

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 62 年度年報

Developments in the treatment and disposal of
plutonium-contaminated wastes. Annual Report in FY-1987.

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



プルトニウム廃棄物処理・処分技術開発 昭和62年度年報

Developments in the treatment and disposal of plutonium-contaminated wastes. Annual Report in FY-1987.

実施責任者 稲田栄一, 大内 仁

報告者 宮田和俊, 大内 優,
薄井和也, 加川昭夫
山下照雄*, 水野彰三
佐藤吉則

期間：1987年4月1日～1988年3月31日

目的：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並びに再処理工場等から発生する低レベル廃棄物について昭和62年度の処理、処分技術開発に関する資料としてまとめ、社内の検討に供する。

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、減容安定化技術開発は焼却灰等をマイクロ波溶融法にて固化する際、ルツボ形状が固化体の密度に与える影響を評価した。

除染技術開発はバレル電解研摩除染試験を行い、除染の均一性及びバラツキ等を評価した。

区分管理技術開発は非破壊測定手法のパッシブガンマ法により、可燃性廃棄物の焼却前後における²³⁹Pu量の関係からパッシブガンマ法の妥当性を確認した。処分技術開発は実核種を用いて、浸出試験を行うための処分技術開発試験設備の製作、据付及び施設検査を行った。

又、人工バリアとして核種移行の遅延能力が大きい緩衝材中のTRU核種挙動試験として、TRU核種を用いて拡散試験等を実施した。

一方、今年度より再処理工場等から、発生する低レベル固体廃棄物並びに液体廃棄物の減容安定化に関する技術開発を開始し、低レベル廃棄物のうち、未処理のまま貯蔵管理されている廃シリカゲル、廃砂、焼却灰等の不燃性残渣の固化処理技術について、調査、検討並びに固化処理試験を行った。低レベル濃縮廃液の処理技術として、廃液中から放射性物質を分離除去し、残る硝酸塩分の廃液を非放射性として海洋放出する処理技術を選定し、模擬廃液によるコールド試験を行った。

又、低レベル濃縮廃液及び化学スラッジを遠心薄膜蒸発機及び横型パドル乾燥機により乾燥粉体化させる処理技術について模擬廃棄物によるコールド試験を行った。

更に、上記低レベル固体廃棄物並びに液体廃棄物の減容安定化技術の実証を目的として、低レベル廃棄物処理開発施設(LWTF)を考えており、今年度は基本設計Ⅱを行った。

*1 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 焼却灰等の溶融固化試験	4
2.1.2 不燃性残渣固化処理試験	1 2
2.1.3 含塩素廃液処理試験	2 5
2.1.4 低レベル廃液乾燥粉体化処理試験	3 2
2.2 区分管理技術開発	4 1
2.2.1 除染試験	4 1
2.2.2 プルトニウム廃棄物測定技術開発	4 6
2.3 処分技術開発	4 9
2.3.1 固化体評価試験	4 9
— 処分技術開発試験設備の新設 —	
2.3.2 緩衝材中のTRU核種挙動研究	5 5
2.4 低レベル廃棄物処理開発施設(LWTF)の設計	6 4
3. あとがき	7 0
4. 謝 辞	7 0
5. 参考文献	7 0

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並びに再処理工場等から発生する低レベル廃棄物を主対象に、廃棄物の処理、処分技術開発について昭和62年度の進捗状況をまとめた。

T R U 廃棄物に関して、減容安定化技術開発は固化体の高密度化を目的として、ルツボ形状が溶融特性に与える影響について評価した結果、ルツボ内の加熱領域（電界強度分布）は五角、四角、六角形ルツボの順に大きくなることがわかった。また、固化体のかさ密度は六角形ルツボが最も高く 3.0 g/cm^3 の固化体が得られた。

除染技術開発はバレル電解研摩除染試験を行い、除染の均一性及びバラツキ等を評価した。その結果、除染後の試料の表面観察を α トラック撮影した結果、表面の汚染の大部分が除染されていたのが分かった。また、試料の汚染濃度分布の除染前後のバラツキを求めた結果、除染後は一桁の範囲であった。

区分管理技術開発は非破壊測定手法のパッシブガンマ法により、可燃性廃棄物の焼却前後における ^{239}Pu 量を測定した結果、パッシブガンマ法の測定誤差範囲内（ $\pm 20\%$ 以内）であることを確認し、その測定法の妥当性を確認した。

処分技術開発は処分技術開発試験設備として浸出試験設備（オープンポートボックス1基）、高温浸出試験設備（オープンポートボックス1基）、固化体製造設備（グローブボックス1基）、試料作製設備（グローブボックス1基）の製作・据付並びに施設検査を実施し合格した。

又、緩衝材中のT R U核種挙動研究は実際のT R U核種を用いて処分環境に近い条件下での拡散試験を実施し拡散係数を求めた結果、H型ベントナイト（密度 2.0 g/cm^3 の場合）は $4 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{sec}$ であった。N a型ベントナイトの場合はプルトニウムの拡散はほとんど認められなかった。

低レベル廃棄物に関する減容安定化技術開発は、現在未処理のまま貯蔵管理されている廃シリカゲル、廃砂、焼却灰等の不燃性残渣の固化処理技術について調査、検討を行いペレット固化（低含水セメント固化、セメントガラス固化）、均一固化（セメント固化、セメントガラス固化）、岩石固化（水熱固化）の固化処理技術を選定した。

又、これら固化処理技術について固化処理試験、物性評価試験を実施した。（尚、試験結果は昭和63年度年報に報告する。）

低レベル濃縮廃液の含塩廃液処理試験は前処理、共沈・限外ろ過、後処理の処理プロセス

について模擬廃液によるコールド試験を行った結果、吸着、イオン交換及び共沈・限外ろ過により廃液中の放射性物質を除去できる見通しを得た。

低レベル廃液乾燥粉体化試験は、低レベル濃縮廃液及び化学スラッジを遠心薄膜蒸発機及び横型パドル乾燥機により蒸発・乾燥する際、廃液中に含まれる微量有機物の蒸発乾燥特性に及ぼす影響及び安全性の確認を行った結果、低レベル濃縮廃液中に含まれるTBPは蒸発して凝縮水側へ移行し、その他成分の全量は乾燥粉体中に残留することが分かった。

又、蒸発乾燥時において顕著なガス発生はなく含水率2w/o以下の粉体が得られた。

低レベル廃棄物処理開発施設の設計は放射性廃棄物の処理技術開発状況及び処分動向を踏まえて処理プロセスの見直し及び処理方針の検討を行った。

業 務 進 捗 表

	62年度											
	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 焼却灰等の溶融固化試験	—											
2.1.2 不燃性残渣固化処理試験		—										
2.1.3 含塩廃液処理試験			—									
2.1.4 低レベル廃液乾燥粉体化処理試験				—								
2.2 区分管理技術開発												
2.2.1 除染試験			—									
2.2.2 プルトニウム廃棄物測定技術開発		—										
2.3 処分技術開発												
2.3.1 固化体評価試験－ 処分技術開発試験設備の新設												
2.3.2 緩衝材中のTRU核種挙動研究												
2.4 低レベル廃棄物処理開発施設の設計												

2. 開発業務

2.1 減容安定化処理技術開発

2.1.1 焼却灰等の溶融固化試験

(1) 目的及び概要

可燃性TRU廃棄物を焼却処理した後の焼却灰を合理的な貯蔵処分の観点から一層の減容安定化を図るための技術としてマイクロ波による溶融固化処理技術の開発を進めてきた。

本年度は、61年度の経過、結果等を踏まえて、固化体の高密度化等を目的としたルツボ形状が溶融特性に与える影響に着目し、ルツボ形状による溶融特性の評価を行った。

(2) 方法及び結果

試験に用いた装置の概要を以下に示す。

- ① ルツボ：評価対象として四角形ルツボ、五角形ルツボ、六角形ルツボ、円筒形ルツボを用いた。各ルツボ概略図を図-1に示す。
- ② マイクロ波発振機：マイクロ波周波数、2450MHz、最大出力10kW
- ③ 溶融炉：共振式
- ④ サーモペイント : 变色性（不可逆性、オレンジ→紫）
(特定の温度で変色するペイント) : 变色温度 270°C

試験項目、内容を以下に示す。

① 電界加熱位置の確認（管内波長の測定）

木材及び焼却灰を各ルツボ内に満した場合の、ルツボ内の管内波長を測定することにより、ルツボ内のマイクロ波伝送モードを確認し、電界強度の高い部分に生ずるサーモペイントの加熱部位置を確認する方法を採用した。

ルツボ内部に、ルツボ断面形状に合わせて切断した4mm厚のラワン合板を充てんし、マイクロ波を照射させ合板に生じた炭化部の面積の極大間の距離から管内波長を求めた。同様にルツボ内にサーモペイントを塗布したテフロン板を入れ、この中に焼却灰を充てんし、マイクロ波を照射させテフロンのサーモペイントに生じた変色域から管内波長を求めた。（図-2参照）

その結果、以下のことが分かった。

- ① ルツボの加熱部位置はルツボ底から $(1/4)\lambda_g + n(1/2)\lambda_g$

(λg : 管内波長、 $n = 0, 1, 2, \dots$) の高さに生じていることを確認し、マイクロ波はTEモードで伝送されていると考えられた。

- ④ 管内波長測定結果は計算値とよく一致した。

図-3, 表-1に管内波長測定結果を示す。

② ルツボ内部加熱領域測定

ルツボ内の焼却灰に生ずる加熱領域の縦、横方向の広がりを測定するために、ルツボ内に縦方向と横方向となるようにテフロン板を入れ、焼却灰を充てんする。マイクロ波を照射させ灰の加熱領域の断面積をサーモペイントの変色面積を測定しルツボ内部の加熱領域を測定した。

その結果以下のことが分かった。

- ① 一定のエネルギーのマイクロ波照射でもルツボの形状によって加熱領域（電界強度分布）の大きさに顕著な差が生じた。
② 灰の加熱領域は六角形、四角形、五角形ルツボの順で大きい値を示した。円筒形ではサーモペイントの変色変化が見られず測定できなかった。

図-4にルツボ内加熱領域測定結果を示す。

③ H E P A フィルタ焼却灰溶融固化試験

各ルツボにより、模擬H E P A フィルタ焼却灰の溶融固化試験を行い固化体の密度を測定し、ルツボ形状と固化体かさ密度の関係を調べた。

その結果、固化体密度は六角形、四角形、円筒形の順に高いことがわかり、ルツボ内加熱領域の大きさと相関していることがわかった。

管内波長の長さについては固化体密度との相関性は見られなかった。

表-2に焼却灰中の管内波長測定結果を示す。

(3) 結論及び今後の方針

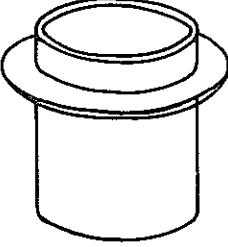
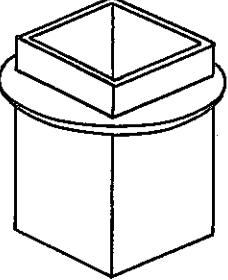
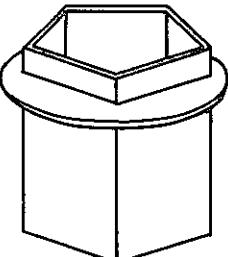
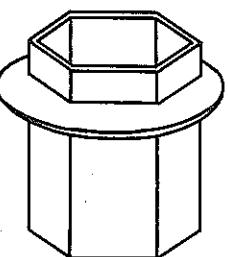
① 結論

- i 四角形、五角形、六角形ルツボの管内波長はルツボ断面形状を矩形に近似することで計算が可能であることを確認した。
- ii マイクロ波の入射エネルギーを一定にした場合、各ルツボ内の加熱領域（電界強度分布）は五角、四角、六角形ルツボの順に大きくなることが分かった。
- iii 各ルツボにより、模擬H E P A フィルタ焼却灰を溶融固化した固化体密度は電界による加熱領域の測定結果と相関性を持つことを確認した。固化体密度で最も

高い値を示したのは六角形ルツボで3.0 g/cm³の固化体を得ることができた。

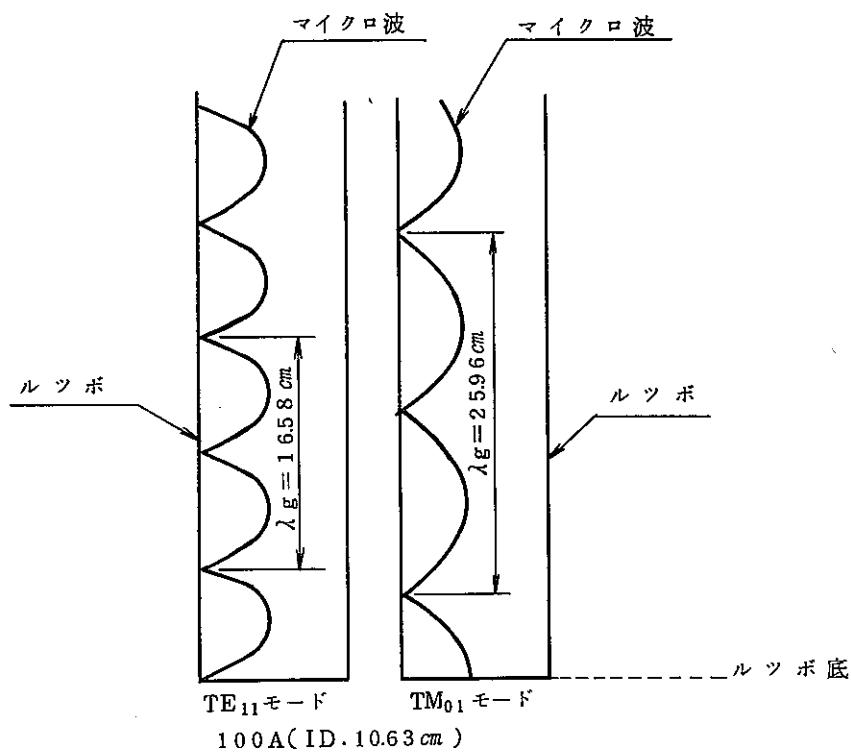
② 今後の方針

今後の試験として、固化体密度の向上、均一化を目的として、安定な溶融条件を得るための運転試験、放電の低減化を行うとともに、ルツボ形状の評価試験も継続して試験を行う予定である。

名 称	円径又は辺の内寸法 (cm)	断 面 積 (cm ²)	外 形 図
円 筒 形	$\phi 10.6$	88.2	
四 角 筒 形	9.1	82.8	
五 角 筒 形	7.9	108.7	
六 角 筒 形	6.0	90.5	

(高さ 15 cm)

図-1 ルツボ仕様



ルツボ内マイクロ波モード

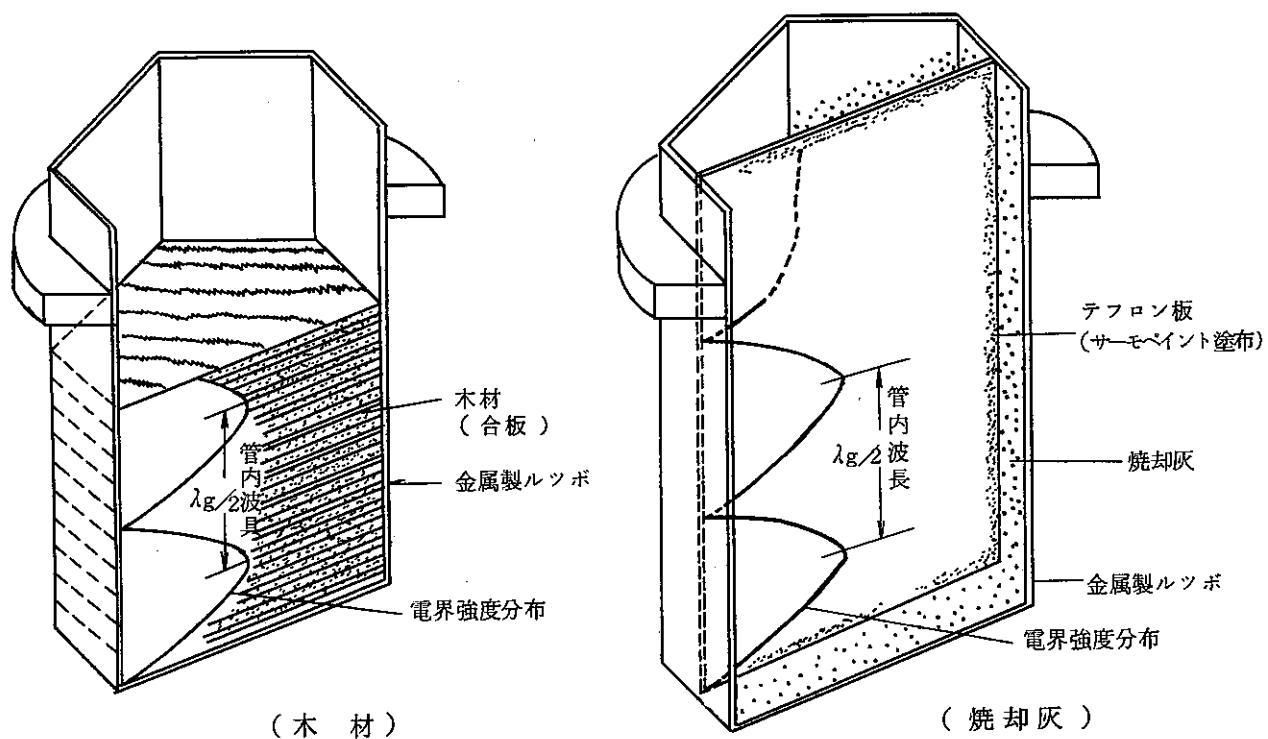


図-2 管内波長の測定方法

図-3 木材中の管内波長測定結果

		単位 cm							
ルツボ形状		円筒形	四角筒形	五角筒形	六角筒形				
マイクロ波 入射方向		A	A	B	A	B	A	B	
	方向別	A	A	B	A	B	A	B	
管 内 波 長	実測値 (平均)	4.75	4.73	4.77	4.43	4.50	4.73	4.53	
$\lambda g/2$	計算値	4.75	4.75	4.81	4.60	4.60	4.70	4.60	

表-1 焼却灰中の管内波長測定結果

		単位 cm							
管 内 波 長	実測値 (平均)	5.80	5.83	5.90	5.47	5.50	5.70	5.50	
	$\lambda g/2$	計算値	5.88	5.90	6.01	5.64	5.63	5.80	5.60
マイクロ波 入射方向		A	A	B	A	B	A	B	

