

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。 2001. 6. - 6

社内一般

[技術情報室]

プルトニウム廃棄物処理・処分技術開発 昭和 61 年度 年報

Developments in the treatment and disposal
of plutonium-contaminated wastes
Annual Report in FY-1986

1988年9月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

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。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

資料で

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

(U)

社内一般
PNCTN8410 88-044
1988年9月



プルトニウム廃棄物処理・処分技術開発 昭和61年度年報

Developments in the treatment and disposal
of plutonium-contaminated wastes
Annual Report in FY-1986

実施責任者 稲田 栄一 大内 仁
鈴木 正啓^{※1} 落合 健一^{※2}
報告者 大内 優 薄井 和也
加川 昭夫 山下 照雄^{※3}

期間 1986年4月1日～1987年3月31日

要旨

プルトニウム燃料製造施設で発生するプルトニウム廃棄物を主対象に、TRU廃棄物の減容の安定化、除染、区分管理並びに処分に関する技術開発を進めるために以下の各試験を実施した。減容安定化技術開発は塩化ビニール等の塩素を多量に含んだ難燃物の焼却試験、焼却灰等をマイクロ波溶融法にて固化する際の固化体の高密度化、均一化等を目指したマイクロ波溶融固化試験、金属廃棄物をスラグ溶融にて溶融した際のスラグ層への模擬汚染物質の除染性等に関する金属溶融固化試験を行った。除染技術開発は金属廃棄物の多量除染処理として電解研摩除染法の一つであるバレル電解研摩除染試験を行った。

区分管理技術開発はTRU廃棄物中のPu量測定として非破壊測定手法であるパッシブガンマ法及びパッシブ中性子法についてPu量の検出限界レベルの検討等を行った。

処分技術開発はマイクロ波溶融法で作製したコールド固化体の長期浸出試験等を行う一方、人工バリアとして核種移行に関する緩衝材中のTRU核種挙動試験を行った。

*1 現在 人形峠事業所

*2 現在 環境工学開発部 低レベル廃棄物固化処理技術開発室所属

*3 現在 環境工学開発部 高レベル廃棄物処理技術開発室所属

目 次

1. 緒 言	1
2. 開発業務	4
2.1 減容安定化処理技術開発	4
2.1.1 難燃物焼却試験	4
2.1.2 焼却灰等の溶融固化試験	15
2.1.3 金属溶融試験	18
2.2 除染技術開発	27
2.2.1 除染試験	27
2.2.2 プルトニウム分離試験	36
2.3 区分管理技術開発	39
2.3.1 プルトニウム廃棄物測定技術開発	39
2.4 処分技術開発	49
2.4.1 固化体評価試験	49
2.4.2 緩衝材中のTRU核種挙動研究(I)	57
3. あとがき	65
4. 謝 辞	66
5. 参考文献	66

1. 緒 言

プルトニウム燃料製造施設で発生するプルトニウム廃棄物を主対象に、TRU廃棄処の処理・処分技術開発について昭和61年度の進捗状況をまとめた。

難燃物焼却試験は昭和60年度に実施した連続焼却試験で摘出された炉床ヒータの断線、漏電、炉下部キャスタブル材の腐食脱落並びに電融アルミナのひび割れ等について焼却炉の改造を行い、前年度に引き続き連続焼却試験を行い改造後の評価を行った。

その結果、炉床ヒータの構造はヒータ内部の蓄熱を充分に放熱することができないようになつたためヒータ線が熱膨張により歪んだ結果、ヒータ壁に接触し漏電しており、炉床ヒータに放熱構造が必要であることが分った。

炉下部キャスタブル材の腐食脱落防止として、炉下部キャスタブル表面を電融アルミナ板で覆う施工方法はキャスタブル材の腐食脱落を充分に防ぐことができた。また、今回行った11バッチの連続焼却試験により炉内壁の電融アルミナに多数の小さなひび割れが生じたが剥離や脱落の現象は確認されなかつた。

焼却灰等の溶融固化試験はマイクロ波溶融中のルツボ回転が、固化体の密度に与える影響の評価試験並びに収納効率の向上を図る角型ルツボの評価試験等を行つた。その結果、固化体の密度はルツボを回転させても大幅な密度の向上は見られないが、HEPAフィルタ焼却灰のように溶融物の粘性が高い場合は、密度の向上が見られ均一な固化体が得られた。

また、四角形、六角形ルツボについては良好な着火性を示し、円形ルツボの固化体かさ密度（ 2.4 g/cm^3 ）に比べ $2.5 \sim 2.8 \text{ g/cm}^3$ の密度向上が確認された。

金属溶融試験はスラグによる除染性確認試験、高融点物質（ジルカロイ-2）の溶融試験を行つた。また、設備の安全性確認試験として鋳型の冷却水停止試験等を行つた。

その結果、4回の金属溶融試験結果より金属鋳塊に残留する CeO₂濃度は 0.3 ppm 以下になることが分かった。また、ジルカロイ-2 溶融は既存の酸化物系のスラグ溶融温度では困難であることが分つた。更に、溶融金属量 100 kg、冷却水停止時間 1 分間において鋳型の寸法変化はなく、鋳型の安全性を確認した。

除染は電解研磨除染法の内、バレル電解研磨除染法を選定し、金属表面の除染目標値を $10^{-6} \sim 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ としてコールド試験での除染条件把握並びにホット試験での除染係数等の測定を行つた。

その結果、除染条件として被除染物の寸法は 3 cm 口、処理量はバレル槽容量の 40 %、バレル槽回転数は 5 rpm が最適の条件であることが分つた。この条件を基に上記除染装置を用いてホット試験を行い、21 分間の電解研磨時間で除染係数 (DF) 3 を確認した。

プルトニウム分離試験は焼却灰からのプルトニウム分離に関する酸浸出条件、分配係数等を把握するため HNO₃/CaF₂ 法、H₂SO₄/HNO₃ 法の酸をベースとする浸出法を選定し、コールド試験での安全性確認、ホット試験でのプルトニウム分配係数の測定を行つた。

その結果、コールド試験で上記酸浸出法での反応中の異常発熱、突沸等の現象は見られなく試験の安全性を確認した。ホット試験はH₂SO₄法について行い、プルトニウムの浸出液側への分配率は約60%程度 (²³⁹Pu重量で12.4 mg相当) であった。

プルトニウム廃棄物測定技術開発はパッシブガンマ法及びパッシブ中性子法による検出限界レベルの確認並びに実廃棄物のガンマ線表面線量率とプルトニウム量との相関性についての検討を行った。

その結果、パッシブガンマ線法の各廃棄物の²³⁹Pu測定限界の例としてカートンボックスでは15 mg(±15%, 1,000秒測定), 200ℓドラム缶では30 mg(±20%, 4,000秒測定)まで測定できることを確認した。

また、パッシブ中性子法でのカートンボックス中の²⁴⁰Pu測定限界としては5 mgまで測定できることを確認した。

ガンマ線表面線量率(カートンボックス表面)とプルトニウム量との相関性では可燃物及び難燃物カートンボックスについては高い相関性が得られたが 不燃物カートンボックスでは廃棄物のマトリックスによるガンマ線吸収により良好な相関性を得ることは困難であった。

固化体評価試験はマイクロ波溶融固化体(コールド)の長期浸出試験による固化体の浸出率及び元素溶出量等の測定を行うとともに、プルトニウム燃料第一開発室に新設する処分技術開発試験設備の設計製作を行った。

結果として、マイクロ波溶融固化体の浸出速度は高レベルガラス固化体が浸出開始28日より飽和傾向が顕著であるのに対して、浸出開始28日以降も浸出速度の増加が見られ、浸出開始182日でも飽和の傾向は見られなかった。しかし、試験期間内における浸出速度はガラス固化体よりも良好な浸出率であった。

マイクロ波溶融固化体の主要浸出元素としては、Si, Na, Al, Caが確認され、アルカリ、アルカリ土類であることが分かった。

緩衝材中のTRU核種挙動研究ではNa型及びH型ベントナイト中のプルトニウムのみかけの拡散係数等の測定を行った。その結果、Na型ベントナイトでは10⁻¹⁰ cm²/S以下並びにH型ベントナイトで10⁻⁹~10⁻⁸ cm²/S程度であることが分った。

業 務 進 捗 表

項 目	年度・月											
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
2. 開発業務												
2.1 減容安定化処理技術開発												
2.1.1 難燃物焼却試験							---					
2.1.2 焼却灰等の溶融固化試験												
2.1.3 金属溶融試験												
2.2 除染技術開発												
2.2.1 除染試験												
2.2.2 プルトニウム分離試験												
2.3 区分管理技術開発												
2.3.1 プルトニウム廃棄物測定技術開発												
2.4 処分技術開発												
2.4.1 固化体評価試験												
2.4.2 緩衝材中のTRU核種挙動研究(I)												

2. 開 発 業 務

2.1 減容安定化処理技術開発

2.1.1 難燃物焼却試験

1) 目的及び概要

塩化ビニル、クロロブレンゴム等の塩素を含むプルトニウム廃棄物の減容処理技術開発の一環としてサイクロン焼却炉による焼却試験を行った。

61年度は60年度の連続焼却試験で摘出された下記の問題点

- ① 残渣溶融による炉床ヒータの断線、漏電
- ② 腐食性ガスによる炉下部キャスタブルの脱落
- ③ ヒートショックによる電融アルミナのひび割れ

に対する対策を検討するため、改造を行いその妥当性を確認した。

2) 方法及び結果

(1) 方 法

① 焼却条件

表-1. 焼却条件

試料供給量	5 kg/Hr	燃焼用空気温度	500 °C	焼却試料	9 : 1
燃焼空気流量	30 Nm³/Hr	炉床温度	500 °C	試料供給速度	5 kg/Hr
試料搬送用空気流量	10 Nm³/Hr	急冷塔循環液	2 m³/Hr	処理量	30 kg/日
試料搬送用空気流量(補助)	3 Nm³/Hr	塩酸吸収塔循環液	1.5 m³/Hr	運転時間	6 Hr
供給管冷却空気流量	6 Nm³/Hr	スクラバ循環液	1.5 m³/Hr	運転回数	11パッチ
施回流空気流量	10 Nm³/Hr	炉内負圧	20 mmH₂O		

(2) 試験

① 炉床ヒータ

従来の炉床ヒータの発熱部は図-1に示す様に気密性が悪く焼却残渣(塩化カルシウム)等がヒータ内部に入り込み残渣が溶融しヒータの腐食劣化を生じさせていた。更に残渣は吸湿性であるため含水分の増加と共に抵抗値が下がり漏電を生じさせていた。対策としてヒータをインコネルで覆う構造としての効果を確認した。

② 炉下部キャスタブル

従来の炉下部キャスタブルの施工状態は炉耐火物に焼却ガス（塩素ガス等）が直接接触する構造となっているため、キャスタブルの腐食が発生し脱落を生じさせた。

図-2に改造前後の炉下部施工状態を示す。

③ 炉床電触アルミナ

図-3に焼却炉断面を示す。

炉床は電融アルミナ製であるが、図-4に示すようにヒートショック等の原因により、多数のひび割れの発生が確認された。このため、運転保守の観点からひび割れが発生しても炉床の形状が保たれるように炉床をインコネル625で覆うこととした。又、炉床部以外の電融アルミナについての健全性についても確認を行うこととした。

④ その他

連続焼却試験を通して、次の評価を行うことにした。

① 試料の閉塞状態

② 処理量の確認

(2) 結 果

① 炉床ヒータ

連続焼却2バッチで焼却開始約1時間付近から、ヒータ断線又は漏電等のいずれかの原因により炉床部ヒータの昇温が出来なくなった。

炉床ヒータ内部をX線撮影を行った結果、ヒータ断線は認められなかったがヒータ線の膨張が起り、図-5に示すようにヒータ線がサポートから外れている箇所2箇所、ヒータサポートの損傷20箇所が発見された。原因としてはヒータ内部で熱の蓄熱が発生し、ヒータ線が大きく歪みヒータ内壁（インコネル）に接触（3箇所）し漏電したことが判明した。対策として、ヒータ内部の熱を効率よく放熱させるヒータ構造とする必要があると考えられた。

② 炉下部キャスタブル

連続焼却試験11バッチ（延焼却時間は64.7時間）において、炉下部キャスタブルの腐食脱落の発生はなく改造後の健全性が確認された。図-6に炉下部キャスタブル脱落防止施工前後を示す。

③ 炉床電融アルミナ

連続焼却試験11バッチ終了後の炉内耐火物状態を示す。結果として、コニカル部上部の全体に付着物が付着していた。

分析の結果、塩化カルシウムが主成分であることが判明した。

炉床電融アルミナの形くずれ防止対策としてインコネルで覆う対策は、今回の試験においては炉床電融アルミナにひび割れは発生せずインコネルで炉床を覆う効果を確認することはできなかった。

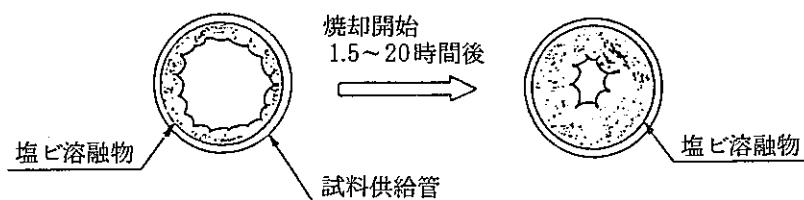
一方、炉内の電融アルミナについてはコニカル部で多くのひび割れが発生しており、その形は2~3cmで亀甲状の形状であった。又、炉中部の電融アルミナにひび割れが認められたが、コニカル部、炉中部ともひび割れによる脱落は発生していなかった。図-7, 8, 9に連続焼却試験終了後の炉内電融アルミナ表面状態を示す。

④ その他

① 試料供給管の閉塞状況

連続焼却試験において、試料閉塞発生箇所は図-10に示す試料供給管であった。試料の閉塞回数は平均1バッチ当たり6.7回であった。

閉塞現象として下図の様に焼却開始1時間から1時間30分後において、炉内の蓄熱が試料供給管先端部を加熱させ、試料の塩化ビニールが供給管内壁へ付着し、やがて完全に閉塞させる現象が確認された。



試料供給管閉塞現象

② 焼却処理量

11バッチの連続焼却試験における平均処理量は21.0kg/バッチで平均試料供給速度は3.5kg/hrであった。試験条件値の試料供給速度5kg/hrを達成することができなかった。原因として次の2点が考えられた。

- ④ 試料閉塞が発生すると試料供給量が停止することになり、試料供給速度が低下する。
- ⑤ 試料閉塞が発生すると、炉内での燃焼が停止するため炉内温度が急激に低下する。試料閉塞除去後に再供給し燃焼させても炉内温度が低いため、完全燃焼が進まず不完全燃焼となり未燃カーボンが多量に発生する。このため、供給速度を落して炉内の温度を上昇させ試料の完全燃焼を行う温度にする必要がある。

3) 結論及び今後の方針

(1) 結論

① 炉床ヒータの漏電

炉床ヒータの漏電対策として、ヒータ線をインコネルで覆う施工を行ったが、ヒータ加熱時のヒータ内部の蓄熱によりヒータ線の熱膨張を発生させヒータ内壁への接触による漏電を確認した。このため、ヒータ内部の蓄熱を効率よく放熱させるヒータ構造の工夫が必要である。

ることが分った。

② 炉下部キャスタブルの脱落

炉下部を電融アルミナ板で覆い炉下部キャスタブルの脱落防止を図る方法については、その効果が確認された。

③ 電融アルミナのひび割れ

コニカル部及び炉中部の電融アルミナに発生したひび割れの主原因は、ヒートショック等が考えられた。

これは既設焼却炉には断熱材が施されていないことによるもので、焼却終了時の放熱が大きいため、対策として焼却終了後に少量の熱風を炉内に送り込み炉内の温度維持を図る必要があるものと考えられた。

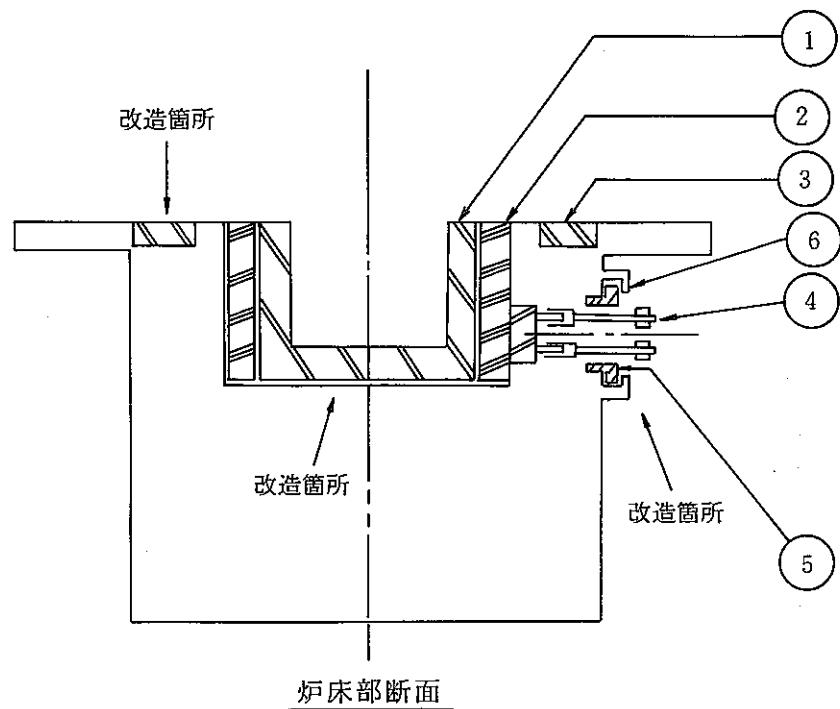
④ 試料閉塞

炉内からの伝熱、輻射による試料供給管内の試料閉塞は図-10に示すように冷却空気を十分に試料供給管先端部まで供給することで、試料の溶融付着は防止することができると考えられた。

(2) 今後の方針

昭和57年度よりサイクロン方式による焼却技術の確立を目指し燃焼条件の確立、構造材の評価並びにオフガス系の性能確認等に関する焼却試験を行い、その成果をPWTFの設計、運転条件等へ反映させた。

今後はPWTFにおいて、これら焼却技術の実証を図る計画である。



品番	名 称
①	灰受皿
②	炉床ヒータ
③	カバー
④	ピンジョイント
⑤	ガイド
⑥	キャップ

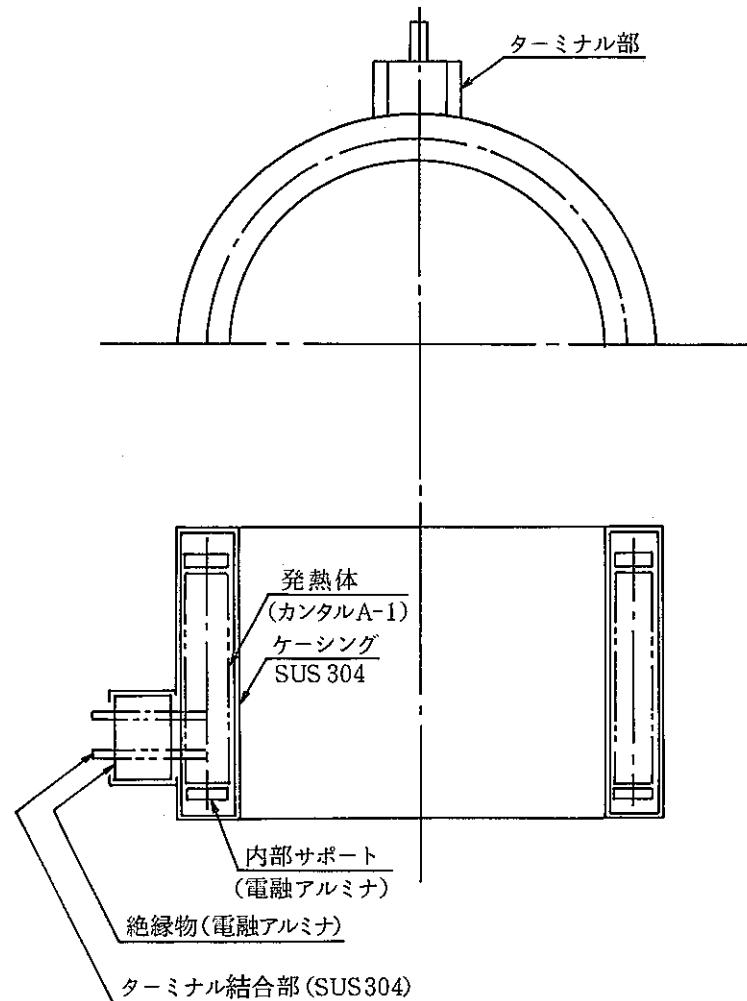


図-1. 炉針ヒータ(改造後)

