

軽水炉燃料サイクルにおいて、原子炉及びそのバックエンド(再処理及び燃料加工など)より生ずる廃棄物の各種管理方法(第2巻)

Alternatives For Managing Waste From Reactors And
Post-Fission Operations In The LWR Fuel Cycle.

ERDA-76-43

1977年5月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

放射性廃棄物の各種処理法

緒 言

本巻では、第1巻第2章で類別した超U元素を含む廃棄物及びこれらを含まない廃棄物の処理及び固定化の各種の方法についてのべる。ここで用いる処理(treatment)とは、輸送、貯蔵あるいは処分のために1次廃棄物の形態を変える何等かの行動を指し、また固定化(immobilization)は、廃棄物の置かれる環境の作用をより受けにくいように1次廃棄物の形態を変えることを意味する。場合によっては、処理及び固定化の必要がないこともありうる。これら2つの作業は、公衆の健康及び安全を防護するかあるいは公衆の健康及び安全を損うことなくコストを低減する場合に有利であると考えられる。

第5章から第16章に示す各種の方法は、燃料サイクルのバックエンドから生ずる特定の性状の廃棄物に適用する処理を詳述したものであるが、これに加えてその処理法の状況すなわち利用可能性の有無の観点からも論じている。現在利用できない方法についてはその開発の段階を示し、あわせて工業的な実用化に必要な研究項目を記述する。ここにまとめた情報は個々の処理に関連する技術のみを示し、読者に各処理法の技術的な様相及び開発状況を評価する基準を提供するものである。処理法はまだ最適化されておらず、その効力について結論づけあるいは勧告する企図はない。

処理すればその結果として新たに汚染廃棄物が生ずる。例えば、せん断・浸出溶解したジルコニウム燃料束ハルを圧縮減容すれば、汚染した圧縮装置及びその他の各種廃棄物が発生する。生ずる廃棄物の量は処理法によって異なるので、処理法を評価する場合は処理の結果生ずる廃棄物の量が被処理廃棄物量を上廻らないかどうかを検討することが重要である。

本巻の最初の章である第5章に述べる処理方法の改良は、上述の定義による厳密な意味での処理ではなく、廃棄物の形状及び量あるいはその一方に影響する基本的な再処理のフローシートの代替法を示したものである。

使用済燃料の再処理の現行法で生ずる2種の主要な放射性廃棄物の処理、すなわち高放射性廃棄物の固化処理及びせん断・浸出溶解燃料束残渣(ハル)の処理についてそれぞれ6章及び7章で論ずる。

非高放射性的の固体及び液体廃棄物の処理方法は第8, 9, 10章及び12章で述べる。可燃性有機廃棄物処理は、第10章の非高放射性液体廃棄物の項ではなく、第9章の可燃性廃棄物処理の項で論ずる。

非高放射性廃棄物よりの有用な超U元素の回収は、第11章でのべる。これと類似のものに第16章の高放射性廃液からのアクチノイド元素の分離除去があるが、第16章では特定の再処理廃棄物の利用についてもふれる。

気体及び揮発性放射性同位体の処理ならびに固定化の方法は、それぞれ第 13 ならびに 14 章で記述する。

第 15 章では、廃棄する燃料サイクル施設の除染及び閉鎖についての処理法及び現戦略を類別するが、この対象となる施設には軽水炉、使用済燃料貯蔵プール、再処理工場、混合酸化物燃料加工工場、固体廃棄物の暫定貯蔵サイト及び地下埋設場がある。

訳述のはじめに

化石燃料に対する核燃料の特徴的な相違は、前者は炉内で消費だけが行なわれて煙と灰が残るだけであるのに対し、後者は炉内で消費と生産が行なわれるという点である。

核燃料の炉内における消費をできるだけ効率よく使いやすいエネルギーの形態としての電気に変換しようという点に原子炉工学の進歩があり、さらに消費に対する生産の比率を高めようとするのが新型転換炉や高速増殖炉開発の目的ではある。天然資源であるウランの中のわずかな部分であるU-235の分裂エネルギーを粗末に消費しているだけでは限られた資源量では石炭の数百分の一のエネルギーしか取り出すことができない。世界が挙げて原子力に期待している理由は現段階で一応経済的である原子炉の建設運転を行ないながら、さらに熱効率を高め、ウランの消費の間に生産されるプルトニウムを再利用し、あるいは消費に対する生産の割合を飛躍的に高めることのできる新型動力炉の開発に供し、ここ十年または二十年の開発努力の暁には既知の天然ウラン資源によって拡大する世界のエネルギー需要に対し、百年以上の供給を保証する、かなり確実な見通しがあるからである。

このためには核燃料の炉内における消費と生産の結果を再利用に供するための核燃料サイクルの確立が必要である。近い将来には狭義の核燃料サイクルとして自己リサイクルを行なって天然ウラン資源および濃縮作業量を節約し、やがて軽水炉系から新型動力炉系へのクロスリサイクルを行ない、将来は高速増殖炉系の自己リサイクルが定着する筈である。

この核燃料サイクルの確立のために動燃はその前身原燃時代から数えて二十年、核燃料サイクルの各分野における技術開発に努めてきて、やっとその要である使用済燃料再処理のホットテスト開始を目前にするようになってきた。再処理の基本技術は低照射率の軍事目的生産炉の燃料処理や低燃焼率の天然ウラン-ガス冷却動力炉の使用済燃料の処理を通じて、世界は三十年以上の経験をもってきているわけであるが、高比出力、高燃焼率の商業用軽水炉の使用済燃料の再処理では核分裂生成物の量と分布、存在状況が異なるために局部技術ではなお問題が残されているから、操業を通じて経験とともに工程改善や機器の改良が行なわれなければならない。

核燃料サイクルの確立のために各段階における主プロセスの技術開発が必要であることはいうまでもないが、しかし主プロセスの開発だけで問題が終るわけでは決してない。

原子炉および核燃料サイクルの各分野で放射性廃棄物および放射能汚染廃棄物の多様なものを発生する。核燃料サイクル業務の遂行に伴う環境影響はそれぞれの施設について国際的な基準から各国で国内規制が行なわれている。しかし原子力開発の拡大に伴って核燃料サイクル各事業の規模および数も増大するので環境影響をさらに小さくする技術の開発が必要である。

各施設で発生する放射性廃棄物は当面施設内保管とする策が各国で採られているが、累増する廃棄物の安全な中長期保管のために減容および安定化が必要であり、さらに生物環境に影響の少ない恒久処分の方策が必要である。

核燃料サイクルの各分野で発生する放射性廃棄物のうち総放射能および容積当り比放射能の最も大きいものが再処理工場から発生する。ここでは高放射性のプロセス廃棄物のほかに廃棄物処理に伴う二次廃棄物も発生し、また汚染廃棄物も生ずる。

プルトニウムウラン混合酸化物燃料加工施設では本質的なプロセス廃棄物は施設内処理され、放出廃液や排気は国際基準以下に保てることが動燃の十年余の実績でも実証されているが回収処理のほとんど不可能な汚染廃棄物は保管管理されている。同様な汚染廃棄物はプルトニウム燃料を用いる新研炉の照射前後の燃料取扱施設でも発生する。比放射能汚染レベルは低いウラン燃料取扱施設でも同様な汚染廃棄物が存在する。これらの廃棄物処理および処分も問題であるが、最大の問題は再処理工場に係わるものである。

動燃として再処理に係わる放射性廃棄物の放出低減化および中間処理技術について、かねてから調査を進め、部分的な基礎研究を行なうとともに、部分的な処理の工業的試験について海外技術を利用して施設の建設を行なうべく努力しているわけであるが、再処理工場の運転を目前にしてさらに中間処理から長期保管、将来の処分まで検討しなければならない時期に達した。

特記しなければならないことは、放射性廃棄物の処理は急がなければならない問題ではあるが、時間とともに放射能が減衰し、短半減期のものはやがて消滅する。したがって中間処理を無方針のまま急ぐと、放射能レベルが高いために取扱技術が一段と困難であるし、将来の2次処理や恒久処分に不適なものとしてしまうおそれもある。世界的にみて廃棄物処理に関する技術はなお開発途上であって、恒久処分についてもやっと試験的行為が始められた段階である。過去十年、二十年の一般技術の進歩の急速さから考えて、世界中の真剣な努力が行なわれているから廃棄物処理技術に関して今後一段の進歩が見込めるであろう。したがって今日短兵急な方策に走るより、当面安全な施設内保管を行ない、技術開発努力を一層進め、長期にわたるシナリオと国内外の技術進歩に即応したシナリオ改訂のフレキシビリティをもつことが必要であると考えられる。

アメリカでは政府の再処理工場に相当量の廃棄物が蓄積しており、中間処理や長期処分の試験も始まりつつあり、民間再処理工場建設計画を促進させるためにも廃棄物処理の技術移転を考えざるを得ない段階になってきたようで、1975年来廃棄物管理に関する技術現状の展望と特殊の可能性を調査し、結果をERDAは発表した。

このERDA-76-43の資料は主としてアメリカ国内、一部ヨーロッパの技術にわたって調査展望したもので、わが国にあっても将来にわたる前述のシナリオ決定のために甚だ時宜に適した有用な資料であった。

PNCT 851-77-02

レポートは大部のものであるが、社内における広い検討の必要があるので、担当技術者の勉強を兼ねて邦訳することとしたものである。

理 事 中 村 康 治

目 次 (第二卷)

はじめに

放射性廃棄物の各種処理法(緒言)

5.0	燃料再処理の部分的修正	1
5.1	再処理で生ずる不溶性残渣	4
5.2	リサイクルする溶媒の処理及び廃溶媒の処分	4
5.3	水相溶液のリサイクル	5
5.4	オフガス処理より生ずる廃棄物	6
5.4.1	除染作業より生ずる廃液	6
6.0	高放射性廃液の固化	8
6.1	発生する廃棄物の特性	8
6.2	固化処理法に共通した特徴	11
6.3	各種の固化処理法	21
6.3.1	乾燥・仮焼法(Drying and Calcination)	22
6.3.2	ガラス固化法(Vitrification)	39
6.3.3	その他の固化処理法	66
6.4	現存する商業用高放射性廃棄物	90
6.4.1	各種の廃棄物管理法	91
6.4.2	各種の廃棄物管理法の長所及び短所	95
6.4.3	研究及び開発	96
6.4.4	安全性	98
7.0	燃料集合体のせん断一浸出後に残留する廃棄物の処理と固定化	101
7.1	せん断一浸出後の燃料集合体残渣の特性	102
7.1.1	発生源	103
7.1.2	Mass	104
7.1.3	放射特性	105
7.1.4	自己発火性	108
7.2	各種処理法と固定化技術	110
7.2.1	分類	114
7.2.2	表面洗浄	116
7.2.3	Matrix形成	119
7.2.4	機械的稠密化	121

7.2.5	溶 融	124
7.2.6	硫酸-硝酸混液による溶解	132
7.2.7	フッ化物水溶液による溶解	134
7.2.8	燃料集合体のジルコニウム残渣の揮発法	135
7.2.9	HF-O ₂ による酸化	138
7.2.10	酸化物のガラスへの変換	141
7.2.11	ジルコニウムのHLW吸収剤への変換	142
8.0	不燃性廃棄物の処理	148
8.1	既に発生した廃棄物の特徴	148
8.2	処 理 方 法	149
8.2.1	その他の処理方法	149
8.2.2	技 術 開 発	150
8.3	利用可能な廃棄物処理技術	151
8.3.1	仕分け作業	151
8.3.2	除 染	151
8.3.3	Pu 回収	152
8.3.4	圧 縮	152
8.3.5	コンクリート, ビチューメン, ユリア樹脂による固化処理	152
8.4	開発の必要な処理技術	153
8.4.1	機械的解体	154
8.4.2	溶 融	156
8.4.3	化学的処理による減容	159
8.5	二次廃棄物処理	161
8.5.1	プロセスの概要	161
8.5.2	二次廃棄物の発生量	162
8.5.3	開発の状況	162
9.0	可燃性廃棄物の処理	164
9.1	発生した廃棄物の性質	164
9.2	処 理 方 法	167
9.3	機械的仕分けと減容化技術	173
9.3.1	手による仕分け	173
9.3.2	細 断	175
9.3.3	空気による仕分け (Air Classification)	176

9. 3. 4	圧縮と圧縮包装	179
9. 4	これからの焼却プロセス	181
9. 4. 1	焼却システムの概要	181
9. 4. 2	供給物の調整	184
9. 4. 3	供給方法	185
9. 4. 4	焼却灰/残渣の取り出しシステム	185
9. 4. 5	オフガス処理	186
9. 5	焼却技術	189
9. 5. 1	焼却炉の型式	189
9. 5. 2	サイクロン型焼却炉 (Mound Laboratory)	191
9. 5. 3	調整空気型焼却炉 (LASL)	193
9. 5. 4	熱分解型焼却装置 (PNL)	195
9. 5. 5	熱分解型焼却炉 (Windscale, UK)	198
9. 5. 6	渦流型焼却炉 (G.E., Wilmington, NC)	199
9. 5. 7	流動床型焼却炉 (R.F)	201
9. 5. 8	ロータリーキルン型焼却炉 (R.F)	203
9. 5. 9	攪拌炉床型焼却炉 (R.F)	205
9. 5. 10	移動火床型焼却炉 (ARHCO)	207
9. 5. 11	溶融塩型焼却装置 (AI)	209
9. 5. 12	酸消化法設備 (HEDL 研究所)	212
9. 5. 13	廃溶媒の焼却炉 (SRP)	215
9. 5. 14	廃溶媒燃焼炉 (BNFP)	217
1 0. 0	非高放射性液体廃棄物の処理	224
1 0. 1	廃棄物の特性	224
1 0. 2	1次廃棄物の各種処理法	225
10. 2. 1	中放射性液体廃棄物	227
10. 2. 2	低放射性液体廃棄物	228
1 0. 3	2次廃棄物の処理	229
10. 3. 1	気体	229
10. 3. 2	液体	229
10. 3. 3	固体	229
1 0. 4	各種の処理技術の説明	230
10. 4. 1	蒸発処理	230

10.4.2	仮焼	236
10.4.3	ろ過	238
10.4.4	遠心分離	242
10.4.5	イオン交換	244
10.4.6	隔膜処理法	247
1 1.0	非放射性廃棄物からの超ウラン元素の回収	252
1 1.1	固体からの回収	252
11.1.1	表面汚染物質	253
11.1.2	Pu 含有物質	255
11.1.3	HEPA フィルタからの回収	256
1 1.2	液体からの回収	257
11.2.1	供給液の調製	257
11.2.2	溶媒抽出技術	258
11.2.3	イオン交換技術	262
1 1.3	非破壊分析法	264
11.3.1	放射性崩壊	265
11.3.2	自発核分裂	270
11.3.3	誘導核分裂	272
1 2.0	高放射性以外の各種放射性廃棄物の固定化	278
1 2.1	固定化(処理)法	279
1 2.2	利用可能な固化技術	282
12.2.1	吸着剤による固化技術	282
12.2.2	塩マトリックス法	284
12.2.3	尿素-ホルムアルデヒド樹脂による固定化法	287
12.2.4	セメント又はコンクリート固化法	291
12.2.5	ビチューメン(アスファルト)固化処理	302
1 2.3	開発の必要な固定化技術	309
12.3.1	無機ケイ酸アルミニウム(Cl ay) 固化	309
12.3.2	ガラス固化	312
12.3.3	ペレット加工/圧縮	316
12.3.4	その他の固化システム	319
1 3.0	揮発性放射性同位体の回収とオフガス処理	327
1 3.1	クリプトン-85 (^{85}Kr)	327

13.1.1	利用可能な技術	328
13.1.2	開発の必要な技術	331
13.2	ヨウ素-129	337
13.2.2	開発の必要な技術	337
13.3	トリチウム	345
13.3.1	利用可能な技術	345
13.3.2	開発の必要な技術	345
13.4	窒素酸化物	365
13.4.1	利用可能な技術	365
13.4.2	開発の必要な技術	366
13.5	塩化水素	369
13.5.1	利用可能な技術	369
13.5.2	開発の必要な技術	369
13.6	炭素-14	372
13.6.1	利用可能な技術	372
13.6.2	開発の必要な技術	372
13.7	ルテニウム-106	378
13.7.1	利用可能な技術	378
13.7.2	開発の必要な技術	379
13.8	微粒子の除去	384
14.0	揮発性放射性同位元素の固定化	389
14.1	クリプトン-85	389
14.1.1	利用可能な技術	389
14.1.2	開発の必要な技術	390
14.2	ヨウ素-129	395
14.3	トリチウム	396
14.3.1	利用可能な技術	396
14.3.2	開発の必要な技術	396
15.0	諸施設の廃止(除染と閉鎖)	415
15.1	除染及び閉鎖のモード(Mode)とその選択	416
15.1.1	保護的貯蔵(文献1で" Mothballing "とされているもの)	416
15.1.2	埋装処分	417
15.1.3	放射性コンポーネントの撤去と解体	418

15.1.4	除染・閉鎖のモードの選定理由	418
15.2	軽水炉燃料サイクル及び廃棄物管理諸施設への応用	421
15.2.1	軽水炉	421
15.2.2	燃料貯蔵施設	424
15.2.3	再処理施設	424
15.2.4	混合酸化物燃料加工工場	427
15.2.5	固体廃棄物の暫定貯蔵場	428
15.2.6	固体廃棄物地下埋設場	429
15.3	除染・閉鎖	430
15.3.1	汚染管理	430
15.3.2	非多孔性表面の除染	430
15.3.3	コンクリート表面の除染	431
15.3.4	汚染機器, セルライニング及び換気系の除去	431
15.3.5	廃棄物の減容	432
15.3.6	D & D技術の改善の必要性	432
15.4	規制及び規準	433
15.4.1	閉鎖指針	433
15.4.2	残留汚染の規準	434
15.5	D & Dの主要問題に対するコメント	437
16.0	特定の再処理廃棄物の分離と利用	440
16.1	高放射性廃棄物の有効利用の可能性	440
16.1.1	種々の処理方法の特徴	443
16.2	廃棄物分別の技術的考察	444
16.3	大容量の廃棄物(BSW)からのエネルギー回収	445
16.4	高放射性廃液からのアクチニドの分離	445
16.4.1	溶媒抽出	449
16.4.2	イオン交換法	450
16.4.3	沈殿法	451
16.4.4	現状	451

LIST OF FIGURES

5.1 Basic Flowsheet for Treatment of Fuel Fabricaion and 2
 Reprocessing of Wastes

5.2 Generic Flowsheet Depicting Origins and Types of Wastes..... 3
 Generated in Fuel Reprocessing

6.1 Generalized Function of HLLW Solidification Processing..... 12

6.2 Typical HLLW Solidification Head-End System 14

6.3 Typical Post-Fill Treatment of Solidified HLLW Canisters... 16

6.4 Typical HLLW Solidification Off-Gas Treatment 18

7.1 Axial Burnup Distribution 103

7.2 Fraction of Heat from Hulls Clad Constituents 106

7.3 Induced Radioactivity in Waste Zircaloy Cladding and 107
 Inconel Spacers

7.4 Typical Maximum Heat Releases Expected from 1 MTU 108
 Cladding

7.5 Decision Areas in the Management of Fuel Bundle Residues ... 110

7.6 Chop-Leach Fuel Bundle Residue Conversion to Nonmetallic ... 111
 Products

7.7 Inductoslag Melting Process 126

7.8 Conceptual Process for Zirconium Hulls 133

7.9 Reaction of Type 348 Stainless Steel with HF-O₂ Mixtures ... 139
 in a Fluidized Bed

7.10 Conceptual Process for Conversion of Cladding Wastes to..... 141
 Silicate Glasses

7.11 Zircaloy Conversion Process 143

8.1 Noncombustible Solid Waste Flow Diagram 150

8.2 Noncombustible Solid Waste--Handling of Secondary Wastes... 161

9.1 Treatment Options for Combustible Radioactive Wastes 167

9.2 Air Classification System for Introducing Combustible 178
 Feed into a Combustion System

9.3	Drum Compactor for Dry Wastes	180
9.4	Conventional Incinerator Flow Diagram	182
10.1	Intermediate-Level Liquid Waste Flow Diagram	226
10.2	Low-Level Liquid Waste Flow Diagram	227
10.3	Natural Circulation Evaporator with External Vertical-Tube Heat Exchanger	233
10.4	Wiped Film Evaporator	235
11.1	Present Hanford PRF TBP Plutonium Recovery Process.....	259
11.2	NDA Applications Based on Radioactive Decay	265
11.3	NDA Applications Based on Spontaneous Fission	270
11.4	NDA Applications Based on Induced Fission	272
12.1	Comparison of Leach Rates for Alkaline-Earth Elements from Various Waste Products	281
12.2	Comparison of Leach Rates for Rare-Earth and Actinide Elements from Various Waste Products	282
12.3	U-F Gel Times at Varying Catalyst Concentrations	288
12.4	Urea-Formaldehyde Radwaste Solidificatin Sysem	290
12.5	Drum Tumbling Mixing Process for Incorporating Waste in Cement	299
12.6	In-Drum Mixer Station	299
12.7	In-Line Mixing System for Portland Cement With Sodium Silicate Additive	300
12.8	Stirred-Evaporator Batch Process for Incorporating Waste in Bitumen	304
12.9	Turbulent-Film Evaporator Continuous Process for Incorporating Waste in Bitumen	305
12.10	Turbulent-Film Evaporator used to Incorporate Waste in Bitumen	306
12.11	Screw-Extruder Continuous Process for Incorporating Waste in Bitumen	307
12.12	Twin-Screw Extruder for Incorporating Waste in Bitumen	308
12.13	A Conceptual Flow Diagram for the Conversion of Radioactive Wastes to Aluminosilicate Minerals	310

1214	Pelletization/Compaction Steps	318
131	Process for the Collection of ⁸⁵ Kr by Cryogenic Distillation	330
2	Process for the Collection of ⁸⁵ Kr by Liquid Fluorocarbon.. Absorption	332
1	Iodine-129 Waste Disposal Process for a 5 Tonne/Day..... Plant	338
2	Regeneration and Recycle of Agx for Iodine-129 Removal.....	339
133	Iodox Process Flowsheet for Iodine Removal.....	342
1	Voloxidation Process	346
2	Pyrochemical Process	350
3	Isotopic Enrichment by HT/H ₂ O Catalytic Exchange.....	353
4	Conceptual System for Laser Isotopic Enrichment.....	356
5	Distribution of Tritium in the First-Cycle Extraction..... System at the ICPP	357
6	Recycle and Batch Removal	358
7	Recycle with Bleedstream Removal.....	358
8	Recycle System for Tritium Control with Isotopic..... Separation for the Bleed Stream	359
9	Recycle System for Tritium Control with Isotopic..... Separation of the Entire Aqueous Inventory	360
1	NOx Abatement Process for a 5 Tonne/Day Plant	367
1	Conceptual Process for HCL Abatement	371
1	Caustic Scrubber Process for ¹⁴ CO ₂ Removal from..... Dissolver Off-Gas	373
2	Molecular Sieve Adsorption Process for ¹⁴ CO ₂ Removal..... from Dissolver Off-Gas	374
3	Fluorocarbon Absorption Process for ¹⁴ CO ₂ Removal from..... Dissolver Off-Gas	376
1	Conceptual Process for Containment of Ruthenium During..... Fluid-Bed Calcination of Commercial Waste	381
141	Pressurized Cylinder Storage Facility for ⁸⁵ Kr	389
2	Representation of Sodalite Crystals Containing Krypton	390
	Atoms	

3	Calculated Release of Original ⁸⁵ Kr Inventory from Sodalite... 391 as a Function of Time	391
4	Process for High Pressure Encapsulation of ⁸⁵ Kr in Zeolite ... 393	393
1	Tritium Fixation by the Polymerization of Tritiated Acetylene... 402 and Incorporation into Cement-Concrete	402
2	Bakelite Resin Process for Tritium Fixation	404
3	Process for Tritium Fixation in Polyacrylonitrile	405
4	Process for Tritiation of Polystyrene	405
5	HT Fixation with Metal Hydrides	408
15.1	Disposition Criteria Matrix	436
16.1.1	Estimated Energy Recoveries for Selected Fission Products ...	442
16.4.1	Conceptual Processing Sequence for the Removal of Actinides	448
16.4.2	Conceptual Flowsheet for Solvent Extraction Processing of ... Irradiated LWR Fuel, with Waste Fractionation and Recycle of Heavy Metal and Nitric Acid Values	448

LIST OF TABLES

6.1 Radioactivity Decay Heat Generation Rates 9

6.2 Composition of HLLW 10

6.3 Plant Design Factors as Affected by Choice of HLLW Solidification Process 19

6.4 Development Status of HLLW Solidification Processes 21

6.5 International Plans for Solidification of HLLW 39

6.6 Borosilicate Glass Characteristics 40

6.7 Characteristics of Waste Management Alternatives 91

6.8 Advantages, Disadvantages and Status for NFS Waste Management Alternatives Based on ERDA Processes 95

6.9 Estimated Research and Development Activities and Timing to Routine Operation 97

6.10 Summary of Characteristics of Stored Forms for ERDA Wastes 99

7.1 Apparent Effects of Selected Factors on the Pyrophoricity of Zirconium 109

7.2 Process-Product Characteristics and Status 112

7.3 Densification Process--Mass Volume Summaries 113

7.4 Summary of Sorting Criteria 114

9.1 Plastic and Rubber Materials Commonly Found in Combustible Solid Radioactive Wastes 164

9.2 Characteristics and Source of Combustible Wastes 166

9.3 Incinerators Used for Combustion of Radioactive Solid Wastes 169

9.4 Processes Under Development for Combustion of Radioactive Combustible Solid Wastes 172

12.1 Waste Characteristics 278

12.2 Immobilization Alternatives 279

12.3 Comparison of Available Immobilization Technologies 280

12.4 Typical Cement Compositions 292

12.5 Typical Cement-Radwaste Formulations 294

126	Formulations for Solidifying Radwastes with Portland Cement - Sodium Silicate296
131	Annual ⁸⁵ Kr Storage Requirements for a 1500 Tonne/Yr Reprocessing Plant328
1	Approximate DF's for Ruthenium Across Off-Gas Components	...380
141	Tritiated Water Produced by 5 MT/day Reprocessing Plant410
151	Acceptable Surface Contamination Levels435
152	Recommended Interim Standards for Plutonium Soils436
161	Volume of Wastes Generated by Recovering 95% of the Cesium and 70% of the Strontium 1 Liter of High-Level Waste444

5.0 燃料再処理の部分的修正

現在再処理で実用されている方法には次の理由で管理が困難な廃棄物を生ずるものがある。すなわち、不適当に発生量が大いあるいは処理操作及び安定な固体中への放射性同位体の固定操作を妨害する物質を含む場合である。廃棄物の処理方法は“少い試薬添加”フローシートを特に目的とした修正を行って改善できるが、これには実質的にすべての低、中レベル廃液をリサイクルあるいは統合し、処理が面倒になる試薬を排除し、廃棄物を生ずる作業をよりよく管理しなければならない。

この概念の長期目標は、生ずる全廃棄物を容器に封入して最終隔離に備えうるように再処理と結びつけて、廃棄物管理をできるだけ単純化することにある。この種の処理法の全体的なフローダイアグラムを Fig. 5.1 に示す。単純化の主要な特色は、廃棄物の流れに応じた特殊な方法を開発する代りに、若干の用途の広い処理及び容器封入法のみを利用することである。これは用途の広い方法が開発可能であり、しかも必要な場合にはこの廃棄物管理法に適した廃棄物を生ずるように再処理方法を部分的に修正することを前提としている。換言すれば、廃棄物の処理及び容器封入法が開発され完成するにつれて、再処理法の部分修正に関する絶えざる開発計画が必要となる。

上記は究極的な長期目標であって、改良のすべてを現存あるいは完成間近の再処理施設に組込むことはできないが、現存する再処理施設での実証に間に合うように多数のプロセスの改良を開発することは可能であり、以下に論ずる項目の多くはこのカテゴリーに属するものである。

進歩した再処理施設で生ずる廃棄物の発生源と種類を記したフローシートを Fig. 5.2 に示す。もちろん、これには実際に生ずる廃棄物の流れ、その容量及び組成の詳細ならびにリサイクルすることを想定している多くの中・低レベル廃液も示してない。将来開発を要する主要なものは、特定のプロセス条件及び実際の工場の操作にもとづいた詳細な物質収支図の作成である。次節以下に工場運転経験で確認されている問題のあるいくつかの分野について詳述する。

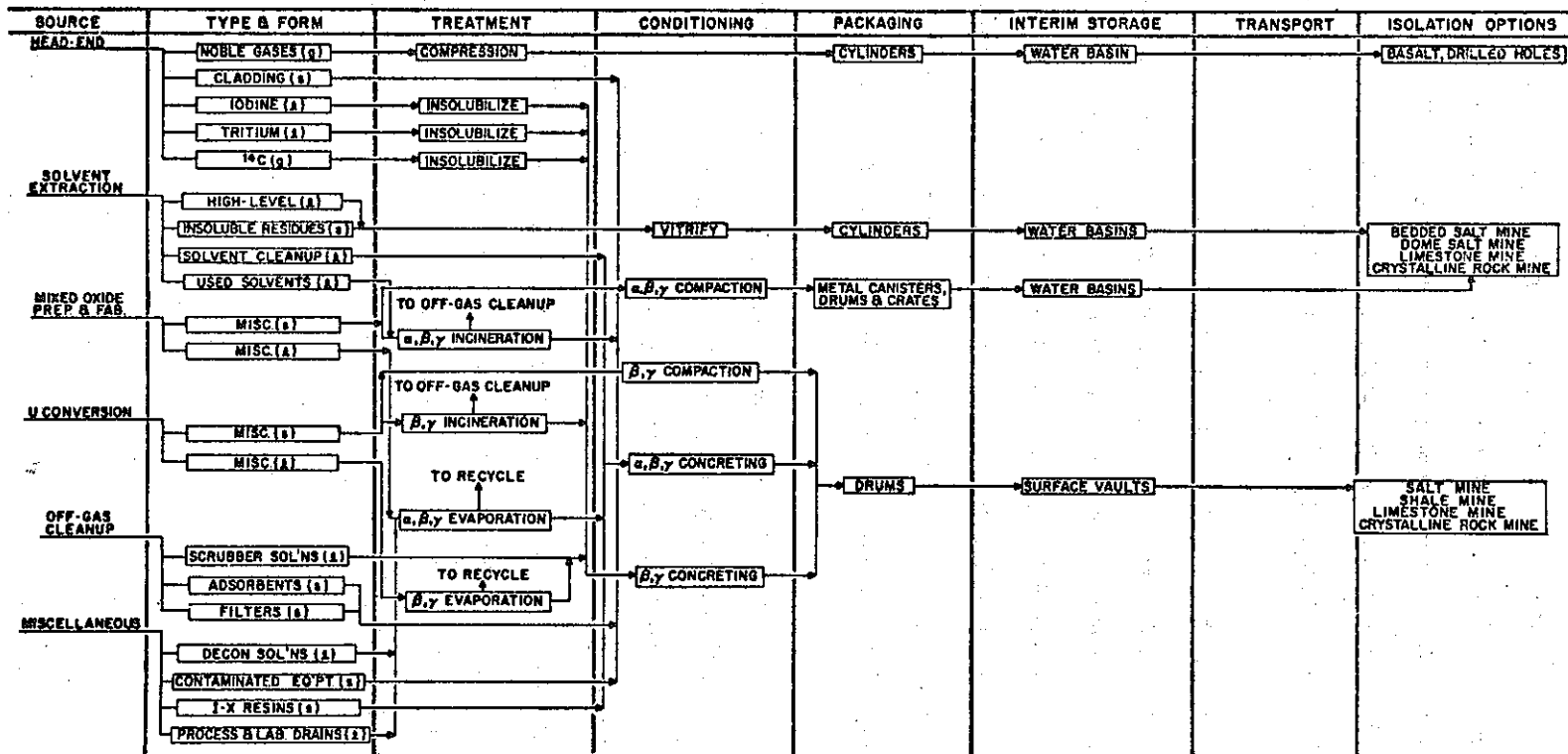


FIGURE 5.1. Basic Flowsheet for Treatment of Fuel Fabrication and Reprocessing of Wastes

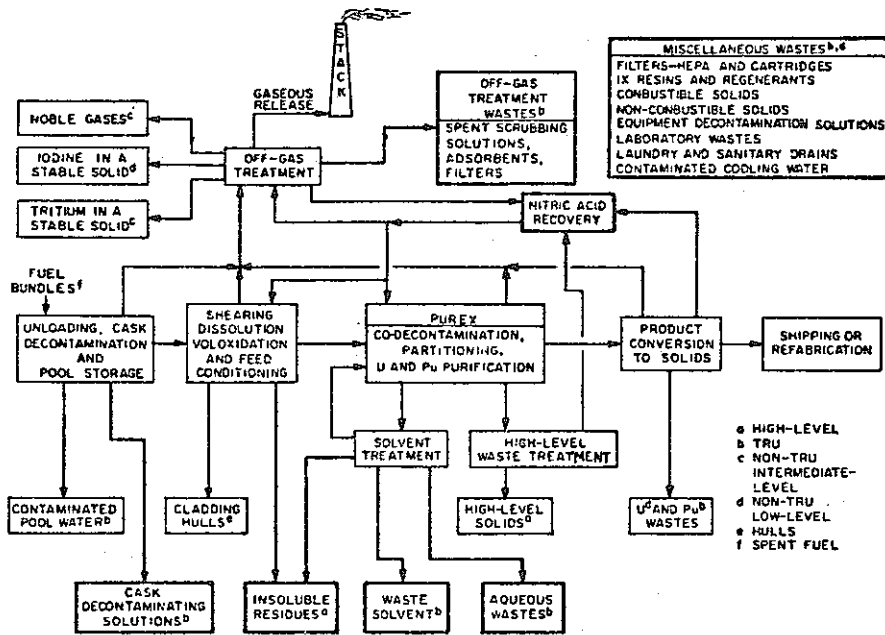


FIGURE 5.2. Generic Flowsheet Depicting Origins and Types of Wastes Generated in Fuel Reprocessing

5.1 再処理で生ずる不溶性残渣

これらの固体は廃棄物管理と再処理工場作業の両方で問題となり、まだ完全には解明されていない。すべての発生固体及びその量を確認するに十分なデータはまだ開発中である。もっとも厄介な固体は、燃料の前処理で生ずる金属被覆材の微粒子及びその次の酸化物燃料の湿式処理で生ずる不溶性残渣（主としてFPである貴金属、Zr、Mo及びNb）⁽¹⁻⁵⁾ であると考えられる。金属被覆材の微粒子は前処理ではせん断燃料から完全に分離できないので、その一部が溶解槽に入る。Zrの微粒子は自燃性であるため、これらの混合固体を廃棄物として取扱う場合に問題が生ずる可能性がある。

以前の商業再処理では、Purex法によるU及びPuの回収中はこれらの混合固体を水相給液中で流動状態に保ち、最後に高放射性廃液系に廃棄してきた。しかし、今後の工場では、次の2つの理由でこれらの固体を水相工程流から除去した方が得策であろう。すなわち、第1に固体によって惹起される再処理での潜在的な操作性の問題が取り除かれ、第2に中間廃液貯蔵あるいは貯留槽内での固体の偏在で生ずる問題は必ずしも些細ではないからである。これらの偏在した放射性固体は貯蔵槽から除去するのが非常に困難であり、さらに廃液の固化処理で処理配管系を閉塞させ、操作性上の問題を起す可能性がある。

上述の問題を防止するには、工程流中の固体は単独の廃棄物とするために別々に除去・処理すべきであろう。各種の工程流中の固体の化学的特性、量及び粒度分布に関するデータは十分でないので、最善の固体除去法を決定するには開発研究が必要と考えられる。

5.2 リサイクルする溶媒の処理及び廃溶媒の処分

現行及び近い将来の再処理工場ではリン酸トリブチル(TBP)抽出法を用いるが、この場合抽出効率を維持するために有機溶媒の処理作業を定常的に行う。この種の処理では普通アルカリと酸洗浄(時にアルカリ性過マンガン酸溶液)を組合せて使い、TBPの加水分解生成物(すなわち、HDBP、H₂MBP及びリン酸)、残存FP、U、Pu及び限られた量の炭化水素溶媒の劣化生成物を除去する。化学的及び放射線分解的なTBP抽剤の劣化ならびに溶媒処理法は、数人の研究者が再調査している。⁽⁶⁻⁸⁾ この種の処理法の大きい欠点は、処理及び長期の隔離が必要な程にFP及びアクチノイド元素で十分に汚染された大量のアルカリ性廃液を発生することである。この種の廃棄物管理上の問題を最小にする溶媒処理法は一つの代替法となろう。

将来可能性のある溶媒再生法の候補には、有機塩基類などのアルカリ試薬、macroreticular^(9,10)樹脂及び蒸留による方法がある。これらの各種方法は、溶媒を本質的に最初の特

性（すなわち、低い Pu の保持量と良好な抽出性）に戻すと考えられる。これらの処理法が開発されると廃棄物の量は激減し、次の廃棄物処理に有害な多くの物質の混入を防ぐことができよう。

廃溶媒の処分は普通焼却により行なうが、多くの場合溶媒の焼却作業ではリン酸塩の溶融、可燃性有機硝酸塩による潜在的危険、及び固体の閉塞に起因する問題を生ずる。さらに、バーナのオフガス系には CO_2 、水分および捕集して処分しなければならない揮発性の有機物が含まれる。

その他の方法として開発が計画されているものに、化学的分解法（酸及びアルカリによる^(11,12) 2つの方法）、鹼化法、ギ酸またはフォルムアルデヒド反応法及び接触酸化法がある。普通これらの反応で生ずる副産物は第3リン酸ナトリウム及びブタノールであり、ブタノールを TBP に転換してリサイクルする可能性は考えられる。

5.3 水相廃液のリサイクル

例えば U 及び Pu 精製サイクルから生ずる廃液などをより効果的に管理するには、廃液を一層広範にリサイクルしまた硝酸回収量を上げることであろう。リサイクル量を増大するには、試薬類の添加量が低くかつ添加によってプロセスに支障を生ずる不純物の蓄積がない改良 Purex 法フローシートを開発する必要がある。今までは、米国のすべての再処理工場では定常的に相当量の試薬（亜硝酸ソーダ、スルファミン酸第1鉄及び炭酸ソーダ）を用いている。Allied-General Nuclear Services (AGNS) のような最新の工場は、工程からスルファミン酸第1鉄及び亜硝酸ソーダを排除することを企図しているが、これによって多くの水相廃液流のリサイクルが可能となり、また廃液固化において Na 及び硫酸塩が関与する問題が軽減すると思われる。AGNS はスルファミン酸第1鉄の代りに電解還元を、また亜硝酸ソーダの代りに酸化窒素を用いる計画である。^(13,14) ヨーロッパの再処理工場ではスルファミン酸第1鉄の代りに硝酸ウラナス ($\text{U}(\text{NO}_3)_4$) を用いているが、この結果明らかにリサイクルの必要条件に適合した廃液流がえられる。⁽¹⁵⁾ 電解酸化は酸化窒素ガスに替る方法となりうるかも知れない。⁽¹⁶⁾ 酸性廃液流をリサイクルする満足な方法が開発された場合は、廃液流の数と種類がへり、硝酸利用率が向上し、また U 及び Pu の回収率が向上するかも知れない。

廃液リサイクルの技術開発が成功するかどうかは、U 及び Pu の回収ならびに工場運転に有害な不純物が蓄積しないようにリサイクルできるかどうかによってきまる。著しい不純物の蓄積が、有機物及びリン酸塩などの溶媒劣化生成物、シリカ、塩化物及びその他の試薬中の不純物、ふしよく生成物ならびに FP の Ru などによって生ずる可能性がある。不純物

の種類及び量ならびにその蓄積による有害な影響の有無を決めるためには広範な開発研究が必要である。万一有害な影響を生ずる程に不純物が存在しても、満足な運転ができるようなレベル迄その量を減らす方法の開発は可能であると思われる。

5.4 オフガス処理より生ずる廃棄物

オフガス洗浄よりの廃棄物管理にかかる負担は、これらの廃棄物中の液体と試薬がリサイクルできれば大巾に軽減する。気体廃棄物中のKg量のI及び窒素酸化物を除去するため、再処理工場で好んで用いられる1次処理法は無機塩類水溶液による洗浄である。Iに対して希望する総括除染係数を得るためには2次処理が必要であるが、これらの作業(例えば、銀ゼオライト固体への吸着)では大量の廃棄物は生じない。

廃液のリサイクルの可能性があり、またIの濃縮物を生ずる処理法の開発努力は行なわれている。Iodox法(第13章参照)がその1例である。Iodox法では洗浄剤(濃硝酸)をリサイクルしIは酸化物固体の形で除かれるが、解明を要する主要な問題は操業時の放射能レベルにおけるこの処理法の性能及び操作性である。現在はトレーサレベルの研究にもとずいて化学的及び装置的なフローシートが作られた段階であり、Iの除去に関するリサイクル硝酸中の不純物の蓄積(可溶性及び微粒子)の影響ならびに工場のふしょくの問題は未調査である。

Iodox法で用いる濃硝酸のほか、アルカリ洗浄液あるいは硝酸第2水銀・硝酸洗浄液も潜在的に高いIの除去効率を有すると思われる。ここではこれらの試薬を選択する経済的及び技術的基準を十分明確にはしていないが、これらの試薬による処理法の不都合な点は解決しなければならない。現時点では、これらの試薬がリサイクル可能かまたはこれらの試薬を含む洗浄廃液をIの貯蔵に好ましい形に変換できるか明確ではない。水銀塩類をリサイクルする方法の開発(例えば、金属水銀に電解還元する)は可能であろうが、硝酸塩類を含むアルカリ廃液からアルカリを再生してリサイクルすることは実現不可能と考えられる。有毒で揮発性の元素状水銀は廃棄物を貯蔵に適した固化体にする場合に特に問題となるが、アルカリ廃液を固体のナトリウム塩に変換して他の固化体にすることは可能である。

5.4.1 除染作業より生ずる廃液

セル区域、装置及びプロセス配管の除染で生ずる中・低放射性廃液の量は普通一定ではなく、除染開始前のプロセス運転および採用する保守の方法によって変動する。除染廃液の収集と処分は、この廃液が多種多様の試薬を含み、しかもその多くが既存の固化法に適さないために複雑になることが多い。除染によく用いられる試薬にはフィルム剝離剤、緩衝剤、ふ

しよく防止剤，錯化剤，酸化及び還元剤ならびに界面活性剤などがある。

除染作業は希望する除染の程度によって決めた濃度及び量の一連の試薬類を用いて実施するのが普通である。化学的な方法に加えて，サンドブラスト，ブラシ掛け，拭取り及び超音波洗浄などの物理的な方法もよく用いられる。これらの手順を簡単にし，使用薬品を最終貯蔵に適した安定な固体形に処理可能なもののみに限定するには，精密な事前評価が必要となる。

REFERENCES

1. The Light Water Reactor Fuel Cycle, (compiled and edited by the Staff of the Advanced Operational Planning Division), DPST-75-450, E. I. duPont de Nemours and Co., Aiken, SC, p. 7-4, September 1975.
2. J. H. Goode, C. L. Fitzgerald, and V. C. A. Vaughn, The Dissolution of Unirradiated and Irradiated (U,Pu)O₂ in Nitric Acid, ORNL-5012, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, February 1975.
3. D. E. Ferguson et al., Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending March 31, 1975, ORNL-5050, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, p. 9, October 1975.
4. W. D. Bond and R. E. Leuze, Feasibility Studies of the Partitioning of Commercial High-Level Wastes Generated in Spent Nuclear Fuel Reprocessing, ORNL-5012, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, January 1975.
5. J. W. Bartlett, L. A. Bray, L. L. Burger, R. E. Burns, and J. L. Ryan, Feasibility Evaluation and R&D Program Plan for Transuranic Partitioning of High-Level Fuel Reprocessing Wastes, BNWL-1776, Battelle Northwest Laboratories, Richland, WA, November 1973.
6. D. A. Orth and T. W. Olcott, "Purex Process Performance Versus Solvent Exposure and Treatment," Nucl. Sci. Eng. vol. 17, p. 593, 1963.
7. C. A. Blake, Jr., W. Davis, Jr., and J. H. Schmidt, Properties of Degraded TBP-Amsco Solution, ORNL-4212, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, March 1968.
8. A. J. Huggard and B. F. Weaver, "Investigations to Determine the Extent of Degradation of TBP Kerosene - Windscale," Nucl. Sci. Eng. vol. 17, p. 638, 1963.
9. W. W. Schultz, Macroreticular Ion Exchange Resin Cleanup of Purex Process TBP Solvent, ARH-SA-58, Atlantic Richfield Hanford Co., Richland, WA, August 1970.
10. W. W. Schulz, Macroreticular Anion Exchange Cleanup of TBP Solvent, ARH-SA-129, Atlantic Richfield Hanford Co., Richfield, WA, May 15, 1972.
11. Jahresberichte der Abfalle Dekontamin, KFK-1030, Karlsruhe, W. Germany, 1970.
12. Jahresberichte der Abfalle Dekontamin, KFK-1346, Karlsruhe, W. Germany, 1971.
13. R. I. Newman, "The Barnwell Nuclear Fuel Plant," Nucl. Eng. Intern. vol. 17, pp. 938-41, 1972.
14. Final Safety Analysis Report - Barnwell Nuclear Fuel Plant, Separations Facility, Admendment No. 6, Docket 50-332, Allied-General Nuclear Services, Barnwell, SC, August 1975.
15. J. Mamelle, "Experience in the Reprocessing of Irradiated Fuels in France," Nucl. Eng. Intern. vol. 17, pp. 709-710, 1972.
16. H. Schmieder, F. Baumgärtner, H. Goldaker, and H. Hausberger, Elektrolytische Verfahren in Purex Process, Karlsruhe, W. Germany, KFK-2082, 1975.

6.0 高放射性廃液の固化

米国の政策は、使用済燃料の再処理から生ずる高放射性廃液（HLLW）を下記の条件を満足する乾燥固体に変換するにある。⁽¹⁾すなわち、この固体は容器封入直後から政府貯蔵所で受入れ（物理管理の移管）した後少なくとも90日の間、密封容器（canister）内の平衡圧力がその容器の安全操作圧力以下である程度に化学的、熱的及び放射線分解的に安定でなくてはならない。現在米国内には稼働中の軽水炉燃料用の再処理工場がないので、HLLWの固化は実施されていない。

HLLWの固化は商業的には実施されていないが、米国及び海外における過去20年の研究開発の結果、商業用工場での実証段階にある数種の固化方法があり、その他にも開発計画を変更すれば適用可能なものがある。

6.1 発生する廃棄物の特性

発 生 源

使用済燃料要素は再処理工場で硝酸に溶解され、U及びPuは回収して燃料サイクルで再使用される。U及びPuを回収した後に残る溶液は、原子炉内の核分裂で生じたFP及びアクチノイド類を含み、高放射性廃液（HLLW）と呼ばれる。より技術的に言えば、HLLWは再処理施設の第1共除染サイクルよりの水相廃液である。再処理工場の第2サイクルからの水相廃液は、普通第1共除染サイクルにリサイクルされる。給液清澄化工程で遠心分離した固体も普通HLLWとなる。

容 量

HLLWの発生量は処理U1メトリック・トン当たり約5000ℓであり（ℓ/MTU）、これは600～1,100ℓ/MTUに濃縮減容したのち暫定廃液貯槽に送る。HLLWの暫定貯蔵は19章でのべるが、固化処理に先立ってHLLWはさらに約380ℓ/MTUに濃縮されるかもしれない。

熱の発生

放射性崩壊に伴うHLLWからの発熱量を、原子炉からの排出後の時間との関係でTable 6.1に示す。発熱量は燃料の比出力及び炉内滞留時間にほぼ正比例する。Tableに示した値は比出力35MW/MTU、燃焼度25,000MWd/MTUの代表的軽水炉燃料に関するものであるが、将来20～30年間はこの種の燃料が再処理されると考えられる（第3章参照）。

Table 6.1. Radioactivity Decay Heat Generation Rates

<u>Time Out of Reactor</u>	<u>KW/MTU</u>
160 days	18.5
1 year	9.2
10 years	0.86

組 成

HLLW は硝酸塩類を含む硝酸溶液であり，成分は不活性物，FP及びアクチノイド類の3つに大別される (Table 6.2)。Table より明らかなように HLLW の組成は相当に変動する。

不活性物は非放射性の成分であって，これらは装置の腐蝕 (Fe, Ni, Cr)，溶媒の劣化 (PO_4^{3-}) 及び再処理で添加する試薬類 (Na, Fe, Gd, Cd, B, F など) に起因する。再処理での試薬の添加量が HLLW の組成変動の最大原因であり，従ってこれがそれ以降の HLLW の処理に最も大きい影響を及ぼすことになる。試薬の添加量は調節可能であってシステム的な対策方法はある。また，HLLW の管理に及ぼす影響は再処理工場のフローシート の設計に織込むことができる (第5章参照)。

HLLW 中の FP の量は使用済燃料中に最初に含まれる不揮発性 FP の 99.99% 以上に相当する。揮発性ではあるが相当の I (全量の 0.1 ~ 5%) が HLLW 中に残るので，すべての HLLW 処理用オフ・ガス施設には I 捕集系が必要である。

HLLW 中の U 及び Pu の濃度は再処理工場の効率に左右されるが，HLLW 中への U 及び Pu の損失は使用済燃料中の存在量に対して普通 0.1 ~ 2% である。燃料中の 99.99% 以上の他のアクチノイド類は HLLW に入る。

HLLW に組入れられる可能性のある他の廃棄物

再処理施設内の他の廃液も，これらの廃液を混合した方が有利と考えられる場合には，HLLW に包含される対象となる。この種の廃液には下記のものがあり，通常1つにまとめて中放射性廃液 (ILLW) と呼ばれる。

- サンプル及び試薬類を含む研究室よりの廃液
- 同伴及び劣化溶媒を含む溶媒洗浄廃液
- オフガス・スクラバー廃液
- ヨウ素スクラバー廃液
- 燃料の受入れ・貯蔵廃液 (イオン交換再生，カスク除染，カスク冷却系廃液など)
- 溶媒バーナ・クエンチポットスクラバー (quench pot scrubber) 廃液

TABLE 6.2. Composition of HLLW

	Concentration, moles/l @ 378l/MTU			Kilograms Nonvolatile Oxide/MTU	
	Constituent	Possible Range	Reference for this Document ^(a)	Constituent	Reference for this Document
<u>Inerts</u> (Reprocessing Chemicals)	H ⁺	1-7	2.0	---	---
	Na	0-3.0	0.01	Na ₂ O	0.12
	Fe	0.05-1.4	0.054	Fe ₂ O ₃	1.6
	Cr	0.01-0.04	0.0096	Cr ₂ O ₃	0.28
	Ni	0.005-0.02	0.0034	NiO	0.19
	PO ₄ ⁼	0.025-0.30	0.042	P ₂ O ₅	1.1
	SO ₄ ⁼	0-0.90	0	SO ₄ ⁼	0
	NO ₃ ⁻	2.7-20	3.6	---	---
	F ⁻	0-0.25	0	F ⁻	0
	Gd ^(b)	0-0.2	0.150	Gd ₂ O ₃	10.0
	B ^(b)	0-5.0	0	B ₂ O ₃	0
	Cd ^(b)	0-1.5	0	CdO	0
				Subtotal	13.0
	<u>Fission Products</u>	Rb	(c)	0.0095	Rb ₂ O
Sr		(c)	0.017	SrO	0.68
Y		(c)	0.0095	Y ₂ O ₃	0.41
Zr		(c)	0.074	ZrO ₂	3.5
Mo		(c)	0.071	MoO ₃	3.9
Tc		(c)	0.017	Tc ₂ O ₇	1.0
Ru		(c)	0.044	RuO ₂	2.2
Rh		(c)	0.011	Rh ₂ O ₃	0.53
Pd		(c)	0.030	PdO	1.4
Ag		(c)	0.0015	Ag ₂ O	0.067
Cd		(c)	0.0016	CdO	0.078
Sn		(c)	0.0009	SnO ₂	0.052
Sb		(c)	0.0002	Sb ₂ O ₃	0.013
Te		(c)	0.0078	TeO ₂	0.47
Cs		(c)	0.039	Cs ₂ O	2.2
Ba		(c)	0.023	BaO	1.3
La		(c)	0.078	La ₂ O ₃	1.1
Ce		(c)	0.034	CeO ₂	2.2
Pr		(c)	0.016	Pr ₆ O ₁₁	1.1
Nd		(c)	0.055	Nd ₂ O ₃	3.5
Pm	(c)	0.0005	Pm ₂ O ₃	0.035	
Sm	(c)	0.012	Sm ₂ O ₃	0.80	
Eu	(c)	0.002	Eu ₂ O ₃	0.13	
Gd	(c)	0.001	Gd ₂ O ₃	0.076	
			Subtotal	27.0	
<u>Actinides</u>	U	0.011-0.22	0.053	U ₃ O ₈	5.7
	Np	(c)	0.003	NpO ₂	0.31
	Pu	0.0001-0.006	0.002	PuO ₂	0.17
	Am	(c)	0.009	Am ₂ O ₃	0.96
	Cm	(c)	0.003	Cm ₂ O ₃	0.26
			Subtotal	7.4	
			Total	47.0	

- a. The reference HLLW is representative of a large state-of-the art commercial reprocessing plant such as BNFP.
- b. Potential soluble poisons which may be used during fuel dissolution.
- c. Depends upon burnup of the fuel being reprocessed, should not vary over a factor of two from the reference waste composition (burnup=25,000 Mwd/MTU).

- 建屋及び機器除染廃液
- 建屋床排水
- 身体除染施設よりの廃液
- 試薬調製区域よりのコールド試薬廃液

代表的な I L L W の物理的及び化学的組成は 2 章に示した。H L L W 処理の融通性を論ずる場合には I L L W を混合する影響が考慮される。I L L W の量と組成は多少変動するので処理法に融通性が要求される。例えば、広範囲にわたる保守期間中は、大量の施設内廃液及び除染廃液が一度に生ずるが H L L W は発生しない。一方、運転期には、溶媒洗浄廃液、燃料の受入れ貯蔵廃液及び研究室よりの廃液が主要な I L L W 発生源と考えられる。I L L W の主成分は Na であるが、多くの微量の成分が特に除染剤に起因して含まれる可能性が多い。

まだ実証されていないが、使用済燃料被覆材のような高放射性固体廃棄物も H L L W 固化体に密封しうる可能性がある。

6.2 固化処理法に共通した特徴

すべての固化処理法には共通した多くの局面があり、個々の固化処理法を説明するに先立ってこれらの共通した面をまとめてのべる。

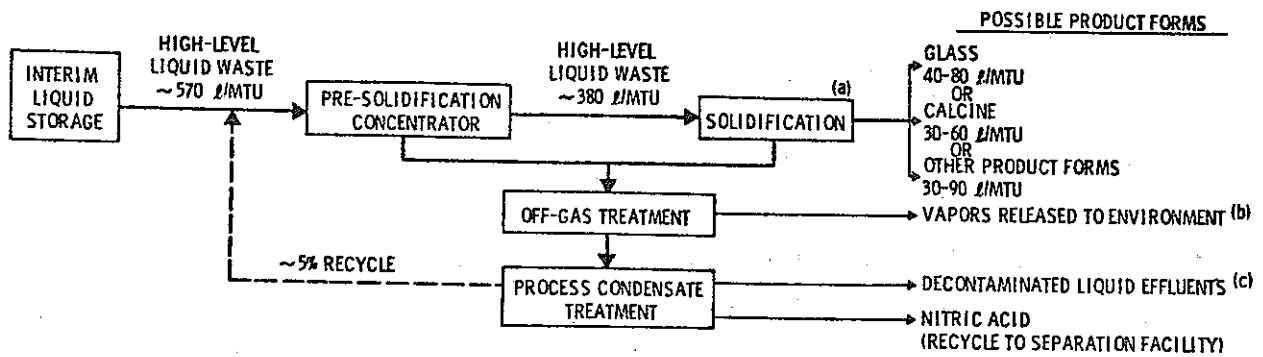
H L L W 固化処理の役目は高放射性の F P 及びアクチノイド類を含む液体を安定な固体に変換するにある。処理中に H L L W の容積は 5 ~ 10 倍減少し、固体、気体及び液体の 2 次廃棄物が生ずるが、これらの 2 次廃棄物の概算量を Fig. 6.1 に掲げる。

H L L W 固化処理法には次の工程があり、主要施設はこれらの機能を持たせて設計・建設しなければならない。

- 給液の調整
- 固化
- 固化生成物の容器封入
- 2 次廃棄物の処理

処理の概要と設計上考慮すべき事項

H L L W 固化施設などの主要施設の詳細設計を開始するに先立って、数種のパラメータを決める必要がある。一般にこれは計画の検討段階で行なわれ、設計基準を決めて正式となる。H L L W 固化処理法の選定に関して、相関連する少くともつぎにのべるパラメータは考慮しなければならない。



- (a) THE OPERATION OF AN HLLW SOLIDIFICATION FACILITY WILL ALSO GENERATE BETWEEN 0.2 AND 0.8 m³/MTU OF MISCELLANEOUS SOLID RADIOACTIVE WASTE, INCLUDING NONCOMPACTED GENERAL PROCESS TRASH, ION-EXCHANGE AND ADSORPTION BEDS AND FAILED PROCESS EQUIPMENT.
- (b) THE VOLUME OF GASES RELEASED, INCLUDING BUILDING AND CELL VENTILATION, WILL BE 2-3000 m³/min.
- (c) THE DECONTAMINATED LIQUID EFFLUENTS RANGE FROM 600-1800 t/MTU AND MAY OPTIONALLY BE VAPORIZED FOR INCLUSION WITH THE GASEOUS EFFLUENTS.