マイクロ波入力 : 1 kW

照 射 時 間 : 5 分

媒 質 : 燃 却 灰

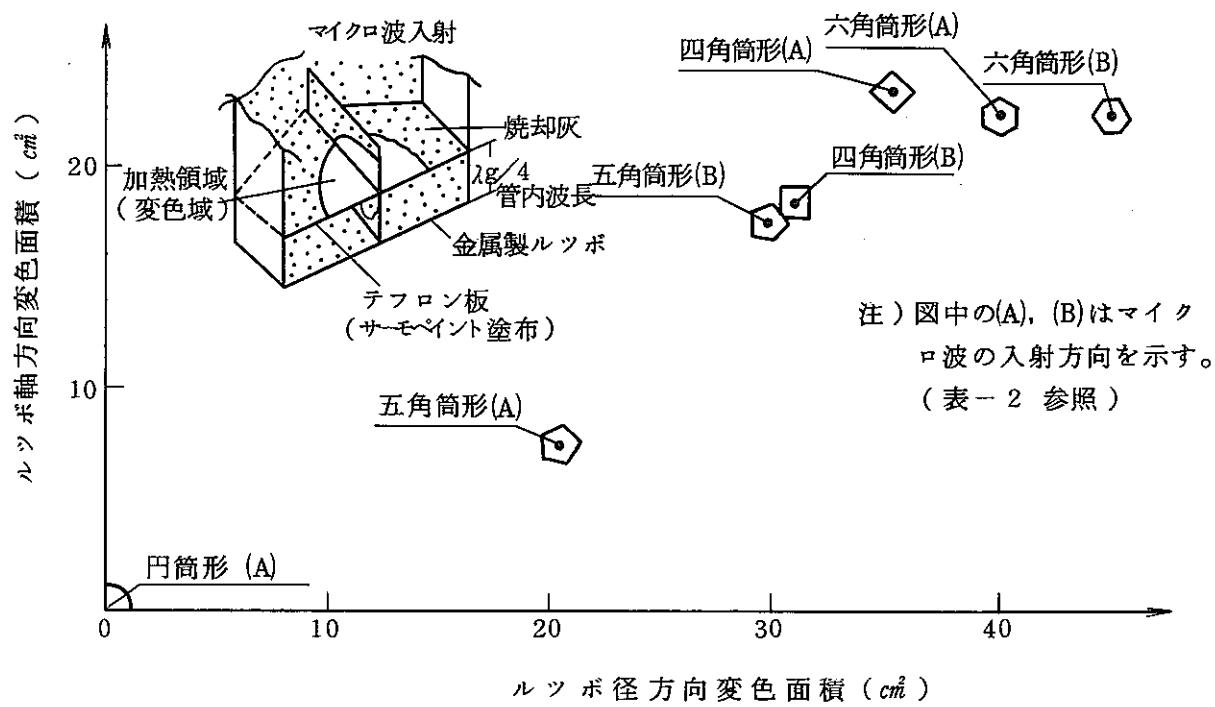


図-4 ルツボ内加熱領域測定結果

表-2 模擬 H E P A 焼却灰溶融試験結果

ルツボ形状	ルツボ内の加熱領域		管内波長 λ g/cm ²	固化体 嵩密度 (g/cm ³)
	軸方向面積 (cm ²)	径方向面積 (cm ²)	実測値	
円筒形	変色域なし	変色域なし	5.80	2.4
四角筒形	A 方向 A	23.2	5.83	2.8
	B	18.3	5.90	
五角筒形	A	7.3	5.47	2.7
	B	17.2	5.50	
六角筒形	A	22.0	5.70	3.0
	B	22.0	5.50	

注) 表中の方向 A, B は表-2 のマイクロ波入射方向に対応する。

2.1.2 不燃性残渣固化処理試験

(1) 目的及び概要

再処理工場から発生する低レベル廃棄物のうち、現在未処理のまま貯蔵管理されている廃シリカゲル、廃砂、焼却灰、廃活性炭、廃ヨウ素フィルタ等の不燃性残渣を性状に応じた整合のとれた固化処理システムを構築し固化処理技術を開発することは、輸送・処分並びに現在計画中の低レベル廃棄物処理開発施設（LWTF）の設計を実施する上で必要である。

今年度は、これら廃棄物の最適な固化処理システムの調査、検討、評価を実施した。

(2) 方法及び結果

① 固化処理技術の調査

処理方式を問わずに、含硝酸塩廃棄物及び不燃物の固化が可能な固化処理技術を公開文献、メーカーの技術資料をベースに調査し、リストアップを行った。その結果を表-1に示す。

表より廃棄物が液体の場合、その処理方式としては、

- i 乾燥処理して粉体化し固化処理する。
- ii 液体のまま直接固化する。
- iii 放射能を分離後、上記①、②のいずれかにより処理する。

がある。

一方、乾燥処理された液体廃棄物（含硝酸塩廃棄物）及び不燃物の処理方式としては、

- i ペレットにした後、充てん材で充てん固化する。
- ii 固化材と均一に練りませて固化する。
- iii 水熱法により岩石化する。
- iv 分解してガラス化する。

の方法がある。このうち、①のペレット充てん固化と②均一固化は使用する充てん材、固化材により無機系と有機系に大別される。

② 検討対象技術の選定

リストアップされた固化処理技術の中から、検討対象技術を選定した。この選定基準は固化体廃棄物である含硝酸塩廃棄物及び不燃物が合理的なプロセスで固化処理できる技術とした。

以下に検討の対象とする固化処理技術を示す。

i ペレット充てん固化

- ① 不飽和ポリエステル固化 ② アスファルト固化 ③ 低含水セメント固化
- ④ セメントガラス固化

ii 均一固化

- ① 不飽和ポリエステル固化 ② ポリエチレン固化 ③ 低温アスファルト固化
- ④ セメント固化 ⑤ セメントガラス固化

iii 岩石化

- ① 水熱固化

iv ガラス化

- ① ガラス溶融固化 ② 高周波誘導溶融固化 ③ マイクロ波溶融固化

③ 固化処理技術の検討、評価

検討の対象として選定された技術を開発状況、経済性から一次選定し、一次選定された技術について含硝酸塩廃棄物、不燃物ごとに実証性、安全性、固化体の健全性等について比較を行い、二次選定により有望な固化処理技術を抽出した。

i 一次選定

一次選定では、各固化処理技術の開発状況から現在計画中の低レベル廃棄物処理開発施設の建設スケジュールと比較して実機開発の難易、プロセスの経済性を評価した。各固化処理技術の内で、ガラス固化溶融固化、高周波誘導溶融固化及びマイクロ波溶融固化は、含硝酸塩廃棄物の固化処理時に発生するNOXガスの処理等開発すべき項目が多く実用化が困難であるので対象外とした。

ii 比較評価及び重み付け評価

前項で抽出された固化処理技術について実証性、経済性、安全性、操作性、保守性、固化体の健全性、減容性、二次廃棄物に関して比較評価を行い重み付け評価を実施した。評価の結果を表-1, 2に示す。

iii 固化技術の抽出

評価の結果により以下の固化技術を抽出した。

- ① ペレット固化：低含水セメント固化、セメントガラス固化
- ② 均一固化：セメント固化、セメントガラス固化
- ③ 岩石化：水熱固化

iv 固化処理試験

試験の実施内容を表-3に示す。試験は、模擬廃棄物の充てん率をパラメータとして固化体を作製し、安全性、減容性、二次廃棄物、固化体の圧縮強度の評価を行い適切な固化処理条件を選定するものである。

試験結果を以下に示す。

① 固化体物性

セメントガラス固化（ペレット固化、均一固化）を除くセメント系の固化処理技術においては、材令28日（本固化処理試験で評価した最大の材令）内では、固化体の圧縮強度は材令とともに大きくなる傾向がある。しかし、固化体の廃棄物含有率がある程度以上に大きくなると圧縮強度が材令とともに大きくなる傾向は見られなくなり、圧縮強度は 100kg/cm^2 以下となった。

セメントガラス固化ではペレット固化、均一固化とも材令とともに圧縮強度が大きくなる傾向は確認されなかった。

廃棄物含有率をパラメータとした均一固化（セメント固化及びセメントガラス固化）及び水熱固化については、固化体の廃棄物含有率が大きくなると圧縮強度が小さくなるという傾向が全ての固化体について認められた。

② 二次廃棄物

試験で二次廃棄物が発生したものは、セメントによる廃シリカゲルの固体時に発生したドデカンのみであった。このドデカンは、廃シリカゲルがドデカンに浸漬されたものであるため、セメントミルクとの混合時に混練水とドデカンが置換してドデカンが混合物上に浮き上がり、一種のブリージング状態となるのを防ぐために、前処理として廃シリカゲルに対して脱ドデカンを実施した結果発生したものである。

③ 安全性

いずれの固化処理技術においても危険物及び有害な化学物質の取扱いはない。また、固化処理時の廃棄物の飛散、火災、爆発の可能性もなく、固化処理技術の安全上に問題がないことを確認した。

④ 減容性

a ペレット固化

ペレット固化（低含水セメント固化、セメントガラス固化）の場合、ペレ

ットの充てん率は型枠及びペレットの形状、寸法に左右される。

固化処理試験では40v/oのペレット充てんが可能であった。この低レベル廃液乾燥粉体（酸性、アルカリ性濃廃混合物）ペレットの減容性（固化体1 m³あたりの廃棄物の重量）は703kg/m³であった。尚、200ℓドラム缶にペレットを充てんした場合には充てん効率が60v/o程度となるため、1050kg/m³程度となる。

(b) 均一固化及び岩石化

セメント固化、セメントガラス固化（均一固化）及び水熱固化（岩石化）の廃棄物含有率と減容性の関係は、廃棄物含有率とともに減容性が大きくなるが、その傾向には廃棄物が同種種類の場合、固化処理技術による大きな差は認められなかった。

(c) 適切な固化条件

セメントガラスによるペレット固化においては、固化体の圧縮強度が最大でも110kg/cm²程度であり、適切な固化条件を見い出すまでには到らなかった。

v 物性評価試験

試験の実施内容を表-4に示す。試験は固化処理試験にて選定された固化処理条件で固化体を作製し密度、圧縮強度、熱物性、耐水性及び耐放射線性の測定を実施し、固化体の物性を評価した。

(d) 圧縮強度

圧縮強度が固化条件の選定基準である180kg/cm²を下回ったのは、確認試験として実施した低レベル廃液乾燥粉体（りん酸濃廃）のセメント固化体のみであった。これはりん酸ソーダが固化時に発熱し、急激な凝結が起こったものによるものであった。

(e) 熱特性

熱特性では、発熱反応の有無が重要な評価項目となる。固化剤による発熱反応は全ての固化処理技術において観察されなかった。一方、廃棄物自身が発熱するものとしては、低レベル廃液乾燥粉体（酸性、アルカリ性濃廃混合物）、廃活性炭、廃砂であった。尚、試験の対象外である低レベル廃液乾燥粉体のりん酸濃廃及び化学スラッジ、除染廃液乾燥粉体も硝酸塩を含んでいるため発熱するものと考えられた。

④ 耐水性

固化体重量の増加は吸水によるものであるが、その増加率はセメント固化体が比較的大きい。一方、均一固化によるセメントガラス固化体は圧縮強度が著しく低下する傾向を確認した。これはセメントガラスの代替品として用いたミズカネックス500の特性によるものであった。

⑤ 浸出率

浸出1日後と28日後のNaの浸出率は、28日後の浸出率は浸出1日後の値に比較して1/10~1/100程度になっていた。セメント固化体及び水熱固化体の1日後の浸出率は 10^{-1} オーダーで、比較的大きな値となった。

⑥ 耐放射線性

γ 線照射後の固化体の密度は多少低下し、圧縮強度は増加する傾向を確認した。

(4) 固化処理プロセスの選定

前項の固化処理試験及び物性評価試験の結果等をもとに固化処理プロセスの選定を行った。

① 固化処理プロセスの選定

対象廃棄物は発生量が多く(290ton/年)放射能レベルの高い含硝酸塩廃棄物と発生量が少く(7ton/年)放射能レベルの低い不燃物とに大別され、固化条件等も大きく異なる。そのため、固化処理プロセスの選定は含硝酸塩廃棄物と不燃物についてそれぞれ選定する。

② 含硝酸塩廃棄物の固化処理プロセスの選定

今回の試験結果をもとに、固化条件、減容性、固化体物性について比較評価を行った。

① 固化条件

低含水セメント、セメントガラスによるペレット固化は廃棄物によりセメントと混練水の配合比を変える必要がなく、固化条件は単純である。セメント固化及びセメントガラス固化の場合は、廃棄物毎に廃棄物/セメント/水の配合比が異なり、セメント固化の場合りん酸濃縮廃乾燥粉体の単独固化は困難である。一方、水熱固化の場合は廃棄物毎に廃棄物/ホウケイ酸ガラス/アルカリ水溶液の配合比が異なるとともに、アルカリ水溶液の成分も異なり固化条件としては複雑であ

る。

これらの結果から固化条件としては低含水セメント、ガラスセメントによるペレット固化が優れている。

④ 減容性

ペレット固化の場合は廃棄物によりペレットの密度が異なるため、減容性にその差が見られ1000~1400kg/m³であった。セメントガラス固化体、水熱固化の減容性には廃棄物の違いによる大きな差は認められず、セメントガラス固化は800~900kg/m³、水熱固化は700~800kg/m³であった。セメント固化の場合は廃棄物により減容性が大きく異なり、200~700kg/m³で特に発生量の多い酸性、アルカリ性濃廃乾燥粉体混合物の減容性が200kg/m³と小さい。

この減容性と廃棄物の発生量から年間当りのドラム缶の発生量を求めるとき、低含水セメント、セメントガラスによるペレット固化は1360本、セメント固化6000本、水熱固化2035本、セメントガラス固化1610本となった。

これらの結果に基づき、減容性は低含水セメント、セメントガラスによるペレット固化が優れていた。

⑤ 固化体物性

酸性、アルカリ性濃廃混合物の水熱固化体の耐水性は、浸漬中重量減少、圧縮強度の低下が認められた。セメントガラス固化（均一固化）の浸出率が10⁻¹g/cm²・dayのオーダでやや大きい。

圧縮強度については、りん酸濃廃乾燥粉体のセメント固化体及び化学スラッジ乾燥粉体のセメントガラス固化体が150kg/cm²より小さくなっている。これらの結果から固化体物性は低含水セメント、セメントガラスによるペレット固化が優れていた。

⑥ 選 定

上記の結果、固化条件、減容性、固化体物性から低含水セメントによるペレット固化を含硝酸塩廃棄物の固化処理プロセスとして選定した。

⑦ 不燃物の固化処理プロセスの選定

今回の試験結果をもとに固化条件、減容性、固化体物性について比較評価を行った。

① 固化条件

セメント固化、セメントガラス固化、水熱固化とも廃棄物毎に廃棄物／固化材／水の配合比が異なり、水熱固化の場合にはアルカリ水溶液の成分も異なる。これらの結果に基づき固化条件は水熱固化がやや複雑で、セメント固化、セメントガラス固化が優れている。

② 減容性

各固化処理技術とも廃棄物によって減容性が大きく異なっている。全体的には水熱固化が減容性に優れているが、廃棄物の発生量をもとに、年間当たりのドラム缶発生量を求めると、セメント固化104本、セメントガラス固化73本、水熱固化101本である。

減容性はドラム缶の発生量から評価すると、セメントガラス固化が最も優れているが、セメント固化、水熱固化とは大差はない。

③ 固化体物性

固化体の圧縮強度は水熱固化が全体的に大きく、セメントガラス固化が多少小さい傾向となった。浸出率も水熱固化体が優れている。これらの結果から水熱固化体が最も優れ、セメント固化体とセメントガラス固化体はほぼ同等と判断される。

④ 選 定

上記の結果をもとに、全てに最も優れていた技術はなかった。そこで選定の方針に基づき固化条件が単純なセメント固化、セメントガラス固化より選定することにした。

減容性（ドラム缶の発生本数）を見ると、セメント固化よりセメントガラス固化が多少（30%程度）優れているが、発生本数が年間70～100本程度であるため大差ないと判断される。一方、固化材の価格を見るとセメントはセメントガラス1/10程度である。そこで不燃物用の固化処理プロセスとしてセメント固化を選定した。

(3) 結論及び今後の方針

① 結 論

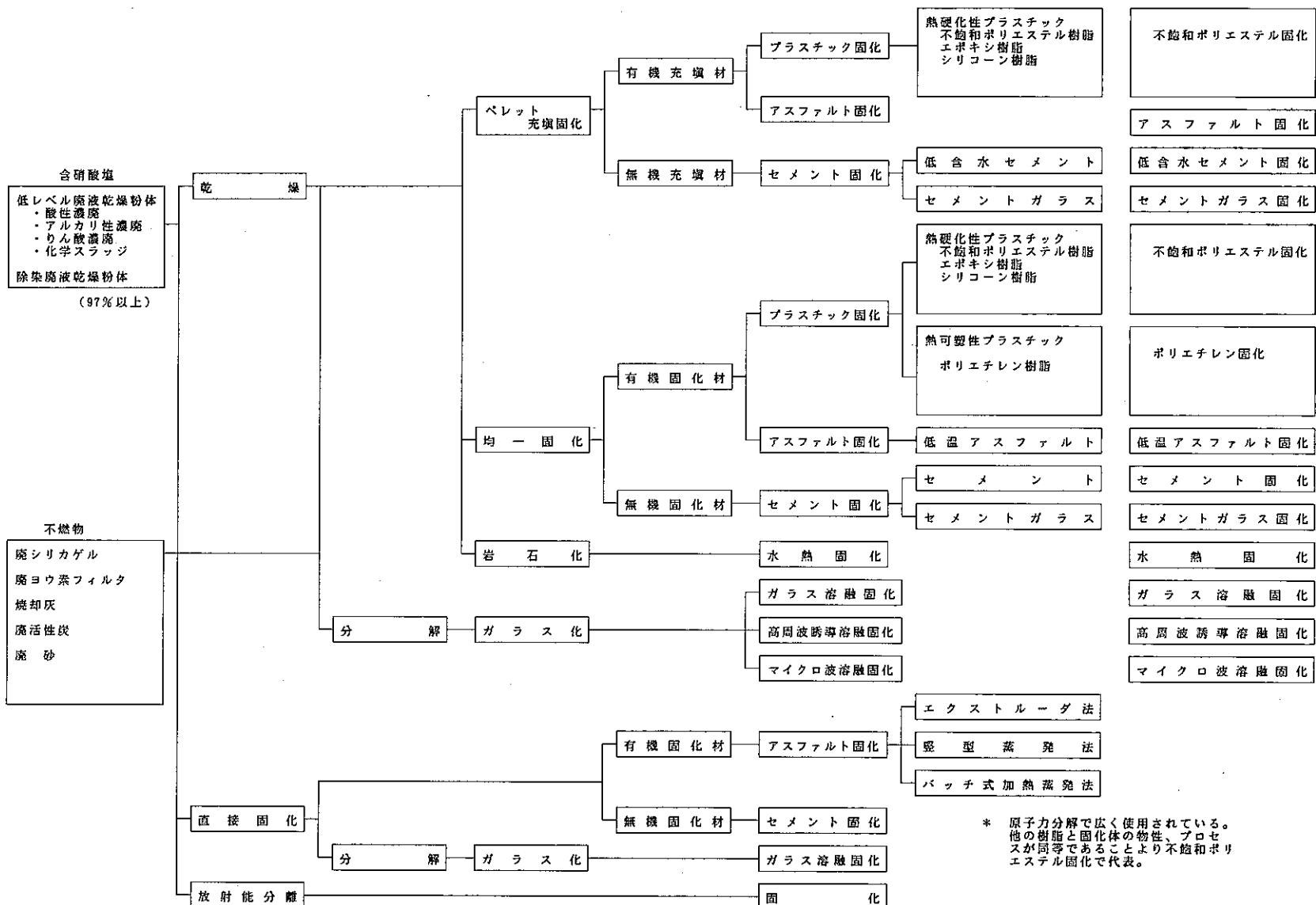
- i 不燃性残渣及び低レベル廃液乾燥粉体、除染廃液乾燥粉体を対象に固化処理技術の調査、検討、評価を行い、有望な固化処理技術として低含水セメント固化