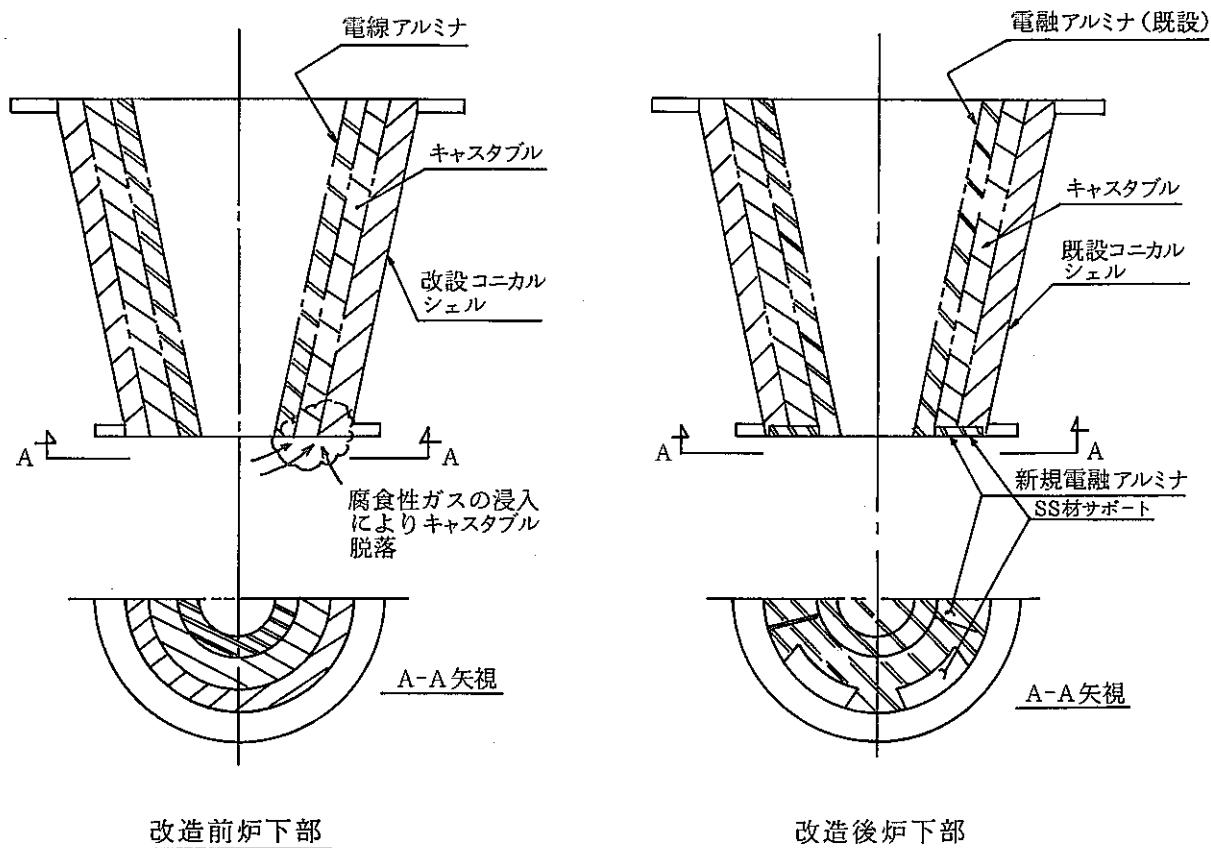


図-2. 改造前後の炉下部

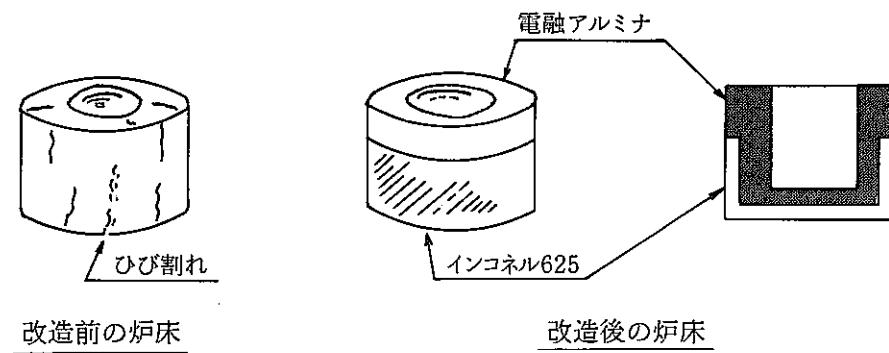


図-4. 改造前後の炉床部

-10-

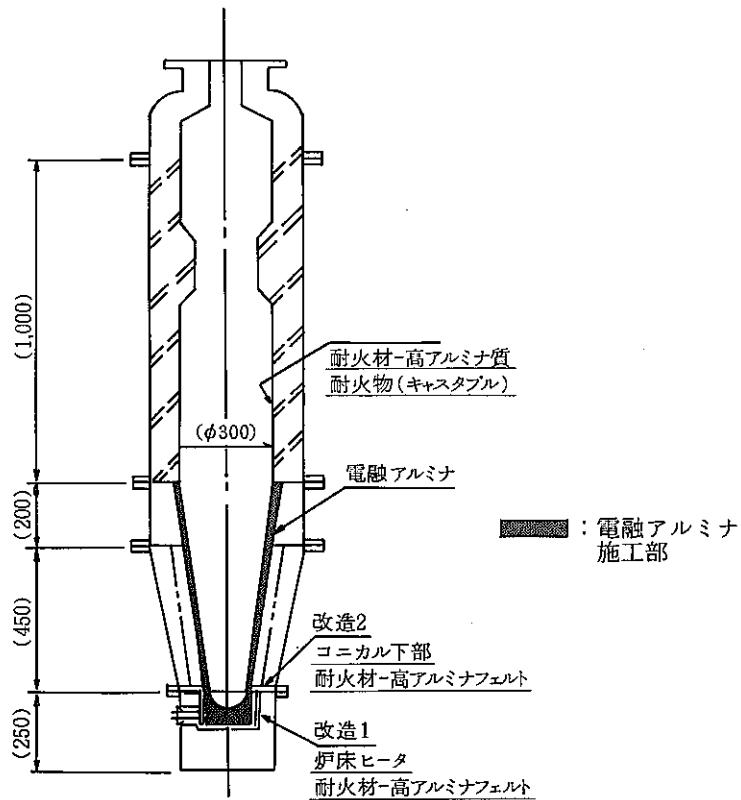


図-3. 焼却炉組立図

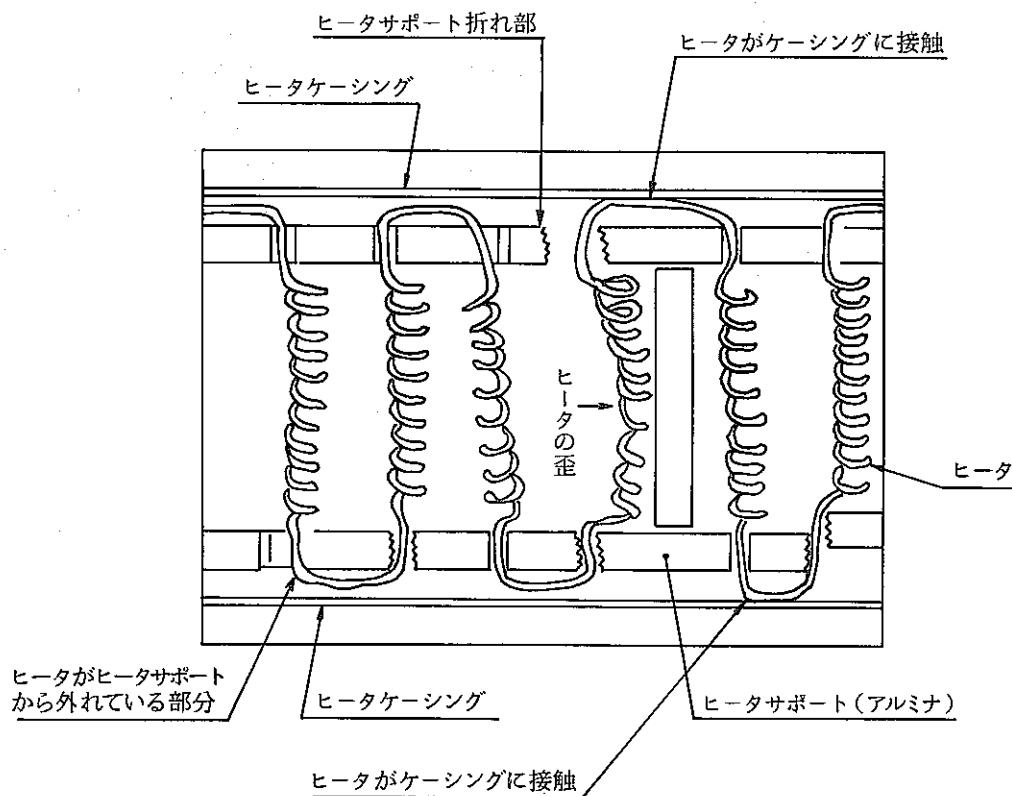
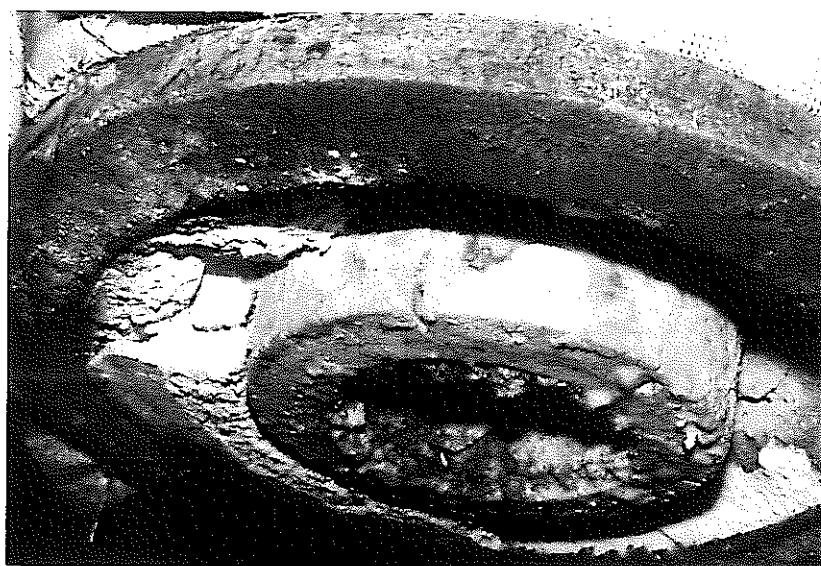


図-5. X線検査による炉床ヒータ内部



施工前



施工後

図-6. 炉下部キャスタブル脱落防止の施工前後

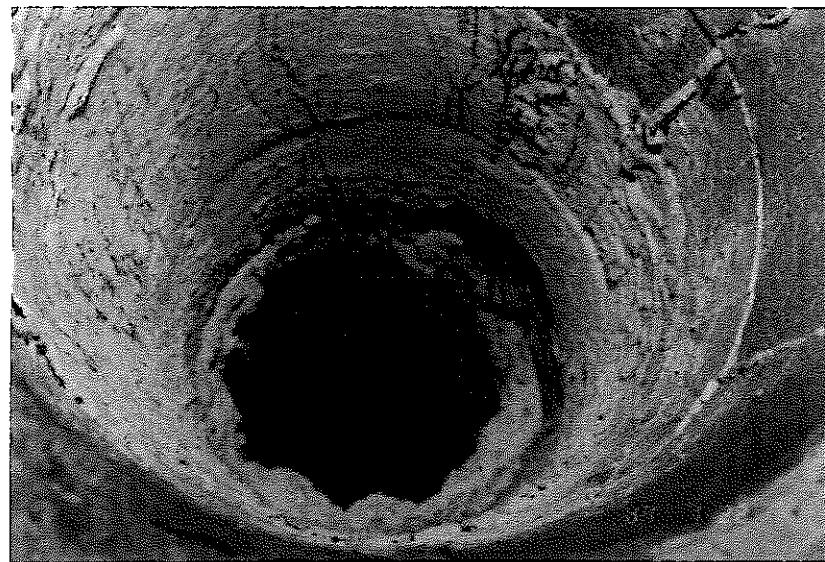


図-7. 炉内コニカル部の塩化カルシウムの付着状態



図-8. コニカル部電融アルミナのひび割れ

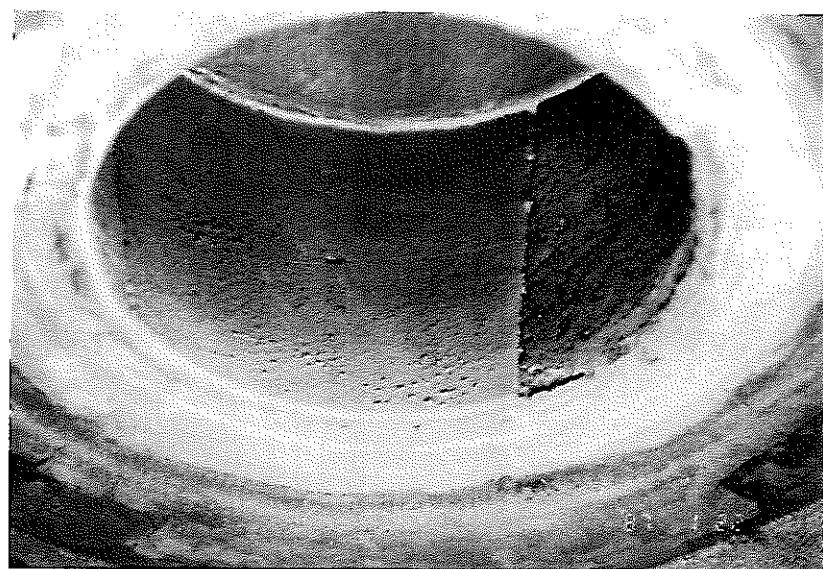
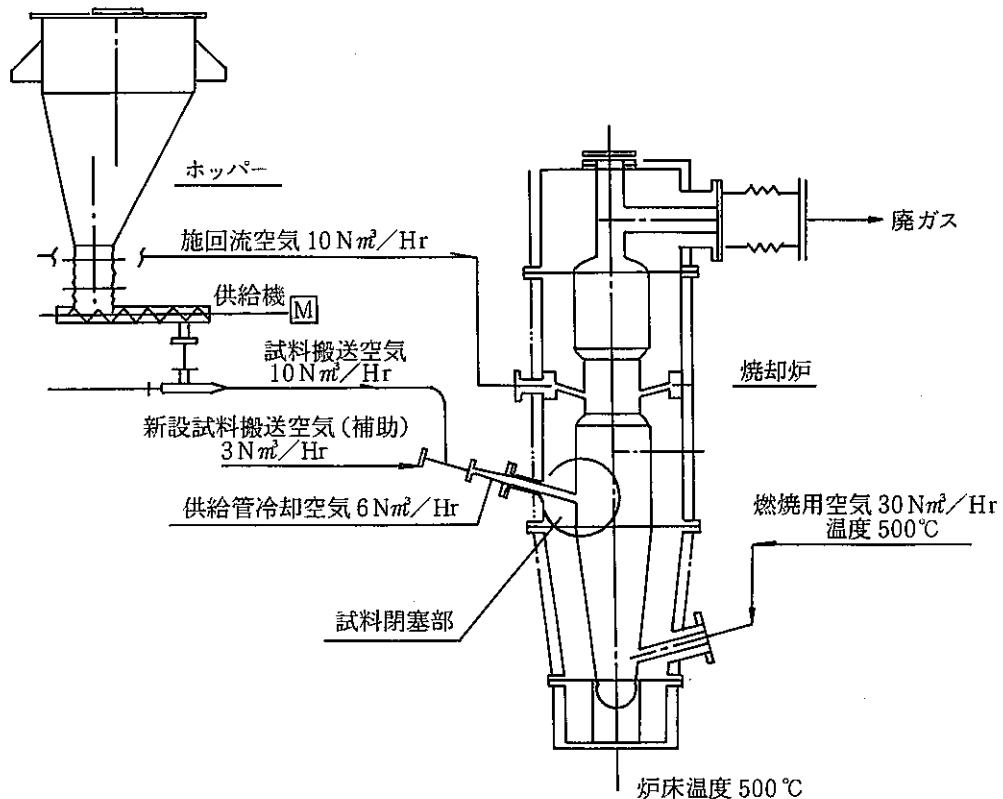
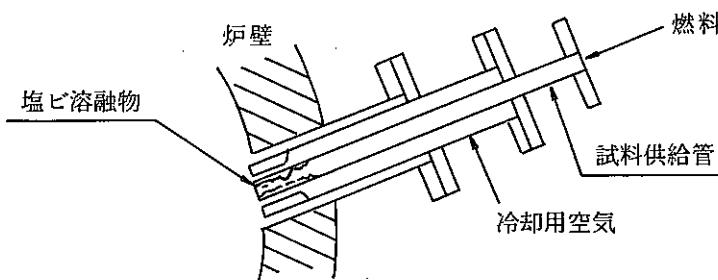


図-9. 炉中部電融アルミナのひび割れ



供給系設備系統図



試料閉塞拡大図

図-10. 試料供給管閉塞部

2.1.2 焼却灰等の溶融固化試験

1) 目的及び概要

プルトニウム廃棄物のうち、可燃性廃棄物、HEPAフィルタ、難燃性廃棄物等の焼却処理及び酸消化残渣等の減容安定化処理技術として、マイクロ波による溶融固化技術の開発を進めている。

本年度は、固化体の高密度化、均一化を目的として、マイクロ波溶融中におけるルツボの回転が固化体に与える影響を評価するため、ルツボ回転による溶融試験を行った。また、ドラム缶に対しての固化体収納効率の向上を図るための角型ルツボによる溶融試験についても行った。

一方、将来の処理対応への自由度が大きいマイクロ波溶融による固化体のビーズ化について、ビーズ固化体を連続して流出させる試験についての検討を行った。

2) 試験の方法及び結果

(1) ルツボ回転溶融試験

溶融中のルツボ回転が固化体の密度に与える影響を評価するため、HEPAフィルタ焼却灰を用いてルツボ回転機構を用いた溶融試験を行い固化体の密度の測定を行った。

表-1に示す試験結果に示すように固化体の密度は、ルツボを回転させても大幅な密度の向上は見られなかった。

また、HEPAフィルタ焼却灰の場合は溶融物の粘性が高いため、ルツボ回転による固化体の片寄りがなく平滑な溶融面の固化体が得られることを確認した。また、ルツボ回転機構を図-1に示す。

(2) ルツボ形状の溶融評価試験

ルツボ形状による固化体収納効率の向上を図るために、円形、四角形、五角形、六角形の断面形状を有するルツボを用いてHEPAフィルタ焼却灰のマイクロ波溶融試験を行い、固化体の密度、被溶融物の溶融時間、試料投入速度についての比較評価を行った。その結果、表-2に示すように固化体のかさ密度、着火時間については円形、四角ルツボはほぼ同じ値を示した。六角形ルツボはマイクロ波印加開始とほぼ同時の着火であることを確認した。試料投入速度は四角形ルツボ>六角形ルツボ>円形ルツボの順で高い値を示した。五角形のルツボについては、マイクロ波溶融が出来ず測定が不可能となった。原因として、五角形ルツボではマイクロ波エネルギーがHEPAフィルタ焼却灰にうまく集中しなかったためと考えられた。

(3) 固化体連続流出試験

固化体収納容器への収納効率の向上を図るために、連続的に溶融物を炉外へ流出させる連続流出炉の検討及び流出試験を可燃物焼却灰溶融させて行った。

その結果、今回製作した2タイプの連続流出炉（図-2参照）はいずれも連続的に溶融物を流出させることが困難であった。原因として、流出部の冷却により溶融物が冷えて固まるものと考えられた。

3) 結論及び今後の方針

(1) 結論

① ルツボ回転溶融試験

ルツボ回転による固化体密度の変化は、今回実施した回転数パラメータの範囲内では大きな差は確認されなかった。

② ルツボ形状の溶融評価試験

① 固化体の密度、着火時間については円形、四角ルツボはほぼ同じ値を示した。

② 六角ルツボの着火性は他の角形ルツボに比べて非常に優れていた。

③ 試料投入速度は四角ルツボ>六角ルツボ>円形ルツボの順で高い値を示した。

④ 五角ルツボによるHEPA焼却灰のマイクロ波溶融は困難であった。

③ 固化体連続流出試験

今回試験に用いた2タイプの連続流出炉では、連続的に溶融物を流出させることは困難であった。

(2) 今後の方針

マイクロ波溶融においてルツボ内部に発生する電界強度が溶融条件に大きく影響するため、電界強度の測定等を行う必要がある。

表-1. ルツボ回転溶融試験結果

ルツボ回転数 (rpm)	固化体密度 (g/cm^3)
0.33	2.4
0	2.3

溶融試料：HEPA フィルタ焼却灰

表-2. 角形ルツボ溶融試験結果

ルツボの 断面形状	固化体密度 (g/cm^3)	着火時間(分)	平均投入速度 (kg/Hr)
円形	2.4	約 5	1.5
四角形	2.5	約 5	2.4
五角形	測定出来ず	着火せず	測定出来ず
六角形	2.8	マイクロ波印 加とほぼ同時	2.0

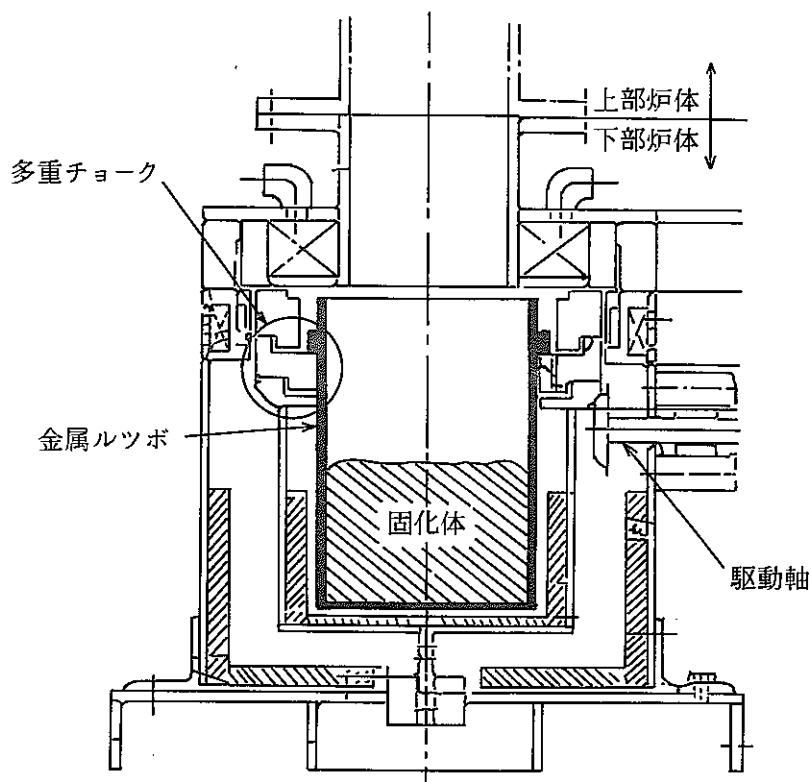


図-1. ルツボ回転機構

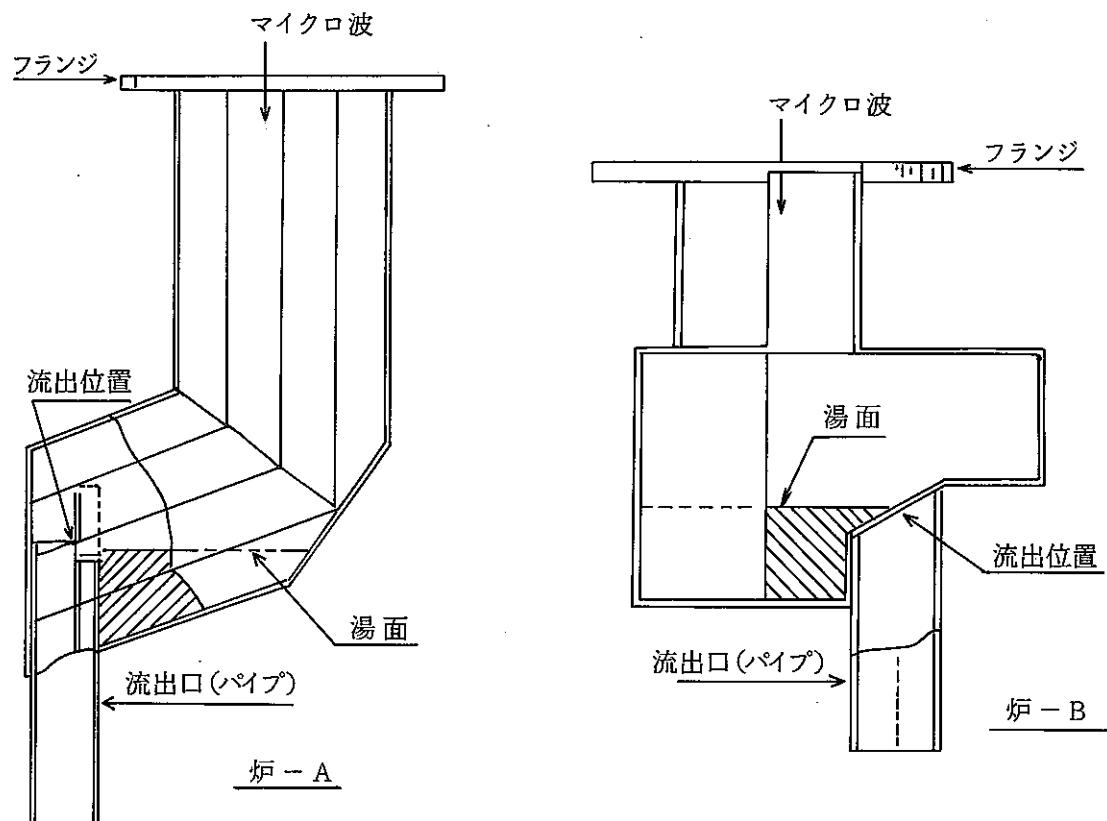


図-2. 連続流出炉

2.1.3 金属溶融試験

1) 目的及び概要

プルトニウム廃棄物のうち、金属廃棄物の減容安定化処理技術開発の一環として、金属廃棄物のエレクトロスラグ溶融法（ESR）の開発を行っている。

本年度は、エレクトロスラグ溶融法による除染性評価試験、高融点金属（ジルカロイ-2）の溶融試験、設備の安全性確認のための鋳型の冷却水停止試験並びに溶融電極の代替電極選定試験を行った。