FIGURE 6.1. Generalized Function of HLLW Solidification Processing

処理容量

固化施設の容量は再処理施設の容量と同じでなければならない。しかし、HLLWの暫定貯蔵系の余裕容量ならびに両施設の運転及び保守モードによっては、15~20%の余裕のある容量とすることが望ましい。本書では、HLLW固化処理は1,500 MTU/年(300日稼働として5 MTU/日を想定)の再処理工場に直結するものを仮定する。

廃棄物に対する必要な除染係数

HLLW固化施設よりの廃棄物処理システムの設計は、環境に放出するすべての廃棄物が合理的に実現可能なかぎり低いこと(ALARA)という規制条件下で行なわれよう。気体及び液体廃棄物に対する除染係数は、10⁹~10¹⁰の範囲と予想される。

遠隔保守のモード

まず考慮すべきことは、固化処理装置はこれに密接に関連する支援装置類と同様に遠隔保守にならざるをえないことである。遠隔保守モードはキャニオン及びクレーンを用いて行う作業からマスタースレーブ・マニピュレータによるものまでであるが、どの方式によるかは固化処理装置の規模及び複雑さならびに工場の運転フィロソフィーで決められよう。遠隔保守モードの選定ではプロセス及び遠隔保守の監視方法も対象となるが、これには監視窓、テレビ及び光学装置などがある。

支援システム

固化施設には支援システムが必要であり、その規模は選定する固化処理法によって異なり、処理系が2系統の場合には支援システムもより大きくなる。これらシステムの正確な規模及び構成は詳細設計時に決められるが、計画の段階でも十分考慮しなければならない。これらのシステムには下記のものがあるが、もちろんこれだけに限定されるものではない。

1. 従業員用施設
2. 制御室施設
3. 配管及び計器区域
4. 電力、蒸気、冷却水及び空気供給系などのユーティリティ
5. 保守区域
6. 貯蔵及び積出し施設
7. 建屋及びセル換気
8. 防火施設
9. 防護システム

給液の調整

代表的なHLLW固化の給液調整システムの概要をFig. 6.2に示す。まずHLLWを暫定貯槽（HLLWの暫定貯蔵は19章でのべる）から固化施設の第1給液貯槽にバッチ的に移送する。HLLWの発熱量は大きい（Table 6.1）ので、この受槽には冷却コイルまたは冷却水ジャケットが設けられよう。さらに、この受槽にはかくはん、オフガス処理、計装及び試料採取系が設けられよう。

固化処理装置への必要熱エネルギー供給量を減らすため、固化に先立ってHLLWを濃縮するのが普通である。1例を挙げれば、HLLWは1,100ℓ/MTUの容量で貯蔵し、380ℓ/MTUあるいはこれ以下に濃縮して固化装置に送り込まれる。濃縮にはサーモサイフォン型蒸発缶が普通採用される。蒸発缶設計上の特色は、オフガス及び凝縮液中の放射性物質含有量を最低限にする点にある。このためには蒸発缶の分離部での蒸気速度を小さくし、分離部にバフプレートあるいはバブルキャップを設け、さらにオフガス出口にデミスタを設置するなどの対策が必要となる。

固化処理中のRuの除去率を向上させるため、濃縮工程で遊離硝酸濃度を低くすることが望ましいと考えられる。後述するように、西独及びフランスのHLLW固化処理法では脱硝操作は必要不可欠のものであり、ギ酸、フォルムアルデヒドあるいは砂糖などの有機化合物がこのために用いられている。

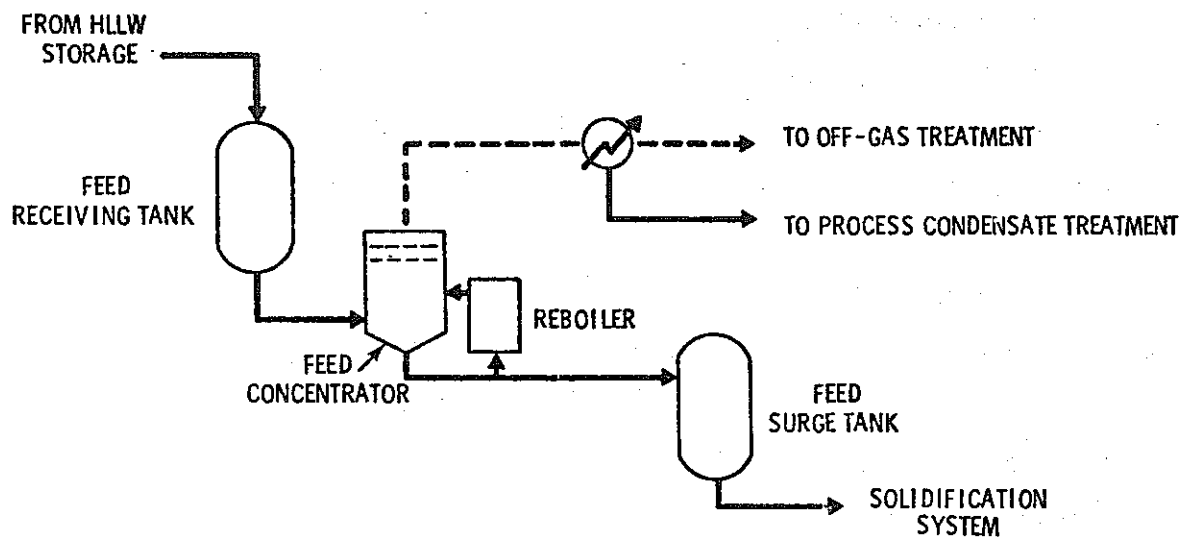


FIGURE 6.2. Typical HLLW Solidification Head-End System

固 化

固化工程の一般的な議論は、この段階で利用される処理方法が多様多様なので適当ではない。従って、一般的な処理方法の説明を行なったのち、候補となる固化処理方法を個々に詳述する（6.3節）。

固化したHLLWの密封梱包

HLLWの固化生成物は密封した円筒状容器（canister）に収納されると考えられ、容器の材質としてはステンレス鋼及びその他の候補となる材質が調査されている。容器の設計は取扱い、暫定貯蔵、輸送及び連邦貯蔵場における必要な条件に適合するものでなければならない。

容器の基準

HLLW固化生成物容器の設計基準はまだ詳細に定められていないが、現在最終貯蔵パイロットプラントの概念設計の予備研究段階で検討されている可能性のある限界値を示せば次の通りである。

- 最大直径, 40 ~ 60 cm
- 最大長さ, 3 ~ 4.5 m
- 最大発熱量, 2.9 KW/m (長さ方向)
- 最大放射線量, 容器表面のすべての点から1 mの距離で, 1×10^3 rem/時(中性子)及び 1×10^6 rem/時(r線)。
- 表面汚染は決められていないが, 連邦貯蔵所での許容汚染レベルを維持できるように十分に低いこと。

これらの制限値は, HLLW固化生成物が再処理工場を出た後, すなわち輸送中及び連邦貯蔵所において拘束的となる諸要因によって決まる点が注目される。例えば固化生成物の容器への充填時には, 発熱量及び放射線量の制限値をこえて差支えない。充填時の制限値は, 除熱能力ならびに容器中心線及び表面の許容温度である。充填後容器は再処理工場サイトで保管し, 発熱量と放射線量が連邦貯蔵所の受入れレベル迄減衰して始めて送り出される。

再処理工場における充填後の容器の処理

HLLW固化で重要なのは固化生成物を充填した後の容器の処理 (canister post-fill treatment) であり, これはどの処理法にも共通することである。この充填後作業を Fig.6.3 に示すが, 主要作業は容器の密封溶接と除染である。図示したように, その他に定常及び非定常の品質管理作業があり, これに熱量測定, 放射線分布測定, 容器の非破壊肉厚測定及び漏洩試験がある。ガラス質の廃棄物の焼鈍もこの段階で行なわれよう。

二重封じ込め (double containment, overpacking)

最初の高放射性廃棄物 (HLW) 容器をさらに第2の容器に封入する二重封じ込め (overpacking) 方法もある。今のところ “overpacking” は必要ではないが, 連邦貯蔵所で最終的に決められる容器の基準は “overpacking” で最も容易に満足できる可能性がある点は考慮すべきである。容器の表面汚染制限値があり容器が圧力容器の規制をうけるときは, 基準として “overpacking” を決めることになる。従って, “overpacking” が考えられる理由には次の事項が挙げられる。

1. 除染の単純化。第2の容器は汚染した処理セル内雰囲気にはさらされない。
2. 外側の封じ込め容器品質の向上。第2の容器は処理時の高温にさらされない (処理時の温度は処理方法によって異なるが, ガラス固化で $500 \sim 1,050^\circ\text{C}$, 仮焼で 900°C , その他の方法で 700°C)。ガラス固化生成物が入った最初の容器は, 固化生成物の熱膨脹係数がステンレス鋼より低い ($8 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 対 $17 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$) ので圧迫される可能性があるが, この容器の圧力を低減する方法が検討されている。

“overpacking” の欠点は, 容器内の含熱量を低減する必要があることと廃棄物封じ込めコストが高つくことである。

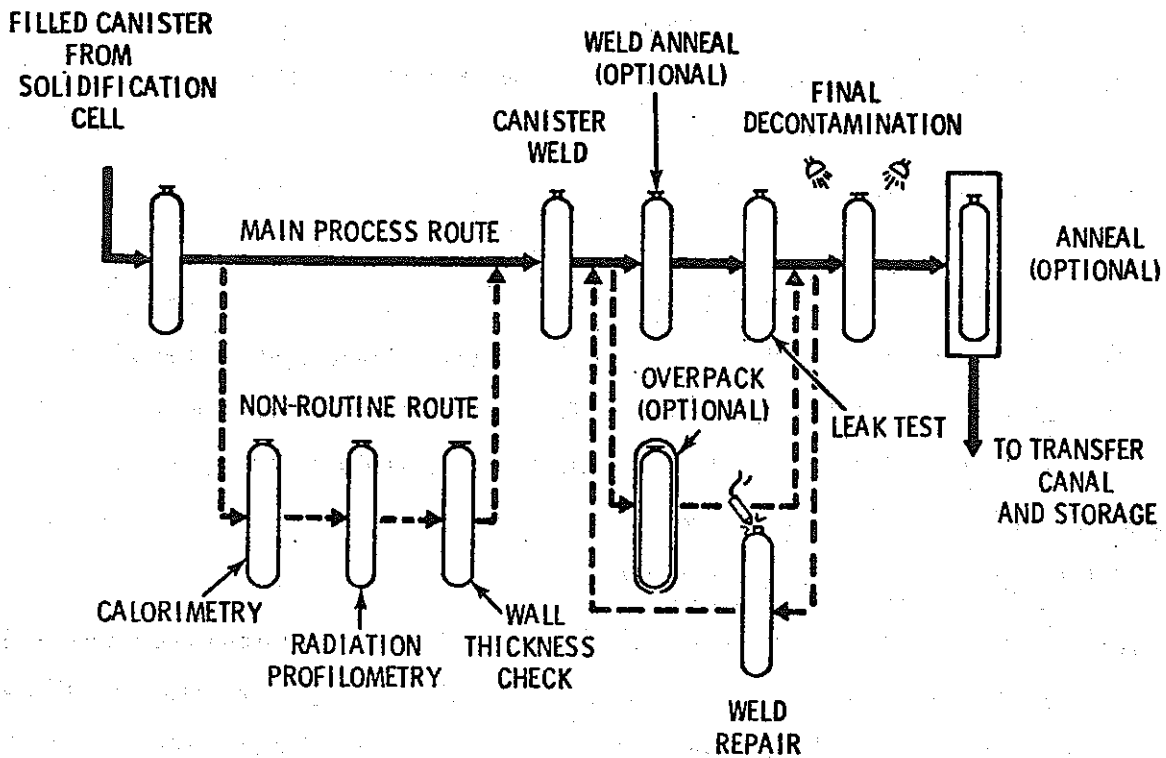


FIGURE 6.3. Typical Post-Fill Treatment of Solidified HLLW Canisters

2次廃棄物の処理

オフガス処理系（気体及び液体廃棄物）

オフガス処理系は固化施設で最も大規模で複雑なシステムであり、 $10^9 \sim 10^{10}$ の除染係数が要求される。

1つの処理装置でこのように大きい除染係数をえることはできないから、オフガス処理系は凝縮器、スクラバー、ろ過器及び濃縮器などの各種処理装置を直列にして構成される。代表的な固化処理法のオフガス処理系をFig. 6.4に示す。

オフガス処理系は次の3種の物質の除去作業（すなわち設計パラメータ）に対処する。

- ミクロン及びサブミクロン領域の微粒子
- 揮発性及び準揮発性元素及び化合物
- 窒素酸化物

オフガス処理系の最初の装置の1つは凝縮器であり、ここでオフガス中の非凝縮性成分から大部分の凝縮性成分を分離する。ほとんどすべての微粒子、多量の揮発性及び準揮発性成

分ならびに窒素酸化物の一部はこの最初の凝縮液中に入る。凝縮器の代りに quench scrubber を用いてもよい。この場合は、オフガスは液体で直接凝縮されて凝縮器と同じ機能がえられるが、放射能の低減効率は一般にさらに高くなる。

一般に最初の凝縮液中には多量の Ru が含まれるので、給液用濃縮器または特定の Ru 回収装置にリサイクルする。⁽¹³⁾ 給液用濃縮器または特定の Ru 回収装置からのオフガスに対しては、NO_x、微量の粒子物質、¹²⁹I 及び揮発性 Ru 化合物などについてさらに広範な除染作業が必要である。オフガスは次に凝縮器あるいは酸吸収器（給液濃縮器または Ru 回収装置でフォルムアルデヒドまたは砂糖が用いられている場合）に導かれる。さらに、オフガスと凝縮液及び吸収器の缶残液あるいはいずれか一方は酸精留器に送られここで硝酸が濃縮される。十分に除染されている場合の濃縮回収硝酸は再処理工場の溶解装置にリサイクルすることができるが、脱硝して蒸発缶に戻すこともできる。酸精留器の頂部からの凝縮液は、さらにイオン交換などで処理しないと環境に放出できないと考えられる。

酸精留器につづいて、オフガス主流は 1 段あるいはそれ以上の洗浄工程を通し、つぎに ¹²⁹I 吸着器（第 1 3 章参照）に導く。Ru 吸着器（第 1 3 章参照）を I 吸着器の前段に置くことも考えられる。つづいてオフガスは多分洗浄した後 2 ないし 3 段の高性能微粒子フィルタ（HEPA）を通して最終除染される。

オフガス処理系で採用される可能性のあるその他の処理装置には次のものがある。

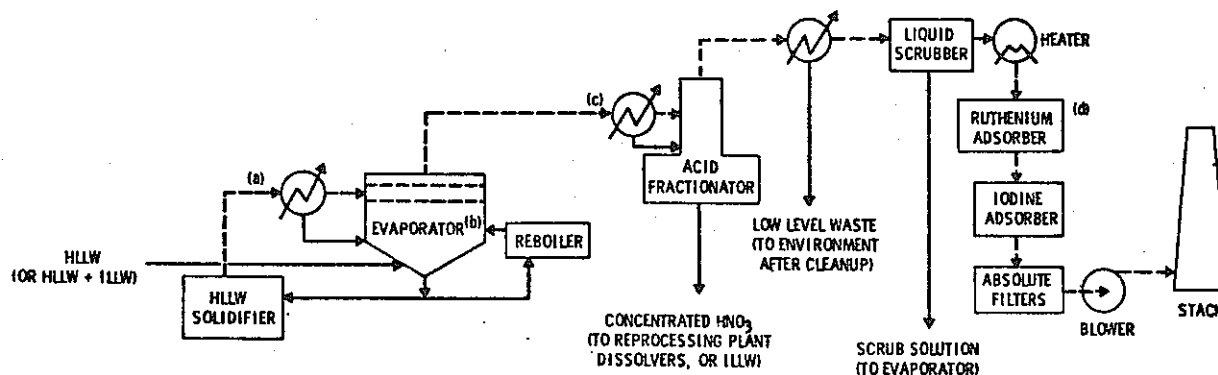
- 深床砂ろ過器
- 硝酸第 2 水銀洗浄器
- 静電集塵器
- 焼結金属ろ過器
- ベンチュリー・スクラバー
- Peabody スクラバー
- brink 同伴物質除去装置
- 脱湿器

これらの装置は特殊の用途を持ち、独自の問題の解決に利用することができる。

注意すべき他の重要な点は、固化装置が唯一のオフガス発生源ではないことであり、個々の処理装置、容器及び濃縮器から生ずるオフガスも処理システムに織込んでおく必要がある。

固体廃棄物

1 次固体廃棄物、すなわち固化した HLLW の容器以外に各種の固体廃棄物が生ずる。これには、I 及び Ru 吸着床、破損した装置及び一般のプロセス廃棄物などがある。



- (a) ALMOST ALL HLLW SOLIDIFIER SYSTEMS HAVE A PRIMARY FILTER OR REFLUX SCRUBBER AS AN INTEGRAL PART OF THE SOLIDIFIER SYSTEM.
- (b) "FEED CONCENTRATOR" SHOWN IN FIGURE 6.2 MAY ALSO SERVE AS THIS EVAPORATOR.
- (c) DENITRATION, IF USED, MIGHT REQUIRE ADDITION OF AN ACID ABSORBER AT THIS POINT.
- (d) RUTHENIUM ADSORBER LOCATION IS OPTIONAL, MAY NOT BE REQUIRED WITH CERTAIN SOLIDIFIERS.

FIGURE 6.4. Typical HLLW Solidification Off-Gas Treatment

資源の需要

HLLWの固化における主要な資源需要は、最終生成物の封入容器にステンレス鋼が用いられるとすれば、ステンレス鋼に関連するものである。1,500 MTU/年の再処理工場では、再回収しないで毎年Cr及びNiがそれぞれ60及び30 MT使用されることとなる。

HLLW固化処理で用いられるその他の資源の大部分は豊富である。1つの例外は、ある種のガラス固化法で用いられるZnまたはPbであって、1,500 MTU/年の再処理工場からのHLLWのガラス固化に年間最大70 MTのZnまたは100 MTのPbが用いられる可能性がある。

処理法の選定

HLLW処理工場について総括的に展望はできるが、特定の固化処理法は詳細設計を行う前に選定されるものである。この章の初めにふれたように、商業用再処理工場で運転されているHLLW固化処理法は1つもないが、近い将来の実施にそなえて利用可能な多くの処理方法がある。

個々の処理法は、その選定に当たって考慮しなければならない異なった独特な相違点を持っている。若干例の処理法と工場設計に影響するその特性をTable 6.3に示す。

Table 6.3には2型式の処理法を示しており、その1つは凝集したガラス化生成物を生ずる処理法であり、他の1つは微粒子状の仮焼生成物を生ずる処理法である。これが処理法の選定に当たって最初に決められるべきことである。ヨーロッパ及びインドでは、すべてのHLLWを凝集性のガラス化生成物に変換することがすでに決定している。米国ではどちらの生成物も現在の規制下では受入れられる。

TABLE 6.3. Plant Design Factors as Affected by Choice of HLLW Solidification Process

Assumptions: Solidification process is sized to handle HLLW from 1500 MTU/year reprocessing plant.
 (5 MTU/day with 82% time on line).
 HLLW has composition of reference waste, Table 6.2.
 Liquid feed rate to solidifier = 80 t/hr.
 Waste is solidified 1 year out-of-reactor (self heat = 9.2 KW/MTU).

PNC 851-77-02

Process	Product Description	Additives Required, Kg/day	Throughput Considerations				Facility Considerations	
			Solidified Product				Number of Solidifiers	Important Solidifier Dimensions
Weight, Kg/day	Volume t/day	Max. Canister Diam, cm ^(a)	Canisters per Day ^(b)					
Calcination								
Fluidized Bed Calcination	Leachable oxide powder of variable particle size, surface area = 1,000-50,000 cm ² /g	0-75	325-400	160-200	13	4.2-5.2	1 fluidized bed calciner serving 2 canister furnace positions	Fluidized bed calciner barrel, 0.6 m dia. x 2.0 m tall, heated by in-bed combustion.
Pot Calcination	Leachable oxide powder of variable particle size, surface area = 1,000-50,000 cm ² /g	0-25	325-350	220-290	15	4.9-6.5	5 canister furnace positions	Canister furnaces are only heated units.
Vitrification								
In-Can Melting	Low leachable glass monolith, surface area = 0.05-0.5 cm ² /g	325-980	650-1300	180-390	36	0.8-1.7	1 spray calciner serving 2 canister furnace positions	Heated barrel of spray calciner, 76 cm dia. x 2.4 m long. Filter housing, 76 cm x 60 x 120 cm
Continuous Ceramic Melter	Low leachable glass monolith, surface area = 0.05-0.5 cm ² /g	325-980	650-1300	180-390	36	0.8-1.7	1 melter serving 2 canister fill positions (may not be heated)	Melting chamber holds 250 t molten glass, 0.9 m wide, 14. m long, 0.2 m deep. Drain chamber extends 0.5 m from side
French Rotary Kiln-Continuous Metallic Melter	Low leachable glass monolith, surface area = 0.05-0.5 cm ² /g	325-980	650-1300	180-390	36	0.8-1.7	2-3 rotary kiln calciners each serving 1-2 metallic melter-canister fill positions (may not be heated)	Rotating barrel of rotary kiln calciner is 27 cm in dia. x 3.6 m long. Melter is 35 cm in dia. x 1 m long.
British Rising Level Glass Process (FINGAL/HARVEST)	Low leachable glass monolith, surface area = 0.05 - 0.5 cm ² /g	325-980	650-1300	180-390	60 with 6 cm annulus	0.3-0.7	2 canister furnace positions	Canister furnaces are only heated units. Annular canisters require center heating.
German Spray Calciner-Continuous Metallic Melter	Low leachable glass monolith, surface area = 0.05-0.5 cm ² /g	325-980	650-1300	180-390	36	0.8-1.7	1-2 spray calciners each serving 2 metallic melter - canister fill positions (may not be heated)	Reaction chamber of spray calciner, 0.6 m dia. x 2 m tall. Melter approx. 35 cm in dia. x 1 m long.

a. Canisters have 8 internal longitudinal cooling fins, centerline temperature limited to 800°C when canister is cooled only by air convection.
 b. Canisters are 3 m long.

REFERENCES

1. Federal Register, vol. 35, no. 222, p. 17533, 1970.
2. Fixation of Radioactivity in Stable, Solid Media, Report on Working Meeting at Johns Hopkins University, June 19-21, 1957, TID-7550, March 1958.
3. Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, (held in Geneva, September 1-September 13, 1958). See sessions C-21 and 22 on "The Treatment of Radioactive Wastes" in Volume 18.
4. Disposal of Radioactive Wastes, Proceedings of IAEA Conference in Monaco, November 16-21, 1959, International Atomic Energy Agency, 1960.
5. Report on the Second Working Meeting on Fixation of Radioactivity in Stable, Solid Media at Idaho Falls, Idaho, September 27-29, 1960, TID-7613, February 1961.
6. E. Glueckauf, Atomic Energy Waste, Its Nature, Use and Disposal, Interscience Publishers Inc., New York, 1961.
7. Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes, Proceedings of IAEA Symposium in Vienna, October 8-12, 1962, International Atomic Energy Agency, 1965.
8. Proceedings of the Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy (held in Geneva, August 31-September 9, 1964). See session 3.11 on "Radioactive Waste Management" in Volume 14.
9. C. A. Mawson, Management of Radioactive Wastes, D. Van Nostrand Company, Inc., Princeton, NJ, 1965.
10. W. M. Regan, ed., Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, February 14-18, 1966, Richland, Washington, CONF-660208, November 1966.
11. Management of Radioactive Waste from Fuel Reprocessing, Proceedings of Symposium Held in Paris, November 27-December 1, 1972. Available from OECD Publication Center, Suite 1207, 1750 Pennsylvania Avenue N.W., Washington, DC 20006.
12. J. L. McElroy, K. J. Schneider, J. N. Hartley, J. E. Mendel, G. L. Richardson, R. W. McKee and A. G. Blasewitz, Waste Solidification Program Summary Report, Volume 11, Evaluation of WSEP High-Level Waste Solidification Processes, BNWL-1667, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, July 1972.
13. J. P. Girand and G. LeBlaye, "Design of an Industrial Facility for the Incorporation into Glass of Fission Products and the Storage of Highly Radioactive Glass," Paper given at the Symposium on the Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, November 27-December 1, 1972, Paris, France.

6.3 各種の固化処理法

固化生成物の形について基本的な考えが決まれば、処理方法は公衆の健康及び安全、経済性ならびに操作の信頼性など基準となる事項を考慮して選定される。次頁以下に最も開発のすすんでいるHLLW固化処理法を乾燥・仮焼法、ガラス固化法ならびにその他の固化法に大別して説明する。

Table 6.4 に本章で詳述する処理法とその開発の状況を掲げる。このTable は総括的なものではないが、現在実施されつつある研究開発の範囲を示している。

TABLE 6.4. Development Status of HLLW Solidification Processes

Treatment Category	Ready for Demonstration(a)	Requires Further Development	
		Short-Term(c)	Long-Term(d)
Drying and Calcination	Fluidized Bed Pot Calcination Rotary Kiln Spray Calcination	Wiped/Scraped Film Evaporator	
Vitrification	In-Can Melting French Rotary Kiln-Continuous Melter(b)	British Rising Level Glass German Spray Calciner-Continuous Melter Continuous Ceramic Melter	
Other Solidification Processes			Supercalcine Metal Matrix Sintering Glass Ceramics Coated Pellets Ion Exchange

- a. Less than 1 year to be ready for engineering detail design.
- b. Construction of a plant which will use this process to vitrify the HLLW from the Marcoule reprocessing plant is nearing completion.
- c. Less than 5 years to be ready for engineering detail design.
- d. Greater than 5 years to be ready for engineering detail design.

6.3.1 乾燥・仮焼法 (Drying and Calcination)

放射性廃液固化用の最初の工学的規模運転施設は、1963年に Idaho Chemical Processing Plant の廃液の仮焼処理を始めた Waste Calcining Facility (WCF) である。この廃液の放射能レベルは商業用の HLLW にくらべると一般に 10 倍から 100 倍低い。WCF での運転の成功によってこの処理法で定常的に廃液が固化できることが実証された。WCF の固化生成物は粒状のサラサラした粉末であり、サイト内の換気付ステンレス鋼製貯槽に貯蔵されている。

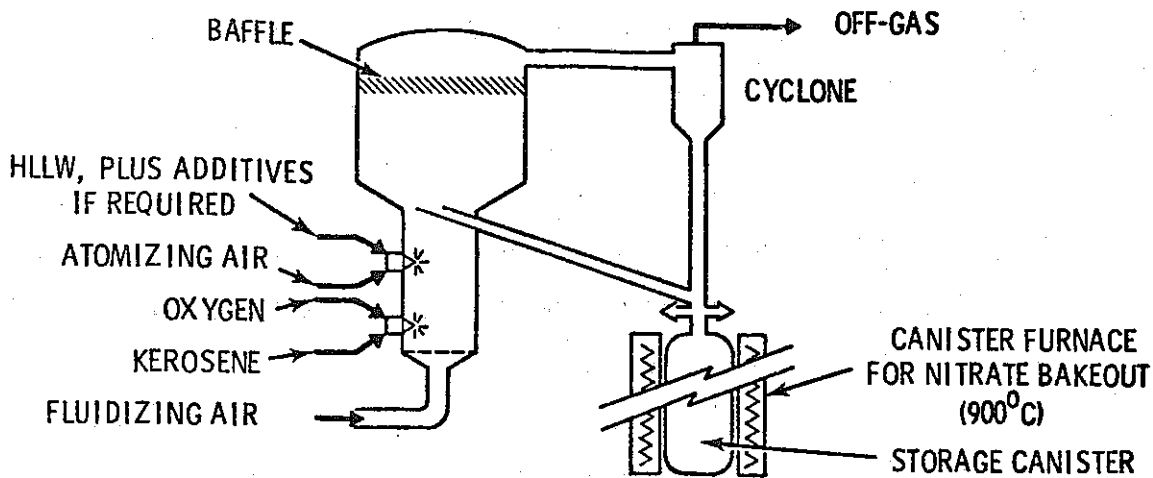
WCF では連続流動床仮焼装置を採用している。General Electric Company が Illinois 州の Morris に建設した 1 MTU/日の商業用再処理工場である Midwest Fuel Recovery Plant (MFRP) では、バッチ運転の流動床仮焼装置が設計・建設されている。MFRP の運転開始は無期限に延期されているが、この理由は廃棄物処理に関連したものではない。バッチ仮焼法である Potcal 法が特に商業用 HLLW の固化を目的として ORNL で開発され、PNL の WSEP (Waste Solidification Engineering Prototypes, 1966～1970) 計画で十分に高い放射能ベースで実証された。ガラス固化法用として開発されたその他の仮焼装置でも、その本来の開発目的から外れて仮焼までの段階で処理を終えることはできる。

すべての仮焼装置でえられる仮焼生成物は、主として粒径及びかさ密度が異なる他は多くの共通の性質を有する。プロセス設計その他考慮すべき事項に影響する生成物の共通する性質のいくつかを挙げれば、熱伝導度、溶出性及び揮発物含有量などがある。仮焼生成物の熱伝導度はガラス固化生成物に比べて一般に 2～3 倍低い。従って、HLLW の発熱量が大きいので、仮焼生成物の貯蔵には小径の貯蔵箱または容器あるいは特殊な除熱対策が必要となる。Potcal 法でえられる代表的な商業用 HLLW 仮焼生成物は、その成分の 20～25% が水に触れると容易に溶解する。⁽¹⁾ 揮発性物質は平均的な仮焼温度 (350～550℃) で完全に分解しなかった残留硝酸塩類が主成分である。仮焼生成物中の揮発性物質の問題は、WCF の生成物の場合には貯蔵施設を換気することで排除している。しかしながら、輸送して最終貯蔵サイトで受入れられるためには、HLLW 容器は密封しなければならない。ORNL で Potcal 法を開発中に硝酸塩を完全に分解するには 900℃ の処理温度が必要なことが判明したが、このような処理をすれば仮焼生成物の密封容器の内圧は上昇しないと思われる。従って、以下にのべる HLLW の仮焼法には、生成物装荷容器 (canister) の 900℃ での焼成 (bakeout) が示してある。

仮焼法の検討につづく“ガラス固化”及び“その他の固化法”の項で、熱伝導性及び耐溶出性向上を目的とした固化法を含めて仮焼生成物の各種の後処理法を述べる。

流動床仮焼法 (Fluidized-Bed Calcination)

プロセスの要約



生成物の形状：大きさが $0.05 \sim 0.5 \text{ mm}$ の粒子及び粉末の混合物で、発生量は処理する使用済燃料 1 MTU 当たり約 40 l である。生成物は貯蔵のために安定化（脱硝及び脱水）処理することも可能であるが、ガラス熔融装置へのフィードにも適している。

プロセスの概要：床内燃焼（in-bed combustion）で $500 \sim 600 \text{ }^\circ\text{C}$ に加熱した流動床に廃液を噴霧として吹込むと、粒子表面で蒸発が起って粒状の流動床物質と粉末仮焼物よりなる生成物が生ずる。次に、これを仮焼装置より取出す。安定化した仮焼生成物は容器に貯蔵するか、他の形（例えば、ガラス、金属マトリックス、焼結ガラスセラミック）に変換することができる。

対象となる廃棄物：再処理工場の HLLW, HLLW-ILLW, 蒸発濃縮処理からの放射性濃縮物及び廃有機溶媒等よりなる廃棄物（液体あるいはスラリー）。

開発の現状：給液量最大 2 l/時のコールド・パイロットプラントでプロセス・フローシートは確認されている。同種の処理法及び装置の運転性能が、 $400 \sim 500 \text{ l/時}$ の定常処理容量で ERDA の廃液を用いた完全な放射能規模で実証されている。この処理容量は、 5 MTU/日 の再処理工場で予定されている廃液発生量より 2～3 倍大きい。高い処理容量が実証された ERDA の廃液は主として Al または Zr の硝酸塩であるが、商業用の HLLW には圧倒的に FP の硝酸塩が多い。

発生する廃棄物：プロセスのオフガスは定常的な処理法で処理できる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

流動床仮焼法は Idaho National Engineering Laboratory で 1952~1959 年にわたって開発された。硝酸アルミニウム廃液を固化する実証工場規模の施設が建設され、ホット運転は 1963 年に始まった。⁽²⁻⁵⁾

固化生成物

生成物は粒状の流動床物質とオフガス系の 1 次サイクロンで除去される粉末固体の混合物であり、これらは通常流動床から空気のな方法で取出される。ガラスにする場合は、仮焼固体を直接連続熔融装置に送る。また、仮焼物を直接貯蔵するときは、仮焼固体を約 900℃ で安定化(脱硝と脱水)する必要がある。

○ 廃棄物の組成及び容量

仮焼生成物の密度は 2.0~2.4 g/cc であり、Barnwell Nuclear Fuel Plant (BNFP) の HLLW と ILLW を混合したものに相当する廃液を処理した場合の比容量 (specific volume) は公称 40 l/MTU である。

○ 熱伝導度

合成した商業用再処理廃液仮焼固体の熱伝導度は 0.2~0.3 W/m・℃ の範囲である。

○ 溶出率

流動床仮焼した ERDA 廃液の 2000 時間の連続溶出試験で、¹³⁷Cs の約 60% と ⁹⁰Sr の 40% が溶出した。代表的な商業用 HLLW 組成のものからえられた流動床仮焼物の溶出率はまだ測定されていない。

○ 化学的を限界

Hg 及び I は仮焼固体中に保持されないが、給液中に添加物があればふっ化物と塩化物は保持できる。約 0.4 M 以上の濃度の Na には Fe などの添加物が必要かも知れない。

○ 安定化仮焼物の温度制限

安定化処理した仮焼物は、実用寸法の容器に入れて空気中あるいは水中で貯蔵できる。冷却期間 1 年程度の新しい再処理廃液より生成したガラス及び仮焼物は、容器の中心線あるいは壁部の温度が制限されるので貯蔵が困難である。外径 60 cm 以下の環状容器は新しい廃棄物を貯蔵するのに明らかに有利であるが、まだ製作も試験も行われていない。1 年冷却の廃液に対しては、年間 300 日稼働の 5 MTU/日の再処理工場から生ずる固化体(ガラスあるいは仮焼物)の貯蔵に約 800 個の容器が必要となる。

処理方法

基本的には流動床仮焼は液体廃棄物であるHLLW及びILLWを粉末及び粒状物質の混合物に変換するための連続蒸発法である。低放射性廃液の蒸発濃縮液及び廃有機溶媒も流動床で処理できる。

給液は仮焼施設の給液調整系に空気またはスチームゼットで移送してバッチ調整し(試薬の添加及びHLLWとILLWの混合)、エアリフトと重力フローの組合せで仮焼装置に送る。つづいて、給液は仮焼容器壁に設けられたスプレーノズルで噴霧化される。

固化の主要な機構は流動床粒子上での噴霧液滴の蒸発であり、一部の噴霧液体は流動粒子表面に達する前に蒸発して乾燥固体となる。処理用の熱はケロシンの床内燃焼で供給し床内温度は500~600℃の範囲内の希望する温度に容易に保持できる。

流動床仮焼装置の処理容量は、仮焼容器断面積1000cm²当たりの毎時の処理L数で表わすのが普通である。Waste Calcining Facility(WCF)のERDA廃液の処理における正味の処理容量は40L/時・1000cm²である。60から100L/時・1000cm²の処理容量がパイロットプラントでは確認されている。

Ruの揮発性は仮焼装置の加熱方法の影響を受ける。床内燃焼の場合は、500~600℃の普通の範囲内では、運転温度に無関係に給液中のRuの約 2×10^{-3} %が揮発する。しかしながら外部加熱の場合には、運転温度が高い方がRuの損失が低下することが知られており、Ruの揮発量は570℃で0.002%であるのに対して500℃では0.02%となる。商業用HLLWの実際の放射能レベルでの入手可能なデータはないが、合成した商業用廃液についてのものはある。仮焼装置のオフガス中の揮発性Ruはシリカゲルの吸着で除去する。また、オフガス中の固体の微粒子は、通常サイクロン(複数)、湿式洗浄系及びHEPAフィルターで除去する。

流動床仮焼装置は、満足以仮焼できる廃棄物の種類という点では適当に融通性がある。仮焼性に影響を与える供給廃液のおもな特性は、給液の固体濃度及び粒子が固まる原因となる成分である。粒子の成長(床内在庫量の維持)が粒子の摩耗と適切につり合うようにするため、給液は十分濃縮する必要がある。給液中のNa濃度が高過ぎると粒子が塊状化する原因となる。現在想定されている商業用廃棄物よりの給液組成は、流動床仮焼処理で大きい問題は惹起しない⁽⁶⁾。しかしながら現在迄の多くの試験では仮焼物が高い比率(30~50%)で微粒子となり、その大部分はオフガス中からサイクロンで除去されている。サイクロンで捕集されない10μm以下の微粒子は、オフガスの洗浄で捕集されてリサイクルされる。

床内燃焼法を採用している流動床は適当量の廃溶媒を処理する可能性がある。再処理工

場における廃溶媒の年間発生量は、HLLWの発生量に比較すれば一般に少ないと思われる。従って、プロセスに大きい影響を与えることなく廃溶媒を給液または燃料に混ぜることができると考えられる。

廃溶媒を用いた流動床仮焼装置の運転性を確かめるため、限られた回数のパイロットプラント運転が行なわれているが、克服できないような問題は認められていない。しかしながら、商業用仮焼装置で予想される条件で廃溶媒の長期燃焼試験を実施しないと、この処理法の運転性を正確に評価することはできないと考えられる。

この処理法は自動化して必要な労力及び誤操作の可能性を最小にすることができる。WCFでの経験によると、最も故障しやすい装置は給液量調節弁、燃料及び給液ノズルならびにオフガス湿式洗浄系の洗浄液ポンプである。装置停止中にくずれたベッド(collapsed bed)中の高発熱性廃棄物は多量の流動用空気系で冷却されるが、長時間停止する場合は廃棄物は取出す必要がある。必要な場合は、多量の流動用空気及び空気を用いるベッド除去系により、装置内廃棄物を暫定貯蔵容器に移送する。

必要な労力及び施設の面積は次の通りである。

	<u>Space Requirements</u>	<u>Manpower Requirements</u>
Land Area, m^2	1400	...
Cell Space, m^3	2100	...
Manpower		
Operators	...	15
Maintenance	...	2
Health Physics	...	2
Other	...	5

実用設計が可能になるまでの推定期間

概念設計は直ちに開始可能であり、詳細設計は概念設計開始後6～9ヶ月後に開始できる。

主要な開発計画目標

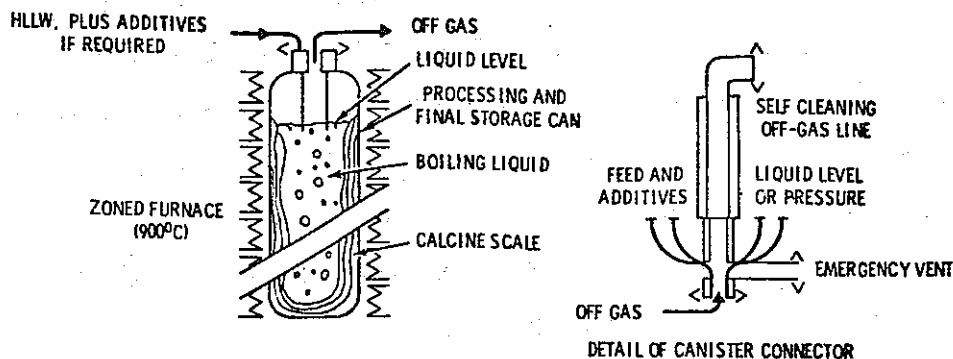
ここで述べる開発計画の第1の目標は、BNFPの高放射性廃棄物への流動床仮焼法の適用性の確認ならびに実証規模工場施設の設計及び運転に必要なデータを得ることである。基本のフローシートは、現在BNFPから提出されているHLLW-I LLW混合廃液にもとづいている。廃棄物の壊変期間及び壊変期間が短くなるにつれて附随的に増大するオフガス処理系に対する要求を除けば、特定の廃棄物組成が基本工場設計に大きく影響することはない。

計画で特に力が入れているのは、1)大規模なパイロットプラントにおける模擬AGNS廃液の定常状態下での仮焼性の確認、2)微粒子、揮発性FP及び窒素酸化物を許容レベル迄除去するための候補となるオフガス処理系の能力の確認、3)適当な規模での主要な安全上の疑問への回答、すなわち流動床内の平衡が崩れた場合に崩れたベッドを除去するかまたは崩れた状態のまま焼結させないで熱を分散させる可能性の確認、4)適当な仮焼安定化法の実証、5)実地的な仮焼物貯蔵システムの設計、6)開発すべき装置を決定するための特殊な装置についての技術状態の評価、7)工場運転中の重要な工程上または装置上の問題の危険を最小にするに必要な原型装置及びこれによる遠隔保守モックアップ試験の7項目である。

正式の開発及び原型装置による試験計画の完成は1978年と予想されている。しかしながら、実証施設の設計に適用できる重要なデータはすでに入手可能であり、さらに上記の試験計画を通じて入手できると思われる。コールド試験の結果にもとづいた詳細設計用のすべてのデータは、実質的には1977年に入手出来ると考えられる。給液系、流動床仮焼装置、オフガスサイクロン、固体輸送、仮焼物貯蔵及び工程支援施設は、1977年の初期には自信をもって設計できよう。

ポット仮焼法 (Pot Calcination)

プロセスの要約



生成物の形状 : 約 90% の HLLW と揮発を抑えるための 10% の添加剤を含む多孔質の砕けやすい仮焼物ケーキである。仮焼物は 20 ~ 40 wt% 迄容易に水に溶けるが、残りの酸化物は比較的の不溶性である。熱的特性は相対的に劣っている。

プロセスの概要: 最終貯蔵容器にもなる処理容器 (canister) を炉の中で加熱し、供給される HLLW 及び添加物をふつとさせて濃縮する。溶液を十分濃縮すると容器の内壁にスケールが生成し始める。容器内にスケールが充満するにつれて、供給液の添加速度を連続的に低下させて最後に供給を停止する。放射性壊変熱が仮焼物の温度を急激に上昇させるので、仮焼物の中心が完全な仮焼に必要な温度である 900°C に昇温しつつある間に炉の温度を 900°C から確実に下げてやらねばならない。

対象となる廃棄物: 蒸発して乾燥または酸化物まで仮焼できるすべての液体廃棄物 (例えば Hg, Cl は除外される)。ある種の揮発性成分 (例えば硫酸塩) は Na または Ca などを添加すれば処理できる。

開発の現状: コールド及び十分高い放射線レベルのパイロットプラントで、15 ~ 30 l/時の供給量及び 12 ~ 15 l/時の総合的な全サイクル処理量 (0.75 MT/日の再処理に相当) で十分に実証されている。

発生する廃棄物: 給液中の Ru の 10 ~ 30% を含む液体及び気体廃棄物を生ずるが、これらは普通の再処理工場の装置で処理できる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

ポット仮焼法 (Potcal) は 1960 年代の初期に Oak Ridge National Laboratory (ORNL) が開発したもので、文献 7 及び 8 にこの処理法の開発が要約されている。

Potcal 法では、蒸発缶よりの濃縮液を炉で加熱したポット (容器) に供給し、ここで廃液は脱硝・還元されて仮焼物となる。⁽⁷⁾ 希望する固体を生成するために必要な添加物は、直接廃棄物に加えてもよくあるいは別にポットに加えてもよい。数種の運転モードが可能であるが、一般にはこの処理法では大部分の硝酸を廃液より追い出すために蒸発缶が用いられる。ポット中での仮焼物の析出及び析出に伴う処理速度の減少を予測する数学的な処理法が Perona によって開発されている。⁽¹⁰⁾ また、ORNL の Jury は、仮焼物の温度の過度の上昇を防止するようにポット壁面温度を確実に制御するため、仮焼サイクル中のポット内の温度挙動を予測する理論を開発している。⁽¹¹⁾

ポット仮焼法の放射性実証試験は、Hanford の Waste Solidification Engineering Prototypes Program (WSEP) で実施された。^(12, 13) 処理法は十分高い放射性廃液を用いて満足に運転されたが、その処理容量に限界があるためにこの Potcal 法は今迄

は本気で取り上げられていない。

固化生成物

ポット仮焼によって、頂部の中心に円錐状の不規則なポイドを残した多孔質の碎けやすいケーキ状仮焼物がポット中に生成する。この仮焼物はポットの壁面及び底面に対して多少層状に析出する。容器の許容寸法は廃棄物の熱容量によって大きく左右され、また仮焼物の熱伝導度が低いと容器の直径はきびしく制限される。直径20cmの容器をモデルとしている高放射性廃液に用いるためには、廃液は2年以上壊変させる必要があり、さらに直径の大きい容器を用いるためにはより古い廃液（例えば、直径30cmの容器には4年以上のもの）が要求されると思われる。

○廃棄物の組成及び容量

Cs及びRbの揮発を防止するため、供給廃液中で次の化学的な関係が成立しなければならない。すなわち、

$$\frac{\text{アルカリ金属の当量}}{\text{不揮発性陰イオンの当量}} \leq 1$$

不揮発性陰イオンとして適当なものは硫酸塩及びリン酸塩である。モデルのHLLWでは、不揮発性陰イオンとしてリン酸塩を用いて下記のようにになるので、さらに不揮発性陰イオンの追加が必要である。

$$\frac{0.01\text{Na} + 0.039\text{Cs} + 0.0095\text{Rb}}{3(0.042\text{PO}_4^{3-})} = 1.14$$

Purex廃液の場合の比重は1.2~1.5であり、^(8,14)比容積は65.5Kg/MT ÷ 1.35Kg/l ÷ 50l/MTとなる。

○熱伝導度

実験室規模試験でえた Purex 廃液のポット仮焼物の熱伝導度は200℃での0.35W/m℃から800℃での1.0W/m℃まで直線的に変化し（文献7の68頁）、工学規模装置でつくった放射性仮焼物の熱伝導度の100~700℃での平均値は0.35W/m℃であった（文献15の5.23頁）。

○溶出率

Csを含めて全物質の約25wt%が容易に溶出するが、残留するCeなどの酸化物類は相当溶出しにくい（文献15の5.51頁）。

○化学的な限界

Hgは揮発する（文献7の43頁）。硫酸塩は下記条件を満足すればほぼ定量的に（≥98%）保持できる。

$$\frac{(\text{アルカリ金属} + \text{アルカリ土類金属}) \text{の当量}}{(\text{SO}_4^{2-} + \text{その他の不揮発性陰イオン}) \text{の当量}} \geq 1.1$$

同様に、Na などのアルカリ金属も下記条件を満足すれば保持できる（文献 7 の 51 頁）。

$$\frac{\text{アルカリ金属の当量}}{\text{不揮発性陰イオンの当量}} \leq 1$$

ふっ化物及び塩化物については不明であるが、ふっ化物は硫酸塩と同様な方法で保持できそうである（文献 7 の 52 頁）。これらの限界は文献に要約されている（文献 14 の 10.8 頁）。

○温度制限

処理温度以下に保つように温度を制限しなければならない。ポット内の中心線での温度制限値を 900℃ とすれば、2.4 m の充填高さで直径 38~50 cm のポットに 6.5 KW から 8 KW を導入できる。しかしながら、25,000 MWd/MT の燃料及び仮焼物 50 ℓ/MT を仮定すれば、仮焼前に貯蔵壊変させた廃棄物以外にはより小径のポットを用いなければならない。

直径, cm	W/ℓ	廃棄物の年令, 年
15	145	1.5
20	90	2.5
25	60	3.5
30	45	4.5

処理方法

Potcal 法では容器を加熱・冷却炉中に設置してオフガス系に接続する。容器（ポット）を加熱し、このポットに希望する充填高さより多少下のレベル迄（高い蒸発期の飛沫同伴を最低にするため）蒸発缶で濃縮した廃液を供給する。ポット内壁でスケールの生成が始まると液面が希望する充填高さに上昇する。充填サイクル中はこの状態で蒸発液量と正確に平衡を保つように給液速度を連続的に低下させる。最終給液速度は約 5 ℓ/時である。ポット内壁で仮焼物スケールが成長するにつれて、FP の壊変熱による仮焼物温度の過度の上昇を防止するために加熱量を下げなければならない。このため、最初は加熱量を低下し最後は冷却してポット壁面温度を調節し、ポットの中心線から壁面まで一様に 900℃ となるようにする。^(7,13)

配管系の閉塞を防止するため、特殊な自己洗浄 (self-cleaning) オフガス系の設置がすすめられている。冷却後、容器を取外して後処理（溶接など）を行ない新しい容器を設置する。これらの全工程が実証されている。（注、容器の設置及び取外しにはそれぞれ 2

～4時間かかるが、これは容器が必要なすべての処理法と同様と考えられる。)

○融通性

ポット仮焼は非常に融通性があるが、供給するHLLWは最大限まで濃縮するのが有利である。流量の変化は特に重要ではない。主供給系とは別な添加物供給系を設け比例制御してもよい。ILLWをHLLWに混ぜることは可能であるが、リン酸塩などの不揮発性添加物が必要である。消泡剤を用いないと有機物はポット内での烈しい発泡の原因となる。

○プロセスの信頼性

プロセスの信頼性；自己洗浄オフガス系と緊急時の換気系が必要である。

遠隔保守性；大部分の廃液固化処理で標準的な加熱・冷却炉を除けば保守は非常に少ない。オフガス系を時々洗浄する必要があるが、また容器の液位及び圧力測定管がたまに閉塞することがある。

遠隔操作性；給液量をうまく制御しなければならない。給液量はポットの液面で調節するが、ふつと発泡のために時々液面が決めにくいことがある。過度の温度上昇を防止するよう制御するため、容器内の各種の高さに中心線サーモカップルが必要である。

○処理容量及び必要な空間

処理容量；15～30cm直径のポットを用いてモデルHLLWで15ℓ/時である（文献12の4・6頁，文献14のA・10及び4・6頁）。

$$5\text{MTU/日} \times 100\text{gal/MTU} \times 3.78\text{ℓ/gal} = 1900\text{ℓ/日} \div 80\text{ℓ/時}$$

$$80\text{ℓ/時} \div 15\text{ℓ/時} \div 5\text{（ポット仮焼系列）}$$

ポット仮焼ではHLLWを最大限に濃縮すると有利であり、HLLWが200ℓ/MTUになれば必要なポット仮焼ラインは3系列以下になる。容器内に内部フィンを用いる可能性については試験していないが、これが可能となれば容器の直径及び処理容量が相当大きくなると思われる。

必要な空間は、巾4.8m，奥行13.4m，高さ9.1mである（文献14，9・20頁）。

実用設計が可能になるまでの推定期間

ポット仮焼法は実規模のコールド及びホット運転で実証されている。複数ポット系列を用いた処理工場の詳細設計は1年以内に開始可能と思われる。

主要な開発計画目標

ポット仮焼法の開発計画は、ORN Lにおけるコールドでの開発及びHanfordにおけるホットでの実証⁽¹⁴⁾で実質的には完了している。処理法に関する研究が終了した当時は、次の2つの理由でポット仮焼法は再処理のHLLWの固化には用いられないだろうと信じられていた。すなわち、1)他の連続仮焼法及びガラス固化法のためポット仮焼法が旧式に見

えたこと、2)処理容量が限定されたバッチ法のため余りに多くの複数ポット系列が必要と考えられたことの2つの理由による。

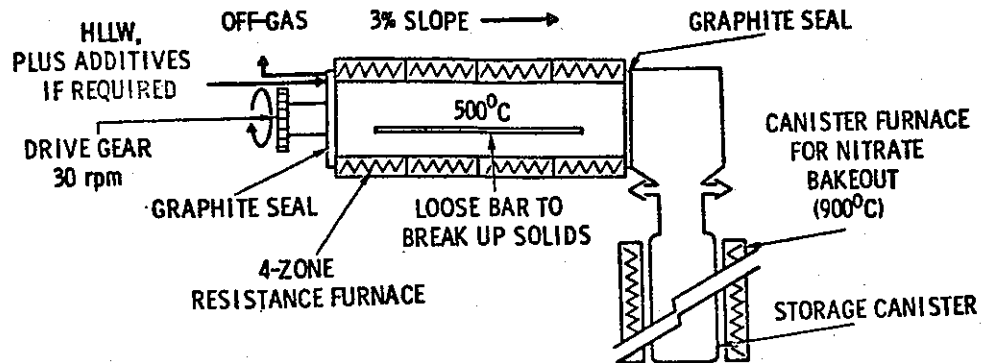
現在の評価では、ポット仮焼法はうまくHLLWを仮焼するのに利用できると考えられている。ポット仮焼法を改良する開発計画事項は次の通りである。

1. 仮焼物が十分安定しているかどうかを決める仮焼物試験。
2. 必要な複数系列の数を最小にするための処理容量増加の方法。これにはフィン付容器の利用も含まれよう。(もう1つの方法は、大直径の容器が使えるように廃液を十分壊変させることであろう。)
3. 現在の低塩量、高FP量組成の廃液に関する運転特性を決めるための仮焼試験。

1年間の試験によって、その時点でプロセスの詳細設計を開始できる十分な情報がえられる筈である。

ロータリ・キルン仮焼法 (Rotary kiln Calcination)

プロセスの要約



生成物の形状 : 比較的さらさらした微細な酸化物の粉。

プロセスの概要: ロータリ・キルン仮焼装置は外部加熱(500°C)の回転円筒で少し傾斜しており、上端に供給した酸を除いたHLLWは乾燥し、つづいて殆んど完全に脱硝されて下端より排出される。固定してない棒(loose bar)は仮焼物を自由に流下させ、析出物が壁面に固着するのを防ぐ。オフガスは水で洗浄して飛沫同伴する微粉子を除き、洗浄液はHLLWと一緒にしてリサイクルする。仮焼生成物はさらに熱処理して硝酸塩を完全に分解する。

対象となる廃棄物: 蒸発して乾燥または酸化物へ仮焼できるすべての廃棄物水溶液(例えばHgは除外される)。廃棄物中のアルカリ金属は、硫酸塩またはリン酸塩などの安定な陰イオンを化学的に当量だけ添加して安定化させる必要がある。

開発の現状: この処理法はHLLWの連続ガラス固化処理に用いる目的で、フランスで10年以上開発されてきている。この期間の大部分は、非放射性模擬廃液を用いた工学規模装置試験にあてられている。放射性物質による経験はない。

発生する廃棄物: 液体及び気体廃棄物は、普通の再処理工場の装置で処理できる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

フランスの OEA は、HLLW のガラス固化用連続溶融装置と密接に連結する目的で特にロータリ・キルン仮焼装置を開発している。この開発の詳細については 6.3.2 で説明する。

固化生成物

フランスは仮焼物をいつもガラス固化装置に直接供給しているので、ロータリ・キルン仮焼物のデータは入手できない。仮焼物のかさ密度は $1.0 \sim 1.3 \text{ g/cm}^3$ の筈である。