(ペレット固化)、セメント固化、水熱固化、セメントガラス固化(ペレット固化)及びセメントガラス固化(均一固化)の5技術を選定した。

ii 上記の固化処理技術について模擬廃棄物を用いた固化処理試験を行い適切な固化条件を選定するとともに、固化体の物性試験を行い、適切な固化処理プロセスとして低レベル廃液乾燥粉体、除染廃液乾燥粉体については低含水セメント固化(ペレット固化)を、不燃性残渣についてはセメント固化を選定した。

(2) 今後の方針

選定された固化技術について、各種廃棄物の固化体を作製し、その物性を評価して各固化技術と廃棄物の適合性の確認及び基礎データの取得を行い、各固化処理技術の最適固化条件を求める予定である。



* 原子力分解で広く使用されている。
他の樹脂と固化体の物性、プロセスが同等であることより不飽和ポリエステル固化で代表。

表-1 固化処理技術のリストアップ

表-1 含硝酸塩比較評価

重要度ランク	1	1	2	3	3	1	2	3	
評価項目	実証性	経済性	安全性	操作性	保守性	固化体健全性	減容性	二次廃棄物	総合評価
固化処理技術									
不飽和ポリエステル固化	◎ (容易)	△ (3)	○	○	○	×	◎ (0.9)	◎	— [29]
アスファルト固化	↓	↓	△	↓	↓	↓	↓	↓	— [27]
低含水セメント固化	↓	↓	◎	↓	↓	◎	↓	↓	3 [40]
セメントガラス固化	↓	↓	↓	↓	↓	↓	↓	↓	3 [40]
均一固化									
不飽和ポリエステル固化	↓	○ (2)	○	◎	◎	×	◎ (1.0)	↓	— [34]
ポリエチレン固化	↓	↓	△	↓	↓	↓	↓	↓	— [32]
低温アスファルト固化	↓	↓	↓	↓	↓	↓	○ (1.3)	↓	— [30]
セメント固化	↓	◎ (1)	◎	↓	↓	◎	↓	↓	1 [46]
セメントガラス固化	↓	↓	↓	↓	↓	↓	↓	↓	1 [46]
岩石水熱固化	○ (やや難)	△ (10)	△	△	△	↓	△	↓	5 [27]
	実機建設の 難易の相対比較	建設コスト の相対比較	運転条件の 相対比較	処理手順数 の相対比較	処理手順数 の相対比較	固化体物性 の相対比較	処理後廃棄 の総合相対	二次廃棄物 物体積の相 対比較	下段：順位 発生の影響 内：得点 の相対比較

表-2 不燃性比較評価

重要度ランク		1	1	2	3	3	1	2	3	
評価項目		実証性	経済性	安全性	操作性	保守性	固化体健全性	減容性	二次廃棄物	総合評価
ペレット固化	固化処理技術	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	不飽和ポリエステル固化	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	アスファルト固化	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	低含水セメント固化	—	—	—	—	—	—	—	—	—
均一固化	セメントガラス固化	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	不飽和ポリエステル固化	◎ (容易)	○ (2)	○	◎	◎	○	○ (1.0)	◎	3 [38]
	ポリエチレン固化	↓	↓	△	↓	↓	↓	↓	↓	4 [36]
	低温アスファルト固化	↓	↓	↓	↓	↓	↓	↓	↓	4 [36]
	セメント固化	↓	◎ (1)	◎	↓	↓	◎	↓	↓	1 [43]
岩石化	セメントガラス固化	↓	↓	↓	↓	↓	↓	↓	↓	1 [43]
	水熱固化	○ (やや難)	○ (2)	△	△	△	↓	◎ (0.5)	↓	6 [32]
		実機建設の 建設コスト 運転条件の 处理手順数 处理手順数 固化体物性 处理後廃棄 二次廃棄物 下段:順位 難 易 の相対比較 相対比較 の相対比較 の相対比較 の相対比較 の相対比較 物体積の相 比較 発生の影響 [] 内:得点 比較 対比較 対比較 対比較 対比較 対比較 対比較 対比較 対比較 対比較								

表-3 固化処理試験実施内容

寸法 mm

項目	評価項目	評価方法	試験条件等
固化処理試験	(ペレット固化)		形状・寸法 ・ペレット $15\phi \times 15$ ・固化体 $40 \times 40 \times 160$
	・固化体強度	圧縮強度測定	材令 7, 14, 28 日
	(均一固化)		JIS R 5201 に準拠 形状・寸法 $40 \times 40 \times 160$
	・廃棄物充填量	圧縮強度測定 混合物粘性測定	材令 7, 14, 28 日 フロー値又は粘度
	(水熱固化)		
	・廃棄物充填量	圧縮強度試験	形状・寸法 $20\phi \times 30H$
二次廃棄物の評価	・発生の有無	目視	発生物の定性的検討
	・発生量	発生物の容量または重量	
安全性の評価	・安全性	危険物の取扱い 有害物の取扱い 廃棄物の飛散性 火災・爆発性	
減容性の評価	・減容性	単位固化体容積 当たりの廃棄物量	(kg/m ³)
固化処理条件の選定	・最適固化処理条件	上記試験、評価 の総合評価	

表-4 物性評価試験実施内容

寸法 mm

項目	評価項目	試験条件等		
密度	寸法、重量測定	固化体形状・寸法 ペレット固化 均一固化 水熱固化	材令 28日後 28日後 —	寸法 mm
圧縮強度	一軸圧縮強度測定	固化体形状・寸法、材令 測定方法 均一固化 ペレット化 水熱固化	同上 ・JIS R 5201に準拠 ・材料試験機による 破壊強度測定	
熱特性	示差熱分析(DTA) 熱重量分析(TG)	温度範囲 室温～800°C 圧縮強度試験体の破片を使用 (乳鉢で粉碎)		
耐水性	外観、密度、圧縮強度 の変化測定 浸出率測定(IAEA指 針)を参考に実施	形状・寸法 ペレット固化 均一固化 水熱固化 試験条件 浸漬水 温 度 期 間	材令 28日後 28日後 — イオン交換水 25±5°C 4週間	
浸出率	IAEA指針に準拠した浸 出率の測定	形状・寸法、材令、試験条件 (Naを含む模擬廃棄物について実施)	同上	
耐放射線性	Co-60 γ線照射 外観、密度、圧縮強度 の変化測定	10 ⁶ , 10 ⁷ , 10 ⁸ rad 固化体形状・寸法 ペレット固化 均一固化 水熱固化	同上 28日後 28日後 —	

ペレット寸法 耐水性、浸出率のみ22φ×22H
他は15φ×15

2.1.3 含塩素廃液処理試験

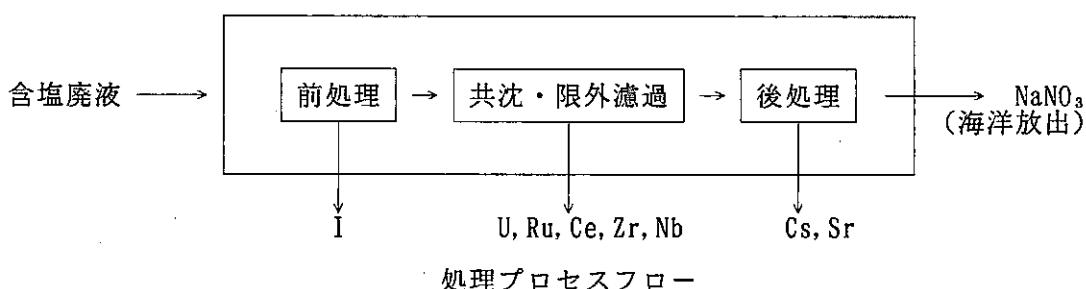
(1) 目的及び概要

再処理工場から発生する多量の硝酸塩分を含む低レベル濃縮廃液の処理技術として廃液中から放射性物質を分離除去し残る硝酸塩分を含む廃液を非放射性排水として海洋放出することにより、濃縮廃液等の固化が大幅に低減できる処理技術の開発を目的として、模擬廃液によるコールド試験を行った。

(2) 方法及び結果

含塩廃液中に含まれる各種の塩類、放射性物質の性質を考慮し、廃液中の放射性物質だけを分離除去する処理プロセスを選定した。

下図に処理プロセスフローを示す。



① 前処理試験

前処理では、活性炭によるヨウ素の吸着除去と限外濾過によるウランの除去に関する基本条件の把握を行った。

i ヨウ素除去に関する基本条件の把握

① ヨウ素の酸化条件の検討

含塩廃液中の放射性ヨウ素のイオン形態は不明であるが、ここでは I^- イオンとして存在していると想定した。このヨウ素を活性炭により除去するためには、予め I^- を亜硝酸ソーダを用いて I_2 に酸化する必要があり NaNO_2 を酸化剤として選定し、模擬廃液を用いて酸化時の pH 条件及び NaNO_2 添加量をパラメータとして酸化の条件を検討した。

その結果、 NaNO_2 必要量は表-1に示すように I^- に対して $1/2 \sim 5$ 倍当量の範囲で、 I_2 の生成に関して影響は現れなかった。むしろ、当量比が大きくなると I_2 生成量が僅かに減少する傾向が見られた。

酸化時の pH は表-2 に示すように pH 1.0~0.5 の範囲で一定の値を示し、酸化時の pH は 1.0~0.5 とするのが好ましいことが分かった。

模擬廃液の酸化結果は、表-3 に示すように、 NaNO_3 400 g/l の溶液に比べて低い収率を示した。これは、アルカリ性の溶液を pH=1.0 にする過程で多量の CO_2 と NO_x が発生し、そのガスに同伴して I_2 が揮散するためと考えられた。

④ ヨウ素の吸着条件の検討

上記試験より検討された条件により模擬液中の I^- イオンを酸化した後、活性炭カラムに通液し、流出液中のヨウ素濃度及び流出液量から平衡吸着量を求めた。又、ヨウ素濃度の異なる模擬液の試験結果から吸着等温線図を作成し、含塩廃液のヨウ素濃度における吸着量を推定した。

その結果、関係式は、 $\ln [Y (\text{mol l/g})] = \ln 0.514 + 0.4434 \ln [X (\text{ppm})]$ となった。

この式を用いて、 $\text{I}-129$ の放射能濃度を $2.6 \times 10^{-2} \text{ Ci/m}^3$ 、廃液発生量を $300 \text{ m}^3/\text{年}$ 、安全係数を 100% と仮定すると、活性炭の年間必要量は約 75 kg と推定された。

⑤ 脱炭酸及びウラン除去の基本条件の把握

含塩廃液中に存在するウランを水酸化鉄等との共沈により除去しようとする場合、炭酸イオンが存在すると溶解度の高い塩基性炭酸ウラニル錯化合物を形成し、除去が困難になる。そのため、炭酸イオンを除去する処理が必要になる。

そこで、含塩廃液の pH 調整、加熱時の脱炭酸処理を行い、脱炭酸及びウラン除去の基本条件を把握する。また、廃液中には NaNO_3 、 NaCO_3 の他に Ca 、 Mg の硝酸塩、消泡剤などが混入していくことが考えられるため、これら夾雑物の限外濾過におけるウラン除去の影響についても検討することとした。

以下に試験結果を示す。

(a) 脱炭酸処理の効果

ウラン濃度を 560 ppm、共沈剤濃度を 500 ppm になるように調整して脱炭酸処理の効果を調べた結果、pH=2 として加熱しない場合、濾液のウラン濃度は 183 ppm であったが、試験液のち pH を 2 として、加熱温度 60~70°C、加熱時間 1 h の処理をすることによって濾液のウラン濃度は 13 ppm になり加熱処

理の効果は認められた。

(b) pHと濾液ウラン濃度の関係

試験ではpH=10を基準とし、より中性側であるpH=8を比較の対象として選んだ。

放射性廃液中のウランだけを除く場合は、pHを10にするより、pHを8に調整する方が好ましいとも考えられるが、廃液にウランの他に除染すべき核種が存在する場合は、一般的にはpHを10~12に高く設定する方が、金属水酸化物の溶解度は低下し、また操作の上でpH調整しやすい。

従って、低レベル濃縮廃液中にはウランの他にセリウムやジルコニウム、ルテニウムなど除染すべき核種が存在するので共沈・限外濾過のpH条件は10とした。

(c) Fe添加量と濾液のウラン濃度の関係

図-1に示すように濾液のウラン濃度は、共沈剤濃度の増加に伴って減少するが、共沈剤濃度が500ppm付近では、共沈剤濃度増加の濾液ウラン濃度への効果は一定に近づいていると考えられ、実際上の見地からその使用濃度は100~500ppm付近が適当であると考え100ppmとした。

又、図-2に示すようにウラン濃度45ppmの模擬廃液について、除染後のウラン濃度を2.4ppm (8×10^{-7} Ci/m³) 以下になるようにするには、Fe/Uの値を2.2以上にする必要があった。又、除染後のウラン濃度をさらに低い0.24ppm (8×10^{-8} Ci/m³) 以下にするためには、Fe/Uの値を150以下とする必要があった。

(d) Ca、Mg塩及び消泡剤のウラン除去への影響

ウランを含む試験液にNaNO₃、NaCO₃の他にさらにCa、Mg塩及び消泡剤を添加して濾過した濾液のウラン濃度からそれらの影響を調べた結果、Ca、Mg塩及び消泡剤を加えない試験液を濾過した濾液のウラン濃度とCaを300ppm、Mgを60ppm、消泡剤をウラン液1ℓに対して0.5mℓ添加した試験液を濾過した濾液のウラン濃度の値に大きな差はなかった。

従って、上記のCa、Mg塩濃度および消泡剤の添加量では、限外濾過におけるウラン除去に影響しないことが考えられた。

(e) 硝酸ナトリウムのウラン除去への影響

共沈・限外濾過によるウラン除去への硝酸ナトリウムの影響を調べた結果、

硝酸ナトリウム 40 g/l ～ 200 g/l の範囲では濾液中のウランに影響はないが、 400 g/l ではその影響がわずかに認められた。

② 限外濾過試験

難溶性の放射性物質を鉄等の重金属と共に沈する水酸化物として、限外濾過により除去することを計画し、その基本性能を把握するため処理物質の濃度、処理液のpHをパラメータにして、ジルコニウム、セリウム、ルテニウムの除去率を測定した。以下に試験結果を示す。

i ジルコニウム除去率

ジルコニウム $0.1\sim100\text{ ppm}$ を含む試験液に硝酸ナトリウムが $0\sim40\text{ g/l}$ 共存する場合、pHを $8\sim10$ に調整して限外濾過すれば検出下限値以下となった。

ii セリウムの除去率

セリウム 0.23 ppm の試験液に共沈剤を 100 ppm となるように添加してpH10で濾過すると 0.03 ppm 程度まで低下させることができた。

iii ルテニウムの除去率

ルテニウム濃度が $0.1\sim100\text{ ppm}$ の試験液をpH10にすれば濾液濃度を検出下限値以下に除去できる。

③ 後処理試験（イオン交換）

含塩廃液に含まれる放射性元素はイオンとして存在するため、活性炭吸着法及び共沈・限外濾過法により除去出来ないストロンチウムとセシウムは、無機イオン交換体を用いたイオン交換吸着法により除去するために必要な平衡吸着量と塩濃度の関係を把握するための試験を行った。

以下に試験結果を示す。

i セシウムの平衡吸着量と塩濃度の関係

セシウムの平衡吸着量はフェロシアン化金属系無機イオン交換体を用いる場合は塩濃度の影響を全く受けないという結果を得た。

ii ストロンチウムの平衡吸着量はチタン酸（PAN系）無機イオン交換体を用いる場合、塩濃度の影響を受けた。その程度は $\text{NaNO}_3 400\text{ g/l}$ の平衡吸着量に比べて $\text{NaNO}_3 400\text{ g/l}$ の平衡吸着量が約2倍になった。

iii ストロンチウムの吸着に対してカルシウムは大きな影響を与えるため、予め除去することが必要である。又、マグネシウムはカルシウム程大きな影響を与えたかった。

(3) 結論及び今後の方針

① 結論

i 吸着及びイオン交換

ヨウ素は I^- を亜硝酸で酸化して I_2 とし、 I_2 を活性炭で吸着し、除去できる見通しを得た。ストロンチウム及びセシウムは、チタン酸及びフェロシアン化金属塩でイオン交換吸着により、除去できる見通しを得た。

ii 共沈・限外濾過

ジルコニウム、ルテニウム、ニオブは水酸化鉄と共に沈させ、沈澱を限外濾過する事により、濾液中の濃度を化学分析の検出限度 ($\sim 10^{-2}$ ppm) 以下にまで下げる事ができた。

② 今後の方針

i 前処理試験

ヨウ素処理について、共存する亜硝酸ソーダを用いて I^- を I_2 に酸化処理後、ガス処理及び液処理について検討する。

ii 限外濾過試験

消泡剤、油分共存下の限外濾過性能、透水性能、濃縮倍率、及び耐久性を評価する。

iii 後処理試験

限外濾過工程で漏れるセリウムの除去について検討する。又、消泡剤、油分、Ca、Mg の吸着工程を明らかにする。

iv 素材の耐放射線性の評価

γ 線照射により、吸着剤、限外濾過モジュールの耐放射線性を評価する。

表-1 NaNO₂ 必要量の把握試験結果

試料 No.	添 加				検 出			
	I ⁻ (meq)	NO ₂ (mℓ)	NO ₂ (meq)	NO ₂ I ⁻	吸光度 -log T	I ₂ (ppm)	I ⁻ (meq)	収率 (%)
1	0.0323	0.5	0.0160	0.50	0.609	82.2	0.0324	100.3
2	0.0323	0.75	0.0239	0.74	0.598	80.6	0.0318	98.5
3	0.0323	1.0	0.0319	0.99	0.606	81.8	0.0322	99.7
4	0.0323	2.0	0.0638	1.98	0.587	79.2	0.0312	96.6
5	0.0323	3.0	0.0957	2.06	0.550	75.0	0.0296	91.6
6	0.0323	5.0	0.1595	4.94	0.559	75.4	0.0297	92.0

