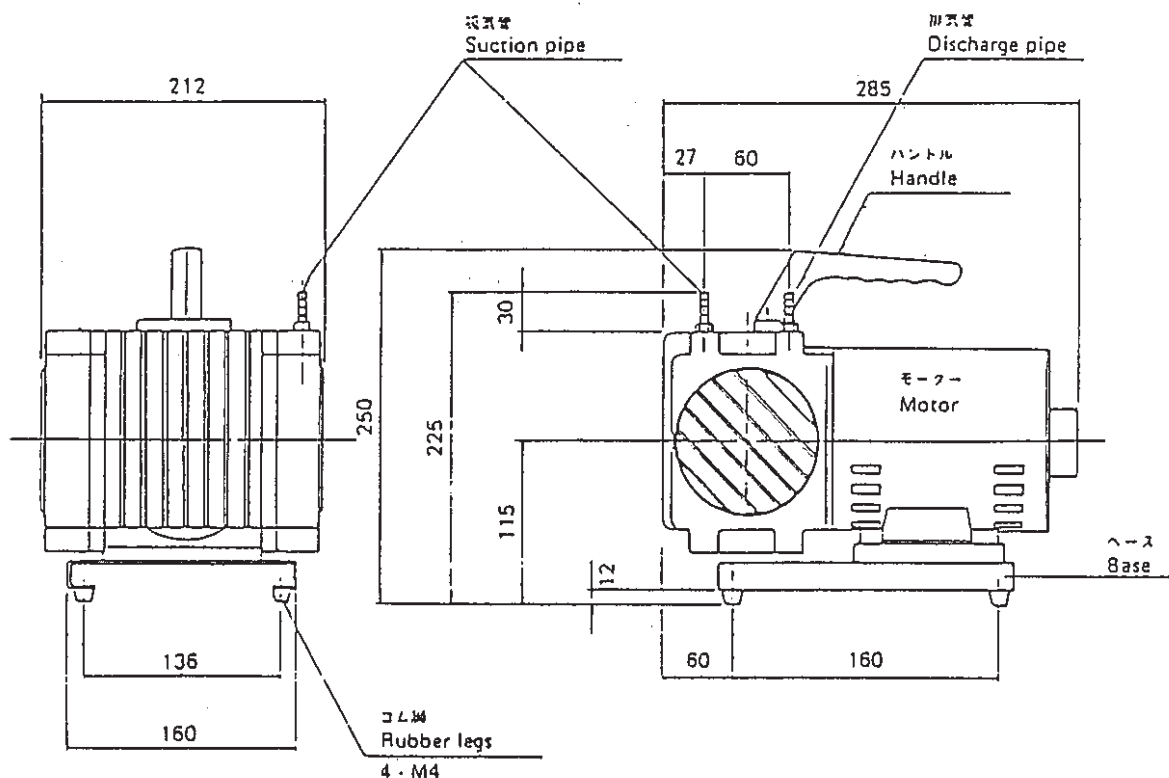


図-3.12 真 空 ポ ン プ

表-3.5 NDP-2A-T型乾式ガスメータ

仕 様

測 定 範 囲	5 ~ 1100		ℓ/h
ダイヤフラム容量	0.6		ℓ/rev
指 計 盤	最 小 目 盛	0.005	ℓ
	指 計 - 回 転	1	ℓ
	最 大 積 算 量	999 m ³ (デジタル7桁表示)	
発 信 取 付 部	回 転 取 出 軸	1	ℓ/rev
	適 合 発 信 器	D, L, A型いずれにも適合	
最 高 使 用 圧 力	1000		mmH ₂ O
使 用 温 度	-20 ~ 50		℃
材 質	ケ ー ス : スズメッキ鋼板 ダイヤフラム : テトロン基布ヒドリソグム 内 機 部 品 : アルミダイキャスト合金、黄銅、鉄 バルブ・シート : フッ素黒鉛入りフェノール樹脂 指 針 盤 : クロメート処理鉄板、黄銅、ジュラコン パ ッ キ ン : ニトリルソグム		
接 続 ゴ ム 管	内径φ(3/8)ソグム管、出入口に接手を付属		
塗 装	マンセル値 N 3.0 レザートーン		
製 品 重 量	5.3 kg		

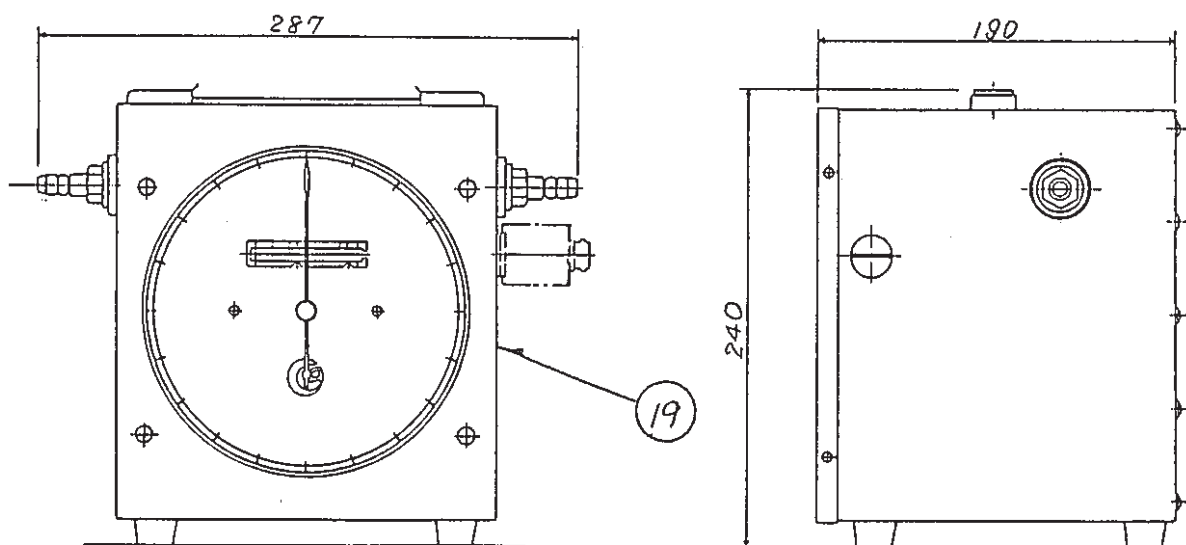


図-3.13 乾式ガスメータ

3.2.4 ルテニウムサンプリング装置の運転操作方法

本装置は焼却設機器揮発性核種に対する除染性能を調べるために、プロセスオフガスをサンプリングしてその中に含まれる揮発性核種をトラップすることを目的とするものであり、サンプリング部、吸収部、ガス量定量部および駆動部とから成る。

また、本装置は特にルテニウムを定量する目的から、吸収部以前の機器の接ガス部は全てガラスで構成されている。

本装置の仕様を表-3.6に示す。

表-3.6 ルテニウムサンプリング装置の仕様

名 称	ルテニウムサンプリング
処 理 物	焼却設備プロセスオフガス (120℃ Max)
処 理 量	0～20ℓ/min
温 度 条 件	常温～40℃ (max)
圧 力 条 件	サンプリングノズル～真空ポンプの間は負圧 (－5～－1000mmAg)
操 作	手動操作
ユーティリティ	電 気 (1φ AC 100V 50/60Hz) 冷 却 材 (氷) 吸 収 液 (H_2O , C_2H_5OH , HCl , KOH) ミスト除去材 (グラスウール) 乾 燥 材 (シリカゲル) 円筒ガラス濾紙 (TOYO No.86R : SO-1.2用のみ)

また、本装置のシリカゲル充填管以前の機器の組立外形図を、次頁の図-3.14に示しておく。

以下に本装置の運転操作手順について述べる。

(1) 運転準備

① 真空ポンプ、ガスメータ

各々の取扱説明書に従って各部の点検を行う。

② ガラス製機器、PVC製機器

有害な汚れ、傷、破損等が無いことを目視にて確認する。

③ チューブ、接続管等

有害な汚れ、傷、劣化等が無いことを目視にて確認する。

特に接続部が健全であることを確認する。

④ 吸収ビン（インピンジャ）

インピンジャに次の吸収液を各125mlずつ入れる。

1段目 : 1N-HClと C_2H_5OH の1対1混合液

2段目 : "

3段目 : 1N-KOH

⑤ ミスト除去器

ミスト除去器にグラスウールを目分量で容器の1/2～2/3まで入れる。

⑥ シリカゲル充填聴管

容器にシリカゲルをオフガス出口の3～5cm下まで入れる。

⑦ インラインフィルタが設置されている装置については、沔紙を装着する。

(装着方法については(3).(ii).a.③参照)

⑧ 各部の接続の再確認

各部接続が確実に接続され、ぐらつき等の無いことを再確認する。

⑨ コンデンサ

ピンチコックが閉じていることを確認してからコンデンサバットにコンデンサ蛇管がかくされるまで氷（または氷+水）をいれる。

⑩ 流量調整用ニードル弁

流量調整用ニードル弁を全開にする。

⑪ ボール弁

ガスメータと真空ポンプの間のボール弁を「閉」にする。

⑫ 三方コック

三方コックは、バイパスラインと吸収ラインをつないだ状態にし、真空ポンプのラインにはガスが流れない状態にする。

(2) 起動と流量調整

① インラインフィルタ用ヒータへの通電

運転準備が完了した後に、インラインフィルタが設置されている装置の保温用ヒータに通電し、加熱を行う。

② 真ポンプの起動

真空ポンプの取扱説明書に従い真空ポンプを起動する。

③ 三方コック

三方コックを操作してバイパスラインと真空ポンプのラインをつないだ状態にする。

④ ボール弁

ボール弁をゆっくりと「開」の状態にする。

⑤ 流量の予備調整

ガスメータの指針の回転に注意しながらできるだけゆっくりと流量調整用ニードル弁を「閉」の方向に回転させる。

指針の回転速度から流量を算出し、20 ℓ/minになればそれ以上ニードル弁を閉じない。

⑥ ラインの切り換えと流量調整

三方コックをすばやく操作して吸収ラインと真空ポンプのラインをつなぎ、ガスメータによりその時のガス流量を測定する。

その後で流量調整用ニードル弁を操作してガス流量を希望する値に設定する。

なお、ニードル弁を閉じるとサンプリングガス流量は増大し、開くと減少する。

(3) 運転中の保守作業

(i) 保守作業項目

- a. インラインフィルタ沝紙の交換
- b. コンデンサ冷却用氷の補充
- c. 凝縮水受けの交換
- d. 吸収液の補充
- e. ミスト除去器グラスウールの交換
- f. シリカゲル充填管シリカゲルの交換

(ii) 操作方法

a. インラインフィルタ沝紙の交換

① インラインフィルタの取り外し

インラインフィルタを取り外す前に、三方コックを操作してオフガスをバイパスラインに流す。そしてヒータを取り外す。

その後インラインフィルタを上流側から取り外し、装置の短管側には盲栓を取り付ける。

② 沝紙の取外し

取外したインラインフィルタをそのままビニール袋に入れ、蓋を外す。

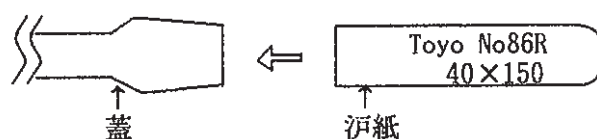
蓋と胴のうち、沝紙がついている方をビニールに残し、もう一方は袋から取り出す。

ピンセット等を用いて沝紙を取外し、沝紙のみをビニール袋内に残して蓋または胴を取り出し、ビニール袋を密閉する。

③ 新しい沝紙の装着

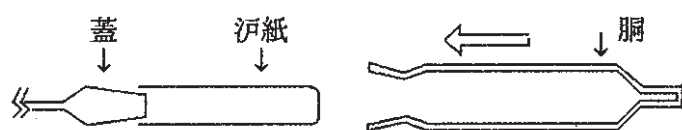
インラインフィルタへの沝紙の装着方法は、下図による。

(a)



※まず蓋に沝紙を
装置する。

(b)



④ インラインフィルタの復帰

装置の短管に取付けられた盲栓を取外し、インラインフィルタを装着する。
この時各接続部がしっかり固定されていることを確認してクリップを取付ける。
その後、三方コックを切り換えて、吸収ラインに流し、流量調整を行なう。

b. コンデンサ冷却用氷の補充

① 水のドレン抜き

氷の融けた水は、コンデンサバットのドレンホースを下方に向け、ピンチコックを開くことにより、バットの深さの1/3程度に減らす。

② 氷の補充

コンデンサ蛇管に無理な荷重やショックを与えぬよう注意しながら静かに補充する。

c. 凝縮水受けの交換

① オフガス流路の切換えとクリップ取外し

三方コックの操作により、バイパスラインにオフガスが流れる様にし、その後、凝縮水受の蓋とコンデンサ蛇管、およびコ字管との接続部のクリップを取外す。

② 凝縮水受の取外し

凝縮水受の首の部分を片手で支持し、軽く持ち上げる様にながら台板を手前に引き抜く。

次に、凝縮水受を支持している手の人差し指で蓋を軽く抑えて固定し、もう一方の手でコンデンサ蛇管およびコ字管との接続部を外して、凝縮水受を蓋と一緒に下方に取外す。

③ 凝縮水受の取付け

新しい凝縮水受に蓋を付替えて、下方からコンデンサ蛇管と接続する。(この時、片手でコンデンサ蛇管を軽く下方に引くようにして作業する)