処理方法

ガラス固化の運転モードとくらべて異なるのは、仮焼生成物が少くとも 2 つの容器置場と連結した分配装置に排出される点だけであると思われる。これによって、仮焼物を充填中の容器内の仮焼物のレベルが設定値に達すると直ちに新しい空の容器への充填の切換えが行なわれ、仮焼装置の連続運転が可能と考えられる。

実用設計が可能になるまでの推定期間

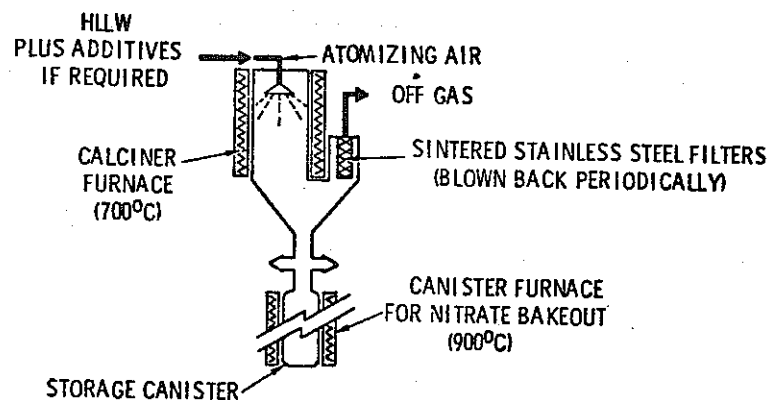
フランスはそのガラス固化施設内で、1977年に工学規模ロータリ・キルン仮焼装置のホット運転を計画している。この装置からえられる技術の多くが、仮焼施設に適用できるものと思われる。

主要な開発計画目標

- 仮焼施設に必要な開発には次のものがあげられる。
- ロータリ・キルン仮焼物のかさ密度の増大方法。
- 仮焼生成物の熱伝導度の向上方法。
- 仮焼物分配バルブの工学設計。

スプレー仮焼法 (Spray Calcination)

プロセスの要約



生成物の形状：非常に微細な粉末であって、粒径が $2 \sim 5 \mu m$ のものが大部分を占める。

プロセスの概要：スプレー仮焼装置円筒は壁温 $700^{\circ}C$ に加熱されており、HLLWはこの頂部にある内部かくはん (internal mixing) 空気噴霧ノズルに注入される。噴霧液滴 (直径 $70 \mu m$ と称される) は瞬時に乾燥し加熱円筒を流下中に仮焼される。オフガス中の微粒粉末は焼結金属フィルタで除去する。

対象となる廃棄物：蒸発して乾燥または酸化物まで仮焼できるすべての廃棄物水溶液 (例えば Hg は除外される)。ポンプ輸送できる濃度の廃棄物は仮焼可能であり、2モルの Na を含む廃液は容易に仮焼できる。

開発の現状：この処理法はPNLで15年以上にわたって開発されてきている。スプレー仮焼装置を用いた完全にホットな状態での工学規模運転が、Waste Solidification Engineering Prototypes (WSEP) 計画で13回 (1回約50時間) 実施されている。模擬廃液を最大 $75 l/時$ で供給した1000時間を越える運転の結果、スプレー仮焼は簡単で信頼性の高い操作であることが判明した。より高い給液量でスプレー仮焼法を実証するため、現在大規模仮焼装置を建設中である。

発生する廃棄物：発生する液体及び気体廃棄物は普通の再処理工場の装置で処理できる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

スプレー仮焼法は開発のごく初期の段階を除けば、リン酸塩溶融生成物あるいはホウ珪酸ガラス (6.3.2 参照) をつくる仮焼物の後処理法と関連して利用されてきている。仮焼物のまま最終処分することが決まれば、スプレー仮焼物が直接最終貯蔵容器に充填できない理由は1つも見当たらない。

固化生成物

スプレー仮焼装置でえられる仮焼物は非常に微細であり、そのかさ密度は本節でのべる各種の仮焼装置でえられる生成物のうちでは最も低い。かさ密度はHLLWの組成によって変わるが、 $0.5 g/cm^3$ から $1.3 g/cm^3$ であると思われる。

処理方法

ガラス固化の運転モードとくらべて異なるのは、仮焼生成物が少なくとも2つの容器置場と連結した分配装置に排出される点だけであると思われる。これによって、仮焼物を充填中の容器内の仮焼物のレベルが設定値に達すると直ちに新しい空の容器への充填の切換えが行なわれ、仮焼装置の連続運転が可能となる。

実用設計が可能になるまでの推定期間

容器内容融装置 (In-Can Melter) と連携したスプレー仮焼装置の予備設計は実質的

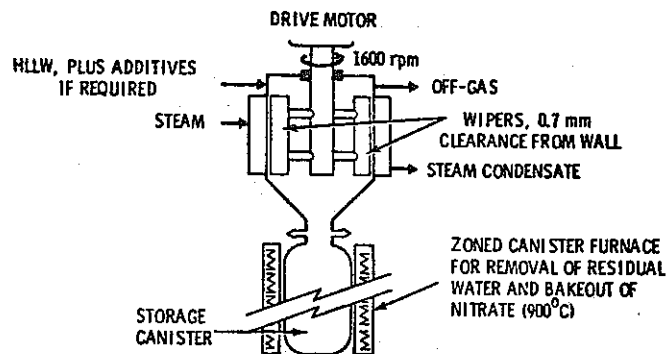
に用意されている。この装置の多くの技術が仮焼施設に適用できると考える。

主要な開発計画目標

- 仮焼施設に必要な開発には次のものがある。
- スプレー仮焼生成物のかさ密度の増大方法。
- 仮焼生成物の熱伝導度の向上方法。

薄膜蒸発法 (Wiped/Scraped Film Evaporator)

プロセスの要約



生成物の形状 : 乾燥酸化物ケーキ。

プロセスの概要 : 液体またはスラリー状廃棄物を蒸発し濃厚な流動性のあるスラリーまたはサラサラした固体として受器に排出し、充填後の容器を加熱して完全に脱水・脱硝する。最終生成物の特性及び蒸発缶の運転を調節するために添加剤が必要なときは、これは蒸発缶の供給口より給液と一緒に添加する。

対象となる廃棄物 : 液体またはスラリー状廃棄物のすべて。

開発の現状 : 50%スラリー濃度までの模擬HLLWの蒸発実験が、120 psigの加熱蒸気を用い150 l/時/m²の伝熱面積で実施されている。また、サラサラした固体への蒸発実験が約110 l/時/m²で行なわれているが、放射性物質による実証試験は行なわれていない。容器充填後の後処理加熱は概念のみであって実証されたものではない。スラリー濃縮物のホウ珪酸ガラスへの直接変換は金属製溶融装置、容器内容融装置及びセラミック製溶融装置で実証されている。

発生する廃棄物 : オフガス系でのみ廃棄物が生ずるが、これには凝縮水、硝酸、非凝縮性気体及び揮発性または同伴固体があり、これらは標準的な化学処理装置で定常的に処理できる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

多種多様の模擬高放射性，中放射性及び混合液体廃棄物を，薄膜蒸発缶を利用して最大 55 wt% の固体を含むスラリーにまで濃縮する研究が PNL で行なわれている。⁽¹⁶⁾ より高温で操作する薄膜蒸発缶を用いた最近の PNL の研究では，1 回の処理で HLLW がサラサラした固体生成物にまで変換されている。⁽¹⁷⁾ Savannah River Laboratory では，⁽¹⁸⁾ 地下貯蔵している廃液を冷却すれば固化するような濃縮液までうまく減容できるかどうかをしらべるため，薄膜蒸発缶 (wiped film evaporator) が研究されている。

薄膜蒸発缶を利用して，Hanford 地下貯蔵廃液の減圧晶出の結果生ずる残留液の濃縮が可能かどうか，Atlantic Richfield Hanford Company が研究している。^(19,20) 薄膜蒸発缶を用いて，低放射性廃液（例えば，洗濯廃液，原子炉冷却水のブローダウン，除染廃液及び実験廃液など）⁽²¹⁾ を減容する研究が Ballistic Research Laboratory でも行なわれている。

産業界ではその短い滞留時間特性を利用して，ケチャップ，濃厚果汁及びインスタントコーヒーなどの熱に敏感な物質の処理にこの装置を用いている。プラスチック業界も高粘性溶液の処理効率のよいことを利用して，この装置でプラスチック原料から有機溶媒を除去している。このように産業界で広く利用されているため，非常に変化に富んだ設計で各種の構造材または接液部の材質の薄膜蒸発缶が数メーカーから入手可能である。

固化生成物

薄膜蒸発缶は装置の設計及び運転モードを変えることによって，希薄溶液からスラリー及びペーストをへてサラサラした固体迄のあらゆる濃度及び粘度の生成物をつくることができる。しかしながら，HLLW を乾燥した粉末に変換する経験は殆んどなく，開発研究の多くはスラリーの生成を指向してきた。このスラリーは，低放射性廃液の場合は放冷して固体結晶塩とし，HLLW の場合はガラス固化装置に供給する。薄膜蒸発缶で濃縮した HLLW を加熱した容器に直接充填し，さらに容器中で加熱してえられる仮焼ケーキの特性をその他の仮焼生成物，特に Potcal 法の生成物と同様にすることは概念的には可能である。

処理方法

廃液あるいはスラリーを横型または縦型の加熱円筒の一端に供給する。6～12 m/秒の周速度で円筒内を回転する多数のへら (paddle) が，加熱面の廃液をうまくかくはんしつつ掻き取って薄い膜にする。薄い膜面から局所的な蒸発が急速に起り，濃縮液はすぐに次のへらで加熱面に再び押し広げられる。固体は供給口と反対側の円筒端方向に移動し，蒸発

缶底の排出ノズルを通してスラリーまたは固体として受器に落下する。蒸発缶の運転特性または最終生成物の特性を調節するための添加剤は、供給液と一緒に蒸発缶に加えるかまたは濃縮液と一緒に受器に加える。

実用設計が可能になるまでの推定期間

過去の再処理運転から生じた地下貯蔵廃液の濃縮施設の実用設計は現在入手可能である。伝熱面積 3.7 m^2 の原型装置が現在建設中であり、これが完成次第設計確認試験が開始される予定である。⁽¹⁸⁾

HLLWまたは混合廃液(HLLW+ILLW)を容器内容融装置またはセラミック型溶融装置への供給用スラリーにする場合は、標準型工業用蒸発缶の設計をごく一部改造(遠隔操作及び保守ができるように)する必要がある。この種の改造は可能であり、模擬廃液による試験は1~2年でできると思われる。自由に流動する固体生成物を目的とする場合は、高温装置、オフガス洗浄装置及び揮発性物質の挙動などに関する設計変更、製作及び模擬HLLWによる試験を含めて2~3年が必要と思われる。

主要な開発計画目標

最適な生成物、すなわちスラリーか固体かを決めねばならず、最適生成物の特性によっては後処理が必要となる。

選定した生成物に合わせて、各種の入手可能な縦型及び横型蒸発缶のうちから最も適当なものを決定しなければならないが、このためには遠隔操作及び保守、除染性ならびに生成物の蒸発缶から固化装置への移動などの難易についての考慮が必要となる。

操作特性及び装置を通過する揮発性物質の径路を確認し、遠隔操作の助けとなる計器センサを開発するため、代表的な蒸発缶を選んで模擬廃液を用いて運転することとなる。

その後、遠隔操作及び保守性を向上し、汚染が蓄積する可能性のある点を最小にするように設計が変更されると思われる。

REFERENCES

1. J. E. Mendel and J. L. McElroy, Waste Solidification Program, Vol. 10 Evaluation of Solidified Waste Products, BNWL-1666, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, p. 5.51, July 1972.
2. J. A. Buckham and J. A. McBride, "Pilot-Plant Studies of the Fluidized-Bed Waste Calcination Process," in Proceedings of the Symposium on Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes Held by the International Atomic Energy Agency in Vienna, 8-12 October 1962, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1973.
3. E. D. Cooper, D. E. Black and C. B. Amberson, "A Performance Comparison of Pilot and Plant Scale Fluidized Bed Calciners," Chem. Engr. Prog., vol. 61, no. 7, pp. 89-96, July 1965.

4. E. J. Bailey, B. M. Legler and J. C. Petrie, "Fluidized Bed Calcination of New Types of High-Level Wastes," in W. H. Regan (ed.), Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, Richland, Washington, February 14-18, 1966, CONF-660208, pp. 235-246, November 1966.
5. L. T. Lakey and B. R. Wheeler, "Solidification of High-Level Radioactive Waste at the ICPP," OECD-IAEA Symposium on the Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Paris, France, November 27-December 1, 1972.
6. W. A. Freeby; Interim Report, Fluidized Bed Calcination of Simulated High-Level Commercial Wastes, ICP-1075, July 1975.
7. W. E. Clark, J. C. Suddath, C. W. Hancher, R. E. Blanco, H. W. Godbee, J. M. Holmes and C. L. Fitzgerald, Development of Processes for Solidification of High Level Radioactive Waste: Summary for Pot Calcination and Rising Level Potglass Processes, ORNL-TM-1584, August 12, 1966.
8. J. C. Suddath, C. W. Hancher and J. M. Holmes, "Engineering Development of the Pot Processes for Solidification of Radioactive Wastes," Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, February 14-18, 1966, Richland, Washington, edited by W. H. Regan, CONF-660208, pp. 301-324, November 1966.
9. M. E. Whatley, The Operation and Control of a Continuous Evaporator for the Waste Pot Calcination Process, ORNL-TM-146, February 19, 1962.
10. J. J. Perona, Optimum Fill Volumes in Pot Calcination of Radioactive Wastes, ORNL-TM-59, November 17, 1961.
11. S. H. Jury, The Programming of Pot Calciner Wall Temperatures to Ensure Calcination at 1650°F Under Optimum Economic Conditions, ORNL-TM-600, August 12, 1963.
12. J. L. McElroy, C. R. Cooley, W. V. DeMier, J. E. Mendel, PNL, and J. C. Suddath and J. O. Blomeke, ORNL, Pot Calcination Performance During First Radioactive Tests in WSEP, Vol. 4, BNWL-814, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, December 1968.
13. J. L. McElroy, J. N. Hartley, J. E. Mendel and G. L. Richardson, Waste Solidification Program, Volume 9, Pot Solidification Performance During Final Tests in Waste Solidification Engineering Prototypes, BNWL-1628, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, January 1972.
14. J. L. McElroy, K. J. Schneider, J. N. Hartley, J. E. Mendel, G. L. Richardson, R. W. McKee and A. G. Blasewitz, Waste Solidification Program Summary Report, Volume 11, Evaluation of WSEP High Level Waste Solidification Processes, BNWL-1667, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, July 1972.
15. J. E. Mendel and J. L. McElroy, Waste Solidification Program Volume 10, Evaluation of Solidified Waste Products, BNWL-1666, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, July 1972.
16. R. D. Dierks and W. F. Bonner, "The Performance of a Wiped Film Evaporator with Simulated High Level Waste Slurries," Presented at the AIChE 68th Annual Meeting, Los Angeles, CA, November 16-20, 1975.
17. J. L. McElroy, Quarterly Progress Report, Research and Development Activities--Waste Fixation Program - July through September 1975, BNWL-1949, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA.
18. C. B. Goodlett, "Concentration of Aqueous Radioactive Waste with Wiped-Film Evaporators," Presented at the AIChE 68th Annual Meeting, Los Angeles, CA, November 16-20, 1975.
19. W. P. Metz and W. E. Ogren, Engineering Study, Disposition of Terminal Liquors for Interim Storage, ARH-CD-231, February 1975.
20. W. E. Ogren, Development Plan for Terminal Liquor Disposition Alternatives, ARH-CD-382, August 1975.
21. A. Thieme, D. L. Goff and E. W. Bloore, A Radioactive Liquid Waste Treatment Facility Utilizing a Wiped-Film Evaporator, BRL-1538, March 1971.

6.3.2 ガラス固化法 (Vitrification)

動力炉廃棄物の近い将来の固定化の開発計画では、ガラスまたはガラス状の組織が国際的に注目されている。廃棄物のガラス化の開発は20年以上前に開始され、当初の調査は普通のガラスに類似した比較的融点の高い（操作温度1250～1400℃）組成に重点が置かれた。⁽¹⁻³⁾しかし、開発が工学規模で行なわれるにつれて、金属製容器で溶融できるより低い融点（操作温度950～1150℃）の組成に重点が移行してきた。操作温度が低くなったため、ガラス中により多くの廃棄物が混合でき、揮発性もいちじるしく低下した。

バッチまたは連続金属製溶融装置を用いた数種の廃棄物ガラス固化法が、現在各種の開発段階で実施されているが、これには2つの重要なホットでのパイロットプラント運転がある。米国では、1966～1970年にわたって、Waste Solidification Engineering Prototypes (WSEP) 計画で、燃焼度45,000MWD/Tの燃料の1年以下の冷却のHLLWに相当する放射線レベルでのガラス固化が実証されている。⁽⁴⁻⁵⁾その後、このWSEPの装置は1MTU/日の再処理工場のHLLWを処理できるように拡大された。フランスでは、PIVERパイロットプラントがMarcouleのPurexプラントのHLLWのガラス固化を1969年の5月に開始している。⁽⁶⁾ガラス固化法が進歩したため、数ヶ国が原子力発電に伴って発生するHLLWをガラス化することを決めている。国際的な廃棄物固化計画をTable 6.5に示す。

TABLE 6.5 International Plans for Solidification of HLLW

Country	Product Type	Process
England	Borosilicate Glass	Rising Level Glass
France	Borosilicate Glass	Rotary kiln calciner and continuous metallic melter (Marcoule), rotary kiln calciner and continuous ceramic melter (La Hague)
Germany	Borosilicate or phosphate Glass	Spray calciner and continuous metallic melter
Russia	Phosphate Glass	Unknown
India	Borosilicate Glass	Rising Level Glass
Japan	Undecided	Undecided

ガラスは非常に総括的な物質であるという利点がある。廃棄物を構成するごく一部の成分はそれ自身がガラス形成剤であるが、週期率表の大部分の元素が網目組織の形成剤または変

形剤 (modifier) としてガラス中に混和可能なために、ガラス中で固定化される。代表的なホウ珪酸ガラス組成及びその他の特性を Table 6.6 に示す。

TABLE 6.6 Borosilicate Glass Characteristics

Composition	
SiO ₂	25-40 wt%
B ₂ O ₃	10-15 wt%
Alkali metal oxides	5-10 wt%
ZnO	0-20 wt%
Waste oxides	20-35 wt%
Typical volume	60-80 l/MTU
Density	3.0-3.6 g/cm ³
Thermal conductivity	0.9-1.3 W/m·°C
Leach rate	10 ⁻⁴ -10 ⁻⁷ g/cm ² . day
Processing temperature	1000-1400°C

開発されてきたガラスの組成は、低溶出性、固化物の高い健全性及びトラブルのない処理の可能なものである。処理に当たって重要な性質には、粘性、腐蝕性及び揮発性が低いことならびに均質性のよいことがあげられる。現在の溶融物の性質は次の通りである。

- 処理温度 (950 ~ 1150 °C) における粘性は 200 ポアズ以下で、溶融物の排出及び完全なガス抜きまたはいずれか一方が可能である。
- 容器及び溶融装置の腐蝕が許容量以下である。
- ホウ珪酸ガラス溶融物よりの放射性核種の揮発は運転制限値以下であることが判明している。
- 廃棄物中の全成分の溶融物への溶解度を最大にして、連続溶融装置内のスラッジの蓄積を最低に押えている。

ヨウ化物、塩化物、硫酸塩及び水銀化合物などの ILLW 中によく含有されている化合物は、現在の溶融物組成に適合しないかも知れない。

余分の隔離効果を得るため、廃棄物のガラス固化物を密封した容器に鑄込む計画がある。普通の充填及び貯蔵条件下ではガラスの腐蝕率は低いから、容器の寿命は外部の要因によって支配されるというのが一般的見解である。

容器が破損した場合の最も可能性の高い放射性物質放出のメカニズムは、廃棄物の溶解ま

たは溶出である。ガラス成分の溶出は複雑な現象であるが、単純に比較すれば、耐火型熔融装置でえられるガラスの溶出率は中性またはアルカリ性溶液中でのパイレックスガラスの溶出率とほぼ等しい。金属製熔融装置でえられるガラスの溶出率はこれより若干高い。

ガラス固化生成物が水と接触したときの放射性物質の放出量には、溶出率と同様に接触面積も関係する。大型ガラス容器ではガラス単位重量当たりの表面積が小さいが、物理的及び熱的ショックなどの不測の条件下では破損して表面積が大きくなることもありうる。実験によれば、⁽⁷⁾ 2.1 m/秒の衝撃で表面積が10倍増加する。1000℃のガラス容器（直径15 cm）を水中に投入して熱的ショックを与えると、表面積が約20倍増大する。⁽⁸⁾

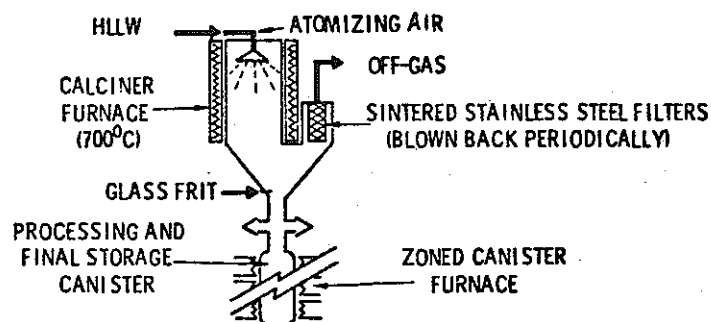
ガラス形状の一番大きい利点は仮焼物にくらべて熱伝導性がよいことで、比較的大容量の高発熱廃棄物を封じ込めることができる。下記の条件で、1つのガラス容器に2.5トンの燃料より生ずる廃棄物を封入できる。

- モデルの廃棄物組成
- 原子炉排出後1年
- ガラス中への廃棄物酸化物混和量は25 wt %
- 容器直径は30 cmとし、2.4 mの高さ迄充填
- 最大中心線温度は800℃
- 自由対流空気冷却

ステンレス鋼製の drop-in フィンを8個付加すれば直径は約50 cmに増大でき、1つの容器で最大6トンの燃料より生ずる廃棄物のガラス固化生成物の貯蔵が可能となる。

容器内熔融法 (In - Can Melting)

プロセスの要約



生成物の形状 : HLLW酸化物とガラス形成剤が1:2の重量比で含まれるホウ珪酸ガラスで、現行の10CFR50の必要条件に合った溶出性が低い安定な生成物である。大部分の酸化物がガラス組織に適合するが、若干のものはガラス中に分散した単独相となる。

プロセスの概要: 容器内容融法はHLLWのバッチガラス化法である。貯蔵容器はmulti-zone 炉内に設置して直接HLLW仮焼装置に接続する。ガラス原料混合物(frit)は仮焼物の生成量に比例して容器に供給し、2者の混合物は容器内を1000~1100℃にして溶融する。溶融物の液面が上昇するにつれて液面下ゾーンの加熱を止め、廃棄物による熱を除去するための冷却を開始する。溶融で生ずるオフガスは仮焼装置のオフガス系より排出する。ガラス容器は冷却し密封したのち除染して検査する。

対象となる廃棄物: HLLWは処理できる。Hg または I などの揮発性物質はガラス組織中に保持できない。

開発の現状: ガラス固化物生成速度 7.5 Kg/時 で完全にホットな状態のパイロットプラント試験ならびに直径 20 及び 30 cm の容器を用い最高ガラス溶融速度 29.5 Kg/時 (約 3 MTU/日に相当)でのコールドパイロットプラント試験が実証されている。パイロットプラント運転は実質的に完了し、実用規模施設の設計の用意ができています。

発生する廃棄物: 気体及び凝縮性の工程廃液は再処理工場で普通利用される装置で処理できる。2%以下のRu及びその他の廃棄物酸化物の0.5%が仮焼装置のオフガス系に逃げる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

スプレ仮焼装置を乾燥に用い、貯蔵容器を溶融するつぼとして利用するHLLWのガラス固化法は、WSEP計画中の1970年にPNLで実証され、完全にホットでの工学規模運転が2回行なわれている。⁽⁹⁾ ほぼ同様な原理にもとづく“ポットガラス固化法”(Pot vitrification process)がイギリス、フランス及びインドで開発されている。容器内容融法の利点を挙げれば次の通りである。

- 処理容器及び加熱器が簡単なこと。
- 内部に可動部分がないこと。
- 仮焼装置とガラス貯蔵容器間に処理装置がないこと。
- 溶融物の移送またはバルブによる調節が不必要なこと。
- 溶融装置の損耗及び廃棄の問題がないこと。

WSEP計画で容器内容融法が成功したため、それ以上の開発が1974年にPNLで開始された。1974年の10月から1975年の10月にかけて、容器内容融法の工学規模コ

ールドキャンペーンを13回行ない、容器内容融装置をそれぞれ直接スプレ仮焼装置、流動床仮焼装置及び薄膜蒸発缶に接続することを実際に行なっている。また、各種の内部フィン設計の検討、溶融速度の確証及び処理細目の決定が行なわれている。現在は、次のホットセルでの実証にそなえて装置及び容器の設計が確認されつつあり、実規模(5MTU/日容量)での遠隔操作処理を実証するための装置が準備されつつある。材料の選定、熱及び応力解析、密封及びフィン設計、経済性、参考設計及び仕様の作成などを含めた広範囲の容器開発計画も続行中である。

固化生成物

容器内容融法の固化生成物は僅かに割れ目のあるガラス質の一体ものであり、金属容器中に密封されている。金属製貯蔵容器中で溶融するため処理温度に制限があり、廃棄物酸化物のすべてがガラスマトリックス中で完全に一様にはならない。その結果、微量の数種の異なる結晶相が分散したガラスマトリックスとなる。最も一般的に観察される結晶相は UeO_2 である。ガラスの溶出性は結晶相によっていちぢるしく増大することはない。

最近、伝熱性向上のために容器内側に縦型のフィンが設置され、これによって処理容量がますと同時に容器内で許容される発熱性放射性同位体の量が約2倍となった。最大容器直径はフィンの数とガラスの発熱率によって決まるが、発熱率はガラスに混和する廃棄物量、再処理した燃料の冷却期間及び燃焼度によって変化する。最大直径は、フィンなしで発熱率 $150\text{W}/\ell$ の固化物用の 20cm から5年冷却廃棄物のガラス固化物用の 60cm までいろいろある。¹⁰ 急冷後に見られる一体もののガラスの割れは、ガラス及びフィン間の熱膨張の差ならびに急冷によるガラス内の応力によるものである。希望するならば、割れを未然に防止するためガラスを焼鈍することができる。

処理方法

容器内容融によるガラス固化法は、HLLWの仮焼と溶融の2工程がある。溶融工程は融通性があり、容器は広範な特性の仮焼物に適合する。容器内容融装置に連結するために、スプレ仮焼が一番徹底的に開発されてきた。流動床仮焼はこの目的に対してはそれ程広範囲に研究されていない。

○スプレ仮焼

側壁加熱スプレ仮焼装置は、多種多様な放射性廃棄物を遠隔操作で仮焼する場合、簡単に信頼できる装置であることが確証されている。すでに、遠隔保守ホットセル及び直接保守区域の両方で模擬HLLWを処理し、1500時間以上の運転時間が記録されている。

スプレ仮焼法では、側壁加熱スプレ仮焼装置の上方中心にある噴霧ノズルにHLLW

を圧入する。圧縮空気で噴霧された微細な廃棄物液滴は、700℃の壁温の垂直なスプレ室を移行中に乾燥し仮焼される⁽¹¹⁾。仮焼時間が非常に短いので、放射性核種の揮発が抑制され、仮焼装置中での仮焼物の滞留量は実質的には零になる。側壁に取付けた空気バイプレタを周期的に作動して、仮焼装置内のスケールの蓄積を防止する。噴霧用空気、蒸気及び窒素酸化物は、周期的な逆方向の空気パルスで洗浄される焼結ステンレス鋼製フィルタをへて排出される。不揮発性放射性核種の0.1%以下しかフィルタを通過しないので、廃棄物処理系の負荷がいちぢるしく減少し、処理系から仮焼装置にリサイクルする液量もへる。スプレ室及びフィルタからの仮焼物は直接容器内容融装置に落下する。微細なスプレ仮焼粒子は溶融装置内でガラス原料混合物と速やかに反応する。

最近開発されたセラミック製噴霧ノズルによる試験では、1000時間の運転後6.3 mmのノズル孔で0.01 mm以下の損耗が認められているが、実際の運転では遠隔的に交換できる給液ノズルは何ヶ月ももつものと推測される⁽¹²⁾。

側壁加熱スプレ仮焼装置の運転は比較的簡単で、運転開始は仮焼装置炉が所定温度に加熱されると完了し、運転停止には給液の停止とそれにつづく1分間のノズル洗浄が必要なだけである。

スプレ仮焼は加熱面との物理的な接触に依存しないので、廃液の濃度は処理上関係しない。1ℓ当たり0から250gの固体を含む廃液は、処理法または装置を変更しないで簡単に仮焼される。さらに、大量のILLWをHLLWに混合することができる。2モルのNaを含む廃液が添加物あるいは処理法を変更しないで処理されている。

パイロット規模の装置は75ℓ/時以上(5MTU/日の再処理工場に対しては80ℓ/時のものが必要)の給液量で運転されており、建設中の実規模装置は廃液を100～200ℓ/時で処理するよう予定されている。

○流動床仮焼

流動床仮焼は容器内容融装置へ仮焼物を供給する他の1つの方法である。仮焼の項で、最終生成物として安定な仮焼物の製造を目的とした在来の流動床の運転及び装置を説明した。PNLで開発した改良技術^(13,14)では、全く同一でないとしても仮焼の項でのべたと同様な装置を利用するが、運転モードは異なっている。

容器内容融装置でもちいる運転方法は次のようである。SiO₂のような耐熱性の粒状ガラス形成剤を連続的に流動床に添加して、仮焼廃棄物でこれを包み込む。この被覆物質は仮焼容器からオーバフロ及び分級(elutriate)またはその一方により隣接するろ過容器に入る。ろ過容器は溶融用容器に直結されているので、ろ過された物質は溶融用容器内に落下する。別に他のガラス形成剤(B₂O₃, CaCO₃など)を溶融容器内に添加

する必要がある。運転方法を変更する結果、流動床内の仮焼物及びF Pの在庫量は常に低くなり、潜在的な過熱による流動化ロスを低減する。

床内燃焼 (in-bed combustion) 加熱法を用い、400～800℃の範囲の流動床内温度で運転が可能である。1基の流動床仮焼装置で5 MTU/日の再処理工場の廃棄物が処理できる。

容器内熔融装置には、ロータリキルン仮焼装置またはドラム乾燥器からの生成物も供給可能と考えられる。

○ 溶 融

スプレ仮焼装置または上述の他の仮焼装置でつくったH L W仮焼物は、仮焼装置からその直下にあるmulti-zone 炉内の貯蔵容器に直接落下する。仮焼が連続運転であるのに対して容器内熔融はバッチ処理であるため、仮焼装置の下には熔融炉2基を置き、仮焼装置と熔融装置を接続する導管には分配器バルブが設けられる。ガラス原料混合物は分配器の上で仮焼物に加える。1つの容器に1バッチ分を充填中に、もう1つの炉内にある充填完了の容器を新しい空の容器と交換する。仮焼物とガラス原料混合物は、炉の熔融能力を越えない供給速度で充填中の容器に加える。

15の内部フィンを設けた直径20 cmの容器を用い、29.5 Kg/時の熔融能力が実証されている⁽¹⁵⁾。容器内熔融法のコンピュータ設計によれば、直径30 cmの容器の熔融能力は51 Kg/時となるが、5 MTU/日の再処理工場用としては約45 Kg/時の熔融能力が必要である。

ガラス原料混合物は、仮焼物の生成速度に比例した割合で、連続的かつ定量的に熔融装置に添加する。仮焼装置へのH L L Wの供給速度及びH L L W中の全酸化物含有量は既知であるから、ガラス原料混合物の供給速度は容易に決定できる。ホッパー及び定量供給装置はホットセル外にあるので、ガラス原料混合物の供給速度も簡単に維持できる。つづいて定量的に供給したガラス原料混合物はエアロックをへてセル内に入り、仮焼装置の下のコーンに重力で流下する。仮焼物及びガラス原料混合物は熔融装置に入る直前に合流するので、廃棄物の自己加熱により処理装置内でバッチ焼結の起る可能性は非常に少ない。

熔融物が容器を満たし始めると、廃棄物の発熱により熔融物の液面下の温度は処理温度以上となる。従って、熔融物の液面下ゾーンの加熱を止めてこのゾーンの冷却を開始する。

所定レベルまで容器に充填されると、H L W仮焼物とガラス原料混合物よりなる混合物はもう1つの熔融装置に切換えて供給する。容器内の熔融物表面の未固定物質は、取

除くかそのまま溶融する。確実に完全に溶融するため、容器は所定の温度に数時間保持したのち、冷却し、蓋をして炉外に取出す。次に、密封溶接して漏洩チェック後除染し最後に保全検査して貯蔵のため取出す。

容器内容融法の利点は容器とは別の専用の溶融装置を使用しないことである。このため、専用の溶融装置を使用する場合に附随するおそらく最も厄介で工学的操作の困難な、溶融物の抜き出し及びバルブによる調節を行なう必要がなくなる。溶融物の抜き出しが不要なため、容器内容融法は溶融物の粘性には比較的無関係である。廃液の組成及びガラス原料混合物と仮焼物の割合の大巾な変動も許容される。実験室試験によれば、直径1 cm以上の仮焼物の塊も簡単に溶融物中に溶解する。

1回ごとに新しい容器を用いるので、溶融用容器の腐蝕の問題は非常に小さい。

1050℃の廃棄物ガラス溶融物中において、標準の容器内容融用容器材料(304Lステンレス鋼)の腐蝕速度は0.1 mm/日以下である。

実用設計が可能になるまでの推定期間

スプレ仮焼装置の経験は十分で、実用設計が直ちに開始できる状態にある。パイロット規模の溶融装置の開発は実質的に完了しており、実用設計に望まれる追加情報は1年以内に実規模試験でえられる予定である。

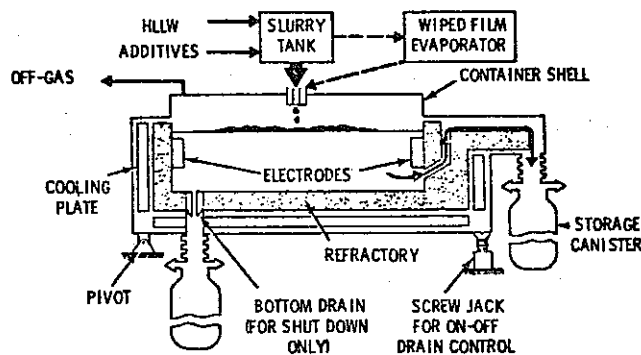
主要な開発計画目標

現在の容器内容融法計画における主要な開発目標は、1)容器設計の仕上げ、2)multi-zone 炉を用いた処理手順の最適化及び3)実規模装置の遠隔運転による実証である。容器開発計画には、処理、取扱い、輸送、貯蔵及び処分のすべての基準を最終的に満足する設計の容器の製作及び試験がある。

容器内容融法の開発計画では、処理技術・処理サイクル・材料などを評価し実証するために、開発した容器を使用できるほぼ実規模に近いmulti-zone 炉の製作が必要である。このほかに、処理法の長期間にわたる信頼性及び保守を実証するため、実規模の完全遠隔操作システムが必要かも知れない。

連続セラミック製溶融炉法 (Continuous Ceramic Melter)

プロセスの要約



生成物の形状 : H L W酸化物とガラス形成添加物を1対2の重量比で含む不活性ホウ珪酸ガラスである。

プロセスの概要: ガラス原料混合物はH L L Wでスラリー状とし直接熔融装置に供給する(給液を予備濃縮するかまたは仮焼する方法もある)。水分、硝酸及び窒素酸化物はオフガス系に入り、廃棄物酸化物及びガラス原料混合物は1100~1200℃の温度で均質なガラスに熔融して貯蔵容器に排出される。

対象となる廃棄物: 仮焼できる廃液、貯蔵容器に添加できる廃棄物酸化物(焼却灰)及び不燃性固体のすべて。ガラスの熔融温度以下で揮発する化学種(Hg, I, Cl)はガラスマトリックス中に混和できない。

開発の現状: 模擬H L L Wを供給した場合は30ℓ/時(ガラスで11Kg/時)で、粉末仮焼物を供給した場合は60Kgガラス/時でそれぞれ実証されている。現在の工学原型装置は11ヶ月間連続して1000~1300℃に保温し、この期間中に断続的に運転して4MTのガラスがえられている。

発生する廃棄物: 廃液及び気体廃棄物は再処理工場で普通利用される装置で処理できる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

過去10年米国内及び世界的に、ジュール熱加熱のセラミックライニング熔融炉がガラス工業界で広く使われている。ガラス工業がこの種の熔融炉を選定したのは、少ないオフガス廃棄物、高処理能力、長寿命及びえられるガラスの高品質といった理由による。これらのすべての特性はH L L Wのガラス固化システムに望ましいものであるため、これを用いた開発計画が米国及び海外で開始された。

ジュール熱加熱セラミック熔融炉を模擬H L L Wのガラス固化に始めて用いたのはDanesであり⁽¹⁶⁾、熔融エネルギーは特殊な配置の電極間の薄いガラス層に通電して供給し、模擬H L L Wを直接供給する方法で試験している。これより遅れてフランスも、必要な熔融エネルギーの供給にガラスとの誘導結合を用いたジュール熱加熱セラミック熔融炉を研究している。

P N Lにおけるジュール熱加熱熔融炉の開発は1973年に始まり⁽¹⁷⁾、1974年には実験室規模の熔融炉4基をつくり試験を行なった。⁽¹⁸⁻²¹⁾ 1975年には工学原型装置が連続11ヶ月1000~1300℃に保温され、この間に断続的に運転して合計4MTのガラスがえられている。⁽²²⁻²⁵⁾ P N L熔融炉は、矩形の槽中に電極を浸漬した普通のガラス工業の熔融技術をもとにしている。

固化生成物

連続セラミック溶融炉が有望な点は、ガラス組成及び固化生成物の最終的形狀に大巾な融通性ができることである。

○生成物の形状

溶融炉からガラスを調節して抜き出せるので、将来廃棄物の梱包形状を変える場合に対応できる。容器中に一体ものとして廃棄物を貯蔵する現行法では、連続セラミック溶融炉によると水冷容器中にさえ一定間隔でガラス生成物を充填することも可能である。しかしながら、連続セラミック溶融炉は容器内充填にのみ限定されない。溶融炉から連続的に抜き出すガラスの流れを、例えば大理石をつくるようなガラス成型装置に直結することもできよう。この方法の場合、溶融炉は後述する金属マトリックス(metal matrix)及び被覆ペレット(coated pellet)法などのその他の固化法に適合すると思われる。

○生成物の組成

セラミック溶融炉では高温溶融が可能なので、HLWガラスの化学的耐久性が向上できる。一般的に、ガラスの化学的耐久性を高めるには、ガラス中のシリカの含有量を高くするのが一番簡単であるが、このためには高い溶融温度が必要となる。高温ガラスに限定される訳ではないが、セラミックライニング溶融炉が高温ガラスを希望する場合の唯一の実際的な処理システムといえよう。

廃棄物中のある種の成分(Fe, Cr及びRu)は、赤外線を吸収してガラス生成物の熱伝導度を下げる。輻射あるいは側壁加熱型溶融装置の場合、この特性のために溶融不完全なガラスがえられることがある。イオニックに加熱する溶融炉では、ガラス自身の内部が発熱するので完全に溶融でき、最高12wt%の酸化鉄を含むガラスが簡単に溶融されている。⁽²⁶⁾

処理方法

○システムの説明

HLWのジュール熱加熱セラミック溶融炉の主要構成要素は、1)ガラス接触耐火レンガ、2)電極及び溶融ガラスである。

- 1) ガラス接触耐火レンガ：工業的に入手可能な多くの耐火レンガの耐蝕試験は、現在のモデル的HLWガラスを用いてBatesが完了している。^(27,28) その結果によると、数種の耐火レンガが溶融炉の寿命を長くするのに適する。

- 2) 電極：溶融槽の両端に位置する電極は、溶融したガラスに交流を通電する。電極はガラスに耐蝕性をもつと同時に良電導体でなければならない。ガラス工業で用いられる主要材料はMo、酸化スズ及びPtである。低温ガラス(1000~1100℃)にはCr-Ni合金が使用できる。
- 3) ガラス：加熱エレメントに用いるので、溶融ガラスはジュール熱(イオンのな)加熱溶融炉の重要な要素である。電極間にかかる交流電圧によって溶融ガラス中を動きやすいイオン(主にNa)が移動し、この移動に対する抵抗がジュール熱として知られているエネルギーを発生する。

○システムの運転

- 1) 運転開始；イオンの加熱する溶融炉の運転を開始するには、十分な電気伝導性を持つようになるまでガラスを昇温させねばならないが、これには数種の技術的方法がある。PNLでは消耗(sacrificial)エレメント法を用い、最初の運転開始及び固化した槽の運転再開の両方法を開発中である。⁽²⁾ 消耗エレメント始動法では主電極の直前に一組の仮電極を置き、この間に抵抗加熱エレメントを渡す。この加熱エレメントは、最初の運転開始のときはガラス原料混合物に埋め、運転再開の場合は固まったガラスの上に横置きにする。加熱エレメントに給電すると炉内温度は上昇し、最終的に主電極間の溶融ガラスを通しての伝導性が確立される。ガラスが溶融状となれば、消耗エレメントは速やかにガラスにくわれる。
- 2) 定常運転；溶融炉の始動操作が完了して槽内に溶融したガラスが充満すれば、システムは運転可能となる。HLLWを混合槽に移送してここでガラス原料混合物をスラリー状にし、つづいてスラリーを直接溶融炉に供給する。加圧して給液する必要はなく、一端があいた配管による簡単な重力フローによる給液が用いられる。溶融プールからの伝熱によって液体は瞬間的に蒸気となり、つづいて金属硝酸塩は脱硝されて酸化物となって溶融プール中に溶け込む。蒸気、窒素酸化物及び同伴する微粒子は通常のオフガス洗浄系に排出する。溶融したガラスは、定期的あるいは連続的に、オーバフロ排出口を通して受器に抜き出す。PNLにおける液体供給試験によれば、HLLWの処理容量は表面積1000cm²当たり6ℓ/時以上との結果がえられている。

予備濃縮して処理容量を増大したいときは、薄膜蒸発缶を用いることができる。既述した薄膜蒸発缶を用いれば、HLLW溶液を流動可能な水分50wt%のスラリーにまで濃縮できることが実証されている。溶液の蒸発に一番エネルギーを要するから、この予備濃縮を行えば溶融炉の処理能力は25%以上増加すると思われる。

さらに処理容量を大きくしたいときは、HLLWを仮焼したのち溶融することもできよ

されよう。溶融炉を大型としないまま、ある種の別のシステムが処理容量を向上させる見込みがある。これらの方法の運転性は50ℓ/時の設計で試験され、結果が良好であれば第2段階の大型炉設計にその特徴は織込まれる。処理容量向上法が不成功に終れば、第2段階の設計は第1段階でえた情報にもとずいてスケールアップされよう。

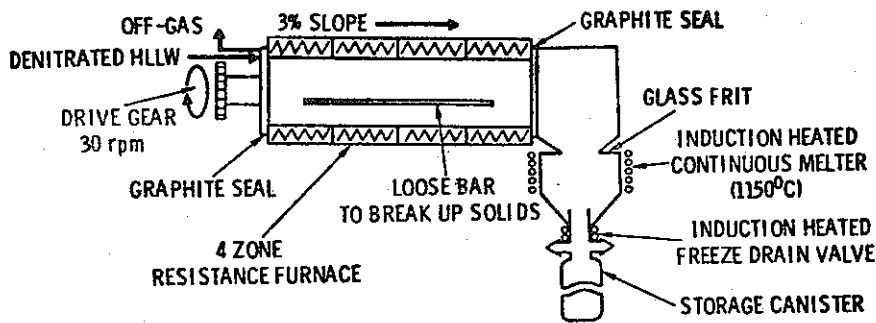
第2段設計は、遠隔運転に必要な遠隔操作的な特色をすべて織込んだ、実規模の液体廃棄物ガラス固化システムになるとと思われる。第2段設計の最重点目標は、長期(30日以上)・連続・遠隔運転で試験を行なってシステムを確証することとなる。これらの試験によって、稼動中の再処理工場に直ちに適用できる洗練されたシステム設計の開発が可能と考えられる。

フランスのガラス固化法

フランスは少くとも1959年以来HLLWのガラス固化法を開発しており、バッチ法⁽⁶⁾と連続法を開発している。連続法はロータリキルンを利用し、これを連続的な金属製あるいはセラミック製溶融炉に接続している。金属製溶融炉を利用する連続法を最初に用いる予定なので、これについて詳述する。

ロータリキルン-連続金属製溶融炉法

プロセスの要約



生成物の形状：ホウ珪酸ガラス

プロセスの概要：処理装置はロータリキルン仮焼炉とこれに直結したガラス溶融炉とからなる。

HLLWはロータリキルンの上端に供給し、えられる仮焼物はキルン下端よりガラス溶融炉に入れる。ガラス原料混合物は仮焼物とともに連続的に溶融炉に添加する。ガラス生成物は溶融炉から所定の大きさのバッチの生成物容器に流下させる。

対象となる廃棄物：HLLWは処理できる。Hg及びIなどの揮発性物質はガラス組織中に保持できない。

開発の現状：非放射性のパイロットプラント運転は実質的に完了しているが、放射性物質を用いた経験はない。1000 MTU/年の再処理工場よりのHLLWを処理できる規模の工場がMarcouleで完成間近い。

発生する廃棄物：液体及び気体廃棄物は通常利用できる装置で処理可能である。

プロセスの運転条件と特徴

背景

フランス原子力庁(CEA)はHLLW 固化の主要計画を1959年に開始した⁽²⁹⁾。最初の実験室での研究はSaclay及びFontenay Aux Rosesで実施し、これらの研究はポットガラス固化法を用いてMarcouleで継続された⁽³⁰⁾。PIVERとして知られる生産規模のパイロットプラントは、Marcoule再処理工場のHLLWを用いて1969年にホット運転を開始した⁽⁶⁾。PIVER法はホウ珪酸ガラス生成物を生ずるポットガラス固化法であり、この処理法をバックアップするための多用途試験施設Vulcainが建設されている。Vulcainの主目的は、PIVERのホット運転中に試験される各種の固化生成物を評価することであった。PIVER施設はSaint-Gobain Techniques Nouvelles(SGN)が設計した。

PIVERはHLWのガラス固化の可能性を実証したが、バッチ法のためにその処理容量が限定された。従って、フランスは実用再処理工場用として、ロータリキルンを用いる連続処理法を開発することとした。

原型のロータリキルン仮焼装置を5000時間試験したのち、1971年に連続溶融炉に接続する実規模の工業用ロータリキルンを設計・建設した。この装置の広範な試験は1972年に開始し、現在も継続されている。

Marcoule再処理工場用の実規模ガラス固化施設の工学設計は、SGNとCEAによって1973年に開始された。この施設のホット運転開始予定は1977年の中期であり、連続ロータリキルン仮焼—金属製溶融炉ガラス固化法が用いられる。

固化生成物

フランスは従来より放射性廃棄物の固定化（immobilization）を目的とする合成ガラスの開発に非常に積極的であり、1000～33000 MWd/MTU の範囲の燃焼度の数種の廃棄物組成に対するガラス合成物を開発している。これらの合成ガラスは大部分がホウ珪酸系であるが、U-Mo 燃料の再処理で生ずる Mo を固定する一種類の合成ガラスは比較的多量のリン酸塩を含有している。PIVER 及び連続法用のガラスの設計熔融温度は 1150℃ である。浸出試験の結果によれば、25℃ の蒸留水で 10～20 日間浸出したのちのガラスの浸出率は 10^{-7} g/cm²・日に低下する⁽³¹⁾。

処理方法

○ 処理容量

試験に用いた寸法のロータリキルン 1 基で濃縮した HLLW を 40～50ℓ/時の割合で仮焼できる。HLLW の組成及び量は再処理施設によって変動するが、FP 以外の塩含有量が適度に低い HLLW を想定すれば、2～3 基のロータリキルンで 5MT/日 の再処理工場から生ずる HLLW が仮焼しうると思われる。

○ ロータリキルン

ロータリキルンの回転筒は僅かに傾斜していて物質はキルン内を流下する。HLLW は重力フローでキルンの上端に供給し、下端より排出される仮焼生成物は直接ガラス熔融炉に入る。キルンの回転筒は長さが約 3.6 m、直径が 27 cm であり、筒の両端はローラ軸受で支持されている。回転筒の密封には静的なエンドフィッティングを用い、熱サイクルによる長さ方向の筒の膨脹・収縮は密封機構の設計で補償している。回転筒の両端の密封性は十分堅固なため、外部雰囲気に対してキルン内を多少負圧に保持することができる。密封部からは少量の空気が流入して密封部を清浄にしている⁽³²⁾。

ロータリキルンは電気抵抗炉による外部加熱であり、電気炉は独立して制御する 4 つの加熱帯に区分されている。最初の 2 つの加熱帯は HLLW の蒸発用で各々の容量は 20 KW、後の 2 つの容量はそれぞれ 10 KW である。従って、ロータリキルンの全加熱容量は 60 KW となる⁽³³⁾。

HLLW を仮焼物に変換するに要するロータリキルン内の平均処理時間は 30 秒であり、このように滞留時間が短いために揮発の問題を最小とするのに役立つ。

ロータリキルンからのオフガスはキルンの上端より排出し、まず小型の湿式スクラバを通して予備的に微粒子を除去する。スクラバ液はスクラバの底部から頂部にリサイクルし、オフガス流と向流接触するように流下させる。スクラバ液のリサイクル率と温度は、スクラバからの蒸発率と平衡するよう調節する。スクラバの底部から連続的に少量のブリードをとつ

てロータリキルンのヘッドポットに入れ、スクラバ液の比重を調節し、調整水はスクラバの頂部に添加する。

湿式スクラバを通過したオフガスは、通常のオフガス処理系に導く。この処理系の最初の装置は凝縮器と思われるが、大部分の凝縮性物質を除去したのちの処理が必要なオフガス量は $1 \text{ m}^3/\text{時}$ 以下となる。

○ ガラス固化

ガラス溶融炉は膨脹ベローによって直接ロータリキルン下端のエンドフィッティングに連結されている。炉の加熱はインコネル製炉容器の誘導加熱によって行ない、この炉容器は直径約 35 cm 、高さ 1 m である。ガラス原料混合物及びキルンからの仮焼物は、連続的に炉内に添加する。炉内の溶融物が所定レベルになると、炉内のガラス生成物は凝固 (freeze) バルブを通して固化生成物容器に流下させる。

ロータリキルン 1 基にガラス溶融炉 2 基を接続する。溶融炉の処理容量はガラス生成物にして約 $20 \text{ Kg}/\text{時}$ である。溶融炉からのオフガスはロータリキルンに導き、ロータリキルンのオフガスの一部とする。ガラス化装置の運転温度は 1150°C である⁽³²⁾。

溶融ガラス生成物に誘導的に接続して加熱するよう設計したガラス溶融炉のパイロットプラント試験は現在実施中である。ガラス溶融炉容器は、誘導加熱と相互作用のない耐火性材料で作られている。第 1 の型式の炉にくらべてこの型式のガラス溶融炉が有利な点は、より高い炉内温度、より長い寿命及びより大きい処理容量などである。La Hague 再処理工場の HLLW のガラス固化には、ロータリキルンでつくった仮焼物を供給する誘導加熱セラミック製溶融炉を利用する計画である。

○ 遠隔保守

仮焼・ガラス固化のパイロットプラントの設計及び建設には、完全な遠隔保守に必要なすべての特徴が含まれる。ロータリキルン、ガラス化装置及び第 1 段湿式スクラバの主要部分は、遠隔操作技術で 12~16 時間以内に取外し及び交換が可能である。これらの主要部分には、キルン炉構成部品、密封機構を含むキルンエンドフィッティング、キルン円筒、キルン支持フレーム、ガラス溶融炉容器及び溶融用誘導コイルがある。

実用設計が可能になるまでの推定期間

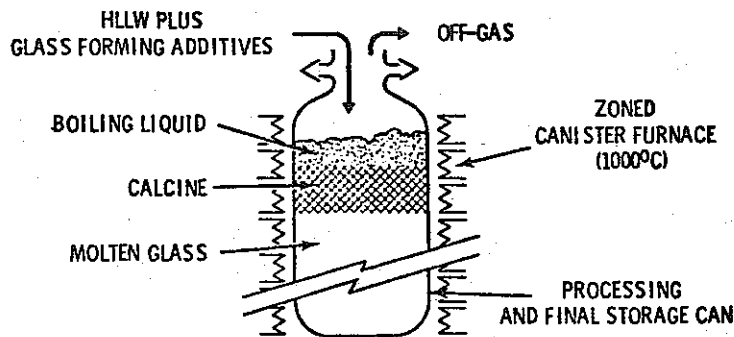
ロータリキルン・連続金属製溶融炉施設は Marcoule 再処理工場の隣の新建屋内に建設中であり、この施設で同工場の全発生 HLLW を処理する予定である。Atelier Vitrification Marcoule (AVM) として知られるこの施設は、1976年にコールド試験、1977年にホット運転を行う計画である。

主要な開発計画目標

残っている開発計画対象は、放射性同位体の挙動に関連するものが中心である。Ru, Te, Tc 及び特別な関心のある Mo の挙動について、放射性の試験が計画されている。Ru の揮発量を低減するため、HLLW 供給液の脱硝法を開発中である。

イギリスのレベル上昇ガラス固化法 (Rising Level Glass Process, FINGAL/HARVEST)

プロセスの要約



生成物の形状：不活性のホウ珪酸ガラスで、HLLW の酸化物とガラス形成添加物が重量比で 1 : 2 の割合である。

プロセスの概要：加熱した容器に液体廃棄物及びガラス形成剤を直接供給し、1000~1050℃で乾燥、仮焼及び熔融を行なう。このようにして、廃棄物成分はガラスマトリックス中に完全に溶解するかあるいは分散した状態で熔融する。オフガス中に同伴する固体及び揮発性成分は除去して給液中に戻す。処理用容器は円筒状または環状であり、これらは最終貯蔵容器となる。

対象となる廃棄物：ガラス形成に適したすべての液体廃棄物及び粉碎できる固体廃棄物に適用可能。

開発の現状：給液率 13.8 l/時 の非放射性施設及び給液率最大 5 l/時 で遠隔操作される放射性の FINGAL パイロットプラントでの運転実績がある。現在の開発努力は、熔融容量を増大させるための環状容器の利用に向けられている。

発生する廃棄物：液体及び気体廃棄物は通常再処理工場で利用可能な装置で処理できる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

FINGAL と名づけたレベル上昇 (rising level) ガラス固化法の開発は、1950 年代の末期に Harwell で始まった⁽³⁴⁾。それ以来、直径 15cm、長さ 1.5m の容器を用いた非放射性及び放射性工学規模試験が実施されており直径 30cm までの容器による非放射性試験も行なわれた^(35,36)。熔融容量を増大するため、HARVEST と称する処理法で環状容器の利用がその

他の改良とともに考慮されている⁽³⁷⁾。

レベル上昇ガラス固化法は、インドの Tarapur 再処理工場の HLLW の固定化用に選定されている⁽³⁸⁾。その他に、レベル上昇ガラス固化法の開発作業が米国内でも行なわれており、これには ORNL におけるコールドでの研究^(39,40)及び PNL における完全にホットな工学規模での実証がある⁽⁴¹⁾。

固化生成物

レベル上昇ガラス固化法では、リン酸ガラス及びホウ珪酸ガラス組織の両方が開発されてきた。最終貯蔵容器ともなるステンレス鋼製容器の腐蝕が少ないという点で、一般にホウ珪酸ガラス系が採用されている。硫酸塩を含む HLLW に対しては、硫酸塩がホウ珪酸ガラス中で混合しない水溶性の相を生ずるため、リン酸塩ガラスが採用される⁽³⁸⁾。