(meq) = 1/1000当量

表-2 酸化時のpH条件の把握試験結果

試料 No.	添 加			pH	検 出			
	I ⁻ (meq)	NO ₂ (mℓ)	NO ₂ (meq)		吸光度 -log T	I ₂ (ppm)	I ⁻ (meq)	収率 (%)
1	0.0323	0.0319	0.99	2.0	0.482	65.0	0.0256	79.3
2	0.0323	0.0319	0.99	1.0	0.633	85.4	0.0336	104.0
3	0.0323	0.0319	0.99	0.5	0.633	85.4	0.0336	104.0

表-3 化学組成の溶液での酸化試験結果

試 料	吸光度 -log T	I ₂ (mg)	収率 (%)
NaNO ₃ 400 (g / ℓ)	0.717	4.84	100
技術仕様模擬液	0.403	2.72	56.2

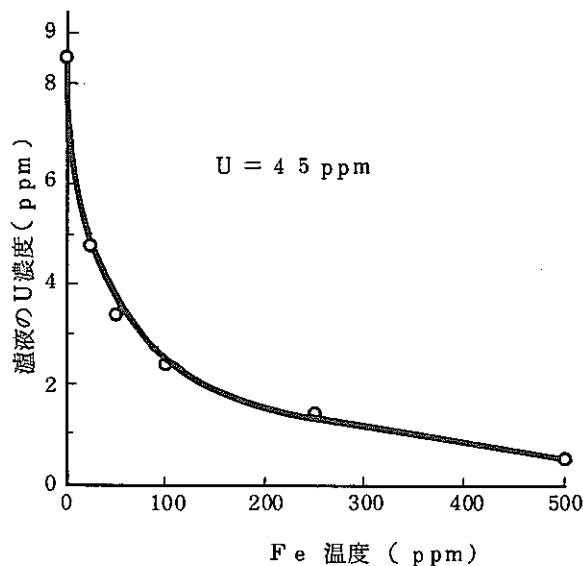


図-1 Fe 添加量と濁液ウラン濃度の関係

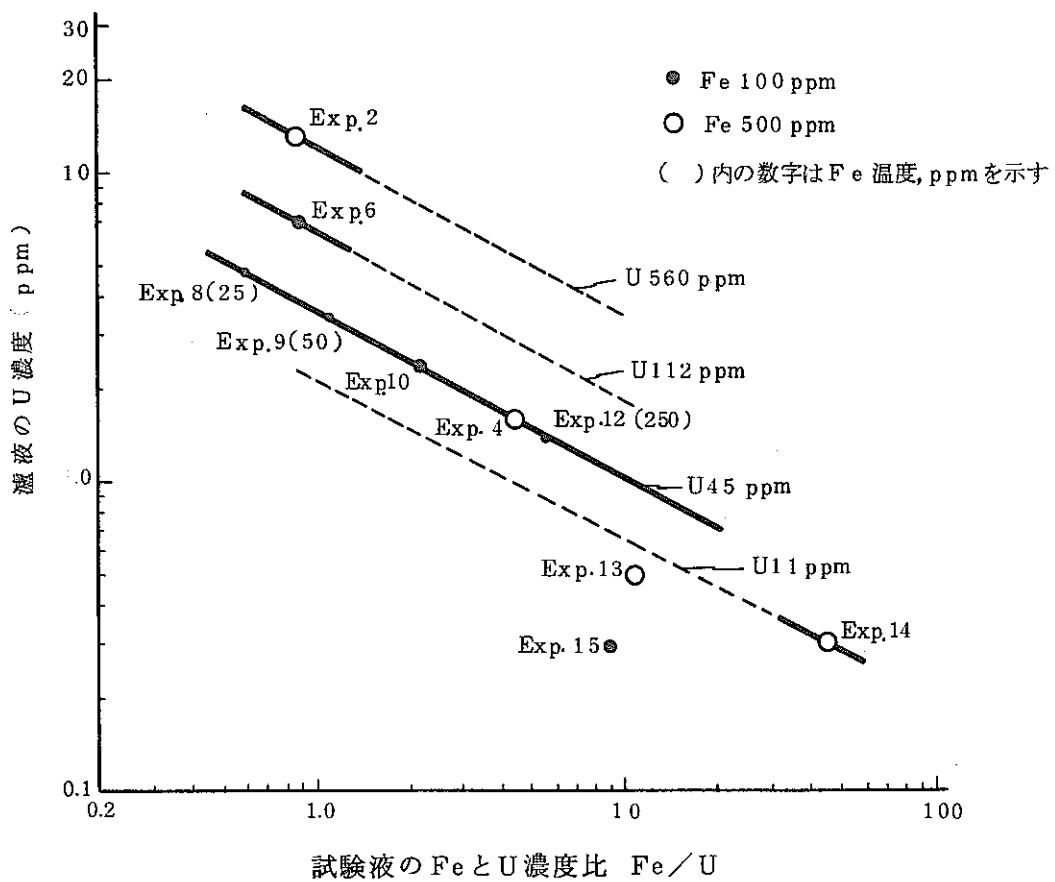


図-2 Fe / U と濁液ウラン濃度の関係

2.1.4 低レベル廃液乾燥粉体化処理試験

(1) 目的及び概要

再処理工場より発生する低レベル濃縮廃液及び化学スラッジを遠心薄膜蒸発機及び横型パドル乾燥機により蒸発・乾燥する際、廃液中に含まれる微量有機物の蒸発乾燥特性に及ぼす影響、蒸発乾燥時の安全性確認に関する基礎データの取得を目的として、乾燥粉体の物性測定、ペレット化試験、ペレットの物性試験等を行った。

(2) 方法及び結果

① 混入物 (TBP、n-ドデカン、硝酸塩等) の分配・分解挙動の把握

低レベル廃液中に含まれるTBP、n-ドデカン、硝酸塩等(以下混入物という。)の蒸気側ならびに乾燥残渣側への分配挙動及び蒸発・乾燥時における分解挙動について以下の試験を行い、混入物による蒸発・乾燥への影響及び混入物の挙動について検討した。

表-1に試験に使用した模擬廃棄物の仕様を示す。

i スクリーニング試験

5種類の廃液(pHの異なる3種(中性、酸性、アルカリ性)の濃縮廃液、化学スラッジ、除染廃液)の乾燥粉体に対して各々示差熱分析(TG-DSC、SC-DSC)を実施し、各廃液を熱分解させずに安全に乾燥できる温度を以下のように評価した。結果を表-2に示す。

- ① 中性濃縮廃液 250°C以下、② 酸性濃縮廃液 150°C以下
- ③ アルカリ性濃縮廃液 220°C以下、④ 化学スラッジ 290°C以下
- ⑤ 除染廃液 150°C以下

ii ピーカー試験

前述の5種類の廃液に対し、ピーカー試験装置により蒸発乾燥試験を実施し、発生ガスの測定及び試験後の乾燥粉体、凝縮液、洗気液の分析を行い、乾燥における混入物の分解、分配挙動を検討し、安全に乾燥できる温度を測定した。結果を表-3に示す。

図-1にピーカー試験装置概略図を示す。

iii 小型機試験

中性濃縮廃液と化学スラッジに関して、遠心薄膜蒸発機と横型パドル乾燥機による二段乾燥試験を実施し、蒸発・乾燥に対して混入物が影響を及ぼさないこと

を確認した。又、混入物の挙動も前述のビーカ試験と同様の傾向を確認し、乾燥温度を以下のように評価した。

Ⓐ 中性濃度廃液 160°C以下

Ⓑ 化学スラッジ 160°C以下

図-2に小型機試験装置概略図を示す。

② 乾燥粉体の物性特性の把握

i 乾燥粉体の物性測定

乾燥粉体の物理的性質をパウダーテスター（細川ミクロン㈱）を使用して流動性指数（架橋防止対策の要否）及び噴流性指数（シール対策の要否）を求めた結果、中性濃縮廃液及び化学スラッジの乾燥粉体は装置及び粉体取扱い設備において架橋防止対策とシール対策が必要であった。

③ ペレットの物性特性の把握

乾燥粉体を粉末成形プレスにより充てん深さを一定で成形圧力をパラメータとしてペレットを作成し圧壊強度及び密度を測定しペレット化条件を検討した結果、混入物の影響も無く成形圧力 3 ton/cm²が適していた。

④ ペレットの長期保管時の物性特性の把握

i 耐放射線性試験

ペレットが長期保管中に受ける放射線による劣化を評価するために⁶⁰C_Oによるγ線照射を行い、照射前後の重量変化及び圧壊強度変化を測定した結果、照射前後での外観、重量及び圧壊強度はほとんど変化せず、γ線によるペレットの劣化はほとんどなかった。以下に⁶⁰C_O照射条件を示す。

線量 [R]	線量率 [R/Hr]	照射時間 [Hr]
10 ⁶	1 × 10 ⁶	1
10 ⁷	1 × 10 ⁶	10
10 ⁸	1 × 10 ⁶	100

ii 耐候性試験

ペレットの長期保管中の挙動を把握するため耐候性試験機を使用し夏期（温度30°C、湿度70%）、冬期（温度5°C、湿度30%）を設定して1サイクルを3時間として加速し、ペレットの重量、圧壊強度及び外観の変化を測定した結果、中性

濃縮廃液の場合、吸湿により圧壊強度が低下し56サイクルで潮解が顕著となった。

一方、化学スラッジの場合、中性濃度廃棄の場合よりも吸湿の度合いは大きいが、圧壊強度の低下は少なく、88サイクル後も 230kg/cm^2 の圧壊強度となった。試験結果を図-3に示す。

iii 潮解性試験

ペレットの長期保管条件を検討するため、一定湿度条件に設定したデシケータ中にペレットを静置し、ペレットの重量、圧壊強度の測定及び外観を観察した結果、全体的には NaNO_3 及び化学スラッジのペレットは吸湿の重量増加により圧壊強度は減少する傾向となった。試験結果を図-4, 5に示す。又、以下に湿度条件及び湿度保持条件を示す。

相対湿度 %	湿度保持条件 at 20°C	
	(湿度発生源)	
100	水	
70	NaNO_3 飽和水	
50	KNO_3 飽和水	
0	シリカゲル	

iv ペレットの保管条件の検討

ペレットの長期保管条件を耐候性試験及び潮解性試験から検討した結果、湿度50%以下で急激な温湿度変化がないことが好ましいと判断された。

(3) 結論及び今後の方針

① 結論

i 2段乾燥における混入物の気相、液相の分配挙動については、低レベル濃縮廃液の混入物であるTBPは蒸発して凝縮水側へ移行し、その他の成分は全量乾燥粉体中に残留した。

又、化学スラッジ及び除染廃液中の混入物は全量乾燥粉体中に残留した。

ii 2段乾燥において、加熱温度130~200°Cの範囲では低レベル濃縮廃液（模擬廃液）からは顕著なガス発生はなかった。

iii 160°Cでの2段乾燥試験で含水率2%以下の粉体を得られることができた。

iv 耐候性、潮解性試験の結果からペレットの保管条件は、湿度50%以下で急激な

温湿度変化がないことが必要である。

v ^{60}Co の γ 線照射を 10^8R で 100 時間照射してもペレットの外観、重量及び圧壊強度はほとんど変化しなかった。

② 今後の方針

実廃液を用いて蒸発乾燥に対する影響及び除染係数を確認するために、実廃液によるホット試験等を行い必要がある。

表-1 模擬廃棄物の仕様

廃液		組	成
	NaNO ₃	400	g/ℓ
中性濃縮廃液	TBP	1,000	ppm
	金属イオン	0.74	g/ℓ (Ca、Si、Fe、Mg、Ni、K)
	NaNO ₃	400	g/ℓ、HNO ₃ 1.5 N
酸性濃縮廃液	TBP	1,000	ppm
	金属イオン	0.74	g/ℓ *
アルカリ性濃縮廃液	NaNO ₃	190	g/ℓ、NaNO ₂ 30 g/ℓ
	Na ₂ CO ₃	140	g/ℓ、NaOH 40 g/ℓ
	TBP	1,000	ppm
	金属イオン	0.74	g/ℓ *
	CaCO ₃ / Fe(OH) ₃ / NaNO ₃ (=3/3/2)	: 150	g/ℓ
化学スラッジ	砂	~ 1 W/O	
	活性炭	~ 1 W/O	
	Turco 4502	: 120 g/ℓ + Turco 4521	: 30 g/ℓ
	↓		
除染廃液	ホルマリン添加		
	↓		
	中和		

- * 金属イオン
- 300 mg/ℓ as Ca とする。
 - 240 mg/ℓ as Si
 - 130 mg/ℓ as Fe
 - 60 mg/ℓ as Mg
 - 8 mg/ℓ as Ni
 - 2 mg/ℓ as K

表-2 示差走査熱量測定結果

模擬廃棄物	T G - D S C		S C - D S C		乾燥温度 〔℃以下〕
	ピーク温度 〔℃〕	熱容量 発熱(+) (cal/g) 吸熱(-) (cal/g)	ピーク温度 〔℃〕	熱容量 発熱(+) (cal/g) 吸熱(-) (cal/g)	
中性濃縮廃液	277	-2.3	277	-	
乾燥粉体	312	-43.0	309 474	-30.9 +	250
酸性濃縮廃液	277	-1.9	273	-16.1	150*
乾燥粉体	310	-36.2			
アルカリ性濃縮 廃液乾燥粉体	244 285	-2.4 -11.2	特に無い。		220
化学スラッジ	296	-1.7	277	-4.9	290
乾燥粉体	303	-3.1			
除染廃液	229	-77.5	150 255	-4.7 -119.6	150
乾燥粉体	335	+90.6	373 444	-0.3 -6.7	

* 最大反応熱を与える組成の場合

表-3 ビ一力試験結果

模擬廃液	発生ガス	混入物の挙動	乾燥温度
中性濃縮廃液	なし	・ TBPは蒸発して凝縮水側へ移行する。	160 ℃以下
酸性濃縮廃液	NO ₂ 、NO	・ その他の成分はほぼ全量乾燥粉体中に残留する。	200 ℃以下
アルカリ性濃縮廃液	なし	量乾燥粉体中に残留する。	160 ℃以下
化学スラッジ	(CO ₂)	・ 全成分ともほぼ全量乾燥粉体中に残留する。	160 ℃以下
除染廃液	CO ₂	同上	160 ℃以下