次に台板を装着してその上に凝縮水受をおろし、それに合わせてコンデンサ蛇管を下に引きおろして完全に接続しなおす。

その後、コ字管を取付けて接続をもう一度確認する。

d. 吸収液の補充

① オフガス流路の切換えインラインフィルタ部の開放

三方コックを操作してバイパスラインにオフガスが流れる様にし、インラインフィルタ上部（SO-3～5についてはコンデンサ入口部）のジョイントを外して、盲栓をする。

② コ字管の取外し

コ字管を上流側（凝縮水受側）から順番に取外す。

③ 吸収液の補充

（インピンジャ(1)(2)には1N-HClと C_2H_5OH の1:1混合液を、(3)には1N-KOHをそれぞれ補充して全量125mlとする。

④ 装置の復帰

①～③の操作を逆の順番で行って装置を復帰する。

e. ミスト除去器グラスウールの交換

① オフガス流路の切り換えと停止

三方コックを操作してバイパスラインにオフガスが流れる様にし、ボール弁を閉じてから三方コックを再操作して、バイパスラインと吸収ラインがつながった状態にする。その後、三方コックから真空ポンプのラインのシリコンチューブを外して、ボール弁を開き、しばらく外気を流すことによりオフガスをミスト除去器から除去してから再びボール弁を閉じ、更に真空ポンプを停止する。

② グラスウールの交換

ミスト除去器の蓋を開け、グラスウールを交換して蓋をする。蓋はシリコン系シーラ材で固め密閉する。

③ 装置の復帰

三方コックのラインを再接続し、起動時と同様の装作で装置を再起動する。

f. シリカゲル充填管のシリカゲルの交換

① 方 法

シリカゲルの交換手順はグラスウールの交換と同様である。(e.②参照)

(iii) 保守作業の実施時期

原則として次の時に各作業を行う。

a. インラインフィルタ汙紙の交換

明らかにフィルタ圧損が高まった時。

なお、フィルタ圧損は、ニードルバルブ開度やガス流量の低下より判断する。

b. コンデンサ冷却用氷の補充

目視にて必要と認められた時。

c. 凝縮水受の交換

目視にて凝縮水量がフラスコの8分目を越えた時、及び定時間おき。

d. 吸収液の補充

目視にて吸収液が75ml以下になった時。

e. グラスウールの交換

特に必要と考えられる場合。

f. シリカゲルの交換

適宜。

(4) 運転終了

運転終了時には、装置内のオフガスを空気に置換し、安全に作業をする。手順は以下の通りである。

① オフガス流路の切換えとガス置換

三方コックを操作して、バイパスラインにオフガスを流し、吸収ラインをT字管から切り離してT字管側には盲栓をする。そして再び吸収ライン側に三方コックを切り換え、しばらくしてから、T字管をサンプリングノズルから切り離してサンプ

リングノズル側に盲栓をし、三方コックをもう一度切り換えて、今度はバイパスラインの空気置換を行う。

② 吸収ラインの解体

バイパスラインに空気を流した状態で、吸収ラインの各接続部を上流側から順番に切り離す。

③ 真空ポンプの停止

ニードルバルブを全開にし、真空ポンプを停止する。

3.3 試 験 方 法

3.3.1 概 要

除染性能試験は焼却設備のSO-1～5(図-3.2参照)に3.2で述べたルテニウムサンプリング装置を据え付け、10日間の焼却炉運転期間中オフガスを連続サンプリングすることによって行う。

また、本試験に入る前の焼却設備の定期点検時に機器の清掃・除染を行っておき、焼却炉の昇温後ケロシン専焼を24時間行ってバックグラウンドを測定しておく。

試験実施により得られた試料は、放射能計測システム“キャンペラジュピター”によりルテニウムの定量を行う。

3.3.2 バックグラウンド試料の採取

本試験は、定検除染直後の焼却設備にて行われるが耐火物等に付着したルテニウムを完全に除去するのは不可能であり、焼却炉運転時にこれらの残留しているルテニウムの一部が揮発してオフガス中に移行する可能性がある。

そこで、この移行量を把握するために、昇温後の焼却炉においてはケロシンの専焼を1日間行い、この間オフガスサンプリングを行ってオフガス中のルテニウムを定量する。なお、試料採取方法、手順については除染性能試験と同様である。(3.3.3参照)

ただし、ケロシン専焼時には焼却灰や煤はほとんど発生しないためSO-1～5のみをルテニウム量測定対象とし、焼却灰やスラッジ等の試料採取は行わない。

試料中に検出されたルテニウムは、除染性能試験実施時にも定量的に発生しているものと考え、バックグラウンドとして取扱う。

3.3.3 除染性能試験

(1) 期 間

1 キャンペーン 10日間

(昇温、降温バックグラウンド測定は含まない。)

(2) サンプルングポイント

基本的に前出の表-3.1 (3.1.2参照)の通りとする。ただし、表中の※印の項目については測定しない。

(3) 焼却処理物

① 廃棄剤

焼却方法 : バーナスプレー燃焼 (カルシウムオクチエイト法)

処 理 量 : $\sim 7 \ell / \text{Hr}$

放射性Ru濃度 : $\sim 10^{-1} \mu\text{Ci}/\text{cc}$

TBP濃度 : 3~10%

② $\beta\gamma$ -固体可燃物

主な成分 : 酢酸ビニールシート、紙類、ウェス等

焼却方法 : 火格子焼却

処 理 量 : $\sim 10 \text{ kg}/\text{袋} \times 1 \text{ 袋}/\text{hr}$

放射性Ru濃度 : $\sim 0 \mu\text{Ci}/\text{g}$ (バックグラウンドレベルの廃棄物)

(4) 計測方法とスケジュール

各サンプルングポイントにおける試料の採取は以下の様に行う。

(i) 廃棄剤中のルテニウム量 : Di

廃棄剤は10日間の焼却炉運転期間中に3~5回程度受け入れる。

従って廃棄剤中のルテニウム量の測定は、受け入れの都度行うものとする。

(ii) オフガスのルテニウム量 : SO-1~5

SO-1~5に設置されたルテニウムサンプルング装置のオフガスサンプルング量は10~20 ℓ/min の範囲にあるように設定する。

ルテニウムサンプルング装置からは、インラインフィルタ沝紙(SO-1, 2のみ)、凝縮水、吸収液の3種の試料が得られる。

① インラインフィルタ沝紙

フィルタ圧損を常時監視しておくのは困難であるため、沝紙の交換は1日1回づつ行うものとする。

使用した汚紙は全てルテニウム量測定用の試料とするためマジックシール付のポリ袋を2重にしてその中に入れて保管する。

② 吸収液

各装置ごとに3本のインピンジャがあり、各々に吸収液が入っている。試料採取時には吸収液量を正確に125mlにメスアップして良く攪拌し、メスピペットで50mlを採って専用のポリ容器に封入する。

1段目と2段目の吸収液試料採取スケジュールを表-3.7に示す。

表-3.7 吸収液試料採取スケジュール

サンプリングポイント	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
SO-1	○	○			○					○
SO-2	○	○			○					○
SO-3	○	○			○					○
SO-4		○			○					○
SO-5		○			○					○

またオフガス中のルテニウムの大部分は2段目のインピンジャまでで吸収され、3段目の吸収液中に蓄積する量は非常に少ないと考えられるため3段目の吸収液は10日間の試験終了時にのみ採取することにする。

③ 凝縮水

凝縮水は全て計量してポリタンクに保管しておき、このポリタンクを表-3.7のスケジュールにて交換して各々のポリタンクから50mlずつの試料を採取する。試料は吸収液同様メスピペットで採取し、専用ポリ容器に入れておく。

(iii) 焼却灰、スラッジ、スクラバ水 : SA-1, 2, SS-1, SL-1

試料は試験のための焼却炉運転終了後のメンテナンス時に採取する。

3.3.4 試料中のルテニウム量の測定

試験実施により採取した試料中のルテニウムの定量は動燃事業団殿所有の下記の機器により、試料の γ 線スペクトルを測定することにより行う。

(i) 種類及び機種名

キャンベラ製純半導体検出器システム

“キャンベラジュピター”

(ii) ^{106}Ru 検出限界

50 ml の液体試料に対し約1 hrの計測を行った場合、以下となる。

$1.0^{-6} \mu\text{Ci}/\text{ml}$

4. 焼却設備運転時のルテニウム試料の採取

4.1 実施概要

本試験は昭和61年4月12日～24日の焼却設備運転に伴って実施された。

焼却設備の運転はほぼ計画通りに行われ、途中バグフィルタダストの払落としと灰・煤の流し出しが各1回行われた。

ルテニウムサンプリング装置に関しては、三方コック部が詰まったり、インピンジャのノズルが析出物で詰まったりするといった様ないくつかのトラブルが発生したが、その都度対応修理が可能である程度のものであり、ほぼ予定どおりの試料採取を行うことができた。

4.2 焼却設備運転状況

4.2.1 運転日程

- | | |
|--|-------------|
| ① 昇 温 | : 4月12日～13日 |
| ② ケロシン専焼による温度維持
(バックグラウンドの測定) | : 4月13日～14日 |
| ③ 廃希釈剤と $\beta\gamma$ -固体可燃物混焼
(本試験の実施) | : 4月14日～24日 |

4.2.2 炉内温度

- | | |
|-----------|------------|
| ① 第1燃焼室 | : 600～800℃ |
| ② 第2・3燃焼室 | : 700～900℃ |

4.2.3 焼却処理物 : Diにおけるデータ

(1) 廃希釈剤

廃希釈剤は本試験期間中に5回受け入れた。これらの廃希釈剤の処理量及びルテニウム濃度等のデータを表-4.1に示す。

表-4.1 Diにおける測定データ

移送日	TBP濃度 (%)	処理量 (ℓ)	^{106}Ru 濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)	^{106}Ru 総量 (mCi)	備考
4/1	9.8	334	6.6×10^{-2}	22.0	4/14, 1勤 ~4/16, 1勤
4/16	3.3	346	6.4×10^{-1}	221.4	~4/18, 1勤
4/18	7.3	270	4.9×10^{-1}	126.9	~4/19, 3勤
4/20	不明 ^{※)}	328	4.7×10^{-2}	15.4	~4/21, 3勤
4/22	7.1	264	4.6×10^{-1}	121.4	~4/23, 3勤
合計		1542		507.1	全 240 hr

※) 水相分につきTBP濃度は不明である。

なお、試験期間中の廃希釈剤処理は次の速度で行われたことになる。

$$1542 (\ell) \div 240 (\text{hr}) = 6.43 (\ell/\text{hr})$$

(2) $\beta\gamma$ -固体可燃物

試験期間中、10 kgずつ袋詰めにした $\beta\gamma$ -固体可燃物を1時間に1個の割合で投入した。総処理量は以下の様になる。

$$\sim 10 (\text{kg}/\text{hr}) \times 240 = \text{約} 2400 \text{ kg}$$

(3) 焼却設備への ^{106}Ru のINPUT量に関する補足

廃希釈剤中の放射性ルテニウムは大部分が ^{106}Ru で、相対的に ^{103}Ru は微量であった。

また、 $\beta\gamma$ -固体可燃物に関しては、3.1.3で述べた様にこの中に含まれるルテニウムを無視することになっていたもので、表面線量率の低いバックグラウンドレベルのものを選んで焼却を行った。

以上より、本試験期間中、すなわち10日間の廃棄物焼却によって焼却設備にINPUTされたルテニウム量は以下の通りである。

$$10 \text{ 日間の } ^{106}\text{Ru-INPUT 量} : 5.07 \times 10^5 \mu\text{Ci}$$

4.2.4 オフガス流量

本焼却設備のオフガス処理系においては、低温熱交における灰落し時等の特別な場合を除けば、オフガスの空気による希釈等の操作は全く行われず。つまり、水分や極微量の酸性ガス等を除いたオフガス流量はオフガス処理プロセスを通して変化しないのである。そこでバグフィルタ出口のダクト部分（S O - 3 の部分）でこのオフガス流量を測定することにした。

測定によれば、オフガス流量は焼却炉内の $\beta \gamma$ - 固体可燃物の燃焼状況等により大きく変化するがだいたい $1150 \sim 1350 \text{ Nm}^3/\text{hr}$ の範囲にあることがわかった。
(温度 : $\sim 60^\circ\text{C}$)

従って $2 \sim 8 \text{ vol}\%$ 程度の水分の存在等を考慮した平均的なオフガス流量は、ドライベースで以下の様になる。

$$1200 \times (1 - 0.05) \times \frac{273}{273 + 60} = 950 \text{ Nm}^3/\text{hr}$$

4.2.5 プロセス機器メンテナンスの実施

焼却設備運転中に次のメンテナンスが行われた。

(1) バグフィルタダスト払落し

実施日 : 4月19日

実施理由 : バグフィルタ圧損が目詰りにより大きくなったため。

(2) バグフィルタ内作業

実施日 : 4月20日

実施理由 : (1) の実施により、バグフィルタエレメントが1本だけ外れてしまい、煤漏れが検知されたため。

(3) 灰・煤の流出し

実施日 : 4月20日

実施理由 : 灰・煤の蓄積

なお、(1)、(3)の方法は3.1.1で述べた通りである。

4.3 ルテニウムサンプリング装置による試料の採取

4.3.1 ルテニウムサンプリングに採用した試薬類

ルテニウムサンプリング装置では、ルテニウムの吸収のために次の様な吸収液を用いており、またバックアップ用のシリカゲルを有している。

表-4.2 ルテニウムの吸収液

用途	組成
吸収液1	1N-HCl + C ₂ H ₅ OH : 1対1混合液
吸収液2	1N-KOH 水溶液

そのため本試験では表-4.3に示す試薬を用意し、使用した。

表-4.3 試験に使用した試薬類

	仕様	メーカー
塩酸	試薬特級 HCl 35% 水溶液	キシダ化学(株)
エタノール	試薬特級 C ₂ H ₅ OH 99.5%	キシダ化学(株)
苛性カリ	試薬特級 KOH 85% ペレット	キシダ化学(株)
シリカゲル	FD-40 ビーズタイプ	富士デヴィソン化学(株)