HARVEST 法での代表的ガラス組成は次の通りである。

SiO ₂	43	(wt %)
Borax	32	
廃棄物酸化物	25	

処理方法

開発中の HARVEST 法⁽³⁷⁾は、溶融するつばに直径 1.2 m 長さ 2.4 m までの環状容器を用いるバッチガラス固化法である。運転では容器を円筒状のマルチ加熱ゾーン炉中に降下し、もう 1 つの小型炉を容器内側環中に装入する。つづいて、給液口及びオフガス排出口のある環状形の蓋を容器上に置いて炉を 1050 °C に加熱したのち、HLLW 給液に合わせてガラス形成剤を乾燥したままあるいはスラリーとして添加する。廃液及びガラス形成剤が乾燥して溶融するにつれて容器内のレベルは上昇し、加熱炉への入力は自動調節して容器内の充填が完了するまで溶融ゾーンへ給熱する。再処理工場の HLW を処理するには 2 ないし 3 基の溶融装置を併列しなければならず、長時間の焼鈍を行なう場合はさらに複数の装置が必要となる。

融通性

- 1) ガラス組織に適合するすべての物質が処理できそうなこと。
- 2) 広範な濃度の廃液が処理できること。最大ガラス生成率は給液中の溶質濃度にほぼ比例する。
- 3) ILW の添加はガラス組織によってのみ制限される。
- 4) 処理操作の自動化は容易であるが、容器の操作は多分手動となる。

信頼性

- 1) 最も単純な確証されたガラス固化概念で、移動させるセル内部品は不必要である。

- 2) 溶融容器は溶融バッチごとに貯蔵容器として取換えるので、主要な装置の寿命は溶融炉の寿命である。
- 3) 制御する操作変数は、給液率、ガラス形成剤添加率、炉の加熱帯温度、オフガス同伴物質1次除去系である。
- 4) 給液率の急増または過大供給率による内圧上昇の可能性がある。
- 5) 始動、再始動及び停止で必要なのは、供給開始前及び終了後の給液配管の洗浄だけである。
- 6) 起りうる故障は、加熱炉の故障、給液・ガラス形成剤またはオフガス配管の閉塞、計装の故障ならびに容器の密封または取扱い時の故障である。

○ 処理容量

モデルの5 MTU/日の再処理工場のHLWをガラス固化するには、直径30 cmの溶融容器を3基併列すれば可能と推定されている⁽⁴³⁾。しかしながら、より大きい環状容器を用いれば基数は少なくなると思われる。

(37)

○ 推定所要空間

セルの高さは容器の長さの2.5倍、床面積は4.5 m × 1.3 mと見積られている。

実用設計が可能になるまでの推定期間

低容量溶融装置の設計はすでに可能である。モデルプラントの実用設計は1976年後期に開始できると思われる。

主要な開発計画目標

商業利用目的のHARVEST法の準備のため、1) 処理容量の増大及び2) オフガス同伴物質1次除去系の改良の2つの主要分野の開発が現在行なわれており、増容量については大型環状容器を用いて探究中である。大型の部分的にトロイド形状(toroidal shaped)の頂部の鋳造及び溶接ならびに環状の内部加熱炉及び冷却装置の開発には、新しい技術が必要である。また、環状容器を用いた運転経験も積まなければならない。

オフガス同伴物質1次除去法については、同伴及び揮発した放射性核種を均質にガラス中に同化されやすい形で溶融装置に戻すことのできる方法が探究され、スプレコンデンサまたは通常の管套コンデンサの利用が検討されている。

さらに、容器の首部分に付着する粉状物質を確実にガラス化する方法の開発も必要と思われる。ガラスとステンレス鋼との熱膨張係数の相異のため冷却中に応力が生ずるので、水中貯蔵中の容器の健全性を確保する開発研究もさらに必要と考えられる。

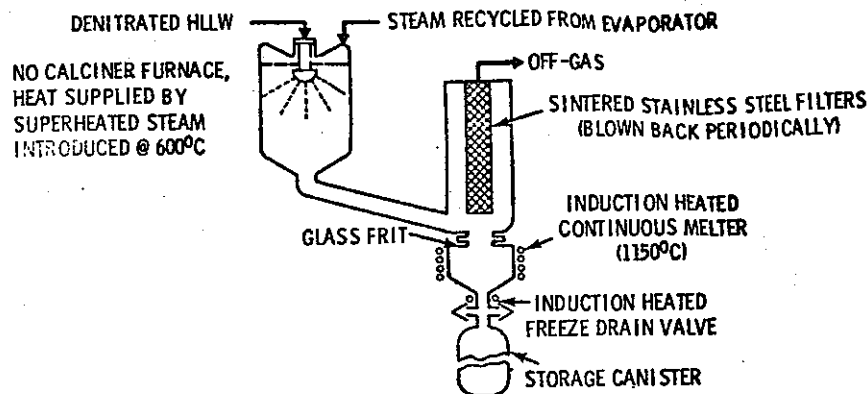
ドイツのガラス固化法

ドイツでは過去約10年間、放射性廃棄物のガラス固化の研究開発が行なわれてきており、これらは現在次の3つのサイトで実施されている。すなわち、Gesellschaft für Kernforschung (GFK, Karlsruhe), Hahn-Meitner-Institute für Kernforschung (Berlin) 及び Kernforschungsanlage (KFA, Jülich) である。

WAK再処理工場用として Karlsruhe で開発中の処理法の開発が一番進んでいるのでこれについて詳細に、他の処理法についてはより簡単にのべる。

ドイツのシュプレ仮焼・連続金属製溶融炉法

プロセスの要約



生成物の形状：HLLW酸化物を約30wt%含む不活性のホウ珪酸ガラスで金属製容器中に収納される。

プロセスの概要：Ruの揮発性を低減するためにHLLWはまず脱硝し、つづいてシュプレ仮焼装置で固化する。えられる仮焼粉末はガラス原料混合物と混和してインコネル製溶融炉中1100℃でガラス溶融物とし、これを抽出し用凝固バルブ(freeze valve)をへて金属製容器に収納する。

対象となる廃棄物：仮焼できるすべての液体廃棄物及び粉碎できるすべての固体廃棄物に適用されよう。揮発性(例えばHg, Cl)を有するか、またはガラス中で混合しない相を生成する(例えばSO₄)ため、ある種の化学的な制限がある。

開発の現状：非放射性廃棄物によるパイロットプラントでの実証ならびにHLLWをバッチ的に用いた実験室規模装置での試験が実施されている。

発生する廃棄物：オフガスの約95%はCO₂とN₂Oである。放射性廃棄物は再処理工場にリサイクルして普通の処理を行なう。

プロセスの運転条件と特徴

背景

西独のスプレ仮焼・連続金属製熔融炉法は、Karlsruhe Nuclear Research Centerで開発中である。WAK再処理工場（40t/年の原型工場）のHLLWを仮焼するため、仮焼物とガラス形成剤を混合し熔融してガラスとする固化法が1960年代の終りに提案され、この処理法はVERAと命名された。技術的な可能性及び運転経験をうるため、コールド試験用のパイロット規模のVERA施設が建設されて1970年に運転を開始した。⁽⁴⁴⁾ それ以来VERA施設で多数の運転が行なわれ、数種の重要な設計改良と相当の運転経験がえられている。放射性の⁵⁴Mnをスパイクした模擬廃液を用いた実験室規模実験は1971年に開始され^(44,45)、さらにFPを含む廃液を用いた実験は1974年に行なわれている。⁽⁴⁶⁾ 現在の計画は遠隔操作の生産規模原型装置の建設を目的としており、これには既存装置でえた改良点が織込まれている。原型装置は非放射性的のものであるが、大規模工場の遠隔制御による運転性を実証するのに役立つものと思われる。

固化生成物

固化生成物は、直径20cm深さ1mのステンレス鋼容器に注入したホウ珪酸ガラスである。ホム珪酸ガラス組成は開発中で、代表的なガラス成分は次の通りである。

SiO ₂	35	(wt%)
B ₂ O ₃	10	
Na ₂ O	19	
CaO	2	
Al ₂ O ₃	1	
TiO ₂	3	
HLW酸化物	30	

WAK工場のHLLWは仮焼後約35wt%のGd₂O₃を含有しているので、相当多量のGd(ガドリニウム)を混和するガラスが開発されている。⁽⁴⁶⁾ ガラス・セラミック成分も検討されている。

処理方法

VERA法には1) 廃液の脱硝、2) スプレ仮焼ならびに3) 熔融及び容器への注入の3つの段階がある。

○脱硝

脱硝では仮焼に先立って、ギ酸を用いて遊離硝酸及び可能な限り多くのFPの硝酸塩を分解する。

仮焼装置への給液中の硝酸塩を1ℓ当たり0.5モルNO₃⁻以下に調節すると、仮焼及び熔融期間中のRuの揮発量は全存在量の0.01wt%以下に減少する。大部分の重金属の硝酸塩は完全に脱硝される。^(44,48)

○仮焼

VERA スプレ仮焼装置は、化学工業で使用されている普通の仮焼装置と同様なものである。廃液は直径60cm高さ2mの仮焼装置の上端中心部にポンプで供給し、600℃の過熱蒸気によって噴霧・乾燥されたのち、装置内を流下中に仮焼される。仮焼物は蒸気速度で吹き飛ばされてフィルタ室に入り、3μmの孔径の焼結金属フィルタで除去される。フィルタの閉塞をへらすため、仮焼に先立って必要量の20wt%のガラス添加剤(SiO₂)を廃液に混ぜる。

オフガスに入る蒸気は凝縮させて除染したのちリサイクルし、非凝縮性の気体は再処理工場に戻して定常的に処理する。仮焼前に行なう脱硝により、NO_xの生成をへらすと同時に廃液の酸化電位を低減させて揮発性がより低いFPの化合物をつくるので、オフガス中には放射性または有毒性の気体は非常に少ししか含まれない。^(44,45)

○熔融及び容器への注入

仮焼装置でえられる仮焼物は、所定のホウ珪酸ガラス原料混合物と一緒に誘導加熱するインコネル600るつぼに定量的に供給される。るつぼは約1150℃に加熱したまま約2時間保持して熔融物を均一化する。誘導電磁場(2000ヘルツ)によって、低粘性(50ポアズ以下)の熔融物が確実に均質になるに十分なかくはんができる。^(44,48) 熔融炉内雰囲気調節する必要はない。⁽⁵¹⁾ 熔融炉内が約2/3満たされると、炉底にある凝固バルブ(freeze valve)をへて熔融物を抜き出すが、凝固バルブの開閉には小型誘導コイルを用いる。⁽⁴⁸⁾ 誘導加熱する廃棄物容器に熔融物を受けて焼鈍したのち、容器を溶接して密封し検査して貯蔵する。

○処理法の信頼性

パイロット規模の非放射性施設は1970年以来Karlsruheで運転され、システムは最近1週間連続運転したのち予定通り停止されている。脱硝装置、スプレ仮焼装置及び誘導加熱インコネル600熔融炉などの主要装置は、普通の設計のものをVERA法用として若干改造したものである。

現在、インコネル600熔融炉の寿命は熱歪と腐蝕のため1000時間が限度と見込まれている。実験室で用いたインコネル690熔融炉はよりすぐれた耐蝕性を示しているが、この材質のパイロットプラントでの経験はない。

インコネル製コンダクタンスプローブで熔融物のレベルを調節する方法は、プローブに熔融物及び仮焼物が付着して電氣的に熔融物を絶縁して問題となる。改良したレベル調節法の開発が目下行なわれている。

実用設計が可能になるまでの推定期間

西独では廃棄物固化施設が1980年代初期に必要となると想定され、開発はこれを目指して進められている。蒸気加熱スプレ仮焼装置の実用設計は2年後には可能と推定される。

主要な開発計画目標

実規模の遠隔操作実証プラントは1980年に完成の予定である。この施設の運転によって、長期間の信頼性及び保守性の情報がえられる。

蒸気を過熱するシステムはさらに開発され、改良設計によって仮焼物が沈積しなくなると思われる。熔融炉の寿命及び処理容量の向上も探究される予定である。

その他のドイツのガラス固化法：テルミット法

VERA法のガラス熔融工程に対する潜在的な替りの方法として、HLWのテルミット固化法がKarlsruheで開発されている。反応前の代表的なテルミット混合物の成分は次の通りである。⁽⁴⁵⁾

仮焼物	23	(wt%)
SiO ₂	16	
MnO ₂	40	
Al	21	

反応はクラッキングを阻止するため1000℃に予熱したセラミックるつぼ中で行なわれる。少量の反応する物質をるつぼ中に置いて着火し、反応の進行につれて残りの物質を連続的に添加する。2Kgバッチの物質が約3分間で完全に反応する。反応中は2500℃以上の温度となり、2Kgバッチで60～80gの固体がオフガスフィルタに捕集される。使用済のフィルタは反応室に入れて処分する。⁽⁴⁵⁾

テルミット反応生成物は非常にごつごつしたセラミックと金属の2相系で、少なくともガラスと同等な物質である。

開発研究の多くは処理容量2Kgの半連続の実験室規模施設で実施されている。半連続の15Kg容量のパイロット規模施設の運転開始は1975年後半と予定されていた。⁽⁴⁵⁾

その他のドイツのガラス固化法：ガラスセラミック法

Hahn-Meitner Institute は FP をガラスセラミック中に固定する実験を行なっている。⁽⁴⁸⁾ 現在迄、実験は下記組成のものを用い実験室規模で実施されているが、この処理法の詳細は 6・3・3 でのべる。

SiO ₂	30 ~ 70 (wt %)
Al ₂ O ₃ , B ₂ O ₃ , C ₂ O, CaO, ZnO	≤ 30
Li ₂ O, Na ₂ O, K ₂ O	≤ 20
TiO ₂	≤ 13
FP の酸化物	≤ 30

その他のドイツのガラス固化法：Julich ホウ珪酸ガラス法

Julich における開発研究は、ホウ珪酸ガラス固化法のための脱硝、ドラム乾燥、容器内熔融 (in-can melting) 法の完成を指向している。初期の段階では、容器内熔融法よりもむしろ誘導加熱黒鉛るつぽで熔融したのちこれを軟鋼容器に収納する方法が用いられた。⁽⁵⁰⁾

フォルムアルデヒドで pH 約 3.0 に脱酸した HLW にガラス形成添加剤 (例えば、CaCO₃, SiO₂) を加えると、pH が上り粘性のあるスラリーとなる。このスラリーをドラム乾燥機に移送し、えられた固体ケーキを連続的に容器に掻き落して熔融する。⁽⁵⁰⁾

Julich 法は実験室規模のコールド及びホット試験が行なわれている。

その他のドイツのガラス固化法：Pamela リン酸ガラス法

Pamela 処理法は Julich の Gelsenberg Company で開発中で、この計画の目的は含トリウム廃棄物をガラス固化するにあり、廃棄物の混合比を高めるためリン酸ガラスが選定された。この処理法ではリン酸ガラスが失透 (devitrification) しないようにするため、貯蔵中のガラスを確実に 500 °C 以下に保持するよう計画されている。このため、ガラスは小粒 (直径約 3mm) として金属マトリックス中に混和する。⁽⁵¹⁾

HLLW はフォルムアルデヒドで脱硝したのち十分な量の H₃PO₄ を加えて濃縮し、えられたスラリーを白金熔融炉で約 1000 °C に加熱してリン酸塩ガラス熔融物とする。熔融物は底部にオリフィスのある特殊容器に抜き出してオリフィスを通して液滴としたのち、回転板上で冷却して容器中に掻き集める。

腐蝕性のリン酸塩熔融物を用いるので白金製熔融炉が必要となるが、白金の代りに鋼が使えるよう特殊セラミック被覆に関する試験が Julich で行なわれている。粒状のガラスは Eurochemic が開発した技術を用いて鉛合金中に封入 (encapsule) される。Julich のホットセル実験装置の処理容量は廃液にして約 7ℓ/時であり、これはガラス生成物にして 150 ~ 200ml/時に相当する。放射性の粒状ガラスを Eurochemic のホットセルに送り、そこで約 3 ~ 5 ℓの

金属ブロック中に混合する計画がある。ガラス化よりのオフガスは脱硝工程の還元雰囲気中にリサイクルして揮発したRuを確実に保持し、全処理工程のオフガス流を脱硝工程よりのオフガス流1つにまとめる。

Pamela 処理法はコールド及びホットの状態で行われている。

REFERENCES

1. J. M. White and G. Lahaie, "Ultimate Fission Product Disposal. The Disposal of Curie Quantities of Fission Products in Siliceous Materials," AECL Report CRCE-591, 1955.
2. L. C. Watson, R. W. Durham, W. E. Erlebach and H. K. Rae, "The Disposal of Fission Products in Glass," Proceedings of 2nd United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 1958, Geneva, vol. 18, pp. 19-26, United Nations, NY.
3. M. I. Goldman, J. A. Servizi, R. S. Daniels, T. H. Y. Tebbutt, R. T. Burns and R. A. Lauderdale, "Retention of Fission Products in Ceramic-Glaze-Type Fusions," Proceedings of 2nd United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 1958, Geneva, vol. 18, pp. 27-32, United Nations, NY.
4. J. L. McElroy, K. J. Schneider, J. N. Hartley, J. E. Mendel, G. L. Richardson, A. G. Blasewitz and R. W. McKee, Waste Solidification Program Summary Report, Vol. 11, Evaluation and Application Studies of WSEP High Level Waste Solidification Processes, BNWL-1667, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, 1972.
5. A. G. Blasewitz, G. L. Richardson, J. L. McElroy, J. E. Mendel and K. J. Schneider, "The High Level Waste Solidification Demonstration Program," in Proceedings of the Symposium on the Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Paris, pp. 615-650, 1972.
6. R. Bonniaud, F. Laude and C. Sombret, "Experience Acquired in France in the Treatment by Vitrification of Concentrated Solutions of Fission Products," in Proceedings of the Symposium on the Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Paris, pp. 555-589, 1972.
7. T. H. Smith and W. A. Ross, Impact Testing of Vitreous Simulated High-Level Waste in Canisters, BNWL-1903, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, May 1975.
8. W. A. Ross, "Thermal Fracture Behavior of Glass in Simulated Glass Canisters," in Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, October through December, 1974, BNWL-1893, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 35-38, February 1975.
9. W. R. Bond, J. N. Hartley, J. E. Mendel, J. L. McElroy and R. J. Thompson, Waste Solidification Program, Vol. 8, Spray Solidification Performance During Final Radioactive Tests in Waste Solidification Engineering Prototypes, BNWL-1583, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, June 1971.
10. B. Duffy, "Canister Thermal Analysis," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, October, November, December 1975, BNWL-1978, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, February 1976.
11. J. D. Kaser, Evaluation of Atomizing Nozzles for the Spray Solidification of Radioactive Waste, BNWL-1066, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, June 1969.
12. L. S. Romero, "Spray Calciner," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1949, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, 1975.

13. W. J. Bjorklund, "Fluidized Bed Calciner," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1949, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, 1975.
14. H. T. Blair and W. J. Bjorklund, "In-Can Melting and Fluidized Bed Calciner," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1908, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 5-14 and 20-30, June 1975.
15. H. T. Blair and R. B. Dakan, "In-Can Melting," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1893, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 5-11, February 1975.
16. K. Brodersen and I. Larsen, "Inactive Pilot Studies of a Process for Vitrification of Highly Radioactive Waste at the Research Establishment Riso," Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, Richland, WA, pp. 197-206, February 1966.
17. R. B. Dakan, "Molybdenum Electrode Glass Melting Furnace," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1788, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 28-29, October 1973.
18. R. B. Dakan, C. C. Chapman and A. K. Postma, "Ceramic Electrode Heated Melter," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1809, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 14-15, January 1974.
19. C. C. Chapman, "Ceramic Electrode Heated Melter," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1826, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 11-12, April 1974.
20. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1841, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 21-23, July 1974.
21. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1871, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 10-13, November 1974.
22. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1893, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 11-13, February 1975.
23. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1908, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 15-19, June 1975.
24. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1932, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 9-12, September 1975.
25. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1949, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 8-12, November 1975.
26. F. V. Tooley, The Handbook of Glass Manufacture, Vol. I, Books for Industry, Inc., New York, p. 392, 1974.
27. J. L. Bates, "Ceramic Materials Molten Glass Compatibility," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1809, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 16-20, January 1974.

28. J. L. Bates, "Ceramic-Molten Waste Glass Compatibility," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1932, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 25-31, September 1975.
29. P. Faugeras, "The French High Level Waste Management Program," in CONF-660208, February 1966.
30. F. Laude, "Pot Vitrification of Concentrated Fission Product Solutions," in CONF-660208, pp. 222-234, February 1966.
31. R. Bonniaud and C. Sombret, "Statement of Research in the Field of Solidification of High Level Radioactive Waste in France," 77th Annual Meeting of the American Ceramic Society, May 1975.
32. R. Bonniaud, "Survey of the Studies Conducted in France on the Solidification of Concentrated Fission Product Solutions, in CONF-660208, pp. 120-138, February 1966.
33. R. Bonniaud, C. Sombret and A. Barbe, "French Industrial Plant "AVM" for Continuous Vitrification of High-Level Radioactive Waste, Paper presented at the American Institute of Chemical Engineers Meeting, November 18, 1975.
34. M. N. Elliott et al., Report of Second Meeting on Fixation of Radioactivity in Stable, Solid Media, Idaho Falls, ID, TID-7613, 1960.
35. K. D. B. Johnson et al., "Work in the United Kingdom and Fixation of Highly Radioactive Wastes in Glass," Paper presented at the Third United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 1964.
36. M. N. Elliott et al., Fixation of Radioactive Waste in Glass, Part I, Pilot Plant Experience at Harwell Presented at the Symposium on Treatment and Storage of High Level Radioactive Wastes, Vienna, October 8-12, 1962.
37. D. W. Clelland, "High Level Radioactive Waste Management in the United Kingdom," Paper presented at the Symposium on the Management of Radioactive Waste from Fuel Reprocessing, Paris, November 27-December 1, 1972.
38. N. S. Sunder Rajan, M. S. Kumra and K. T. Thomas, "Waste Immobilization Plant at Tarapur-A Survey of Process and Design Features," Paper presented at the Symposium on the Management of Radioactive Waste from Fuel Reprocessing, Paris, November 27-December 1, 1972.
39. W. E. Clark, H. W. Godbee and C. L. Fitzgerald, "Laboratory Development of Pot Processes for Solidification of Radioactive Wastes," in Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, Richland, WA, February 14-18, 1966, CONF-660208, pp. 95-119, 1966.
40. J. C. Suddath, C. W. Hancher and J. M. Holmes, "Engineering Development of the Pot Processes for Solidification of Radioactive Waste," in CONF-660208, pp. 301-305, 1966.
41. J. L. McElroy, J. N. Hartley, J. E. Mendel and G. L. Richardson, Waste Solidification Program, Volume 9, Pot Solidification Performance During Final Radioactive Tests in Waste Solidification Prototypes, BNWL-1628, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, January 1972.
42. D. W. Clelland, "Is Clean Power Possible?," New Scientist, p. 888, September 26, 1974.
43. J. R. Grover, "The FINGAL Process," Presented at the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, Richland, WA, February 14-18, 1966.
44. W. Guber, W. Müller and J. Saidl, "Experiments in Hot Cells," Annual Report of the Department of Decontamination Management, KFK-1830, 1971.
45. G. Rudolph, J. Saidl, S. Drobnik, W. Guber, W. Hild, H. Krause and W. Müller, "Lab-Scale R&D Work on Fission Product Solidification by Vitrification and Thermite Processes," OECD-IAEA Proceedings of Symposium on Management of Radioactive Wastes Fuel, 1972, Paris, pp. 655-679, 1973.
46. W. Guber, L. Kahl and J. Saidl, "Recent Experiments in Fixation of High Activity Waste in Karlsruhe," Presented at the 77th Annual Meeting of the American Ceramic Society in Washington, DC, May 3-8, 1975.

47. S. Drobnik, "Destruction of Nitric Acid in Radioactive Effluents with Formic Acid, Annual Report of the Department of Decontamination Management, KFK-1060, 1968.
48. W. Guber, W. Diefenbacher, W. Hild, H. Krause, E. Schneider and G. Schubert, "Pilot-Plant Experience on High Level Waste Solidification and Design of the Engineering Prototype VERA," OECD-IAEA Proceedings of Symposium on Management of Radioactive Wastes Fuel, 1972, Paris, pp. 489-512, 1973.
49. A. K. Dè, B. Lucksheimer, W. Lutze, G. Malow and E. Schiewer (Hahn-Meitner Institute, Germany), "Studies on the Fixation of Fission Products in Ceramic Materials," Transactions of the American Nuclear Society, vol. 20, pp. 666-669, Vienna, 1975.
50. St. Halaszovich, M. Laser, E. Merz, K. H. Rattay, S. Storch and D. Thiels (Julich), "Interim Storage on Solidification for Thorex-Type Fission Product Solutions," OECD-IAEA Proceedings of Symposium on Management of Radioactive Wastes Fuel, 1972, Paris, pp. 705-730, 1973.
51. W. Heimerl (Gelsenberg-Germany), "A New Method for the Fixation of High Level Radioactive Wastes," Transactions of the American Nuclear Society, vol. 20, pp. 659-671, Vienna, 1975.

6.3.3. その他の固化処理法

仮焼及びガラス固化に代る方法が次にかかげる4つのうちの1つ以上の理由で調査検討されている。

1. 固化及び貯蔵あるいはいずれか一方のコスト、すなわち電力コストを低減する。
2. 運転を簡単にして処理の信頼性を高める。
3. 簡単にはガラス固化に適合しない廃棄物から不活性な形のものをつくる。
4. 主要な処理法よりも不活性度が高く分散性の低い形の廃棄物を生成する。

第4のカテゴリの廃棄物形をうるためには、一般に運転が複雑となり操作の危険性及びコストが高くなるが、これらはより安定な生成物によってえられる利益とバランスして考えなければならない。

仮焼及びガラス固化に代る多数の方法が提案されており、これらのうちの直接処分をふくむいくつかの方法は最終貯蔵及び処分(第4巻)の項でのべるが、その他の大部分の方法は再処理工場内に設けられるものであって、そのうちの主要な処理方法をここにのべる。この報告書ではいくつかの処理法をまとめている。例えば、イオン交換処理については多くの方法が提案されているが、1つの特定の方法のみを詳細に採り上げて最新の調査結果をのべる。その他の処理法はいくつかの項でのべた最終形状の廃棄物をえるための開発活動から引き出すことができる。例えば、ある処理法ではスーパー仮焼物(supercalcine)のペレットをつくり、ペレットを耐久性のある被覆で包んだのち、被覆ペレットを容器内の金属マトリックス中に混和することができる。このような処理法では、希望する生成物の安全性がえられるまで隔壁及被覆を追加して処理の複雑性が増大しつづける可能性があるが、複雑になるごとにコストの上昇ならびに工場の信頼性の低下を招く。

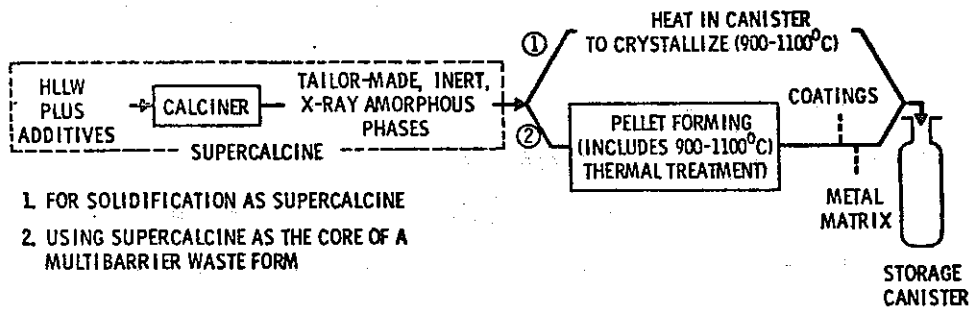
代替法は仮焼及びガラス固化法程には関心を持たれておらず、また開発されてもいない。

従ってこれらの開発の程度は低くて最良の組合せ及び選択は必ずしも試験されておらず、処理法及び生成物について多くの改良の可能性が残されている。また、各種の制限値及び潜在的な問題も必ずしも確認されていない。代替法の開発は主として研究室規模に限られてきているので、実規模工場に適用可能となるまでには一層長い導入期間が必要と思われる。

ここでは代りの固化法を総括的に採り上げないで、HLLW の固定化を目的として現在調査検討中の廃棄物形状ならびに処理法の代表的なものについてのべる。例えば詳細にのべなかつた廃棄物形状には、セラミックスポンジ (1, 2), コンクリート (3-5) 及びガラス状炭素 (glassy carbon) 中の廃棄物酸化物⁽⁶⁾がある。

スーパ仮焼法 (Supercalcine)

プロセスの要約



生成物の形状：“スーパ仮焼物 (supercalcine)”とは、添加物を加えないでえられる普通の酸化物仮焼物にくらべて耐火性及び耐溶出性のすぐれた熱力学的に安定な結晶相の集合体をうるために、HLLWに特定の添加物を加えて(35～45 wt%) 仮焼したのち熱処理してえられる“特別製 (tailor-made)”の結晶性セラミック廃棄物形状に対する技術用語である。スーパ仮焼物はその由来の通り潜在的にすぐれた仮焼生成物であり、混成多重隔壁 (composite multibarrier) 廃棄物形状のコアに用いることもできる。

プロセスの概要：廃棄物の組成に応じて選定される添加物 (普通 Ca, Sr, Al 及び Si を含む) はHLLWに溶液として混合する。添加物と廃棄物の混合液はすでにのべたHLLW 仮焼法の1つを用いて仮焼可能であり、完全に希望する結晶質構造とするために900～1100℃で熱処理しなければならない。スーパ仮焼物を混成廃棄物形状の1部に利用する処理法については次頁以下にのべる。

対象となる廃棄物：HLLW は処理可能である。Hg, I などの揮発性物質は仮焼物組織中に保持できない。

開発の状態：スーパー仮焼物形式は、1973年末以来 Pennsylvania State Univ.で実験室規模の非放射性試験が行なわれている。工学規模の非放射性試験は PNL のスプレ仮焼装置で実施されている。

発生する廃棄物：特別の気体及び液体廃棄物の発生はなく、これらの廃棄物は HLLW 固化より生ずる廃棄物の処理に通常用いられる装置で処理可能である。

プロセスの運転条件と特徴

背景

スーパー仮焼の開発研究は 1973 年の秋に Pennsylvania State Univ. (PSU) で開始され、⁽⁷⁾ 現在も継続中である。開発の第 1 段階は HLLW の陽イオン類を組合せた酸化物の結晶化学の研究であり、つづいて Cs の固定に適した結晶相の広範な評価が行なわれ、アルミノ珪酸塩 ($CsAlSi_2O_6$) が利用可能な最善の相であるとの結論がえられた。最近、HLLW 中の主要化学種を安定な不活性結晶相中に固定する数種のスーパー仮焼物の体系づけが行なわれた。(廃棄物成分の Ru, Te, U, Tc, Pd 及び他の数種の微量成分はまだこれらの体系に添加されていない。) この体系の 1 つはすでに PNL で工学的規模でスプレ仮焼処理されている。900~1100℃の実験室規模試験で、予め選定した相が十分に結晶化し良好な焼結性を示すことが実証されている。

固化生成物

スーパー仮焼物は多重隔壁廃棄物形状の最内壁にのみなると考えられる。従って、ペレットの被覆層、金属マトリックスなどを含む混成固化生成物が関連する全体的な特性のすべてを明確にすることはできないので、ここでは結晶相に関係がある特性のみをのべる。

スーパー仮焼物設計では Cs が一番問題となる。Cs 酸化物の結晶相で溶出しにくくて 900~1100℃で安定なものは少ししかなく、Cs の固定に最適な相は自然界で Cs が存在する鉱物 pollucite ($CsAlSi_2O_6$) であることが判明している。これは Cs の水中への溶出性が非常に低く⁽⁸⁾、すぐれた熱的な安定性をもっている⁽⁹⁾。放射性核種の原子のスケールでの隔離の概念は、pollucite 中での Cs の配位多面体で説明される。Cs イオンはアルミノ珪酸塩 4 面体の 3 次元的網状組織の一部を構成する 12 の酸素イオンで囲まれている。スーパー仮焼物から pollucite が結晶化する間に Cs がこの骨組中に組み込まれると、移動するには大きすぎるので Cs はこれらの位置に閉じ込められてしまう。

類似の方法でおのおのの長半減期核種は特定の結晶組織中に固定される。1 つ以上の廃棄物成分が 1 つの結晶組織中に含まれることが少なくない。例えば 3 価の希土類元素イオン ($RE = Nd, La, Pr, Sm, Pm, Eu, Gd$), Sr 及び PO_4 はリン灰石 (apatite) 組織固溶体相 (Si_{2+x}

$RE_{6-x}(SiO_4)_{6-x}(PO_4)_xO_2$ 中に固定される。アクチノイド類もこの相の希土類の位置に含まれる可能性があるが、まだ研究されていない。pollucite 及びリン灰石の他に、原子レベルでの固定に選定される結晶相には灰重石 (scheelite) 型 $[(Sr, Ca, Ba)MoO_4]$ 、ホタル石 (fluorite) 型 $[(Ce, Zr)O_2]$ 、ペロブスカイト (perovskite) 型 $[(Ba, Sr)ZrO_3]$ 、及び尖晶石 (spinel) 型 $[Ni(Fe, Cr)_2O_4]$ がある。これらの結晶相はいずれも 1200℃ で高い熱的安定性があり、化学的により簡単な同種組織相の既知の挙動から推定すれば、この熱的安定性は少くとも 1400℃ まででは保たれると思われる。

この種の結晶相をつくるには約 35 wt % の添加剤を多量の FP を含む型の廃棄物に混合する必要がある、現在の形式では Ca, Sr, Al 及び Si を添加しなければならない。モデル的再処理工場の HLLW には 35 ~ 40 wt % の添加物が必要と推定されている。

熱伝導度はまだ測定されていないが、スーパー仮焼物がかたく結合しておればガラスと余り違わないと考えられる。

溶出実験は単一相または混成スーパー仮焼物のどちらについても実施されていない。モリブデン酸塩灰重石組織相が最高の溶出性を示すと考えられるが、この場合でも $SrMoO_4$ を含むいくつかの沈殿反応から見てその溶出率は $10^{-5} g/cm^2/日$ 以下と推定される。

ある種の結晶相をえるにはある特定の添加物が必要なのは当然であるが、廃液流は一定の組成とは考えられないので、一番厄介な化学種 (例えば Cs, Mo) を固定するのに必要な添加物の過剰量はスーパー仮焼物の体系で考慮されている。これらの過剰成分が不必要な場合は、これらは互に反応して不活性で安定なマトリックス (例えばストロンチウムアルミノ珪酸塩) を生成する。

処理方法

スーパー仮焼物を調製するには特定の化学試薬溶液を HLLW に添加する。現在の体系では Ca, Sr 及び Al の硝酸塩溶液とシリカ (SiO_2) の安定化したコロイド液とが必要である。つづいて、混合溶液は既述したスプレまたは流動床仮焼法で仮焼する。この時点では生成物は粒状で X 線的にはほとんど非晶質であり、結晶質とするには 900 ~ 1100℃ で加熱しなければならない。加熱時間は 30 分間で十分である。急速に乾燥する溶液でえられる原子レベルのかくはんにより結晶化に必要な固体拡散量が減少する。これがこのように比較的小さいエネルギー入力 (すなわち温度と時間) で良好な結晶化がえられる主要な理由の 1 つである。

スーパー仮焼プロセスのダイアグラムによれば、ある廃棄物をスーパー仮焼して原子レベルで核種を固定するには 2 つの方法がある。最も簡単な方法は仮焼生成物を直接容器中におき、外部加熱または放射性壊変による自己加熱を利用してスーパー仮焼物を結晶化させるものであろう。しかしながら、この方法でえられる生成物の結合度は弱くて密度も低く、容器が破損

した場合は物理的に分散する可能性がある。

高密度の生成物は普通の結晶化段階前にペレット化 (pelletizing) してえられる。ペレット化については別にのべる。

実用設計が可能になるまでの推定期間

分散した仮焼物が廃棄物形態として受入れられる場合には、スーパー仮焼概念はいくつかの放射性廃棄物成分の安定性及び不溶性を向上させるフローシートに直ちに採用することができる。スーパー仮焼概念の可能性を完全に開発する、すなわちすべてのHLLW成分を最適に安定な結晶形中に組入れるにはあと数年は必要と見込まれている。

スーパー仮焼を利用した混成生成物をつくるにはいくつかの一貫した処理工程の開発が必要であり、この例としてペレット化及び被覆の適用がある。スーパー仮焼物をコアに用いた多重隔壁の廃棄物形態をつくる処理法の実用設計ができるまでには、なお10年かゝると考えられている。

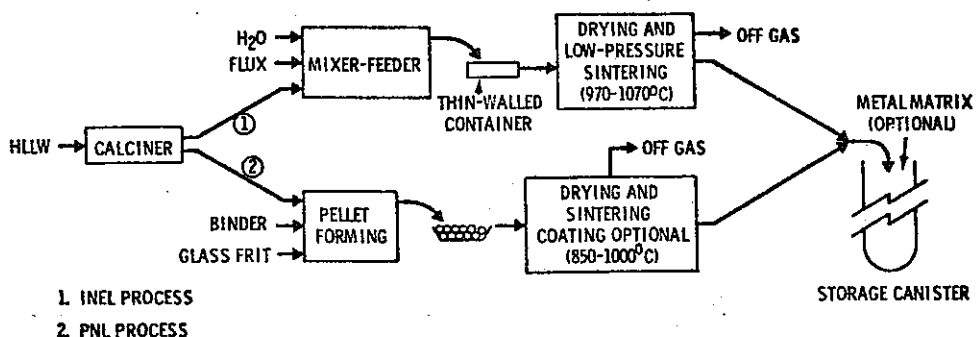
主要な開発計画目標

実験室研究が下記の数分野でつづけられている。

- 添加物及び体系化の改善。
- 結晶化熱処理 (900 ~ 1100℃) 中の Ru, Te, Tc などの潜在的な揮発損失に対する配慮ならびに必要な揮発損失を防止するためのこれら成分の適当な結晶相の生成。
- スーパー仮焼物の合体化方法。
- 粒状及び合体化したスーパー仮焼物の溶出性及び熱的安定性の特徴づけ。
- 放射線の影響及びFPの保持。
- スーパー仮焼物中の特定核種の結晶化学的役割 (例えば, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ⁹⁹Tc, アクチニド) 。

焼 結 法 (Sintering Process)

プロセスの要約



生成物の形状：850～1070℃で50～67 wt%の仮焼廃棄物と融剤との混合物を焼結してえられるガラス及び結晶相の生成物である。生成物は耐溶出性であり耐衝撃性が高く、耐熱ショック性もあつて800℃では固体の形を保つ。この生成物はペレットまたは大型の厚い円盤状にも成形できる。

プロセスの概要：仮焼物は融剤（flux）及びバインダ潤滑剤（水でもよい）と混合する。大型円盤状とするときは、混合物をプレスして浅い薄壁（thin-walled）鋼製容器に入れる。ペレットをつくる場合は粉末をペレット成型機に送る。つぎに成型した混合物を焼結するが、大型円盤では容器に順応させるためまだ十分冷えないうちに低圧プレスが必要である。冷却後円盤は容器に直接装入できる。ペレットにはマトリックスが必要と考えられ、被覆（coating）することもできよう。

対象となる廃棄物：仮焼可能なHLLW及びHLLW-I LLWには適用できる。Hg及びClなどの揮発性物質は混和しないと思われる。

開発の現状：実験室規模で生成物をつくり試験が行なわれている。長期間の詳細な特性調査は未完であるが、特定の処理法の工学規模開発研究は約1年以内に開始可能と考えられる。実証施設の詳細設計は1979年及び1980年に始められよう。

発生する廃棄物：発生予定の液体及び気体廃棄物はすべて通常利用される装置で処理可能と考えられる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

仮焼物と融剤との混合物の焼結生成物はINEL⁽¹⁰⁾とPNL⁽¹¹⁾の両所で開発されている。仮焼廃棄物と融剤またはガラス原料混合物とを混合して希望する型に成型し、焼結して仮焼物と添加剤とを反応させ、えられる生成物の密度、強度及び耐久性を増大するという点で両所の処理法は類似している。生成物はガラス及び結晶の2相からなり、INELは焼結ガラス—セラミック（sintered glass—ceramics, SGC）と称している。

生成物

焼結生成物の性質は、ガラス原料混合物または融剤の選定及び仮焼物の添加量によって広い範囲で変化する。高温焼結（875～1070℃）では仮焼物の混合量が高められる（50～70%）。生成物は800℃付近で高い安定性を有するが、これは熱発生率の高い新しい廃棄物で遭遇する可能性がある温度である。

INELで流動床仮焼物に用いるアルミノ珪酸塩融剤の組成は、3.9% Na₂O, 2.0% K₂O, 9.7% Al₂O₃, 52.1% SiO₂, 2.4% CaCO₃, 19.6% BaCO₃, 3.5% ZnO及び6.8% TiO₂である。PNLで用いているガラス原料混合物75-10の組成は、6% Na₂O, 6% K₂O, 47% SiO₂, 7.5

% CaO, 2.5 % MgO, 1.5 % ZnO 及び 1.6 % B₂O₃ である。これらの添加物は数種の合成仮焼物で試験されており、生成物の密度は 2.4~3.3 g/cm³ の範囲で、モデル的廃棄物の比容積は 30~55 l/MTU と考えられる。また、生成物は 8~25 vol % の残留多孔度を有し、熱伝導度は約 0.7 W/m℃ である。小径のペレットは 800℃ の炉から室温の水中に落してもそのままの形であり良好な耐熱ショック性を示す。

良好な焼結生成物の溶出率はガラスと同等である。INEL はその生成物を 25℃ で試験し、溶出率が最初は ~10⁻⁵ g/cm²・日 であり 35 日後には ~6×10⁻⁸ g/cm²・日 に低下することを測定している。また、空气中 800℃ で 30 日間の減量が約 0.1 wt % であり良好な高温安定性のあることを実証している。

処理方法

焼結生成物のプロセスは普通の高温熱処理であり、生成物は反応して密度が高くなる。焼結用物質の調製及び後処理は処理の最終目標によって変わる。焼結処理は実験室規模でしか開発されていないので、以下の記述は実証された工学というよりもむしろ概念的である。

INEL 生成物はまず 50~67 wt % の仮焼物を未熔融の融剤と混合して調製する。混合物に 5~8 % の水を加えて密度を上げ粉塵を防ぎバインダの役目をさせる。つづいて、混合物を薄い (~0.5 mm) 鋼製の容器 (高さ 10~15 cm 径 30 cm) に入れ、容器に順応させるために軽く加圧 (700~3500 g/cm²) して水平にする。容器内の混合物の温度を 4~6 時間かけて徐々に焼結温度に上げる。この間に仮焼物または融剤中の揮発成分 (NO_x, CO₂, H₂O) は放出される。仮焼物及び融剤のタイプまたは混合率によって変化するが、焼結温度は 970~1070℃ の間にあり、焼結時間は 4~6 時間である。焼結によってさらに緻密になるので、熱半固体生成物 (950~1000℃) を軽く加圧 (1400~3500 g/cm²) して、焼結サイクルの末期近くに容器壁と生成物を確実に均一に接触させる。焼結生成物は徐々に冷却し (2~4 時間)、処理温度に加熱されたことのない最終貯蔵容器に入れる。

PNL では焼結用ペレットの数種の調製法が調査されており⁽¹²⁾、これには押出し、コールドプレス及びディスクペレット化法がある。一番簡単なディスクペレット化法をここで述べる。ディスクペレタイザーは単に軸間を回転する浅い円形の傾斜した平らな容器 (pan) である。仮焼物及びガラス原料混合物を定量的に平らな容器に入れ、水またはバインダ液を粉末上にスプレする。湿った粉末は雪だるま状に、ついで球状のペレット状となり、満杯になると平らな容器からオーバフロする。運転パラメータを変化させて ~1~10 mm の範囲でペレット径を調節できる。ついでペレットを熱処理サイクルにかけて乾燥及び焼結 (約 900℃) する。次に、焼結生成物は被覆するかあるいは金属マトリックス中に直接混和することができる。被覆及び金属マトリックスの詳細についてはそれぞれの項でのべる。

焼結処理では NO_x, CO₂ 及び H₂O の気体廃棄物が生ずるが、この他に少量の放射性 Ru

及びCs が揮発する可能性がある。オフガスの量は仮焼時の10%以下と予期されるので、他の固化法で用いる標準的なオフガスのろ過及び捕集装置によって十分除染されると考えられる。

この処理法では混合比率、温度、気体廃棄物、生成物の品質、容器の健全性及び発熱率をモニタする装置が必要と思われる。in-cell 機器の設計は、交換及び遠隔保守を容易にするためにモジュール化されよう。プロセス用の空気、蒸気、電気、除染及び一般工場保守施設などの標準的なユーティリティは多分必要である。一般に必要と考えられる空間には in-cell 遠隔操作区域、遠隔補修・除染区域及び遠隔容器装荷・貯蔵区域がある。その他に、セル外の装荷区域、試薬調製区域及び資材貯蔵区域なども必要と思われる。

実用設計が可能になるまでの推定期間

INEL 処理法の実規模実証プラントの工学設計は1979年に可能と考えられ、PNL 処理法は被覆及び金属マトリックス開発作業を含めて1980年に工学設計が可能となる。

主要な開発計画目標

SGO 開発で残されている主要な項目は処理装置の開発と設計の確証である。処理法は各操作段階での装置の試験及び評価によって開発され、設計は非放射性のパイロットプラント運転で確証されると考える。実験によって開発しなければならない処理工程には、生成物の形成、焼結炉内の容器 (container) の移動及びオフガス洗浄がある。利用する焼結炉 (バッチまたは連続式) も評価する必要がある。混合機、ペレット成型機、炉及びオフガス系などの信頼性を確立する必要があり、装置は効果的に遠隔操作及び保守できるように改良されると思われる。

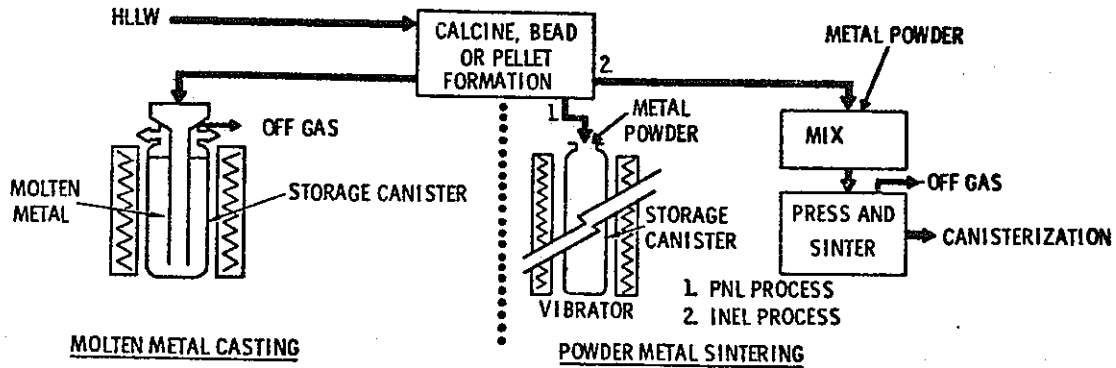
さらに、Cs 及び Ru などの放射性核種を用いて生成物の特性を調査しなければならない。これによって、生成物形成中の揮発の程度ならびに生成物の性質に及ぼすUの影響がより正確に求められると考えられる。放射性生成物を用いた長期間の高温での生成物の安定性もさらに精密に測定する必要があり、また、直径20cmまたはそれ以上の大型の生成物を焼結するのに必要な加熱速度も決めなければならない。

INEL パイロットプラント施設の設計及び装置の事前評価に必要な期間は6～9ヶ月と考えられ、これに装置の製作及び施設の建設に必要な6ヶ月が加算される。パイロットプラントの運転は1977年の第2四半期には開始可能である。生成物の評価はパイロットプラントの開発及び運転と同時に完了することができる。

ペレット被覆 (coated pellet) の項でPNLのその他の開発目標をのべる。

金属マトリックス法 (Metal Matrices)

プロセスの要約



生成物の形状：金属マトリックス法でえられる生成物は、仮焼物、ガラス状ビードまたはペレットを溶融金属中に鑄造するかまたは焼結金属中に埋め込んだ熱伝導性の良好な一体物の形状である。鑄造 (casting) には Pb, Zn, Al またはその他の低融点金属の合金が用いられ、焼結には Fe, Fe 合金または Cu が用いられる。廃棄物はマトリックスの最大 65vol % を占める。

プロセスの概要：廃棄物は粒子、ビードまたはペレット状に形成される。鑄造 (cast) 金属マトリックス 固体化は、生成廃棄物を容器 (canister) の底部に導入して溶融金属と自然に置換させるか、または廃棄物粒子の容器を通して加圧あるいは減圧して強制的に置換する。焼結金属マトリックス 固体生成物は、廃棄物と金属粉を混合し、混合物を圧縮してペレットに成型したのち焼結するか、あるいは生成廃棄物を充填した容器に金属粉を入れて全体的に振動混合したのち容器全体を凝集した塊として焼結してつくる。

対象となる廃棄物：粒状、ビードまたはペレットの形状になるすべての廃棄物に適用可能である。

開発の現状：固体は実験室規模で調製し試験されている。ガラス質ビードを溶融金属と置換して鑄造する方法はコールドのパイロットプラント規模で確証されている。

発生する廃棄物：オフガス中には微粒金属酸化物が含まれるが、これらはろ過して捕集できる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

冷却 5 年以内の高放射性廃棄物の発熱率が高い。この種の新しい廃棄物を仮焼またはガラス化あるいは結晶質のセラミック体として固化すると、固化体の低い伝熱性と高い発熱率に

起因して、固化廃棄物容器中心の過度の温度上昇を防止するために容器の直径を制限する必要がある。

金属マトリックス固化体は、その中心温度を低下させるための高伝熱性の附与ならびに耐衝撃性の増大を目的として現在開発されつつある。熔融金属鑄造マトリックス法は、粒状仮焼生成物^(10, 13, 14) (直径 0.1~0.5 mm) またはガラス化ビード⁽¹⁴⁾ (直径 3~10 mm) を用いて開発されているが、これ以外の小形状の固化廃棄物にも適用できる。^(15, 16) 焼結金属マトリックス法の開発は粉末または粒状の廃棄物を用いて行なわれている。^(10, 16)

固化生成物

生成物は金属マトリックス中に均一に分布した廃棄物粒子からなる。金属マトリックスは熔融体が固化したものは高密度であり、粉末を焼結したものは多孔質である。熔融金属及び焼結金属マトリックス固化体は数種の固化廃棄物及び金属を用いて調製されている。固化廃棄物形状は仮焼粒子、ビードまたはペレットである。熔融金属鑄造法では粒子は 0.1 mm 以上の必要があり、0.1 mm 以下の微粒でその存在量が約 10% 以上になると熔融金属に鑄造するのは困難となる。微粒になると熔融金属が仮焼物マトリックス中を透過するに十分なポイド空間ができない。従って、金属マトリックスへ混和するに先立って微粒子をペレット化する工程が必要となる。

青銅などの高融点物質も使用可能ではあるが、熔融金属鑄造には一般に Al, Zn または Pb 合金がもちいられる。鑄造温度は用いる金属の融点より 50~100℃ 高く、廃棄物粒子間のポイド空間を満たすには 30~40 vol% の金属が必要である。

焼結法では Cu 合金、Fe または Fe 合金が用いられるのが特色である。金属粉を結合するには金属の融点の 60~90% の処理温度が必要である。一般に、焼結温度が高くて使用する金属粉が微細な程金属マトリックスは強くなる。

金属マトリックス固化体は金属と同等な耐衝撃性及び耐熱ショック性を有する。耐熱性はおそい酸化あるいは金属と廃棄物または容器との反応を最低にするため、金属の融点以下の温度に制限されよう。耐溶出性は混和される廃棄物の形状によって変わり、未処置の仮焼廃棄物(極めて溶出しやすい)を用いると金属マトリックス固化体の溶出率は $10^{-3} \sim 10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{日}$ となるが、溶出しにくいガラス質ビードを用いると溶出率ははるかに低くなると思われる。金属マトリックス固化体の熱伝導度は高く Pb 合金及び Al マトリックスに対してそれぞれ 5 及び 35 W/m℃ であり、熱伝導度は廃棄物の形状またはマトリックスの形成法の影響を殆んど受けない。

処理方法

○ 熔融金属鑄造法 (molten metal casting)

廃棄物の熔融金属鑄造には 2 つの基本的な方法がある。第 1 の方法では、粒子を所定場所に保持するグリッド (retaining grid) のある容器中に固化廃棄物を計量して入れる。

つづいて粒子を適当な温度に加熱したのち、熔融金属を不活性ガス圧及び減圧またはその一方によって強制的に廃棄物間のポイド空間に充填してマトリックスを形成させる。変形法の1つに、廃棄物中に埋め込んだ中心管より熔融金属を圧入し、金属を下方から廃棄物の粒間を上昇させて充填する方法がある。第2の方法では、加熱容器に熔融金属を注入したのち、所定量の粒状廃棄物またはビードを不活性ガスを用いて中心管を通して容器内に圧入して金属中に粒子を上方に浸透させつつ充填するものである。保持グリッドは置換した金属が他の容器に流れる間廃棄物粒子が金属表面に浮遊するのを防止する。Eurochemicが開発したこの方法は、⁽¹⁴⁾ 直径15cm、高さ50cmの容器、ガラス質ビード及びPb合金金属を用いた非放射性パイロットプラントで成功裡に試験されている。

○粉末金属焼結法 (powdered metal sintering)

この方法はINEL及びPNLで調査されている。INELの焼結法では、生成したままあるいは安定化した仮焼物と0.15mm以下の金属粉末とをゆるやかに回転するドラムミキサ中で1~3時間混合して均一とし、仮焼物を微細な金属粉末で被覆する。つぎに、えられた混合物はプレスにかけて約1400Kg/cm²で圧縮する。このように相当高い圧力が用いられるのは、金属粒子間の接触を良好にして確実に焼結させるためである。混合物は鋳型状のもの(dies)、または貯蔵容器中で圧縮することができよう。圧縮物全体を均一な密度にするには薄い圧縮物(高さ8~10cm)が必要と考えられる。圧縮物は迅速に焼結温度に達し15~30分間で焼結されるが、金属の酸化防止のために焼結炉中は乾燥したN₂あるいはAr雰囲気しななければならない。焼結温度は、Alに対しては600~620℃、Feに対しては約980℃である。

PNLの重力焼結法ではまず廃棄物ペレットまたはビードを容器内に直接装荷する。つぎに充填しやすくするため、多少容器を振動させて、残存ポイド空間に金属粉を単に流入させて装荷する。HLWの粒子を捕集するため容器の頂部にスクリーンが要るかも知れない。必要なマトリックス金属の粒子の大きさはHLWの粒子の大きさと形状に左右される。マトリックス及びHLW両粒子の大きさ及び形状によって変わるが、充填密度は30~65%である。装荷が完了し端部を溶接したのち容器を所定の焼結温度に加熱する(最高温度はHLW粒子の焼結・脱ガス時の温度またはマトリックス金属の溶融点の100℃以下の温度と考えられる)。この加熱は密封溶接後の容器内に残留する停滞空気雰囲気で行なわれよう。貯蔵容器中での圧力上昇の可能性をさけるため、固化廃棄物は予備処理して揮発性成分(主として硝酸塩)を除かねばならない。仮焼物の脱硝は、仮焼物を800~900℃に加熱するか、硝酸塩を含まない粒塊とするためにリン酸塩を加えて仮焼するか、または仮焼物をガラスビードに変換する方法で行なわれる。

金属鑄造固化体の容積は固化廃棄物の容積とほぼ同じであるが、焼結固化体の容積はその廃棄物含有量がへるとともに増大する。従って固化体の容積は約30~80ℓ/MTUの範囲にわたる。鑄造法ではAlが最も安価に利用できる金属で、資源的に豊富でしかも熱伝導性及び耐熱性もよい。これに対して、Pb合金は最も鑄造しやすく一番耐蝕性がよい。焼結法に利用可能なFe及び合金鋼はAlよりも安価で耐熱性もよいが、熱伝導性が劣ると思われる。

鑄造または焼結中に放出される気体廃棄物は、処理に伴って生ずる同伴金属酸化物蒸気のごく一部を含むが、簡単にフィルタで捕集される。少量の金属廃棄物も生ずる。

施設の運転はバッチまたは半連続であり、プラントの始動あるいは停止がむずかしいか時間がかかることはないと考えられる。必要な処理装置には、固化廃棄物の計量供給器、焼結または鑄造炉、フィーダと鑄造容器間の気体、廃棄物及び熔融金属系の接続機構ならびにオフガスフィルタ系がある。用いる廃棄物量、炉温、オフガス組成ならびに固化体の発熱率を測定・調節するモニタ装置も必要と考えられる。