2) 方法及び結果

(1) 除染性評価試験

エレクトロスラグ溶融法における放射性物質の溶融スラグ層への移行について評価・確認を行うため、酸化プルトニウム（ PuO_2 ）の模擬物質として化学的挙動が近似している酸化セリウム（ CeO_2 ）を用い溶融除染試験を行うために金属試料 30 kg (SUS 27 kg : SS 3 kg) に対して酸化セリウム添加量（0.25 g, 1 g, 3 g, 30 g）及び電極の径（ $\phi 30 \text{ mm}$, $\phi 50 \text{ mm}$ ）をパラメータにとり、酸化セリウム添加量が除染量に与える影響及び電極径の変化により生ずる金属鋳塊内の温度が除染係数に与える影響を評価した。

分析はより検出感度の高い分析法を適用して正確な除染量を確認するため、スラグ中の CeO_2 分析には放射化分析法（測定精度 1 ppm）を、金属鋳塊には ICP - MS を用いて分析を行った。試験の結果、図-1 に示すようにスラグへ移行する CeO_2 量は添加量に比例した。又、金属鋳塊に残留する CeO_2 量は添加量に影響されずほぼ一定濃度となった。

電極の径については表-1 に示すように $\phi 50 \text{ mm}$, $\phi 30 \text{ mm}$ でも、金属鋳塊中に残留する CeO_2 濃度は約 0.3 ppm オーダーとなり、除染の差は無いことがわかった。

(2) 高融点金属溶融試験

高融点金属としてジルカロイ-2（燃料被覆管）の融点は 1,857°C であり、既存の酸化物系のスラグ溶融温度（運転温度）1,800 °C より高いため単体での溶融は困難である。このため、他金属との共晶により溶融を可能とするため表-2 の試験を行った。

試験の結果、共晶部分は認められるが未溶融ジルカロイが多く、スラグ巻き込み量が多かった。以上の結果から既存の酸化物系のスラグではジルカロイ-2 の溶融は困難であることがわかった。（図-2 参照）

(3) 安全性確認試験

水冷銅鋳型の冷却水停止時の安全性を確認するため、溶融金属量 100 kg において冷却水停止時間を 1 分間行った条件で以下の項目について確認を行った。

- ① 水冷銅鋳型の熱変形
- ② 鋳型内部の冷却水温度

試験の結果、水冷銅鋳型の寸法の変化は認められず、健全性は保たれていることがわかった。

図-3に示す水冷銅鋳型内温度の実測値は計算値よりも低い値を示し、その温度上昇はほぼ同じ傾向を示した。又、図-4に示す水冷銅鋳型内冷却水温度は計算値よりも充分に低く、沸騰等の問題は生じていないことが分かった。

(4) 代替電極の選定試験

エレクトロスラグ溶融炉に使用されている既存のタングステン電極は高温特性及び機械的強度等において優れている理由から使用している。しかし、コスト高並びに国内調達が困難等の理由からこれる代る代替電極を検討することとした。

検討は、エレクトロスラグ溶融炉での使用条件に合わせて代替電極の国内調査を行い、可能性のあるものについて選定を行い $\phi 30\text{ mm}$ タングステン電極、 $\phi 50\text{ mm}$ モリブデン電極について溶融試験を行い、以下の項目を確認することとした。

- ① アークスタート性
- ② 電極消耗状態及び消耗量
- ③ 連転時の状態
- ④ 金属鋳塊の状態

試験結果を以下に示す。

① アークスタート性

$\phi 50\text{ mm}$ モリブデン電極のアークスタート性は既存の電極と同様で約2分で着火可能であった。 $\phi 30\text{ mm}$ タングステン電極のアークスタート性は極めて良好で、既存の電極と比べて約1/2~1分で着火可能であった。

② 電極消耗状態

$\phi 30\text{ mm}$ タングステン電極と既存の電極の消耗は約 $2\text{ mm}/\text{hr}$ 程度であった。これに対し、モリブデン電極の消耗は約 $8\text{ mm}/\text{hr}$ と大きな値を示した。

③ 溶融運転状態

$\phi 50\text{ mm}$ モリブデン電極は溶融中、モリブデン酸化物による多量のガスが発生し、溶融後水冷鋳型内部を観察したところモリブデンの酸化粉末が多量に鋳型内部に付着していた。

$\phi 30\text{ mm}$ タングステン電極の場合は、溶融中にガスが発生する現象は観察されなかった。

④ 金属鋳塊

$\phi 30\text{ mm}$ タングステン電極、 $\phi 50\text{ mm}$ モリブデン電極の両方とも、既存の電極の場合より目視観察の結果スラグ巻き込みの少ない良好な鋳塊を得ることができた。

3) 結論及び今後の方針

(1) 結論

- ① 除染性評価試験

- ① スラグへ移行する CeO₂ 量は CeO₂ 添加量に比例した。
- ② 金属铸塊に残留する CeO₂ 量は 0.3 ppm でほぼ一定濃度となった。
- ③ 高融点金属溶融試験
 - ① 既存の酸化物系のスラグを用いて、共晶溶融を行ってもジルカロイ-2 の溶融は困難であった。
 - ② 安全性確認試験
 - ① 金属溶融中において冷却水停止時間 1 分間では、铸型冷却水の沸騰及び铸型の変形は認められなかった。
 - ④ 代替電極の選定試験
 - ① アークスタート性、消耗度、金属铸塊の品質等の面から判断すると $\phi 30\text{ mm}$ タングステン電極が優れていた。
- (2) 今後の方針
 - 除染性評価試験として、スラグによる除染性能の向上検討及び高溶融・低沸点金属溶融試験並びに廃ガス処理系への模擬汚染物質、金属ヒュームの移行量を測定した金属溶融技術の高度化に反映させる必要がある。

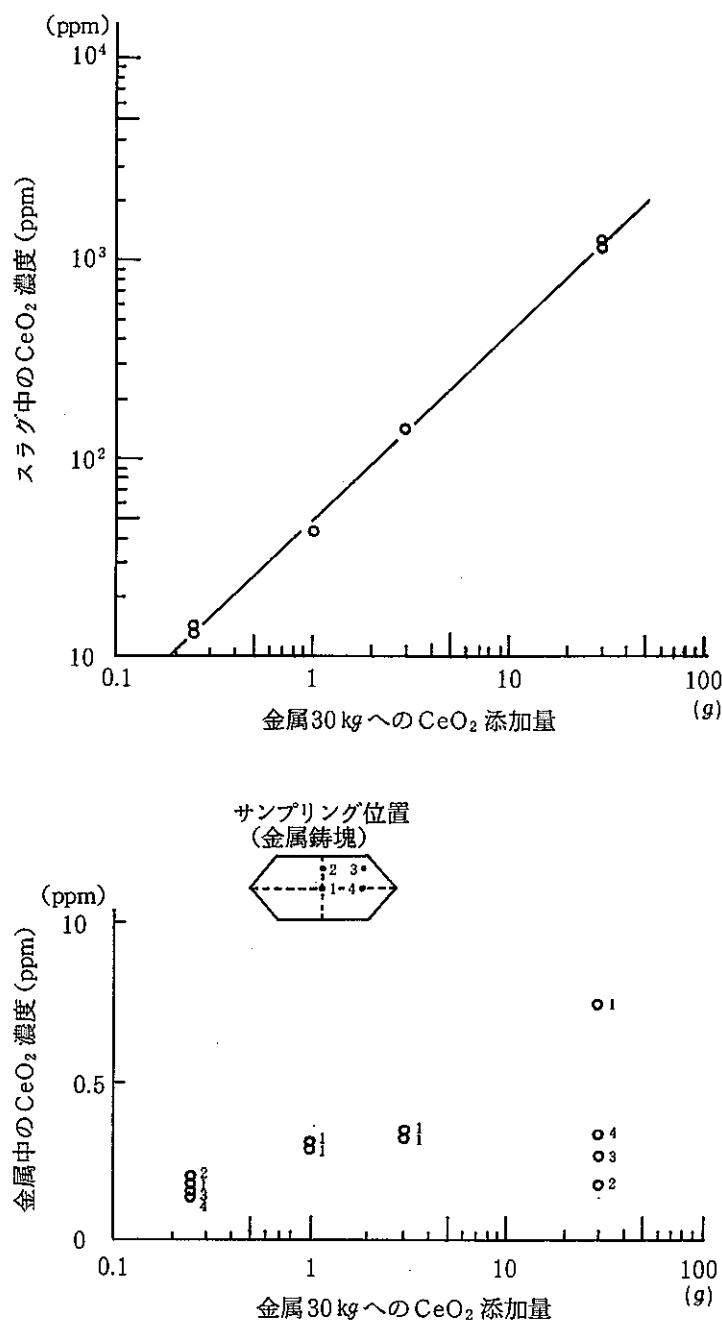


図-1. スラグ除染試験結果

表-1. スラグ除染試験結果（電極径による影響）

電極の径	CeO_2 濃度	スラグ中	金属铸塊中
$\phi 30\text{ mm}$		6.6 ppm	0.32 ppm
$\phi 50\text{ mm}$		16 ppm	0.16 ppm

注) 試料(金属100kg)への CeO_2 添加量: 0.05 g (0.5 ppm)

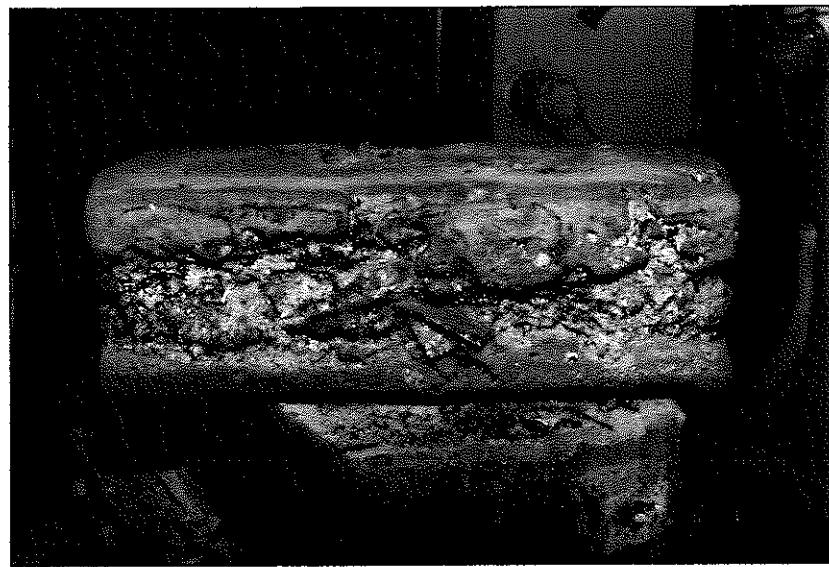
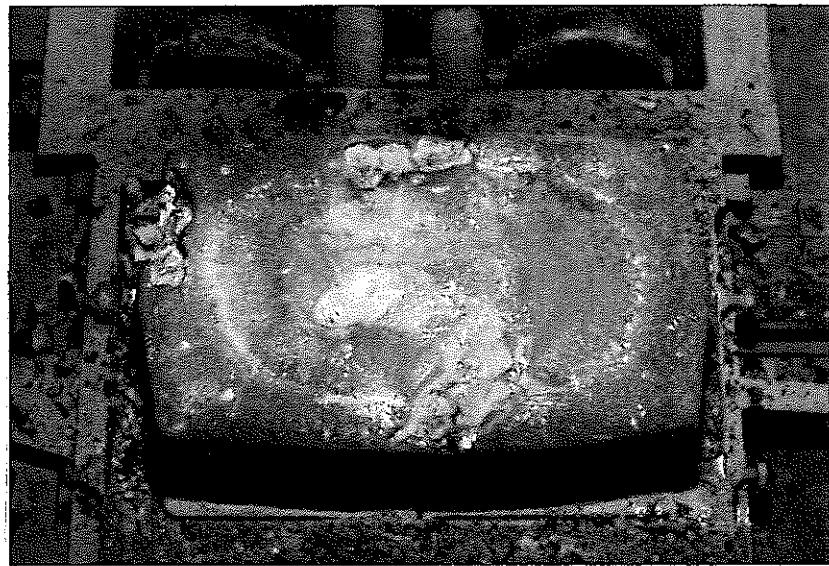


図-2. 鑄塊（第1回）

表-2. 高融点金属溶融試験条件

試験 No.	試験条件		
	電極	試料比	投入速度
1	φ 30 mm タングステン	ジルカロイ-2 : 1 SS : 0.9 SUS 304 : 8.1 (計 30 kg)	1.5 kg / 1.5 分
2	φ 50 mm タングステン	ジルカロイ-2 : 1 SS : 0.9 SUS 304 : 8.1 (計 30 kg)	1.5 kg / 3 分
3	φ 50 mm タングステン	ジルカロイ-2 : 4 銅 : 5 SUS 304 : 11 (計 30 kg)	1.5 kg / 3 分

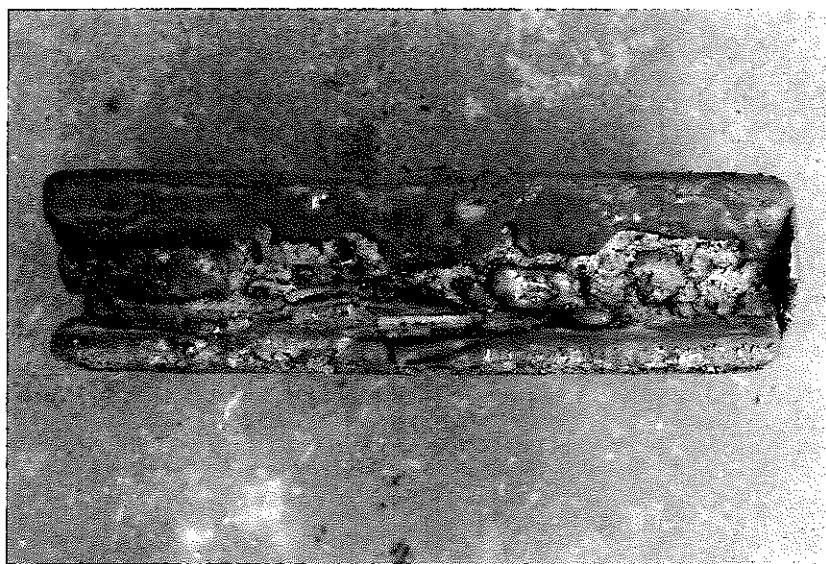


図-2. 鋸塊（第2回）



図-2. 鑄塊（第3回）

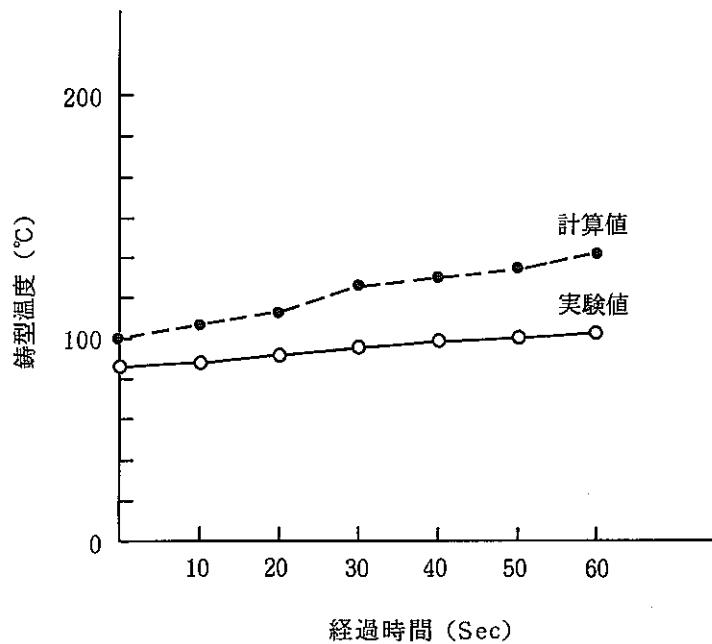


図-3. 鋳型内温度

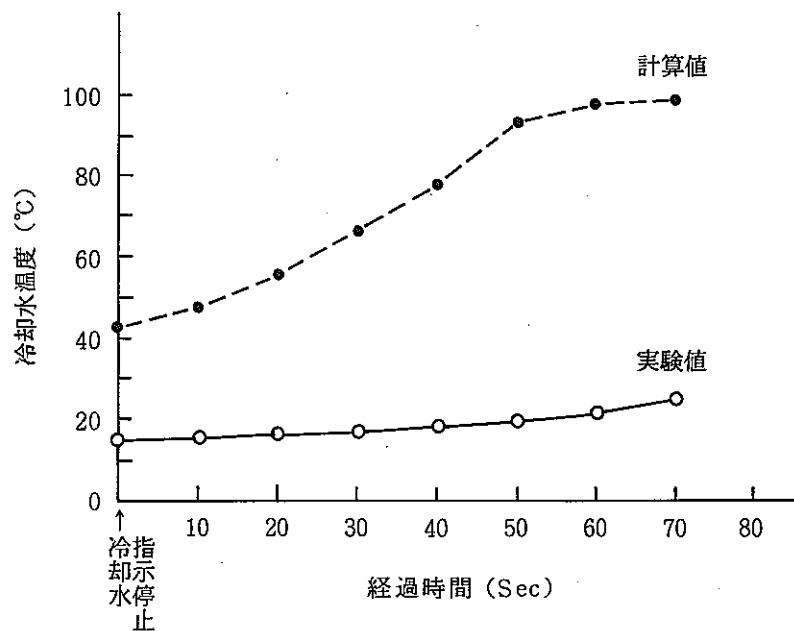


図-4. 鋳型内冷却水温の変化

2.2 除染技術開発

2.2.1 除染試験

1) 目的及び概要

TRU廃棄物の発生量低減化技術の一環として、金属廃棄物の効果的な除染法として電解研磨除染法がある。

電解研磨除染法は希硫酸等の電解液中で、被研磨物と電極間に電流を流すことにより、金属表面を電気化学的に研磨する方法である。

この電解研磨除染法の内、細片金属廃棄物の多量除染に適しているバレル電解研磨除染法を選定し、コールド試験での電解条件の把握並びにホット試験における除染係数等の測定を行った。

2) 方法及び結果

(1) バレル電解研磨コールド試験

コールド試験装置を図-1に示す。装置はモータ、バレル槽、④棒状電極等から構成されている。

試験方法は試験装置のバレル槽内に除染試料を入れ、5%希硫酸を張った電解槽に試験装置を浸漬させる、次にモータにより歯車でバレル槽を回転させた後、電解槽を④極にバレル槽内の棒状電極を①極にし、除染試料の電解研磨を行った。（ホット試験方法も同様の方法で行った。）

電解条件の把握として以下を確認試験項目とした。

- ① 最適バレル回転数評価
 - ② 試料表面の除染均一性評価
 - ③ 最適試料寸法及び処理量評価
- ① 最適バレル回転数評価

表-1に試験条件を示す。

バレルの回転数（1.3, 5.8, 9.5 rpm）をパラメータにとり、電解研磨試験を行い最適バレル回転数を研磨効率と研磨重量から求めた。その結果、図-2に示すように研磨効率及び研磨重量の標準偏差で最も良い値を示したのは約 5.8 rpm であった。

② 試料表面の除染均一性評価

バレル電解研磨除染における電解研磨の均一性を評価するため、金属試料表面を加熱させ酸化被膜を形成させ、電解研磨の進行過程を観察し平均研磨厚との関係を求めた。

その結果、電解研磨は試料の周辺部から進行しており、完全に酸化被膜が除去された時の平均研磨（減重量換算）は $0.9 \mu m$ であり、時間は 300 秒を要した。電解研磨により酸化被膜が除去される様子を図-3に示す。

③ 最適試料寸法及び処理量評価

表-2に試験条件を示す。

図-4に示すように試料寸法が研磨効率と研磨重量の標準偏差に与える影響は、研磨効率及び研磨重量の標準偏差に対して有意に働き、研磨効率が最も高く研磨重量の標準偏差が小さい4cm角が最適であることが分った。

又、処理量は図-5に示すように研磨効率に大きな差はないが、研磨重量の標準偏差の最小値からバレル内の試料の体積比率として10%が最適であることが分った。

(2) バレル電解研磨ホット試験

表-3に試験条件を示す。

バレル電解研磨除染による除染係数を把握するため、汚染試料を用いたホット試験を行い、除染時間と汚染密度の関係を求めた。

同一試料108枚を3回バレル電解研磨除染を行い、除染前後の汚染密度を非破壊測定法のパッシブガンマ線法にて、試料9枚を1セットとして²⁴¹Am量を評価した結果、電解研磨時間21分間で除染係数約10³であることを確認した。