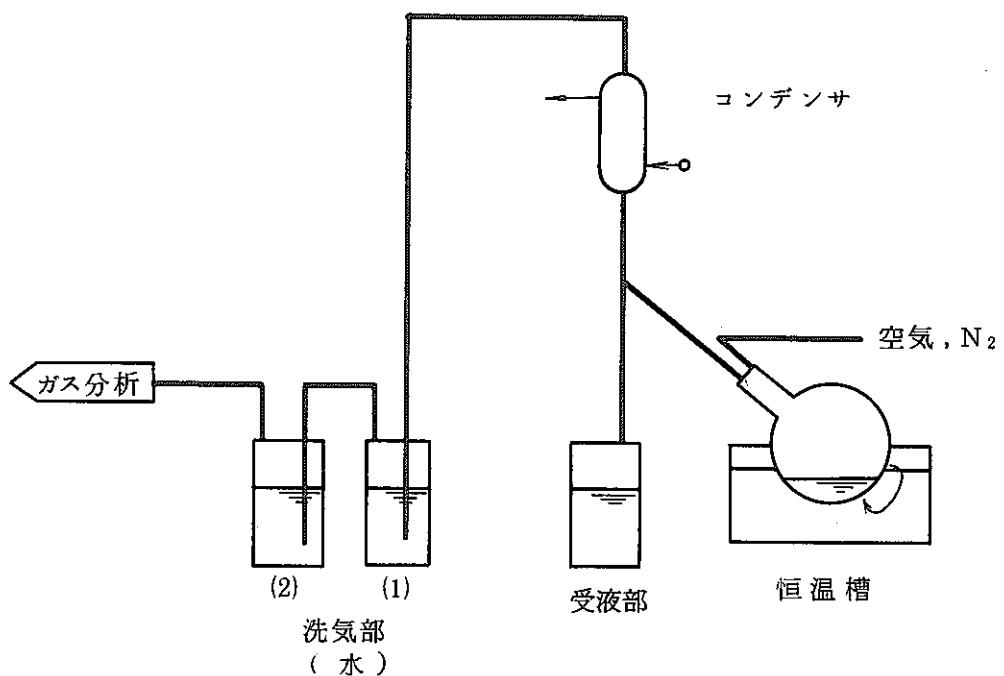


図 - 1 ビーカー試験装置

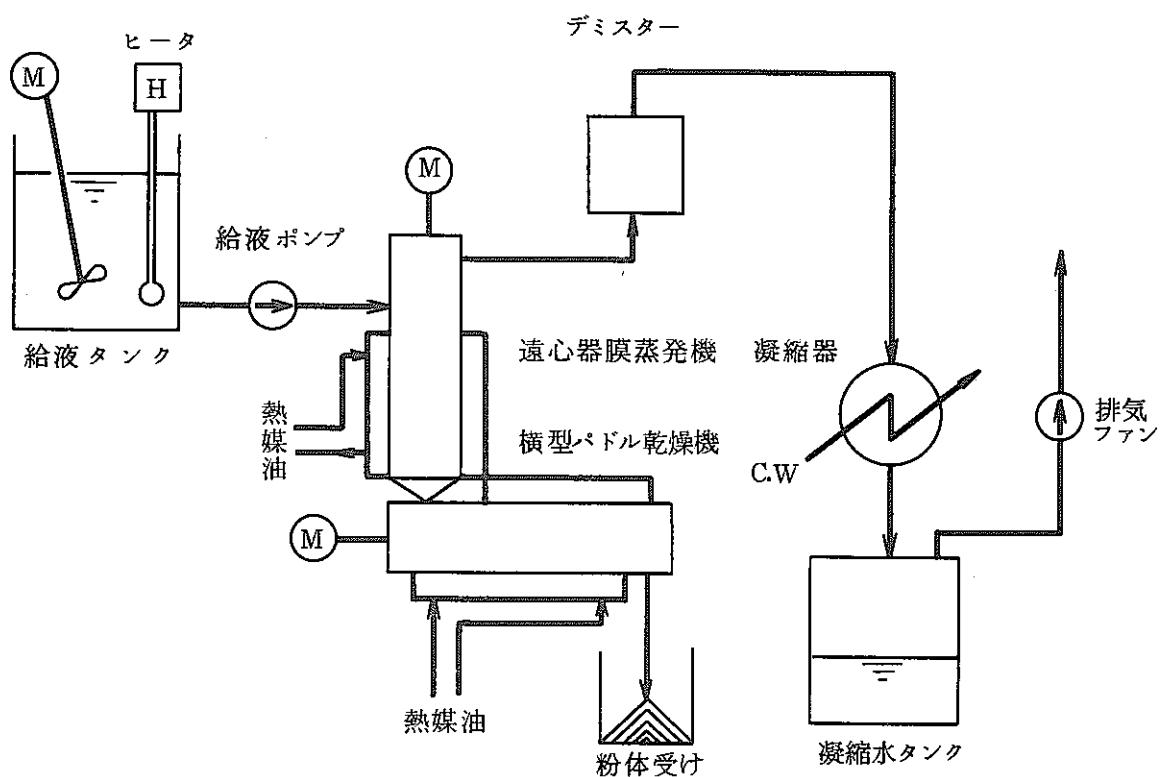


図 - 2 小型機試験装置

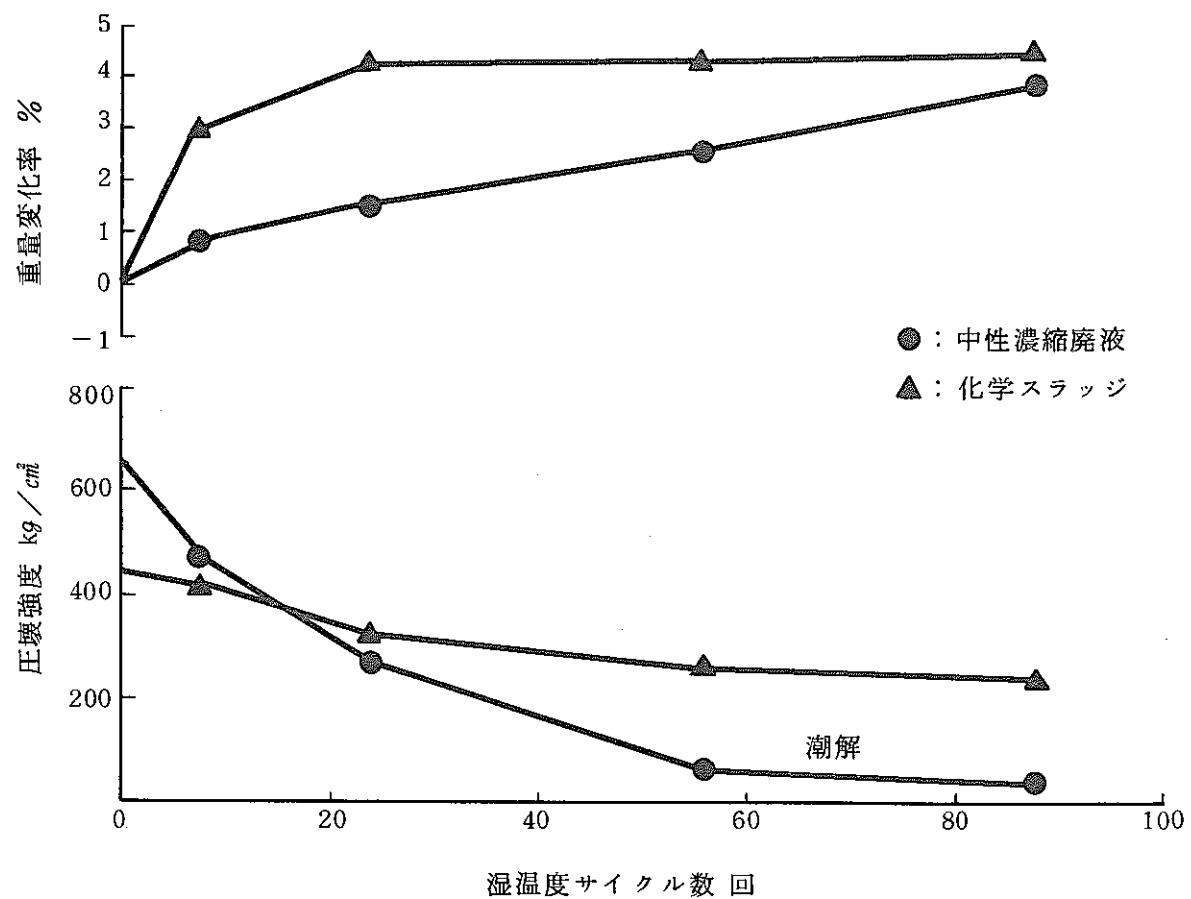


図-3 耐候性試験結果

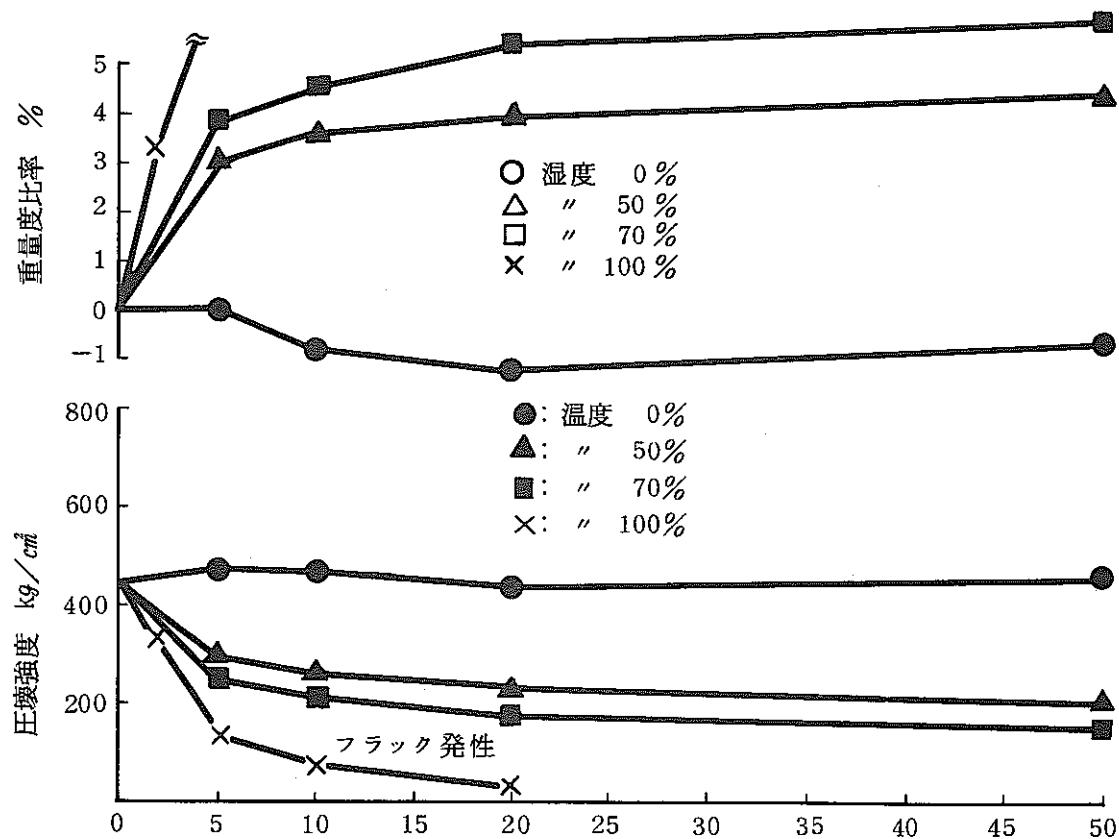
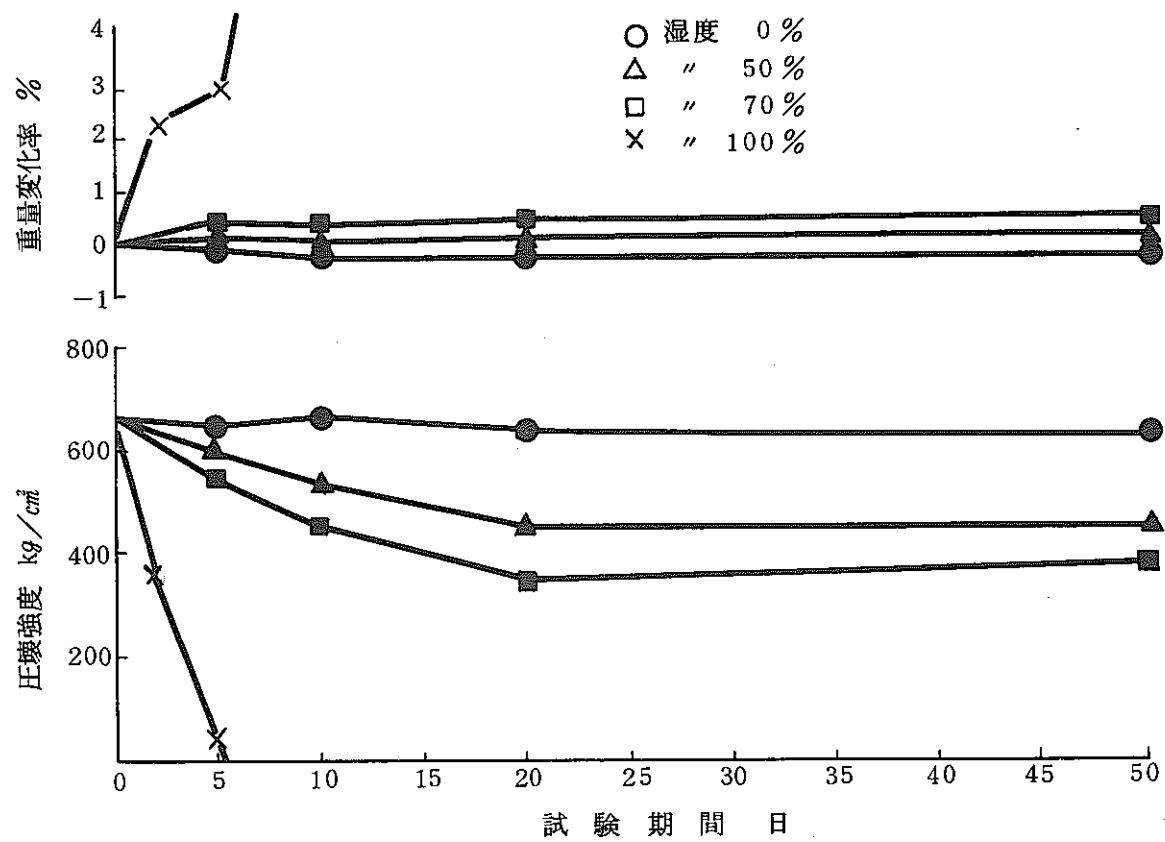


図-5 潮解性試験結果（化学スラッジ）

2.2 区分管理技術開発

2.2.1 除染試験

(1) 目的及び概要

T R U 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、前年度に引き続きホット除染試験を行い除染係数の測定及び試料の均一除染特性等の確認を行った。

(2) 方法及び結果

表-1に示す試験条件にて、バレル電解研磨ホット試験を行い除染前後の平均汚染密度をZmS法による α 線測定機を用い、試料50枚について1試料当たり片面のトータルアルファ線量の測定を行った。又、同試料を非壊測定法のパッシブガンマ法により ^{241}Am からのアルファ線量の測定を行った。一方、試料表面の汚染状態をSEM撮影及び α トラック撮影を行い表面観察を行った。

その結果、以下のことがわかった。

- ① 15分間の電解研磨（重量換算より平均研磨厚2 μm ）により平均で初期汚染密度 $0.43\text{ }\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ から $3.3 \times 10^{-4}\text{ }\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ となり、除染係数は3であった。
- ② 試料50枚の除染後の汚染密度のバラツキは一桁の範囲であった。
- ③ α トラック撮影を除染後の試料7枚について行った結果、表面汚染の大部分が除染されているのがわかったが、2～3のアルファスポットが残っていた。
- ④ 除染後の試料の表面汚染密度を ^{241}Am で評価すると、 $7.05 \times 10^{-4}\text{ }\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ であった。これはトータルアルファによる評価の1/100となった。

これらの除染試験結果を表-2及び図-1に示す。又、除染前後の汚染量の分布を図-2に示す。

(3) 結論及び今後の方針

① 結論

- i 15分間のバレル電解研磨ホット試験を行った結果、除染係数は3であった。
- ii 除染後の汚染密度のバラツキは除染前と比べて一桁の範囲であった。

- iii α トラック撮影の結果、表面汚染の大部分が除染されているのがわかった。
- iv パッシブガンマ法による ^{241}Am のアルファ線量の測定の結果、トータルアルファによるアルファ線量と比較すると1/100程度の低い値となった。

(2) 今後の方針

現在実施中の除染試験を続行し、表面汚染の検出限界以下をねらう除染条件を求める。一方、実廃棄物を対象とした除染試験を行い除染効果を確認する計画である。

表-1 試験条件

装 置		小型バレル電解試験装置
材 質		SUS304
寸 法		3 cm□ (t 2 mm)
表面仕上げ		#300 バフ仕上、 2B仕上、 No.1仕上を電解研磨したもの
試 料	数 量	100枚 (約1.5 kg)
作成条件	汚 染 方 法	グローブボックス床に試料をこすりつ ける。
	初期汚染濃度	約 27.4 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ [Total α]
電解条件	電 解 液	5 V/o H ₂ SO ₄ , 10 ℥
	電 流 密 度	2.5 A/dm ²
試 料 測 定 方 法		ZnS法によるTotal α 測定
試 料 表 面 觀 察		α トラック撮影, SEM撮影

表-2 除染試験結果

	除染時間 (積算)	汚染密度 (トータル α) ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$)	汚染密度 (P/ γ . 241 Am) ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$)
初期汚染密度	0	0.43	—
1回除染後	15分	3.3×10^{-4}	7.05×10^{-4}

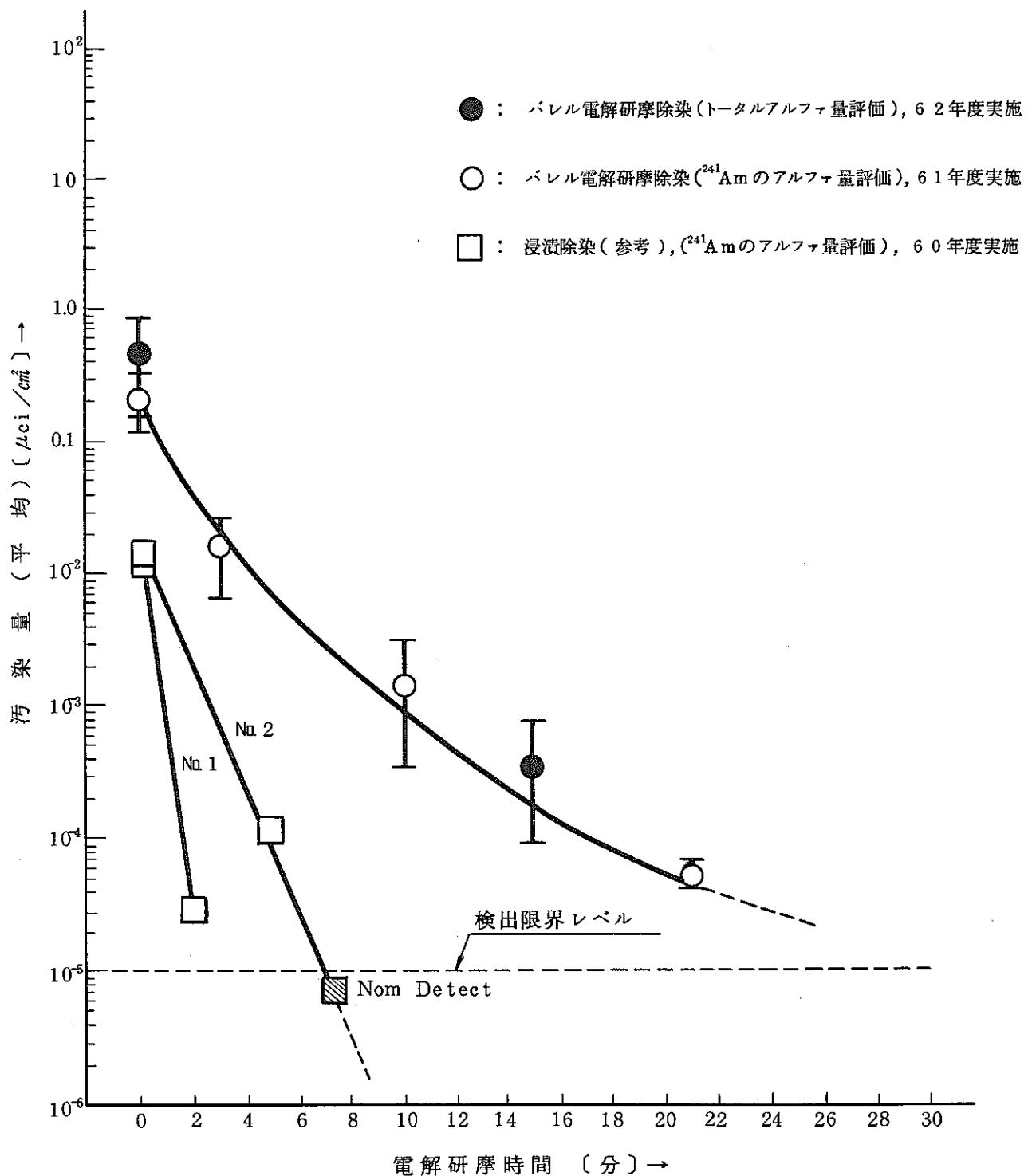


図-1 バレル電解研磨除染試験結果

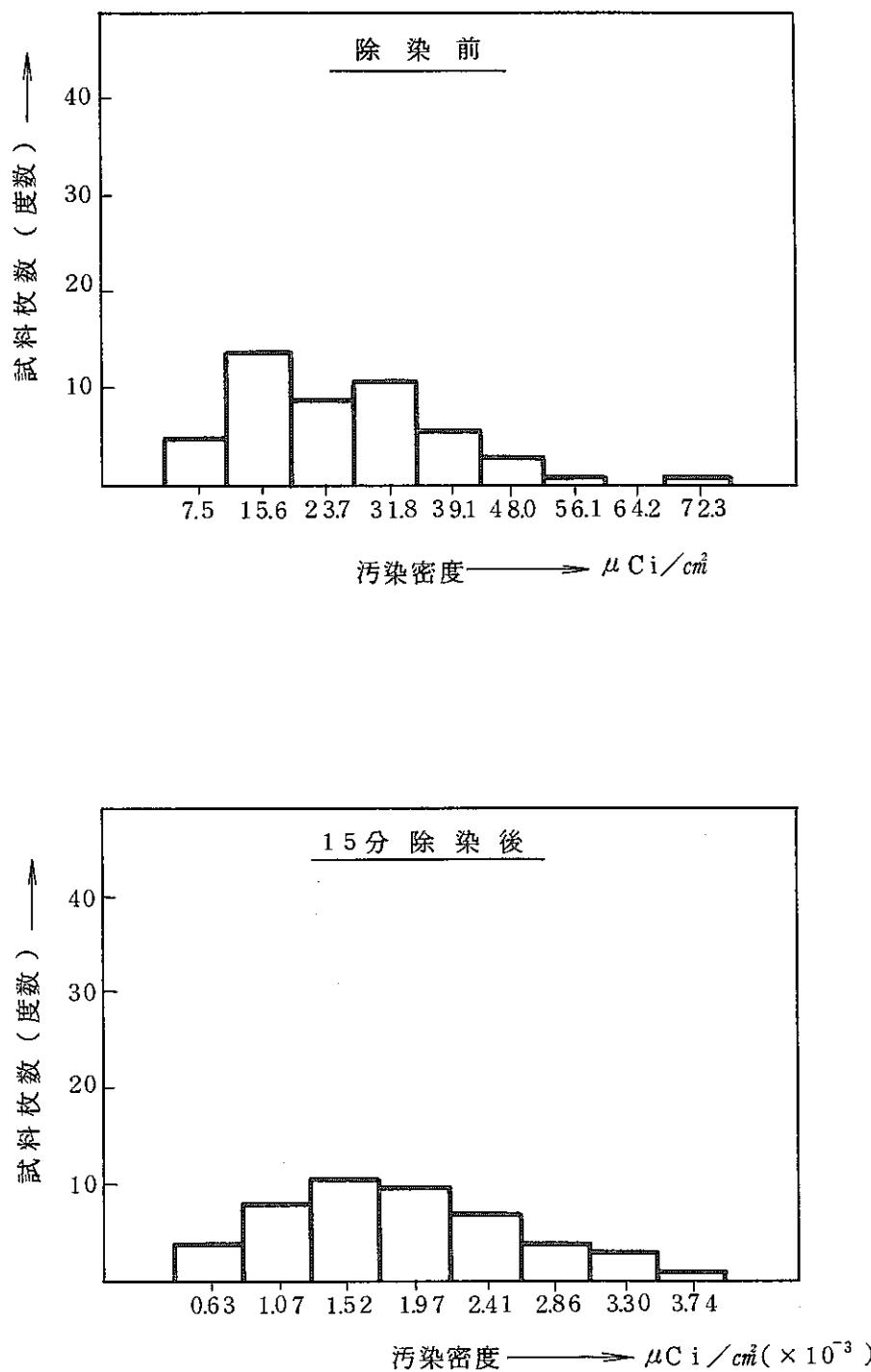


図-2 試料の汚染量（汚染密度）の分布

2.2.2 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量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。