実用設計が可能になるまでの推定期間

実規模施設の設計は1978年末または1979年初めに開始できよう。

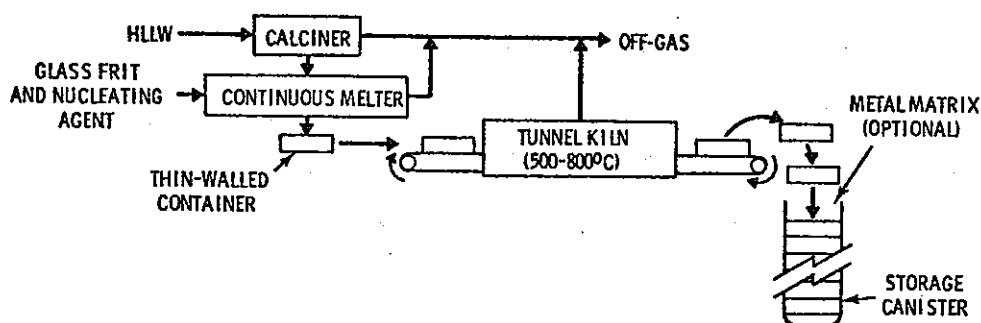
主要な開発計画目標

各種の金属を用いた新しい廃棄物組成のマトリックス形成特性を評価し、コールドパイロットプラントで概念的処理法を確証する必要がある。金属マトリックス固化体の調製に数種の実験的方法が利用されているが、遠隔操作条件下での各種の形状の廃棄物に最適な方法は未定である。微細な粉末の多い仮焼物の鑄造は困難であり強固な金属マトリックスの形成を妨げるから、微細粉末の鑄造法あるいは微細粉末の含有量低減化法を調査する必要がある。

粒子及び熔融金属を鑄造容器に計量供給する方法を実証しなければならない。金属は空気中でスラッグを生ずるので、信頼性のある不活性ガス金属移送及び鑄造システムを試験する必要がある。廃棄物の受入れ、容器（canister）とマトリックス形成装置との接続及び分離などの一般的な処理技術は未定のままである。焼結処理法で混合物圧縮に用いる特殊な型及び加圧機を開発しなければならず、金属の溶融点近くで長期間貯蔵する場合に起こりうる遅い金属酸化（廃棄物と金属の相互作用）の測定などのその他の固化体の特性調査は未完である。

ガラス・セラミック法

プロセスの要約



生成物の形状：多少の残留ガラス相を伴った微細な粒状の結晶体を形成する制御された結晶化を受けてガラスから生ずるガラス・セラミックである。ガラス・セラミックは薄い断面面積に形成し、金属マトリックス中に含ませることもできよう。ガラス・セラミックはガラスより強く、高い貯蔵温度で制御できない失透を受けにくくしかもガラスと同様な溶出抵抗を示す。

プロセスの概要：HLLW を仮焼しガラス原料混合物を加えて熔融し、熔融物を小塊または小板状に鑄造して内外の温度勾配が小さくなるようにする。塊は完全にガラス質を保持するように急冷し、つづいて慎重に計画した熱処理を行なって制御した状態で核の生成と結晶化を促進する。塊は容器（canister）及び熱伝導をよくするように金属を充填した環状容器に充填する。

対象となる廃棄物：HLLW は処理できるが、Hg, I などの揮発性物質はガラス組織中に保持できない。

開発の現状：実験室規模での限られた研究は完了しているが、最適組成及び特性的な挙動を確認する数年分の実験室研究がまだ残っている。

発生する廃棄物：液体及び気体廃棄物は通常利用可能な装置で処理できよう。

プロセスの運転条件と特徴

背景

ガラス・セラミック概念は“失透”（devitrification）を制御するためにガラスの準安定な性質を利用しており、セラミックの分野では比較的新しい概念であつて最初の商業用特許が1960年にえられている。⁽¹⁷⁾ ガラス・セラミックなる用語はガラスと結晶質物質との色々な組合せに用いられることがある。しかしながら、この用語が本書ならびにセラミック及びガラス工業界で用いられる場合は、制御された熱サイクルを受けた均質ガラス

を特に指す。制御された熱サイクルでは、結晶核を全面に生成させたのち温度を上げ、本体がガラスでなくて大部分が非常に微細な粒状の結晶物質となるまで結晶を成長させる。若干の残留ガラス相が残ることがあるが、残留する連続ガラス相が高溶出性でないように組成を慎重に調節する必要がある。

ガラス・セラミックの概念をHLLWの固化に適用するのは廃棄物固化体の熱的ならびに機械的安定性を向上させるためであり、西独で現在開発中である。^(18, 19)

固化生成物

ガラス・セラミック廃棄物の形状は、急冷できるためと、また結晶核の生成と結晶の成長期間を調節する処理中の温度分布を均一にするために薄い断面(3 cm以下)にする必要がある。円板状廃棄物形は、成型し処理したのち充填物と一緒に容器に装荷できる形状として受入れられるものの一つである。充填物(多分金属)は廃棄物と容器側壁間の伝熱性増大のために添加される。容器内の半径方向の温度勾配で、円板状生成物に多少クラックが生ずるかも知れない。

各々の廃棄物に応じた最適組成を開発する必要があるが、VC15Kなる組成が提案されており、⁽¹⁹⁾これはモデルにしている廃棄物にも適用することができよう。この組成は、3.8.9% SiO₂, 3.9% TiO₂, 4.6% Al₂O₃, 3.9% B₂O₃, 3.9% MgO, 9.8% Li₂O, 3.9% K₂O, 2.0% 廃棄物酸化物ならびに1.1% Gd₂O₃である。結晶固化体の密度は2.85 g/cm³であり、比容積は与えられた廃棄物及びGd₂O₃装荷で約77 l/MTUと考えられる。また、この熱伝導度は2.2 w/m°Cである。

ガラス・セラミックの溶出率は一般に親ガラスと同等であり、適切な組成では残留ガラス相のアルカリは低くて耐久性に富むと思われる。また、ガラス・セラミックは制御できない失透によつて溶出性が增大することはないと思われる。

理想的なガラス・セラミックは完全に均質なガラスから始まるが、Ru, Rh及びPdなどの元素の珪酸塩ガラス中での溶解度は非常に低いので、このようなガラスを得ることは困難であろう。上述の元素に加えて廃棄物に含まれるZr, Ag及びPはガラス・セラミックの核生成剤にもちいられる。その他の核生成剤の添加は不要である。Cl, I及びHgはガラス溶融温度で非常に揮発しやすく、ガラス中に殆んど混和できない。Fも揮発性ではあるがその程度が低く、若干リサイクルしてガラス・セラミックに混和できる。硫酸塩は少量(～1%)なら核生成剤として使えるが、含有量が高くなると著しい相の分離を招く。

最大許容貯蔵温度は処理で用いる結晶化温度と同様で、約700～800°Cと思われる。

処理方法

今までの開発研究は実験室規模のものに限られているので、運転方法よりもむしろ概念をのべる。フローダイヤグラムは要約で示したが、廃液は仮焼したのち連続溶解炉に供給して適当な添加剤を加えて溶解する。均質になるまで十分炉内に滞留させたのち、ガラスを鑄型または成型機に送ってガラス円板とする。平板は失透を防ぐため急冷したのち、適当な温度サイクルで円板を移動させるトンネルキルンに入れ、制御した核の生成及び結晶の成長処理をする。温度サイクルは円板の組成及び厚さによって大きく変わるが、これは熱ショックを避けねばならないからである。

ガラス・セラミックの組成はガラス程に融通性はないと思われる。その理由は、各原子がある形式の結晶のみをつくり各種成分間に特定の比率があるに違いないからである。Naは多くのガラス・セラミックに混和できるので、ILWによつては混和することが可能となる。

ガラス・セラミック法に必要な各種の操作は工業界で現在自動化されているが、遠隔操作されてはならず、遠隔操作施設の保守性も実証されてはいない。トンネルキルンなどの装置は、予定されている条件下で運転するためには主要な必要開発対象となりえよう。

処理によつて生ずる廃棄物は、他の項でのべたガラス溶融から生ずるものと一般に同じである。均質なガラスを形成するためにより高い温度が必要なので、揮発性物質はいくらか多くなる可能性がある。資源の需要は既述したガラス生成処理法におけると同様と予想される。

実用設計が可能になるまでの推定期間

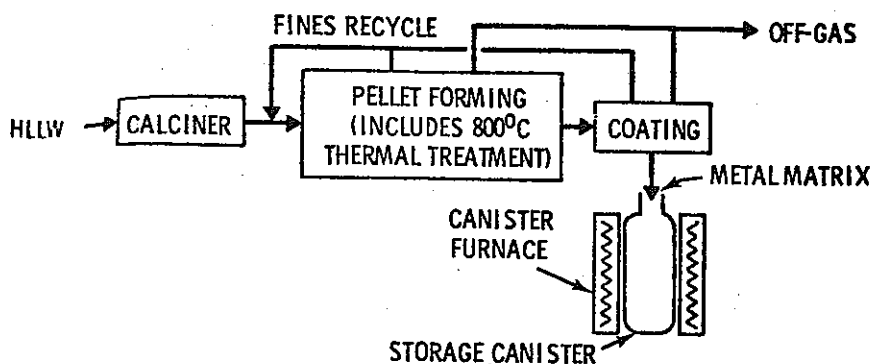
技術は十分に開発されておらず、解明しなければならない多くの疑問点が残っている。運転施設の設計は1980年代以後迄開始できないと推定される。

主要な開発計画目標

現在米国内ではこの方法の開発に大きい努力は払われていない。この廃棄物形の利用が可能となるには、最適組成の開発ならびに固化及び貯蔵処理中のこれらの挙動の特性調査のために、2ないし5年の主要な実験室研究が必要と考えられる。ガラス鑄造及び熱処理法の工学的開発にも多大の努力が要求されよう。

被覆ペレット法 (Coated Pellets)

プロセスの要約



生成物の形状：溶出しにくい物質でできた非放射性被覆で完全に密封された固化HLLW 酸化物の安定なペレットで、この被覆により廃棄物が長期間にわたり溶出または蒸発するのが完全に防止される。強度、耐衝撃性及び熱伝導度を増大させるため、ペレットは金属マトリックス中に埋め込まれる。

プロセスの概要：安定なペレットは、仮焼物、スーパー仮焼物からつくるかまたは焼結固化体としてつくられる。ペレットは、流動床またはドラム被覆装置中で化学的蒸気沈積 (chemical vapor deposition, CVD) によるか、プラズマ噴霧またはエナメル法によって被覆される。つづいて、大型ペレットはそのまゝ容器に入れ、金属粉を振動充填してペレット間のボイドを埋める。1 mm程度の細かいペレットは容器に入れる前に金属粉と事前に混合する必要がある。次に、金属粉末及びペレットを再加熱して金属を焼結し、強度及び熱伝導度を増大させる。ペレットを熔融金属マトリックス中に鑄込むことも可能と思われる。

対象となる廃棄物：安定なペレットが作れるすべての廃棄物に適用可能である。

開発の現状：この処理法は実験室での開発の初期段階にあり、被覆物質及びその厚さならびにその処理方法が現在選定され最適化されつつある。

発生する廃棄物：仮焼及びペレット化で生ずる廃棄物については各々の項でのべた。CVD被覆法ではHClガスが生じ、特別なオフガス処理が必要となる可能性がある。装置内で発生した被覆の一部とならない微細な酸化物の粉末はリサイクルする必要がある。

プロセスの運転条件と特徴

背景

被覆した廃棄物形の特許は Bixby が最初にとったが、⁽²⁰⁾ 彼は粘土母体を含む廃棄物

にエナメル被覆が適用できることを提案した。より最近になって、Gray⁽¹⁵⁾ がHTGR燃料技術を用い、SiCの第2の被覆も可能な熱分解炭素被覆の適用を提案している。Gray及び Browning も⁽²¹⁾ 他の酸化物及び炭化物被覆を試験し、耐久性の高い酸化物であるSiO₂及びAl₂O₃を現在考察しつつある。

縮りの悪いペレットの伝熱性は低く、これを被覆したものは取扱い及び移送中に欠ける可能性がある。この種の問題を除くため、ペレットは金属マトリックス中に混和されと考えられる。金属マトリックス法の項でのべた鑄造技術はここで適用できよう。Sump⁽¹⁶⁾ は廃棄物ペレットを含む金属粉末の重力焼結 (gravity sintering) の概念の検討を始めている。

固化生成物

廃棄物の形状、被覆の種類及び方法、金属マトリックスの組成及び形状の最適な組合せはまだ決まっておらず、多くの選択がある。廃棄物の形状はスーパ仮焼物または焼結生成物のように先天的に安定でなければならぬ。SiO₂及びAl₂O₃などの被覆物質は酸化物では最も耐久性がある。一方、Cの被覆は水中での耐溶出性及び塩による腐蝕に対しては上記の物質よりもすぐれているが、高温で酸化されやすい。廃棄物を別な不活性物質で被覆するのはつぎの点で有利である。すなわち、1) 風化される表面の選択及び調節が可能なこと、2) 放射性原子の長期間にわたる水による浸出の完全な防止とこの間での大部分のβ及びγ核種の壊変、3) ペレットに対する品質保証の適用の選択、4) 容器内の廃棄物装荷量の増大などがある。

熱分解炭素及び炭化クロームの試験の結果、Soxhlet法でえられるこれらの溶出率はパイレックスガラスの $\frac{1}{100}$ 以下であることが判明している。熱分解炭素で被覆した仮焼廃棄物及びこれをさらにSiCで被覆したものは、不活性雰囲気中で最大1200℃まで良好な耐熱性を示している。

最終の廃棄物形状の熱伝導度は、選定した金属、最終密度ならびに被覆ペレットの含有率によって変わるが、ガラスまたは粉末酸化物のそれとくらべてはるかに大きくなると期待できる。熱負荷量は廃棄物形状によるよりもむしろ最終貯蔵で考慮される諸要因によって多分制約を受けると思われる。

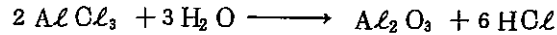
重力焼結法ではステンレス鋼または合金鋼、Cuまたは青銅などの金属が選定できるが、これらの金属はその溶融点が鑄造法で用いられる金属のそれよりも高いので高温での安定性が向上し、また廃棄物あるいは被覆との反応性が低い。

処理方法

全体の処理に必要な条件がまだ完全に決まっていないので、処理に関連する疑問点のみが指摘できる。

高品質の被覆をすることは流動床またはドラム被覆装置中でCVD (Chemical Vapor

Deposition) 技術を用いて可能であるが、この方法は既に HTGR 燃料で実証されている。CVD 被覆は H_2 及び He の存在下で下記のような反応により形成される。



この反応は加熱した被覆装置内で起り、被覆(この場合は Al_2O_3)がペレット上に沈積するが、その生成速度は遅い($\sim 20 \mu m/時$)。生成した Al_2O_3 のいくらかは処理装置を被覆するので、これを廃棄物にリサイクルする必要がある。

C 被覆は $800^\circ C$ 以上の温度での炭化水素ガスの熱分解で形成される。主として C よりなる処理残渣は焼却して処分できるので、廃棄物としてリサイクルする必要はない。

被覆処理法は、被覆の特性及びその環境における挙動に影響を及ぼさないで、廃棄物ペレットの化学的組成を相当変化させうると思われる。大きいペレットでは熱膨張の不釣合な組合せの影響を考慮する必要がある。より低い熱膨張の物質で被覆すると、外表面が圧縮されるので被覆ペレットの強度を増大させることができる。

この処理法では物質が仮焼装置からペレット成型機、被覆装置、最後に容器へと移動する。処理工程が追加されてシステムの複雑性が増し、処理法の信頼性に悪影響を及ぼす可能性がある。

生ずる廃棄物は HCl を含有する可能性があるので特別な考慮が必要となろう。被覆にエナメルを用いればオフガス処理及び処理工程全体が簡単になるかも知れない。

重力焼結法には、大きいペレットの容器内装荷、ポイド中への金属粉末の振動充填、最後に一体物のマトリックスに焼結するための熱処理などの工程がある。

実用設計が可能になるまでの推定期間

パイロット規模開発の開始に先立って、2～3年の実験室規模試験が必要と考えられる。概念設計を始めるにはさらに2年が必要であろう。

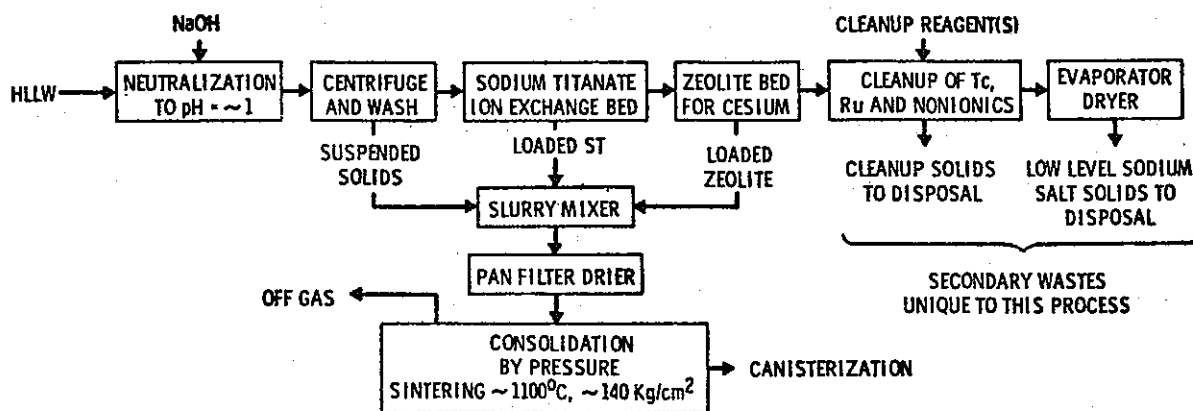
主要な開発計画目標

開発に当って最も重要な2つの工程は、ペレット化及び被覆処理である。物質及び処理について数種の方法が探究中であり、1977年迄には選定される予定である。マトリックスの最適化及び生成物の詳細な特性調査が必要であるが、これは1978年に完了の予定である。

遠隔操作装置の開発が必要と考えられるが、ORNL は HTGR 燃料製造法の遠隔機構をすでにつくっており、これが多くの類似の特徴を備えている可能性がある。

イオン交換法

プロセスの要約



生成物の形状：生成物は溶出性が低くて耐熱性の高い丈夫なセラミックである。密度は $\geq 4.5 \text{ g/cm}^3$ で、濃縮係数が $\geq 1.1 \text{ g FP 酸化物/cm}^3$ の場合に約 25 wt% の FP 酸化物を含有する。

プロセスの概要：HLLW を NaOH で pH 1 に中和し、遠心分離で清澄化する。つぎに清澄化した廃液をチタン酸ナトリウム (sodium titanate, ST) をもちいたイオン交換でほぼ完全に除染(実験室規模試験の結果によると全放射能は $< 10^{-5} \text{ ci/ml}$ であり残りの大部分は Ru, Cs 及び Tc である。また α 核種は $< 10^{-10} \text{ ci/ml}$ となる)する。Cs はさらにゼオライトのイオン交換で除き、Ru 及び Tc イオン (pertechnetate) などの残留トレース汚染は陰イオン交換及び他の試薬で除去する。イオン交換した ST 及びゼオライトはスラリーとして除き、清澄化工程で除いた懸濁固体もこのスラリーにまとめる。この混合スラリーをパンフィルタ (pan filter) で脱水、乾燥し、処理法の中で唯一の高温工程であるプレス焼結によって焼きかためる。

対象となる廃棄物：Purex 溶媒抽出再処理工場よりの FP を含む HLLW はこの処理法で除染できる。

開発の現状：実際の HLLW を ST 及びゼオライトを用いて除染する試験は実験室規模で実施されている。最初の基礎となるフローシートにおけるすべての重要な処理工程は、実験室規模の測定で実行可能なことが確認されている。

発生する廃棄物：低放射性の乾燥 Na 塩固体と 3 重水素水 ($^3\text{H}_2\text{O}$) が主要な廃棄物である。残留するトレース放射能の除去工程から少量の汚染固体が生ずることが考えられる。

プロセスの運転条件と特徴

背景

イオン交換現象はその名の通りまさに2相の境界で生ずるイオン類の交換である。最も一般的な形では、この定義は液相及び固相の2つを分離する境界で行なわれる交換に適用され、液相がイオン状の放射性核種を含む特殊な場合は、イオン交換法はこれらの放射性核種を固体に変換してしまふこととなる。イオン交換体の単位容積当たりの交換容量が廃棄物溶液中の交換可能なイオン類に対して大きい場合は、蒸発濃縮法に匹敵する減容効果を得ることができる。従って原子力工業でイオン交換物質及び処理法が広範囲にわたって調査検討され、広く応用されている(22~27)ことは驚くには当たらない。

HLLW に対する理想的な交換体は、処理廃液について高い除染係数が得られ、放射性核種に対する交換容量が大きく、使用済み後は直接処理して暫定または最終貯蔵に適した形にすることができるような無機物質であると考えられる。各種の無機交換体が開発されているが、上記の要件の1つまたはそれ以上で不足する点がある。粘土鉱物は一般に交換容量が低く(0.03~1.5 meq/g)、酸性液中で安定性を欠き、イオン交換性能が一定しない。(22, 28, 29) ゼオライトは相当の交換容量を有するが、一般に選択的であって広範囲の陽イオン類を固定する場合は性能的に劣る。(30, 31) ヘテロポリ酸(heteropoly acid)及び不溶性塩無機交換体も可能性はあると考えられるが、広範囲の放射性核種の固定については調査されていない。(22, 32)

含水酸化物型無機交換体による放射性核種の固定法がSandia Laboratoriesで現在開発されつつある。(33) 試験計画には、イオン交換体の有効性の調査、核種を固定した廃棄物の固化、生ずる廃棄物形の物理的及び化学的性質の評価、ならびに使用可能な実用規模処理法の限界を明確にするためのじみな工学的な努力などがある。

固化生成物

この処理法で生ずる固化廃棄物の量は約 $0.05 m^3/MT$ であり、これは廃棄物容量を $\frac{1}{10}$ に減らしたことに相当する。この固体は密度が $\geq 4.5 g/cm^3$ のセラミックであり、濃縮係数が $\geq 1.1 g FP 酸化物/cm^3$ の場合で約25 wt%のFP酸化物を含み、溶出率が低く耐熱性が高い。

処理方法

HLLW を50%NaOHでPH1に中和し、懸濁固体を遠心分離で除く。分離したスラッジは分離機内で水洗し、スクリーフイーダで分離機内より押し出してスラリー混合槽に入れ、ここでチタン酸及びゼオライト交換体スラリーと混合する。水洗液は清澄廃液と一緒にしてチタン酸ナトリウム(ST)によるイオン交換工程の給液とする。

固体を含まない給液は冷却した中間槽に貯蔵し、各処理サイクルのイオン交換期に ST イオン交換ベッドにバッチ的にポンプで供給する。2基の ST イオン交換カラムを平列に運転すれば、5 MT/日の再処理工場に必要のイオン交換容量がえられると考えられる。ただし、この場合のイオン交換ベッドの特性は次の通りである。

カラムの大きさ：

カラム： 直径 30 cm × 長さ 3 m

容量： 220 ℓ

交換体：

チタン酸ナトリウム： -80+200 (Tyler mesh)

圧損：

面積速度～3.05 m/時で 3500 g/cm^2、ただし実規模の処理液線速度においてベッド内 30 cm の深さで測定する圧損。

サイクル時間：

3時間 (交換約 1 時間、洗浄約 1 時間、切換え (turnaround) 約 1 時間)。

イオン交換効率：

イオン交換ベッドで各バッチとも 90 % の飽和度。

そのサイクルでのイオン交換工程が完了すると、ベッド容量の 1.5 倍の脱イオン水でベッドを洗浄する。ST イオン交換カラムから流出する殆んど完全に除染された給液及び洗液 (Cs , Ru , Tc , ^3H 及びその他の非陽イオン種を除いた全放射性核種は最大許容濃度近くになる) は中間槽で混合し、ゼオライトのイオン交換ベッドに送って Cs を除去する。

ゼオライトベッドよりの廃液は (ST 及びゼオライトカラムの洗浄液を一緒にした殆んど完全に除染された給液からなる)、 Tc 及び Ru 除去用の処理工程に送る。 Tc (TcO_4^-) は既に確立している処理技術を用い、商業的に入手可能な陰イオン交換体による陰イオン交換で除去できると予期される。 Ru の除去工程についての問題は、全体的な除染処理のこの段階で存在する Ru の化学種の確認が未定であることに限定されると思われる。

最終除染工程からの除染済液中の水分は、蒸発・乾燥機で NaNO_3 (及び他の Na 塩) から分離し、水蒸気は凝縮させてプラントにリサイクルできる。約 $0.1 \text{ m}^3/\text{MT}$ の割合で生ずる NaNO_3 固体は、比較的乾燥していてその放射能レベルは非常に低いが、蒸発・乾燥機から取り出して低放射性固体廃棄物として処理する。生ずる NaNO_3 の量は再処理工場から発生する低放射性固体廃棄物の総量のごく一部にしかならないと思われる。

ST イオン交換工程が終れば、使用済みのチタン酸塩及びゼオライトベッドはスラリとし

てカラムから取り出し、中間槽（または混合槽）で給液から除去した固体と混合する。混合槽中の混合スラリは重力でバッチ的に水平なパンフィルタに送る。パンフィルタでは、熱風を固体を通してろ材の真空側に吸引し、脱水及び乾燥を行なう。フィルタ・ドライヤからの水分（またはスラリ溶液）は少量の補充水を加えて中間槽に戻し、次のバッチの使用済STまたはゼオライトのスラリ調製に利用できる。

脱水・乾燥した固体は、水平なパンフィルタのパンを180°回転してフィルタ直下のホッパーに落とし込む。逆方向からエア・パルスをかけてろ材上の固体を確実に除くことができる。乾燥固体は重力でホッパーを経てプレスに入り、ここで加圧下で焼結されて固化体となる。この工程でえられる固化体は、直径約0.3m長さ約0.3mの一体物で貯蔵容器に装荷するのに適している。

固化中に放出される微量の揮発性核種は、フィルタまたはその他の捕集装置で捕集して低放射性固体として処理するが、この固体発生量が再処理工場から生ずる全固体廃棄物量の重要部分を占めることは考えられない。

伝熱計算の結果、1年間壊変させた廃棄物の自己発熱によって重大な工学的な問題は生じないことが判明している。

実用設計が可能になるまでの推定期間

この処理法は目下ベンチスケールで実証試験中であり、実規模プラントの実用設計は1981年には可能と思われる。この予定表は、1976～1977年にわたる相当な開発努力、1年間のコールドパイロットプラント試験ならびに2年間の遠隔操作によるホットパイロットプラントでの研究及び試験を仮定している。

主要な開発計画目標

1977年末迄：

1. ST イオン交換処理工程のベンチ・スケール運転による物理的な試験。
2. ST 及びゼオライトイオン交換工程の最適なプロセス化学の確立。
3. 最終除染（Tc, Ru 及び非イオン性微量汚染に対する）のプロセス化学の確立。
4. 固化体の作製を含む完結した実用的なベンチスケール処理法の開発及び試験。
5. ST の合成のための最適プロセス化学の確立。

1978年初迄：

6. ST 合成用パイロットプラントの設計。
7. HLLW 除染用パイロットプラントの設計。

1979年初迄：

8. 模擬HLLW によるパイロットプラント実証運転。

1981 年迄 :

9. 放射性給液を用いた遠隔操作によるパイロットプラントの開発及び実証の完了。

REFERENCES

1. C. W. Christenson, "The Ceramic Sponge Process," USAEC Report TID-7646, pp. 94-101, 1963.
2. C. W. Christenson, S. D. Stoddard, E. F. Gloyna, C. C. Patterson, W. H. Adams and E. B. Fowler, "Radioactive Waste Disposal, Part III," Ceramic Age, pp. 31-41, August 1964.
3. D. M. Roy and G. R. Gouda, "Hot Pressed Cement for Matrix and Canister Application," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, April through June 1974, BNWL-1831, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 78-79, July 1974.
4. Brookhaven National Laboratory Progress Reports for the SRL Long-Term Waste Storage Support Program, No. 1-8, July 1973-January 1975.
5. Brookhaven National Laboratory Progress Reports for the Development of Durable Long-Term Radioactive Waste Composite Materials, No. 1-10, July 1972-April 1975.
6. L. R. Bunnell, "Vitreous Carbon Waste Fixation," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, October through December 1974, BNWL-1893, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 53-59, February 1975.
7. G. J. McCarthy, "Atomic Level Isolation," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, January through March 1974, BNWL-1826, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, p. 43, April 1974, and subsequent quarterly reports in this series.
8. R. M. Barrier and N. McCallum, Nature, vol. 167, p. 1071, 1951.
9. R. E. Isaacson, Atlantic Richfield Hanford Co., Personal communication to J. L. Bates, Battelle, Pacific Northwest Laboratory.
10. J. R. Berreth, H. S. Cole, A. P. Hoskins, L. C. Lewis and E. G. Samsel, "Post Treatment of High-Level Nuclear Fuel Wastes," Paper presented at American Ceramic Society Symposium in Washington, DC, May 5-6, 1975.
11. W. A. Ross, "Sintering of Radioactive Wastes into a Glass Matrix," Paper presented at the American Ceramic Society Symposium, May 1975.
12. J. L. McElroy, Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1949, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, November 1975.
13. D. W. Rhodes, "Post Calcination Treatment Possibilities for Calcine from Fluidized Bed Calcination," IN-1322, September 1969.
14. J. Van Geel and H. Eschrich, "New Developments on the Solidification of High-Level Radioactive Wastes at Eurochemic," Transactions of the American Nuclear Society, vol. 20, pp. 671-680, 1975.
15. W. J. Gray, "Carbon and SiC Coated Waste Particles," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1841, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, July 1974.
16. K. R. Sump, "Metal Matrix," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1949, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, November 1975.
17. S. D. Stookey, Corning Glass Works, U.S. Patent #2,920,971.
18. A. K. Dé, B. Luckscheiter, W. Lutze, G. Malow and E. Schiewer, "Studies on the Fixation of Fission Products in Ceramic Material," Paper presented to the European Nuclear Society, April 1975.

19. W. Guber, L. Kahl and J. Saidl, "Recent Experiments on Fixation of High Activity Wastes in Karlsruhe," Paper presented to the American Ceramic Society, May 1975.
20. H. D. Bixby, "Method and Product for Disposal of Radioactive Wastes," U.S. Patent 3,249,551, May 3, 1966.
21. W. J. Gray and M. F. Browning, "Development of Coated Waste Particles," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, BNWL-1932, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, September 1975.
22. R. L. Hemmings, New Materials for Ion Exchange, A Literature Survey to December 1965, Atomic Energy of Canada Ltd., Pinawa, Manitoba, AECI-2546, March 1966.
23. Operation and Control of Ion-Exchange Processes for Treatment of Radioactive Wastes, Technical Reports Series No. 78, IAEA, Vienna, 1967.
24. Commissariat a l'Energie Atomique, Treatment of Medium and Slightly Active Effluents, CEA-N-1341, pp. 95-109, Fontenay-aux-Roses, France, 1969.
25. Ion Exchange in the Process Industries, CONF-690712, Society of Chemical Industry, London, 1970.
26. K. H. Lin, Use of Ion Exchange for the Treatment of Liquids in Nuclear Power Plants, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, December 1973.
27. "Chemical Processing of Reactor Fuels," in Nuclear Science and Technology, vol. 1, J. F. Flagg, ed., Academic Press, New York, 1961.
28. Use of Local Minerals in the Treatment of Radioactive Waste, STI/DOC/10/136, IAEA, Vienna, June 1972.
29. B. P. Robinson, Ion Exchange Minerals and Disposal of Radioactive Wastes - A Survey of Literature, Geological Survey Water-Supply Paper 1616, U.S. Government Printing Office, Washington, DC, 1962.
30. D. W. Breck, Zeolite Molecular Sieves, John Wiley & Sons, New York, 1974.
31. H. W. Levi, Studies on the Behavior of Crystalline Silicate Ion Exchangers and Their Application in Nuclear Technology, HMI-E-54, October 1967.
32. C. B. Amphlett, Inorganic Ion Exchangers, Elsevier Publ. Co., Amsterdam, 1964.
33. Sandia Solidification Process - Cumulative Report, July 1974 - April 1975, SAND-75-0370, Sandia Laboratories, Albuquerque, NM.

6.4 現存する商業用高放射性廃棄物

New York 州の West Valley にある Nuclear Fuel Services 再処理工場に現在貯蔵されているのは、中和した高放射性 Purex 廃液 600000 gal (上澄液が 570000 gal, スラッジが 30000 gal) 及び酸性 Th 廃液 12000 gal である。中和廃液は 1 基の 750000 gal 炭素鋼貯槽に、酸性廃液は 1 基の 15000 gal ステンレス鋼貯槽にそれぞれ貯蔵されており、必要に応じて移送できるように 1 基ずつ予備を持っている。

ここでは、West Valley 工場に貯蔵されている廃棄物管理の諸方法についてのべるが、これらの方法は現在 ERDA が連邦政府の放射性廃棄物管理のために積極的に調査している概念に限定し、各々の管理方法は次の諸事項について簡単にのべて考察する。

- 技術の現状
- NFS 廃棄物管理に対するその適用
- 長所及び短所
- 実施するために必要な研究及び開発
- 安全性に対する考慮
- 実施するために必要な推定期間

その他の処理法ならびに複数の処理法の混成及び組合せも NFS 廃棄物の管理に潜在的に適用可能ではあるが、これらは現在 ERDA で開発されていないのでここでは考えない。1 例は、現存する廃棄物の処理に将来つくられる NFS 廃棄物管理施設を利用することであるが、この種の潜在的な方法は現存する NFS 廃棄物管理のための今後の特定の継続研究で考慮されることとなろう。

各々の替りの処理法に共通して要求されるのは、貯槽から廃棄物の一部またはすべてを処理するために取出すことであり、中和廃棄物の取出しについて提案されている方法には次の段階がある。

1. ポンプまたはゼットで上澄液の大部分を取り出す。
2. 水ゼットを用いてスラッジを分散させる。
3. 中間貯槽に分散したスラッジをポンプ移送する。
4. 残留するスラッジを化学的な洗浄で実行可能な限り取り出す。

Th 廃棄物中にはスラッジはないと考えられ、廃液はポンプで容易に貯槽から取り出せようである。

中和廃棄物貯槽の内部には多数の障害物があり完全なスラッジの取出しを妨げる。予備的な概算によると、貯槽の主要な変更を行わず Savannah River Plant (SRP) で開発した

高圧水洗 (high - pressure sluicing) 法を用いると仮定して、スラッジの取出しは最大70%と見積られる。化学的洗浄を1回行なったのち高圧水洗につなげれば、さらに残留するスラッジの80% (貯槽内の当初のスラッジ量の合計94%) が取り出せるかも知れない。残存する6%のスラッジの取出しにはさらに高圧水洗及び化学的な洗浄が必要と思われる。貯槽内に障害物があり貯槽への接近が制限されるため、現場で適用された後でないと取出しスラッジ量を確かめることはできない。

6.4.1. 各種の廃棄物管理法

Table 6.7にこの検討で考慮している廃棄物管理法の特性を要約する。本節では、酸性Th廃液は中和廃棄物と同様な処理方法で管理できると仮定する。

Table 6.7 summarizes the characteristics of the waste management alternatives considered in this study. Throughout the study it is assumed that the acid thorium waste is amenable to managing by the same processing alternatives as the neutralized waste.

TABLE 6.7. Characteristics of Waste Management Alternatives

<u>Alternative</u>	<u>Final Form</u>	<u>Storage Location (a)</u>	<u>Waste Container</u>
Liquid storage	Liquid & sludge	NFS site	Tank
Conversion to cement	Solidified cement, crystallized salt	NFS site, Federal Repository	Canister
Shale fracturing	Solidified grout	NFS site	Geologic formation
Shale cement	Solidified grout	NFS site, Federal Repository	Canister
Calcination	Calcine	NFS site, Federal Repository	Canister
Aqueous silicate	Aluminosilicate mineral	NFS site, Federal Repository	Tank, Canister
Conversion to glass	Glass	NFS site, Federal Repository	Canister
Salt cake	Crystallized salt	NFS site, Federal Repository	Canister

恒久的液体貯蔵

West Valley工場に現在認可されている廃棄物管理法を参考法としてのべる。この方法では、貯槽は地下のコンクリート室の受皿（catch pan）内に据付けられる。上澄液及びスラッジは定期的に新しい貯槽に移送して継続して貯蔵する。移送の頻度は40年ごとと仮定したが、貯槽の条件に応じて早めるかまたは遅らせる必要が生ずると思われる。

上澄液は再び取り出して追加処理しやすいが、スラッジは取り出しにくく、95%以上を取り出す必要があるときは特に困難である。

過去の経験により十分に確立された貯蔵システム設計技術がえられている⁽¹⁻⁴⁾。受皿あるいは二重壁のある貯槽によって、貯槽から偶然に漏洩した廃液が周囲の土壤に到達する前に改善措置をとることが可能となる。

セメントへの変換法

セメントへ変換する場合、スラッジと上澄液がまず遠心分離される。スラッジは一連の乾燥及び洗浄段階をへてセメントに混和され鋼製容器に入れられる。遠心分離でえられる液体はイオン交換でCsを除いたのち蒸発濃縮して鋼製容器に入れ、冷却後塩類を晶出させて一体形状とする。Csを吸着したイオン交換体のゼオライトは、定期的に乾燥スラッジに混ぜてセメントと混和するが、スラッジ及びゼオライトまたはどちらか一方をガラス固化することも考えられる。後者の方法は、ERDAの中和廃棄物に適用するため現在鋭意開発中である。

頁岩への破砕注入法

頁岩への破砕注入（shale fracturing）では、廃棄物とセメント及び他の添加剤の混合物とを混合した糊状物質（grout）を、ポンプと深井戸により地表環境から隔離された頁岩地層中に注入する。まず頁岩を小容量の水の圧力で破砕し、廃棄物groutを最初の割れ目に注入する。割れが伝播するにつれてこれらがgroutで充填されるが、注入は廃棄物groutのバッチごとに行なう。注入後2～3時間でgroutは固まり、頁岩地層中に放射性廃棄物を恒久的に固定する。次の注入は最初の注入に平行するかまたは数フィート上方で行なう。頁岩への破砕注入法は、現在Oak Ridge National Laboratoryでローカルに発生している中放射性廃液の恒久的処分に利用されている廃棄物処分法である。

頁岩セメント法

頁岩セメント法は頁岩への破砕注入法から派生したものである。この処理法は常温で行なわれ、groutの調製は廃棄物をセメント及び添加物（Conasauga shaleを含む）の適当な混合物と混合して行なう。groutはドラム缶にポンプで注入して固まらせ、ドラム缶は再取出し可能な方法で貯蔵する。現在は、頁岩セメント法は概念的な処理法である。

仮焼法

仮焼法は高放射性廃液を固体に変換する処理法であり^(5,6)、現在流動床仮焼及びスプレ仮焼の2つの候補となる方法がある。どちらの方法でも、廃液は仮焼装置内で蒸発乾燥されて酸化物固体となる。本節では云及しないが、仮焼固体はガラスに混和可能であり、溶出性が低くて容易に再取出し可能な一体物の固体となる。

流動床仮焼では加熱した流動粒子のベッド中に廃液を噴霧する。蒸発は主として粒子の表面で行なわれる。発生するオフガスは同伴する粒子固体及び揮発性のFPを除去するために処理したのち、スタックをへて大気中に放出する。流動床仮焼は既に実証されていて、酸性及びNa含有量の低い廃液の固化のために十分に運転可能である。

スプレ仮焼では廃液を微細な液滴に噴霧する。液滴は加熱室を落下中に蒸発して微細な酸化物粒子に変換される。酸化物微粒子は一般にフィルタでオフガスと分離する。フィルタを通過したオフガスはさらに除染して大気中に放出する。スプレ仮焼パイロットプラントで模擬及び放射性酸性廃液が固化されている。

添加物（例えば、砂糖及び硫酸塩またはリン酸塩などの安定な陰イオン）を加えて、（訳注．6.3.1. ポット仮焼の項参照）Naが8モルのNFS廃棄物を上記2方法のどちらかで直接仮焼することは潜在的に可能であると思われる。

Aqueous Silicate 法

Aqueous Silicate 法は、放射性廃棄物を比較的不溶性のアルミノ珪酸塩鉱物に変換する手段である⁽⁷⁾。カオリンまたはベントナイトのような粘土粉末を、アルカリ性廃液またはスラリーと混合して30～100℃で反応させる。反応の結果、放射性核種がアルミノ珪酸塩枠組構造中に捕捉された、適度の固さの塩が詰まったアルミノ珪酸ナトリウムが生ずる。過剰の粘土はバインダとして作用するとともに反応しなかった塩及び放射性核種を吸着する。Aqueous Silicate 法の技術的な可能性は、放射性及び非放射性廃液を用いて実験室で確認されている。NFS廃棄物上澄液のAqueous Silicate 法による固化は技術的に可能と思われ、またスラッジも同様に固定化されるかも知れない。

ガラスへの変換法

放射性廃棄物をガラスへ変換すれば、分散性及び溶出性が低くて比較的耐熱性の高い特性の固化体がえられる。1つの概念的な適用法をのべると次の通りである。上澄液、塩のケーキまたはスラッジは脱水してガラス形成添加剤と混合し、混合物を1025～1400℃で熔融する。冷却すると熔融物は固化してガラスとなり、これは容易に再取出し可能な鋼製容器に封入できる。NFSの高放射性中和廃棄物の組成に近い模擬廃液及び実廃棄物を用いてホウ珪酸ガラスがつくられているが、この場合に用いられた廃液の Na_2SO_4 含有量はNFS廃棄物のそれよりも低い⁽⁸⁾。

塩ケーキ法

中和した高放射性廃棄物の上澄液を蒸発すると NaNO_3 を主成分とする塩ケーキ(salt cake)⁽⁹⁾が生ずる。スラッジも同様に濃縮し、別々に処理するかまたは塩ケーキと混合できると思われるが、ここでは云及しない。塩ケーキ生成法としては、強制循環蒸発、薄膜蒸発及びスプレ乾燥の各方法がある。

強制循環蒸発缶は高濃度の含アルカリ廃液に対して大きい濃縮率がえられる。蒸発缶は25～30%の固体を含むスラリーをえるように設計し、スラリーは一連の沈降槽に送る。沈降槽の上澄液は抜き出して蒸発缶に送り、さらに濃縮する。大気圧型蒸発缶(Savannah River)及び減圧型蒸発缶(Hanford)は順調に運転されている。

中和したPurex廃棄物は薄膜蒸発缶で1回処理するだけで、室温にまで冷却すれば凝固するよう生成物に濃縮することができる。しかしながら、100℃に近い貯蔵温度では1部を凝固させうるだけなので、減圧蒸留法の場合と同様に含塩上澄液を分離しリサイクルするシステムが必要となる。中程度の貯蔵温度(例えば40～50℃)では、1回の蒸発で凝固させることができよう。模擬廃液を用いたパイロット規模装置の試験がSavannah River及びPacific Northwest Laboratoryで進行中である。

ただ1種類の組成の模擬NFS廃棄物を用いて、パイロット規模のスプレ仮焼装置の限られた試験が行なわれている。この試験の結果、用いた組成の廃棄物は満足にスプレ乾燥できることが判明しているが、試験計画の範囲が余りに狭すぎたためNFS廃棄物などの他の場合にこの結果を確実に当てはめることはできない。

まとめ： NFS廃棄物に適用する場合、NFS廃棄物がERDA廃棄物と同様な挙動をすると仮定すれば、頁岩への破碎注入法、頁岩セメント法または塩ケーキ法は比較的軽微な技術的変更のみで多分適用可能と思われる。

その他の方法(セメントへの変換法、仮焼法、Aqueous Silicate法及びガラスへの変換法)はNFS廃棄物への適用を詳細に検討する程には十分に実証されていないが、これ

らの方法を実施に移すことは技術的には実行可能であると思われる。明らかに実行可能とはいうものの、最終決定をするには現在 ERDA が実施している研究開発計画の成果をまたなければならぬ。

6.4.2. 各種の廃棄物管理法の長所及び短所

Table 6.8 に各々の廃棄物管理法の長所及び短所ならびに技術の現状を要約して示す。

TABLE 6.8. Advantages, Disadvantages and Status for NFS Waste Management Alternatives Based on ERDA Processes

Alternative	Advantages	Disadvantages	Current Technological Status
Liquid Storage	No offsite shipping Fair retrievability Amenable to change in form if necessary	Potential for leakage Tank life short compared to necessary storage time. Higher probability for dispersion during natural acts, e.g., flood and earthquake, than for monolithic solid. Continuous surveillance, active control, and emergency response capabilities are required for centuries.	Fully operational for storing neutralized high-level radioactive waste.
Conversion to Cement	Low-leaching solid product Good retrievability Easily transported	Difficult to change to alternative form if necessary Technology has not been demonstrated. Need to store large volume of residual salt Potential for container to pressurize Salt product would contain significant quantities of water (up to 20%).	Process is under active laboratory development and conceptual design of facilities for application to ERDA neutralized high-level radioactive waste.
Shale Fracturing	Low-leaching solid product No offsite shipping Immediate placement in geologic formation Process has been field tested using intermediate-level radioactive waste. Not susceptible to natural acts on earth's surface, e.g., glaciation, denudation, flood, tornados.	Site verification required Criteria for disposal of long-lived alpha emitters not established Waste is not retrievable. Not possible to change to alternative form Requires pipeline transport of liquid high-level waste for distance of about 1 mile Technology has not been demonstrated for NFS waste.	Full-scale demonstration for ERDA neutralized low- and intermediate-level radioactive wastes at Oak Ridge National Laboratory.
Shale Cement	Low-leaching solid product Key portions of process use state-of-the-art technology Good retrievability Easily transported	Large volume of waste-grout mixture must be stored. Potential for container to pressurize Difficult to change to alternative form if necessary Technology has not been demonstrated.	Process is in the conceptual stage.
Calcination	Good retrievability Easily transported Product would be thermally and radiolytically stable	Technology has not been demonstrated for NFS waste. Difficult to change to alternative form if necessary Without glassification, calcine product is quite leachable.	Fully operational using acidic, low-sodium ERDA high-level radioactive wastes.
Aqueous Silicate	Reasonably low-leaching solid product Good retrievability when stored in canisters Easily transported	Product would contain significant quantities of water (up to 35 wt%). Canisters must resist internal corrosion associated with high water content. Difficult to change to alternative form if necessary Large volume of aqueous silicate product must be stored. Potential for canister to pressurize Technology has not been demonstrated.	Aqueous silicate product has been produced on a laboratory scale using ERDA neutralized high-level radioactive wastes.

Conversion to Glass	Low-leaching solid product	Technology has not been demonstrated.	Glass product has been produced on a laboratory scale for ERDA neutralized radioactive high-level waste. Has been demonstrated on pilot plant scale for acidic high-level waste.
	Glass product would be thermally and radiolytically stable.	Difficult to change to alternative form if necessary	
	Good retrievability		
	Easily transported		
Salt Cake	Amenable to change in form if necessary	High leach rate	Fully operational units now processing ERDA neutralized high-level radioactive wastes.
	Fair retrievability	Limited thermal and radiolytic stability	
		Product would contain significant quantities of water.	
		Potential for container to pressurize	
		Containers must resist internal corrosion.	
		Technology has not been demonstrated for NFS waste.	
	Sludge is not treated.		

6.4.3. 研究及び開発

すでに述べた将来可能性のあるすべての廃棄物管理法は、実施するに先立って研究・開発計画を成功裡に完結させなければならない。Table 6.9 に推定される研究・開発のニードならびに処理施設の定常運転迄の推定所要期間をまとめて示す。これらのニードは、現存する NFS 廃棄物の管理に適用可能な多くの情報を提供すると思われる現在の ERDA 計画にさらに追加されるものである。可能性のある各方法に共通するものは、NFS 廃棄物の物理的及び化学的特性を決定するニードならびに廃棄物の取出し及び閉鎖手順（第15章）を確立するニードである。

廃棄物の恒久的タンク貯蔵の技術及び手順は大部分開発されており、各種の方法が運転可能と考えられる。

貯槽の洗浄（flushing）の研究・開発活動は、現在 ERDA サイトで行なわれている調査が継続されてスラッジ取出し技術に大いに役立つことを仮定している。

セメントへの変換法は、さらに研究・開発を行なわないと現存する NFS 廃棄物の管理には適用できないと思われる。主要な調査事項は、1) NFS 廃棄物を用いて十分な塩の除染がえられること、2) NFS 廃棄物を用いた場合の Savannah River Plant (SRP) が開発したスラッジ洗浄及び乾燥法の有効性、3) NFS 廃棄物の固定用セメントの適否、4) 中和及び Th 廃棄物の混合物処理法の能力などを決定することである。現在の SRP の研究・開発計画は継続され、NFS 廃棄物を同様な方法で管理するための多くの技術を与えることを仮定している。定常的な運転を開始するには10年の期間が必要となる。

頁岩への破碎注入法及び頁岩セメント法を NFS 廃棄物に利用するには、適当な廃棄物-セメント組成を確立する計画が必要と思われる。さらに、頁岩への破碎注入法に対しては地質的な調査が必要となりそうである。また、頁岩セメント法については装置開発計画が予想される。運転開始までに必要な推定期間は、頁岩への破碎注入法で5.5年、頁岩セメント法で9年である。

TABLE 6.9. Estimated Research and Development Activities and Timing to Routine Operation

<u>Alternative</u>	<u>Major Activities</u>	<u>Total Time to Operation, (a) years</u>
Liquid storage	Materials selection and development; leak repair techniques; leak detection systems; tank flaw detection; thorium and neutralized waste blending; characterize NFS waste supernate and sludge; decommissioning.	0
Conversion to cement	Characterize NFS waste supernate and sludge; salt "decontamination" achieved by the ion-exchange processing step; salt concentrating parameters; sludge washing and drying procedure; concrete formulation; radiolytic gas generation in concrete; applicability of commercially available equipment to processing NFS waste; decommissioning; container corrosion rates.	10
Shale fracture	Disposal criteria; characterize NFS waste supernate and sludge; verify suitability of West Valley shale beds; cement mix for NFS waste; sludge handling problem; decommissioning.	5.5
Shale cement	Characterize NFS waste supernate and sludge; define cement mix for NFS waste; determine storage drum life; develop process equipment; sludge handling problems; decommissioning; container corrosion rates.	9
Calcination	Demonstrate calcination using NFS waste; verify flowsheet; establish the ability of off-gas treatment system to conform with release limits; characterize NFS waste supernate and sludge; decommissioning.	13
Aqueous silicate	Demonstrate process for sludge and chemical immobilization; heat transfer studies; characterize NFS waste supernate and sludge; decommissioning; container corrosion rates.	13
Conversion to glass	Demonstrate pilot-scale vitrification process; develop applicable glass formulation; characterize NFS waste supernate and sludge; decommissioning.	14
Salt cake	Container corrosion rates; demonstrate wiped film evaporation with NFS waste; characterize NFS waste supernate and sludge; heat transfer studies decommissioning.	6

a. Includes research and development time.

仮焼法を NFS 廃棄物管理のための統合した処理法とするには広範な研究・開発計画が必要で、この計画には 6 月～1 年を要するフローシートの確認ならびにその後のパイロットプラントでの実証が含まれよう。この期間の終りで NFS 廃棄物の管理に不相当と判断されれば開発は中止されることとなる。運転開始までには 13 年かゝると見込まれる。

Aqueous Silicate 法の研究・開発ニードは、伝熱研究ならびにスラッジ及び化学的洗浄液の固定化処理能力の実証であると思われる。現在の ERDA の Aqueous Silicate 計画は継続され、えられるデータの大部分は NFS での処理に適用されると仮定した。

NFS 廃棄物管理用として商業運転するには約 13 年が必要と見込まれる。

NFS 廃棄物をガラス固化するには相当の研究・開発努力が必要と思われる。最重要事項は、受入れられるガラス生成物の開発、熔融炉などの主要な処理装置の運転の信頼性及び耐用年数の確証などの処理法の実証である。商業運転開始までには14年が必要と推定されるが、ここでも ERDA の研究・開発は継続されるものと仮定した。

塩ケーキ法研究・開発の主要なニーズは、NFS 廃棄物濃縮に対する薄膜蒸発缶の実証ならびに生ずる濃縮液用金属製貯槽の腐蝕率の立証である。施設の運転までには約 6 年が必要となろう。

6.4.4. 安全性

安全性は廃棄物の各種の最終形状の特性にもとづく定性的な論議として示す。NFS 廃棄物のデータは含まれていないが、固化した ERDA 廃棄物の貯蔵形状の特性を Table 6.10 に要約して示す。本書では、処理作業（放射性核種の固化による固定）は比較的短期間で実施され、同等のコンテインメントを施した地下室またはセル中で厳密に管理した条件で遂行されるものと仮定した。この取り上げ方は、施設はすべて同等な事故時及び定常的な放出基準を満足するように設計可能であり、従って同じように“安全”であることを仮定している。また、塩ケーキ法の場合を除いて、ここで考えている各種管理法では廃棄物は処理するために貯槽から同じ方法で取り出されるので、取出し工程の安全性はどの管理法でも同じである。詳細設計が入手可能となった時点では、より完全な安全解析が必要となろう。

TABLE 6.10. Summary of Characteristics of Stored Forms for ERDA Wastes

<u>Alternative</u>	<u>Leachability (g/cm²-day)</u>	<u>Volatility</u>	<u>Particle Size</u>	<u>Impact Resistance</u>	<u>Thermal and Radiolytic Stability</u>	<u>Containment</u>	<u>Container Stability (Corrosion)</u>
Liquid storage							
Supernate	=	high	liquid	--	poor ^(a)	tank	poor
Sludge	medium	medium	wet powder	--	poor ^(a)		poor
Acid	=	high	liquid	--	poor ^(a)		poor
Conversion to cement	<10 ⁻³ (cement) high (residual salt)	medium	monolithic	high	fair	canister	good
Shale fracturing	<10 ⁻³	medium	monolithic	high	poor ^(a)	geologic formation	--
Shale cement	<10 ⁻³	medium	monolithic	high	poor	canister	fair
Calcination	<10 ⁻¹	low	powder	--	fair to good	canister	good
Aqueous silicate	<10 ⁻²	medium	monolithic	low	poor	canister	fair
Conversion to glass	<10 ⁻⁵	low	monolithic	high	good	canister	good
Salt cake	high	medium	solidified melt	--	poor	canister	poor

a. Not necessarily a problem in these storage alternatives.

REFERENCES

1. "Management of Radioactive Wastes at the Hanford Plant," Presentation to the Committee on Radioactive Waste Management of the National Academy of Sciences at Richland, WA, June 23 and 24, 1969.
2. Draft Environmental Statement - Waste Management Operations Hanford Reservation, Richland, Washington, USAEC Report, WASH-1538, July 19, 1974.
3. Environmental Statement - Future High-Level Waste Facilities, Savannah River Plant, Aiken, South Carolina, USAEC Report, WASH-1528, April 1973.
4. C. M. Slansky, "High-Level Radioactive Waste Management Program at the National Reactor Testing Station," paper presented at the 167th National ACS Meeting, Los Angeles, CA, March 31 through April 5, 1974.
5. L. T. Lakey and J. R. Bower, eds., ICPP Waste Calcining Facility Safety Analysis Report, USAEC Report, IDO-14620, Idaho Operations Office, December 1963.
6. Interim Report: Fluid Bed Calcination of Simulated High Level Commercial Waste, ICP-1075, Freeby, WA, June 1975.
7. G. S. Barney, Fixation of Radioactive Waste by Hydrothermal Reactions with Clays, USAEC Report, ARH-SA-174, January 1974.
8. M. J. Kupfer and W. W. Schulz, The Endothermic Process - Application to Immobilization of Hanford In-Tank Solidified Waste, USAEC Report, ARH-2800, Atlantic Richfield Hanford Co., Richland, WA, July 1973.
9. M. J. Kirkman and W. L. Godfrey, Treatment of Liquid Wastes by Evaporation to Salt Cakes, ARH-SA-25, Atlantic Richfield Hanford Co., Richland, WA, August 4, 1969.