なお試薬の調整は動燃事業団殿支給の純水を用いて行った。

4.3.2 ルテニウムサンプリング装置の設置

焼却設備オフガス中のルテニウムを定量するために、ルテニウムサンプリング装置を焼却設備のSO-1～5（図-3.2参照）に設置した。

サンプリングノズルは専用フランジ若しくはボス等により焼却設備機器やダクト部に固定したが、この時インラインフィルタを設置するSO-1、及びSO-2については揮発性成分や水分等が配管やフィルタ沍紙上で凝縮するのを防ぐため、ノズル取付部からインラインフィルタまでをリボンヒータで被覆した。

サンプリングノズル取付例を写真-4.1,4.2に示す。

またルテニウムサンプリング装置の本体部分は焼却設備構造材との相互干渉を避け、足場等を組んで設置した。設置された装置の様子を写真-4.3～4.7に示す。

ルテニウムサンプリング装置のシリカゲル充填管より後段の機器及び配管は本体部分とは別の土台の上に設置し、写真-4.8に示す様に、バルブ類は操作しやすい様に手摺りやサポート等に固定した。

更に、装置を通過したオフガスはデミスタ入口のノズルからプロセスに戻る様に銅管で配管した。

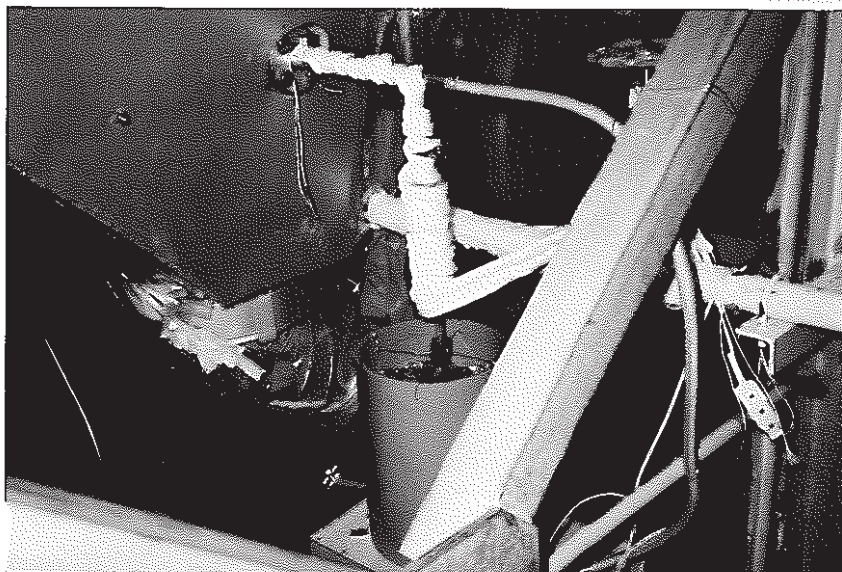


写真-4.1 サンプルングノズル取付例（SO-1）

SO-1, 2においては、ノズル取付部からインラインフィルタまでをリボンヒータで加熱し、この間にオフガス中の成分が結露しない様にした。

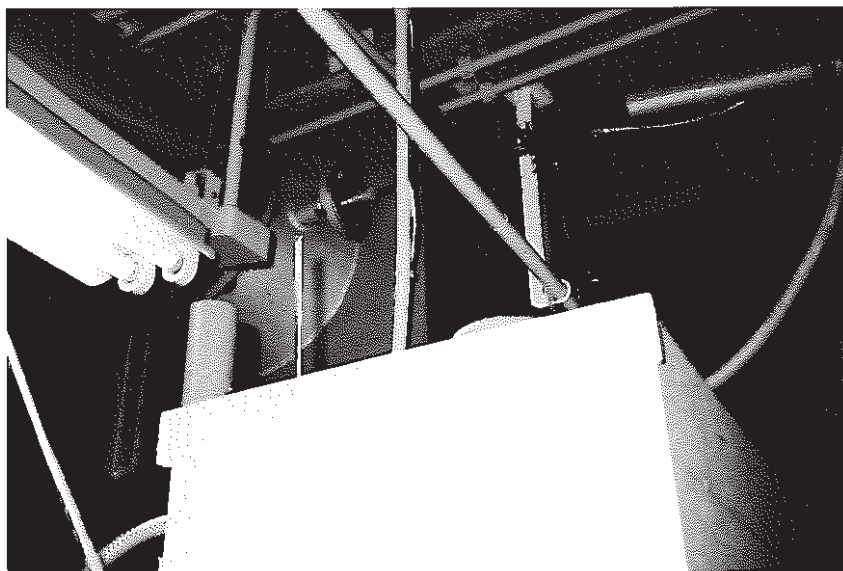


写真-4.2 サンプルングノズル取付例（SO-4）

SO-3～5においては、オフガス吸引部の加熱を行わない。
サンプルングノズルは専用フランジ等により取付けられている。

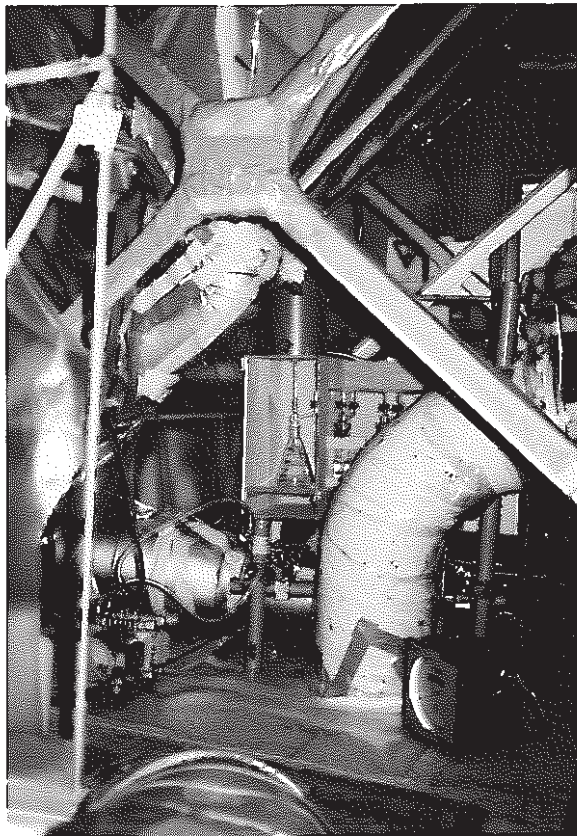


写真-4.3

SO-1 設置のルテニウムサンプ

リング装置

- 低温熱交換器 (L.T.) 下部の
サンプリングポイントである。

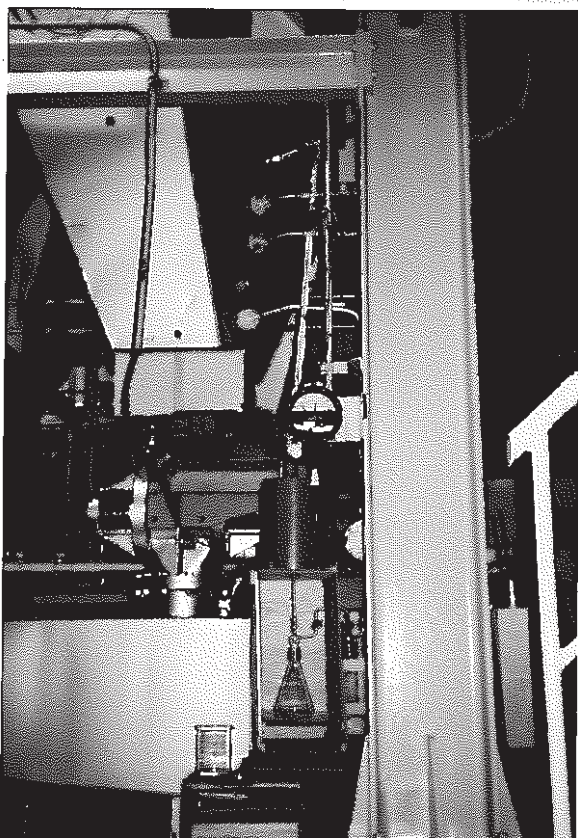


写真-4.4

SO-2 設置のルテニウムサンプ

リング装置

- バグフィルタ下部 (オフガス入
口側) のサンプリングポイントで
ある。

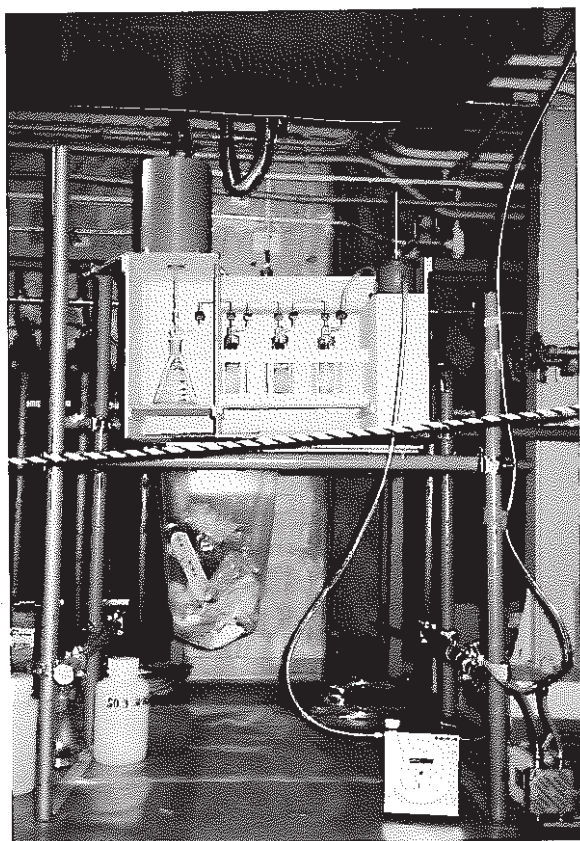


写真-4.5

SO-3 設置のルテニウムサンプ

リング装置

- H E P A フィルタ入口側のダクト部のサンプリングポイントである。
- 同じ位置にあるノズルにおいてオフガス流量測定を行った。

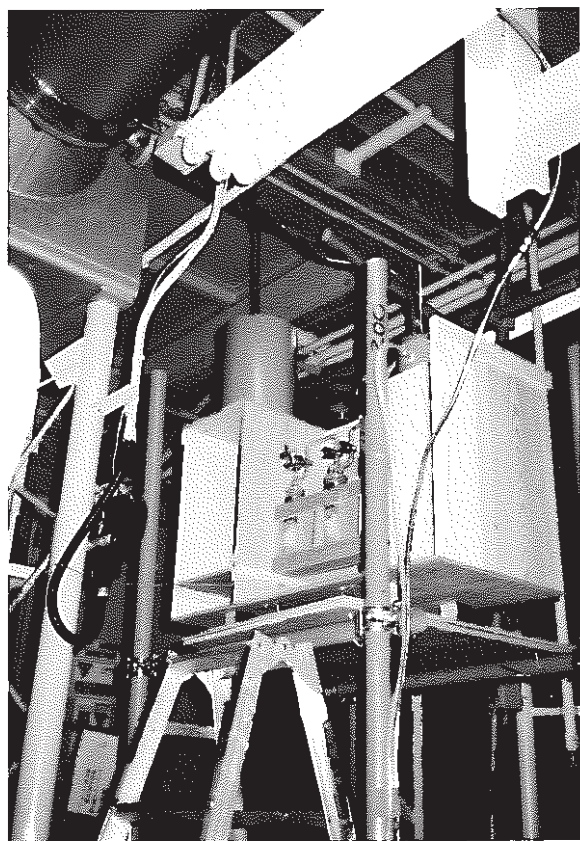


写真-4.6

SO-4 設置のルテニウムサンプ

リング装置

- H E P A フィルタ出口側のダクト部のサンプリングポイントである。

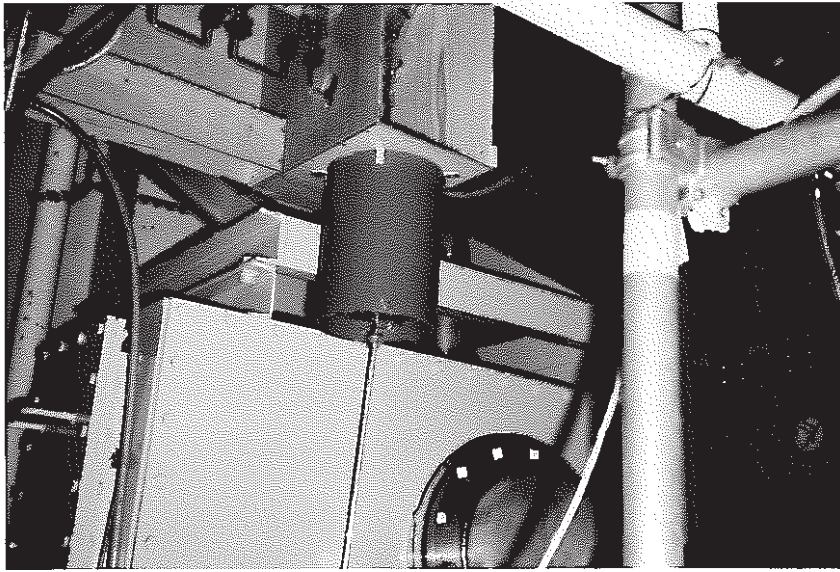


写真-4.7 S O - 5 設置のルテニウムサンプリング装置

○デミスタ出口部のサンプリングポイントである。

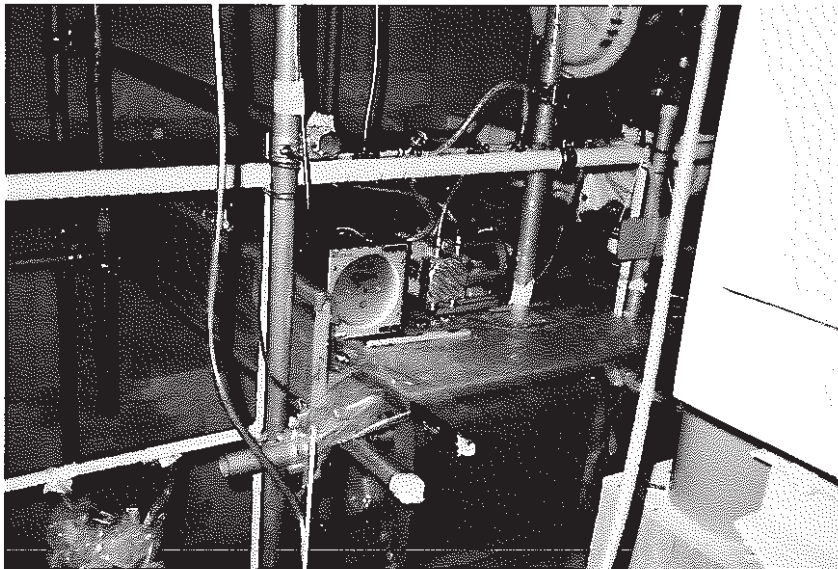


写真-4.8 真空ポンプとガスメータ等の設置例

○バルブ類は手すりや足場等に固定した。

4.3.3 ルテニウムサンプリング装置の運転状況

サンプリングノズルから吸引されたオフガスは、S O-1, 2においてはインラインフィルタでダストを除去されてから、その他においてはそのまま、コンデンサに導かれる。コンデンサではオフガス中の水分が凝縮し、同時にオフガス中の低露点成分も凝縮して凝縮水受に溜まる。その後オフガスはルテニウム吸収液の入ったインピンジャ内をバブリングしながら通過する。従って、吸収されたオフガス中のルテニウムはインラインフィルタのフィルタダスト、凝縮水、吸収液のどれかに捕集される。

運転中のルテニウムサンプリング装置のインピンジャ内でバブリングしている様子を写真-4.9に示す。

また、コンデンサ凝縮水が凝縮水受（1ℓ三角フラスコ）に溜まっている様子を写真-4.10に示す。

試験中、ルテニウムサンプリング装置の運転条件は以下の通りであった。

- ① サンプルオフガス流量 : 7~20ℓ/min
- ② 吸収液の補充 : 1回/約4hr
- ③ コンデンサ用氷の供給 : 約30kg/day・装置
- ④ 凝縮水受の交換 : 1回/day

なお、ミスト除去器のグラスウールやシリカゲル充填管のシリカゲルの交換は、11日間の試験期間中不必要であった。

また、ルテニウムサンプリング装置の運転は基本的に11日間（バックグラウンドの測定日も含む）の連続運転であり、下記に示す時のみオフガスサンプリングを停止した。

- ① 吸収液等の試料採取時
- ② 凝縮水受交換時
- ③ 三方コックの清掃等オフガス流路のメンテナンス時
- ④ 焼却設備において作業が行われている時

- 〔 灰・煤の払落し及び流し出し作業
- 〔 バッグフィルタメンテナンス作業

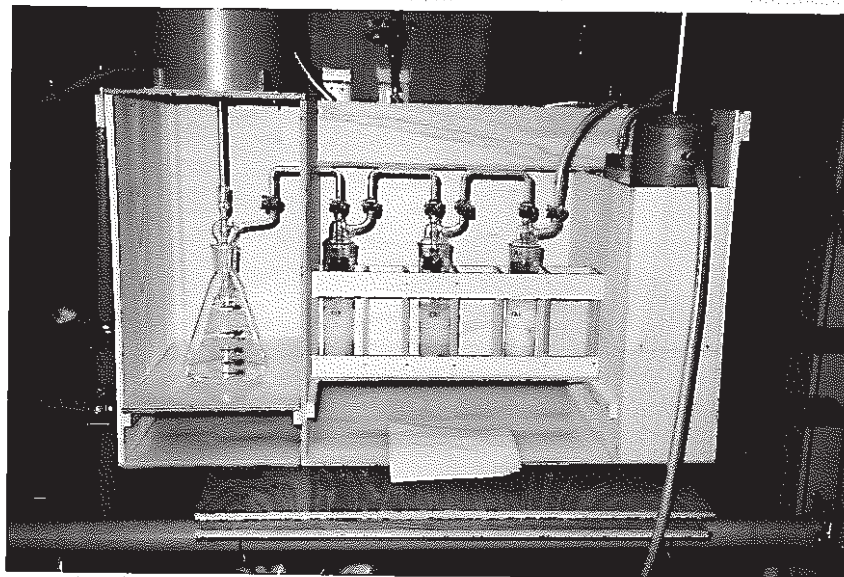


写真-4.9 運転中のルテニウムサンプリング装置

○インピンジャ内では吸収液が激しくバブリングしている。

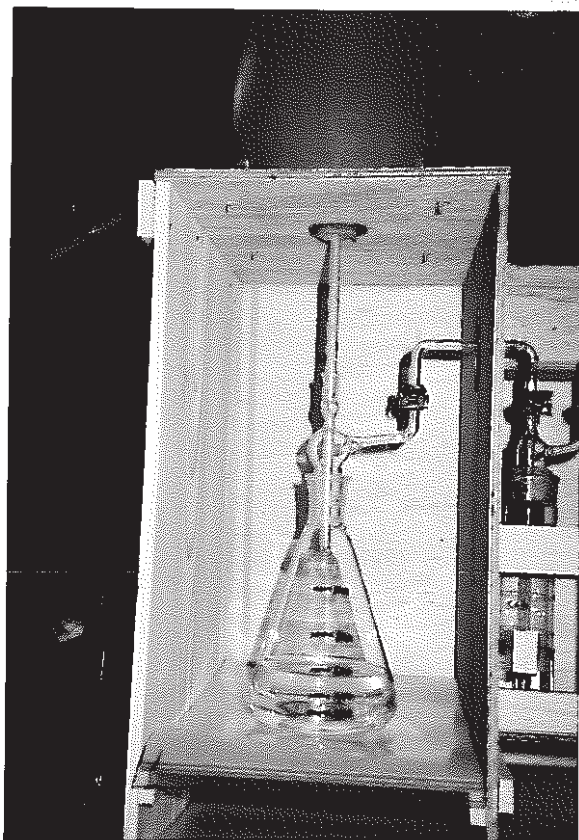


写真-4.10

凝縮水の捕集状況

○凝縮水受に溜まった液体は薄黄色に着色していた。

以上の様なルテニウムサンプリング装置の運転により、SO-1～5のそれぞれにおいて約130～180Nm³のオフガスサンプリングを行い、その中のルテニウムを捕集した試料が得られた。

4.3.4 試料の採取

(1) 採取試料とサンプリングガス量

SO-1～5に設置したルテニウムサンプリング装置によりオフガス中のルテニウムを捕獲した試料を採取した。試料はフィルタ沍紙（SO-1，2のみ）、凝縮水、吸収液1～3の計5種類であり、試料番号は次のようにつけた。

(例) 1 A 1 - 0 5 ……「SO-1の吸収液1の5番目の試料」



SO-1 : 1	フィルタ沍紙 : F
SO-2 : 2	凝縮水 : C
SO-3 : 3	吸収液1 : A 1
SO-4 : 4	" 2 : A 2
SO-5 : 5	" 3 : X

各装置において得られた試料とその採取日、その間のオフガスサンプリング量及び凝縮水量等をまとめ、表-4.2(1)~(5)に示す。

なお表中のサンプリングガス量 [Normal-ℓ] の値は、温度やガスメータ器差により補正した値であり、シリカゲル充填管等を通過しているため乾きオフガス量と見なせる。