本年度は可燃性廃棄物について焼却前廃棄物及び焼却後の焼却灰を使って、焼却前後における ^{239}Pu に注目して非破壊測定手法のパッシブガンマ法による測定評価を行い、得られるデータからパッシブガンマ法の妥当性を確認する試験を行った。

(2) 方法及び結果

試験はプルトニウム燃料部第一開発室の可燃性廃棄物焼却炉を使用した。この焼却炉は可燃性廃棄物ドラム缶（以下ドラム缶と略す）8本を1バッチとして焼却することにより、焼却灰として3ℓポリビン×3本相当が発生している。

この焼却前のドラム缶8本と焼却して得られる焼却灰（3ℓポリビン×3本）について、各々パッシブガンマ法により ^{239}Pu を定量することとし、合計8バッチの焼却及び ^{239}Pu の定量を行った。図-1に測定フローを示す。

^{239}Pu の定量評価は焼却前可燃性廃棄物中の ^{239}Pu 量を100%とした場合、焼却物に対応する焼却灰中の ^{239}Pu 量を各バッチごとに求めた。

測定結果を表-1、図-2に示す。これより、8バッチの合計は焼却前可燃性廃棄物中の ^{239}Pu 量100%に対して焼却灰中の ^{239}Pu 量は95%となり、物質収支としてほぼ一致することを確認した。

(3) 結論及び今後の方針

① 結論

- i 廃棄物の焼却前後の ^{239}Pu 量は各バッチ単位では差が認められるが、 ^{239}Pu 総量の物質収支はほぼ一致することを確認した。
- ii 焼却前のドラム缶中の ^{239}Pu 測定において、検出限界（30mg）以下として評価しても、焼却前後の ^{239}Pu 量の物質収支に影響は与えなかった。
- iii これら結果より、廃棄物の焼却前後の ^{239}Pu 量の物質収支がパッシブガンマ法の測定誤差範囲内（±20%以内）であることからパッシブガンマ法の測定手法の妥当性を認めることができた。

② 今後の方針

今後はプルトニウム同位体以外の他同位体を用いて、同定方法についての検討を進める予定である。

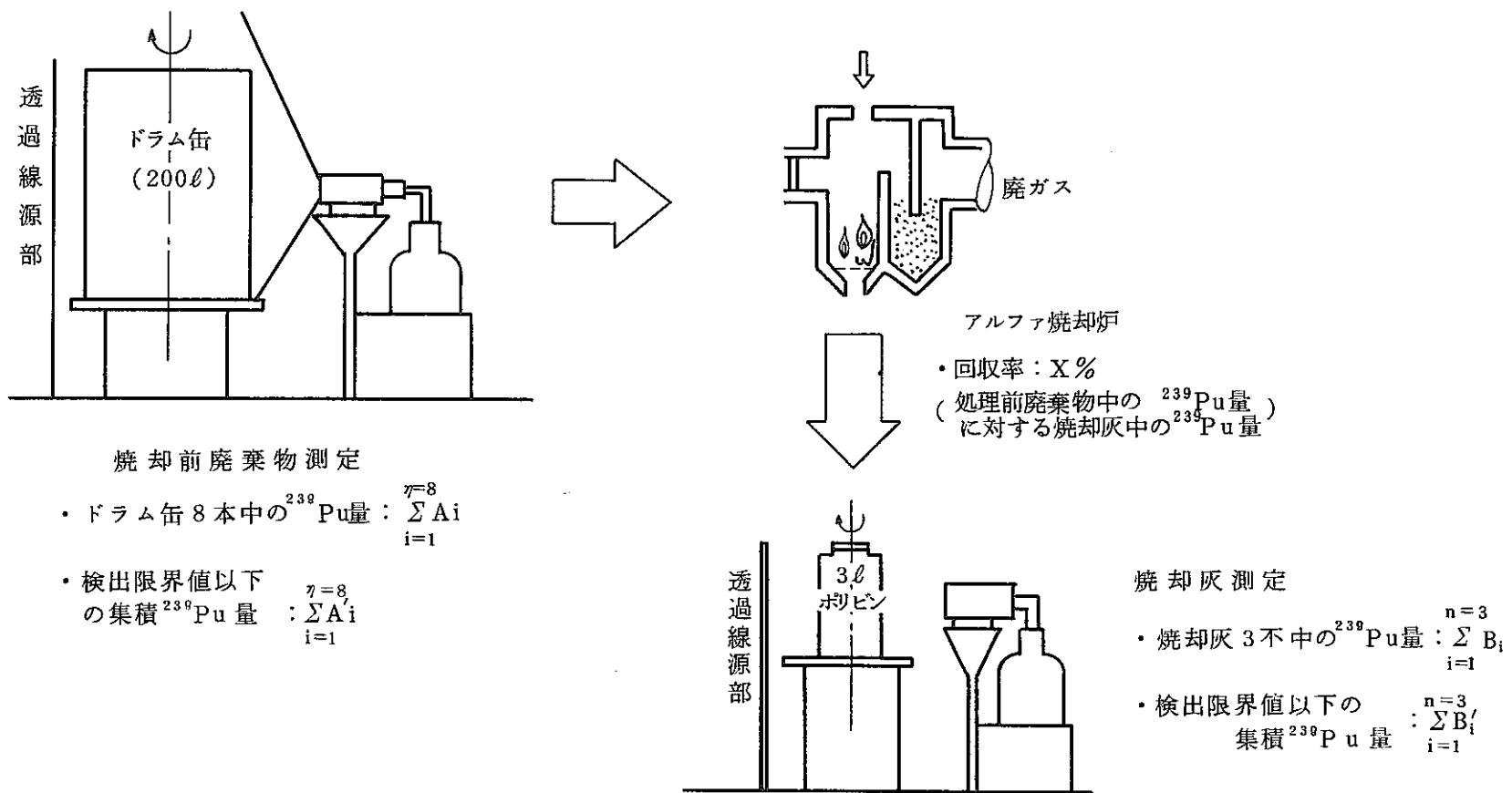
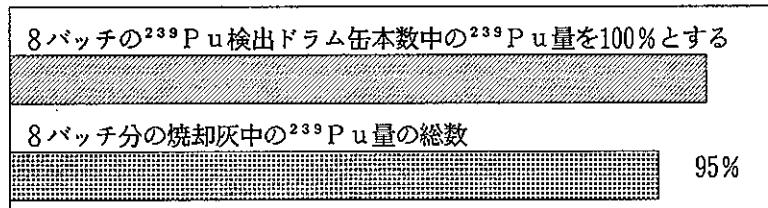
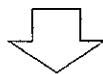
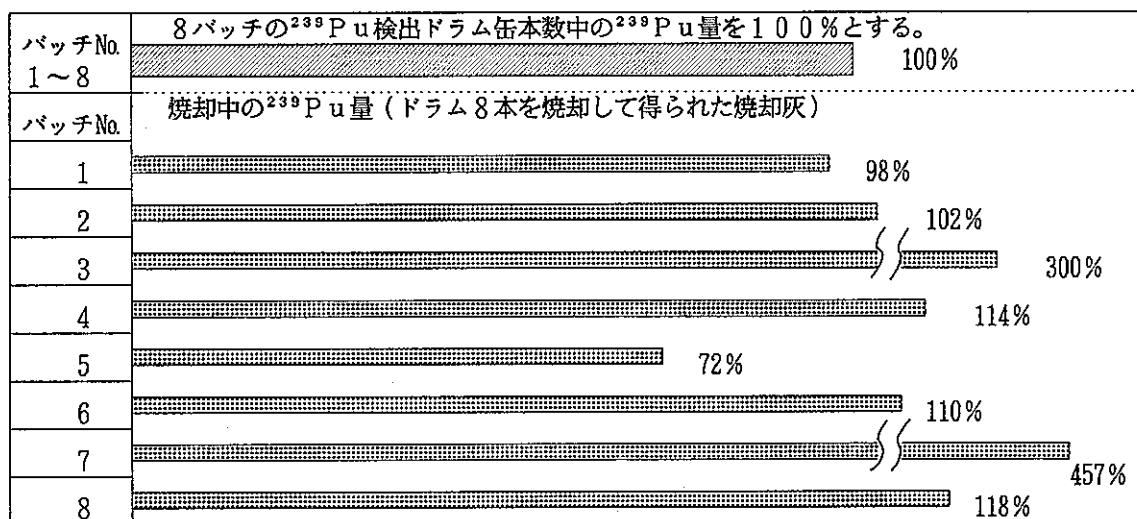
図-1 廃棄物焼却前後の ^{239}Pu 重量測定フロー

表-1 各バッチ当たりの焼却前後の ^{239}Pu 量

項目	バッチNo.	1	2	3	4	5	6	7	8	合計
^{239}Pu 検出 ドラム缶本数		5	3	1	5	8	5	2	7	36 (本)
^{239}Pu 検出 限界以下 ドラム缶本数		3	5	7	3	0	3	6	1	28 (本)
合 計		8	8	8	8	8	8	8	8	64 (本)

図-2 焼却前後の ^{239}Pu 量

2.3 処分技術開発

2.3.1 固化体評価試験 —— 処分技術開発試験設備の新設 ——

(1) 目的及び概要

高レベルガラス固化体及び、プルトニウム廃棄物固化体（人工鉱物）についての地層処分時における、長期安定性を評価するため、浸出試験等の固化体評価試験を実施している。これらの評価に際して、長半減期を持つTRU元素の挙動を試験するため、実核種を用いた浸出試験を行う「処分技術開発試験設備」を新設しており、本年度は、61年度に引き続き設備の製作設計・製作・据付及び施設検査等を実施した。

(2) 設備新設の概要

「処分技術開発試験設備」は実核種(PuO_2 など)を添加した固化体について一連の浸出試験を実施するものであり、グローブボックス等の中に主要機器を内装したものである。（表-1に試験フロー、表-2に設備の概要を示す。）

本施設はプルトニウム燃料第一開発室処分試験室(R-230)に新設した。（図-1に設備配置図を示す。）

62年度は、固化体製造設備、試料作成設備の製作設計及び製作・据付を実施し、既設の浸出試験設備と併せて、施設検査を受検した。又、高温浸出試験設備については、変更申請、設工提出の許認可手続き後、設備の製作設計・製作・据付・施設検査を実施した。（表-3に概略工程表を示す。）

(3) 今後の方針

「処分技術開発試験設備」の役割として各種固化体の浸出性能把握に際して実核種(Pu, U等)についてのデータ採取がある。よって、本設備における今後の試験計画の要点としては、以下のものをパラメータとした処分環境下浸出試験を実施し、コールド試験と併せて処分方策の策定に寄与させていく。

- ① 蒸留水
- ② 模擬(実)地下水
- ③ 容器材料共存
- ④ 緩衝材共存
- ⑤ 岩石共存
- ⑥ 溫度・時間・流速スケール
- ⑦ ①～⑥を任意に組み合せた試験

試料等の評価項目と主なものとしては、

- ① 比重測定
- ② 表面観察・分析（S E M等）
- ③ 重量減少量測定
- ④ 比放射能測定
- ⑤ 浸出液分析（I C P, A A S等）

を実施する。

表-1 処分技術開発試験設備試験フロー

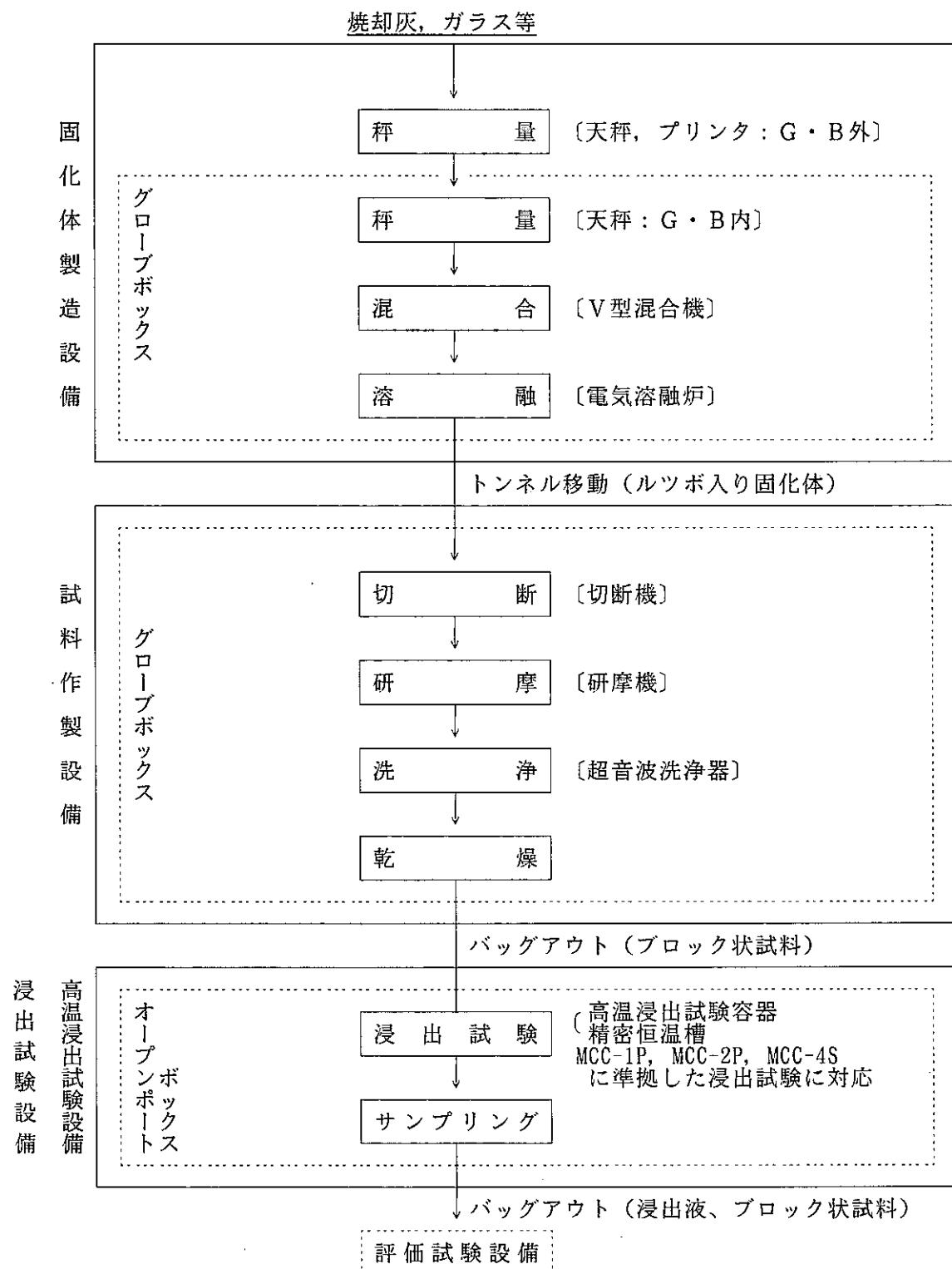


表-2 処分技術開発試験設備概要

設 備 名	設 備 概 要	試 験 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 1600°C 小型V型混合機 : 容量 150cc 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+るつぼ(100g/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+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 0.01mg PH/ORPメータ 比重計 デシケーター 洗浄槽	恒温槽・テフロン容器等を用いてMCC-IP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、表面積測定等を行う。
④高温浸出 試験設備	オープンポートボックス：3 m ³ 高温槽 : 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。