7.0 燃料集合体のせん断—浸出後に残留する廃棄物の 処理と固定化

最近の燃料再処理技術においては、燃料集合体は解体せずに小片にせん断し、溶解槽で酸により溶解される。酸による溶解後の残渣は燃料被覆、集合体支持棒及び中性子毒棒の小片並びに燃料端末部、支持格子、各種のスプリング及びスペーサなどである。燃料集合体に使われる材料とそのデザインは原子炉型式と燃料製造業者によってきまる。

集合体残渣は高容量の廃棄物となり、処理された燃料の約22wt%にも達する。高密化をしないと、燃料付属品は高放射性廃棄物の焼結固化体又はガラス固化体よりも高容量の廃棄物となる。溶解槽からハルを金属として回収すれば、それは燃料サイクルにおいて有益な使用法の可能性を生ずる。

この節では、まず最初に燃料付属品などの廃棄物の特性について論じ、つづいて、各種の処理技術の詳細について述べる。燃料被覆のフッ化物溶解法を除いた他のすべての処理技術はなお開発が必要であるパイロットプラント、実験室規模あるいは概念のみの段階である。集合体残渣の中間貯蔵については18節で述べられている。

7.1 せん断—浸出後の燃料集合体残渣の特性

この廃棄物は、元来、燃料再処理の際生ずるすべての未溶解の燃料付属品から成っている。この廃棄物の組成は、燃料集合体の構造材組成によって変化する。最近の燃料の場合では、この廃棄物は主にジルカロイ並びに少量のステンレス、インコネル等である。

燃料被覆は小片にせん断されて酸溶解されるが、最初の燃料の約0.05～0.5%を含んでいる。

炉内にあるすべての物質は中性子にさらされ、ある程度放射化される。炉内の位置に対する放射化の程度がFig 7.1に図示されている。合金と不純物成分のすべてが放射化または交換核反応をする。高度に照射されると、不純物として入っているウラン（ジルカロイ中では3.5 ppm以下）は予想されていた限界10nci/g以上の超ウラン核種を生ずる可能性がある。これらTRUは金属中に一様に分布し、表面除染で除去されない。

未処理ハルの平均密度は1 kg/lと推定され、容量で0.3～0.4 m³/MTU程度である。(1)

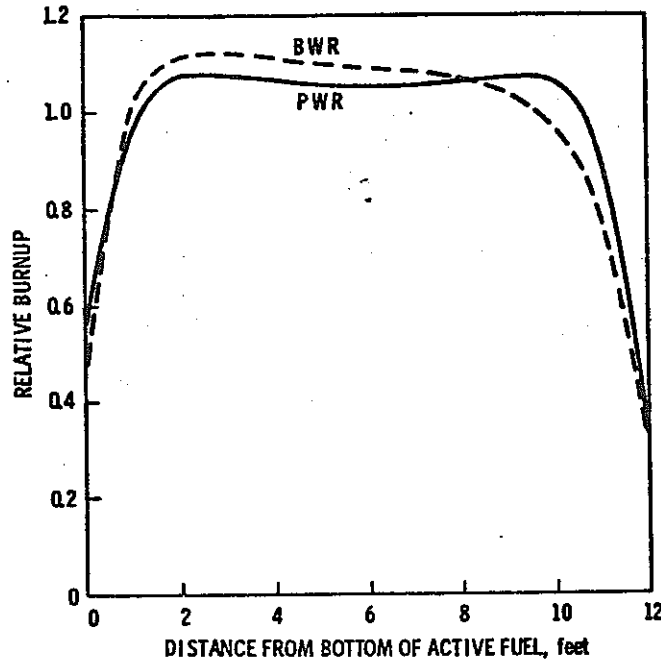


FIGURE 7.1. Axial Burnup Distribution

7.1.1 発生源

燃料集合体廃棄物の発生源とその容量及び平均の物性値が2節と3節に述べられている。

2節によると、モデル的軽水炉燃料に関するの推定平均値は次の通りである。

Zircaloy , kg/MTU	287.0
Stainless Steel , kg/MTU	29.0
Inconel , kg/MTU	8.0
Density , kg/liter	1
Volume/MTU, m ³ /MTU	0.3
Fuel Assemblies , FA/MTU	3.2
Fuel Oxide wt , * MT/MTU	1.13
Total wt , MT/MTU	1.46
Typical Exposure , MWd/MTU	25,000

モデル的燃料に関するこれらの平均値は、廃棄物の蓄積や利用を考察するのに有用である。この節で用いられた値は、特定の燃料要素に対するものであるが、任意の種類の燃料要素の処理に容易に適用できるだけの幅をもっている。

* 2節では、被覆管に付着する残留燃料はインプット燃料の0.05%であると推定されている。

燃料集合体の残留廃棄物は集合体解体の際と燃料せん断の際に発生する。せん断の際に生ずる微粉は、溶解残留物として溶解槽溶液中に残る。より大きな物質は溶解槽から取出され、洗浄され、未溶解燃料があるかどうかチェックされる。このより大きな物質（前もって除去した燃料付属品があれば、これも含めて）と溶解槽溶液中に残留する微粉がこの廃棄物を構成する。

7.1.2 Mass

種々の燃料構成材の予想される重量範囲は次のように、原料物質ごとに分類して論じる。

ジルカロイ

典型的な PWR 燃料集合体では、被覆管、端栓及びガイドシングル中のジルカロイ重量は 230 ~ 290 Kg Zircaloy / MTU 程度である。BWR 燃料については、ガイドシングルはない；そのスペーサはジルカロイであり、被覆管は PWR 燃料より厚くて長い、更にチャンネル（再使用できる燃料カバー）もジルカロイ製である。TRU 汚染廃棄物として処分すべき燃料チャンネル量を推定するにあたっては、80 mil のチャンネルにおいて 4 年、100 mil のチャンネルにおいて 8 年の平均寿命を仮定するのが適切である。これは換言すると、それぞれ、149,93 Kg(Zr) / MTU に相当し、この量は BWR 燃料の他の部分から推定される量 290 Kg(Zr) / MTU に加算される。

一般的に、PWR 燃料には Zr-4 が用いられ、BWR 燃料には Zr-2 が用いられる。今後この傾向が続くと、BWR 燃料には、PWR 燃料に使われるジルカロイには存在しないごくわずかのニッケルとコバルトを含むことになる。

酸化被膜付のジルカロイが薄い (0.6 ~ 0.9 mm) 管や板として使われる。燃料せん断の際には、多少の微粉が発生する (たぶん 0.1 % 以下)。微粉の一部は被ふく管表面に付着し、その他は溶解槽溶液中に残る。燃料せん断の際に発生する微粉についての情報は利用できるほど正確にはなっていない。

ステンレス

ステンレス (SUS 304) は、炉心の高中性子束領域の外側に位置する燃料集合体の部分に使われる物質である。燃料集合体を構成するステンレス製の部品には次のようなものがある。つまり、被覆管束の端に取付けられ、水と蒸気の流れを集合体内に導く役目を果たす上部下部のタイプレートとノズル、上部ノズルを被覆管束に固定するロックワッシャとナットなどであり、被覆管内に燃料ペレットを固定するプレナムスプリングの時もある。合計して、モデル的軽水炉燃料集合体では約 30 Kg(sus) / MTU のステンレスが存在する。旧式の燃料集合体では、BWR 燃料集合体、PWR 燃料集合体について、それぞれ約 45,65 Kg(sus) /

MTUのステンレスが含まれている。⁽²⁾

ニッケル合金

インコネル-718は、旧型の燃料ではPWR燃料集合体のスペーサグリッドに、上部タイプレート⁽²⁾のエクステンションスプリング、下部タイプレートのフィンガスプリング、更に、ある燃料では上部タイプレートのロックワッシャ及びナットに使用されている。燃料集合体中のインコネルの総量は燃料製造業者によってかなり違い、同じ業者でも、炉型式によってかなり異なる。一集合あたり、少ない方で2～3 Kg/MTU、多い方では16～18 Kg/MTUのインコネルが使用されている。2.3節では、モデル的軽水炉燃料集合体として、平均8 Kg/MTUのインコネルを仮定している。ある種のインコネル製スペーサグリッドはろう付けされている。

他の物質

ジルカロイ被覆管中に含まれる少量の燃料と核分裂生成物は、溶解工程での酸溶液に完全には溶込まない。酸溶解後のハルにはおよそ燃料の0.05～0.5%が残留するものと思われ、これは約30～150 g/MTUの核分裂性物質に相当する。この節では、安全側の値として、0.5%残留すると推定する。2節では0.05%と推定した。

なお、少量の他の物質が存在する。熱絶縁用酸化物ペレット、ろう付合金及び酸溶解しない他の金属又は酸化物などである。

7.1.3 放射特性

燃料集合体残渣中の放射能はステンレス、インコネル、ジルカロイの放射化生成物並びに未溶解燃料中の核分裂生成物及び超ウラン核種から成る。ジルカロイ、ステンレス及びインコネル間の放射能の割合は集合体中の各金属量によって変化し、更に、その金属の中性子被曝履歴によっても変化する。モデル的軽水炉燃料の被覆廃棄物の放射特性は2節で述べられている。

PWRで照射後、酸溶解を受けたZr-4製ハルについての解析が二つ報告されている。^(3,4) それによると、被覆中に存在する燃料(0.01%)の約50%がハル表面から浸出されており、約50%が表面腐食生成物層内に溶込んでおり、初期の燃料被覆管中に存在する不純物ウランの照射によって金属中に生じたものは0.1%以下であった。

崩壊によって生ずる熱と放射能しゃへいが燃料集合体残渣の処理と貯蔵の際考慮されねばならない。

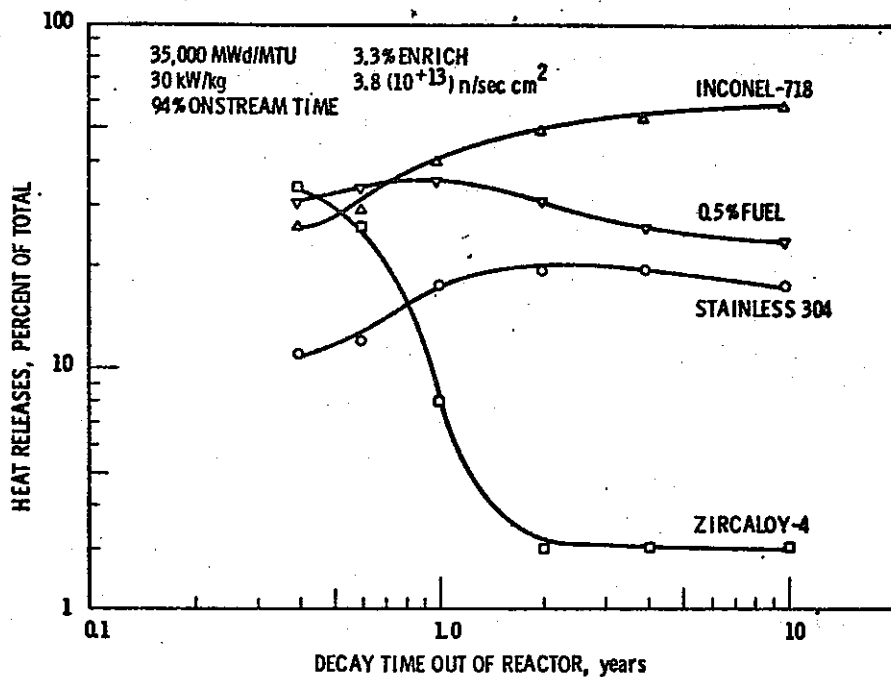


FIGURE 7.2. Fraction of Heat from Hulls Clad Constituents

Fig 7.2 は被覆廃棄物中の 0.5% 未溶解燃料及び各構造からの放射熱の総発熱量に対する相対的寄与を減衰時間の関数として示している。このプロットにおける照射履歴は、現実の最悪の場合の燃料よりも燃焼度が高く、出力は低く、濃縮度は高くなっている。

これらの数値を計算するために、次の相対的な燃焼度が炉内の予想される中性子束の軸方向分布を示している Fig 7.1 から選ばれた。

1. ステンレス部品のうち、端末部は炉心中性子束の 40% を、スプリングは 60% を受けるとした。
2. インコネルは炉心中性子束の 95% を受ける（いくらかのインコネルは炉心中央から離れているので、この値は安全側である。）

インコネルとステンレスは単位重量当たりの放射能で表示すると、優勢である。典型的な被覆廃棄物中に存在する金属量で補正すると（ジルカロイ：ステンレス：インコネル = 20 : 2 : 1），ジルカロイによる放射能は炉から取出した後の最初の 6 ヶ月だけ優勢である。それから約 2 年間はステンレスによる放射能が優勢になり、約 3 年の後、インコネルによる放射能が優勢となる。もう一つの計算機シミュレーションの結果⁽¹⁾が Fig 7.3 に示されている。そのシミュレーションはアクチドと核分裂生成物による寄与を含んでいない。放射化生成物の計算とハル中の残留核分裂生成物についてその他にも報告がある。^(2, 5, 6)

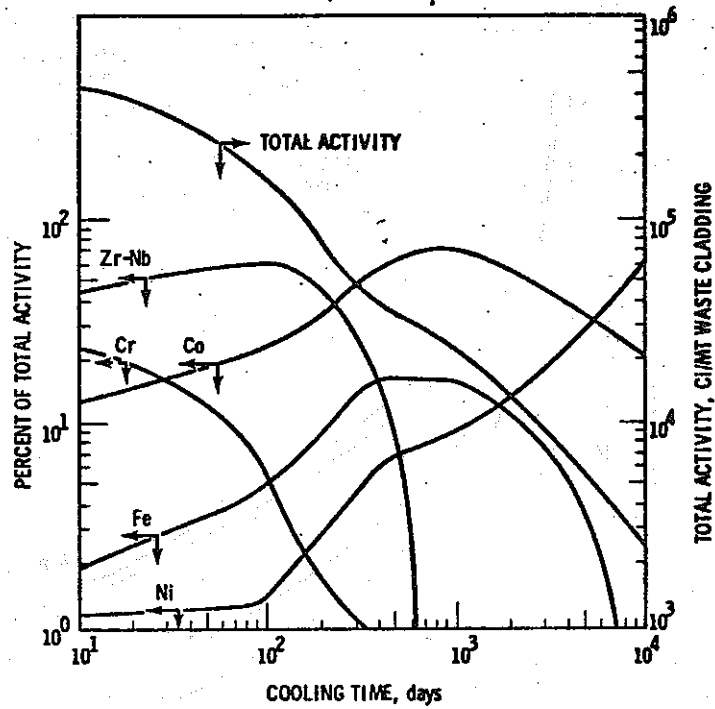


FIGURE 7.3. Induced Radioactivity in Waste Zircaloy Cladding and Inconel Spacers(1)

Fig. 7.4 はBNFPのハル容器からの最大熱放射量（計算値を種々の燃料について示している。）

この図は濃縮度と比出力をパラメータとし、最大燃焼度の時の熱出力（watts）を冷却時間に対してプロットしている。実際には、多数のハル容器の集積からの熱放射量は個々の容器を最大としてではなく、燃料の混合を考慮に入れて決めるべきである。

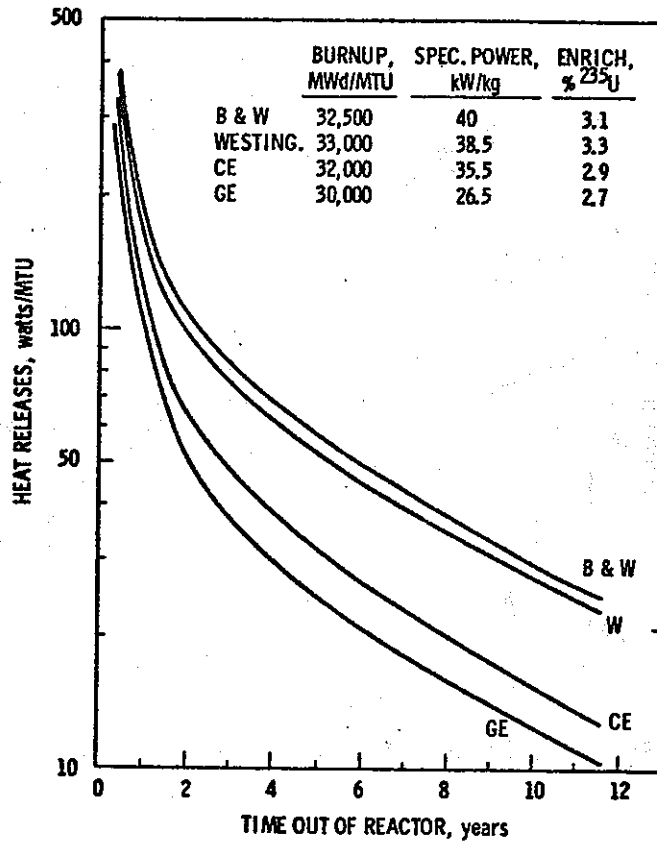


FIGURE 7.4. Typical Maximum Heat Releases Expected from 1 MTU Cladding (includes 0.5% undissolved fuel)

7.1.4 自己発火性

ジルカロイの自己発熱性 (self-heating) が結果として急激な酸化反応を呈するのは比表面積 (表面積 / 重量) が大きい微粉の割合が高い場合である。それはまた、表面の状態 (放射化対酸化)、崩壊熱、熱損失速度にも依存する。自然発火を起こすのに必要な微粉量とその比表面積値は容易には断定できない。それは表面状態の影響が変わりやすいため、崩壊熱と熱損失速度が推定できても、同様である。

ジルカロイハルはBWR及びPWRハルで、それぞれ 3.7 cm²/g, 4.9 cm²/g の比表面積値をもっている。せん断、のこびき及び他の操作の際発生する微粉は非常に大きい比表面積をもっている。炉内におけるジルカロイの腐食は腐食生成物の付着分を含めてジルカロイ表面に 10 ~ 100 μm厚の酸化物の膜を形成する。

ジルコニウム微粉は火災と爆発を起こした例があるので、ジルカロイの自己発火特性については、未照射の材料を用いて最近研究されている。(Table 7.1) (1,2)

照射を受けたジルカロイが未照射のものより反応性が強いかどうかはまだ知られていな

い。一般的に言って、民間プラントでの照射された酸化燃料ハルの取扱いの際に、大きなハル火災は起こっていない。しかしながら、取扱われた燃料の量は限られており、そのハルは埋められてしまっている。それ故、埋設後にハル火災が起こったとしても、それはほとんど発見されないだろう。照射されたジルカロイ被覆廃棄物は、115ℓ(30gal)のドラム缶に収納され、埋設前、最も長い場合で3ヶ月間にわたり、火災なしに、New York州West ValleyのNFSでセル中に貯蔵された。

TABLE 7.1. Apparent Effects of Selected Factors on the Pyrophoricity of Zirconium⁽⁷⁾

Factor	Trend of Factor Tending To Increase Pyrophoricity
Particle size	Decrease
Surface-to-Volume ratio ^(a)	Increase
Specific surface (area/mass)	Increase
Moisture content of environment	3-25% maximizes pyrophoricity, as does alternating wet/dry conditions
Temperature	Increase
Total mass of zirconium	Increase
Geometry of mass ^(a)	Reduce (toward minimum surface/volume)
Gaseous environment	Increasing oxidizing power
Impurities, alloying agents	Complex relations
Energy of ignition source	Minimum required for ignition; not directly related to pyrophoricity.

a ジルコニウム(単体または細片の集合体)のかたまり方は反応が起こってしまった後の熱の散逸に関係している。比表面積(Surface to volume ratio)の値は、個々のジルコニウム粒子または細片の量に関係する。

7.2 各種処理法と固定化技術

燃料集合体のせん断—浸出後の廃棄物をどう処理すべきかの判定エリアが Fig 7.5に図示されている。一般的に言つて、この図に示した処理法では、金属または非金属生成物を生ずる。燃料集合体残渣の処理の複雑な状態が Fig 7.6 に図示されており、これは非金属生成物を生ずるプロセスである。以下の文章はこれらの種々のプロセスを詳述しており、最初は、ほぼ金属生成物を生ずるプロセスである。今日まで米国で行なわれた唯一の民間処理法は未処理のハル廃棄物をドラム缶詰めにして埋設することである。この方法はいわゆる未処理法であり、ここでは触れないが、18 節のハル廃棄物の貯蔵のところで検討されている。18 節で述べられている貯蔵（未処理のまま）及びジルカロイのフッ化物溶液による溶解を除いたすべての処理技術は現在更に開発を必要とする、小パイロット規模、実験室規模あるいは概念設計段階である。

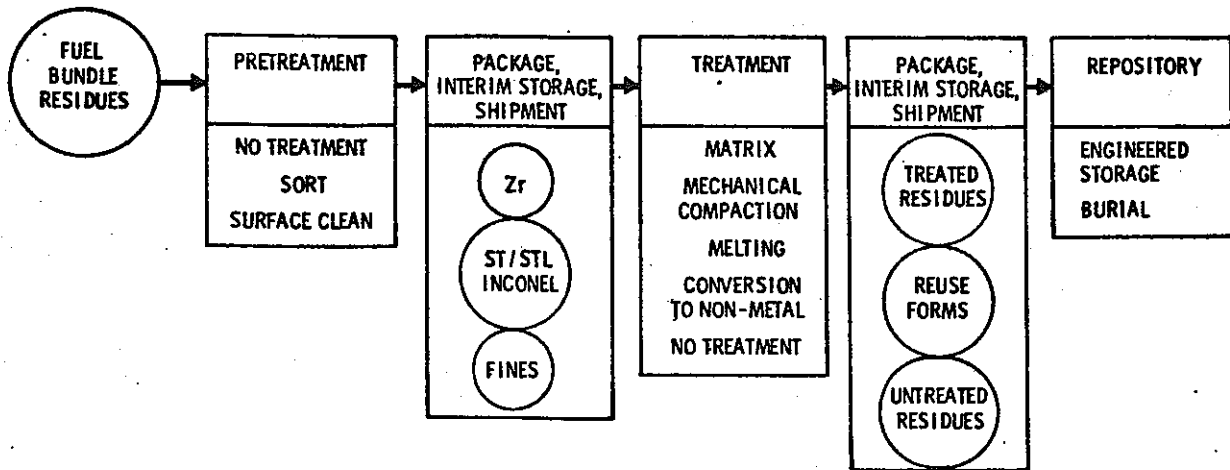


FIGURE 7.5. Decision Areas in the Management of Fuel Bundle Residues

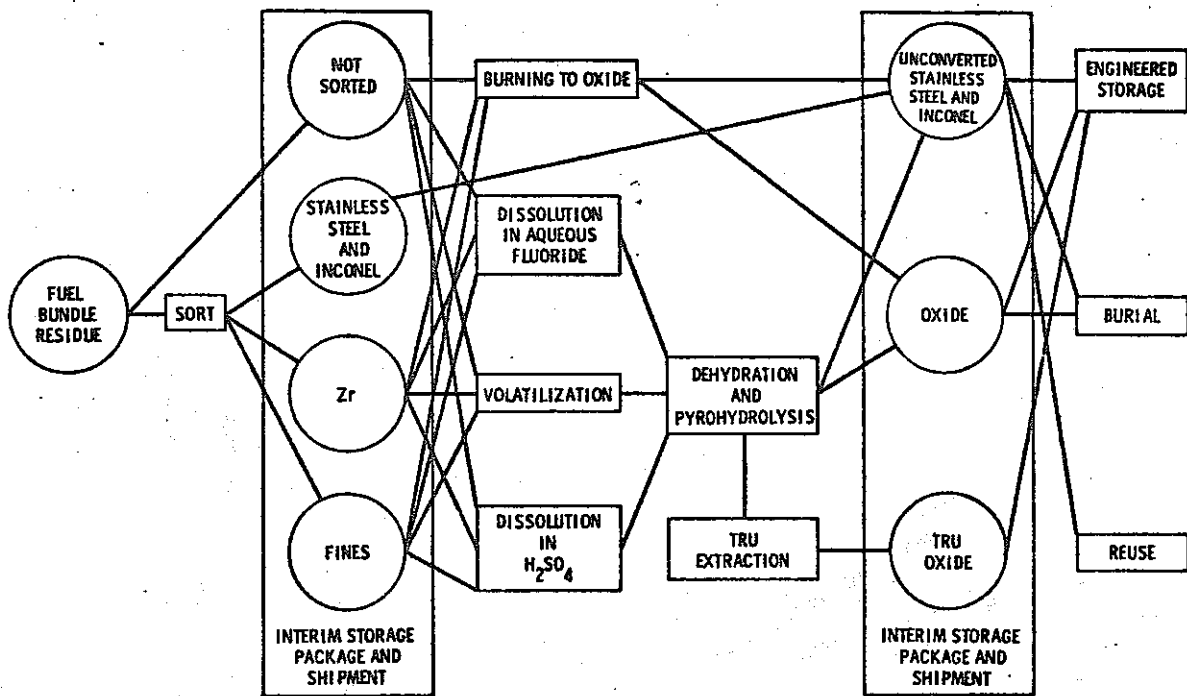


FIGURE 7.6. Chop-Leach Fuel Bundle Residue Conversion to Nonmetallic Products

未処理廃棄物はその容量、含まれている超U元素の高放射能並びに反応及び浸出の可能性を考慮すると、貯蔵のための総合的には妥当な、あるいは低価格の最終的な廃棄物の形態とはいえない。しかしながら、ここで述べる各種のプロセスは容量を減少し、放射能を低下させるものである。これら各種のプロセスに必要な技術は甚だ複雑であり、開発とか実証のごく初期の段階にすぎない。積極的な開発計画がもっとも実現性のある方法について実施されようとしている。もし、これらの燃料ハル処理技術の開発が続けば、それらは1980年代の実証プラントに採用される可能性を立証できるだろう。

これら各処理法に関するその特性、現状及び処理製品についてはTable 7.2, 7.3に要約されている。いくつかの比較欄は他の欄よりも意味深い。確かに、製品として最適の形態を選ぶことができようが、開発途上のプロセスの信頼性についての判定は必然的に試行的ならざるを得ない。

分類と表面洗浄は燃料集合体残渣に適用できそうな主な前処理操作である。照射された軽水炉燃料の金属廃棄物を単に貯蔵する場合、金属廃棄物の表面洗浄並びに形状及び物質による分類が有用である。主として前処理操作として使われていることになろうが、以下の検討には、選択すべき処理法として照射済燃料集合体のジルコニウム、ステンレス及びインコネル成分の表面洗浄と分類とを考慮している。

TABLE 7.2. Process-Product Characteristics and Status

TREATMENT ALTERNATIVE	PROCESS				STATUS OF TECHNOLOGY				PRODUCT DESCRIPTION				COMMENTS
	REMOTELY OPERABLE	BATCH/SEMI-CONTINUOUS	MAINTENANCE EXPECTED	DETAILED PROCESS AVAILABLE	DEMONSTRATION LEVEL	LEACHABLE OR REACTIVE	VOLUME PRODUCTS / VOLUME HULLS	RESISTANT TO IGNITION	TRANSPORTABLE SAFELY	FURTHER TREATMENT POSSIBLE	SUITABLE FOR REUSE	STORABLE WITHOUT CONTAINMENT	
CONTAINED ONLY, NO TREATMENT MATRIX	YES	B	LOW	YES	PLANT	YES	1/1	?	?	YES	NO	NO	CONSTITUTES PRESENT PRACTICE
	YES	B	LOW	YES	--	YES	1+/1	YES	YES	YES	NO	NO	WHILE NOT DEMONSTRATED, ADDITION OF CONCRETE OR LOOSE SAND APPEARS TO BE WELL WITHIN CURRENT TECHNOLOGY
MECHANICAL COMPACTION	YES	C	?	NO	--	YES	1/3	P	?	NO	NO	NO	CONCEPTUAL ONLY - MECHANICAL PROPERTIES OF IRRADIATED FUEL HULLS LARGELY UNKNOWN
MECHANICAL COMPACTION AFTER DECONTAMINATION	YES	B, C	?	NO	--	NO	1/3+	?	YES	YES	NO	NO	AS ABOVE
DENSIFICATION BY MELTING	YES	B	?	YES	LAB	NO	1/6	YES	YES	NO	NO	YES	MELTING DEVELOPED THROUGH PROOF OF PRINCIPLE STAGE
DENSIFICATION BY MELTING WITH DECONTAMINATION	YES	B	?	?	LAB	NO	1/6+	YES	YES	YES	?	YES	DECONTAMINATION DEVELOPED THROUGH PROOF OF PRINCIPLE STAGE
DENSIFICATION BY MELTING WITH DECONTAMINATION SEGREGATION	YES	C	?	NO	LAB	NO	1/6+	YES	YES	YES	YES	YES	SEGREGATION OF FUEL HULL RESIDUE METALS HAS NOT BEEN DEMONSTRATED
DISSOLUTION IN SULFURIC ACID	YES	B	?	NO	LAB	YES	1/1	YES	?	YES	NO	NO	CAN HYDROLYZE TO OXIDE AND INCLUDE IN GLASS
DISSOLUTION IN AQUEOUS FLUORIDES	YES	B	LOW	YES	PLANT	YES	1/1	YES	?	YES	NO	NO	CAN HYDROLYZE TO OXIDE AND INCLUDE IN GLASS
FUEL HULL VOLATILIZATION	YES	B		NO	LAB	YES	1/1	YES	?	YES	YES	NO	CONVERSION TO HLW ABSORBENT
BURNING FUEL HULLS TO OXIDES	YES	C	?	NO	LAB	?	1/1	YES	?	YES	NO	NO	CAN BE INCLUDED IN GLASS
CONVERSION OF SIDE WASTE STREAMS	YES	B	?	NO	LAB	?	1/1	YES	?	YES	NO	NO	PROOF OF PRINCIPLE, TECHNIQUES FOR HANDLING SIDE WASTE STREAMS NOT DEMONSTRATED

TABLE 7.3. Densification Process--Mass Volume Summaries

TREATMENT	PROCESS ADDITIONS			IMPORTANT PRODUCTS				SIDE STREAMS		REMARKS
	INPUT	CHEMICALS	THEORETICAL MASS	1		2		RECYCLE POSSIBLE	THEORETICAL MASS OF STREAM	
				PRODUCT	THEORETICAL MASS + VOLUME	PRODUCT	THEORETICAL MASS + VOLUME			
CHEMICAL CONVERSION										
• BURNING TO OXIDE	260 kg Zr/MTU 0.24 m ³ Zr/MTU	HF (CATALYST) O ₂	91 kg O ₂ /MTU			ZrO ₂	350 kg ZrO ₂ /MTU 0.06 m ³ ZrO ₂ /MTU	H ₂ O ₂ HF H ₂ O	NO YES YES YES	EXCESS ONLY ~40% OF GAS VOLUME
• DISSOLUTION IN H ₂ SO ₄ + HNO ₃	"	H ₂ SO ₄ HNO ₃	560 kg H ₂ SO ₄ /MTU	Zr ISO ₄ I ₂	810 kg ZrISO ₄ I ₂ /MTU 0.24 m ³ ZrISO ₄ I ₂ /MTU	ZrO ₂	"	H ₂ SO ₄ HNO ₃ NO _x SO _x	YES YES YES YES	560 kg H ₂ SO ₄ /MTU
• VOLATILIZATION	"	HCL OR ZnCl ₂ H ₂ O	416 kg HCL/MTU OR 777 kg ZnCl ₂ /MTU	ZrCl ₄	665 kg ZrCl ₄ /MTU 0.24 m ³ ZrCl ₄ /MTU	ZrO ₂	"	HCL H ₂ Zn	YES NO YES	416 kg HCL/MTU 11 kg H ₂ /MTU 370 kg Zn/MTU
• DISSOLUTION IN AQUEOUS FLUORIDE	"	NH ₄ F NH ₄ NO ₃ H ₂ O	630 kg NH ₄ F/MTU	NH ₄ I ₂ ZnF ₆	690 kg (NH ₄) ₂ ZrF ₆ /MTU 0.60 m ³ (NH ₄) ₂ ZrF ₆ /MTU	ZrO ₂	"	NH ₃ N ₂ NO _x HF	YES NO YES YES	360 kg NH ₃ /MTU 340 kg HF/MTU
• SURFACE CLEAN	260 kg Zr/MTU 0.24 m ³ Zr/MTU	HF (GAS) AMMONIUM OXALATE AMMONIUM CITRATE AMMONIUM FLUORIDE H ₂ O ₂ H ₂ O	10 kg/MTU 25 kg/MTU 16 kg/MTU 1.6 kg/MTU 3-390 kg/MTU	METALLIC Zr HULLS	≥ 210 kg Zr/MTU 0.24 m ³ Zr/MTU	ZrO ₂	≤ 50 kg ZrO ₂ /MTU ≤ 0.01 m ³ ZrO ₂ /MTU	HF CO CO ₂ ZrO ₂ Fe, Ni, Cr)O _x H ₂ O	YES NO NO NO NO YES	10 kg/MTU 390 kg H ₂ O/MTU
METAL PRODUCTS										
• MATRIX FORMATION	260 kg Zr/MTU 0.24 m ³ Zr/MTU	CEMENT BITUMEN SAND	150-390 kg/MTU	(260 kg Zr/MTU) Zr-MATRIX	410-650 kg Zr MATRIX/MTU 0.24 m ³ Zr MATRIX/MTU					Zr-MATRIX DENSITY CAN INCREASE TO 420 kg Zr MATRIX/MTU BY INCREASING Zr DENSITY TO 50% OF MAX - 0.08 m ³ Zr MATRIX/MTU
• MECHANICAL DENSIFICATION				Zr COMPACT	260 kg Zr/MTU 0.08 m ³ Zr/MTU					~70% THEORETICAL DENSITY
• MELT				Zr INGOT	260 kg Zr/MTU 0.04 m ³ Zr/MTU			Cf ₂	YES	8 kg Cf ₂ /MTU

7.2.1 分類

どこまで分類を行なうことができるか、あるいは望ましいかは適用される処理技術に依存している。Table 7.4 に各処理技術で考慮すべき分類基準を要約してある。いくつかの処理技術にとって、自己発火性が分類すべきだという主な理由となる。合金型式によって分類しておく、処理プロセスの効率と製品品質を高めることができる。大きさによる分類が処理装置の大きさに合わせるため必要となることもある。これらの両種の分類（併用も含めて）を行なうと、結果的に超U核種汚染の高い部分と低い部分、または放射能強度の高い部分と低い部分に分かれ、それはしゃへい、輸送及び処分の設計と手順に影響を及ぼす。

TABLE 7.4. Summary of Sorting Criteria

Technology	Sorting Criteria				
	Pyrophoricity	Alloy Type	Size	TRU Contamination	Shielding Requirement
No treatment	X	0	NR	0	0
Matrix forming	?	NR	NR	0	0
Mechanical densification	X	NR	X	0	0
Melting	X	X	X	0	0
Surface cleaning	X	0	X	0	0
Dissolution in sulfuric acid	X	0	0	0	0
Dissolution in aqueous fluorides	NR	0	0	0	0
Volatility processes	NR	?	?	0	0
Oxidation with HF-O ₂	NR	NR	X	0	0
Conversion to zirconate for use in HLW ion exchange	NR	?	NR	0	0

X = Probably required by process

0 = Economic decision

? = Uncertain

NR = Probably not required by process.

操作の安全性をますために、微粉の分類が要求されることもある。ANLはジルコニウムの自己発火性及び被覆廃棄物の取扱いに対するその影響について研究している。⁽⁷⁾

この研究では、燃料溶解後のハルから微粉を分離すること及び溶解槽から定期的に微粉を取出し、酸化によってそれらを不活性化することが望ましいと結論している。

しかしながら、この分離操作は再処理プラントの操作の複雑さと投資を増加させる。それ故、そのような分離による利益がそのコストに値しなければならぬ。

米国で最初に操業を始めた民間再処理プラントのNFSでは燃料集合体のすべての金属廃棄物をただ単に埋設するにとどめていた。けれども、燃料集合体の端末部等は燃料をせん断

し、コンテナに入れ、埋設する前に集合体より取除かれる。それ故、集合体端末部はほとんどU, Puを含んでおらず、浸出工程を経ず、分かれて排除される。ハル(長さ2.5~5 cmの管の断片)、微粉及びグリッドを含む被覆廃棄物は浸出工程を通して処理され、ドラム缶に収納して、集合体端末部と同じく埋設される。連邦貯蔵場へハル輸送をしなければならないという含超U核種廃棄物に関する規制が予想されるので、集合体端末部等はサイト内埋設をつづけることができるように、分類を行なうことが考慮されよう。

AGNSのSouth Carolina州、BarnwellのBNFPでは、5~13 cmの長さの切断燃料管と集合体端末部全体を溶解槽バスケット内に収納できるだけの溶解槽の容量がある。最大径で0.4 mm以下の懸濁した微粉は、たぶん40-meshスクリーンを通り、溶解槽製品側へ流れる。これら粒子は容器内で沈でんするか遠心分離器下流に集まる。

将来の再処理プラント、せん断-浸出系に関する設計では、ステンレスノズル又は集合体端末部を直接、廃棄物コンテナへ収納できるような分配機構をせん断系吐出側に設置することになるだろう。このようにすれば、集合体端末部が超U核種で汚染してなければ、これらの廃棄物のサイト内埋設が可能となる。

超U核種を含まない可能性のあるインコネル製ボルト、スプリング、グリッドのような部品とジルカロイ製被覆管を分類することは、あまり価値がない、というのは、それらは集合体の全構造物の約4 wt %程度であるから。

もし、自己発火性の研究によってジルカロイ微粉の分離が望ましいとなれば、最も適用の可能性のある技術は、恐らく、物質組成に関係なく、ある大きさ以下の微粉はすべて被覆材から分離する方法であろう。ある分離技術を被覆廃棄物に適用するためには、分離装置の遠隔操作化に関する開発が必要である。

大きさまたは物質による燃料被覆の分類の主な理由は安全性、単純な処理及び貯蔵のためである。含超U核種物質と超U核種を含まない端末部、チャンネル及び通常は燃料と接触していない他の物質とを分離して処分することで再処理業者は経済的に利益を受けることができよう。再処理業者は、望むならば、超U核種を含む部分に前処理を施し、最終のサイト外貯蔵を行なう廃棄物の容量を最小にすることもできる。

安全性と経済性を総合的に検討した結果、被覆廃棄物の分類をすべきであるとすれば、3部分への分類が考えられる。塊状グループは端末部とグリッド部であり、中間グループはハルとプレナムスプリングであり、第3グループは残りの物質である。未溶解燃料は中間グループか微粉グループに入る。微粉は塊に鋳造するか又は酸化もしくは化学反応によるもつと安定な形への転換によって、安全に処理されよう。Levitzは径0.085 cm以上のジルカロイ粒子は安全に取扱いうると指摘している。

燃料集合体の残留廃棄物の物質の種類による分類は、Illinois州、MorrisのGEが操業するMFRPで行なわれていた。燃料集合体から燃料棒を引抜くための装置が設計され、プラント内のホットセル内に設置された。取出された燃料棒は並べてせん断された。ハルは浸出後、微粉を取除くために洗浄された。この操作は未照射の燃料を用いて実証されたが、照射された材料を用いては実証されていない。この解体プロセスを、既存の再処理プラントにこれから付設するのは非現実的だが、将来のプラントにとっては採用しうるプロセスである。

7.2.2 表面洗浄

表面洗浄は一種の前処理技術であり、廃棄物の放射能を減少させる役割と廃棄物の最終処分“例えば、融解”のために物理特性を高める役割をもっている。もし、材料が照射以前にUとThによって汚染されていなければ、表面洗浄は直接処分法にとって十分な処理となる。特定な処理プロセスに対する表面洗浄の要件についてはこの節の後半で議論されている。

ハルをざっと分類すると、一群はステンレス製端末部及びインコネル製スプリングとスペーサ、もう一群は長さ2～13 cmのジルカロイ管、更にもう一群は微粉に分かれる(7.1節を見よ)。燃料集合体のステンレスとインコネルの部分は炉内で操業中に5～50 μmの厚さの鉄、ニッケル、クロムの酸化物スケールを外表面に生ずる。これらが溶解槽に入ると、溶解槽溶液から多量の超U核種を吸着するだろう。これらが溶解槽に入らないとすると、炉内で燃料破壊にさらされていなければ、超U核種はたいへん少ないはずである。インコネルスペーサとステンレス端末部の実際の超U核種濃度は測定されたことはないが、金属中のUとThの初期含有量から計算できる。ジルカロイ被覆は残渣として初期燃料の約0.1%程含んでいる。約50%は浸出性で、残りの50%は浸出せず、ID燃料被覆管表面上の腐食酸化生成物と給合している。⁽³⁾通常は、被覆の超U核種汚染の0.1%以下が金属中に見られる。それで、被覆管表面から二酸化ジルコニウムの腐食生成物を除去することにより、表面除染係数は $10^3 \sim 10^4$ が達成可能である。ステンレスとインコネルの場合も十分な除染係数が予想されるが、まだ実証されていない。

7.2.2.1 ジルカロイ

ジルコニウム合金の酸化膜の表面洗浄にはしばしば機械的除去法が用いられるが、ハルの場合について考えてみれば、それは非現実的である。フッ化物は酸化物を浸食するが、しかし、もっと水溶性のフッ化物はしばしば酸化物よりも早く金属を浸食してしまふ。非水性溶融フッ化物塩は急激に金属と酸化物を浸食するが、⁽⁹⁾しかし、バスから取出した時溶融塩が表面に付着すること及び腐食を抑制することは難しい。他の実験室規模の方法は600～650℃の気体状HF-Ar混合物を用い、更に回収液を通す方法で発展してきた。除去された酸化物

と金属を除くこの反応のすべての生成物はHFとH₂Oのリサイクル及び除染のために揮発させられる。

Modified Aqueous Process

ジルカロイ被覆の除染を目的とするこのプロセスはミニスケールでテストされ、実験室規模にスケールアップされている。このプロセスの概要は、約30分間、600～650℃のHF-Arの気体状混合物中で乾燥ジルカロイハルを処理することである。この気相処理法では、気体が腐食層に浸透し、腐食層と金属との間に自己制限作用のあるフッ化ジルコニウム膜を形成する。次に、冷却されたハルはアルゴン雰囲気中から取出され、除染用の水溶液中に浸される。この溶液が金属を侵食する反応は非常に穏やかなので、まず酸化物を除去して超U核種汚染物を溶液中に溶かしだす。今までのところ、もっともよく適していると見られる溶液はガス炉の除染で開発されたものである。^(3,10,11) それは0.4 M 修酸アンモニウム、0.16 M クエン酸アンモニウム、0.1 M フッ化アンモニウム及び0.3 M 過酸化水素の混合液で95℃に加熱されて用いる。気相処理後、この溶液中に浸されたジルカロイは、急激にその酸化物とフッ化物の被膜を失い、30分間程で光沢のある金属表面をつくる。除染によって侵食される金属は普通25 μm以下である。全体の金属損失量は炉内で形成された腐食層と除染損失であり、ほぼ50 μm以下である。洗浄されたジルカロイは乾燥され、不活性ガス(Ar又はHe)でフラッシュされ、溶融される。酸化腐食生成物とフッ化腐食生成物は脱水され、高温加水分解され、金属酸化物に煅焼される。揮発されたフッ化物と水は溶液原料と用いられ、一酸化炭素(CO)と炭酸ガス(CO₂)は気体排出物として処理される。

プラント装置の構造材は現在のところ完全に試験されているわけではない。蒸発装置はHF蒸気に耐えなければならないので、高ニッケル合金が必要である。現在実施中のスケールアップテストでより有効な材料テストと結果が得られるであろう。

この改良された水溶液処理プロセスでは、ジルカロイ廃棄物を二つに分ける。一つは超U核種を少量しか含んでおらず、全材料の80～95%から成る比較的きれいな金属である。二番目はかなり超U核種に汚染されており、全材料の5～20%から成る酸化ジルコニウムと他の酸化腐食生成物である。他に二次廃棄物としてトリチウムで汚染された少量の過剰水を生ずる。装置廃棄物は、一般的にこのプロセスで処理され、金属または酸化物にまとめられる。気体状廃棄物は粒子、揮発物、放射性気体によって汚染されている。これら汚染物の特性は明らかでないが、セシウム、アンチモン、トリチウムを含んでいると思われる。ほとんどの廃気は低容量である。

溶融塩プロセス

このプロセスは酸化ジルコニウムの腐食膜を除去するために開発されたもので、^(11,12)

700℃の37mol %フッ化リチウム、37mol %フッ化ナトリウムおよび26mol %フッ化ジルコニウムの混合浴を用いる。このプロセスは燃料溶解プロセスが開発された時の資料をもとにして採用された。つまり、それは金属よりも酸化物を急激に浸食するという事実である⁽⁹⁾。金属面の腐食速度は塩とか気体中の不純物に依存する。塩のジルカロイ表面への付着は腐食の程度に比例しているようである。

このプロセスは、高温のアルゴン中で酸化ジルカロイ片を予熱乾燥させ、更に700℃の熔融塩に浸し、熔融塩浴中で、アルゴンかAr-HFのゆっくりとしたフラッシングをつづける。適当な時間がたつた後、ジルカロイ片を取出し、アルゴン中で冷却する。冷却片は除染液を用いて処理される。

Hastelloy N で造られた実験室規模の装置は十分に熔融塩を保持するのに耐える。インコネル製の出入口管も比較的腐食を受けないようだ。燃料溶解研究におけるパイロットプラントテスト⁽¹³⁾は熔融塩系を取扱う機器の材質を確立している。

このプロセスは3つの流れを生ずる。つまり、熔融塩、除染液および金属残渣である。熔融塩は超U核種、酸化ジルコニウムおよび腐食沈でん物を含む。熔融塩除去プロセスからの廃液は熔融塩中の不純物とジルカロイに付着する塩を含む。金属残渣は第3ストリームを構成する。廃棄物の精製に関しては研究されていない。比表面積の大きい廃棄物に付着する塩を置換しても、なお熔融塩は望まれる化学純度を保っているであろう。しかしながら、純度の基準は確立されていない。固体含有量の大きい廃液は回収が難しいし、無視するには量が大きすぎる。熔融塩プロセスは酸化ジルコニウムの腐食生成物を除去するが、金属腐食速度の低下、dragoutの減少および塩のリサイクル等について根本的な改良が実用化の前に必要であろう。

7.2.2.2 鉄-ニッケル-クロム合金と他の物質

ステンレスとインコネルは炉内照射中に腐食および炉内腐食生成物の沈着をうける。燃料破損の際は、それらは照射済燃料によって汚染されるであろう。もし、それらが燃料と共に溶解槽内に入ると、それらは超U核種で汚染されるであろう。

原子炉除染液^(14,15)はPWRで照射されたステンレスとインコネルの表面をきれいにする。BWRにおける照射はマイルドな試薬で除去するには非常に難しい膜を形成するが、もし、腐食がかなりなものでなければ民間技術で除去される。ジルカロイプロセスの混合浴、つまり、修酸アンモニウム-クエン酸アンモニウム-フッ化アンモニウム-過酸化水素は充分、これらの合金を清浄化する。実際、これら合金をジルカロイと一緒に処理すると、2次廃棄物容量を最小にする利点がある。

熔融塩とか苛性ソーダのような水素化物浴を用いる無水プロセスは除染溶液と併用して、

ステンレス合金を洗浄するのに用いられる。これらのプロセスはすべて、粘性 dragout の問題や 2 次廃棄物量の大きさの問題がある。一般的に鉄-クロム-ニッケル合金に生ずる酸化腐食生成物は他のプロセスでも容易に除去される。それでも、熔融塩プロセスは、もし望まれるなら利用される。

現在の燃料材料選択 (UO_2 , ステンレス, ジルカロイおよびインコネル) は燃料設計の進歩によって変化する。例えば, 熱絶縁用燃料ペレットは Al_2O_3 か ZrO_2 を含む。これら, 新材料の多くは, 機械的には分離できず, また溶解槽でも溶解されず, 表面洗浄プロセスに送られる。 Al_2O_3 や ZrO_2 は不活性なので, 熔融塩プロセスが用いられない場合は, 熔融操作までそのままのかたちで残存する。熔融中に, ジルコニウムは基本的にはどれとも反応するが一方, ステンレスの熔融プロセスでは氧化物型の不純物はスラッグとして分離される。これら他物質の分離が必要なのは高純度のジルカロイ溶解を要する時だけである。

7.2.2.3 表面洗浄技術の現状

ジルカロイ被覆の表面洗浄は小実験室規模で実施されている。その装置は最近被覆ハルの 100ml のバッチサイズで試験された。この試験と引きつづくパイロットホットセル装置は 1978 年初期までにキログラムオーダーの量を処理するであろう。また, 2 次廃棄物処理と熔融の開発が併行的に遂行される。

ステンレスとインコネルの表面洗浄は標準の炉除染技術で実行することができる。ジルコニウム合金に適用できる手順は, 鉄-クロム-ニッケル合金にもよく応用できるであろう。通常の水溶液洗浄は 2 次廃棄物と装置の汚染を最小にする。

7.2.3 Matrix 形成

ハル廃棄物を包まれた中性のマトリックス内へ混ぜ込むことは自己発火性, 浸出性およびしゃへいを減少させ, 熱放散を改善する。自己発火性のある微粉は再処理プラントで除去されるが, その次の操作や輸送などで, 更に微粉が発生する可能性がある。マトリックス凝固剤や希釈液は燃料ハルを固定化し, 更に反応性酸素を減少させることにより, 微粉の形成を防いでいる。マトリックス技術は実用化されている。コンクリートや瀝青 (アスファルト) は放射性廃棄物に対して最近用いられてきた。その欠点は, 後の金属回収が困難なことである。マトリックス鑄造の前にある種の予備減容または偏平化が必要な場合もある。これによりハル対マトリックス比を増大させることができよう。ハルの機械的稠密化は 7.2.4 節で述べられている。

7.2.3.1 コンクリート内への固定

ジルカロイハルに対するマトリックス材料としてのコンクリートの使用は, ハル貯蔵に関

連して考慮されている。米国には低レベルや中レベルの廃棄物に対するコンクリート・マトリックスに関するいくらかの経験がある。NFSはハルに対するマトリックス材料としてコンクリートを利用した経験をもっている。Stock Equipment Companyは低レベルや中レベルの廃棄物の固化に現在使われている grouting（注入）プロセスを適用して、ハルの固定を実証した。

このプロセスの概念は、ハル廃棄物のローリングによる機械的減容後注入材料との振動混合を行なうものである。ハルはグラウトに加えらる。Stock Equipment Companyは鋳型から取出した時、50%グラウト-50%ハルの混合物ができていることを示した。固化物の機械的強度は必要でないと思われるので、より高いハルの含有比が実用上可能と思われ、それは経済的にも有利である。コンクリート固化装置の保守が高放射性の雰囲気および遠隔保守の必要性のため大きな問題である。

いかなる重要性のある物質取扱いを含むプロセスも実質的な装置保守とシステムのバックアップを必要とする。いくつかの原子力発電所で現在用いられているコンクリート固化システムではドラムの過充填やミキサー内でコンクリートが固まってしまうといった装置の不調の例が経験されている。

7.2.3.2 瀝青（アスファルト）内への固定

アスファルトは低レベルや中レベルの放射性廃棄物処分系に用いられる。このプロセスは、放射能によるマトリックス分解のため、高放射性の固体金属廃棄物には適用できそうもなく思われる。たとえば、発炎性を伴う分解が考えられるので、瀝青質のマトリックス材料の使用は真剣にはとり上げられないでいる。

7.2.3.3 ガラス内への固定

6節では、高放射性液体廃棄物のガラス化技術について述べている。後に、これらのガラス体はハルについてのマトリックス材料として使用できると考えられる。そうすれば、二つの廃棄物は一つに統合し、容量と重量のかなりの節約になる。

7.2.3.4 マトリックス材料としての砂

砂はこれまで言及してきた他のマトリックス材料よりも流動性がある。その流動性のため、廃棄物コンテナ内に収納された被ふく廃棄物のすき間を容易に充填させるか、または振動をかけて充填させることができる。NFSはマトリックス材料として現在砂を考慮している、というのは、それは取扱いが容易なこと、被ふく廃棄物の貯蔵前後の処理に対する柔軟性及び混合操作を通じて発火性微粉の濃度を減少させることなどによる。

砂混合のための装置はコンクリート、ガラス又はアスファルトの時の装置よりも複雑ではないと思われる。それ故、砂分配及び混合装置の建設費は少なく、一方、その装置の信頼度

はその単純性のため高い。砂はまた、必要ならば、容易に金属回収の可能性をも秘めている。

7.2.3.5 廃棄物・マトリックス間相互作用

貯蔵プロセスに対しては、発熱量、放射能レベル、放射性核種組成に関する考慮がはらわれねばならない。この情報はORIGENコード⁽⁸⁾を用いた計算によって得られる。マトリックス材料の熱的及び放射能分解については、それを使用に付す前に評価されねばならない。

ジルカロイ

ほとんどのマトリックス材料の添加は処分すべき廃棄物重量を増加させるであろう。この重量の増加量は選択したマトリックス材料と適用法により変化する。例えば、砂がジルカロイ微粉をうすめるためのマトリックス材料として選ばれた場合、ハルと微粉の混合物に加えるより微粉だけに加える方が量が少なくてすむ。

ステンレス鋼

ステンレス鋼は自己発火性がないので、ステンレス製燃料付属品をマトリックス材料と混ぜることの妙味は少ない。NFSではステンレス製端末部は他の燃料集合体残渣から分離され、サイト内埋設がなされる。超ウラン核種含有廃棄物に対して考慮中の規制値は $10^{nci}/g$ であり、ハル埋設に関しては影響すると思われるが、ステンレス製端末部の埋設には関係しない。しかしながら、端末部が埋設前個々にモニタされねばならないとしたら、分類し、モニタしてサイト内埋設するかまたは連邦貯蔵場に移送するかは経済性の問題となる。

インコネル

燃料集合体の総インコネル量は平均 $8^{kg}/MTU$ である。しかしながら、その量は燃料のタイプによりかなり変化する。インコネルはNFSでは分類されてない。そして、量が少ないため、他の手段を取る妙味がほとんどない。インコネルは照射後、放射化される。そして、実際、他の物質よりももっとしゃへいが必要な高エネルギーのガンマ線を放出する。

7.2.3.6 技術の現状

マトリックス製造技術はその大部分が実用可能になっている。ガラス・マトリックス法はなお、開発の必要がある。燃料集合体残渣をマトリックス材料に混ぜ合わすことについて利益があるかどうかの情報を集めねばならない。マトリックス技術はその選択と使用法を確立するため、必要性、価格、利益をもとにして評価されねばならない。

7.2.4 機械的稠密化

未処理ハル、端末部及びグリッド等の空隙率は80~90%になるので、圧縮減容と扁平化による稠密化によって与えられるスペースに貯蔵できる非燃料金属量を少なくとも3倍にすることができる。それ故、燃料集合体残渣の取扱い、移送及び貯蔵に関して、稠密化は経済的妙味がある。

もし、圧縮物内での粒子・粒子間結合が必要とされるなら、表面洗浄が必要である。

7.2.2 節に表面洗浄の手順が記述してあるので参照されたい。ハルの表面洗浄は N F S で行なわれていないし、BNFP が運転を開始する時も、表面洗浄を含まないであろう。しかしながら、両プラント共に、付着している溶解液を回収するためハルを硝酸と水で洗うが、この操作は除染と酸化物除去を意味していない。

7.2.4.1 圧縮減容

西暦 2000 年までに蓄積されるハル廃棄物の容量は $3.1 \times 10^4 m^3$ になると推定されている⁽¹⁾。もし、ハルが圧縮減容されるなら（圧縮係数を 4.5 と仮定すると）、その容積は約 $6900 m^3$ となる。もっと詳細な容量計算は 3 節から得られる。

Zr-4 製の管は民間で圧縮減容されている。⁽⁷⁾ 固められた固型物（直径 27.9 cm, 高さ 12.7 cm）は 1 個 3.6 kg であり、ジルカロイの理論密度の約 72% である。しかしながら、これは、照射され、もろくなったハルが変形して、ばらばらにならないような固型物に固められるという意味ではない。逆に、もろくなったハルは二つに割れ、偏平にされた時小片になるように思われる。そうすると、壊れた面でジルカロイの小さい粒子が形成され、自己発火性を増す傾向がある。しかしながら、照射されたハルが焼きなましされると、それらは圧縮減容の際に固められるような充分の柔軟性をもつであろう。

性能の実証された市販の圧縮減容装置が現在利用できる。処理能力の減少を 50% ほどと仮定して、5MT/日の使用済燃料再処理工場からのハルの取扱いのために必要な公称 10^{MT} /日ユニットの設計は標準のものとして入手可能である。ジルカロイの理論密度の 70% への稠密化はほぼ可能であろう。