図-6にパッシブガンマ線法による²⁴¹Am量測定図並びに図-7に電解除染試験結果を示す。

3) 結論及び今後の方針

(1) 結論

- ① 最適バレル回転数（コールド試験装置）は約5.8 rpmであった。
- ② バレル電解研磨は試料の周辺部から進行する。
- ③ 最適試料寸法は4cm口並びに最適処理はバレル内の試料の体積比率として10%が最適であった。（コールド試験装置）
- ④ バレル電解研磨時間21分間で除染係数は約10³であった。（²⁴¹Am量での評価）

(2) 今後の方針

バレル電解研磨除染について引き続き、除染の均一性、電解液の再生法等についての検討を加え、効率的な除染システムの確立を図るための基礎データの収集を行う予定である。

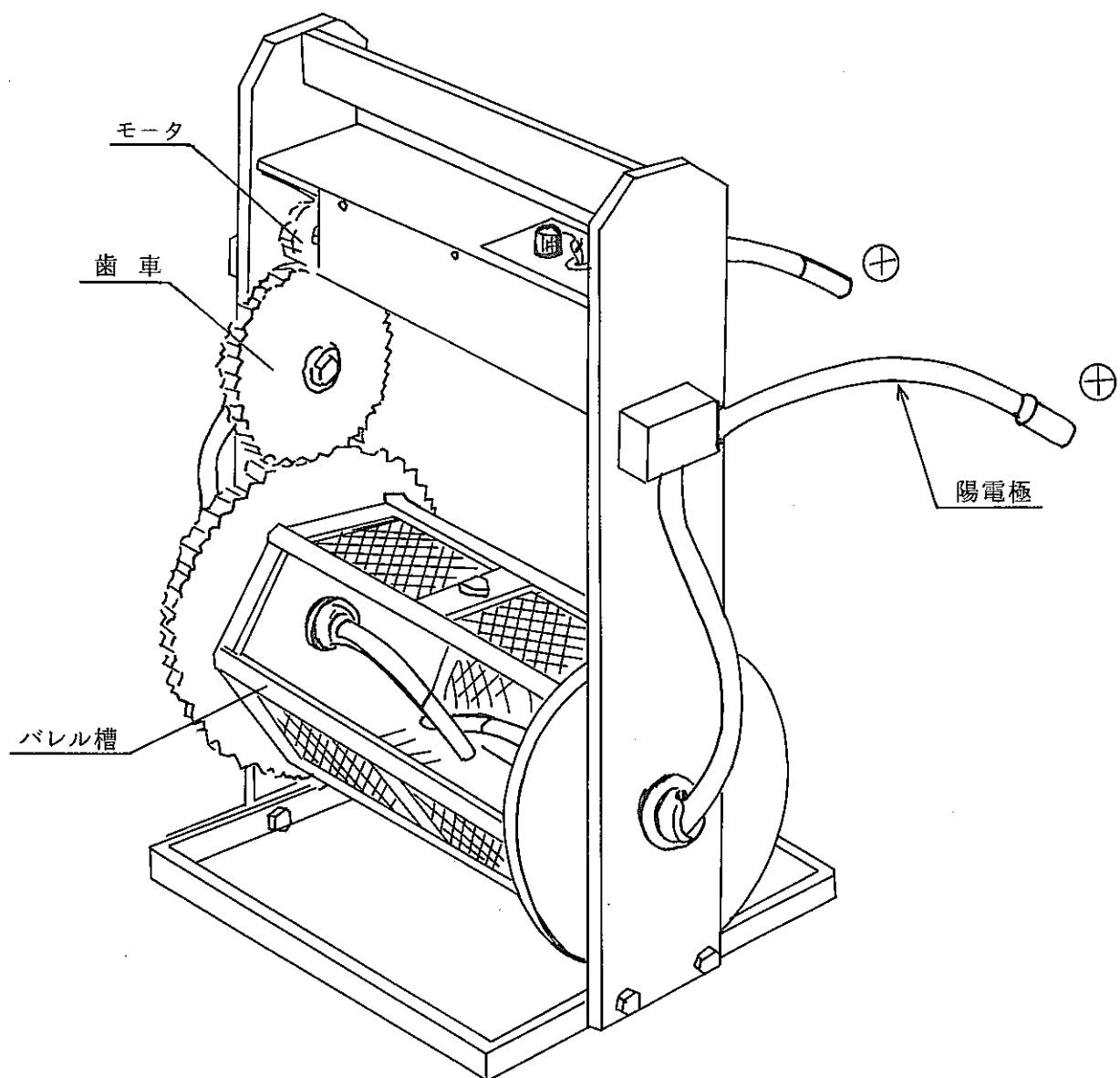


図-1. バケル電解研摩コールド試験装置

表-1. バレル回転数評価試験条件

項 目	条 件
電解条件	電 解 液 5 v/o H ₂ SO ₄ , 150 ℥
	電 流 密 度 5 A/dm ²
	電 解 時 間 10 分
試 驗 片	材 質 SUS 304
	寸 法 6 cm 口, 4 t
	枚 数 50 枚
バ レ ル 槽	回 転 数 1.3 rpm, 5.8 rpm, 9.5 rpm

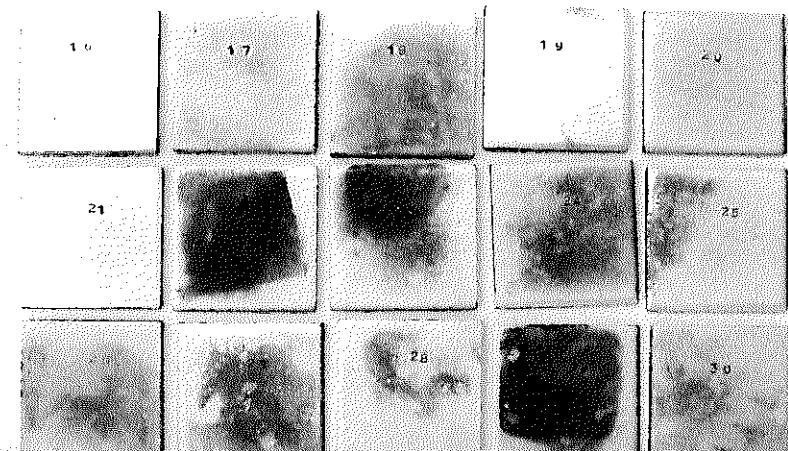
表-2. 試料寸法及び処理量評価試験条件

項 目	条 件
電解条件	電 解 液 5 v/o H ₂ SO ₄ , 150 ℥
	電 流 密 度 2.5 A/dm ²
	電 解 時 間 10 分
試 驗 片	回 転 数 5 rpm
	材 質 SUS 304
	寸 法 5 口, 6 口, 5 口, 9 口 cm
	投 入 重 量 9.2, 6.8, 4.6 kg



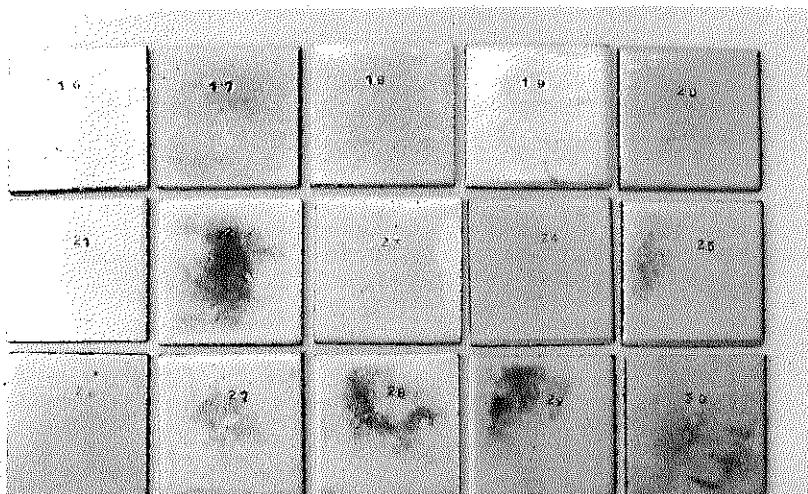
No. 16 ~ 30

0秒後



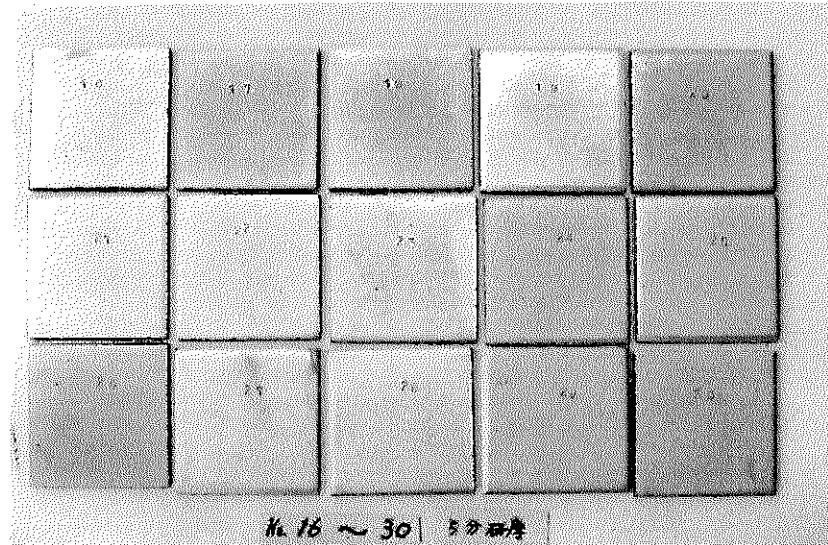
No. 16 ~ 30 | 10秒研摩

10秒後



No. 16 ~ 30 | 1分研摩

60秒後



No. 16 ~ 30 | 5分研摩

300秒後

図-3. 試料表面の研摩の進行

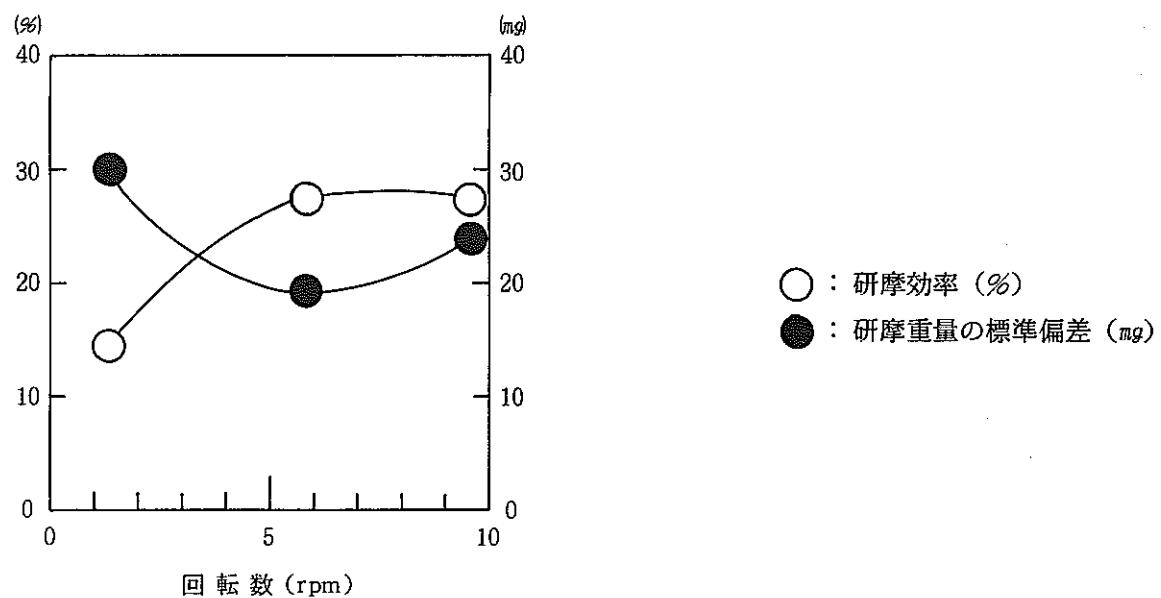


図-2. バレル回転数による影響

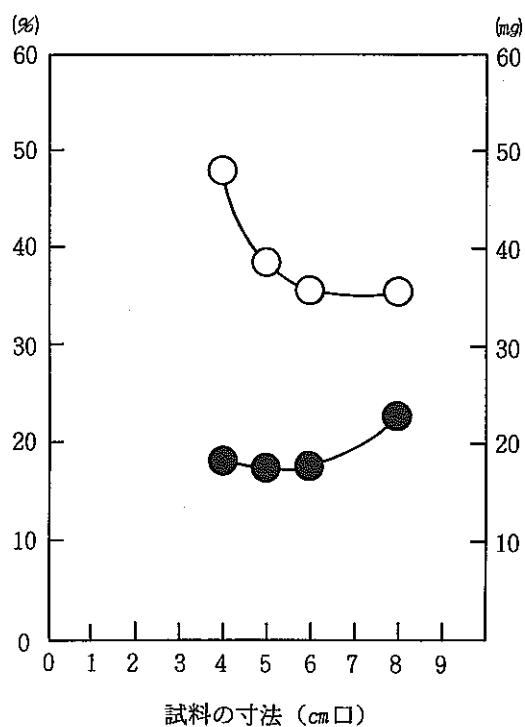


図-4. 試料寸法の影響

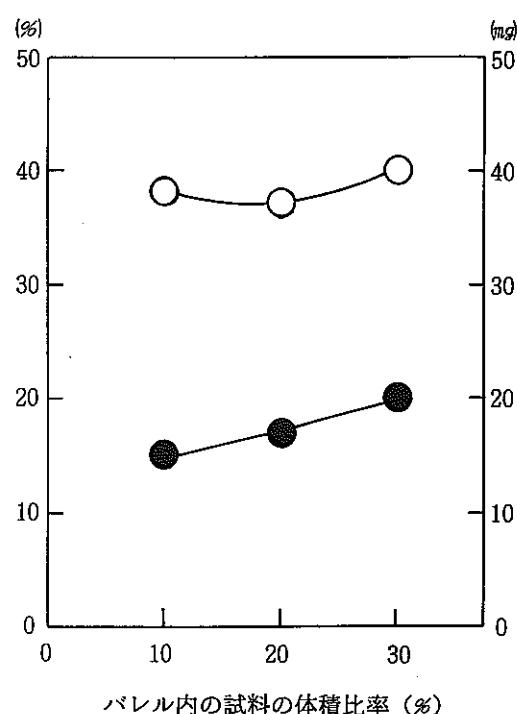


図-5. 試料投入量の影響

表-3. バレル電解研磨除染ホット試験条件

装 置		小型バレル電解試験装置
試 料	材 質	SUS 304
	寸 法	3cm 口 (t 2mm)
	表面仕上げ	No.1仕上, 2B仕上 No.1仕上を電解研磨したもの
	数 量	108枚(約1.5kg)
	汚 染 方 法	グローブボックス床に試料をこすりつける
	初期汚染密度	約0.133 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ (^{241}Am)
電 解 条 件	電 解 液	5v/o H_2SO_4 , 10ℓ
	電 流 密 度	2.5 A/ dm^2
試 料 測 定 方 法		P/r法による ^{241}Am 測定

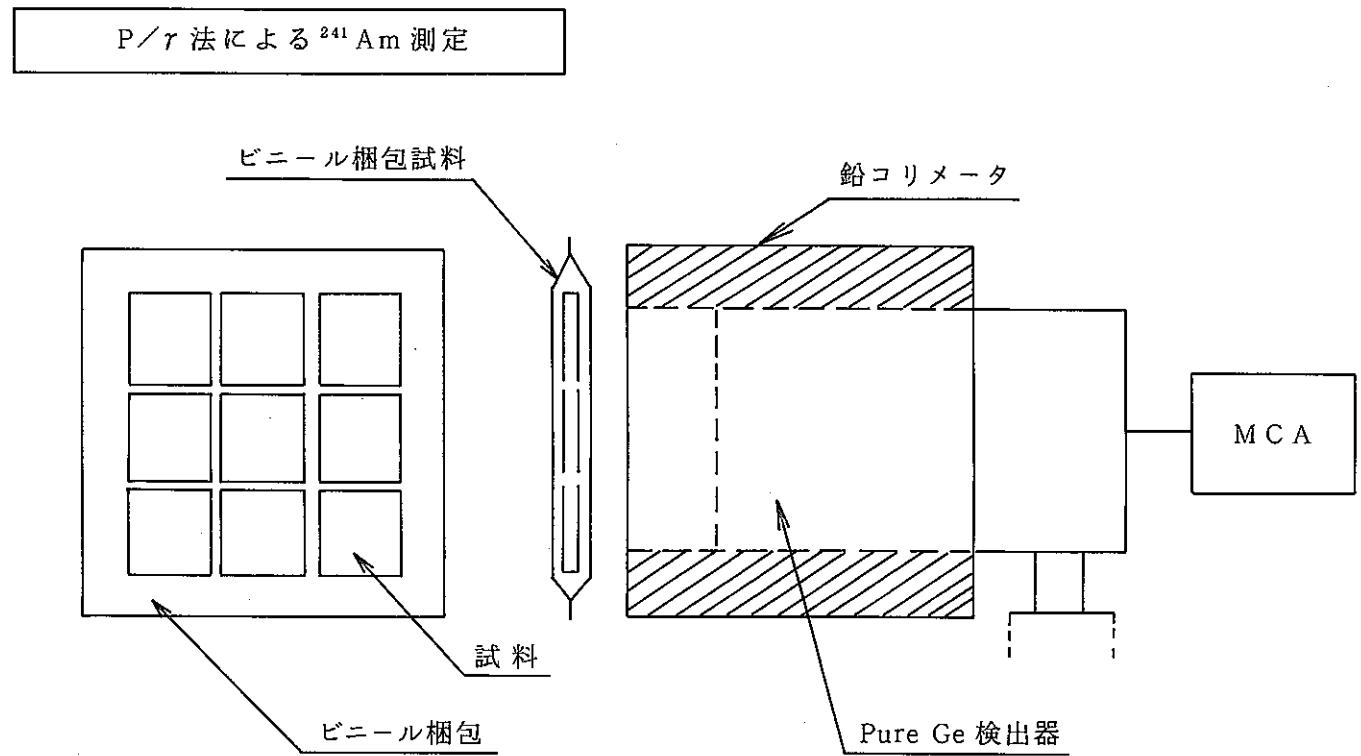


図-6. パッジング・ガンマ線法測定状態図

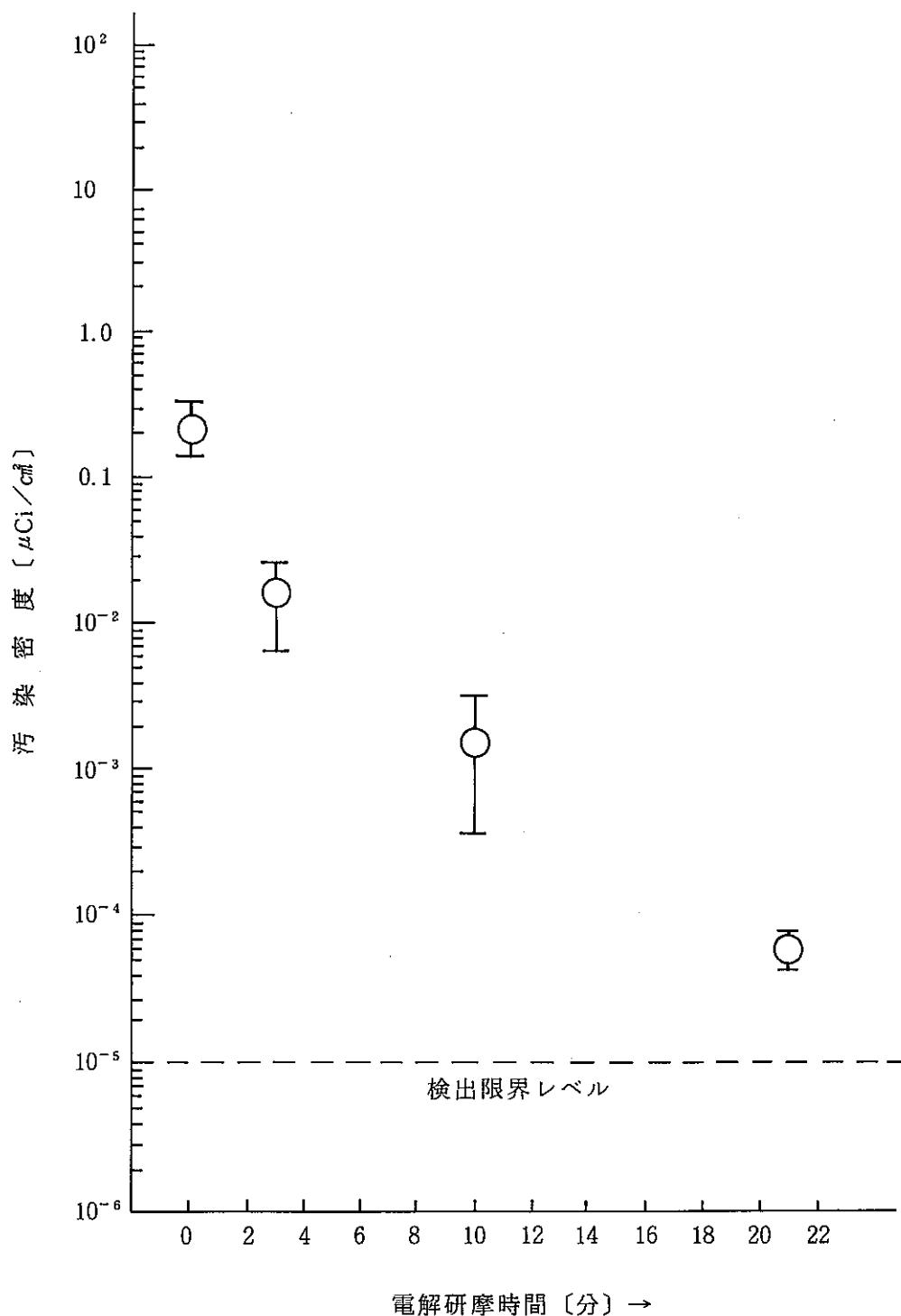


図-7. 電解除染試験結果

2.2.2 プルトニウム分離試験

1) 目的及び概要

プルトニウム廃棄物の焼却処理により焼却灰が発生する。この焼却灰中には未処理可燃性廃棄物に比べプルトニウムが多く含まれていることが、非破壊測定法等の測定結果から明らかになっている。

ここでは、将来の区分管理の観点からこれら廃棄物中のプルトニウムを出来る限り分離・除去するための技術開発の一環として、焼却灰からのプルトニウム分離に関する酸浸出条件、分配係数等を把握するために行うものである。