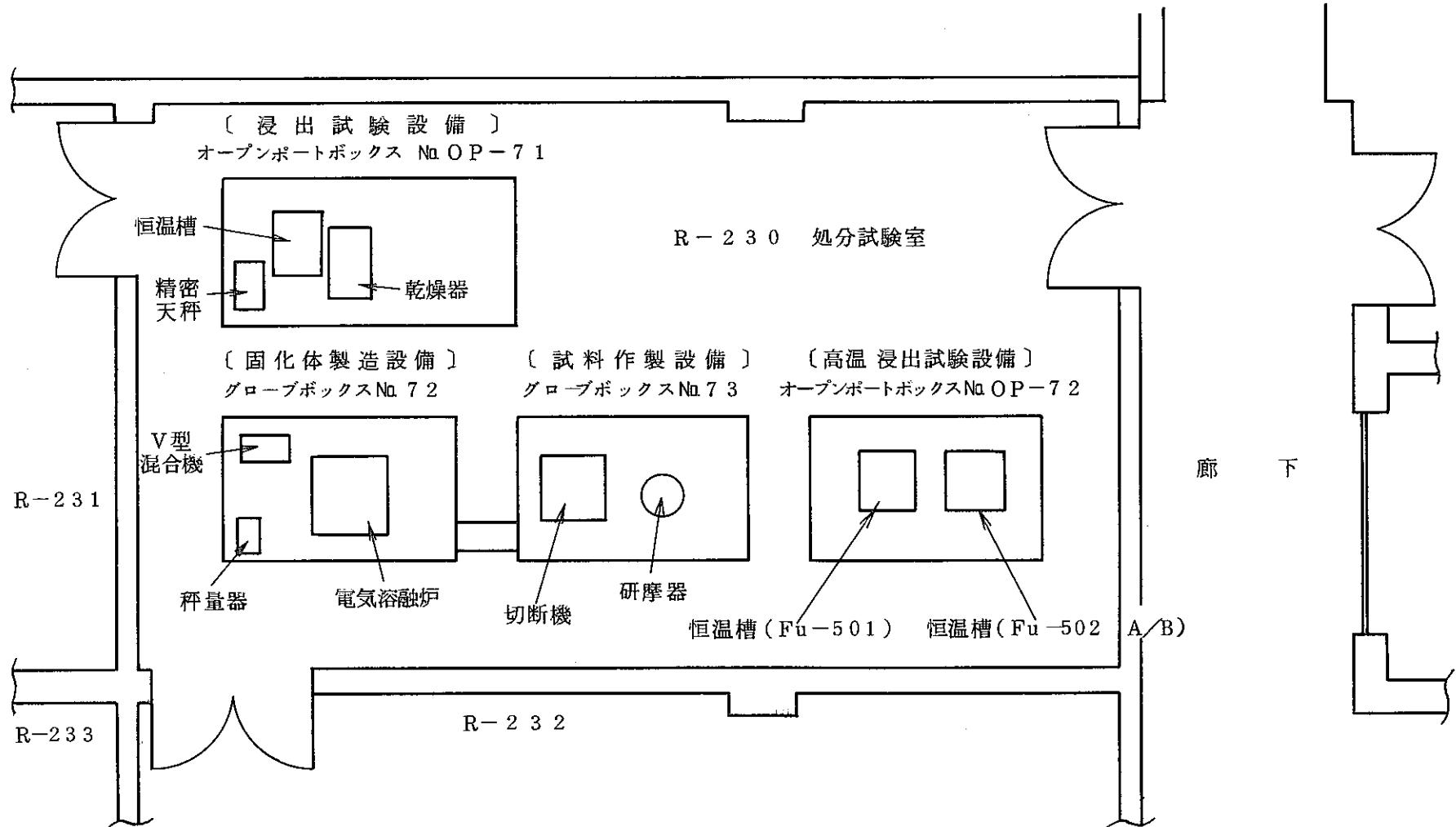


図-1 R-230室（処分試験室）設備配置図

表-3 処分技術開発試験設備 概略工程表

年月 設備名	年 月	6 1												6 2												6 3				
		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 試料製作設備														製作設計	製作・据付															
③ 浸出試験設備	※													製作設計	製作・据付															
		○	○	△△																										
		変更申請	許可	施工提出注																										
④ 高温浸出試験設備																														
		※ 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。												○	○	△△	△△	□	□	□										
		変更申請	許可	施工提出注																										

2.3.2 緩衝材中のTRU核種挙動研究

(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。

本試験は前回の試験（緩衝材中のTRU核種挙動研究（I））で得られた知見等を基に、実際のTRU核種を用いて処分環境に近い条件下での拡散試験を実施し、その移行性を検討するとともに、緩衝材中でのプルトニウムの化学形態の推定及び処分環境条件下での核種拡散等を検討するため、O₂、CO₂の影響を把握するための雰囲気調整手法の開発の検討を行った。

(2) 方法及び結果

① 方法

i プルトニウム移行試験

プルトニウムの移行試験は半割にしたカラムを蒸留水で飽和させた後、少量のプルトニウム塩酸溶液をカラムの端面に添加し、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。

拡散に使用した拡散セルを図-1に示す。セルの内径は20mm、長さ40mmである。材質は本体が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てん密度は粉体の量により調整した。粉体への蒸留水への送入は、図-2に示すように下部のフランジのみを水中に浸漬して放置することにより、水飽和が充分行えることが明らかとなった。このため、この方法を今回の試験に使用する緩衝材への水飽和に用いた。

以上の様に調整した拡散セルをフード内に半年間と1年間を拡散時間に取り、恒温槽を60°Cに設定し恒温槽内に静置させた。

所定の拡散時間終了後（今回、報告するのは半年間拡散させたカラムの拡散係

数である。）、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。

ⓐ H型、Na型ベントナイトの密度効果

H型、Na型ベントナイトの密度変化(1.2~2.0 g/cm³)の拡散係数に与える影響を明らかにする。

ⓑ H型、Na型ベントナイトの石英混合効果

H型、Na型ベントナイトの石英混合量変化(30%, 50%, 70%)の拡散係数に与える影響を明らかにする。

ⓒ H型、Na型ベントナイトのイライト混合効果

H型、Na型ベントナイトのイライト混合による拡散係数への影響を明らかにする。

② 作業手順

試験全体フローを図-3に示す。

ⓐ プルトニウム溶液の調整

(i) 塩酸濃度を0.5Mの溶液に調整するため、蒸留水とINHClを(0.5mℓ, 0.4mℓ)入れフード内に搬入した。

(ii) プルトニウムの溶解液(原液)からマイクロシリンジで100μℓを分取し、上記塩酸濃度のペニシリンびんに入れた。

ⓑ ベントナイトへのプルトニウム溶液の添加

(i) 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、ⓐプルトニウムの調整で行った溶液30μℓをマイクロシリンジで分取しベントナイトの表面に滴下させた。

(ii) 滴下面がいくぶん乾燥してからカラムを閉じた。

ⓒ ベントナイトの切断

(i) 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。

(ii) 切断片は試料皿へ移した。

(iii) (i)、(ii)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れたベントナイトの面にZmS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ZmzS塗布面をA1箔で被い、更にA1箔の保護のため3mmの厚さのステンレス板で中央に直径25mmの穴が開いているものを取付けた。図-4に測定状態を示す。

⑤ 切断片の秤量

1mg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。

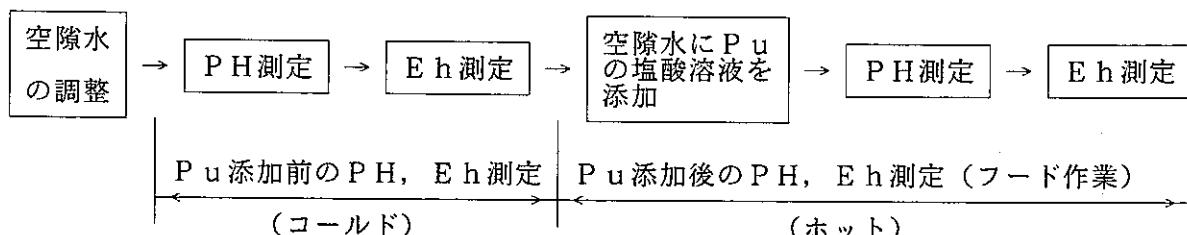
⑥ 切断片の乾燥

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。

ii Puの化学形態推定試験

試験は、緩衝材中のプルトニウム核種の化学形態を推定するため、模擬緩衝材空隙水を調整し、その中のpH、Eh及びPu溶液を添加した後のpH、Eh測定を行い、そのデータから文献調査による熱力学的データに基づく解析を行いプルトニウム核種の化学形態を推定するものとした。

Puの化学形態推定試験の作業フローを以下に示す。



① 調整

試料調整はNa型、H型ベントナイト及びベントナイト添加物の石英、イライトを固液比20で混合調整し、超遠心機にて上記混合物から空隙水を調整しこれ

を測定試料とした。空隙水の作製個数はNa型、H型、石英、イライト各々3個で計12個とした。

空隙水に添加したPu溶液は、硝酸プルトニウムをINHClで溶解させたものを使用した。空隙水への添加は、 $H_2O (0.5m\ell) + INHCl (0.4m\ell) +$ 塩化プルトニウム溶液 ($0.1m\ell$) にて調整しこれを用いた。

① PH、Eh測定

- ① 空隙水(12個)に塩化プルトニウム溶液を添加する前のPH、Ehを測定した。
- ② フード内に空隙水(12個)を搬入し、塩化プルトニウム溶液をマイクロシリジにて $150 \mu\ell$ を各空隙水に添加した。
- ③ 塩化プルトニウム溶液添加後、空隙水と塩化プルトニウム溶液の均一化を図るために、容器を振った。
- ④ 容器を3日間静置させた。
- ⑤ フード内にPH、Eh電極を搬入し、塩化プルトニウム溶液添加後のPH、Ehを測定した。

② 結果

i プルトニウム移行試験(拡散時間が半年間のもの)

① H型ベントナイトの密度効果

H型ベントナイトの充てん密度を高くするとPuの拡散は小さくなる傾向を示した。

② H型、Na型ベントナイトへの石英混合効果

H型、Na型ベントナイトの石英混合量の変化は、Puの拡散に大きな変化は見られなかった。

③ H型、Na型ベントナイトへのイライト混合効果

H型、Na型ベントナイトにイライトを混合させた場合のPuの拡散はH型よりもNa型の方が小さくなる傾向を示した。

ii プルトニウムの化学形態推定試験

表-4に空隙水の塩化プルトニウム溶液添加前後のPH、Ehのデータを示す。

(3) 結論及び今後の方針

① 結論

- i H型ベントナイト中の60°Cにおけるプルトニウムのみかけの拡散係数は $4 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{sec}$ であった。（密度2.0 g/cm³の場合）これ以下の密度及び石英、イライト混合によるプルトニウムの拡散ははるかに速い拡散が進行しており、正確な拡散係数は求められなかったが、少なくとも $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ よりも大きいと推定された。
- ii Na型ベントナイトの場合は、ほとんどプルトニウムの拡散は認められなかつた。
- iii 60°Cの拡散試験環境下でNa型ベントナイト及びその混合系のPHとEhはそれぞれ7.7~8.2、0.21~0.31Vを測定した。
- iv 上記のPH、Eh測定値からH型、Na型ベントナイト中でのプルトニウムの化学形態は4価のPuO₂と推定された。

（図-5にプルトニウムのPH-EH線図を示す。）

② 今後の方針

今後は以下の項目についての試験を行う計画である。

- 1) 短期間（1週間~1ヶ月程度）のH型ベントナイトのPu拡散試験
- 2) 低密度(d/1.0 g/cm³)のNa型ベントナイトや石英混合比の高いNa型ベントナイトでのPu拡散試験
- 3) Np, Am核種を用いた拡散試験
- 4) 酸素濃度等の雰囲気調整下での拡散試験

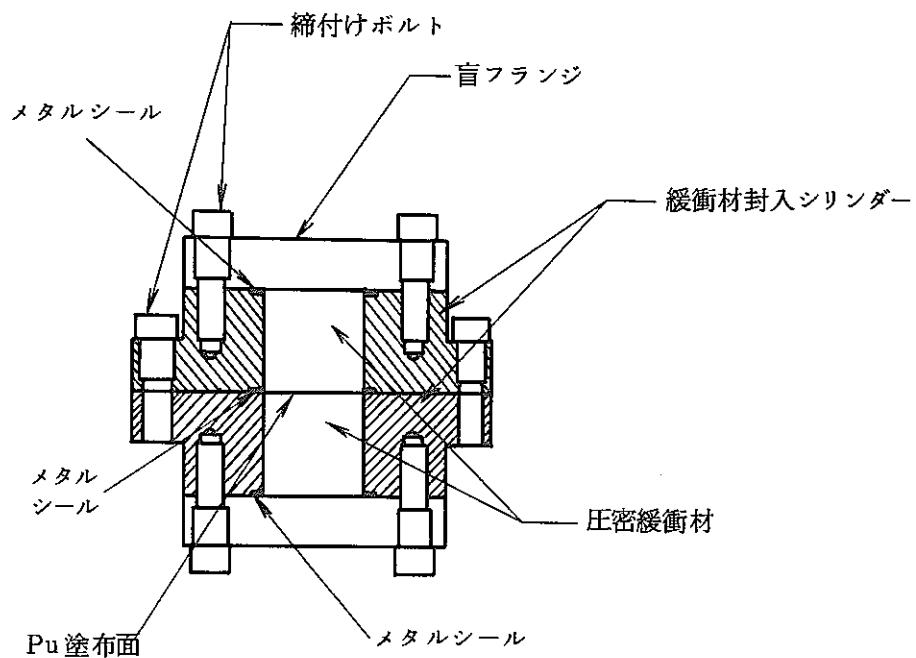


図-1 移行試験カラム

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	5.155(73.3%), 5.143(15.1%)	5.91×10^{-2}
Pu 240	4.52	6.58×10^3	5.159(75.7%), 5.115(24.4%)	1.02×10^{-2}
Pu 241	0.203	14.3	β :(99%+) 0.0208 α (0.00245%):4.896(88), 4.853(12)	$\beta:2.11 \times 10^{-1}$ $\alpha:5.16 \times 10^{-6}$
Pu 242	0.007	3.76×10^5	4.901(74%), 4.857(26%)	2.75×10^{-7}
Am 241	250 ppm	435	5.486(86%), 5.443(12.7%)	8.53×10^{-4}

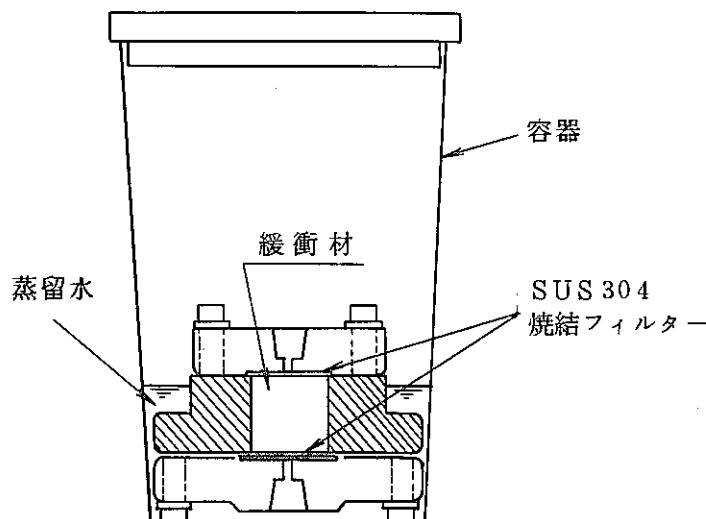


図-2 緩衝材への水飽和

表-2 緩衝材材料の化学組成

	Kunipia	HCl washed	Illite
SiO ₂	55.68	58.29	51.22
TiO ₂	0.23	0.12	0.53
Al ₂ O ₃	19.96	20.45	25.91
Fe ₂ O ₃	1.95	3.71	6.29
MnO	0.01	0.003	—
MgO	3.64	3.14	2.84
CaO	0.41	0.08	0.16
Na ₂ O	3.22	0.26	0.17
K ₂ O	0.07	0.035	6.09
H ₂ O	14.23	12.27	8.59

*Grim et al.: Pennsylvania underclay, near Fithian,
Ill., USA⁽¹⁾

表-3 試験条件

No.	緩衝材	密度	時間	温度
1	H型ベントナイト	1.2	6ヶ月	60°C
2	"	1.6	"	"
3	"	2.0	"	"
4	H型ベントナイト+30%石英	1.6	"	"
5	" 50% "	"	"	"
6	" 70% "	"	"	"
7	H型ベントナイト+50%イライト	"	"	"
8	Na型ベントナイト	1.2	"	"
9	Na型ベントナイト+50%イライト	1.6	"	"
10	Na型ベントナイト	"	1年	室温
11	Na型ベントナイト+30%石英	"	6ヶ月	60°C
12	" +50% "	"	"	"
13	" +70% "	"	"	"
14	Na型ベントナイト+50%イライト	"	1年	"
15	Na型ベントナイト	1.2	"	"
16	"	1.6	"	"
17	"	2.0	"	"
18	Na型ベントナイト+30%石英	1.6	"	"
19	" +50% "	"	"	"
20	" +70% "	"	"	"