7.2.4.2 偏平化

ジルカロイ製ハルはまた平らにされる。これを行なうためのもっとも一般的な方法は、まだ実証はされていないが、相対するローラ間を通すことである。この技術はスクラップ金属を固める時に使われている。照射されたハルはローラから出る時は平らにされ、二つに割れ、わずかに皿状になっていると思われる。自己発火性のある小さい Zr-4 粒子が破断面から生ずるかもしれないが、この現象についての利用できる情報は無い。

7.2.4.3 他の方法

ハルの稠密化に関する他の技術は容易には見出せない。高エネルギーの圧縮減容と押し出しが提案されたことがあるが、ハルを圧縮減容するのに利用しうるこれら技術に関する工業的経験はない。

7.2.4.4 稠密化された生成物のコンテインメント

Blomeke と Perona⁽¹⁶⁾ は「使用済燃料被ふく材の貯蔵、移送及び処分」について研究し、

ブリケット状に固化されたり，偏平化された被ふく材に対して鋼管型のコンテナを提案している（長さ 3.25 m，内径 25 cm，壁厚 0.71 cm 又は長さ 3 m，内径 61 cm，壁厚 0.64 cm）。

小さい方のコンテナは固められたものに対してであり，大きい方は偏平化された被ふく材に対するものである。

7.2.4.5 廃棄物処理プロセスにおける相互作用

対象になる廃棄物の一般的な特性は 7.1 節に述べられている。その機械的特性は Levitz 等⁽¹⁾によって調べられており，特に，それは照射によって影響を受けることが記されている。

ステンレス製端末部を理論密度の 50% 以上に圧縮減容しようとする，その大きさと量を考えると，非常に大きなプレスを必要とする。

ジルカロイ製被ふく材の水素吸収と照射の結果，低温度でもろくなってしまいうので圧縮減容中に破碎を引き起こす。

燃料集合体残渣の機械的稠密化は，理論的には最大 6 倍（1.1 から 6.6 に）に達する。しかしながら，密度 4.6 への稠密化が実用的な限度と考えられ，それでさえ，大きなプレスと高圧が必要であろう。酸化した材料の圧縮減容は，もし，コンテナ内で圧縮しないと，ばらばらになってしまう未結合圧縮物を生ずるだろう。ジルカロイ製被ふく材の水素脆化と照射脆化は室温での圧縮減容の際は，ばらばらの生成物を作りやすい。

機械的に圧縮された固型物の浸出性は，その有効表面積と関連しており，一般的に，破断面の程度によって増加する。腐食性は水，表面積，温度に関連しており，未洗浄廃棄物のすべての圧縮物についても同様である。廃棄物の洗浄は冶金学的結合，低い内部温度，高い初期表面腐食速度をもたらす，また浸出される放射能を相当程度減少させる。7.2.2 節で述べたプロセスにより洗浄されたジルカロイは実質的には焼きなまされ，かなり柔軟になっており，表面結合を生じ，熱発生を減少させる。

未洗浄燃料集合体残渣の圧縮減容は多少，内部表面を封鎖するので，残留燃料を除去するための表面除染を難しくしている。もし，混合廃棄物（ステンレス，インコネル，ジルカイト）が圧縮減容されれば，その圧縮物を分解することなしには，合金の将来の機械的分離はできないであろう。

ジルカロイ管の自己発火性は多量の熱吸収体の存在により減少するが，同時に，未洗浄圧縮物の熱伝導度の不足のため増加する。もし，圧縮の間に分裂が生じて，微粉が形成されれば，ジルカロイはもつと自己発火性を帯びることになる。洗浄されたハルは，冶金学的結合，熱放散及び表面積減少のため自己発火しにくくなるだろう。

7.2.4.6 技術の現状

金属の圧縮減容，偏平化及び稠密化プロセスは利用できる技術である。高照射燃料集合体

残渣に対するこれらプロセスのセル内における適用はまだ実証されていない。遠隔操作に適合する装置系の製作と実証のための研究開発が必要である。

7.2.5 溶融

溶融による稠密化は、せん断一浸出法による燃料ハル廃棄物の容量を約1/6ほど減少させる。溶融は低温るつぼプロセスと高温るつぼプロセスを用いて行なわれる。溶融プロセス中ではある程度の除染が行なわれる。ジルカロイ、ステンレス及びインコネルのトンオーダの量が十分に確立された溶融技術によって現在生成されている。これらの生成プロセスでは、初期の溶融物とともに多量のスクラップを規則的にリサイクルさせている。照射され、汚染した燃料ハルの溶融は更に実証されねばならない。

インゴットが貯蔵を目的としているか再使用されるかによって、ある程度分類が必要であろう。燃料チャンネルと端末部はるつぼの大きさと輸送装置に合わせるため切断される必要がある。直接の貯蔵については、燃料集合体残渣はざっと2つの部分に分類される。

つまり、1) 少量のステンレスとインコネルを含んだジルカロイと 2) 少量のジルカロイを含んだステンレス及びインコネルとに。

再使用については、1) ジルカロイ並びに 2) 少量のジルカロイを含んだステンレス及びインコネルの2つに分類することが必要であろう。

7.2.5.1 低温るつぼ溶融法

ジルコニウムは融点(～1850℃)における化学的活性が強いので、真空中か不活性雰囲気中で溶融されることを必要としている。通常のるつぼ材料は溶融したジルコニウムと激しく反応する。例えば、グラファイトるつぼで溶融したジルコニウムは過剰の炭素を含んでいる。それ故、低温るつぼ溶融プロセスはジルコニウムをつくる際に発展してきた。⁽¹⁷⁾ これらのプロセスは鉄、ニッケル及びコバルト合金の溶融にも用いられる。

多くの低温るつぼ溶融法が燃料集合体の金属廃棄物を固型化してインゴットをつくる際に利用できる。利用の可能性をめぐる選択は次の必要条件に対するプロセスの適合性に基づいている。

- ハルの固型化についての低温るつぼ溶融プロセスは1日8時間操業と仮定して、100～150kg(直径8～15cm)の固型物を生成することが必要である。一つのインゴットは電極調整段階なしに、ハル片から直接作られる。溶炉の能力はジルコニウムベースの物質の溶融を基準にするが、ステンレス、インコネル及びこれら3成分混合物の再溶融も考慮しておねばならない。

ホットセルスペースに対する必要条件は、高品質のジルコニウムができるように、溶

融中に酸素、水素及び窒素を取込まないようにするということである。

- 溶炉の供給装置にいくつかの溶融物のストックを準備できるような遠隔式の移送系及び重量測定系が考えられねばならない。
- トリチウム固定ができるように、たとえばホットジルコニウムのために、真空系に室が考慮されねばならない。
- クローズドループの気体雰囲気と冷却系が必要である。
- 溶炉準備、つまり、装荷、溶融、回収、洗浄及び保守操作は遠隔的にホットセルの床から行なわれる。最も重要な保守の対象が決められ、それについて洗浄、取りはずし及び交換の手順が研究されねばならない。操作の安全性と保守が設計のすべての段階で、まず第一に考慮されねばならない。操作員の誤りあるいは、装置の故障（またはその両者）の際、自動閉鎖を行なう機械的及び電気的なインターロック装置が取付けられるだろう。

低温るつぼ溶融法の技術は、燃料集合体残渣の稠密化に関連して、更に、上に記した選択基準⁽¹⁸⁾に関して評価されている。この評価の結論からは、もつとも有望なプロセスとして Inductoslag プロセスが選ばれた。

Inductoslag 溶融法 (Fig.7.7)

これは Oregon 州, Albang にあるアメリカ鉱山局が開発したもので、⁽¹⁹⁾ 分割した水冷却系のある銅製るつぼによる誘導溶融から成立っている。この系は反応性の強い金属スラップの溶融について開発されたもので、チタンとかジルコニウムのような物質の溶融に適用するにはフッ化カルシウムのような高純度のスラグの使用を必要としている。現在までこの装置は出力 100 kw で径 13 cm, 長さ 107 cm のインゴットをつくってきた。多分、大きな問題をなしにスケールアップできると思われる。今日まで、溶融は、炉室を真空にするかまたはヘリウムもしくはアルゴンで絶対圧で 240 mm Hg まで満たして行なわれてきた。

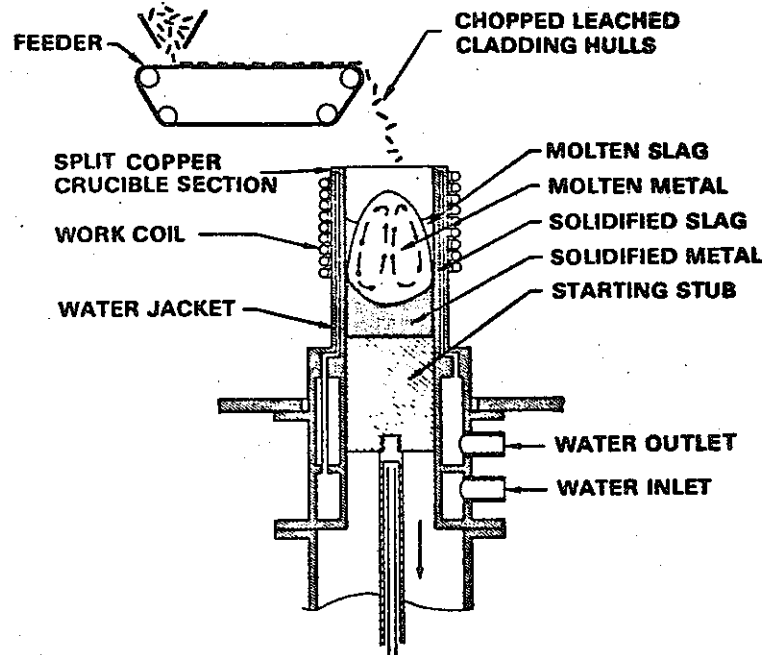


FIGURE 7.7. Inductoslag Melting Process⁽²⁰⁾

Inductoslag プロセスは模擬ハル（せん断—浸出法でできる）を用いた実験的溶融で実証されている。⁽²⁾ きれいな未照射の Zr-4 製被ふく管が 2.5 cm の長さのせん断され、41 kg 径 10 cm のインゴットに溶融された。このインゴットは被ふく管用として化学的及び硬度について原子力用仕様の範囲内にある。このインゴットの一部で製作した被ふく管は充分 ASTM の腐食試験基準に合格している。⁽⁴⁾

Inductoslag プロセスはせん断された未照射の等級 CF3 (SUS 304 の鑄造度) の燃料末端部もまたインコネル 718 のせん断片も同様に、充分溶融した。⁽⁴⁾ これらの物質は再製造へ回すかまたは貯蔵にもよく適合しているように見える。85 wt % の Zr-4, 10 wt % SUS 304 及び 5 wt % インコネル 718 のインゴットの Inductoslag 溶融は貯蔵に適したインゴットをつかった。このインゴットは共融混合物中に未溶融の Zr-4, SUS 304 及びインコネル 718 を含んでいる。⁽¹⁾

このプロセスはせん断された等級 CF3 の燃料末端部 67 wt % とインコネル 718 のせん断 33 wt % のインゴットをつかった。このインゴットは溶融した等級 CF3 とインコネル 718 の混合物中にいくらかの未溶融物質（等級 CF3）を含んでいる。⁽⁴⁾

この溶融系は主にくつぼの設計と配置のため複雑となっている。このくつぼが他の冷壁るくつぼよりも複雑であり、たぶんもろいにもかかわらず、複雑な電極及び電極支持系（もしくはどちらか一方）を必要としない。Inductoslag 溶融系の利点は飛沫の最小なきれいな溶融

にある。この装置は物質供給部が大きい、一回の溶融に生成するインゴットは高純度の品質をもっている。

この系の欠点は生成速度が比較的遅いということ並びにスラッグ取扱い及びリサイクルに関連する問題があることである。更に、時々、供給物の大きさと密度に関連した 'bridging' の問題が発生する。しかしながら、'bridging' の問題は必要ならば追加の加熱源を設けることで最小になる。

7.2.5.2 高温るつぼ溶融法

この溶融法の調査には二つの高温るつぼ溶融プロセスが含まれる。それは、特別な場合には利用できるグラファイトるつぼ溶融法と調査の完璧さを期するために述べておくだけのセラミック高温るつぼ溶融法とである。

セラミックスるつぼ溶融法

ステンレス及びインコネルまたはそれらの混合物の通常の誘導溶融は空気中か真空中で行なわれる。この種の溶融技術は充分確立している。セラミックるつぼ（通常MgO）が用いられる場合、その寿命は、それがコイルの外部絶縁体の中にかいかに埋められるかによる。このタイプの溶融法をハルに適用する場合、遠隔での溶炉交換の問題があり、またセラミック絶縁体とるつぼの2次廃棄物が生まれる。ジルコニウムは、このプロセスでは、るつぼ及び空気との激しい反応のため溶融できない。10 wt %以上のジルコニウムを含むステンレス及びインコネルまたはこれらの混合物は溶炉の寿命に有害な影響を及ぼす。

グラファイトるつぼ溶融法

初期のジルコニウム溶融はグラファイトるつぼで行なわれた。⁽¹⁷⁾ るつぼ反応はジルコニウム中に 3000 ppm の範囲で炭素溶込みを生ずる。るつぼへのダメージは広汎なものではなく、多くの再溶融物が同じるつぼでつくられる。グラファイトの熱強度とそれの熱衝撃に対する相対的な免疫度は、交換性の内張りをもつるつぼを使うことを可能にしており、それにより、るつぼ交換が単純化される。ステンレス及びインコネルまたはこれら混合物のグラファイトるつぼの溶融は鉄及びクロムカーバイドの生成のため非常に激しいるつぼ反応を生ずる。

鉄、クロム及びニッケルはそれぞれ約 85 wt % のジルコニウム組成で低共融点の混合物を形成する。実験によると、⁽²¹⁾ 85 wt % の Zr-2 と 15 wt % の SUS 316 のかたまりは約 925 °C で溶始め、約 1100 °C では完全に溶ける。85 wt % の Zr-2, 10 wt % の SUS 304 及び 5 wt % のインコネル 718 の 10 kg のインゴットはグラファイトるつぼで溶融され、1300 °C でグラファイト鑄型に注がれた⁽²²⁾ きれいなせん断片が装荷物質として用いられ、溶融中の真空度は 5 μm 以下であった。インゴット中への炭素吸収は検出されないほどで、⁽³⁾ るつぼ反応は

非常にわずかであり、るつぼは再使用が可能であることを示している。

グラファイトるつぼでの熔融はハル熔融に対していくつかの利点を与えている；

- a) せん断一浸出法からのハルのジルカロイ組成は都合よく、共融混合物組成と近い。
- b) 共融混合物組成で熔融するということは、ジルコニウムの融点 $\sim 1850^{\circ}\text{C}$ のような非常に高い温度での熔融を必要としないことである。
- c) 低温度での熔融は炭素吸収を減少させ、るつぼの寿命を延ばす。
- d) 容易に交換しやすいるつぼの内張りが用いられる。
- e) 使用済みのるつぼは廃棄物を減少させるため、灰にもやされる。

また、欠点は；

- a) るつぼの寿命は低温るつぼ熔融法に比べて恐らく短い。
- b) インゴットの再使用は不可能であろう。
- c) バックアップるつぼとコイル群の保守が必要である。

7.2.5.3 熔融金属精製プロセス

ジルカロイ、ステンレス及びインコネル中に不純物として元来含まれている少量のウラン及びトリウムは照射を受け超ウラン核種に変換され、金属中に分布しているので、表面除染の適用はきかない。加うるに、燃料表面を汚染している少量の超ウラン核種が、熔融の際、熔融物と混合する。熔融金属精製プロセスは、熔融物に含まれる微量の超ウラン核種を減少させる可能性をもっている。

熔融金属精製プロセスは工業的に確立しているが、その技術のほとんどは熔融ハル除染に直接適用できない。最近の調査²³によると、銅とか他の金属からウランを除去することについて、ハル熔融物、特にステンレス及びインコネルでは若干の除染係数(DF)が得られうるということを示している。熔融金属を精製するための基本的な方法には、吸着、スラッグ抽出、蒸発および沈殿がある。これら技術の多くは除去すべき不純物の酸化状態の変化を含んでいる。金属は未酸化状態にあるので、母金属にあまり影響を与えずに、不純物は酸化されなければならない。超ウラン核種はほとんど正電価をもつもので、ハル廃棄物中で酸化されうる。ジルコニウムの電気化学的性質は超ウラン核種のそれに近いが、それは、不純物がジルコニウム中では選択的に酸化されるということが非常に難しいということの意味している。

スラッグ抽出法

不純物のスラッグ又は溶剤への抽出は、その不純物が金属には不溶で、溶剤には可溶な塩へ変換するかどうかによっている。金属と溶剤との間の不純物の分配は、金属中及びスラッグ中の不純物原子の自由エネルギーによって、しばしば予想することができる。溶剤と熔融

物との間の平衡の確立するためには、溶剤が非常に純粋であるか（抽出さるべき不純物に対応して）、または、分配が溶剤側に非常にかたよっていることが必要である。金属ジルコニウム中の 10 ppb オーダのプルトニウムの約 1 ppb への減少は非常に高純度の溶剤を必要とする。この溶剤は電解抽出法または不純物揮発法によって精製される。置換反応による溶剤中の不純物制御は一般的に非常に多くの廃棄物を発生する。

ハル廃棄物から超ウラン核種を抽出するためにスラッグや溶剤を使用することは、深刻な腐食問題を避けるため適当なコンテナを必要とする。ステンレスまニッケル合金は一般的に酸化性スラッグと共に酸化物るつぼ中で溶融される。両方の物質とも、るつぼ材料として働く固まった金属または溶剤を使用するるつぼ溶融プロセスで溶融される。ジルカロイ、ステンレス及びインコネルのような合金はグラファイトるつぼ中で溶融できる。一般的に、すべての溶融プロセスは減圧下の不活性気体雰囲気中で行なわれる。

溶融プロセスによる合金の超ウラン核種除染は現在までのところ確立されたものではない。ジルカロイの場合、自由エネルギーの考察、ステンレスからのウラン除去及び除去さるべき不純物である超ウラン核種の極端に低いレベルなどからせいぜい除染係数は 10 が期待されるだけである。ステンレスはより容易に除染され、除染係数は 10^3 が得られよう。

固体表面への吸着

溶融金属中にるつぼ壁のような高表面積固体が存在すると、それは直接にまたは化学反応後に不純分原子を吸着する。このタイプの精製法は、除去さるべき不純物が極端に低レベルなので、ハル溶融の場合に見込のある方法である。吸着は固体表面をすぐ飽和するので、除去さるべき不純物が多量の場合は適用できない。

吸着剤として作用する固体表面は、溶融金属に対して耐えるものでなければならない。ジルコニウムに対しては、グラファイト及び恐らく Y_2O_3 を除く他のいかなるものも除外される。ステンレスは多くの酸化物とよく適合する。ジルコニウム-ステンレス-インコネル合金は、溶融温度の低さのため（ $\sim 1100^\circ C$ ）、ジルコニウムの場合よりも多くのるつぼ材料と適合する。ウラン溶融後のグラファイトるつぼはかなりの放射性崩壊生成物の濃縮物を含むということが観察された。ハル溶融物からある種の放射性同位体がるつぼ壁面または壁内に集められるということは充分考えることである。

この方法による除染はほとんど研究されていないので、予測することは非常に難しい。もし、溶融金属には安定で、超ウラン核種には特有な性質を示す吸着剤が発見されれば、非常に高い除染係数が得られるであろう。

蒸発除染法

除染法の一つとして、溶融金属からの不純物の揮発はヨウ素とかトリチウムのような原子

に対してはよく知られた方法である。超ウラン核種はすべて非揮発性なので、それらをより揮発的な化合物に変換させることが必要である。フッ化物として超ウラン核種を揮発性にさせるのを助ける溶剤が選ばれる。

低レベルの超ウラン核種不純物に対して応用できるデータはない。最近計画されている分配に関する研究は塩及び金属相との間の分配係数と同時に揮発性も測定するであろう。

不純物の沈でん法

凝集剤の添加による超ウラン核種不純物の溶融物からの除去は研究されていない。グラフアイトるつぼでのジルカロイ溶融の場合に、るつぼ相互作用により、ジルコニウムカーバイドのような不溶化合物が生成される。予想されるたいへん少量の沈でん物は金属から抽出するためある種の担体の使用を必要とする。

ゾーン精製及び溶離

浅い溶融池をもつ低温るつぼ溶融プロセスではゾーン精製によい条件がある。液体に可溶で、固体に不溶な不純物は液相に蓄積する傾向があり、インゴットの先端に集中する。液体に不溶な低密度の不純物はインゴットの先端に移動する傾向がある。

溶融金属除染の現状

ステンレス、銅、アルミ及びニッケルからの不純物ウランの除去は大量の溶融物で研究されてきた。最終純度は、これら除染の結果、最初の物質の数倍のオーダーに上る。EBR-Ⅱでの溶融金属除染及び初期の燃料精製研究では、かなりのDFを得たが、それはppbオーダーではなく、百分率程度の不純物に対してであった。Inductoslag 溶融法ではDF=10を得ることが可能であろうが、関心のまとである超ウラン核種濃度レベルに適用できるデータはない。

7.2.5.4 金属再生プロセス

きれいで完全に分離している物質から溶融したインゴットは再使用に適している。インゴットから使用できる形への加工は鍛造、押出し、圧延、型入れ、引抜き、機械加工及び溶接のような種々の通常の金属再生プロセスを伴っている。製造ルートを選択は完成品の設計により決まる。金属再生工具の価格のため、再使用は単純な形の物に制限される。単独の鍛造とか押出し操作によってできる形が考えられている。貯蔵プールまたは再処理プラントでは腕木、バスケット、ハンドル、付加物、攪拌機、台座及び単純なコンテナなどへの利用が考えられる。照射され、再処理されたすべての金属廃棄物は放射性である。適用の際はこの事実を反映しなければならない。(18.3節参照)

7.2.5.5 廃棄物プロセス間の相互作用

金属廃棄物の大きさとるつぼ及びその供給系の大きさは、両立するものでなければならな

い。廃棄物は遠隔的に移送系を通して、貯蔵ホッパから供給され、るつぼ内へ落とされる。ホッパ、移送系及びるつぼにおけるゴリッジ現象は避けねばならない。供給量はるつぼを傷つけないものでなければならない。現在考えられているるつぼの大きさでは端末部、スペーサ及びチャンネルボックス等は更に大きさを減少させる必要がある。

ハルの表面状態は熔融系の操作と選択に大きな影響を及ぼす。比表面積の大きいハルは熔融物の汚染を非常に増し、熔融操作の際、脱気の制御の必要度を増加させる。酸化膜、クラッド、吸着ガス、及び他のごみは、冷たい材料が熔融プールに入れられた時、爆発や飛散を引きおこし、るつぼの洗浄を複雑にする。アーク制御は誘電性のコーティングをした物質では難しい。スラッキング操作はもつとも重要なものとなり、たぶんスラッグと金属との比はかなり増加し、それ故、廃棄物量は増加するであろう。共融混合物熔融は、酸化膜により拡散障壁ができるため、融点を下げるのに有効とはならないであろう。未洗浄ハルから熔融した物質の再使用はできない。ハルが除染を目的としてすでに洗浄されていなければ、ハルの表面処理が熔融の前に必要であろう。

熔融はハル廃棄物の容量を1/6ほど減少させる。直径10~15 cm、重量50~100kgのインゴットがつくられることが予想される。インゴットの大きさはホットセル設計、梱包、移送及び貯蔵の際提起される制限内で変化されうる。

自己発火性はインゴットの場合、問題とはならない。浸出性などの性質は、熔融の前に材料が洗浄されているか分類されているかに、ある程度依存する。その性質は、また、高温るつぼ熔融法か低温るつぼ熔融法かで異なる。表面洗浄され、完全に分離している材料の浸出性などの性質は処理前の合金とほとんど同じである。たとえば、浸出性は無視できる。

少量の他のほとんどの金属材料は熔融中にジルカロイ、ステンレス及びインコネルと混合する。かなり離れている融点と高い蒸気圧の材料については問題があるだろう。

非金属は分解とかガス状生成物のはげしい放出により、熔融プロセスを妨害する。耐火材料がインゴット中の含有物となることがある。その他の材料もインゴットの性質に影響を与えるだろう。

7.2.5.6 技術の現状

ジルカロイ、ステンレス及びインコネルの熔融技術は存在する。この技術はせん断-浸出方式の被ふくハルの熔融に安全に適用できるということが実証されている。Inductoslag 熔融法は再使用もしくは貯蔵または両者にとって適当な品質のインゴットをつくる。ジルカロイ、ステンレス及びインコネルの混合物は、グラファイトるつぼ内で、実質的にるつぼ内に装荷した各成分の融点以下の温度で熔融される。更に開発的努力が必要な箇所は次の通りである。

1. 再使用に必要な純度の製品をつくれるほどの完全な分類手順
2. 供給物質基準に合うような寸法減少プロセスの開発
3. ハル溶融に必要な最小表面処理の決定
4. 溶融プロセスの超ウラン核種除去に与える影響の決定
5. スラッグ処理とリサイクル手順の開発
6. 遠隔操作による溶融装置の信頼性の実証
7. 照射後のせん断-浸出方式ハルの溶融の実証

7.2.6 硫酸-硝酸混液による溶解

被ふくハルを溶解するのに、濃縮した硫酸-硝酸混液を使用することが実験室規模で研究されている。その混酸溶液はよく制御された反応で適当な浸透速度でジルカロイ被ふくを溶解するが、インコネルとかステンレスは溶解しない。

7.2.6.1 溶解プロセス

溶解プロセスでは、ジルカロイ被ふくと硝酸が150~250℃の濃硫酸槽に加えられる。ジルカロイ金属は硫酸-硝酸混液に容易に溶け、その溶解速度は150℃で79 mils/hr (1400 $\text{mg/cm}^2/\text{hr}$) の高速度である。ジルコニウム酸化膜への浸透は初期導入期間後、すぐ達成される。この系におけるステンレスとインコネルの溶解は比較的ゆっくりであり、溶解速度はステンレス、インコネルそれぞれ0.7 mils/hr (12.9 $\text{mg/cm}^2/\text{hr}$)、0.1 mils/hr (1.4 $\text{mg/cm}^2/\text{hr}$) である。

被ふく管の硫酸-硝酸混液溶解プロセスの概念はFig 7.8 に示されている。燃料集合体残渣はそれぞれの成分に分けられ、ジルカロイは150℃の硫酸-硝酸混液の軟鋼槽に入れられる。ジルカロイは熱酸に溶け、水に可溶な硫酸ジルコニウムになる。その後、混合物は過剰酸を蒸発するため、250~350℃に加熱される。硫酸ジルコニウムは軟鋼製の槽に残り、同槽内で移送もしくは貯蔵または両者のための準備がなされる。ジルコニウム塩は後の再生に利用され、その時まで、多くの量が最終の処分のため蓄積される。廃棄物に残る超ウラン核種は浸出性の硫酸塩に変わるので、過剰硫酸の蒸発の前か後での硫酸塩の硝酸浸出はプルトニウムとジルコニウムをイオン形に変換する。そしてそれらは通常のイオン交換または溶媒抽出技術を用いて分離される。

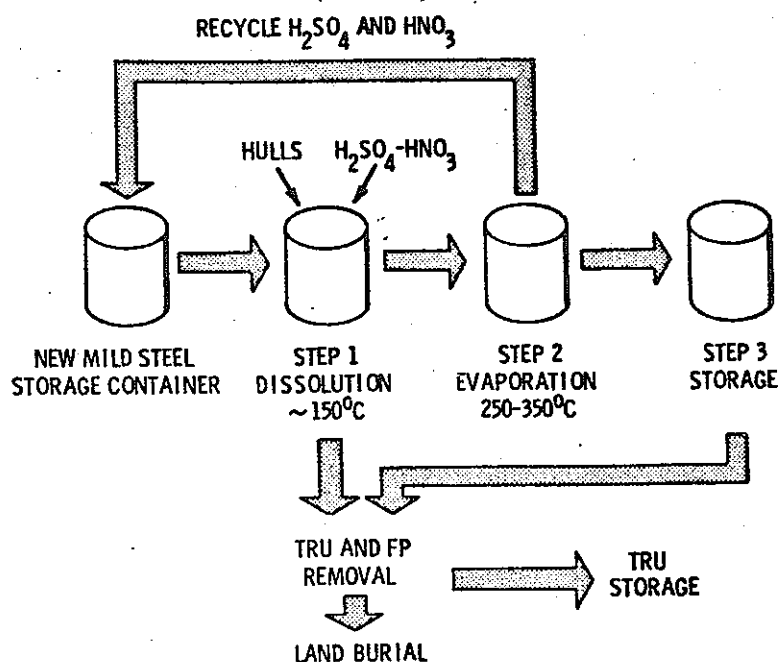


FIGURE 7.8. Conceptual Process for Zirconium Hulls

7.2.6.2 廃棄物—プロセス相互作用

このプロセスは、鉄—クロム—ニッケル合金を溶解しない。それ故、これらは全体の廃棄物から分離されるか、または、硫酸ジルコニウム塩もしくはその溶液で処理されねばならない。

ジルカロイの硫酸—硝酸混液溶解から生ずるプロダクトは水に可溶な硫酸ジルコニウムである。乾燥させた硫酸ジルコニウムの示差熱分析 (DTA) は、それが空气中で 800°C に加熱された時、不活性になることを示している。硫酸ジルコニウムの酸化物への変換はまだ研究されていないが、たぶん他の不活性形 (たとえばセメント) に変換できるだろう。混酸液もしくはその蒸気とジルコニウム微粉及びジルカロイハルとの反応速度は測定されている。ジルカロイの硫酸ジルコニウムに対する体積比は約 1 である。

7.2.6.3 技術の現状

ジルカロイ被ふくの硫酸—硝酸混液溶解は概念的な段階にあり、まだ実用的ではない。このプロセスについての最近の研究はない。予備実験データは以下のことを示している。つまり、ジルカロイの急激で完全な溶解は硝酸オキシダントを含む熱濃硫酸 (150~250°C) 中に行なわれ、水に可溶な塩を生成し、その塩は処分される。溶解速度は充分速く被ふくに急激に浸透していく。生ずる残留物は過剰酸の蒸発により、溶解槽中の酸から容易に分離される。超ウラン核種は硝酸浸出性の硫酸物に変換され、回収して利用できる。硫酸ジルコニウム残渣もまた硝酸に可溶であり、洗浄して HLW 吸収剤として利用できる。

7.2.7 フッ化物水溶液による溶解

燃料集合体残渣をフッ化物で溶解する方法は、主としてジルコニウム合金の溶解プロセスである。このプロセスではステンレス鋼が相当の速さで腐食されるが、ステンレス鋼の溶解プロセスではない。インコネルはさらに腐食されないと考えられるので、ステンレス鋼とインコネルは溶解槽中に残留すると思われる。

7.2.7.1 溶解

ジルカロイ被覆は、HFまたは NH_4F を用いた数種の化学プロセスで燃料から取り除かれている。次に概説するZirflex法はよく知られているプロセスの1つであるが、この方法はせん断一浸出溶解プロセスで生ずるジルカロイ残渣の溶解に適用できようし、また化学的な脱被覆に用いられている。^(24,25) 以下の議論は主に残渣の溶解についてすゝめる。

ジルカロイ被覆表面の酸化被膜は、Zirflex溶解剤によるジルカロイの溶解速度をいちぢるしく低下させる。酸化被膜はゆっくり溶解するが、局所的に被膜が貫通するとピittingとアンダーカットが生じて未酸化のジルコニウムが露出する。ジルカロイのせん断端は迅速に溶解されよう。通常のZirflex溶解操作では、酸化物の残留片は、次の処理または貯蔵工程へ移送中、溶液中に懸濁すると考えられる。Zirflex溶解剤中における ZrO_2 の溶解速度は研究されていない。

沸点にあるZirflex溶解剤($6\text{ M NH}_4\text{F} - 0.5\text{ M NH}_4\text{NO}_3$)は300シリーズのステンレス鋼をかなり腐食させる(腐食速度は $20 \sim 30\text{ mm}$)が、ジルカロイの溶解中はアンモニアが発生するため、その腐食性は低下する。

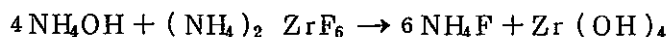
HanfordのPurex法再処理工場では、Zirflex脱被覆法を用いて、N原子炉のジルカロイ被覆燃料の再処理に成功している。この場合、 $\text{NH}_4\text{F} - \text{NH}_4\text{NO}_3$ 溶液による脱被覆と硝酸による燃料の溶解には同じステンレス鋼(300L)溶解槽が用いられた。脱被覆操作では金属燃料コア表面はフッ素イオンと反応して不溶性の UF_4 を生成する。従って、コア溶解ではコア溶解溶液に $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ を添加してフッ化物を錯化し、溶解系の腐食性を抑えなければならない。同じ溶解槽で脱被覆とコア溶解を行うと、分離施設全体がフッ素で汚染されることを見逃してはならない。Zirflex法は、HanfordのPurex法再処理工場でのみ生産規模で用いられている。

Zirflex法による被覆ハルの溶解は、下記の4項目の理由から、燃料の溶解槽とは別の比較的安価なステンレス鋼製溶解槽で行うのが最善であろう。すなわち、1) 再処理施設全般のフッ化による汚染が防止されること、2) 溶解槽の処理能力が低下しないこと、3) 大形で高価な燃料用溶解槽がいちぢるしく腐食される可能性がなくなること、4) 残留ヒール溶解ができるために平均溶解速度が高くなり、また溶解槽の腐食がへることの4項目である。

この概念によれば、他の材質の溶解槽も使用できる。例えば、 ZrO_2 を100%溶解することが必要と考えられる場合には、モネル製溶解槽を用いてHFで溶解できよう。

被覆と残留する燃料が完全に溶解すれば、溶媒またはイオン交換法を用いた超ウラン元素の抽出プロセスに発展しよう。

Zirflex法でジルカロイを溶解する場合、フッ化アンモニウムのリサイクルによつて、最終の廃棄物容量が低減できそうなことに注目する必要がある。フッ化ジルコン酸アンモニウムのリサイクルによつて、最終の廃棄物容量が低減できそうなことに注目する必要がある。フッ化ジルコン酸アンモニウム溶液にアンモニアを添加すれば、フッ化アンモニウムが生成すると同時に含水酸化ジルコニウムが沈澱することが報告されている。⁽²⁰⁾ この反応は次式によると思われる。



この通りであれば、この方法を用いて最終貯蔵に送られるフッ化物の容量をへらすことができよう。

7.2.7.2 廃棄物とプロセスの関連

発生する廃棄物については7.1節でのべた。溶解槽内での著積をさけるために、インコネル及びステンレス鋼を分離することが望ましい。廃棄物の貯蔵はこのプロセスではほとんど関係がない。

含水酸化ジルコニウムとジルカロイハルの容量比は0.6である。プロダクトは吸収性があるが不燃性である。加熱すれば水を失なって、不溶性で不活性な酸化ジルコニウムとなる。最初に生成するジルコン酸アンモニウムは可溶性であり、加熱するとアンモニアと多少のHFが揮発する。

ステンレス鋼は腐食されるが、インコネルは比較的变化しない。セラミック材と二酸化ジルコニウムは徐々に溶解されよう。

7.2.7.3 技術の現状

このプロセスをハルの溶解に適用するには、若干の確証とプロセスの開発が必要である。しかし、このプロセスは、HanfordとIdaho Fallsで、燃料の脱被覆のために工場規模で用いられている。ジルカロイの溶解技術は基本的には実用可能であるが、溶解した廃棄物の処理についてはさらに開発が必要であろう。

7.2.8 燃料集合体のジルコニウム残渣の揮発法

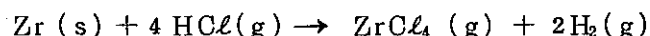
このプロセスでは、せん断一浸出溶解後のハルは、塩素化剤であるHClガスまたは溶融 $ZnCl_2$ で処理し、ハルと金属部材を分解して金属塩化物に交換する。この反応の生成物

の $ZrCl_4$ は揮発性であり、1次廃棄物を蒸留すれば他の大部分の成分から分離できる。この成分には、燃料の構造金属材料、FP及びアクチニドが含まれる。しかしながら、ジルカロイの合金成分であるスズ、若干の構造金属元素及び一部のFPの塩化物も揮発性であるので、 $ZrCl_4$ に随伴すると思われる。つぎに、熱加水分解反応によって、 $ZrCl_4$ は熱的にも化学的にも非常に安定な ZrO_2 に変換できる。大きい端末部を予め除去すれば、廃棄物を完全に塩化物に変換するに要する時間は短くなる。仕分けするかどうかは、塩化物プロダクトの純度及び放射能基準の選定によって決められよう。

7.2.8.1 HCl または $ZnCl_2$ 処理による $ZrCl_4$ ガスの生成

せん断-浸出溶解後の残渣は乾燥したのち塩素化処理されよう。HCl による塩素化は、多分不活性ガスとHClの混合物を用いて約400℃で行なわれると思われる。

このときの反応は次式で表わされる。

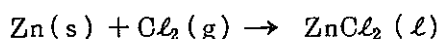


塩化水素処理が200Ni製の装置で行なわれている。⁽²⁷⁾ アルミナなどの不活性な粒状固体を用いた流動床またはオープンチューブ反応器で、反応させることができる。 $ZrCl_4$ を含むガスパロダクト流中に不揮発性固体が同伴すると、ジルコニウムプロダクトに含まれる超ウラン元素化合物のレベルが増加して好ましくなくなるおそれがある。同伴固体を除くために、ガスパロダクト流はろ過する。ガス流を焼結金属フィルタ及び適当な大きさの粒状アルミナ充填床を通せば、多分十分なる過効果がえられよう。⁽²⁷⁾

$ZnCl_2$ を用いて約500℃で塩素化すれば、HClの場合とは異なって、残留成分が分散しにくい媒体中に混和されるという利点がある。しかし、熔融した $ZnCl_2$ 液体から $ZrCl_4$ を定量的に揮発させるには多少の困難さが伴う。^(28,29) どちらの塩素化法においても、 $ZrCl_4$ が加水分解して ZnO_2 を生じ、これが捕集しようとする個所以外のところに析出しないようにするため、装置内を無水の状態に保つことが必要である。また、コンデンサ以外に $ZrCl_4$ が凝縮するのを防止するため、すべての装置内は350~400℃に保たねばならない。 $ZnCl_2$ との反応はタングステンるつぼを用いて不活性ガス雰囲気中に行なわれ、その反応は次式で表わされる。



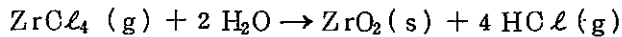
$ZnCl_2$ は次式の反応により再生されよう。



$ZnCl_2$ による塩素化に附随する問題は、適当な技術を開発して解決する必要がある。必要な技術には、ジルカロイ表面への亜鉛の析出による反応の防止法ならびに熔融 $ZnCl_2$ 液体中からの $ZrCl_4$ の定量的な蒸発法などがある。

7.2.8.2 ZrCl₄ の ZrO₂ への変換と HCl のリサイクル

ZrCl₄ の ZrO₂ への変換は、約 350 °C の蒸気中で熱分解によって行なわれようが、このときの反応は次式で表わされる。



同様な熱分解反応は、304 ステンレス 鋼製装置に粒状固体を装荷した流動床で行なわれている。⁽²⁷⁾ 流動床を用いれば熱伝導を効果的に促進させ、またサラサラした固体のプロダクトを生成させることができる。最終的な処分の方法に関係するが、他の固体が ZrO₂ に混入することを防止したい場合には、流動媒体に粒状の ZrO₂ を使用できる。

ZrCl₄ は HLW 用吸収剤製造プロセス (7.2.11) のフィードとしても用いられる。

7.2.8.3 廃棄物とプロセスの関連

廃棄物の性質は、このプロセスの基本的な反応 (例えば、塩化水素処理と熱加水分解)、または ZrO₂ として Zr を貯蔵する実用性に大きい影響を及ぼさないとと思われる。Zr をゼオライトとして利用するような場合は、Sn, Si, Ti, Nb 及び Al などの揮発性塩化物の金属不純物の影響を受ける可能性がある。HLW 吸収用に調製した ZrO₂ のイオン交換、特性、またはコンテナ製作用としての Zr 金属の展性に及ぼすこれら不純物の影響は、さらに調査しなければならない。

前段の貯蔵を考えた時、廃棄物の特性と最も深く関連するのは、揮発プロセスで回収された Zr の経時的な放射能の減衰であろう。燃料残渣に附随する放射能は詳細にまとめられており、^(2,5,6) その放射能の変化は Fig. 7.4 に示した。この図によると、このプロセスでの廃棄物の大部分を占める Zr の放射能は約 600 日で激減する。しかしながら、塩素化の残渣など廃棄物の小部分を占めるものの放射能のうち、Cr 及び Fe の放射能は 7×10^3 日で問題とならなくなるが、主として Ni と Co による全放射能は相当なレベルで残留する。

前段の貯蔵が、揮発プロセスの成果に化学的な影響を及ぼす可能性もある。処理に先立って燃料残渣は長期間高温多湿の条件で貯蔵される。生成した金属表面の酸化物被膜は、最初は HCl と被膜の下の Zr 金属との反応の障壁となると思われる。一方、金属と HCl の反応で生じた水素は、酸化物被膜と反応して装置内に水蒸気を生成させる。この水分は、ZrCl₄ が蒸留されて容器に捕集される前につぎつぎにその一部を加水分解し、物質移動上の問題となる。

7.2.8.4 技術の現状

この技術はまだ利用できない。他の Zr 合金を含めて、塩化水素処理及び熱分解に関する基本反応はパイロットプラント規模で実証されている。⁽²⁷⁾ 特にジルカロイに関する開発研究は、非放射性のジルカロイの塩化水素処理を含めて ANL で実験規模で試験されている。^(28,29)

このプロセスをさらに開発するかどうかは、塩化水素化反応によるZrと超ウラン元素との分離に関する実験室試験の結果で決められよう。

7.2.9 HF-O₂による酸化

被覆廃棄物の他の処理方法として、Zrとステンレス鋼を燃焼して酸化物とするものがある。生じた酸化物は、コンパクトで放射能が固定されるガラスなどに変換して貯蔵できる。この方法で重要な技術的事項について以下に述べる。

被覆廃棄物の成分であるジルカロイとステンレス鋼とは、HFガスを混合した500～600℃のO₂中で燃えて酸化物となる。高温におけるインコネルのHF-O₂混合ガスに対する挙動は明らかでないが、そのNi及びCr含有量が高いので、HF-O₂ガスでインコネルがいちぢるしく腐食されるとは考えられない。大型のステンレス鋼及びインコネルの付属部品は、酸化処理する前に他の被覆廃棄物から機械的に分離できる。この種の予備的分離は、次段階の流動床中でのHF-O₂処理において大型の金属片の取扱いに附随して生ずるトラブルを防止する上で望ましい。

7.2.9.1 高温の酸素または空気中での処理

照射したジルカロイ被覆残渣及び微粉またはいずれか一方を、空気中またはO₂中で燃やした経験は報告されていない。未照射の各種のジルカロイ材料を用いた最近の試験結果⁽⁷⁾によると、粒子の大きさによっては、微粉はマッチなどの比較的小さいエネルギー源で発火させ得ることが判明した。被覆を模擬した管状断片は、ガス-酸素トーチで1600℃に加熱しても発火できなかった。この経験は初期の報告結果⁽³⁰⁾と対比される。初期の試験では、サンプルを連続的に振動させて酸化物被膜を取り除く動的なシステム中で、大片の未照射ジルカロイは空気中1000℃で0.26 mg/cm²・min (40 mils/hr) の速度で燃えている。

被覆タイプのステンレス鋼は、大片のジルカロイよりも、高温の空気中では大きい酸化抵抗をもつと思われる。従って、ステンレス鋼被覆廃棄物を高温空気またはO₂で燃焼させる方法は、廃棄物が微粉の場合にしか適用できない。

7.2.9.2 HF接触酸化処理

ステンレス鋼とジルカロイの両者とも、30～65%のHFと70～30%のO₂を含む混合ガスに500～625℃で1～4時間接触させると均一で迅速しかも完全に酸化物に変換される。これらの被覆材の酸化については、動力炉燃料の乾式脱被覆及び処理法の開発・実証計画の一環として、米国⁽³¹⁻³³⁾とヨーロッパ⁽³⁴⁾で行なわれた実験室規模試験で成功裡に実証されている。

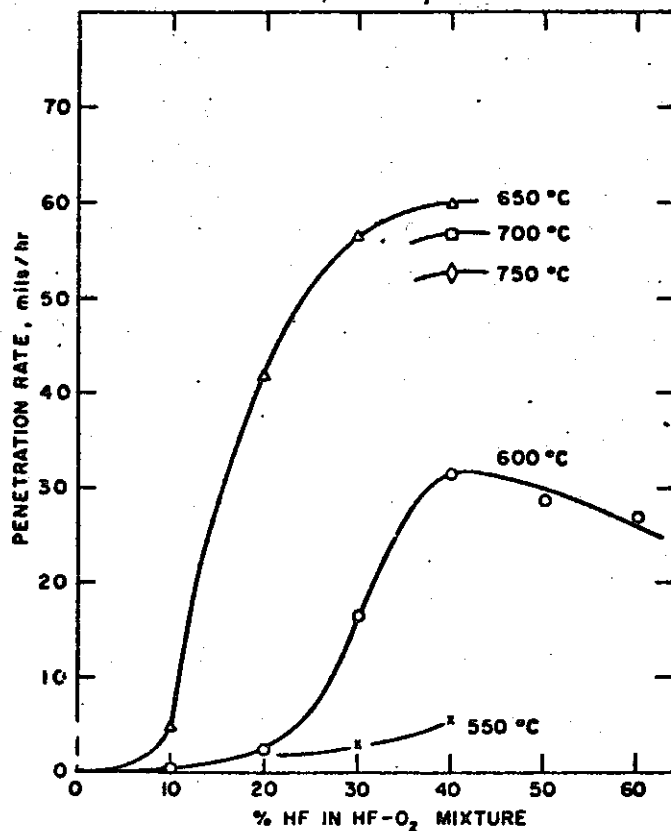


FIGURE 7.9. Reaction of Type 348 Stainless Steel with HF-O₂ Mixtures in a Fluidized Bed (31)

Brookhaven National Laboratoryでは、HF-O₂混合ガスによる348型ステンレス鋼の酸化速度に対する温度とガス組成の影響が、直径3.8~7.6 cmの流動床装置 (Fig. 7.9)を用いて測定されている。未照射のYankee炉の長さ38 cmの燃料棒の脱被覆についても実験されており、これらの燃料棒は焼結UO₂ペレットを含む外径0.86 cm肉厚0.053 cmの348型ステンレス鋼チューブで構成されている。40% HF-60% O₂の混合ガスを600°Cで作用させると、燃料棒は2時間以内に完全に分解した。各実験毎に流動床を点検した結果、ベッドにはFe₂O₃スケールとUの反応生成物 (U₃O₈, UO₂F₂及びUF₄)が含まれることが判明した。他の実験では、長さ30 cmのエンドプレート⁽³²⁾の断片9本よりなる模擬燃料集合体が、流動床内で40% HF-60% O₂混合ガスと625°Cで反応して完全に分解されている。

流動床内での未照射ジルカロイの酸化にHF-O₂混合ガスを適用できることが、1966年にOak Ridge National Laboratoryで行なわれた2つの試験⁽³²⁾で実証されている。用いられた模擬燃料集合体は、UO₂ペレット (外径0.95 cm, 長さ1.27 cm)を含むジルカロイ管 (外径

1.0 cm, 肉厚 0.07 cm, 長さ 30.5 cm) 4 本を中心から 1.33 cm 離して 2 × 2 の正方形配置にしたものであった。集合体は 304 型ステンレス鋼製スパーサ 2 個で、集合体の端部から 2.54 cm のところで保持された。2 つの実験で用いられた流動床の原料は、Alcoa T-60 アルミナ (-48 + 100 メッシュ) である。550 °C で 40% HF-60% O₂ を 1 時間流し、次に 20% HF-80% O₂ を 2 時間流せば、ジルカロイは容易に酸化されて ZrO₂ を生成した。2 つの実験での被覆残渣は主として ZrO₂ 粉末であったが、若干の ZrO₂ の大形片も見られた。

もちろん、HF-O₂ 混合ガスと照射したジルカロイ及びステンレス鋼との反応の研究はまだ行なわれていない。従って、被覆ハルに附随する放射性核種の酸化段階における動向に関する情報に欠けている。2, 3 の放射性核種は多分非揮発性酸化物に変換されると思われるが、他のもの(例えば U)は少くともその 1 部がフッ化物に変換される可能性があり、また若干のもの(例えば ¹³⁷Cs, ¹⁰⁶Ru, ³H)は揮発すると考えられる。従って、これらの揮発物質を捕集して最終的に処分するための対策が必要となる。

今日迄と報告されているすべての研究では、ステンレス鋼及びジルカロイ材料の HF-O₂ による酸化は、流動媒体としてアルミナを用いた流動床装置で行なわれている。酸化された被覆が不活性のアルミナと混合希釈されないようにすることが望ましいと思われる。ステンレス鋼及びインコネル製フィッティングを細分化しなすむようにするために、HF-O₂ 処理に先立ってこれらの大形金属片を仕分けして他の被覆材と分けることが望ましい。

7.2.9.3 廃棄物とプロセスとの関連

インコネルが HF-O₂ 混合ガスと反応しないこと、ならびに大形のジルカロイ及びステンレス鋼が高温空气中で反応しないことなどといった、被覆廃棄物を酸化物に変換するに当って重要な廃棄物の特性についてはすでに説明した。

HF-O₂ 酸化プロセスは、ジルカロイのハル及び細粉を ZrO₂ に変換することを意図している。(細粉だけのときは空气中で燃やせる。) 1 l の Zr 残渣は理論的には 0.25 l の ZrO₂ を生ずる。

HF-O₂ 酸化プロセスは、エンドフィッティングを含むすべてのステンレス鋼被覆材をうまく酸化物に変換すると思われる。大形のエンドフィッティングの細片化は、流動床装置内での酸化を促進するためには望ましい。1 l のステンレス鋼残渣は理論的には 0.29 l の Fe, Ni 及び Cr の酸化物を生ずる。インコネルは比較的に影響を受けないと思われる。

7.2.9.4 技術の現状

この技術は現在では利用できない。ジルカロイ及びステンレス鋼コンポーネントの HF-O₂ による酸化、酸化によって生ずる酸化物のガラス化を含む被覆廃棄物管理計画は、大部分が概念的な開発の状態である。しかしながら、非常に限られた個々の調査研究に基づいて見れ

は、酸化-ガラス化プロセスなどは、被覆廃棄物を貯蔵しやすい形状に直接的で確実に変換するたみの技術的に可能性のある方法であると思われる。酸化-ガラス化プロセスが経済的に有望な方法かどうかをさらに検討すをためには、照射済み及び模擬の被覆廃棄物を用いて、実験室及びパイロットプラントで主要なプロセス要因について試験しなければならない。

7.2.10 酸化物のガラスへの変換

Zr 及び Fe-Cr-Ni 系合金の酸化物は共に不活性で熱力学的にも安定であり、適当な最終貯蔵形とも思われる。酸化物貯蔵の1つの難点は、その表面積が大きくて溶液が浸出する可能性があることである。酸化物を一体物のガラスに変換して放射性核種(特にアクチニド)を浸出しにくくする方法は、廃棄物の容量が増加するが1つの対案である。

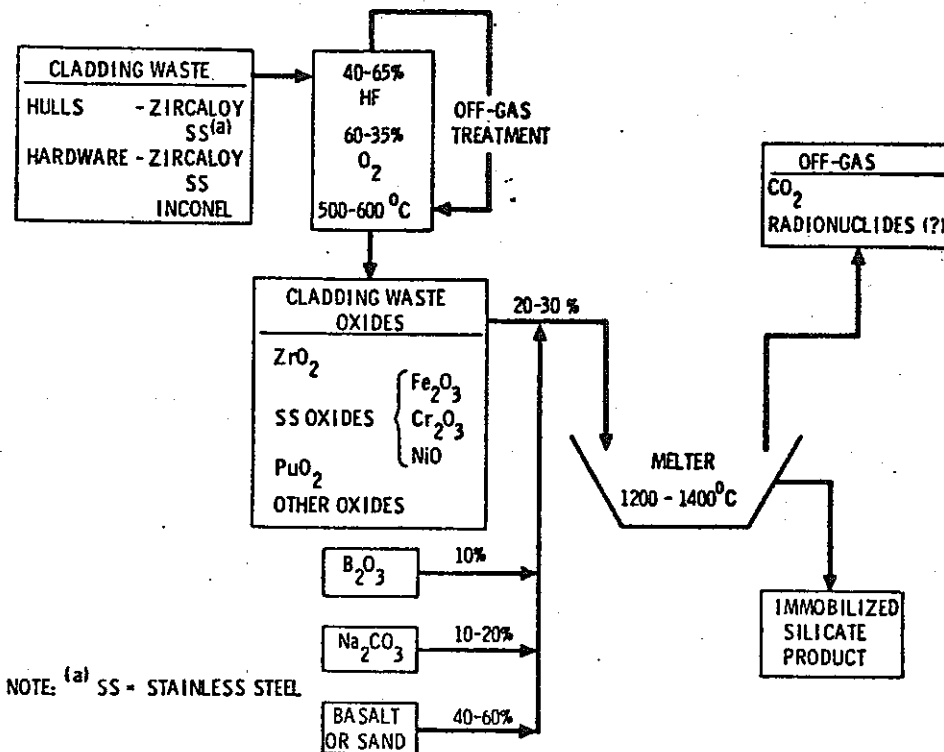


FIGURE 7.10. Conceptual Process for Conversion of Cladding Wastes to Silicate Glasses(35)

Schulz, Dressen 及び Hobbick⁽³⁵⁾ は、被覆材酸化物 (HF-O₂ 処理の生成物) を珪酸塩ガラスに変換する調査研究について報告している。彼等の考えた概念的なガラス化法 (Fig. 7.10) では、被覆酸化物は砂 (または玄武岩)、Na₂CO₃ 及び B₂O₃ の適量と混合して 1200~1400 °C で熔融され、緻密で堅固な珪酸塩プロダクトとなる。

ZrO₂ 10~15wt % と砂 38~60wt % を含有する混合物またはステンレス鋼酸化物 10~20 wt % と砂 (または玄武岩) 50~60wt % を含有する混合物を、1200~1400 °C で 1 時間熔融するとガラスが生成する。ZrO₂ 10~30wt % と玄武岩 40~60wt % を含有する混合物を、1200~1400 °C で熔融すると若干の ZrO₂ 結晶を含むガラス類似の物質となる。同様に、ステンレス鋼酸化物 30~50wt % と玄武岩 (または砂) 30~40wt % を含有する混合物を 1200~1400 °C で熔融すると、若干の未確認の結晶物質を含むガラス状の珪酸塩となる。Schulz 等⁽³⁵⁾ が調整した珪酸塩プロダクトは、原料の一部に照射したジルカイト及び 304L 型と 316 型ステンレス鋼酸化物が含まれているが、その性質の如何にかかわらずすべて水中での溶出性が非常に低く、25 °C の脱イオン水中での浸出率は 10⁻⁸~10⁻⁵g/cm²/日であった。

FP 酸化物のガラス化プロセスの詳細は第 6 章にのべた。

7.2.11 ジルコニウムの HLW 吸収剤への変換

Zr で HLW 吸収剤を調製するプロセスは広範には調査されていないが、これに関して現在 Sandia⁽³⁶⁾ で探究中である。水和ジルコニウム酸化物が HLW イオンを吸着固定して溶出を最小にする能力は、まだ殆んど確認されていない。もちろん、吸収剤を生成するプロセスは、吸収剤が具備すべき特性にもとずいて選定しなければねなねいと思われる。ジルコニウム化合物 (例えば、硫酸塩、フッ化物及び塩化物) をつくるプロセスの多くが適切な特性の吸収剤の製造に利用できそうなことは推定できるが、これはまだ確認されていない。HLW 吸収剤の製造プロセスの 1 提案を Fig. 7.11 に示す。