また1C-03が欠番になっているのは、三方コックの詰まりによるオフガスサンプリング流量の低下と氷が不足してしまったために凝縮水が50ml得られなかったためであり、予定していた以外に1A1-04の試料の採取を行ったのは、ルテニウムが吸収液中に捕集されていることを確認するための試料としたからである。

表-4.4.(1) S O - 1 Data Sheet

サンプリングガス温度：100℃ ガスメータ器差：+0.3%

採取日	試 料 番 号					サンプリング ガ ス 量 [actual-ℓ]	ガスメータ部 温 度 [℃]	サンプリング ガ ス 量 [Normal-ℓ]	凝縮水量 [ml]	備 考
	フィルタ汚紙	凝縮水	吸収液1	吸収液2	吸収液3					
4/14	1F-01	1C-01	1A1-01	1A2-01		21466	33	19090	280	バックグラウンド試料
4/15	1F-02	1C-02	1A1-02	1A2-02		14604	27	13250	80	
4/16	1F-03		1A1-03	1A2-03		11359	28	10270	0	*三方コック詰まる。 *1C-03は欠番
4/17	1F-04					16312	28	14750	390	
4/18	1F-05		1A1-04			16381	28	14810	300	
4/19	1F-06	1C-04	1A1-05	1A2-04		14484	29	13050	320	
4/20	1F-07					14047	29	12660	380	
4/21	1F-08					18648	29	16810	400	*バグフィルタのメンテナンスのため 1.5hr停止
4/22	1F-09					5961	28	5390	210	*4/21~22 三方コック詰まる。
4/23	1F-10					17975	31	16093	400	
4/24	1F-11	1C-05	1A1-06	1A2-05	1×	15143	31	13560	400	

表-4.4.(2) S O - 2 Data Sheet

サンプリングガス温度：80℃ ガスメータ器差：+0.1%

採取日	試 料 番 号					サンプリング ガ ス 量 [actual-ℓ]	ガスメータ部 温 度 [℃]	サンプリング ガ ス 量 [Normal-ℓ]	凝縮水量 [mℓ]	備 考
	フィルタ汙紙	凝縮水	吸収液1	吸収液2	吸収液3					
4/14	2F-01	2C-01	2A1-01	2A2-01		22999	33	20450	430	バックグラウンド試料
4/15	2F-02	2C-02	2A1-02	2A2-02		21156	28	19170	400	
4/16	2F-03		2A1-03	2A2-03		13895	29	12550	120	*三方コック詰まる。
4/17	2F-04					18094	28	16390	450	*バグフィルタのメンテナンスのため 1.5hr停止
4/18	2F-05					20047	27	18220	450	
4/19	2F-06	2C-04	2A1-04	2A2-04		18057	28	16360	480	
4/20	2F-07					18254	27	16590	520	
4/21	2F-08					17770	28	16100	500	*バグフィルタのメンテナンスのため 1.5hr停止
4/22	2F-09					18743	29	16930	580	
4/23	2F-10					19826	29	17900	500	
4/24	2F-11	2C-05	2A1-05	2A2-05	2×	17457	28	15820	440	

表-4. .(3) SO-3 Data Sheet

サンプリングガス温度: 60℃ ガスメータ器差: +0.2

採取日	試料番号					サンプリング ガス量 [actual-ℓ]	ガスメータ部 温 度 [℃]	サンプリング ガス量 [Normal-ℓ]	凝縮水量 [ml]	備 考
	フィルタ汙紙	凝縮水	吸収液1	吸収液2	吸収液3					
4/14		3C-01	3A1-01	3A2-01		22178	34	19680	580	バックグラウンド試料
4/15		3C-02	3A1-02	3A2-02		21347	32	19070	580	
4/16		3C-03	3A1-03	3A2-03		19906	31	17840	580	*三方コック詰まる。
4/17						19243	31	17250	460	*三方コック詰まる。 *インピンジャ詰まる。
4/18						14301	29	12900	480	
4/19		3C-04	3A1-04	3A2-04		25136	30	22600	470	
4/20						15595	29	14070	500	*バグフィルタのメンテナンスのため 1.5hr停止。
4/21						15412	29	13900	470	
4/22						17468	30	15710	600	
4/23						17330	30	15580	400	
4/24		3C-05	3A1-05	3A2-05	3×	15890	30	14290	400	

表-4.4.(4) SO-4 Data Sheet

サンプリングガス温度：45℃ ガスメータ器差：±0

採取日	試料番号					サンプリング ガス量 [actual-ℓ]	ガスメータ部 温 度 [℃]	サンプリング ガス量 [Normal-ℓ]	凝縮水量 [mℓ]	備 考
	フィルタ用紙	凝縮水	吸収液1	吸収液2	吸収液3					
4/14		4C-01	4A1-01	4A2-01		21046	33	18780	580	バックグラウンド試料
4/15						27291	30	24590	700	
4/16		4C-02	4A1-02	4A2-02		19480	31	17490	500	
4/17						17009	28	15430	430	
4/18						15381	29	13900	500	*サンプリングノズルを交換(詰まったため)
4/19		4C-03	4A1-03	4A2-03		13788	29	12460	410	
4/20						11328	29	10240	660	*サンプリングノズルを交換(詰まったため) *バグフィルタのメンテナンスのため 1.5hr停止 *ノズル交換
4/21						17135	28	15540	870	
4/22						17508	30	15770	600	
4/23						22315	30	20110	650	
4/24		4C-04	4A1-04	4A2-04	4×	21117	31	18960	600	