本試験は60年度に予備検討を実施しており、今年度はコールド焼却灰、実焼却灰を使ってプルトニウム酸浸出条件等を把握する。

2) 方法及び結果

(1) 方 法

① $\text{HNO}_3/\text{CaF}_2$ 法予備試験（コールド）

グローブボックスによる $\text{HNO}_3/\text{CaF}_2$ 法でのホット試験を前提に、 $\text{HNO}_3/\text{CaF}_2$ 法によるコールド焼却灰を用いた反応の安全性及び溶解浸出性等を調査した。

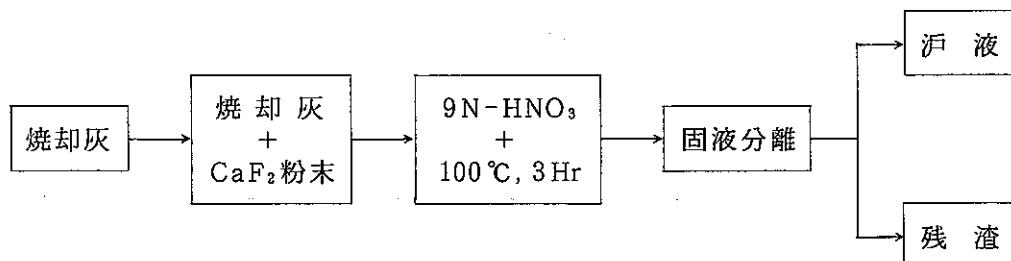
② 試験条件

③ 試験に供した焼却灰

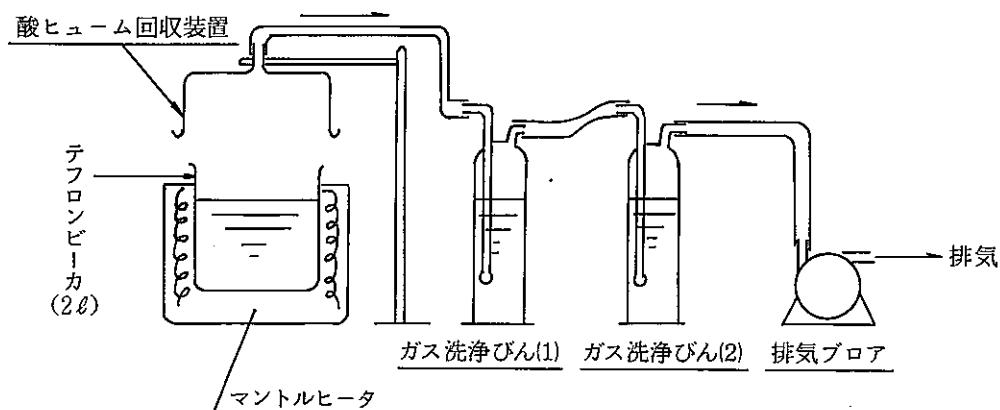
紙、ウエス、塩ビ、チオックスの混合物を焼却したもの。

（この焼却灰には未燃カーボンが多く含有されている。）

④ 試験フロー



④ 試験装置



- テフロンビーカ : 2ℓ
- マントルヒータ : Max 300 °C, スライダック付
- 酸ヒューム回収装置 : 洗浄びん(1) → H₂O, 洗浄びん(2) → H₂O
- 排気ブロア

⑤ 確認項目

- a) 浸出液加熱時における異常な発熱、反応がないか。
- b) 酸ヒューム装置は正常に作動するか。
- c) 浸出液の固液分離は円滑に行えるか。

⑥ その他特記事項

⑦ 燃却灰中のPu存在状態の推定

燃却灰中のプルトニウムを酸で浸出させるためには、プルトニウムと酸を良く接触させる必要がある。従って酸と反応するプルトニウムの燃却灰中での存在状態を把握しておくことがプルトニウムの酸浸出において重要な要因の一つである。このため、燃却灰中のPu存在状態の観察を行うために、EDX/SEM等による調査、測定を行った。

⑧ 試験条件

燃却灰中のPu存在状態を推定するために、紙、布の可燃物に酸化セリウム (PuO₂の模擬物質) 粉末を添加させ、燃却後の灰中のセリウムの存在状態を測定した。

- a) 試薬 (特級) CeO₂ (IV) : 酸化第二セリウム
- b) 可燃物
キムタオル、綿手。酸化セリウム粉末は可燃物重量に対して 0.1 wt % に調整した。
- c) 電気炉
電気発熱体方式、燃却温度 700 ~ 800 °C

⑨ 分析

- a) SEM-XMA JXA 733 日本電子製
電子線ビーム径 0.3 μm

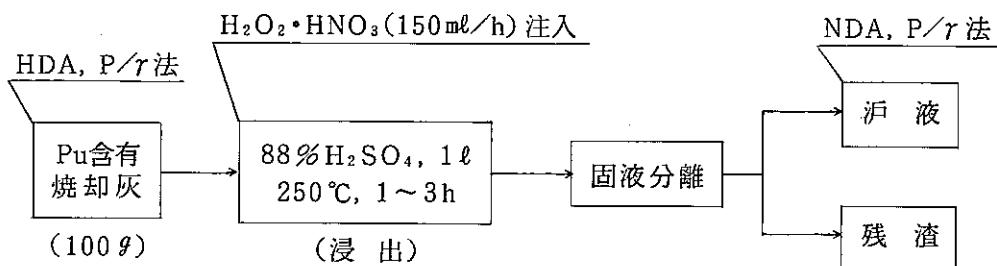
③ $\text{H}_2\text{SO}_4 / \text{HNO}_3$ 法試験

実焼却灰を用いて $\text{H}_2\text{SO}_4 / \text{HNO}_3$ 法でのプルトニウムの浸出率を測定した。

① 試験条件

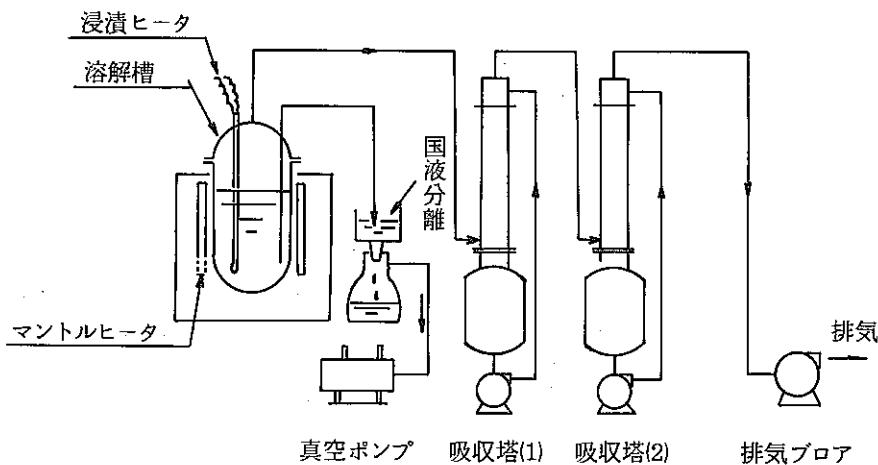
a) 試験フロー

プルトニウムの浸出は 88% H_2SO_4 , 1ℓ を 250 ℃に加熱し, $\text{H}_2\text{O}_2 + \text{HNO}_3$ の混合液を 150 mL/Hr で溶解槽に注入しこの条件で 1 時間反応させた。



⑥ 使用装置

装置はプル第一開発室 R-130 室の廃棄物酸溶解試験設備を使用した。



機器仕様

- ・溶解槽：強化ガラス、有効容量 1.7ℓ
- ・吸収塔(1), (2)：ニオブ、59φ mm OD × 673 mm H、タンク容量 2.5ℓ
- ・排気プロア：最大吐出量 85 ℓ/min
- ・真空ポンプ：常用真圧度 450 mmHg 以下
- ・沪過器：直径 90 mm
- ・沪過びん：有効容量 2.0 ℥

(2) 結果

① $\text{HNO}_3 / \text{CaF}_2$ 法予備試験

① $\text{HNO}_3 / \text{CaF}_2$ 法での焼却灰との酸反応において異常な発熱、反応は生じなかった。

- ④ 酸ヒューム回収装置は効率よく酸ヒュームを回収できた。
- ⑤ 浸出液(1ℓ)の固液分離(減圧吸引沪過)は約20分で完了した。
- ⑥ 焼却灰のPu存在状態の推定
 - ① セリウムの結晶表面上に灰の主成分であるSi, Mg, Ca等がその表面を覆っており、厚さは約2μm以上と推定された。(図-1~3にセリウムのEPMA及び反射電子像を示す。)
 - ② H₂SO₄/HNO₃法試験
 - ① 浸出液の固体分離後のPu重量は沪液側で12.4mg±22%, 残渣側で7.8mg±21%となり、沪液側への浸出率は約60%程度であった。

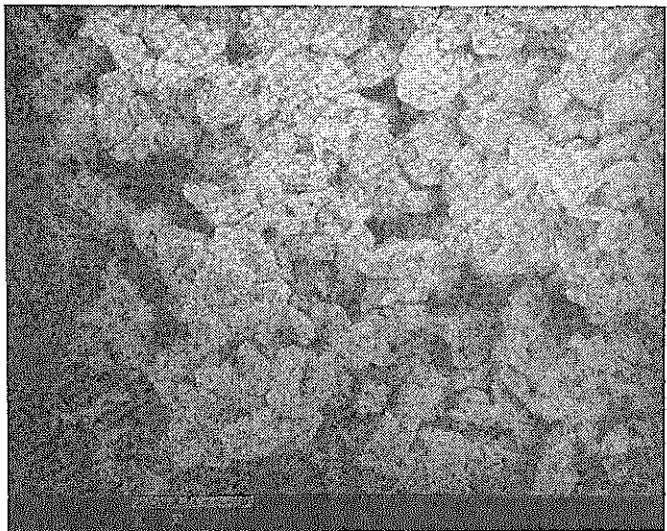
3) 結論及び今後の方針

(1) 結論

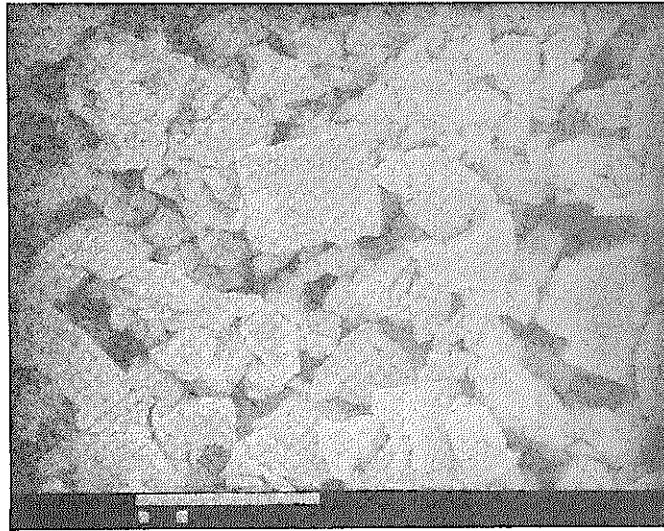
- ① HNO₃/CaF₂法での反応はスムーズで、グローブボックス内でのホット試験においての安全性を確認することができた。
- ② セリウム結晶表面には約2μmの厚さでSi, Mg, Ca等の灰成分が覆っており、プルトニウムについても同様な事が生じることを推定した。
- ③ H₂SO₄/HNO₃法での沪液側へのPu浸出率は約60%程度であった。

(2) 今後の方針

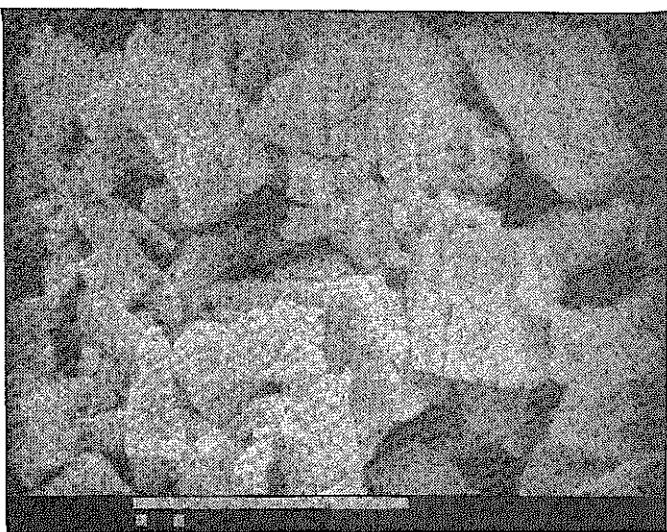
焼却灰からの酸浸出条件である反応温度、反応時間、添加剤量をパラメータに取った試験を行い浸出条件の把握及びホット焼却灰中でのPuの化学形態の推定を行い浸出条件に反映させる予定である。



(2000倍)



(3000倍)

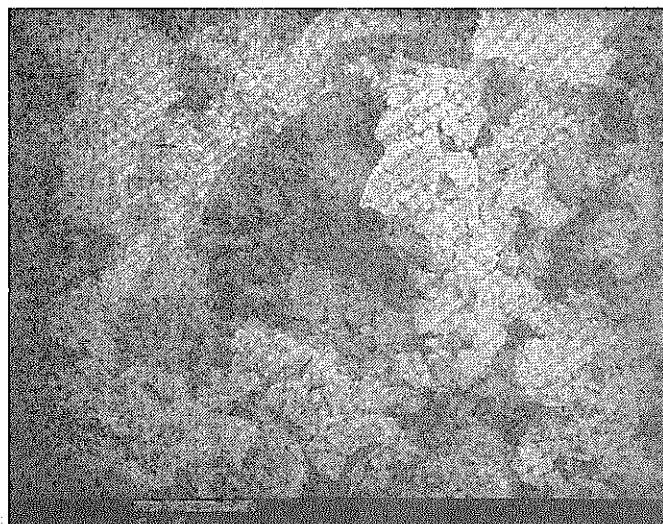


(4500倍)

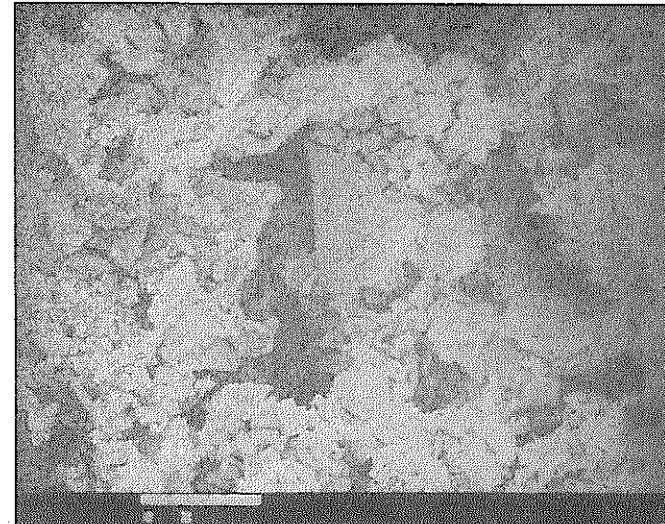


(7000倍)

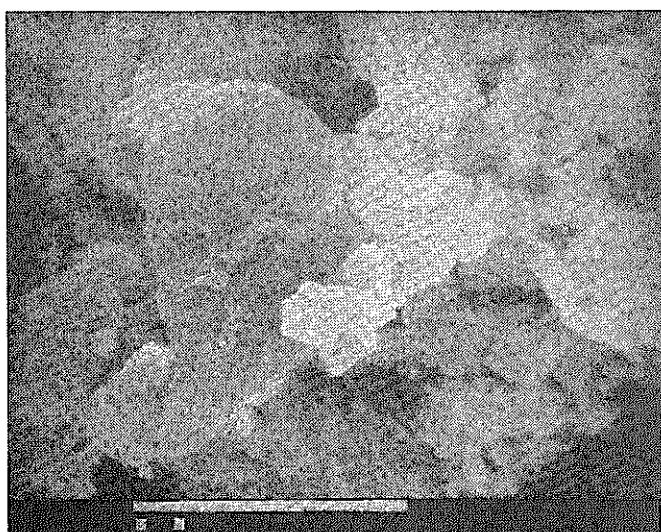
第1図 CeO₂結晶の反射電子像



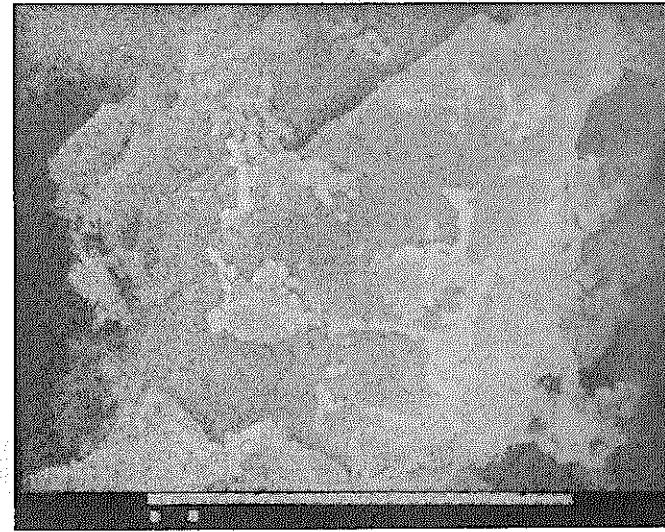
(2000倍)



(2000倍)

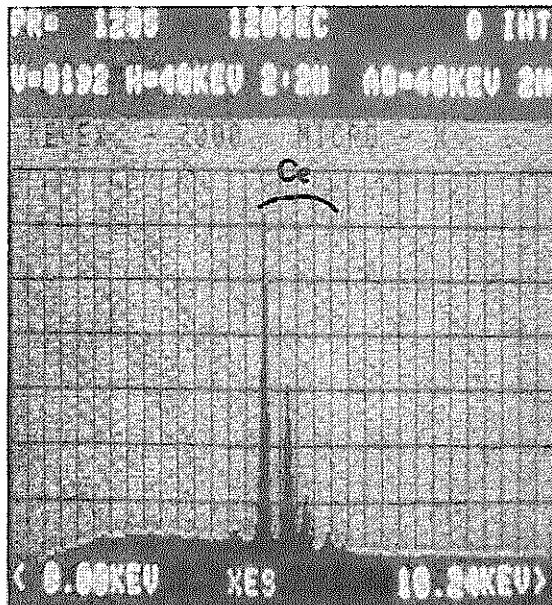


(4500倍)



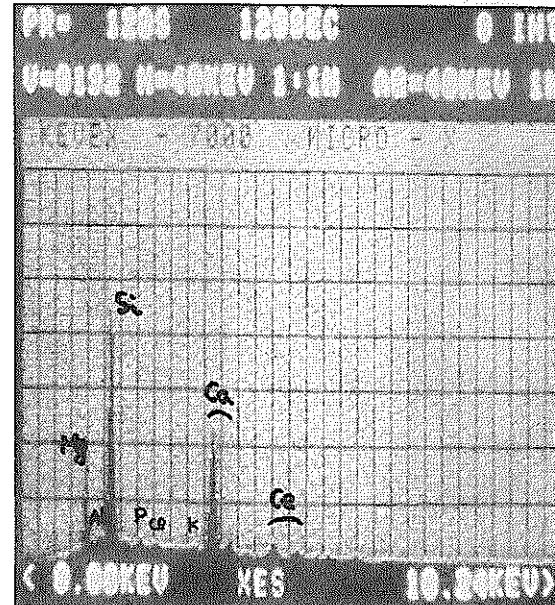
(7000倍)

第2図 CeO₂+焼却灰の反射電子像



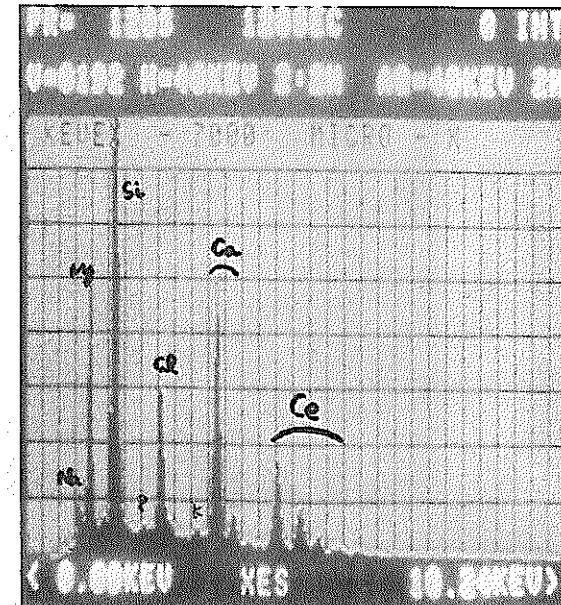
CeO₂結晶（試薬特級）

No. 1



焼却灰

No. 2



CeO₂+焼却灰の CeO₂表面

No. 3

第3図

EPMAによるCeO₂+焼却灰の元素分析結果

2.3 区分管理技術開発

2.3.1 プルトニウム廃棄物測定技術開発

1) 目的及び概要

プルトニウム廃棄物中のプルトニウムを効率的に測定するため、非破壊測定技術（NDA）の開発を進めている。

本年度は、パッシブガンマ法及びパッシブ中性子法による検出限界レベルの確認を行うとともに、実廃棄物の γ 線表面線量率とプルトニウム量との相関性についての検討を行った。また、表面汚染を確認するために試作した自動表面汚染測定装置の性能試験を行った。

2) 試験方法及び結果

(1) パッシブガンマ法

SGS装置を用いて可燃性廃棄物及びその焼却灰さらにフィルタ類について ^{239}Pu 量を評価し、その検出限界レベルを求めた。

表-1. 各廃棄物の ^{239}Pu 測定限界

形態	測定法	一括測定法	ラセン測定法
カートンボックス (20 ℥)	15 mg ($\pm 25\%$ 1,000秒測定)	—	—
ドラム缶 (200 ℥)	30 mg ($\pm 20\%$ 4,000秒測定)	30 mg ($\pm 60\%$ 2,000秒測定)	—
ポリбин(焼却灰) (3 ℥)	15 mg ($\pm 25\%$ 1,000秒測定)	—	—
HEPAフィルタ (Cサイズ)	15 mg ($\pm 25\%$ 1,000秒測定)	—	—
HEPAフィルタ (Fサイズ)	3 mg ($\pm 30\%$ 3,000秒測定)	—	—

(2) パッシブ中性子法

前年度試作したパッシブ中性子測定装置を使って、中性子検出器(^3He)の追加(10本追加し計20本)、遮蔽体の付加を行い、検出効率が全中性子法で11%，同時計数法で1.03%と追加前に比べそれぞれ3倍及び8倍の検出効率向上がはかれたことを確認した。

また、中性子法の廃棄物マトリックスによる(α, n)反応の影響は、同時計数法に対し最大20倍以上の過大評価となることが実験的に求められた(図-1)。同時計数法では、カートン