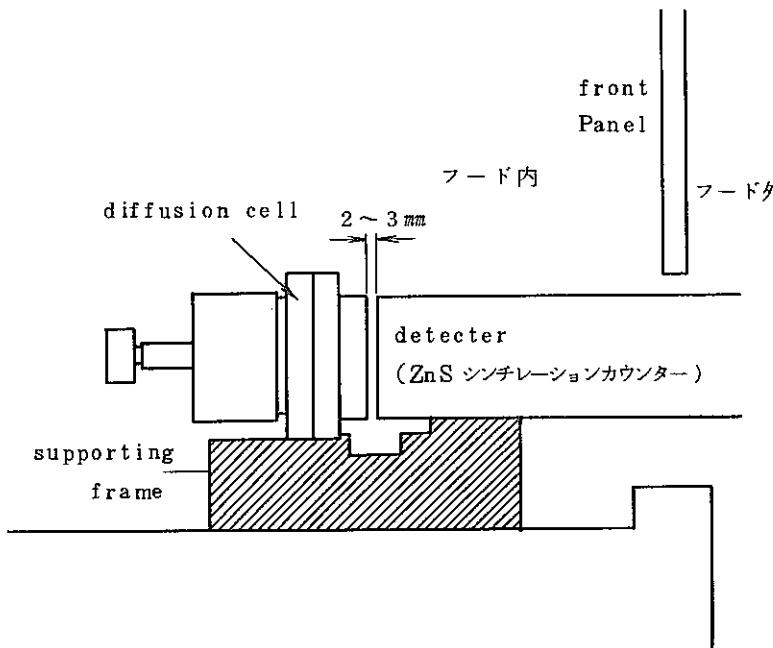
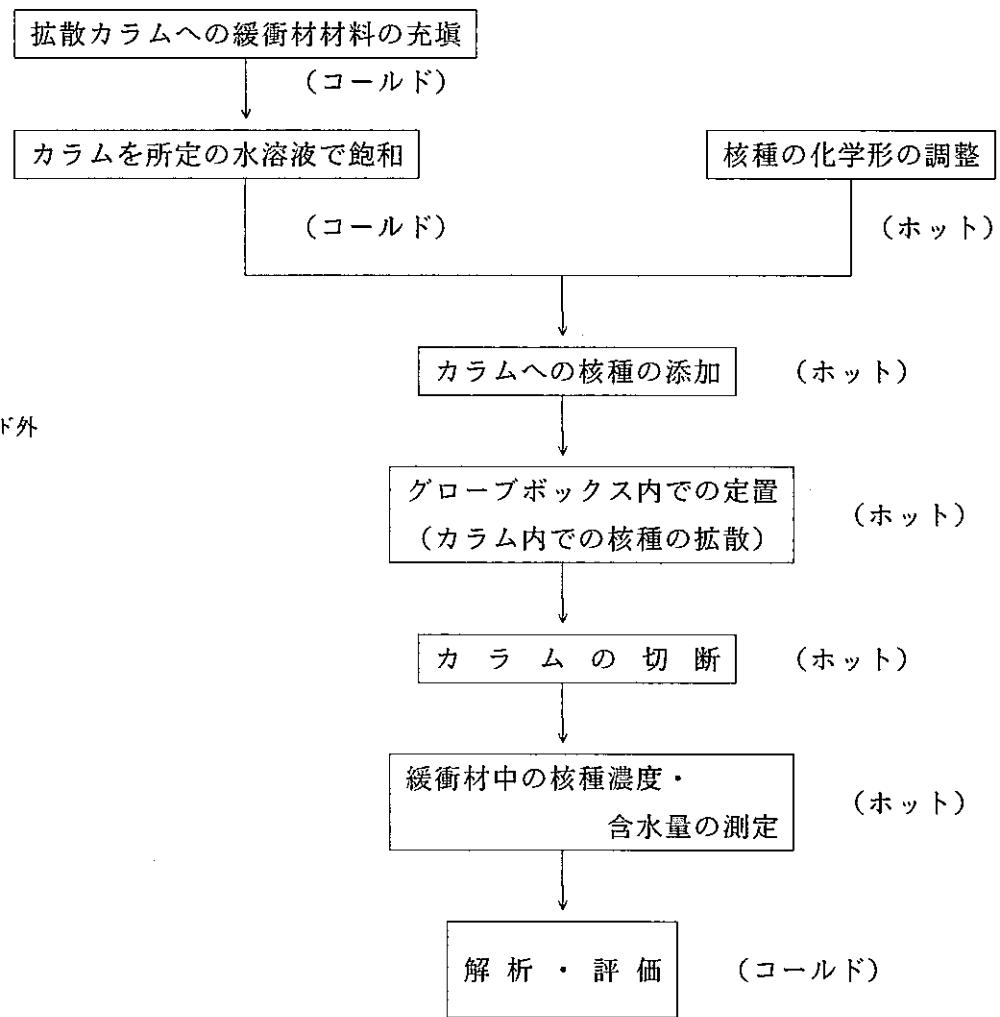
図-4 緩衝材スライス面の α 測定状態図

図-3 カラム移行試験操作手順

表-4 空隙水のpH, Eh測定値

空隙水	Pu溶液添加前		Pu溶液添加後	
	pH	Eh (mV)	pH	Eh (mV)
H型	3.47	652	3.32	650
	3.46	652	3.32	648
	3.46	653	3.32	648
Na型	9.93	299	8.52	325
	10.01	300	8.55	322
	9.92	302	8.46	323
イライト	7.24	442	4.68	504
	7.34	434	4.70	500
	7.31	422	4.77	489
石英	7.00	424	2.61	743
	7.05	438	2.59	744
	7.05	442	2.59	744

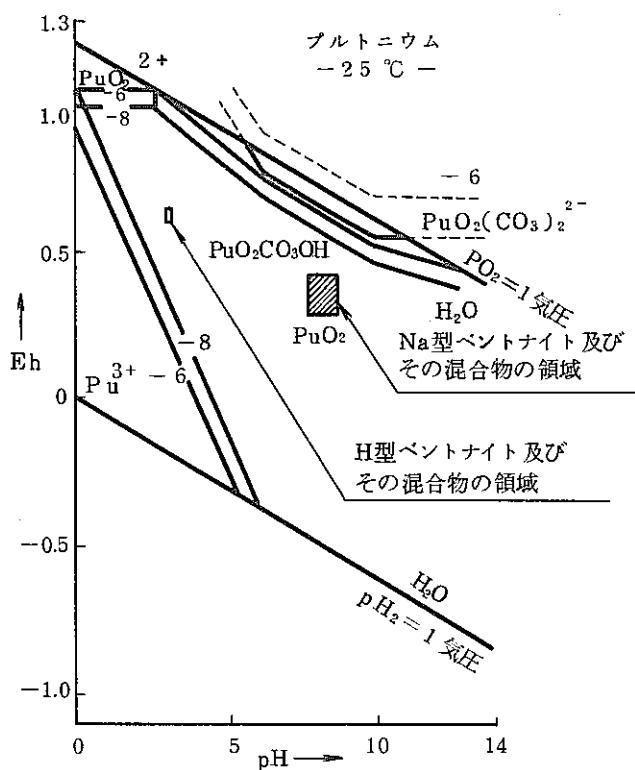


図-5 Pu の pH-Eh 線図

2.4 低レベル廃棄物処理開発施設（LWTF）の設計

(1) 目的及び概要

再処理工場等から発生する難・不燃性固体廃棄物、化学スラッジ等の低レベル廃棄物の減容安定化処理技術の実証を目的として、LWTFを考えており、設計を進めている。

本年度の基本設計Ⅱは、基本設計Ⅰに引き続き実施したものであり、基本設計Ⅰの内容に対し放射性廃棄物の処理技術開発状況及び処分動向を踏まえて処理プロセスの見直し及び処理方針の検討を行った。

(2) 方法及び結果

① 処理プロセスの検討

i 低レベル濃縮廃液の処理方法

基本設計Ⅰでは、乾燥法により低レベル濃縮廃液の減容処理を行うこと、としたが、廃液中に多量に含まれている硝酸塩と核種を分離し高度の減容化を図れる核種分離法を採用した。

ii 廃TBPの処理方法

基本設計Ⅰで採用したNukem法に対し、処理物の安定性を高めることを目的として人工雲母法の研究開発を進めている。しかし、処理時の安全性及びリン、核種の保持性能に優れると共に、分解液から核種分離を行うことにより高度の減容化が図れる液相酸化法を採用した。

② 処理計画

i 放射能データによる見直し

① α 核種濃度による見直し

TRU廃棄物の検討用区分値を $10 \text{ n } \mu\text{Ci/g}$ として固体廃棄物および液体廃棄物のTRU/非TRU区分を検討した。

固体廃棄物および液体廃棄物の検討結果を各々表-1および表-2に示した。

液体廃棄物のうちでは廃TBPの固化体は $10 \text{ n } \mu\text{Ci/g}$ を下回るが比較的区分値に近いため、TRU廃棄物としての区分に含めることが望ましいものと考えた。

従って化学スラッジのみが非TRU廃棄物としての取扱いとなる。

ii 線量率の見直し

液体廃棄物処理系の処理プロセスに対し、放射能データに基づき、表面線量率の計算を行った。

その結果、3グループに分けることが出来50mR/Hをセル内或いはセル外の取扱い上の区分の目安とすることにより化学スラッジが他と分類される。

- ① 除染廃液、濃縮廃液 (LA 1～3) > 0.1 R/H
- ② 廃TBP、濃縮廃液 (VLA 1) $1 \times 10^{-3} \sim 0.1$ R/H
- ③ 化学スラッジ

iii 処理方針

- ① 廃棄物の管理方針

a 非TRU化

除染、および低濃度のものと高濃度のものの混合希釀も含めた非TRU化を目指す。

b 種別管理

設備設計上あるいは処理設備運用上無理がない形で種別管理を実施しておく方が将来の処分への対応上有利であると判断した。従って極力細分化した種別管理を実施するものとするが、種類の数については設計上、可能な範囲にとどめるものとする。

iv 固体廃棄物の処理方針

前項の管理方針を踏まえ各廃棄物を極力非TRU化する。また最小限の種別管理として金属、難燃部およびフィルタを分別する。

以上の管理方針に対し、極力作業工程を単純化してゆくと図-1のフローのようになつた。

v 液体廃棄物処理方針

TRU核種濃度および線量率計算の結果を踏まえて以下のように処理方針を検討した。即ち線量率およびTRU核種濃度の高いものをセル内で取扱うものとし、セル内から発生する固化体はTRU廃棄物でしかも表面線量率が高いため、キャスクを用いて構内搬送するものとしアスファルト固化体貯蔵施設に貯蔵する。該当する廃棄物は除染廃液、濃縮廃液、および廃TBPである。化学スラッジについては表面線量率、核種濃度が低くセル外で取扱うこととし、発生する固化体も非TRU廃棄物で表面線量率も低いため、キャスク搬送の必要性はなく、低レベル固体廃棄物貯蔵場に貯蔵する。

以上の見直しを行なうことにより基本設計Iに対してセル構造部の合理的配置に

より、セルの低減が可能となった。

基本設計Ⅱで導かれたブロックフローについて基本設計Ⅰとの比較を図-2に示した。

(3) 今後の方針

- ① 低レベル廃棄物一元化管理の観点より、廃棄物データベースを整備し、又、PWT
F、HWT F等の他施設設計を勘案し、LWT Fで処理すべき対象廃棄物を明確にする。
- ② 昭和71年度の運転開始を目標にLWT Fで採用した処理プロセスの研究開発を推し進めると共に昭和64年度より詳細設計を開始する。

表-1 固体廃棄物のTRU／非TRU比

対象物	年間受入本数	除染本数	高圧縮固化処理後の本数		
			TRU	非TRU	計
難燃物	964 本	—	7本 (3%)	234 本 (97%)	241 本
不燃物	金属類	828 本 (20%)	165 本 —	207 本	207 本
	ガラス類	643 本	—	7本 (4%)	154 本 (96%)
	HEPA類	620 本	—	6本 (4%)	149 本 (96%)
	合 計	3,055 本／年	—	20本 本／年	744 本 本／年
					764 本／年

表-2 液体廃棄物固化体のTRU／非TRU区分

固 化 体	T - α 濃 度	区 分 ^{*1)}
化学スラッジ固化体	約 1 nCi/g	非TRU
除染廃液固化体	約 1,500 nCi/g	TRU
廃TBP固化体	約 3 nCi/g	(非TRU) ^{*2)}
濃縮廃液固化体 LA 1, 3	約 360 nCi/g	TRU
LA 2	約 320 nCi/g	TRU
VLA 1	約 10 nCi/g	TRU

*1) 10 nCi/gを区分値とした場合

*2) 廃TBPについては、境界値に近いため取扱い上はTRU廃棄物として取扱うことが安全側であると考えTRU廃棄物の区分に含める。

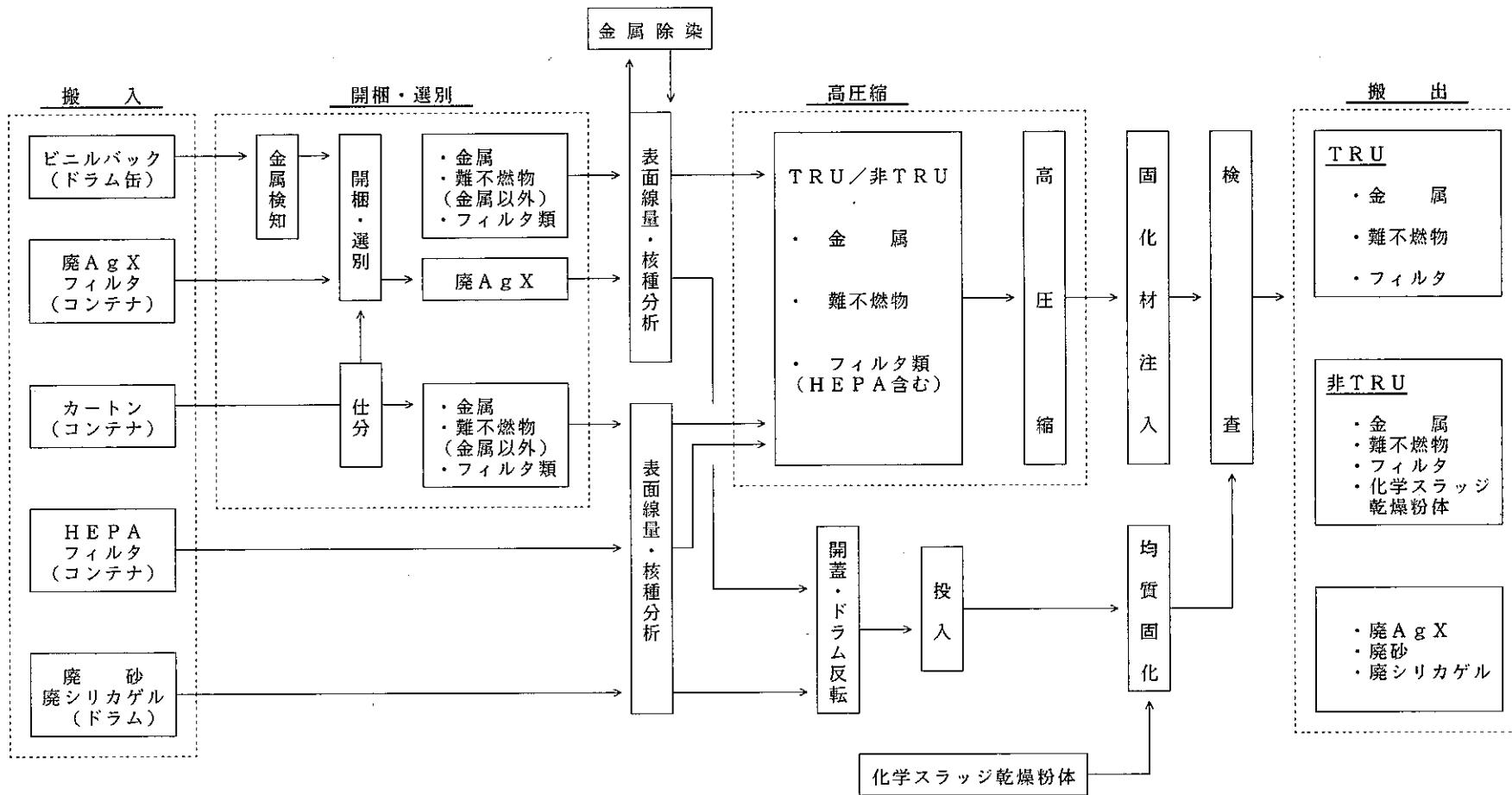


図-1 固体廃棄物取扱いフロー

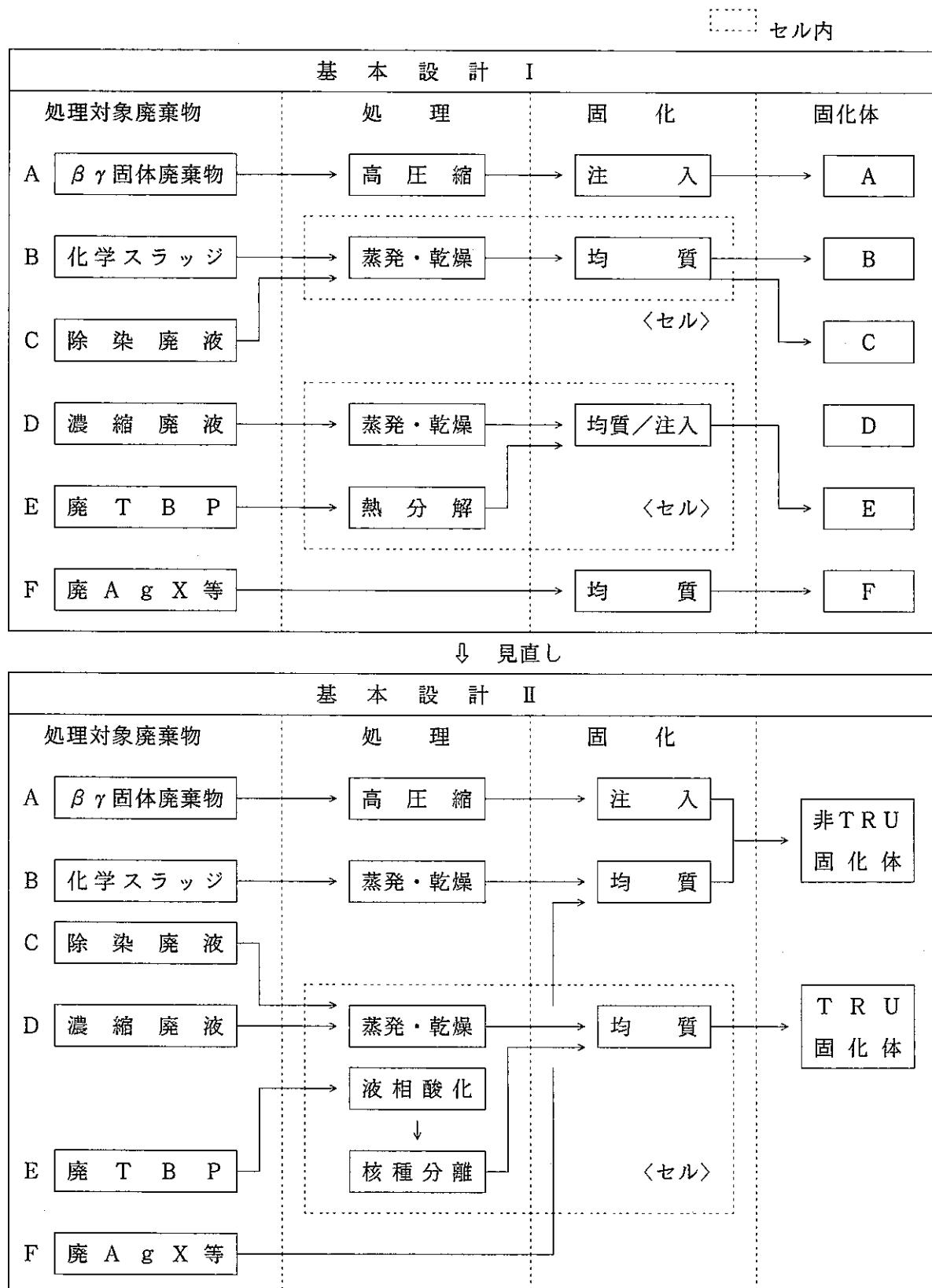


図-2 処理・固化系統構成の見直し

3. あとがき

昭和62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。

今年度より再処理工場から発生する低レベル廃棄物（固体、液体）に関する減容安定化技術開発として、不燃性残渣固化処理試験、含塩廃液処理試験、低レベル廃液乾燥粉体化処理試験を開始すると共に、現在計画中の低レベル廃棄物処理開発施設の設計を着手した。

4. 謝 辞

本年度の作成にあたり、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

燃料性残渣等安定化固化処理試験 PNC SJ4164 87-002(1)

含塩廃液処理試験 PNC SJ4253 87-001

低レベル廃棄物処理開発施設基本設計 PNC SJ4277 87-002