表-4.4.(5) SO-5 Data Sheet

サンプリングガス温度: 40℃ ガスメータ器差: +0.2

採取日	試料番号					サンプリング ガス量 [actual-ℓ]	ガスメータ部 温 度 [℃]	サンプリング ガス量 [Normal-ℓ]	凝縮水量 [ml]	備 考
	フィルタ汙紙	凝縮水	吸収液1	吸収液2	吸収液3					
4/14		5C-01	5A1-01	5A2-01		24920	34	22120	500	バックグラウンド試料
4/15						27808	32	24840	600	
4/16		5C-02	5A1-02	5A2-02		10733	33	9560	50	*三方コック詰まる。
4/17						21810	33	19420	590	*バグフィルタのメンテナンスのため 1.5hr停止。
4/18						16146	31	14470	330	
4/19		5C-03	5A1-03	5A2-03		18915	33	16840	400	
4/20						24180	33	21530	800	
4/21						22085	33	19660	740	
4/22						25001	35	22120	930	
4/23						21407	35	18940	810	
4/24		5C-04	5A1-04	5A2-04	4×	20739	34	18410	800	

(2) 採取試料の形状等について

前述した様に、採取した試料は5種類あり、吸収液1と2(A1とA2)を同一の種類と考えれば4種類である。

これらの試料の様子等について以下に述べる。

① インラインフィルタ汚紙：F

使用後のインラインフィルタ汚紙には写真-4.11に示す様に多量のダストが捕集されている。このダストの大部分は真黒な煤で、煤の発生量が非常に多いことを物語っており、またその中に白いリン酸カルシウムが混入している。

② 凝縮水：C

凝縮水受に溜まった凝縮水は、前出の写真4-10に示されている様に薄い黄色に着色した液体である。興味深いことには、この着色はインラインフィルタの装着されたSO-1及びSO-2にも生じており、着色成分がオフガス中で完全に気体となっていることを示している。このことを裏付ける様に、試験終了後、各装置のコンデンサ蛇管の内壁にかなり多量の黄色の物質が付着していた。この様子を写真-4.12に示す。つまり、この黄色の物質は気体状でオフガス中に存在してフィルタも通過し、コンデンサで凝縮して、その一部が凝縮水中に溶けこんだのである。

なお、この物質についての分析は行っておらず、成分も不明であるが、この物質はスクラバにて多少除去されるらしく、SO-5における凝縮水の着色は、他に比べて薄かった。

③ 吸収液1, 2：A1, A2

1段目と2段目の吸収液(1N-HClとC₂H₅OHの混合液)はオフガス通気後も無色透明の液体で、着色や沈殿等の現象は全く生じなかった。

④ 吸収液3：X

3段目の吸収液(1N-KOH)は試験終了時、かすかに薄黄色に着色しており、またKClの白色沈殿を生じたものもあった。

沈殿を生じたものについては、上澄液から試料を取る様にした。



写真-4.11 インラインフィルタ 沱紙試料の例

円筒沱紙の内側にはかなりの厚みで灰や煤が付着している。

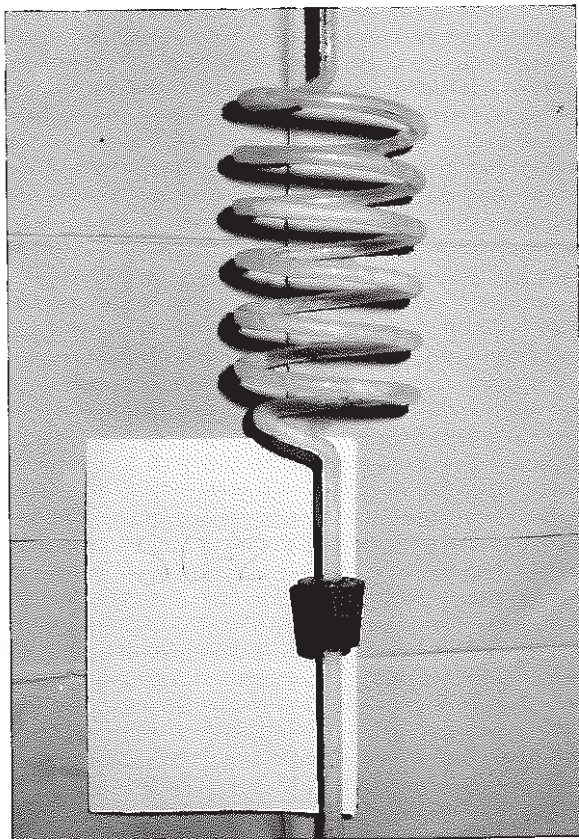


写真-4.12

コンデンサにおける析出物

。インラインフィルタが設置されているSO-1, 2も含め、全ての装置のコンデンサに黄色い析出物が見られた。成分は不明である。

以上の試料は、3.3.3で述べた様に、フィルタ沱紙はポリ袋に入れて折りたたみ、各種液体については50ml づつポリ容器に取って、これらをさらにポリ袋に入れて、放射線計測用の試料とした。これを写真-4.13に示す。



写真-4.13 採取したルテニウム測定用試料の例

左から、凝縮水、吸収液1、吸収液2、フィルタ沱紙の試料。

フィルタ沱紙はポリ袋ごと折りたたんで更にポリ袋に入れてある。

4.3.5 バグフィルタにおける煤漏れの影響について

4月19日のバグフィルタのダスト払落し操作により、バグフィルタエレメントが1本だけ外れてしまい、4月28日に修理を行ったことは4.2.5で述べたが、これにより少量の煤・灰がバグフィルタ以降のプロセスに漏れ出た。このことはSO-3、SO-4のルテニウムサンプリング装置のガラス管等に黒色の煤が付着したことにより確認されている。

SO-3、SO-4に設置したルテニウムサンプリング装置に流入した煤は極めて微量であり、凝縮水中には煤の混入がわずかに見られたものの、煤が吸収液に濡れにくく、バブリングによって飛ばされてしまうため吸収液中に煤の混入は見られなかった。

しかし、凝縮水や吸収液中に煤や灰に付着していたルテニウムが溶け出したことは十分に考えられる。

幸いなことに、バグフィルタの煤漏れが起きたのは19日分の試料採取の後であったため、19日採取試料と24日採取試料の比較により、煤漏れの影響を見ることができる。

測定データの評価検討は、以上の事柄を十分に考慮して行うことにする。

4.4 焼却設備運転終了後の試料の採取

焼却設備の運転終了後、プロセス機器の各部に付着した灰やダスト、及びスラッジ等の試料の採取を行ったが、当初の計画よりもサンプリングポイントを増やした。これは、例えばSA-1（焼却炉炉底灰）においても、 $\beta\gamma$ -固体可燃物を焼却した第1炉室の灰と、廃希釈剤を焼却した第2炉室の灰では明らかにルテニウム濃度が異なると考えられたためである。

試料の採取を行った箇所を表-4.5に示す。

表-4.5 Di及びSO-1～5以外の試料採取箇所

記 号	試 料 採 取 箇 所	備 考
SA-I (1)	焼却炉第1炉室焼却灰	旧SA-1に相当
SA-I (2)	焼却炉第2炉室焼却灰	旧SA-1に相当
SA-HT	H.T.に付着したダスト	
SA-LT	L.T.に付着したダスト	
SA-BF	バグフィルタダスト	旧SA-2に相当 (ダスト総量：約1 m ³)
SL-1	スクラバ水	スクラバ水総量：約2 m ³
SS-S	L.T.、サイクロンからのスラッジ	旧SS-1に相当
SS-F	バグフィルタからのスラッジ	旧SS-1に相当 (スラッジ総量：約 6 m ³)

5. 試料中の ^{106}Ru 量測定データとその検討

5.1 概 論

試験の実施により得られた試料、及び試験終了後のメンテナンス時に採取した焼却灰等の試料に含まれる ^{106}Ru の定量を動燃事業団殿再処理工場分析課に依頼し、 γ 線スペクトルから測定した。

また、この時インラインフィルタ沓紙試料については捕集したダスト重量についても測定した。

ここでは、これらのデータからオフガス中のルテニウム濃度等を算出し、これにより焼却設備プロセス機器のルテニウムに対する除染性能を評価した。

また、オフガス中のダスト濃度関する検討も行い、焼却設備プロセスにおけるルテニウムの挙動について推察した。

5.2 計測データ

S O - 1 及び S O - 2 のインラインフィルタ沓紙試料中のルテニウム量及びダスト量の計測結果を表-5.1に示す。

また、S O - 1 ~ S O - 5 で採取した液体試料中のルテニウム濃度の測定結果を表-5.2に示し、S A - I 等の焼却炉運転停止後に採取した試料中のルテニウム濃度測定結果を表-5.3に示す。

なお、表中の N . D . は検出限界以下 (Non-Detectable) を意味し、表-5.1においては、 $10^{-6} \mu\text{Ci}$ 以下、表-5.2においては $10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$ 以下、表-5.3においては $10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$ 以下または $10^{-6} \mu\text{Ci/g}$ 以下を意味する。

表-5.1 インラインフィルタ河紙試料計測結果

試料採取日	S O - 1			S O - 2		
	試料番号	^{106}Ru 量 [μCi]	ダスト重量 [g]	試料番号	^{106}Ru 量 [μCi]	ダスト重量 [g]
4/14	1F-01	N.D.	—	2F-01	N.D.	—
15	1F-02	1.7×10^{-2}	0.69	2F-02	8.5×10^{-2}	5.49
16	1F-03	4.6×10^{-3}	0.84	2F-03	2.1×10^{-2}	1.48
17	1F-04	2.5×10^{-1}	5.50	2F-04	2.9×10^{-1}	5.85
18	1F-05	5.1×10^{-1}	8.04	2F-05	6.2×10^{-1}	7.00
19	1F-06	5.5×10^{-1}	6.95	2F-06	5.4×10^{-1}	7.79
20	1F-07	5.6×10^{-1}	6.68	2F-07	5.2×10^{-1}	7.20
21	1F-08	6.7×10^{-1}	6.84	2F-08	7.2×10^{-1}	6.63
22	1F-09	2.4×10^{-1}	3.04	2F-09	4.6×10^{-1}	8.22
23	1F-10	6.0×10^{-1}	7.06	2F-10	6.1×10^{-1}	6.77
24	1F-11	5.6×10^{-1}	5.07	2F-11	5.4×10^{-1}	4.96

表-5.2 液体試料中の¹⁰⁶Ru濃度測定結果

[$\mu\text{Ci/ml}$]

通し番号		01	02	03	04	05	06
S 0 1	1C	ND	1.1×10^{-6}		4.3×10^{-6}	3.2×10^{-6}	
	1A1	ND	ND	ND	2.5×10^{-5}	7.2×10^{-5}	2.2×10^{-4}
	1A2	ND	ND	ND	1.8×10^{-5}	3.2×10^{-5}	
	1X	9.1×10^{-6}					
S 0 2	2C	ND	ND	1.3×10^{-6}	ND	ND	
	2A1	ND	ND	ND	4.2×10^{-5}	7.8×10^{-5}	
	2A2	ND	ND	ND	4.8×10^{-6}	1.0×10^{-5}	
	2X	2.1×10^{-6}					
S 0 3	3C	ND	ND	ND	ND	8.4×10^{-6}	
	3A1	ND	ND	ND	ND	2.7×10^{-5}	
	3A2	ND	ND	ND	ND	5.6×10^{-5}	
	3X	4.0×10^{-5}					
S 0 4	4C	ND	ND	ND	1.4×10^{-6}		
	4A1	ND	ND	ND	1.6×10^{-6}		
	4A2	ND	ND	ND	2.2×10^{-6}		
	4X	ND					
S 0 5	5C	ND	ND	ND	ND		
	5A1	ND	ND	ND	ND		
	5A2	ND	ND	ND	ND		
	5X	ND					

表-5.3 プロセスダスト等のルテニウム濃度測定結果

採取箇所	性 状	^{106}Ru 濃 度	備 考
SA-I (1)	焼 却 灰	$2.0 \times 10^{-3} (\mu\text{Ci/g})$	第1炉室の灰
SA-I (2)	焼 却 灰	$3.1 \times 10^{-1} (\mu\text{Ci/g})$	第2・3炉室の灰
SA-HT	熱 交 付 着 物	$1.7 \times 10^{-1} (\mu\text{Ci/g})$	
SA-LT	熱 交 付 着 物	$5.8 \times 10^{-2} (\mu\text{Ci/g})$	
SA-BF	フィルタダスト	$5.7 \times 10^{-2} (\mu\text{Ci/g})$	
SL-1	ス ク ラ バ 水	N.D	$< 1.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$
SS-S	ス ラ ッ ジ	$4.0 \times 10^{-5} (\mu\text{Ci/ml})$	L.T. 及びサイクロンの灰 を水洗したもの
SS-F	ス ラ ッ ジ	$6.1 \times 10^{-3} (\mu\text{Ci/ml})$	バグフィルタダストを水洗 したもの。

5.3 プロセスオフガス中のルテニウム濃度

5.3.1 評価条件

ここでは、表-4.4及び表-5.1, 5.2にまとめられたデータからSO-1~5におけるプロセスオフガス中のルテニウム濃度を計算する。

この時最も問題となるのは、N.D. (検出限界以下： $<1.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$) の試料中のルテニウム量の数値的な取扱い方である。例えば、3C-04と5C-03は共に4/19採取の凝縮水試料であり、ルテニウム濃度はどちらもN.D.であったが、3C-04の方が5C-03に比べて数オーダー高い量のルテニウムを含んでいるであろうことは容易に推察できる。