サイズの各廃棄物中の ^{240}Pu （実効質量）の測定限界値は5mg（±20%，1,000秒測定）であることを確認した。

(3) γ 線表面線量率とプルトニウム量との相関性

プルトニウム廃棄物を発生段階で簡易にプルトニウム量を推定する目的で、電離箱による γ 線表面線量率とプルトニウム量との関係を実廃棄物（カートンボックス、HEPAフィルタ）を使って求めた。この時、パッシブガンマ法とパッシブ中性子法によりそれぞれ ^{239}Pu 、 ^{240}Pu を測定しこの総計を γ 線表面線量率の最大値との関係式を求め相関性を評価した。（図-2～図-5）

この結果、不燃物を除き高い相関性が得られ、 γ 線表面線量率によりプルトニウム量が推定可能であることを確認した。

(4) 自動表面汚染測定装置

廃棄物を封入したカートンボックスを包んだビニル表面より汚染の有無を確認できる自動表面汚染測定装置を試作し（図-6）感度分量減圧と計数効率 γ 線の影響等を評価した。

標準線源により各測定点での計数効率を計測し、キャビティ内の等感度曲線を求めた。（図-7）

また、減圧による計数効率の向上、 γ 線、静電気による影響が施設の持ち出し基準値（ $1 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ ）を上回っていたことを確認した。この対策としてディスクリ設定値の変更及びHVの調製によりほぼ γ 線の影響がカットできた。

3) 結論及び今後の方針

(1) パッシブガンマ法

各廃棄物の形態ごとに検出限界値、精度及び測定時間を示した（表-1）。今後は実廃棄物により、これらの適応性を確認し、実用化をはかる。

(2) パッシブ中性子法

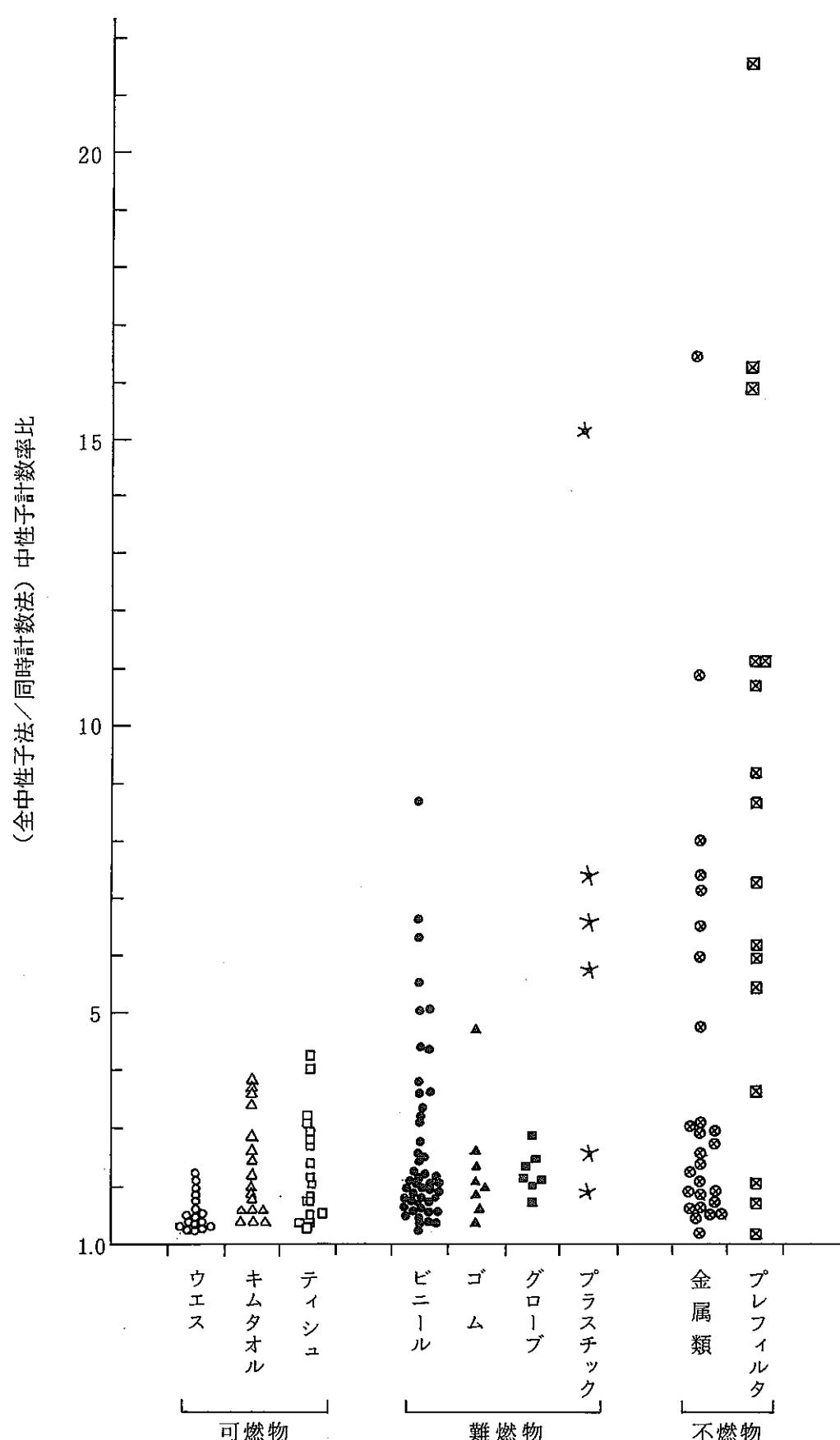
検出器の追加、遮蔽体の付加により大幅な検出効率の向上がはかれ、カートンサイズの各廃棄物中の ^{240}Pu （実効質量）が5mgまで測定できることを確認した。今後は、廃棄物マトリックスによる効率への影響（ α, n ）反応による中性子発生量等を評価し、パッシブ中性子検出システムの確立をはかっていく。

(3) γ 線表面線量率とプルトニウム量との相関性

電離箱による γ 線表面線量率の測定により不燃物を除いて、プルトニウム量と相関性があることを確認した。

(4) 自動表面汚染測定装置

試作した自動表面汚染測定装置について、 γ 線の影響はディスクリレベルの変更及びHV調製することによりカットできることを確認した。今後は、静電気の影響及び各検出器ごとにHVを設定できるシステムの検討を行う。