しかし、現実的にはこれらのN.D.試料中のルテニウム量を合理的に評価するのは大変困難である。従って、N.D.試料については、そのルテニウム濃度を $0 \sim 1.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$ の範囲で設定し、Totalルテニウム量のとりうる値の最大値と最小値を計算することにする。

この時、後段のサンプリングポイント (SO-5側) になるほどN.D.の試料が増え、ルテニウム量のとりうる値の範囲が大きくなって、除染性能評価が難しくなるが、このことについては後程考察する。

ところで、SO-3~5における測定データは、4/19日以前に採取された試料と4/24日に採取された試料とでその値がはっきりと異っている。これは明らかに4/19~20日に起きたバグフィルタからの煤漏れの影響であり、そのためオフガス中のルテニウム濃度の評価は区別して行う必要がある。従って、オフガス中のルテニウム濃度の計算は、SO-1, 2においては4/14~4/19, 4/19~4/24及びTotal (4/14~4/24) の3ケースについて行い、SO-3~5においては、4/14~4/19, 4/19~4/24の2ケースについて行なうことにする。

またバックグラウンドについては、4/14採取試料の測定結果がすべてN.D.であったことから、全サンプリングポイントにおいて0と見なすことにする。

5.3.2 オフガス中の ^{106}Ru 濃度の計算

表-4.4, 表-5.1及び表-5.2の各データから、オフガス中の ^{106}Ru 濃度を計算する方法について、SO-1の4/14~4/19を例にして以下に示す。

(1) サンプリングオフガス中の Total ルテニウム量の算出

① インラインフィルタで捕集されたルテニウム量

1 F-02~1 F-06 の5つの試料の総和である。表-5.1より、

$$1.7 \times 10^{-2} + 4.6 \times 10^{-3} + 2.5 \times 10^{-1} + 5.1 \times 10^{-1} + 5.5 \times 10^{-1} = 1.332 \mu\text{Ci}$$

② 凝縮水中に移行したルテニウム量

表-5.2に示された1 C-02~1 C-04のルテニウム濃度と表-4.4に示された凝縮水量とから、以下の様になる。(1 C-03は欠番)

$$1.1 \times 10^{-6} \times 80 + 4.3 \times 10^{-6} \times 1010 = 4.431 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$$

③ 吸収液中に移行したルテニウム量

吸収液は、全125mlから試料として50ml採取し、残り75mlはそのまま次のオフガスサンプリングに用いている。そのため、捕集したルテニウム量の計算は表-5.2の値を用いて以下の様に行なう。

N.D. = 0 $\mu\text{Ci/ml}$ と見なすことにより、

$$1 A 1 \text{ min} : 7.2 \times 10^{-5} \times 125 + 2.5 \times 10^{-5} \times 50 = 1.025 \times 10^{-2}$$

$$1 A 2 \text{ min} : 1.8 \times 10^{-5} \times 125 = 2.25 \times 10^{-3}$$

N.D. = $1.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$ と見なすことにより

$$1 A 1 \text{ max} : 7.2 \times 10^{-5} \times 125 + (1.0 \times 10^{-6} + 1.0 \times 10^{-6} + 2.5 \times 10^{-5}) \times 50 \\ = 1.035 \times 10^{-2}$$

$$1 A 2 \text{ max} : 1.8 \times 10^{-5} \times 125 + (1.0 \times 10^{-6} + 1.0 \times 10^{-6}) \times 50 = 2.35 \times 10^{-3}$$

また1 Xについては4/24採取試料しかないので、捕集ルテニウム量としては以下となる。

$$1 X \text{ min} : 0$$

$$1 X \text{ max} : 9.1 \times 10^{-6} \times 125 = 1.138 \times 10^{-4}$$

以上より、吸収液によるルテニウム捕集量は次の範囲にある。

$$\text{min} : 1.250 \times 10^{-2} \sim \text{max} : 1.281 \times 10^{-2}$$

①~③より Total ルテニウム量は

$$1.332 + 4.431 \times 10^{-3} + [1.250 \times 10^{-2} \sim 1.281 \times 10^{-2}] \\ = 1.3489 \sim 1.3492 \doteq 1.349 \mu\text{Ci}$$

(2) オフガス中のルテニウム濃度の算出

表-4.4より4/14~4/19のオフガスサンプリング量は

$$13250+10270+14750+14810+13050=66130\text{N}\ell$$

これと(1)の結果より4/14~4/19のSO-01オフガス中の平均ルテニウム濃度は以下の通りとなる。

$$1.349/66130=\underline{2.04\times 10^{-5}\mu\text{Ci/N}\ell}$$

以上の様な方法によりSO-1~SO-5の各々におけるプロセスオフガス中のルテニウム濃度を計算した。これを表-5.4に示す。

5.3.3 検討

前述した様に、表-5.4に示したオフガス中のルテニウム濃度の値はN.D.の取扱い方によりある範囲をもっているが、SO-1, 2においては、この範囲が相対的に小さいため1つの値と見なし得る有意な値が得られた。またSO-3, 4の4/19~24においてもそれぞれ同じオーダー内にある範囲でルテニウム濃度の値が与えられている。

しかし、その他においては、ルテニウム濃度がある値よりも小さいという評価し could not be made. これは表-5.4を表-5.2と見比べればわかる様に、各々の計算のもととなった試料中のルテニウム濃度が全てN.D.であったことに起因している。

表-5.4 オフガス中の ^{106}Ru 濃度計算結果

		インライン フィルタ汚紙 [μCi]	凝縮水 [μCi]	吸収液1, 2 [μCi]	吸収液3 [μCi]	Total [μCi]	オフガス 総量 [dry-N ℓ]	オフガス中の ^{106}Ru 濃度 [$\mu\text{Ci}/\text{N}\ell$]
SO-1	4/14~19	1.332	4.431×10^{-3}	1.250×10^{-2} $\sim 1.265 \times 10^{-2}$	$0 \sim 1.138 \times 10^{-3}$	1.349	66130	2.04×10^{-5}
	19~24	2.630	5.728×10^{-3}	2.475×10^{-2}	$0 \sim 1.138 \times 10^{-3}$	$2.660 \sim 2.661$	64510	4.12×10^{-5}
	Total	3.962	1.016×10^{-2}	3.725×10^{-2} $\sim 3.740 \times 10^{-2}$	1.138×10^{-3}	4.011	130640	3.07×10^{-5}
SO-2	4/14~19	1.556	1.560×10^{-4} $\sim 1.936 \times 10^{-3}$	5.850×10^{-3} $\sim 6.050 \times 10^{-3}$	$0 \sim 2.625 \times 10^{-4}$	$1.562 \sim 1.564$	82690	1.89×10^{-5}
	19~24	2.850	$0 \sim 2.540 \times 10^{-3}$	7.490×10^{-3}	$0 \sim 2.625 \times 10^{-4}$	$2.857 \sim 2.860$	83340	3.43×10^{-5}
	Total	4.406	1.560×10^{-4} $\sim 4.476 \times 10^{-3}$	1.334×10^{-2} $\sim 1.354 \times 10^{-2}$	2.625×10^{-4}	$4.419 \sim 4.424$	166030	2.66×10^{-5}
SO-3	4/14~19		$0 \sim 2.570 \times 10^{-3}$	$0 \sim 4.500 \times 10^{-4}$	$0 \sim 5.000 \times 10^{-3}$	$0 \sim 8.020 \times 10^{-3}$	89660	$< 8.94 \times 10^{-8}$
	19~24		1.991×10^{-2}	1.023×10^{-2} 1.038×10^{-2}	$0 \sim 5.000 \times 10^{-3}$	3.014×10^{-2} $\sim 3.529 \times 10^{-2}$	73550	4.10×10^{-7} $\sim 4.80 \times 10^{-7}$
SO-4	4/14~19		$0 \sim 2.540 \times 10^{-3}$	$0 \sim 3.500 \times 10^{-4}$	$0 \sim 1.250 \times 10^{-4}$	$0 \sim 3.015 \times 10^{-3}$	83870	$\ll 3.59 \times 10^{-8}$
	19~24		4.732×10^{-3}	2.750×10^{-4} $\sim 4.750 \times 10^{-4}$	$0 \sim 1.250 \times 10^{-4}$	5.007×10^{-3} $\sim 5.332 \times 10^{-3}$	80620	6.21×10^{-8} $\sim 6.61 \times 10^{-8}$
SO-5	4/14~19		$0 \sim 1.970 \times 10^{-3}$	$0 \sim 3.500 \times 10^{-4}$	$0 \sim 1.250 \times 10^{-4}$	$0 \sim 2.445 \times 10^{-3}$	85130	$\ll 2.87 \times 10^{-8}$
	19~24		$0 \sim 4.080 \times 10^{-3}$	$0 \sim 2.500 \times 10^{-4}$	$0 \sim 1.250 \times 10^{-4}$	$0 \sim 4.455 \times 10^{-3}$	100660	$\ll 4.43 \times 10^{-8}$

5.4 プロセス機器のルテニウムに対する除染系数の算出

5.4.1 除染系数の算出方法

あるプロセス機器のルテニウムに対するDF値（除染系数）は次式で求められる。

$$DF = \frac{[\text{ルテニウムのINPUT量}]}{[\text{ルテニウムのOUTPUT量}]} \quad \dots (1)$$

この式は、オフガス処理系機器においては、次の様書き直せる。

$$DF = \frac{[\text{入口側オフガスの}^{106}\text{Ru濃度}] \times [\text{入口側オフガス流量}]}{[\text{出口側オフガスの}^{106}\text{Ru濃度}] \times [\text{出口側オフガス流量}]} \quad \dots (2)$$

ところで、本焼却設備においては標準状態での乾きオフガス流量はプロセス中で変化しない。従って上式は更に次の様書き直せる。

$$DF = \frac{[\text{入口側オフガスの}^{106}\text{Ru濃度}]}{[\text{出口側オフガスの}^{106}\text{Ru濃度}]} \quad \dots (3)$$

故に、オフガス処理プロセス機器のルテニウムに対する除染系数の算出は(3)式を用いて行う。

さて、焼却炉に対するルテニウムINPUT量については、表-4.1にまとめられているが、このままでは(3)式に利用できない。しかし、プロセスオフガス流量の平均値が求められているので(950Nm³/hr：4.2.4参照)、焼却炉に対するルテニウムINPUT量を便宜的にオフガス中の濃度に換算することが可能である。

$$[\text{換算}^{106}\text{Ru濃度} : \mu\text{Ci/Nl}] = \frac{[^{106}\text{Ru INPUT総量}]}{950 \times 10^3 \times [\text{焼却時間}]}$$

換算した焼却炉へのルテニウムINPUT量を表-5.5に示す。

表-5.5 廃希釈剤中の¹⁰⁶Ru量のオフガス中濃度への換算

	処理物中の ¹⁰⁶ Ru量 [μCi]	処理時間 [hr]	換算 ¹⁰⁶ Ru濃度 [μCi/Nl]	備考
4/14~4/19	2.942×10 ⁵	120	2.581×10 ⁻³	処理量：788ℓ
4/19~4/24	2.129×10 ⁵	120	1.868×10 ⁻³	" : 754ℓ
Total [4/14~4/24]	5.071×10 ⁵	240	2.224×10 ⁻³	" : 1542ℓ

従って、表-5.5の換算値とS O-1におけるオフガス中のルテニウム濃度の値を用いれば、焼却炉～L.T.間のD F値の計算が(3)式により可能となる。

5.4.2 除染性能評価対象機器の再検討

本除染性能試験では、以下の機器を除染性能測定対象としていた。

- ① 焼却炉本体+H.T.+L.T.
- ② サイクロン+アンチスパークルフィルタ
- ③ バッグフィルタ
- ④ H E P A フィルタ
- ⑤ スクラバ+デミスタ

しかし、表-5.4, 5.5をもとに⑤スクラバ+デミスタの除染性能を評価するのは、以下に述べる様に大変に難しい。

表-5.4を見ると、デミスタの出口部分であるS O-5におけるオフガス中の ^{106}Ru 濃度の計算上の最大値が $2.87 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/Nl}$ 及び $4.43 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/Nl}$ と算出されており、これらはS O-5で得られた凝縮水や吸収液の試料中に、測定機器の検出限界値である $1.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$ の ^{106}Ru が含まれているものとして評価したものである。しかし、S O-2～S O-4においてさえこれらの試料中にほとんど有意な量のルテニウムが検出されていないことを考えれば、実際のS O-5におけるオフガス中には計算上の最大値よりも数オーダー低い濃度のルテニウムしか含まれていないと推測できる。

もし仮に表-5.4のS O-4, 5の4/19～24のルテニウム濃度をそのまま用いてD F値を計算すると、 $D F \geq (6.21 \times 10^{-8}) / (4.43 \times 10^{-8}) = 1.4$ となり、スクラバ+デミスタのD F値として1.4しか保障できなくなるが、S O-5における実際のルテニウム濃度がこの計算上の最大値よりも2オーダー低いとすれば、D F値として 1.4×10^2 以上が保証できるようになるのである。D Fが1.4であるとする、

スクラバ+デミスタのルテニウムの除染性能はあまり良くないことになるが、D Fが 10^2 あればその除染性能はかなりすぐれていることになる。

この様に今回の試験結果から⑤スクラバ+デミスタのルテニウムに対するDF値を定量的に論じることができないため、DF値の計算対象から除外することにする。

ただし5.5.4で述べる様に、スクラバはルテニウムに対してかなり高い除染性能を有しているものと期待することができる。

5.4.3 各プロセス機器のDF値の算出

本計算においては、表-5.4より各々の機器についてDF値の取り得る値の範囲を算出するものとする。ただし、その機器の入口側における ^{135}Ru 濃度の最小値が定まっていない場合は、計算上のDF値が1未満の値も取り得る様になってしまうため計算を行わない。