図-1. 廃棄物マトリックスによる(α , n)反応影響

-46-

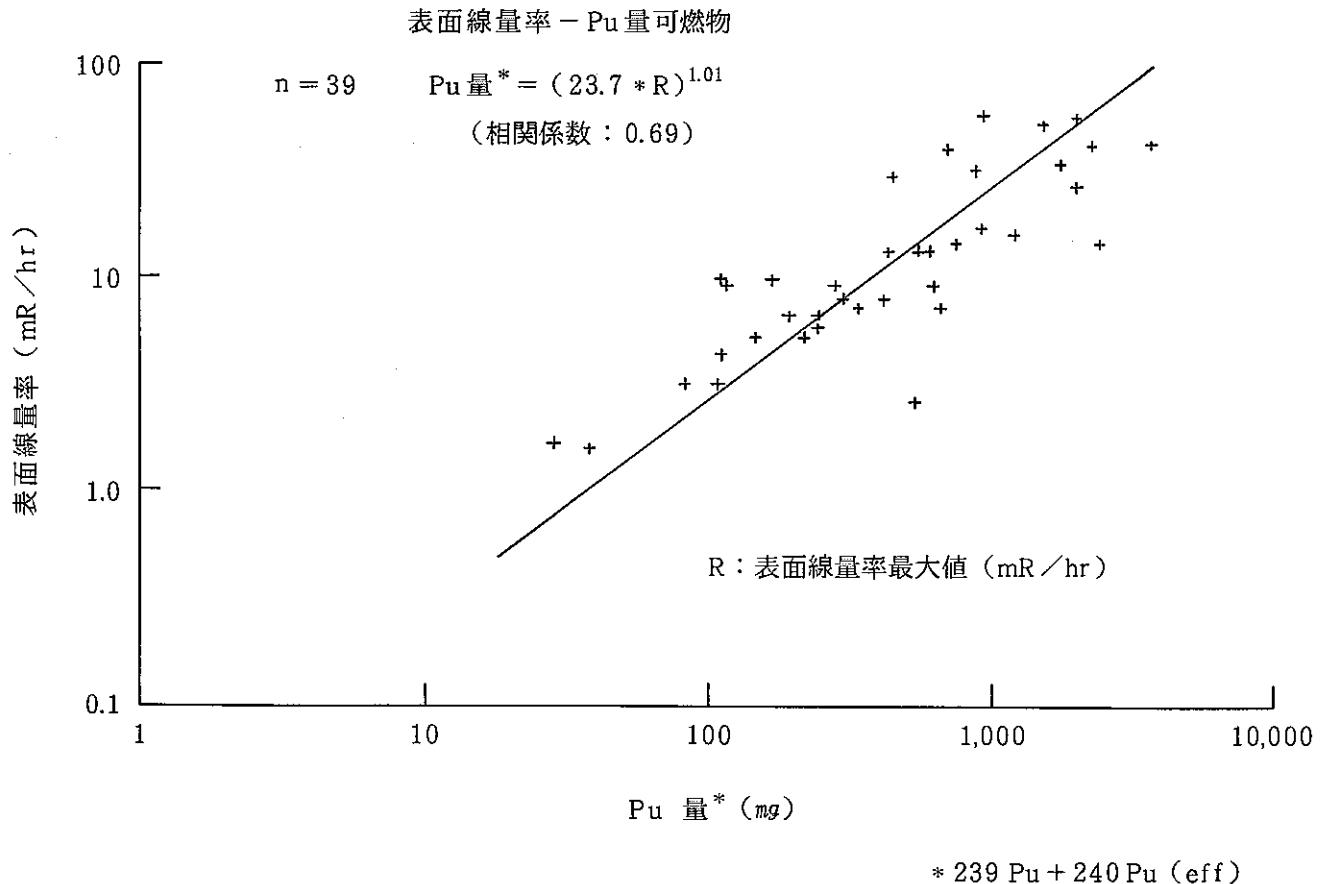


図-2. 可燃物カートンボックス表面線量率とPu量の関係

-47-

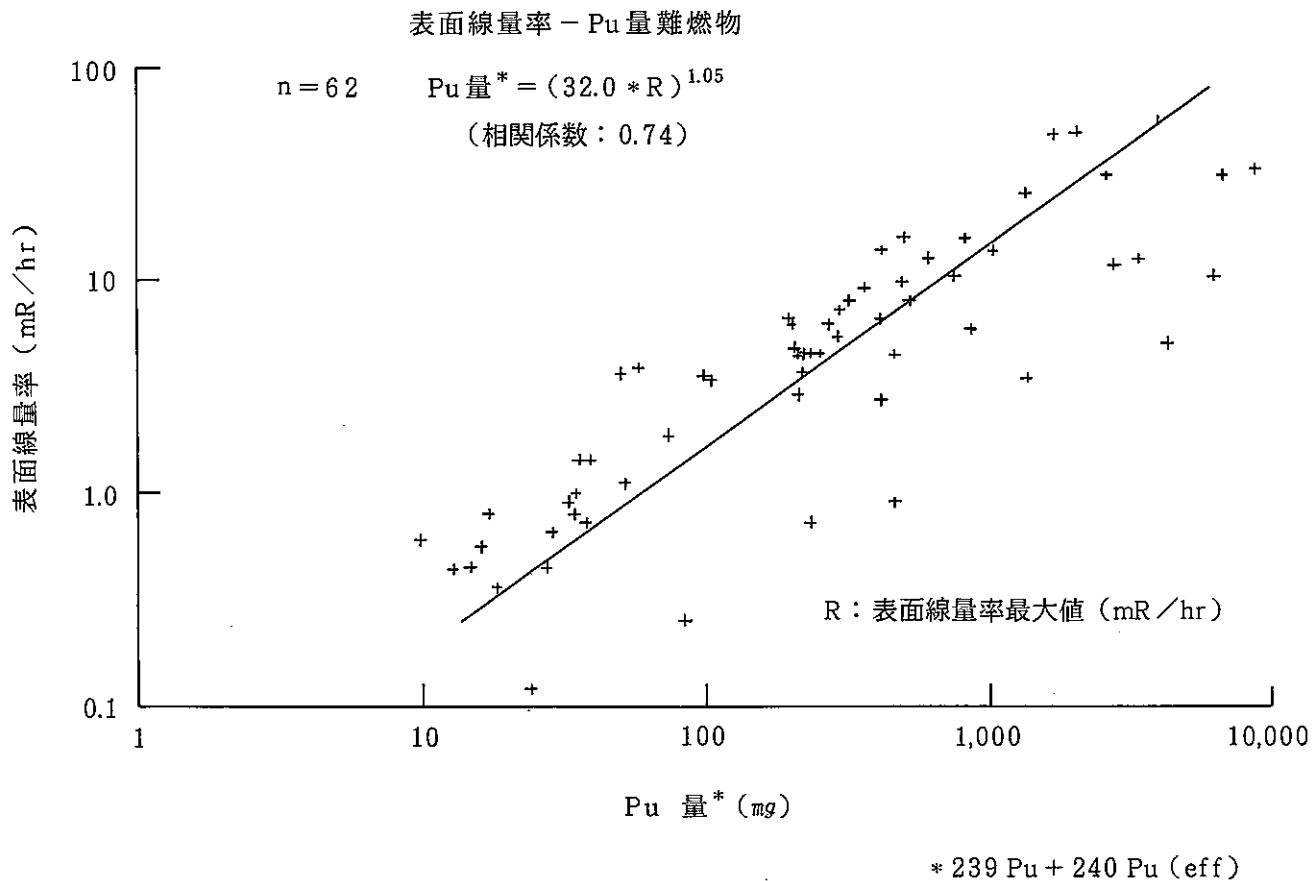


図-3. 難燃性カートンボックス表面線量率とPu量の関係

-48-

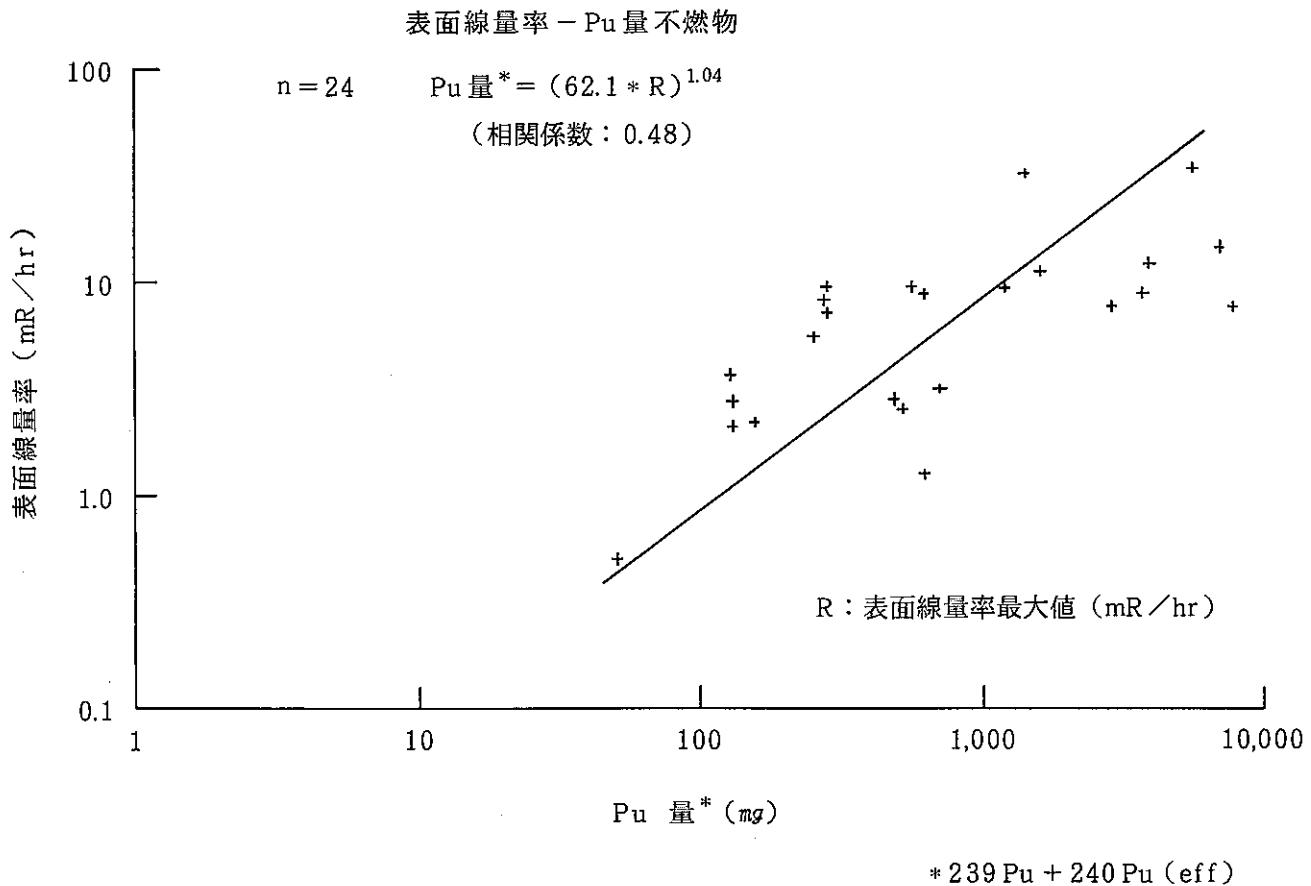


図-4. 不燃物カートンボックス表面線量率とPu量の関係

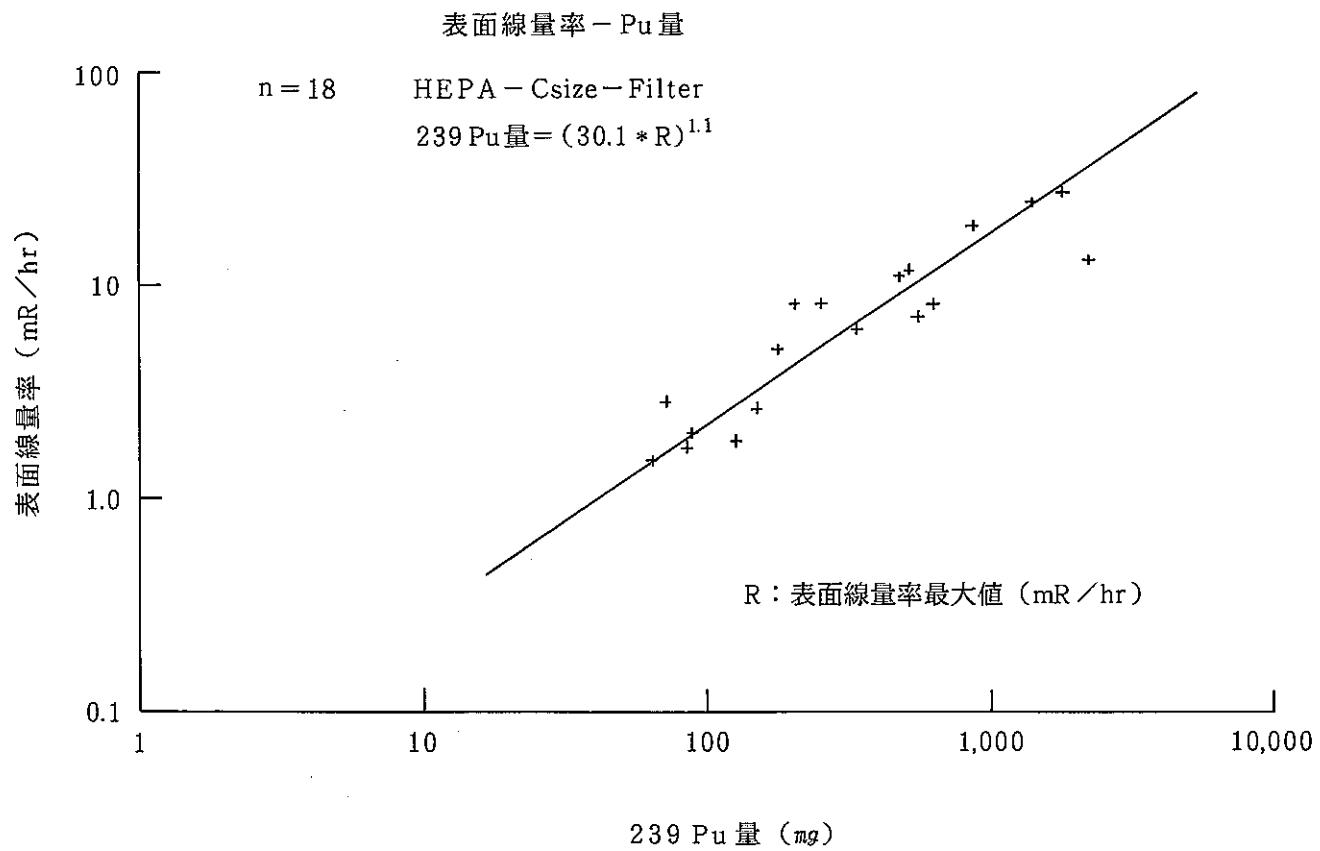


図-5. HEPA フィルタ (C サイズ) 表面線量率と Pu量の関係

-50-

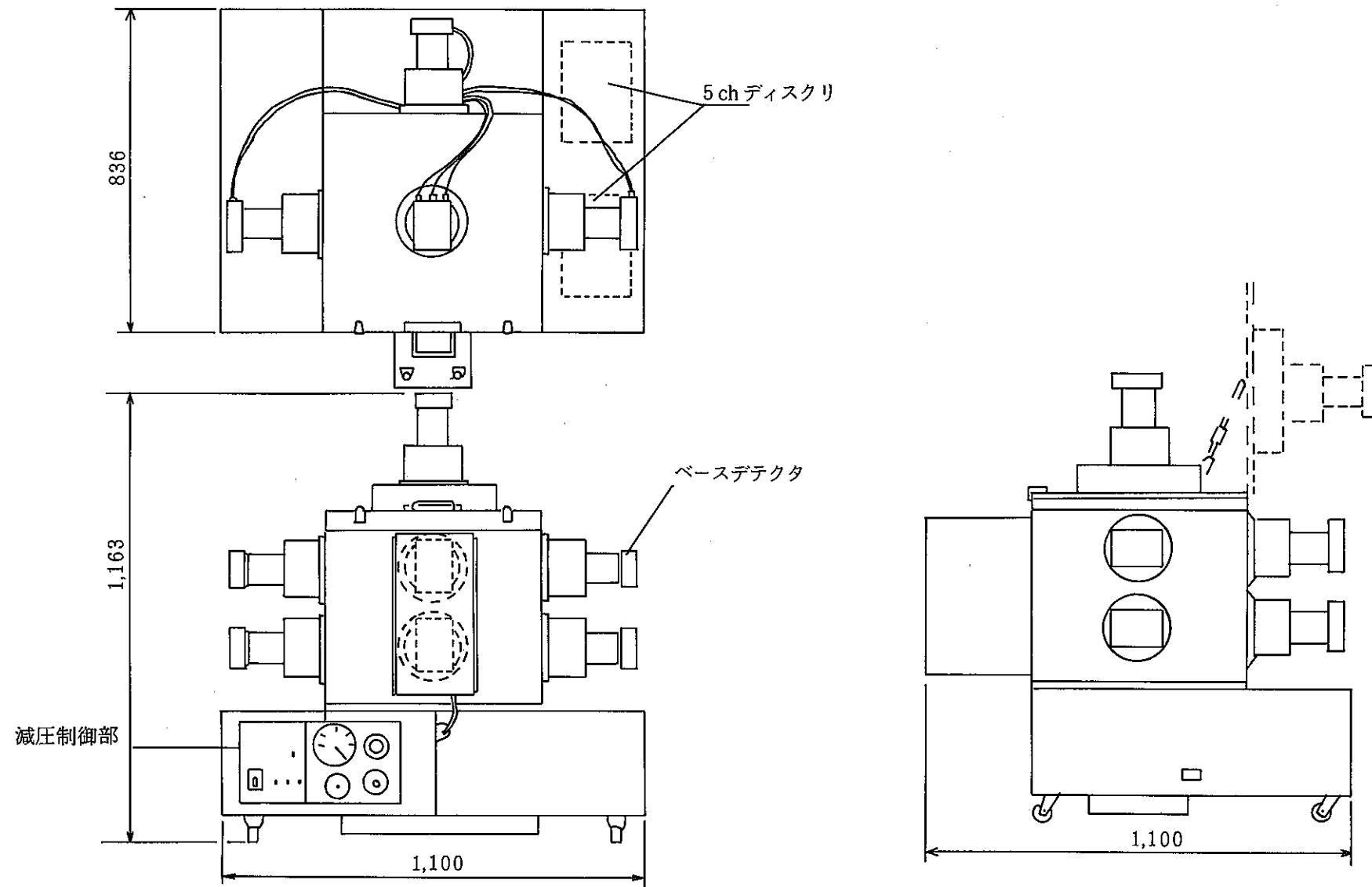
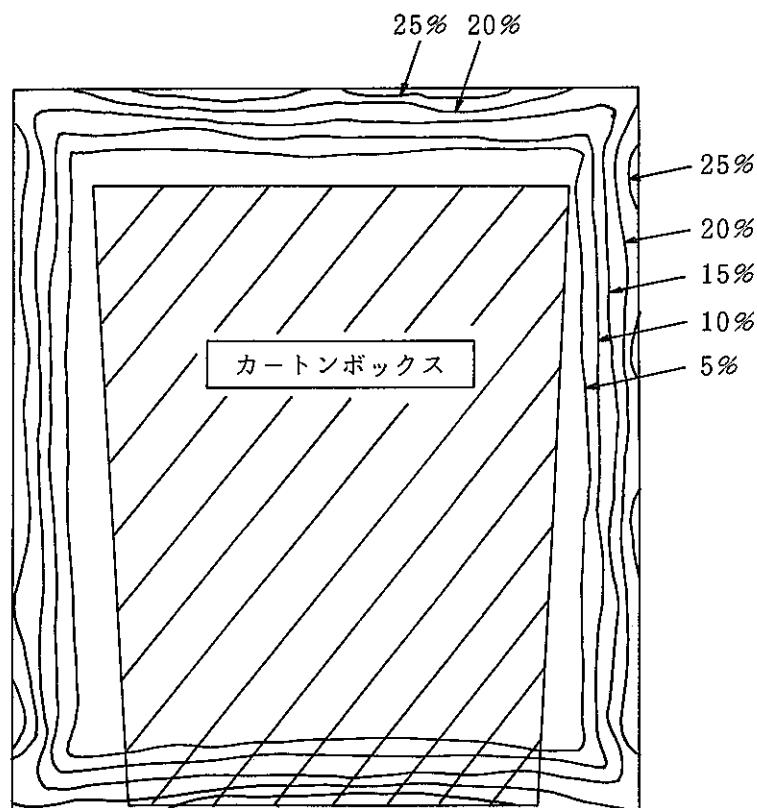
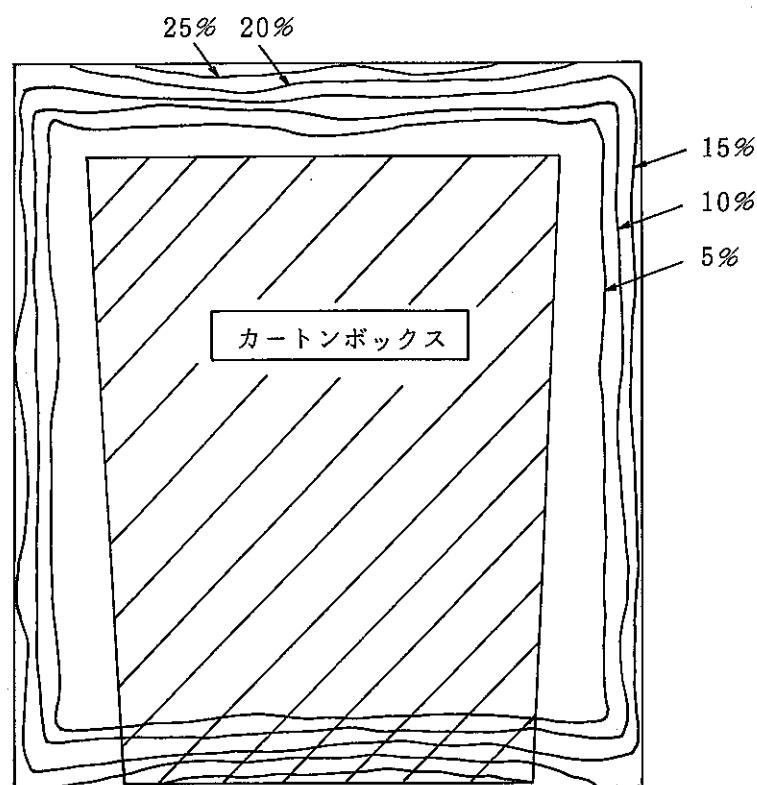


図-6. カートンボックス表面汚染測定装置外観図



① フォトマル中心 (45°) 断面における等感度分布



② デッドスペース (0°) における等感度分布

図-7. 感度分布 (真空度 280 mm Hg)

2.4 処分技術開発

2.4.1 固化体評価試験

1) 目的及び概要

低レベル放射性廃棄物の処理・処分技術開発の一環として、プルトニウム廃棄物の減容安定化処理による固化体（人工鉱物）について、浸出試験を主とした固化体評価試験を実施している。

本年度は、コールドの長期浸出試験により、固化体の浸出率及び元素溶出量経時変化等のデータを採取した。

又、TRU核種を用いた固化体浸出試験を実施するために、プルトニウム燃料第一開発室に「処分技術開発試験設備」を新設した。

2) 方法及び結果

(1) マイクロ波固化体浸出試験

① 固化体製造

HEPAフィルタ焼却灰 + CeO₂ 12.4 w/o の原料灰をコールドのマイクロ波溶融設備にて溶融固化した。（表-1に固化体製造条件、表-2に固化体組成を示す。）

② 浸出試験試料作製

金属製るつぼに溶融固化体から浸出試験用に1cm角の試料をダイヤモンドカッタで切り出した。その後、試料の表面をアルミナ研磨剤（0.3 μ）等で鏡面研磨仕上げした。

③ 浸出試験（MCC-1P法準拠）

MCC-1P法浸出試験は静的浸出試法の1種であり、テフロン製の容器にモノリシック試料及び浸出液を入れ、それを恒温槽に所定の温度パラメータに保温するものである。

今回の浸出試験条件を以下に示す。

① 試料形状：1cm角ブロック状 (SA = 6 cm²)

② 浸出試験液：蒸留水

③ 浸出試験温度：100 - 1 °C

④ 浸出試験期間：1, 3, 7, 14, 28, 56, 91, 182 日間

⑤ SA/V : 0.1 cm⁻¹ SA : 固化体表面積 cm²

V : 浸出試験液 cm³

マイクロ波固化体の浸出試験による重量減少量及び浸出率の経時変化を高レベルガラス固化体（P0798）と比較した。（図-1に重量減少量、図-2に浸出率の経時変化を示す。）

マイクロ波固化体の全浸出量は高レベルガラス固化体に比べて小さい値を示している。又、浸出初期（28日まで）の浸出量については、高レベルガラス固化体の1/3程度であった。

又、高レベルガラス固化体は、28日目からの飽和傾向が顕著であるのに比べ、マイクロ波固化体浸出量は高レベルガラス固化体に比べ少ないものの、浸出量の増加傾向にあり、182

日の試験期間内で飽和する傾向は見られなかった。

④ 浸出液分析

浸出期間毎に浸出液の分析（ICP）を行い、各元素溶出量の経時変化を調査した。（図-3に浸出液中の元素温度変化を示す。）

分析元素は Si, B, Na, Al, Ca, Mg, Fe, Cr, Ceとした。

分析結果としては、Fe, Mgについては初期に浸出液中への存在が認められたが182日目位では減少してきた。

Na, Bについては時間と共に増加の傾向を示している。又、182日目になっても溶出量が飽和する顕著な傾向はみられない。

Si, Al, Caの溶出量は飽和傾向にある。これは、各元素もある程度溶出はしているものの液中の飽和濃度が低いため、連続的な溶出が抑えられ、固化体表面の変質層中に堆積されるものと考えられる。

Puの模擬物質として添加したCeについては、いずれも検出限界値以下であった。Crも同様の結果となった。

⑤ 処分技術開発試験設備新設

本設備は、高レベルガラス固化体、マイクロ波溶融固化体について実核種を用いた浸出試験を実施するためのものである。（表-3に設備の概要を示す。）

設置場所は、プルトニウム燃料第一開発室、処分試験室（R-230室）である。

61年度は4つのボックス類のうち「固化体製造設備」「試料作製設備」「浸出試験設備」の変更申請、設工等の許認可手続きを実施するとともに「浸出試験設備」の設計・製作・据付を実施した。（表-4に概略工程表を示す。）

2) 結論及び今後の方針

(1) 結 論

今年度の浸出試験については、マイクロ波溶融固化体についての浸出試験データ採取と高レベルガラス固化体との比較を行った結果、

- ① マイクロ波溶融固化体の化学的耐久性（浸出性能）は、高レベルガラス固化体より今回の試験期間では良好な結果が得られたが、更に長期間の浸出試験を行う必要がある。
- ② マイクロ波溶融固化体の主要浸出元素としては、Si, Na, Al, Caがある。従って浸出成分としては、アルカリ、アルカリ土類の易溶性成分であることが分った。

(2) 今後の方針

マイクロ波溶融固化体についての各種浸出試験によるデータ採取及び溶解度の測定、表面層などの観察を実施し、固化体仕様の明確化に反映させる。

表-1. マイクロ波溶融固化体製造条件

処理速度	処理量	溶融温度	るつぼ形状	熱処理
2kg/hr	1,600 g	約1,200 °C	125 A 円筒型	自然空冷

表-2. CeO₂ 10 w/o 添加固化体組成表

(% : 分析値より換算)

SiO ₂	Al ₂ O ₃	CaO	MgO	B ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	Cr ₂ O ₃	C	CeO ₂	計
49.2	2.8	2.4	36.5	1.0	5.9	1.5	—	12.4	111.4

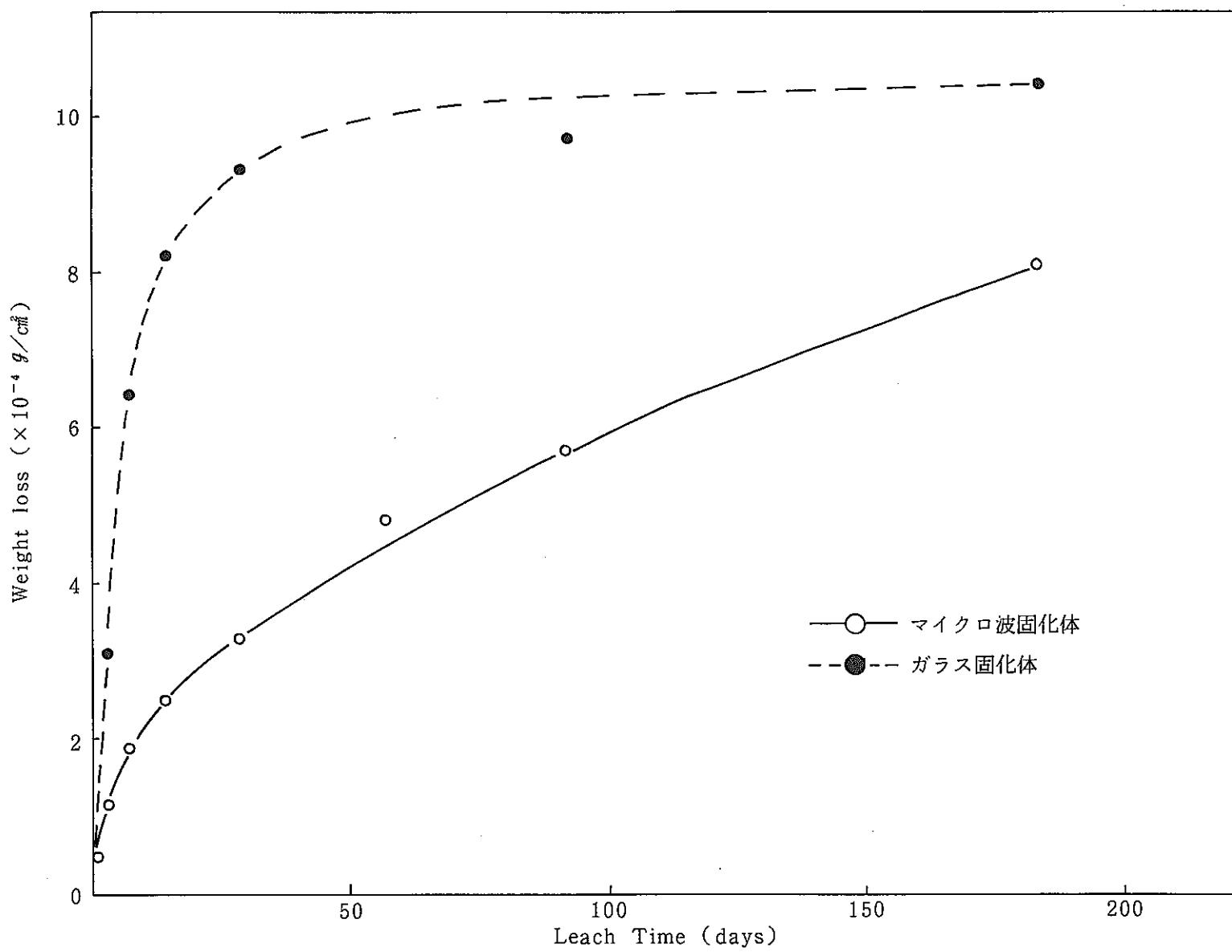


図-1. マイクロ波回化体とガラス固化体の斥量減少量

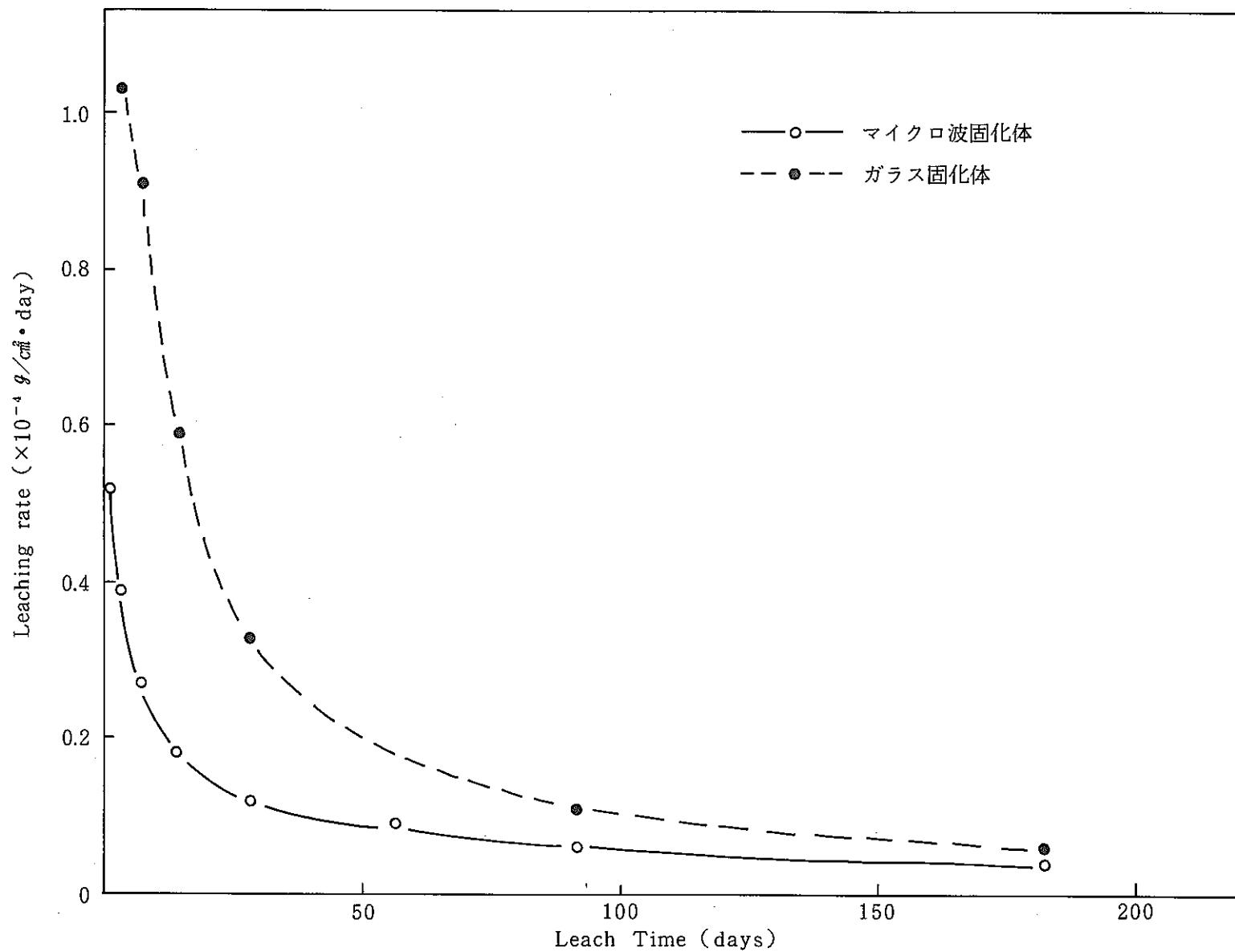


図-2. マイクロ波固化体とガラス固化体の浸出率

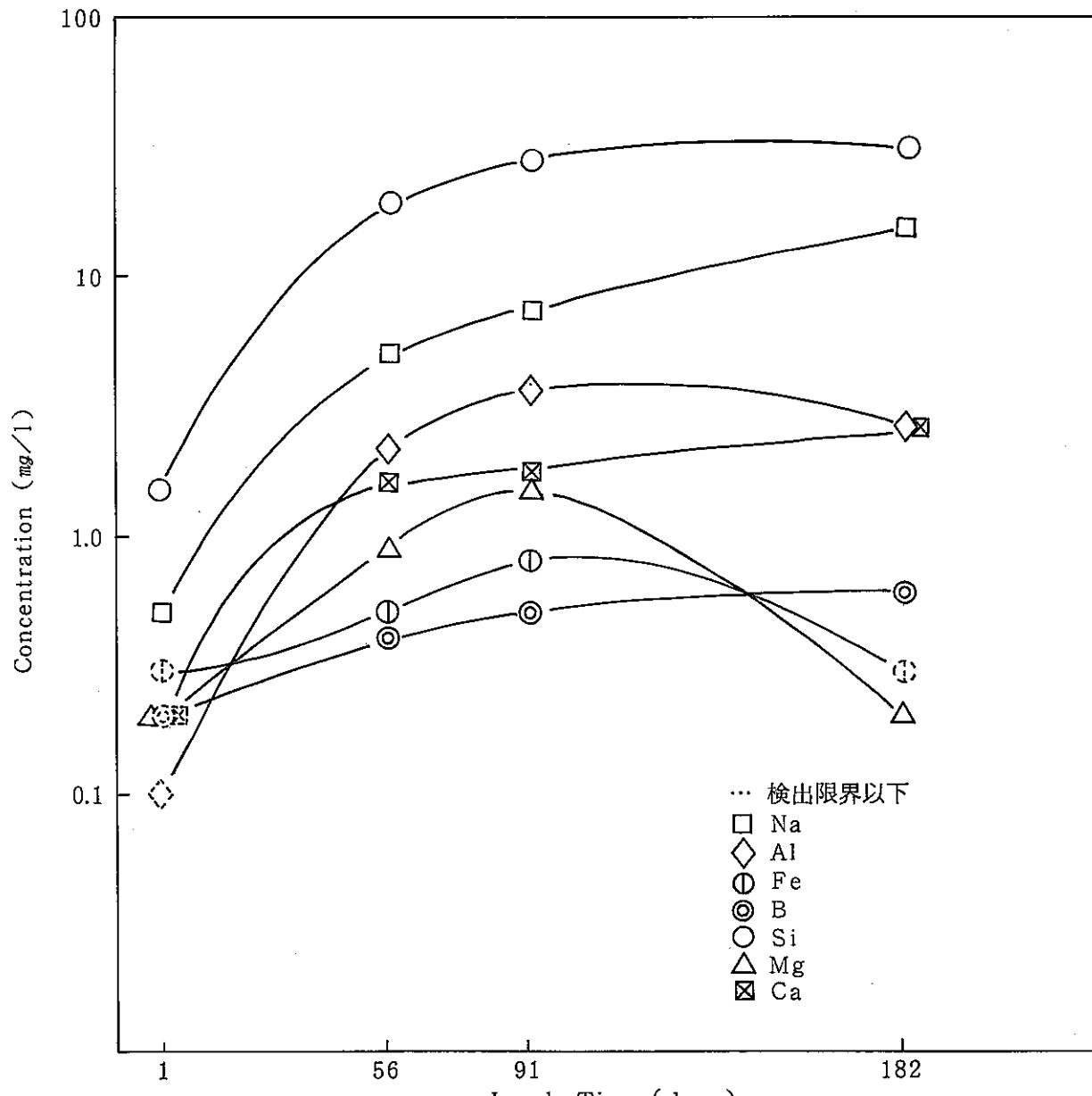


図-3. 浸出液中の元素濃度変化

表-3. 処分技術開発試験設備概要

設 備 名	設 備 概 要	試 驗 概 要
① 固化体製造設備	グローブボックス：3 m ³ 電気溶融炉：最高使用温度1,600°C 小型V型混合機：容量150 cc 秤量器：0～600 g 最小読取限度 0.01 g	ガラス試料又は焼却灰等に実核種を添加し混合する。それをアルミナるつぼ（100 g／バッチ）に入れ電気溶融炉にて溶融固化する。
② 試料作製設備	グローブボックス：2 m ³ 切断機：ダイヤモンドカッタ 研磨機：回転テーブル型 超音波洗浄器	アルミナるつぼ入り試料を切断機により浸出試験用試料に切り出す。 又、研磨機により試料表面の研磨を行う。
③ 浸出試験設備	オープンポートボックス：3 m ³ 恒温槽：室温～120 °C 乾燥器：室温～120 °C 精密天秤：最小読取限度 0.01 mg PH/ORPメータ 比重計 デシケータ 洗浄槽	恒温槽・テフロン容器等を用いてMCC-1P型に準拠した浸出試験を行う。 又、浸出試験用試料の重量測定、密度測定、表面測定等を行う。
④ 高温浸出試験設備	オープンポートボックス：3 m ³ 恒温槽：室温～200 °C (1槽) 室温～120 °C (2槽)	MCC-2型、MCC-4型に準拠した高温浸出試験・低流速系浸出試験を実施する。