従って、試験実施期間については、以下の様に考えることにする。

- ①（焼却炉+H.T.+L.T.）及び（サイクロン+アンチスパークルフィルタ）のDF値の計算は、除染性能の経時変化を見るためにも、4/14～4/19、4/19～4/24、及び4/14～4/24の3種の期間について行うものとする。
- ②（バグフィルタ）のDF値の計算は、バグフィルタで煤漏れのあった4/19～4/24の期間については行わず、4/14～4/19の期間についてのみ行う。
- ③（HEPAフィルタ）のDF値の計算は4/14～4/19の期間を除外し、4/19～4/24の期間についてのみ行う。

計算結果を表-5.6に示すが、参考のため4/14～4/19の期間における（焼却炉～バグフィルタ）のTotal DFの計算結果も表中に示した。

表-5.6 焼却設備プロセス機器の ^{106}Ru に対するDF値

プロセス機器	サンプリング 実施期間	入口側 ^{106}Ru 濃度 [$\mu\text{Ci/Nl}$]	出口側 ^{106}Ru 濃度 [$\mu\text{Ci/Nl}$]	DF値
焼却炉 +	4/14~19	2.58×10^{-3}	2.04×10^{-5}	126
高温熱交(H.T.) +	4/19~24	1.87×10^{-3}	4.12×10^{-5}	45
低温熱交(L.T.)	4/14~24 (Total)	2.22×10^{-3}	3.07×10^{-5}	72
サイクロン +	4/14~19	2.04×10^{-5}	1.89×10^{-5}	1.1
アンチスパークル	4/19~24	4.12×10^{-5}	3.43×10^{-5}	1.2
フィルタ	4/14~24 (Total)	3.07×10^{-5}	2.66×10^{-5}	1.2
バッグフィルタ	4/14~19	1.89×10^{-5}	$< 8.94 \times 10^{-8}$	211以上
HAP Aフィルタ	4/19~24	4.10×10^{-7} $\sim 4.80 \times 10^{-7}$	6.21×10^{-8} $\sim 6.61 \times 10^{-8}$	6.2~7.7
焼却炉 ~バッグフィルタ	4/14~19	2.58×10^{-3}	$< 8.94 \times 10^{-8}$	2.9×10^4 以上

5.4.4 検討

表-5.6に示す様に〔焼却炉+H.T.+L.T.〕及び〔バグフィルタ〕が、それぞれDF値が45以上、211以上というルテニウムに対する高い除染性能を有していることがわかった。

また〔HEPAフィルタ〕が6.2以上、〔サイクロン+アンチスパークルフィルタ〕が1.1以上というDF値を示した。

これらの結果は〔HEPAフィルタ〕を除いて、ラボスケールの実験で得たDF値を大きく上まわるものであり、これは実際の、焼却処理プロセスにおけるルテニウムの挙動が、ラボスケールの試験条件と異なっているためであると考えられる。

従って、各機器の除染性能についてはルテニウムの挙動に関する考察と合わせて次項以降で評価する。

なお、〔HEPAフィルタ〕のDF値が6.2~7.7とラボスケールの実験結果(DF=10~300)をかなり下まわっていることに関して、HEPAフィルタとHEPAフィルタケーシングとの間にわずかなすき間があることがわかった。従って、この部分のシールさえ完全であればHEPAフィルタのDF値はもっと大きな値を取っていたと考えられる。このことについても5.5.4でもう一度述べる。

5.5 焼却プロセスにおけるルテニウムの挙動とプロセス機器の除染機構

5.5.1 概要

本試験の実施結果により、これまでルテニウムが高温条件で著しい揮発性を示すことと焼却プロセスでどのような挙動を示すかが不明であったことから除染性能が期待できなかった焼却炉～バグフィルタの各プロセス機器が、実際には、本試験の焼却条件下においてはかなりのルテニウム除去性能を有することが判明した。

そこで、ここでは試験実施により得られたデータからルテニウムの挙動について推察し、各プロセス機器のルテニウム除去機構と関連づけて検討を行う。

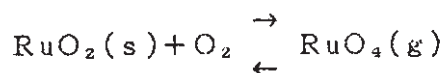
5.5.2 灰・煤へのルテニウムの付着

表-5.3に示された測定データにより、焼却プロセスから発生する灰・煤等にはかなり高い濃度でルテニウムが付着しており、またこの濃度がオフガス処理プロセスで比較的大きく変動することがわかった。このことについて以下に検討してみる。

$$(1) \quad SA-1(1)=2.0 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/g}, \quad SA-1(2)=3.1 \times 10^{-1} \mu\text{Ci/g}$$

焼却炉内の焼却灰の ^{106}Ru 濃度は第1炉室(SA-1(1))と第2・3炉室(SA-1(2))で約2ケタも違う値を示した。これは第1炉室では $\beta\gamma$ -固体可燃物のみを処理し、第2・3炉室で廃棄剤を処理したという焼却物の違いから生じたものと考えられる。

さて、ルテニウムの付着機構についてであるが、炉内の $600^{\circ}\text{C} \sim 900^{\circ}\text{C}$ という高温状態を考えれば、下記の平衡は右にかたより、ルテニウムの大部分は RuO_4 となって揮発するはずである。



ところが、実際には焼却灰中に多量のルテニウムが存在していたわけであり、この原因として以下の様に考えられる。

まず、ルテニウムの有機物への著しい付着し易さが原因の一つであろう。つまり、酢酸ビニルの燃焼等により大量に発生する煤や焼却灰中の未燃ハイドロカーボンにルテニウムが付着するのである。そして一度付着したルテニウムは高温下

の固定カーボンが持つ還元性により、 RuO_4 への酸化を妨げられるものと考えられる。また、このカーボンの持つ還元性は、同時に前記の平衡が右に傾くのを防ぐ役割をして、 RuO_4 となるルテニウム量を抑えるものと考えられる。

もう一つ考えられるのは、焼却灰生成時にルテニウムがその灰粒子中に保持されるということである。特に、廃希釈剤のカルシウムオクチエイト法で焼却する時に生成するリン酸カルシウム中にルテニウムが付着し保持される可能性がかなり高い。

(2) $\text{SA-HT} = 1.7 \times 10^{-1} \mu\text{Ci/g}$, $\text{SA-LT} = 5.8 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/g}$

高温熱交や低温熱交に付着したダスト中の ^{106}Ru 濃度はSA-I(2)に比べるとやや低い。これについては次の様に考えた。

焼却炉内や高温熱交部の温度はかなり高く固定カーボンの燃焼条件を満たしている。そのためSA-I(2)やSA-HTのダストはもともとSA-LTと同じ ^{106}Ru 濃度であったものが、カーボンの燃焼によりダスト総量が減少して相対的なルテニウムの濃縮が起こったのであろう。この時焼却炉内は高温であるため濃縮の度合いが高くなり、また低温熱交以降では温度が低いために濃縮は起こらないものと考えられる。

(3) $\text{SA-BF} : 5.7 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/g}$

バッグフィルタで捕集されたダストの ^{106}Ru 濃度は、低温熱交に付着していたものとほぼ同じであった。このことから、低温熱交付着灰及びバッグフィルタダストはオフガス中のダストそのものとほとんど同じものであることが推測できる。

このことを確かめるため、表-5.3のデータをもとに、SO-1及びSO-2におけるオフガス中のダスト濃度及びそのダスト中の ^{106}Ru 濃度を計算してみた。これを表-5.7、5.8に示す。

SO-1におけるダスト中の ^{106}Ru 濃度をSA-LTと、SO-2におけるものをSA-BFとそれぞれ比較すると、表-5.7、5.8の値が1日ごとに大きく変動していることを考慮すれば、十分に一致していると思なすことができる。

表-5.7 S O - 1 におけるオフガス中のダスト濃度と
ダスト中の ^{106}Ru 濃度

サンプ リング期間	^{106}Ru 量 (μCi)	ダスト量 (g)	オフガス量 (Nℓ)	ダスト濃度 (g/Nℓ)	^{106}Ru 濃度 ($\mu\text{Ci/g}$)
4/14~15	1.7×10^{-2}	0.69	13250	5.21×10^{-5}	2.46×10^{-2}
~16	4.6×10^{-3}	0.84	10270	8.81×10^{-5}	5.48×10^{-3}
~17	2.5×10^{-1}	5.50	14750	3.73×10^{-4}	4.55×10^{-3}
~18	5.1×10^{-1}	8.04	14810	5.43×10^{-4}	6.34×10^{-2}
~19	5.5×10^{-1}	6.95	13050	5.33×10^{-4}	7.91×10^{-2}
~20	5.6×10^{-1}	6.67	12660	5.27×10^{-4}	8.40×10^{-2}
~21	6.7×10^{-1}	6.84	16810	4.07×10^{-4}	9.80×10^{-2}
~22	2.4×10^{-1}	3.04	5390	5.64×10^{-4}	7.89×10^{-2}
~23	6.0×10^{-1}	7.06	16090	4.39×10^{-4}	8.50×10^{-2}
~24	5.6×10^{-1}	5.07	13560	3.74×10^{-4}	1.10×10^{-1}
4/14~19	1.33	22.02	66130	3.33×10^{-4}	6.04×10^{-2}
4/19~24	2.63	28.68	64510	4.45×10^{-4}	9.17×10^{-2}
4/14~24	3.96	50.70	130640	3.88×10^{-4}	7.81×10^{-2}

表-5.8 S O - 2におけるオフガス中のダスト濃度と
ダスト中の ^{106}Ru 濃度

サンプ リング期間	^{106}Ru 量 (μCi)	ダスト量 (g)	オフガス量 (Nℓ)	ダスト濃度 (g/Nℓ)	^{106}Ru 濃度 ($\mu\text{Ci/g}$)
4/14~15	8.5×10^{-2}	5.49	19170	2.86×10^{-4}	1.55×10^{-2}
~16	2.1×10^{-2}	1.48	12550	1.18×10^{-4}	1.42×10^{-2}
~17	2.9×10^{-1}	5.85	16390	3.57×10^{-4}	4.55×10^{-2}
~18	6.2×10^{-1}	7.00	14810	5.43×10^{-4}	6.34×10^{-2}
~19	5.2×10^{-1}	7.79	16360	4.76×10^{-4}	6.68×10^{-2}
~20	5.2×10^{-1}	7.20	16590	4.34×10^{-4}	7.22×10^{-2}
~21	7.2×10^{-1}	6.63	16100	4.12×10^{-4}	1.09×10^{-1}
~22	4.6×10^{-1}	8.22	16930	4.86×10^{-4}	5.60×10^{-2}
~23	6.1×10^{-1}	6.67	17900	3.73×10^{-4}	9.15×10^{-2}
~24	5.4×10^{-1}	4.96	15820	3.14×10^{-4}	1.09×10^{-1}
4/14~19	1.56	27.61	82690	3.34×10^{-4}	5.65×10^{-2}
4/19~24	2.85	33.68	83340	4.04×10^{-4}	8.46×10^{-2}
4/14~24	4.41	61.29	166030	3.69×10^{-4}	7.20×10^{-2}

5.5.3 オフガス中のルテニウムに占める揮発ルテニウムの割合

表-5.4のデータより、S O-1、S O-2においてオフガス中に含まれる全ルテニウム量中に占める揮発ルテニウムの割合を推算することができる。つまり、インラインフィルタを通過して凝縮水や吸収液中に移行したルテニウムは、気体状であったか、若しくは気体に準じた挙動をする超微粒子状であったと見なせるからである。

これらのルテニウムを便宜的に揮発ルテニウムと見なし、オフガス中の総ルテニウム量に対する割合を計算したものを表-5.9に示す。

表-5.9 揮発したルテニウムの割合

サンプリング ポ イ ン ト	期 間	揮 発 ^{106}Ru 量 [μCi]	総 ^{106}Ru 量 [μCi]	揮 発 割 合 [%]
S O-1	4/14~19	0.017	1.349	1.25
	4/19~24	0.031	2.661	1.16
	計	0.486	4.010	1.21
S O-2	4/14~19	8.25×10^{-3}	1.564	0.53
	4/19~24	0.0103	2.860	0.36
	計	0.0185	4.424	0.42

表-5.9より、それぞれのサンプリングポイントにおいて揮発ルテニウムの割合はほぼ一定であり、しかも予想外に小さなものであることがわかった。これは、焼却炉の灰の ^{106}Ru 濃度が非常に高かったこととともに、もともと焼却炉内で揮発するルテニウムの割合がかなり小さいことを示唆している。

また、S O-1にくらべS O-2ではさらに揮発割合が減少しているが、これは温度条件的に5.5.2で述べた平衡が左に傾いているため、 $\text{RuO}_4(\text{g}) \rightarrow \text{RuO}_2(\text{s})$ の還元反応力がゆっくり進行したことを示している。

なお、この還元反応によって生じた RuO_2 はダストに付着するか、若しくは微細な粒子を形成して、オフガス中に止まるものと考えられる。

5.5.4 ルテニウムの挙動と除染機構

これまでの検討結果から、各プロセス機器におけるルテニウムの除去性能は、その機器のダスト粒子に対する除去性能に大きく依存しているものと考えられる。各機器におけるルテニウム除染機構を評価し以下にまとめる。

(1) 焼却炉

処理物中に含まれるルテニウムの一部は、燃焼に伴って揮発し、オフガス系に移行する。しかし、その大部分は炉内で発生する煤・灰に付着してその一部がダストとしてオフガス系に移行する。