表-4. 処分技術開発試験設備概略工程表

年月 設備名	年 月	61												62												63			
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	
① 固化体製造設備														製作設計	製作・据付														
② 試料作製設備														製作設計	製作・据付														
③ 浸出試験設備														製作設計	製作・据付														
④ 高温浸出試験設備		*	○	○	△	△	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
		※ 変更申請	許可	設工提出	受注																								
		※ 固化体製造設備・試料作製設備・浸出試験設備を一括申請とした。																											

2.4.2 緩衝材中のTRU核種挙動研究(I)

1) 目的及び概要

高レベル廃棄物及びTRU廃棄物の地層処分技術研究開発において、人工バリアの一種である緩衝材は天然バリアと人工バリアの接点となる。

特に、TRU核種のような長寿命核種に対しては、充分な保持能力をもつことが必要とされる。

このため、実際のTRU核種を用いた緩衝材中でのTRU核種挙動の評価が必要となる。

そこで、本研究はプルトニウムを用いた移行試験を実施し、その移行性を検討するとともに、TRU核種挙動評価等を実施したものである。

2) 方法及び結果

(1) 方 法

プルトニウムの移行試験は半割にしたカラム内のベントナイトに蒸留水を飽和させた後、少量のプルトニウム塩酸溶液をカラム内のベントナイトの端面に添加し、その面をもう一方のカラムに接合し、カラム中央から両方向へのプルトニウムの拡散を行った。（図-1 参照）

試験に使用した拡散セルの内径は20mm、長さ40mmである。材質は本体SUS304、メタルシール材はSUS316、ステンレス焼結フィルターはSUS316Lである。

緩衝材ベントナイト粉末は一軸圧縮によりセルに充填後、カラム長さを一定にし、充填密度は粉体の量により調整した。所定の密度に充填した粉体へ蒸留水を100kg/cm²の圧力にて粉体に送り込み、含水率分布の均一化を図った。以上の様に調整した拡散セルをフード内に約1か月間室温で静置後、カラムを薄く切断し放射能測定、重量測定を行ってカラム中のプルトニウム濃度のプロファイルを求め拡散係数を算出した。

表-1に今回使用したPuの同位体組成と放射能を示す。又、表-2に試験に使用した緩衝材材料の化学組成を示す。

① 試験条件

試験条件を表-3に示す。又、試験条件の選定理由を以下に示す。

① 塗布するプルトニウム溶液の塩酸濃度の効果

アルカリ性のNa型ベントナイトに塩酸の酸性のプルトニウム溶液を添加すると、添加した部分及びその近傍のベントナイト型がH型ベントナイトに変化し、プルトニウムの移行性が変化する。

今回の試験では液量30μlと少量のため、変化部分は小さく拡散係数の測定に与える影響は無視できると考えられるが、これを確認し実験手法の妥当性を確認するため、プルトニウムの塩酸濃度を変化させる。

② Na型、H型ベントナイトの充填密度の効果

Na型、H型ベントナイトの充填密度を変化させ、拡散係数に及ぼす効果を確認する。

④ Na型, H型ベントナイトへの石英混合の効果

Na型, H型ベントナイトに不純物として核種その他を吸着しない石英を混合させ, その混合量による拡散定数の変化を確認する。

⑤ H型ベントナイトへのFe酸化物混合の効果

プルトニウムが緩衝材中に漏出するのはキャニスター, オーバパックが腐食溶解した後である。腐食の際に溶出するFeは最終的には安定な酸化物(ヘマタイト)になると考えられる。このため, H型ベントナイトにヘマタイトの粉末を混合させ, Feの共存効果を試験する。

② 作業手順

試験全体フローを図-2に示す。

① プルトニウム溶液の調整

- ⓐ 硝酸プルトニウム入りのペニシリンびんをフードに搬入し, 1NHCl 1,000 μl をペニシリンびんに送入し硝酸プルトニウムを溶解させた。
- ⓑ 塩酸濃度を 0.1, 0.5, 1.0 M の溶液に調整するため, 蒸留水と 1NHCl を (0.9 mL , 0 mL), (0.5 mL , 0.4 mL), (0 mL , 0.9 mL) 入れフード内に搬入した。
- ⓒ プルトニウムの溶解液(原液)からマイクロシリングで 100 μl を分取し, 上記塩酸濃度のペニシリンびんに入れた。

② ベントナイトのプルトニウム溶液の添加

- ⓐ フード内でカラム中央部のボルトを外し, カラムを半割にし, (1)プルトニウム溶液の調整で行った溶液 30 μl をマイクロシリングで分取しベントナイトの表面に滴下させた。
- ⓑ 滴下面がいくぶん乾燥してからカラムを閉じた。

③ ベントナイトの切断

- ⓐ カラムの片方の盲プレートを外し, 押し出し治具を取り付け更に反対側のプレートを外した。押し出し治具のスクリューを回転させ, ベントナイトをカラムから少しづつ押し出しカラムの端から突出したベントナイトをカッターで切断した。
- ⓑ 切断片は試料皿へ移した。
- ⓒ ⓑ, ⓒを繰返してベントナイトを切断した。

④ 放射能測定

放射能測定は切断して現われたベントナイトの面に ZnS 検出部を当ててアルファ線の測定を行った。このため, 暗箱付測定器の検出部のみを取り外し遮光のため ZnS 塗布面を Al 箔で被い, 更に Al 箔の保護のため 3 mm の厚さのステンレス板で中央に直径 25 mm の穴が開いているものを取付けた。図-3 に測定状態を示す。

⑤ 切断片の秤量

1 mg 秤量精度の上皿天秤にて, 切断片の切断後の重量と乾燥後の重量を測定した。

⑤ 切断片の乾燥

切断片の乾燥を行うために、試料皿に切断片を入れフード内のホットプレートで4~5時間乾燥させ一晩放冷した。

(2) 結 果

① ベントナイト中の多孔度測定

各ベントナイト中の多孔度はほぼ均一な多孔度を示していた。多孔度は以下の式にて算出した。

$$R_w = (W_w - W_d) / W_d \quad \dots \dots \dots (1)$$

$$\epsilon = \frac{R_w \times \rho_c}{1 + R_w \times \rho_c} \quad \dots \dots \dots (2)$$

R_w : 水分比

W_w : 湿潤重量

W_d : 乾燥重量

ϵ : 多孔度

ρ_c : ベントナイト密度

② プルトニウム拡散係数

プルトニウム拡散係数は次の一次元拡散方程式

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{obs} \frac{\partial^2 C}{\partial X^2} \quad \dots \dots \dots (1)$$

$$D_{obs} = \frac{D_{int}}{1 + \rho K \alpha / \epsilon} \quad \dots \dots \dots (2)$$

C : 水相中の Pu 濃度

ρ : 緩衝材の充填密度

ϵ : 含水率

D_{obs} : みかけの拡散係数

$K \alpha$: 分配係数

D_{int} : 固有拡散係数

を添加面でプルトニウムが析出（境界面での水相中の Pu 濃度一定）の条件で解いた解いに、得られた Pu 濃度分布を回帰させてみかけの拡散係数を求める方法を採用した。

③ 効果の確認

① 塩酸濃度の効果

ベントナイト添加プルトニウム溶液の塩酸濃度は 0.5 M が適当であった。

② Na型, H型ベントナイトの次填密度の効果

H型ベントナイトの充填密度変化に対する拡散係数は若干影響することが認められた。しかし、Na型ベントナイトの拡散係数は測定することができなく充填密度の効果は確認できなかった。

③ Na型, H型ベントナイトの石英混合の効果

H型ベントナイトの石英混合量に対する拡散係数への影響は少なかった。Na型ベントナイトへの効果は上記理由により確認できなかった。

④ H型ベントナイトへの Fe 酸化物混合の効果

Fe 酸化物の拡散係数への影響は少なかった。

3) 結論及び今後の方針

(1) 結論

- ① プルトニウムを用いた拡散試験を行い、プルトニウム溶液の調整、カラムへの核種添加、フード内での拡散、ベントナイトの切断、核種濃度・含水量の測定等に関する一連の作業に於いてその試験手法を検討した。
- ② 今回使用した全カラム20個のベントナイトに於いて、プルトニウムの析出が確認された。
- ③ Na型ベントナイト中の拡散係数は $10^{-10} \text{ cm}^2/\text{S}$ 以下であると推定された。
- ④ H型ベントナイト中の拡散係数は $10^{-9} \sim 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{S}$ であることを確認した。
- ⑤ H型ベントナイトの充填密度変化に対する拡散係数は若干影響することが認められた。
- ⑥ H型ベントナイトの添加物（石英、ヘマタイト）量の変化に対する拡散係数への影響は少ないことが認められた。

(2) 今後の方針

緩衝材によるTUR核種の隔離性を見出す試験の一環として、

- ① Am, Puについての緩衝材中の移行性及び種々の環境因子の影響をPu, Amの化学形態との関係を明らかにする。
- ② 隔離性能評価モデルのための基礎試験等を今後進める必要がある。

表-2. ベントナイト化学組成

	Kunipia	HCl washed	Tsukinuno	Kuroishi
SiO ₂	55.68	38.29	53.02	53.62
TiO ₂	0.23	0.12	0.09	0.53
Al ₂ O ₃	19.96	20.45	18.23	17.75
Fe ₂ O ₃	1.95	3.71	2.90	5.68
MnO	0.01	0.003	0.02	0.02
MgO	3.64	0.14	2.51	7.43
CaO	0.41	0.08	0.74	0.89
Na ₂ O	3.22	0.26	2.40	1.65
K ₂ O	0.07	0.035	0.09	0.57
H ₂ O	14.23	12.27	18.67	11.54

Number of cations on the basis of O₁₀(OH)₂

	Si	Ti	Al	Fe ³⁺	Mn	Mg	Ca	Na	K
	3.866	0.012	1.633	0.102	0.0006	0.377	0.031	0.460	0.006
	3.955	0.006	1.635	0.189	0.0002	0.318	0.006	0.034	0.003
	3.925	0.005	1.590	0.162	0.001	0.277	0.059	0.344	0.009
	3.691	0.027	1.438	0.294	0.001	0.762	0.066	0.002	0.050

表-3. 試験条件

column	material	[HCl] in Pu solution added (M)	packing density (g/cm ³)	average crystalline bensity (g/cm ³)
1.	Na-bentonite	0.1	1.6	2.67
2.	Na-bentonite	0.5	1.4	2.67
3.	Na-bentonite	0.5	1.6	2.67
4.	Na-bentonite	0.5	1.8	2.67
5.	Na-bentonite	1.0	1.6	2.67
6.	H-bentonite	0.5	1.2	2.67
7.	H-bentonite	0.5	1.4	2.67
8.	H-bentonite	0.5	1.6	2.67
9.	H-bentonite	0.5	1.8	2.67
10.	Kuroishi bentonite	0.5	1.6	2.72
11.	Na-bent/Quartz (85/15)	0.5	1.6	2.67
12.	Na-bent/Quartz (70/30)	0.5	1.6	2.66
13.	Na-bent/Quartz (50/50)	0.5	1.6	2.66
14.	Na-bent/Quartz (30/70)	0.5	1.6	2.65
15.	H-bent/Quartz (85/15)	0.5	1.6	2.67
16.	H-bent/Quartz (70/30)	0.5	1.6	2.66
17.	H-bent/Quartz (50/50)	0.5	1.6	2.66
18.	Tsukinuno beotonite	0.5	1.6	2.67
19.	H-bent/Heamatite (99.5/0.5)	0.5	1.6	2.67
20.	H-bent/Heamatite (99/1)	0.5	1.6	2.67

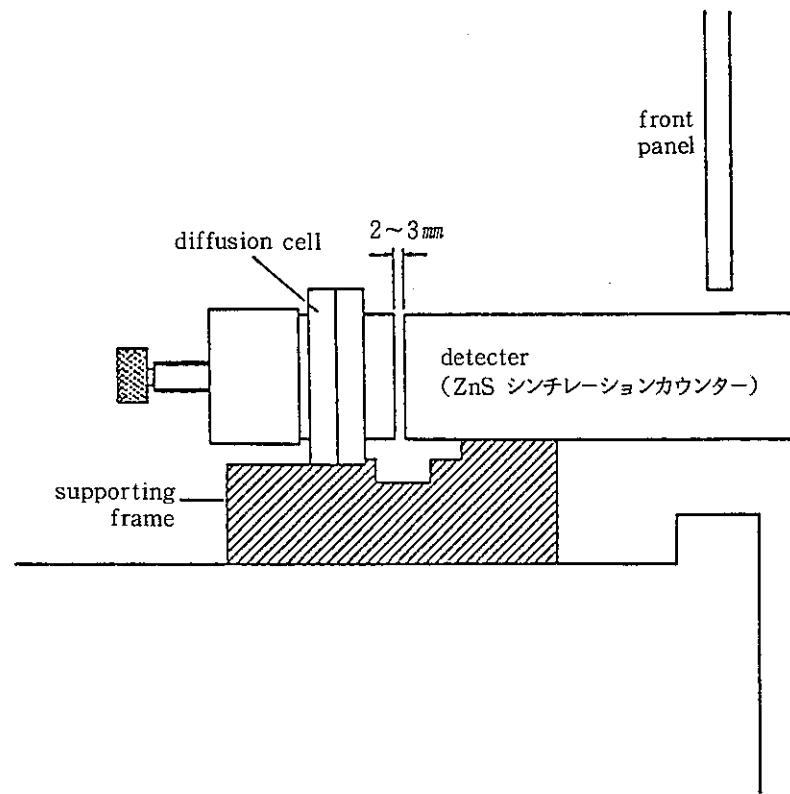
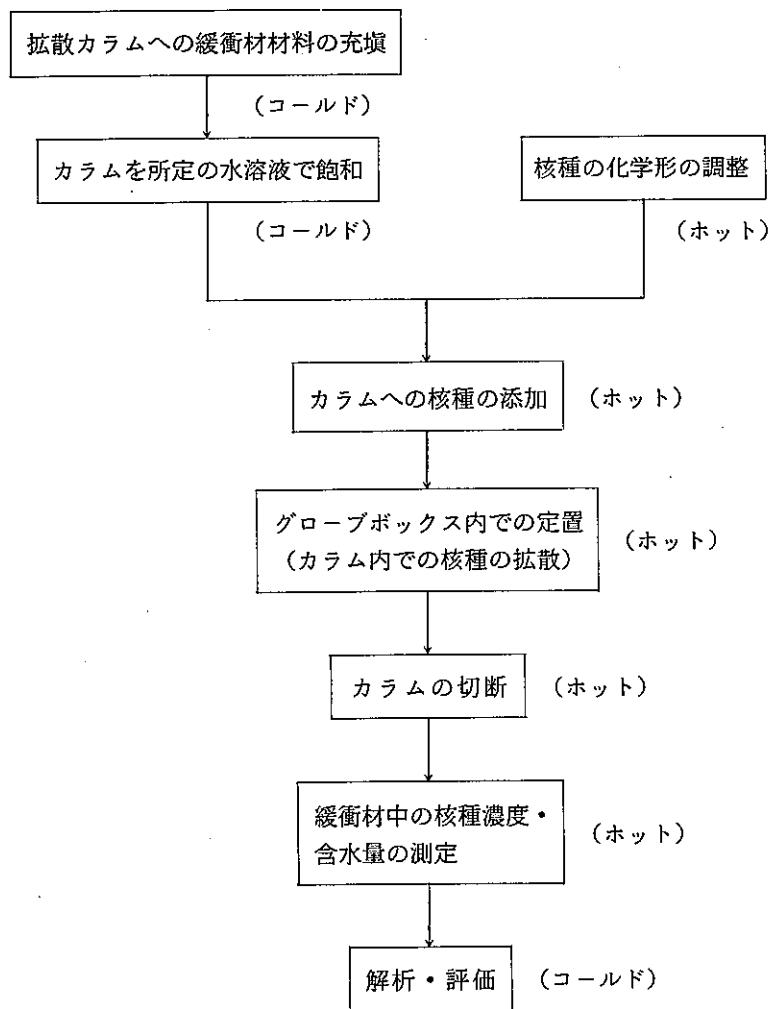


図-3. 放射能測定状態図

図-2. 試験フロー

表-4. 拡 散 係 数

カラム No.	材 料 組 成	添加Pu密度 塩酸濃度/M	試 料 充 填 密 度 (g/cm^3)	試 料 真 密 度 (g/cm^3)	拡 散 係 数
1.	Na型ベントナイト	0.1	1.6	2.67	—
2.	"	0.5	1.4	2.67	—
3.	"	0.5	1.6	2.67	—
4.	"	0.5	1.8	2.67	—
5.	"	0.1	1.6	2.67	—
6.	H型ベントナイト	0.5	1.2	2.67	$6\sim7\times10^{-9}$
7.	"	0.5	1.4	2.67	$2\sim3\times10^{-8}$
8.	"	0.5	1.6	2.67	3×10^{-9}
9.	"	0.5	1.8	2.67	1×10^{-9}
10.	天然ベントナイト(黒石産)	0.5	1.6	2.72	6×10^{-9}
11.	Na型ベントナイト+石英 15%	0.5	1.6	2.67	—
12.	" 30%	0.5	1.6	2.66	—
13.	" 50%	0.5	1.6	2.66	—
14.	" 70%	0.5	1.6	2.65	—
15.	H型ベントナイト+石英 15%	0.5	1.6	2.67	5×10^{-9}
16.	" 30%	0.5	1.6	2.66	$2\sim3\times10^{-9}$
17.	" 50%	0.5	1.6	2.66	3×10^{-9}
18.	天然ベントナイト(月布産)	0.5	1.6	2.67	—
19.	H型ベントナイト+ヘマタイト 0.5%	0.5	1.6	2.67	3×10^{-9}
20.	" 1.0%	0.5	1.6	2.67	3×10^{-9}

—：濃度プロファイルが得られなかったもの。

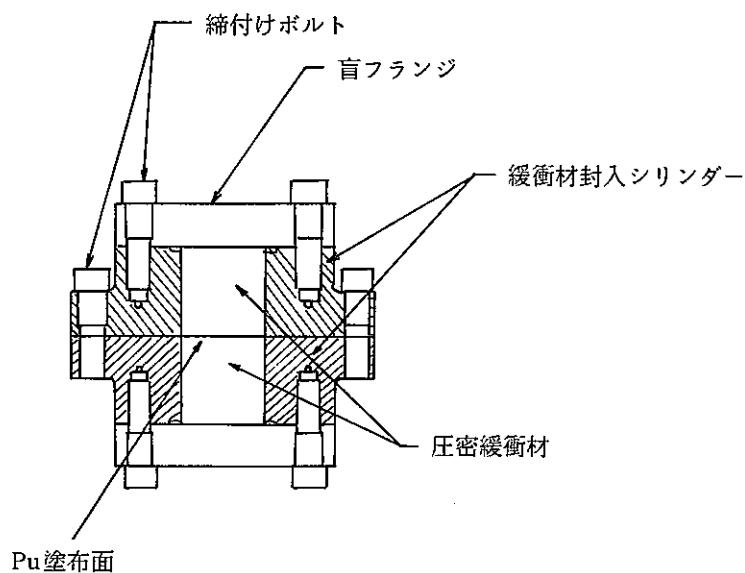


図-1. 移行試験カラム

表-1. プルトニウム同位体組成

	mass fraction (%)	Half life (y)	energy (Mev) (%)	radioactivity (Ci/g-Pu)
Pu 238	0.01	87	5.498 (71.1%), 5.454 (28.7%)	1.73×10^{-3}
Pu 239	95.26	2.41×10^4	5.153 (73.3%), 5.143 (15.1%)	5.91×10^{-2}
Pu 240	4.25	6.58×10^3	5.159 (75.7%), 5.115 (24.4%)	1.02×10^{-2}
Pu 241	0.203	14.3	$\beta : (99\% \div) 0.208$ $\alpha (0.00245\%) : 4.896 (83), 4.853 (12)$	$\beta : 5.11 \times 10^{-1}$ $\alpha : 5.16 \times 10^{-6}$
Pu 242	0.007	3.76×10^5	4.901 (74%), 4.857 (26%)	2.75×10^{-7}
Am 241	250 ppm	435	4.486 (86%), 5.443 (12.7%)	8.53×10^{-4}

3. あとがき

昭和61年度のプルトニウム廃棄物の処理・処分技術開発実績の概要をまとめた。

昭和61年度からの新規テーマとして金属廃棄物の除染を対象とする電解除染の一つであるバレル電解研磨除染についての除染試験を開始し、除染条件及び除染係数等についての把握及び測定を行った。今後、更に除染ホット試験を行い金属廃棄物の多量除染技術開発を進めた。

また、処分技術開発としては、緩衝材中でのプルトニウム核種の拡散係数を求めるのに必要な試験手法の検討を行い、プルトニウムのみかけの拡散係数は測定したが、試験手法上の問題も摘出されたので今後の改良が必要であった。

更に、固化体評価試験においては、今後の処分技術開発に必要とする諸データを得るために処分技術開発試験設備の設計製作を開始した。

4. 謝 辞

本年報の作成にあたり、原稿の作成に御協力頂いた各担当者並びに廃棄物処理・処分技術開発の試験実施関係者に対して感謝の意を表します。

5. 参 考 文 献

- 緩衝材中のTRU核種挙動研究 PNC SJ 4262 86-001