従って、焼却炉は炉内に残留した焼却灰等に付着しているルテニウムの分だけの除染性能を有することになる。

(2) 高温熱交、低温熱交

熱交換器に入るオフガス中のルテニウムは大部分がダストに付着しており、せいぜい数%が気体になっている程度である。

従って、伝熱管内に大量に付着する灰・煤等に含まれているルテニウムが熱交で除去されることになる。

表-5.6を見ると、〔焼却炉+H.T.+L.T.〕のDF値は、焼却炉運転期間の前半は 10^2 以上あり、これが後半には45まで低下しているが、この現象は、運転開始前に機器の清掃が行われ伝熱管付着物が微量だったため、運転初期にはダストが非常に付着し易かったためと考えられる。つまり、伝熱管付着物が大量になってくると脱落してオフガス中に戻るダストも増大し、それ故巨視的に見ると付着蓄積してゆくダストの割合が減少して、DF値の低下が生じたものであろう。

(3) サイクロン、アンチスパークルフィルタ

これらの機器の平均直径 10μ 程度の粒子に対する捕集効率はかなり大きい（設計90%以上）が、これに反してルテニウムに対するDFは1.2程度と非常に小さい。（表-5.6参照）

このことから考えるとオフガス中でルテニウムが付着している灰・煤等は直径 10μ mよりもかなり小さな粒子を形成していて、サイクロンやアンチスパークルフィルタではほとんど捕集されないことがわかる。実際に表-5.7、5.8から

SO-1、SO-2におけるオフガス中のダスト濃度を比較するとほとんど変化が無いことから、このことが証明される。

(4) バッグフィルタ

バッグフィルタは、オフガス中の灰・煤等のほとんどを除去するため、これらに付着したルテニウムも除去され、DF値は 2×10^2 以上に達する。

ここで、表-5.9に示したSO-2におけるルテニウムの揮発割合の逆数を取ってみると約200程度になり、バッグフィルタのDF値とほとんど一致する。このことから、バッグフィルタでは入口側オフガス中のダストに付着しているルテニウムはほぼ完全に除去されるが揮発してガス体となっているルテニウムはほとんど通過してしまうものと推測される。

(5) HEPAフィルタ

HEPAフィルタにおいては、バッグフィルタを通過した極微細なダスト粒子に付着したルテニウムや、降温されたオフガス中で次第に生成されてきた RuO_2 の微粒子が捕集されるものと考えられる。

今回の除染性能試験ではDF値が6.2~7.7とやや小さな値しか得られなかったが、これは前述した様にフィルタケーシングに隙間があったためであり、HEPAフィルタが直径 $0.3 \mu\text{m}$ の微粒子を99.97%以上除去するという高い除染性能を有していることを考え合わせれば、ルテニウムに対してもラボスケールの実験結果($\text{DF} = 10 \sim 300$)以上の高い除染性能を有しているものと期待できる。

(6) スクラバ

スクラバはオフガス中の酸性成分を中和除去するとともに、ダスト微粒子に対しても高い除去性能を有している。またスクラバ液の苛性ソーダは気体状ルテニウムの吸収液としての働きも持っている。

今回の除染性能試験ではオフガス中の ^{106}Ru 濃度が小さすぎてDF値の算出が行えなかったが、以上のことからスクラバはダストに付着しているルテニウムと、気体状のルテニウムの両方を除去し、高い除染性能を有しているものと考えられる。

6. 結 論

6.1 焼却設備における揮発性核種の除染性能試験結果のまとめ

6.1.1 プロセス機器のルテニウムに対する除染性能測定結果

本除染性能試験は動力炉・核燃料開発事業団東海再処理工場に既設の放射性廃棄物焼却設備 (Unit NoU-341) を用い、11日間の日程でほぼ予定通り実施することができた。

この試験で得られたデータの解析により、各プロセス機器のルテニウムに対するDF値が以下の通り算出された。

① 焼却炉+H.T.+L.T.	: DF= 45~126	合計 DF $\geq 2.9 \times 10^4$
② サイクロン+アンチスパークルフィルタ	: DF= 1.2	
③ バッグフィルタ	: DF $\geq$ 211	
④ HEPAフィルタ	: DF= 6.2~7.7	

なお、上記の他に「スクラバ+デミスタ」も除染性能測定対象であったが、オフガス中の ^{106}Ru 濃度が今回の試験における測定限界を大きく下回っていたためDF値の算出が行えなかった。

また、HEPAフィルタとフィルタケーシングとの間にわずかな隙間があり、ここをオフガスが通過していたことが判明している。従って、上記の「④HEPAフィルタ」のDF値は本来のDF値よりもかなり小さいものであると考えられる。

ところで、上記①~③の各機器はラボスケールの工学試験により一度揮発したルテニウムに対しては除染性能を有しないと判断されたものばかりであり、合計で 10^4 以上のDF値を持つことが実機で確認されたことの意義は大きい。

6.1.2 焼却プロセスにおけるルテニウムの挙動

これまで、廃棄物中のルテニウムは焼却処理に伴ってその大部分が RuO_4 となって揮発し、オフガス処理プロセスにおいても気体として挙動するものと考えられていた。

これに対し、本除染性能試験で得られたデータを解析することによってルテニウムの挙動について以下の様な知見が得られた。

- (i) 廃棄物中のルテニウムの大部分は焼却時に発生する煤に付着するか、リン酸カルシウムの粒子に取込まれるかしてダストと共に挙動する。
- 焼却炉内の灰やプロセス機器に付着したダスト中に、高濃度の ^{106}Ru が含まれていた。
 - S0-1、S0-2で捕集されたルテニウムの大部分はインラインフィルタ沓紙で捕集されたダスト中に含まれており、これを通過したルテニウムの割合はそれぞれ約1.2%、約0.4%にすぎなかった。
- (ii) オフガス中に気体となって移行したルテニウムは、ダストに付着したり RuO_2 の粒子となったりして次第に減少してゆく。
- $\text{RuO}_4(\text{g}) \rightarrow \text{RuO}_2(\text{s}) + \text{O}_2$ の反応が進む。
 - S0-1とS0-2を比較すると、S0-2の方がインラインフィルタで捕集されたルテニウムの割合が高い。
- (iii) ルテニウムの付着したダストは平均直径が $10\mu\text{m}$ よりもかなり小さな微粒子となってオフガス中に存在する。
- サイクロン及びアンチパークルフィルタは平均直径 $10\mu\text{m}$ 程度のダスト粒子に対してかなり有効な除染性能を有するが、ルテニウムが付着したダストに対する除染性能はほとんど有していなかった。

6.1.3 各機器のルテニウム除去機構と除染性能の評価

焼却プロセスにおけるルテニウムの挙動に関する検討により、各プロセス機器のルテニウムに対する除染性能は、その機器のダスト粒子に対する除染性能に大きく依存していることが判明した。

この事実に基き、各機器のルテニウム除染機構と除染性能の評価を以下にまとめる。

(1) 焼却炉+H.T..+L.T.(DF測定値：45~126)

処理物に含まれるルテニウムは焼却に伴って大部分が煤や灰に付着し、ごく一部が RuO_4 となって揮発する。

焼却炉は炉内で発生する灰・煤等をかなりの割合で炉内に保持するため、ルテ

ニウムに対しても除染性能を有する。

また、オフガス中には揮発したルテニウムの大部分と灰・煤等に付着したルテニウムの一部が移行するが、ダストの主成分であるリン酸カルシウムや煤は機器に付着し易い性質を持っているため、H.T.やL.T.においてもダストが伝熱管に付着することによりルテニウムが除去される。

なお、試験の前半では126であったD F値が後半には45まで低下しているが、これは熱交換器伝熱管付着物の蓄積によりH.T.やL.T.において除去されるダストの量が減少したためである。

(2) サイクロン+アンチスパークルフィルタ (D F測定値：約1.2)

これらの機器は、焼却炉で発生した微粒子状 ($<10\mu\text{m}$) のダストに対する除染性能が低いため、ルテニウムに対しても有効でない。

(3) バッグフィルタ (D F測定値：211以上)

バッグフィルタではオフガス中のダストのほとんどが除去されるため、揮発した気体状のルテニウムや超微粒子に付着したルテニウムしか通過できない。そのためバッグフィルタのルテニウムに対する除染性能は優れている。

(4) HEPAフィルタ (D F測定値：6.2~7.7…隙間からの漏れあり。)

HEPAフィルタは平均直径 $0.3\mu\text{m}$ 程度の超微粒子に対しても高い除染性能を有する。従ってバッグフィルタを通過した微細なダストや RuO_4 の還元によって生じた RuO_2 の微粒子がHEPAフィルタで捕集されるものと考えられ、ルテニウムに対する高い除染性能が期待できる。

(5) スクラバ (D F測定値： ^{106}Ru 濃度が低いため測定できず。)

スクラバはダストに対して高い除染性能を有しており、またスクラバ液である苛性ソーダは気体状のルテニウムに対して吸収液として作用する。従って、スクラバのルテニウムに対する除染性能は大変優れてるものと考えられる。

6.2 今後の課題

6.2.1 焼却炉運転モードによる機器の除染性能の変化の把握

焼却炉運転モードには焼却対象物によって3つのモードがあり、それぞれにおいて温度、供給空気、助燃等の条件が異るとともに、各々に特徴的なこととして以下の現象がある。

① $\beta\gamma$ -固体可燃物専焼モード

廃棄物中のポリエチレンや酢酸ビニルの燃焼により、大量の煤が発生する。

② 廃希釈剤専焼モード

カルチウムオクチエイト法により焼却を行うため、大量のリン酸カルシウムが発生する。

③ $\beta\gamma$ -固体可燃物と廃希釈剤の混焼モード

大量の煤とリン酸カルシウムの両方が発生する。

今回の除染性能試験では③の混焼モードにおいて試験を実施することにより、ルテニウムの大部分がダストに付着して挙動するという知見が得られたが、リン酸カルシウムと煤の両方がダストとしてオフガス処理系に移行してきていたため、ルテニウムのダストへの付着が煤によるものであるのかリン酸カルシウムによるものであるのか明確にはできなかった。すなわち、ルテニウムが非常に有機物に付着し易いという性質だけを考慮すれば煤に付着していたものと考えられるし、煤の発生が $\beta\gamma$ -固体可燃物投入後の比較的短い時間だけに限られることを考慮すれば、ルテニウムは定常的に発生していたリン酸カルシウムに取り込まれていたものと考えられるのである。

もしルテニウムのダストへの付着がリン酸カルシウムによるものであるとすれば、リン酸カルシウムの発生しない $\beta\gamma$ -固体可燃物専焼モードでは揮発するルテニウムの割合が増えて各機器のDF値は低下するものと考えられるし、逆に煤に付着するのであれば煤のほとんど発生しない廃希釈剤専焼モードにおいてDF値の低下が見られるであろう。

従って、焼却炉運転モードによる除染性能の変化やルテニウムの挙動についてよ

り詳しい考察を行うためには、 $\beta\gamma$ -固体可燃物専焼モードや廃希釈剤専焼モードにおける除染性能試験の実施が必要であると考えられる。

この時、実際には $\beta\gamma$ -固体可燃物中の ^{106}Ru 量の把握が難しいことから廃希釈剤専焼モードにおける除染性能試験の実施が望ましい。この試験によりオフガス中の ^{106}Ru 濃度やプロセスダスト中の ^{106}Ru 濃度等のデータを集取して今回の除染性能試験結果と比較検討すれば、焼却モードによる除染性能の変化や焼却プロセスにおけるルテニウムの挙動に関する評価が可能になり、幅広い焼却条件下での除染性能の推定も可能になるであろう。

6.2.2 新規焼却施設の設計への反映

先に行われた、新規焼却施設詳細設計では、各プロセス機器の除染性能として下記のDF値を採用し、オフガスのルテニウム濃度の評価を行ってきた。

① 焼却炉+熱交類+アンチスパークルフィルタ	: DF = 1
② バッグフィルタ	: DF = 1
③ コンデンサ+加熱器	: DF = 1
④ ルテニウム吸着フィルタ	: DF = 10^3
⑤ HEPA フィルタ(1段目)	: DF = 10
⑥ スクラバ	: DF = 10
⑦ デミスタ	: DF = 1
⑧ HEPA フィルタ(2段目)	: DF = 10

このうち、⑤のルテニウム吸着フィルタはシリカゲル充填塔であり、ルテニウムに対するDFをプロセス全体で 10^6 確保するために、新しく設置することにした機器である。

ところが、①及び②の焼却炉～バッグフィルタの機器が、本試験結果の様に 10^4 以上のDFを持っているのであれば、焼却プロセス全体のルテニウムに対するDF値はルテニウム吸着フィルタ無しでも 10^7 となり十分に放出規制値がクリアできる

様になり、プロセスが簡略化できる。

現実的には、焼却炉運転モードや焼却条件等の違いにより現段階で試験結果をそのまま設計条件にあてはめるには問題があるが、これからデータを蓄積してゆくことによってデータの信頼性を高め、下北半島に建設予定の再処理工場に設置する焼却炉等の設計のバックデータとすることは非常に有要である。

7. 参考文献

- 1) Akatsu E., Chemistry of Nitro Complexes of Nitrosylruthenium.,
JAERI-M-9159, (1980)
- 2) Newby B.J. and Barnes V.H., Volatile Ruthenium Removal from Calciner Off-Gas using Solid Sorbents., ICP-1078, (1975)
- 3) Elliot M.N., Gaylor R., Grover J.R. and Hardwick W.H., The Fixation of
Radioactive Waste in Glass. Part III. The Removal of Ruthenium and Dust
from Nitric Acid Vapors., AERE-R-4098, (1962)