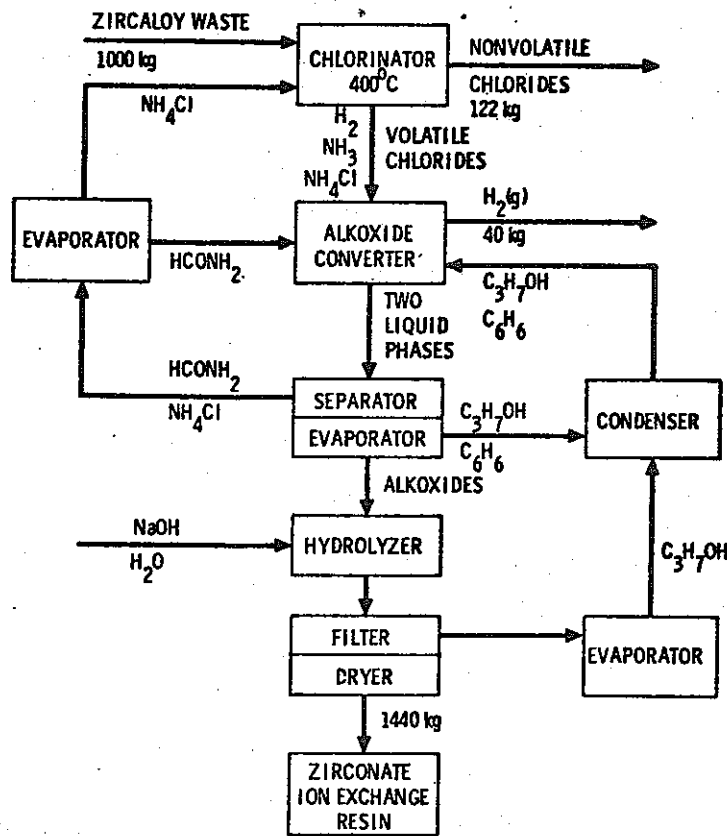


FIGURE 7.11. Zircaloy Conversion Process

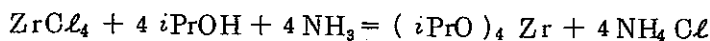
基本となる仕分け方法はすでに 7.2.1 に述べた。揮発性の塩化物を生成する若干の元素は Zr 吸収剤の特性の妨げとなる可能性があるため、Zr を揮発させる前に機械的に取り除く必要がある。反応しない物質または不揮発性の塩化物を生ずる物質は、反応室から定期的に除去されよう。

7.2.11.1 ジルコニウムの揮発

同様なプロセスは 7.2.8 に述べたので、これを参照されたい。数種の塩素化剤を用いて Zr Sn などの揮発性金属塩化物をつくることできるが、 HCl ^(39,40) に比較して反応熱が低くしかも調節が容易なため、このフローダイアグラムでは NH_4Cl の利用が考えられている。^(37,38)

7.2.11.2 アルコキシドへの変換

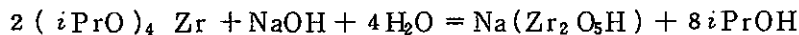
揮発性の塩化物は蒸留してイソプロピルアルコール (iPrOH) 中に導かれ、ここで NH_3 の共存下の反応でイソプロポキシド (isopropoxide) が生成される。^(41~43) Zr の場合の反応は次式で表わされる。



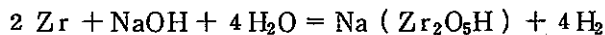
NH_4Cl 固体は反応で再生されると考えられるが、 NH_3 共存下ではアルコール溶液によくとける筈⁽⁴³⁾である。しかし、この系にベンゼンを加えると NH_4Cl の溶解度が限定されるので、 NH_4Cl はホルムアミド(HCONH_2)に溶解して、⁽⁴³⁾アルコキシド(alkoxide)コンバータから効果的に取り除くことができる。最後にえられるホルムアミド/ NH_4Cl 溶液はアルコキシド/ベンゼン溶液とまざり合わない。第2の液相としてホルムアミドを用いれば、 NH_4Cl を取り除いてリサイクルするために必要と考えられる高価で厄介な大規模ろ過プロセスが不要となる。

7.2.11.3 HLW吸収剤の生成

テトライソプロピル・ジルコニウム及びその他のアルコキシド不純物は揮発性の溶媒から容易に回収され、すで実証されている方法を利用した加水分解でイオン交換物質に変換されよう。Zrの場合の加水分解反応は次式で表わされる。



遊離したイソプロピルアルコールは回収してリサイクルできよう。反応全体をまとめると次式のようになる。



その他のプロダクトは、塩素化コンバータ中に残留する不揮発性塩化物のみと考えられる。原理的に、すべての試薬がリサイクルされるので、問題となるような新しい廃棄物流は生じない。実際には、多少のロスが生ずると考えられ、その結果若干の廃棄物流が生ずる。

HLW放射能及び前段で生じた不揮発性塩化物廃棄物の吸収は可能と思われる。イオンの固定及びプロセス特有の問題は文献36にのべられているが、第6章も参照されたい。

7.2.11.4 廃棄物とプロセスの関連

反応みて塩化物を生じない物質は、Zrの揮発処理の前または後で別々に処理する必要があり、これによって別の廃棄物が相当量生ずる。揮発性の塩化物を生ずる他の元素が共存すると吸収剤の調整という点からは妨害となるので、塩素化する前に分離する必要がある。以上の2点についての情報は、現在入手できない。

燃料集合体残渣を相当するジルコン酸塩に変換すると、Zrについては容量が $4/10$ に減少すると推定される。この物質が、この減少した容量で高放射性廃液を保持することができれば、この方法も最少容量貯蔵法の1つとなる。この物質のHLW吸収に関するイオン交換の将来性については第6章を参照されたい。

7.2.11.5 技術の現状

この技術は現在利用できない。このHLW吸収剤貯蔵形状の有用性は、その貯蔵形状をつくるプロセスと共に調査中であるが、評価のためにも相当の開発が必要である(第6章イオ

ン交換の項参照)。廃棄物が減容できる見込みのある点が評価の主な誘因であるが、HLW 仮焼物の容量はハル廃棄物を加えると増加することとなろう。

REFERENCES

1. N. M. Levitz, B. J. Kullen and M. J. Steindler, Management of Waste Cladding Hulls. Part I. Pyrophoricity and Compaction, ANL-8139, Argonne National Laboratory, Argonne, IL, February 1975.
2. B. Griggs, Feasibility Studies for Decontamination and Densification of Chop-Leach Cladding Residues, BNWL-1820, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, July 1974.
3. G. J. Dau, Compiler, Nuclear Waste Management and Transportation Quarterly Progress Report October Through December 1974, BNWL-1899, pp. 29-40, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, February 1975.
4. A. M. Platt, Compiler, Nuclear Waste Management and Transportation Quarterly Progress Report July Through September 1975, BNWL-1952, pp. 19-29, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, November 1975.
5. K. J. Schneider and A. M. Platt, High-Level Radioactive Waste Management Alternatives, BNWL-1900, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, May 1974.
6. Siting of Fuel Reprocessing Plants and Waste Management Facilities, ORNL-4451, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, July 1970.
7. N. M. Levitz, B. J. Kullen and M. J. Steindler, The Management of Waste Cladding Hulls. Part II. The Pyrophoricity of Zirconium and Zircaloy and the Impact on the Handling of Cladding Waste, July 1975, Draft.
8. M. J. Bell, ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code, ORNL-4828, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, May 1973.
9. M. E. Whatley, R. A. Haas, R. W. Horton, A. D. Ryon, J. C. Suddath and C. D. Watson, Chemical Technology Division - Unit Operations Section Monthly Progress Report - August 1961, ORNL-TM-65, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, March 1962.
10. A. B. Meservey, "Decontamination and Film Removal," Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment, pp. 143-155, J. A. Ayers, Editor, The Ronald Press, New York, NY, 1970.
11. A. M. Platt, Compiler, Nuclear Waste Management and Transportation Quarterly Progress Report April Through June 1975, BNWL-1936, pp. 41-48, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, September 1975.
12. A. M. Platt, Compiler, Nuclear Waste Management and Transportation Quarterly Progress Report January Through March 1975, BNWL-1913, pp. 28-33, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, June 1975.
13. A. E. Goldman and A. P. Litman, Corrosion Associated with Hydrofluorination in the Oak Ridge National Laboratory Fluoride Volatility Process, ORNL-2833, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, November 15, 1961.
14. J. A. Ayers, "Decontamination of Pressurized Water Reactors," Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment, pp. 560-564, J. A. Ayers, Editor, The Ronald Press, New York, NY, 1970.
15. J. R. Divine, "Decontamination of Plutonia-Contaminated Thermal Reactor Systems," Nuclear Technology, vol. 18, pp. 171-176, May 1973.
16. J. O. Blomeke and J. J. Perona, Storage, Shipment, and Disposal of Spent Fuel Cladding, ORNL-TM-3650, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, January 1972.
17. B. Lustman and F. Kerze, Jr., The Metallurgy of Zirconium, McGraw-Hill, New York, NY, 1955.

18. R. G. Nelson, M. P. Schlienger and E. V. Tiesenhausen, Selection of a Melting Furnace for Consolidation of Nuclear Fuel Hulls, BNWL-1968, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, (To be Published).
19. P. G. Clites and R. A. Beall, "Inductoslag Melting of Titanium Scrap and Sponge," Proceedings of Sessions 101st AIME Annual Meeting, San Francisco, CA. February 20-24, 1972, Light Metals, 1972, W. C. Rotseil, Editor.
20. P. G. Clites and R. A. Beall, "Preparation of Ingots and Shaped Castings by Inductoslag Melting," Proceedings of the Fifth International Symposium on Electroslag and Other Special Melting Technologies, Part II, Pittsburgh, PA, October 16-18, 1974, pp. 477-496, G. K. Bhat and A. Simkovich, Editors.
21. K. J. Schneider, Compiler, Quarterly Progress Report Studies on Management of Selected Wastes January Through March 1974, BNWL-1825, pp. 3-18, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, April 1974.
22. G. J. Dau, Compiler, Nuclear Waste Management and Transportation Quarterly Progress Report July-September 1974, BNWL-1876, pp. 49-58, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, November 1974.
23. E. W. Mautz, G. G. Briggs, W. E. Shaw and J. H. Cavendish, Uranium Decontamination of Common Metals by Smelting, A Review (Handbook), NLCO-1113, National Lead Co. of Ohio, Cincinnati, OH, February 1975.
24. P. W. Smith, The Zirflex Process Terminal Development Report, HW-65979, General Electric Co., Richland, WA, July 1960.
25. J. H. Swanson, The Zirflex Process, Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, Paper No. 2429, 1958.
26. L. M. Ferris, Decladding of PWR Blanket Fuel Elements with Aqueous Ammonium Fluoride Solutions, ORNL-2558, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, October 1958.
27. J. T. Holmes, H. Stethers and J. J. Barghusen, Engineering Development of Fluid-Bed Fluoride Volatility Processes Part 8. Pilot-Plant Development of Uranium Alloy Fuels, ANL-6973, Argonne National Laboratory, Argonne, IL, August 1965.
28. M. J. Steindler et al., Chemical Engineering Division Waste Management Programs Quarterly Report, January-March 1975, ANL-75-43, Argonne National Laboratory, Argonne, IL, June 1975.
29. M. J. Steindler et al., Chemical Engineering Division Waste Management Programs Quarterly Report October-December 1974, ANL-75-23, Argonne National Laboratory, Argonne, IL, March 1975.
30. R. G. Wymer, Oxidation of Zirconium-Containing Fuels to Facilitate Uranium Recovery, ORNL-2182, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, December 1956.
31. C. B. Bartlett, E. Wirsing, Jr., S. J. Wachtel, R. Johnson, J. J. Reilly and L. P. Hatch, Fluidized Bed Reprocessing of Stainless Steel Clad UO₂ Power Reactor Fuels, BNL-968, Brookhaven National Laboratory, Upton, NY, November 1965.
32. M. E. Whatley, P. A. Haas, L. E. McNeese, A. D. Ryon, J. D. Suddath and C. D. Watson, Unit Operations Section Quarterly Progress Report, October-December 1966, Chemical Technology Division, ORNL-4094, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, February 1968.
33. C. B. Bartlett, E. Wirsing, Jr. and L. P. Hatch, Process for Decladding Zirconium from Zirconium Clad Nuclear Fuel Elements, U.S. Patent 3,294,492, December 1966.
34. Reprocessing of Irradiated Fuels, Quarterly Report No. 27, October 1-December 31, 1966, EURAEC-1920, European Atomic Energy Community, 1967.
35. W. W. Schulz, A. L. Dressen and C. W. Hobbick, Immobilization of Spent Cladding Hulls by Conversion to Silicate Forms, ARH-SA-193, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, October 1974.
36. H. S. Levine, An Assessment of Procedures for Conversion of Waste Zircaloy Hulls to Zirconate Ion Exchange Materials, SAND-75-0643, Sandia Laboratories, Albuquerque, NM (To be published April 1976).

37. Mellor's Comprehensive Treatise on Inorganic and Theoretical Chemistry, Vol. VIII, Supp. I, Nitrogen (Part I), J. Wiley & Sons, Inc., New York, NY, 1964.
38. Ya. I. Ivanshentsev and M. I. Stoyanova, "Chlorination of Cerium Sub-group Oxides by Hydrogen Chloride and Ammonium Chloride," Obogaskch. Met. Tsvet. Met. 1960, No. 3, pp. 103-12 (Russian). From Ref. Zh., Met. 1970, Abstr. No. 12G301.
39. J. J. Reilly, W. H. Regan, E. Wirsing and L. P. Hatch, "Uranium Recovery from Unirradiated Reactor Fuel Elements - Volatile Separations in Inert Fluidized Beds," Ind. Eng. Chem. Process Design Develop., vol. 2, no. 2, p. 127, 1963.
40. D. Ramaswami, N. M. Levitz, J. T. Holmes and A. A. Jonke, Engineering Development of Fluid-Bed Fluoride Volatility Processes. Part I. Bench Scale Investigation of a Process for Zirconium-Uranium Alloy Fuel, ANL-6829, Argonne National Laboratories, Argonne, IL, December 1964.
41. D. C. Bradley, R. C. Mehrotra and W. Wardlaw, "Structural Chemistry of the Alkoxides. Part I. Alkoxides of Silicon, Titanium, and Zirconium," J. Chem. Soc., p. 2027, 1952.
42. D. C. Bradley and W. Wardlaw, "Zirconium Alkoxides," J. Chem. Soc., p. 280, 1951.
43. D. C. Bradley, "Metal Alkoxides," Progress in Inorganic Chemistry, pp. 303-361, F. A. Cotton, Editor, Vol. II, Interscience, New York, NY, 1960.

8.0 不燃性廃棄物の処理

本章では、原子力発電所、再処理工場、および混合酸化物燃料加工工場の操業に伴い発生する非高放射性の不燃性固体廃棄物の処理について述べる。高放射性廃棄物およびハルは各々6、7章で述べ、ここでは触れない。

8.1 既に発生した廃棄物の特徴

この章で触れる廃棄物の主な成分は金属であるが、他にガラス、コンクリート等の不燃物も含まれる。又、グリース、プラスチック、床清掃具等の可燃物が多少混入している場合も不燃物の範中に入る。発生した廃棄物の分類、および発生量については2.3章で述べる。

使用に供さなくなった装置類は最終的には不燃性廃棄物となるが、一般には、装置類を撤去する前に水洗や除染を行い、又可燃物も可能な限り除去する。再処理工場では操業に伴い最も大型の、そして放射性の高い機器廃棄物が発生する。大型機器として、径3 m、高さ10 mもある濃縮器、カラム、溶解槽等がある。これらの大型機器は、あらかじめ設定された接合部より分解され、必要に応じて再処理敷地外へ運搬される。さもなければ、未使用のセル又はハンフォードのPu-U抽出(Purex)装置用トンネル等の如く、特別設計の貯蔵エリアで一時保管される。

原子力発電所で発生する不燃性廃棄物にも大型機器が含まれ、原子炉格納系より撤去する前に解体が必要である。再処理工場、原子力発電所のいずれで発生した場合も放射線レベルが高いため、数feetのコンクリートに相当するしゃへいが必要である。

混合酸化物燃料加工工場における大型機器廃棄物にはグローブボックス等が含まれる。これらの廃棄物は、外部放射線レベルとしては低く、直接作業又は多少のしゃへい下で作業が可能である。しかし、Puが存在するため、Puの拡散を防ぐため完全に閉じ込める措置が必要である。

各施設からはそのサイズや放射線レベルが問題となる大型機器の他に、定常的に種々雑多の不燃性廃棄物が発生する。例えば、ガラス、フィルター、コンクリート、金属片、屑等がこのカテゴリーの中に入る。これらは発生元の作業内容、規模によっては可燃物と不燃物が混合して発生するので、最終貯蔵のためのこん包の前に仕分け作業が必要であろう。

イオン交換樹脂類は、各施設から発生する廃棄物のうちでかなりの割合を占める。これらは一般にはポンプ、あるいは水流により移送される。したがって、この樹脂の処理系には、乾燥機を備えるかまたは高湿度に耐えるように設計しなければならない。

8.2 処 理 方 法

原子力産業のスタート以来、固体廃棄物の処理法は最も簡単で安価な地中埋没であった。こん包は輸送、および埋没時の封じ込めについてのみ考慮され、埋没後のコンテナの崩壊、腐食等についてはあまり関心ははられなかった。というのは、地層内に充分閉じ込められると考えられたからである。

しかるに近年、種々の理由により地中埋没は有利な処分方法ではなくなってきたが、廃棄物によっては未だこの方法で処分されている。地中埋没については本書 24 章にて述べる。

8.2.1 その他の処理方法

非高放射性不燃性固体廃棄物の処理方法としては、上記の直接埋没から金属溶融鑄造等の処理法まで種々あり、この溶融法による固化体は非常に安定で、比較的狭い場所に効率的に貯蔵できるというメリットがある。

図 8-1 に非高放射性不燃性固体廃棄物の処理工程のフローチャートを示す。このチャートには、発生時の廃棄物量を 100 とした場合の処理済時点での廃棄物の相対量が示されている。しかし、発生時の廃棄物には種々雑多なものが含まれているため、各処理が行われた時点での正確な相対量を求めることは困難である。したがって図中の量は絶対的な値ではなく、むしろ、そういう傾向を示すと考えるべきである。相対量の変化については、次の様な傾向が見られる。

- (1) 前処理による量的な変化はほとんど見られない。
- (2) 機械的解体により約 80 に減容できる。
- (3) 溶融により約 10 迄減容できる。溶解、破碎処理、化学的処理による減容は、10~100 の間の値となる。
- (4) 処理済廃棄物のこん包で約 50% 増量し、最終的には 15~150 の間の値となる。

機械的解体のみであれば、二次廃棄物はほとんど発生せず、発生してもフィルターで容易に除去することができる。しかしながら、高温処理や強力な薬品処理の場合には、廃ガス、微粒子、廃液等の二次廃棄物が発生するため、環境への拡散防止のための処理が必要となる。フィルター、イオン交換樹脂、雑固体等の二次廃棄物の発生量は、一次廃棄物の 10~25% 位である。(8.5 節参照せよ)

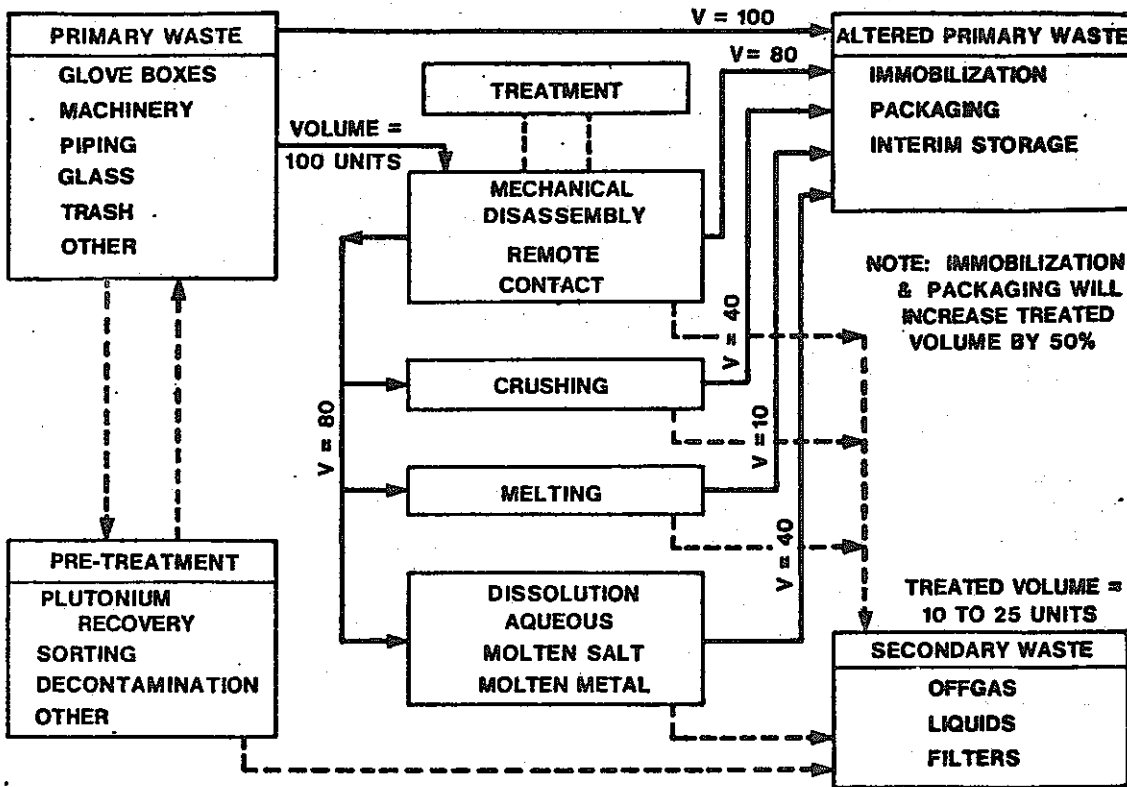


FIGURE 8-1. Noncombustible Solid Waste Flow Diagram

8.2.2. 技術開発

処理・貯蔵する不燃性廃棄物の大部分は、破損品や旧式となったための交換品などの使用に供さなくなった装置類である。長年にわたって、これらの機器の除染・保守・修理技術は発達してきている。

大型廃棄物処理の第一工程は除染・分解であるが、この場合保守技術が直接廃棄物処理に利用可能であると考えられる。しかしながら、保守作業は機器を再使用せしめるのが目的であり、廃棄物処理の目的は不燃物を高密度・安定に減容し閉じ込めることである。この両者の差が、作業技術・手順にも表れてくる。その違いは下記の通りである。

- ・機器の部品を再使用する場合は、除染・解体作業時に余分な傷やダメージを与えてはけない。
- ・精密な修理を行う場合、作業者は機器にかなり接近しなければならない。したがって、放射線レベルはより低くなければならない。
- ・特別な場合、例えば複雑で高価な機器を修理する場合あるいは簡単に修理ができる場合などは、比較的高い放射線量下で作業することもありうるが、廃棄物処理場は作業者が連続的に作業を続けるところであり、このような高い放射線下の作業は許されない。

8.3 利用可能な廃棄物処理技術

“利用可能な技術”と未だ“開発中の処理技術”との間には明確な区別はない。即ち、各施設ではルーチン作業として仕分け、除染等の処理が行われており、これらは前者の範中に入るが、また研究もなされており改良の余地もある。又逆にスクラップ機器の解体、金属溶融等の種々の処理は原子力関係以外の産業では日常的に使用されているが、原子力産業ではまだ充分には適用されていない。これらのように、原子力産業への適用にかなりの開発を必要とする処理法は上記の後者に入る。

8.3.1. 仕分け作業

主な廃棄物の解体・溶融・圧縮等の処理を行う前に、必要に応じて前処理として仕分けを行う。仕分け作業は(1)発生元で廃棄物を分けること、(2)多少の不明物質が混入しても取り扱い得る様な処理設備にすることにより、その負担を軽減することができる。しかし、常にこれらの条件が満足されるとは限らず、廃棄物処理場へは可燃物と不燃物が混合された状態で送られて来ることもあり、このような時は仕分け作業が必要である。

仕分け技術については本書第9章に詳しく述べる。不燃性廃棄物仕分け作業の原則は目視、手作業であり、目視用ののぞき窓又はペリスコープと作業用のマニプレータを備えたしゃへい装置が用いられる。放射線レベルが低い場合は、不燃物の仕分け作業にグローブボックスが使用されることもある。

8.3.2 除 染

除染は不燃性廃棄物の解体・溶融処理等に先立って行う前処理の一つである。機器の除染は現在原子力施設で広く行われており、その技術はよく開発され、よく知られている。⁽¹⁾⁽²⁾ 除染の目的は汚染機器の放射線レベルを下げ、ルーチン作業又はそれと同等の作業をなし得る様にすることである。廃棄物の除染についても目的は同様であるが、廃棄物の場合は再使用する必要がないため、より破壊的な除染処理を行うこともできる。

無条件で再使用できるレベルを含めて、汚染機器を望むレベルまで表面除染することは可能である。しかし、再使用が許可される前に全表面について、汚染が除去されているかどうかモニター・チェックしなければならないが、多孔性物質や表面の隠れた物質は充分除染効果が上がっているかどうかを正確にチェックすることは非常に困難、又は不可能である。これらのモニタリングの問題、及びコストの問題のため、廃棄物等の低放射性汚染物を再使用するため除染することはあまり得策でない。

8.3.3 Pu 回収

Pu 回収については本書 11 章に広範囲にわたって述べられているので、本章では最少限にとどめる。Pu 回収は非常時又は特殊作業時の不燃性固体廃棄物の前処理として必要である。通常は、Pu は廃棄物となる前の工程で回収される。Pu 処理工程や除染の後も残存する Pu は、技術的理由又は経済的理由から、回収不能とされている。したがって、Pu 含有廃棄の問題は Pu 回収についてよりむしろ、Pu コンテインメントについての問題である。

ある特殊な条件下では、Pu がグローブボックスや他の機器の近付き難い場所にトラップされ、部分的に機器を分解しなければ回収できない場合もある。かかる場合は機器を分解する時の適当な時期に、11 章に述べる様な処理を行い Pu を回収する。

8.3.4 圧縮

ガラス製品・セラミックス・金属容器・軽量機器等の小型不燃性廃棄物の圧縮方法は、可燃性固体廃棄物の圧縮の場合と同様であり、これについては本書 9 章で述べる。重量機器・フード・構造物等の大型機器を取り扱う場合は、一般に機械的に解体される。自動車産業界で使用されている様な大型の切断機や圧縮機を使用して、多量の FP で汚染された機器の破砕化を行う実験や研究はほとんどなされていない。圧縮破砕処理は原子力関係以外の金属スクラップ産業界では商業的に発達しているが、原子力産業界では、遠隔操作・保守・汚染防止・前処理（サイズの調整）・処理可能廃棄物の限界等の特殊な問題を解決する必要がある。（例えば、サイズが大きすぎる場合、複雑な構造、高放射性の場合等がこの処理を行うときの問題となる。）

8.3.5 コンクリート、ビチューメン、ユリア樹脂による固化処理

小片に切断した不燃性廃棄物は、コンクリート、ビチューメン、あるいはユリア樹脂中に混入し固化処理することができる。この処理法は汚染拡散の可能性の低減という点で優れており、熔融・化学的溶解等の処理に代える事ができる。さらに少量の可燃性廃棄物や焼却灰も不燃性廃棄物と同時に混合処理することができる。

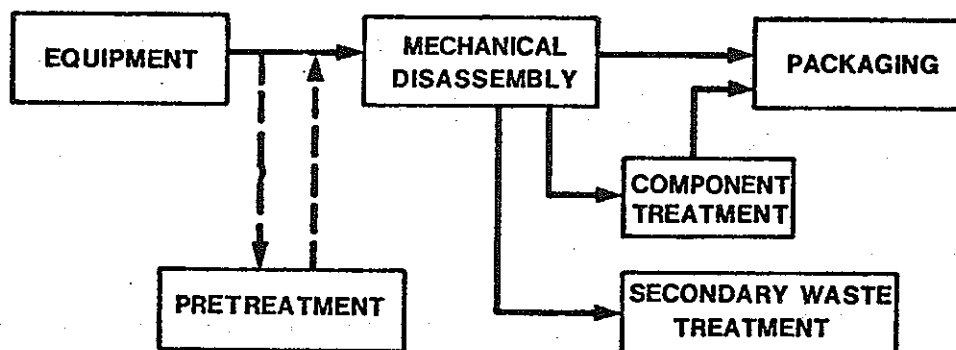
コンクリート、ビチューメン、およびユリア樹脂固化処理については、本書第 12 章にて比較検討する。

8.4 開発の必要な処理技術

前節(8.3)で述べた処理技術は原子力産業界でも一般に使用されており、利用可能であるとみなされている。本節で述べる処理技術はまだ充分開発されていないもの、あるいは原子力産業界にとって充分利用されていないものである。これらの技術には、既存技術のスケールアップ、又は改良により開発される場合もあるが、開発時に遭遇する問題の解決には費用と時間を要する。

機 械 的 解 体

プロセスの要約



プロセスの概要

主に金属製機器から成る固体廃棄物は、減容し取り扱いを容易にするために解体される。機器の解体には、手工具・切断用トーチ・鋸盤・せん断機、あるいは爆発物等の種々な技術が使用されている。

開発の状況

解体処理の基礎技術は、保守作業時の技術を発展させたものである。処理技術の発達に伴い、処理場の処理能力が向上し、作業者の被曝量が減少してきた。

対象となる廃棄物

対象となる廃棄物は、通常のコンプには大き過ぎる物、次の処理装置にかけるために解体の必要のある物。

容積・重量変化

容積は25%減少から200%増加迄広範囲にわたって変化するが、重量は変化しない。

前処理

解体前に機器は、放射線レベルを下げ、Puの除去および解体作業時に妨害する物質を除去するために除染を行う。

問題点

大型機器の処理工程内での取り扱い，および大型機器から取り外された特殊な部品や重量部品の取り扱い。

8.4.1 機械的解体

使用に供さなくなった機器類で，貯蔵するには大きすぎる場合には，部分的に解体しなければならぬ。貯蔵しない場合でも，溶融やこん包を行う前に金属部分を小部分に分解する必要がある。

8.4.1.1 プロセスの概要

本章の前部で述べたように，機械的解体処理技術は保守作業から生まれる。この機械的解体処理技術が，ERDA⁽²⁾や諸外国^(3,4)の小規模施設，Elk River Reactorなどの大規模施設の閉鎖⁽⁵⁾に使用された。これらの作業では，鋸盤，せん断機・インパクト装置・切断用トーチ等の一般に使用されている工具が使用された。これらの作業には人体への放射線被曝を受けるため，予想されたより多くの手間と時間がかかる傾向があった。しかし，それでも必要がある限り，作業しなければならない。

8.4.1.2 開発の状況

機器解体のために特に設計された解体装置・施設を使用して，よりよい機械的解体システムを作り上げるべく開発計画がすすめられている。

Atrantic Richfield Hanford Company (ARHCO) ではこの種の典型的な計画が現在進められており，汚染機器を遠隔操作施設内で解体するための原型処理施設を開発中である。処理施設の根本原則としては，大型槽類，熱交換機等の大型機器を，最大寸法約 30 cm の小片に切断できることが必要である。これらの小片は，貯蔵のためにこん包されるか，又は溶融処理によりインゴットに鑄造される。

処理施設はのぞき窓と遠隔操作による解体装置を用いて，作業員によりセル外から操作するしゃへい区域を持つ様にと考えられている。

又，処理施設では，これまで一般に使用されて来た解体装置のみでなく，アーク切断機，特殊プラズマ切断トーチ等の特殊な装置の使用も考えられている。

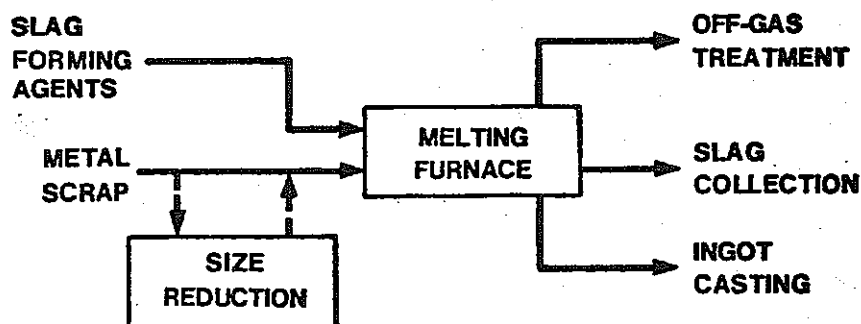
開発計画によれば，1977年に非放射性的の状態での確性試験，1978年に低汚染機器について，1979年または1980年に高汚染機器についての試験を行う予定である。しかし，必要に応じて技術開発のため，計画を数年延長することもありうる。

Battelle Pacific Northwest Laboratory では，機器から大型部品を取り外すために爆発物 (explosive shaped charges) を用いた機器解体法の開発が行われた。⁽⁶⁾

この可能性は実証されたが、しゃへいされた施設内で遠隔操作で作業を行うには、まだかなりの研究が必要である。

溶 融 法

プロセスの要約



プロセスの概要

適当なサイズに調整された金属性廃棄物は加熱炉内で溶融され、長期間貯蔵のためインゴットに铸造される。

開発の状況

放射性核種で汚染されたステンレススチールの試料については、限られた溶融研究が行われているだけであるが、非汚染金属や金属スクラップの溶融に関しては、工業的規模でかなりの経験が得られている。

対象となる廃棄物

金属廃棄物はすべてこの処理法の対象となる。

容積／重量変化

容積は大体 1/5 ～ 1/15 の間、平均すると 1/10 に減容される。重量はスラグの増減を除けば、ほとんど変化しない。

最終生成物の形態

金属インゴット、およびスラグ。

前処理

必要に応じ、解体および仕分けを行う。

問題点

処理法を開発するためには、溶融法及び構成物質を選定する必要があり、運転・保守・オフガス処理・FPの挙動等について確性試験を行わなければならない。

8.4.2 溶 融

金属廃棄物は前処理を行った後、溶融炉へ適当に供給され、溶融およびインゴットの製造が行われる。インゴットに製造することにより廃棄物の容積は最少となり、放射性核種も固定される。

8.4.2.1 プロセスの概要

現在考えられている溶融炉は、一般に産業界で使用されている金属関係の溶融炉をモデルにしている。これらの炉では最大30cm迄の金属片を処理し、バッチ処理または連続処理で運転される。

放射性核種で汚染された金属・機器類は一般には表面が汚染されており、溶融することにより放射性核種は金属マトリックス中に入って固定される。SrやPu等の放射性核種は溶融金属の表面を覆っているスラグ中に選択的に含まれる。⁽⁷⁾スラグは放射性の二次廃棄物となる。

使用する溶融炉のタイプおよびオフガス処理系の設計によっては、供給するスクラップ中に含まれる少量の有機物分を焼却、熱分解することができ、生成する灰や炭素はスラグや金属部分中に含まれる。このことは、金属溶融処理工程を損なうことなく、95%以上の有機性廃棄物の減容ができることを示している。熱分解によるカーボンが全て金属中に確実に溶解するためには、可燃物は全供給量の10 wt%以下でなければならない。又、金属廃棄物をより密度の大きい強固なものとするために、溶融炉中にセラミック材を入れることもありうる。しかし、これは炉の設計やスラグの取り扱い法にも関係する。

現時点では、溶融方法、オフガスの取扱い、構造材料、処理系の運転及び保守法、インゴットやスラグの取り扱い等について開発、確立する必要があるために、プロセスの操作条件を決めることはできない。

8.4.2.2 開発の状況

・実用化設計にいたるリードタイムの推定

現在大規模処理施設での溶融装置の実用性を実証するための計画が開始されている。非常に限られた実験室で、小さなサンプルを用いて処理時の放射性核種の挙動を評価するため溶融試験が行われた。また汚染度の高くない大きな金属片の溶融も行われた。ARHCO社は試験用真空炉の建設を計画している。非放射性物質による予備試験を1977~1978年の間に行い、最初の放射性物質による試験を1979年に開始、続いてフルスケールの処理プラントによる試験は1984年頃行方予定である。Pacific Northwest Laboratoryでも同様な問題の解決のための計画を進めているが、本書7章で述べたハルの取扱いに力を集中している。Argonne National Laboratoryや他のERDAの研究所でも溶融金属処理の技術に関する研究開発を進めており、Atomics Internationalで

は本書 8.4.2.3 節で述べるように、溶融塩処理を汚染金属の処理に使用している。これらの計画の時期は ARHCO 社の計画の時期と類似している。

・主要な開発計画—その目的と状況

金属スクラップの溶融およびインゴット鑄造に関する技術は、原子力関係以外の産業界では非常に発達しているが、処理時の放射性核種の挙動についてはあまり解明されていない。現在開発中の事項としては：金属溶融温度で蒸発する放射性核種の確認、溶融金属・スラグ・炉構材中の放射性核種の分布、最終インゴット・スラグ中の放射性核種の移動度、適当なオフガスの処理法の開発等が挙げられる。これらの開発計画の時期は、実際の設計に必要な時期と一致している。このような施設での遠隔操作や保守についての複雑な問題についても、この時期に実証試験を行う。

8.4.2.3 その他の溶融法

溶融処理に対して考えられている種々の溶融炉の概略およびその技術状況は以下の通りである。

・真空炉

真空炉は特殊な金属界では広く使用されており、オフガス処理や換気のコントロールには最も適しており、遠隔操作や保守も最も容易と思われる。このタイプの炉は放射性核種で汚染された金属の溶融に非常に適していると思われる。

・誘導加熱

誘導加熱には他の加熱法より多数の利点がある。エネルギーは溶融される金属とは分離して設けられた作動コイルが発生する電磁場から与えられる。したがって、操作や保守が簡単である。誘導加熱では物質の移動がなく、溶融時にガスが発生するだけである。誘導加熱はエネルギー的には最も効率の良い加熱法であり、一般の工業的真空炉処理の中でも採用されている。

・発熱反応溶融法

酸化剤と金属粉末を燃料とし、サイズ調整等の前処理をせずにスクラップを処理できる大規模な発熱反応溶融処理システムには多数の利点がある。熱発生源としてテルミット反応を用いて、このシステムの試験が行なわれたが、実際には発熱源を安全にコントロールすることが困難であった。酸素ガスと金属粉末を連続的に供給することは、電気による熱源の場合と同様に多くの問題がある（たとえば、混合性、高価なブローグ、ランス、導線他、スチールの溶融温度付近での運転）。固体の酸化剤と金属粉末を用いたバッチ処理では爆発の可能性がある。また発熱反応の場合は常に、瞬時にして多量のヒュームが発生するため、封じ込めることは非常に困難である。

・電気アーク

予備的にサイズ調整を行う必要のない処理法として、滴下溶融法 (drip-melt system) が挙げられる。熱源は電気アークにより簡単に得られるが、大きな開放空間があるため、オフガスの制御が困難となり、溶融生成物の取り扱いも困難となる。複雑でやっ介な熱源の下で高温の大型生成物に付随する問題がある等のため、この方法の採用が困難となっている。

・プラズマアーク

真空下でなく大気圧下で操作されるプラズマアークを熱源とした溶融炉には、真空炉以上にメリットがある。それは真空誘電炉の場合より、より大量の不導体をより簡単に処理できることである。しかし大部分の問題点は両者に共通である。

・電気スラグ法による精製と除染

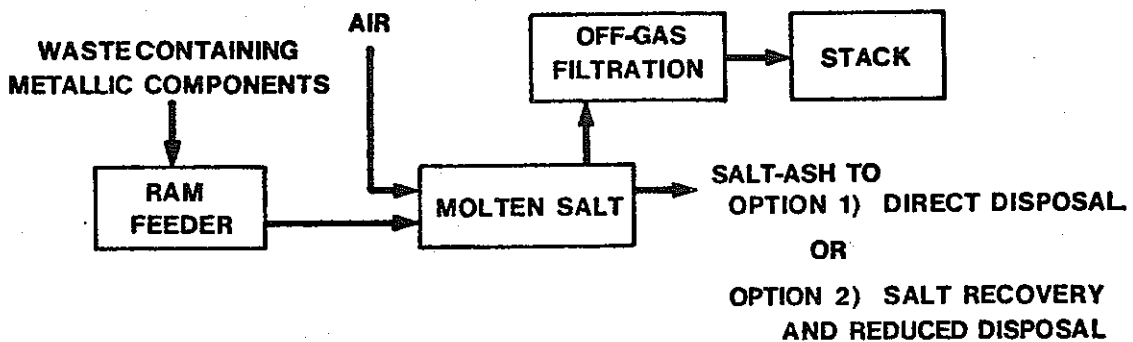
この方法により金属スクラップはスラグ塊に変る。このような処理が技術的に可能なことはよく知られているが、発生する汚染されたスラグの量が最初の汚染金属の量と同一またはそれ以上となる。

8.4.2.4 対象となる廃棄物

溶融炉に投入できるようにサイズ調整処理することのできる金属廃棄物はすべて溶融処理することができる。生成したインゴットの廃物利用を考えるならば、前処理として金属の種類を分ける方がよい。多少の可燃性廃棄物を混入させてもよい。

化学的処理による減容

プロセスの要約



プロセスの概要

約 850°C で溶融された Na_2CO_3 中で、金属類は空気により酸化され灰、 NaCl 、 F 、 P と共に、塩の中に保持される。

開発の状況

ベンチスケールの施設で、汚染廃棄物を 0.5 Kg/hr、非汚染廃棄物を 5.0 Kg/hr の容量で確性試験が行われた。

対象となる廃棄物

可燃性および不燃性の何れも処理できる。現在のところ、薄い板状金属類に限られている。

容積/重量変化

金属部品の状態に比べ減容比約 5 で容積は減少するが重量は Na_2CO_3 の分だけ増加する。

前処理

金属部品は炉に入れる前に、炉に合わせてサイズ調整される。

問題点

溶融塩処理の場合と同様に、構造材の腐食が重要な問題となる。

8.4.3 化学的処理による減容

どのような不燃性固体廃棄物でも、適当な溶剤と処理条件を選ぶことにより、化学的に溶解することができる。溶解とそれに続く固化処理により、金属の構造材を他の鑄造法で得られた金属の密度と同程度にまで減容・均一固化することができる。しかしこの溶解処理の全生成物は溶解時に使用した化学試薬の分だけ重量が増加する。

廃棄物を溶解した時点では、化学的分離処理や金属の回収処理が可能である。これらの処理の可能性についての研究はすでに開始されている。この種の計画は、Atomic International Division of Rockwell Internationalで行われており、この計画について以下に簡単に述べる。

8.4.3.1 プロセスの概要

850°C の溶融 Na_2CO_3 中では、空気と可燃物が反応して CO_2 、 H_2O が発生し、廃棄物中の S 、 P 、 Cl 等の酸性物質はナトリウム塩を形成する。金属酸化物、焼却灰、 NaCl 、核分裂物質等の無機物の燃焼、反応生成物も溶融塩中に含まれている。この処理システムは遠隔操作により運転できるので、超ウラン元素 (TRU) や、FP 廃棄物等を処理することもできる。

開発計画によれば、ガラスや軽い計測器用金属をも処理する予定である。ガラスは Na_2

CO₃ と迅速に反応し、CO₂が発生する。これはSiO₂がNa₂CO₃と反応し、ケイ酸塩を形成していることを示している。1000℃では、薄い(<1.5 mm)スチール容器は1時間以内で溶解するが、厚い(9 mm)スチール容器は完全に溶解するまでに約24時間も要する。熔融温度が高い程溶解率は高い。

大型(直径90 cm)の炉で、長さ5 cmでスケジュール80のインコネル600のパイプの溶解には約24時間必要であるが、長さ5 cmでスケジュール80のステンレス(304)パイプの溶解には一週間を要す。ニッケル合金の腐食のメカニズムとしては硫化ニッケルの中間生成物を形成するが、腐食はさらに進む。しかるに、ステンレス合金の場合は、表面に重クロム酸ナトリウムの耐食膜が形成される。これらの試験から、ケイ酸ガラス、炭素鋼、ニッケル合金は熔融塩中で溶解できるが、ステンレススチールは完全に溶解するにはかなり時間を要することがわかった。

8.4.3.2 開発の状況

Pu 汚染廃棄物を用いた、ベンチスケール(0.5 Kg/hr)でのTRU廃棄物の酸化処理および非汚染廃棄物を用いたパイロットプラントスケール(50 Kg/hr)での酸化処理試験が行われた。また、金属部品の分解および減容試験がベンチスケールで行われ、大規模施設のための予備設計・試験が行われた。この間に特殊な廃棄物についてのテストを行う必要がある。減損ウランやトレーサー量のFP汚染廃棄物を用いた試験を実在のパイロットスケールの炉(50~100 Kg/hr)を用いて行うことができる。熔融塩処理技術は、ドライレーク床(Dry-lake bed)からの鉍物の回収に商業的に利用されている技術である。

8.4.3.3 対象となる廃棄物

この処理方法は、可燃性固体、液体、薄肉金属物のすべてに利用可能であるが、厚肉(>2 mm)のコバルト合金や高クロム(>10%)合金には数日間の溶解時間をかけない限りあまり勧められない。この処理法はニッケル系合金シリコン系ガラスには特に適している。重いものやかさばる金属物は供給時に問題となるが、HEPAフィルター、ガラス製実験器具、ステンレス製被覆材等のもろいものや切断可能な固体無機物はこのシステムで処理出来る。

8.4.3.4 最終生成物の形状

最終処分用生成物は、金属酸化物粉を含んだ熔融塩を固化し、ドラム缶詰めしたものである。

8.5 二次廃棄物処理

一次廃棄物処理の第一目的は、長期間に渡り安全に貯蔵可能なように、一次廃棄物を変えることである。第二の目的は、廃棄物の容積を減少させることおよび汚染物質を環境へ放出又は産業界で再使用可能なようにクリーンにすることである。これらの目的への処理に付随して汚染されたオフガス・液体等の二次廃棄物が発生する。二次廃棄物も一次廃棄物と同様に、閉じ込めまたは減容処理し、長期間の貯蔵に適した形にする。または、環境への放出や再使用が可能な程にクリーンにすることが必要である。

8.5.1 プロセスの概要

図 8-2 に不燃性廃棄物処理システムから発生する二次廃棄物についての簡単なフローダイアグラムを示す。すべての処理は空気の流れをコントロールするため、いくぶん負圧に保たれたエリアで行われ、このため排気ファン・フィルターシステムが必要となる。高温下での処理（熔融・トーチ切断等）時には放射性物質を含んだ蒸気やヒュームが発生し、これらの蒸気やフュームがフィルターに達する前に大部分のものを除去するためにスクラバーが必要となる。フィルターを通過したオフガスは環境への放出規準に適合していなければならない。オフガス処理については、本章 13 章に詳しく述べる。

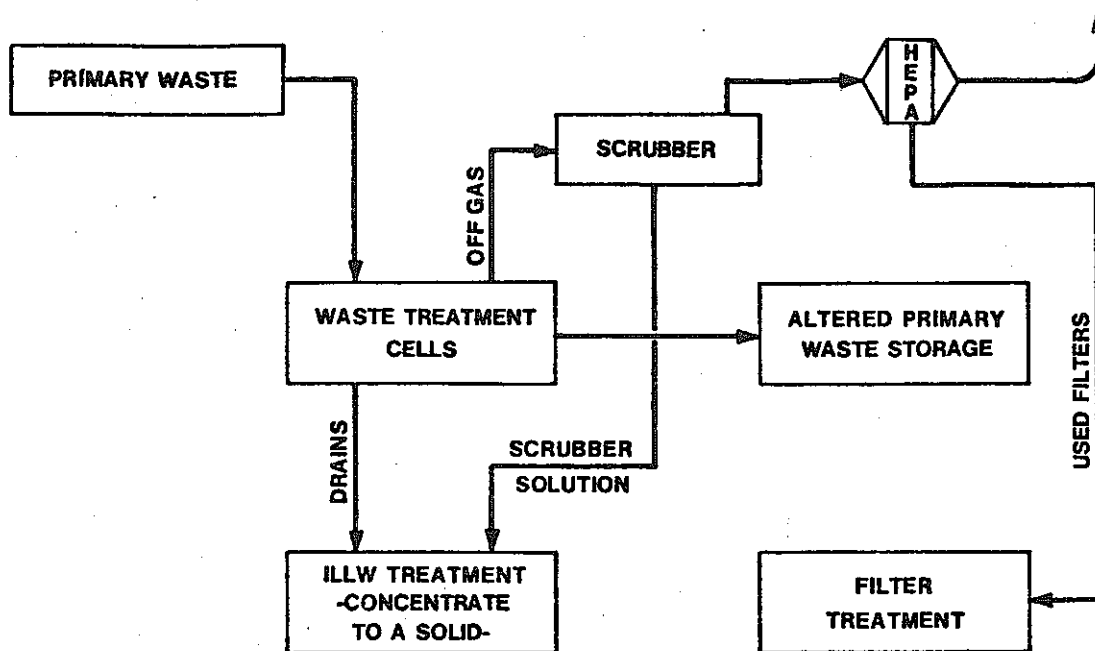


FIGURE 8-2. Noncombustible Solid Waste--Handling of Secondary Wastes

HEPA Filters used for final treatment of the off-gas stream will require replacement when they become loaded with particulate material. They will be treated as described in Sections 12.0 and 13.0.

オフガスクラバーから発生する廃液には、オフガスから洗い出された物質が含まれており、この液体廃棄物は除染廃液と混合され、非高放射性液体廃棄物となる。(10章)

オフガスの最終処理に使用されたH E P A フィルターは粒子状の物質で目詰まりしたらフィルター交換しなければならない。フィルターの処理法については、12・13章で述べる。

8.5.2 二次廃棄物の発生量

不燃性固体廃棄物の処理に伴い汚染された空気・水等の二次廃棄物が発生し、これらは一次廃棄物と同じまたはそれ以上の量となることもあるが、イオン交換樹脂やH E P A フィルター等の機器により洗浄され環境へ放出される。汚染物はイオン交換樹脂・蒸発缶・フィルター中に蓄積される。蓄積された二次廃棄物の容積と重量は、一次廃棄物に比べ小さい。即ち、貯蔵される量は一次廃棄物の10～25%の間の量である。

8.5.3 開発の状況

不燃性固体廃棄物中の放射性核種の蓄積度合は、高放射性廃棄物処理システムの場合より数桁低い。これは不燃性固体廃棄物の場合には、とれやすい放射性物質が一部除染ずみの表面に、極微量付着しているだけであるのに対し、高放射性廃棄物の場合にはF Pが蓄積されているという理由による。F Pの蓄積の少ない不燃性廃棄物処理に伴う二次廃棄物の処理に高放射性廃棄物処理の技術(6章)を適用すれば、かなりの安全係数を見込むことができる。

REFERENCES

1. J. A. Ayres, Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment, The Ronald Press, 1970.
2. M. J. Szulinski, The Hanford Decontamination Facility, ARH-SA-181, June 1974.
3. R. H. Burns, et al., "Treatment of Low-Level Solid Wastes at the Atomic Energy Research Establishment, Harwell," Practices in the Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes, International Atomic Energy Agency, Vienna 1966.
4. J. Pradel, P. J. Parsons, and E. Malasek, "The Volume Reduction of Low-Activity Solid Wastes," Technical Report Series No. 106, International Atomic Energy Agency, July 1970.
5. Robert M. Beckers, et al., "The Remotely Operated Torch - A Tool for Nuclear Reactor Dismantling," Conference Proceedings 731105-2, ASME Winter Meeting, November 11-15, 1973.
6. J. D. Kaser and J. O. Vining, "Size Reduction of Large Contaminated Process Equipment Using Explosive Shaped Charges," BNWL-B-192, November 1972.
7. H. T. Fullam, "High Temperature Methods for Disposal of Contaminated Metal Equipment," BNWL-B-277, July 1973.
8. M. J. Steindler, et al., "Chemical Engineering Division, Waste Management, Quarterly Report, ANL-75-43, January-March 1975.

9.0 可燃性廃棄物の処理

ある物質に火をつけることができるか、またはその物質が物理的、化学的方法により、空気と発熱的に反応するならば、その物質は可燃性であると考えられる。この節で考慮する可燃性廃棄物は、主として有機物質（紙、プラスチック、ゴム、イオン交換樹脂、溶媒など）であるが、全成分あるいは混合成分として不燃性物質を含むかもしれない。

最近の廃棄物管理計画の主要な目的は、可燃性廃棄物の発生量と貯蔵量を減少することである。発生元での廃棄物発生量を最小にすることと、機械的に圧縮化すること、並びに各種の一般的あるいは特殊な燃焼法を用いることなど、多くの減容化の方法が研究されている。燃焼を行なうことは、廃棄物を減容するばかりでなく、不活性にするか、あるいは反応しにくい形に変えるので、結果的には廃棄物の輸送と貯蔵に関連して起こりうる問題を減少する。

9.1 発生した廃棄物の性質

可燃性の放射性固体廃棄物は、紙、ウエス、プラスチック、シート防護衣、手袋、ゴムぐつ、木、有機イオン交換樹脂、ろ過助剤などのように多種多様である。原子力施設で発生する可燃性廃棄物の大部分は、一般廃棄物として集められる。その可燃性廃棄物は、可燃性といっても、不燃物も混入しているので、前処理として仕分けが必要となる。廃棄物の組成は、原子力施設に伴う作業により異なる。一般廃棄物、あるいはグローボックス作業以外の廃棄物は、紙、木、ボール紙、脱脂綿、綿布のように主として繊維質である。普通、これらの物質は容易に燃焼し、水蒸気とCO₂ガスを放出する。一方、グローボックス作業では、ほとんど繊維物質を使用しないため、グローボックス作業により発生する廃棄物は、主としてゴムやプラスチックである。原子力施設で使用するプラスチックやゴムのいくつかの例を表9-1に示す。

TABLE 9-1. Plastic and Rubber Materials Commonly Found in Combustible Solid Radioactive Wastes

CHLORINATED PLASTICS

Polyvinylchloride or PVC (Geon, Koroseal)
 Polyvinylchloride acetate (Vinylite V)
 Polyvinylidene chloride (Saran, Geon, Velon)
 Chlorinated polyether (Penton)

FLUORINATED PLASTICS

Polytetrafluoroethylene (Teflon)
 Polyvinylidene fluoride (Kynar)

NONHALOGENATED PLASTICS

Polyethylene
 Polypropylene
 Polystyrene (Styron, Lustron, Styrofoam)
 Polymethyl methacrylate (Plexiglas, Lucite)

CHLORINATED RUBBERS

Chlorosulfonated polyethylene (Hypalon)
 Polychloroprene (neoprene)

NONHALOGENATED RUBBERS

Butadiene-styrene (GR-S, Duradene)
 Polyisoprene (natural rubber, latex)
 Butene-diene (butyl rubber)

燃焼成分についての知識は、燃焼システムデザインにおいて重要である。例えば、ハロゲンを含まないプラスチックは、空気中で燃焼すると、繊維物質の燃焼生成物と類似した生成物を発生するが、相当な量のすすも発生する。ハロゲンを含むプラスチックやゴムも HCl や SO₂ のような腐食性で酸性な蒸気を発生する。Pb を詰めたゴム手袋の燃焼は、オフガス導管中に PbCl₂ を析出するとともに焼却炉の耐火材を腐食する低融点の共融合金を生成する。

有機イオン交換樹脂は、特殊なクラスの可燃性固体廃棄物に属する。原子力施設で最もひんばんに使用される樹脂の型は、強酸の陽イオンと強塩基の陰イオン交換樹脂である。⁽¹⁾ 樹脂はスチレン、スチレン-ジビニルベンゼン、エポキシポリアミン、フェノール、アクリル物質などのような有機マトリックス物質から成っており、それらは、Na⁺、H⁺、NO₃⁻、Cl⁻、OH⁻ のような交換可能なイオンを持つアミンやスルホン酸活性基を含んでいる。それ故、イオン交換樹脂を焼却すると、オフガス洗浄系の問題を引き起こす SO₂ のような腐食性ガスや焼却炉のライニング耐火材を腐食する金属塩を生ずる。樹脂についた放射性イオンもまた、しゃへいやコンテイメントに関する問題を引き起こす。

代表的な可燃性液体廃棄物は、プロセス溶媒（精製された炭化水素、希釈剤で希釈された TBP）、実験室溶媒、洗浄溶媒、潤滑剤から成るものである。これらの溶媒は、燃焼すると酸性ガスを発生するスルホン基、アミン基、ハロゲン基、リン酸基を含む。使用済みのプロセス溶媒もまた多量の放射能を含んでいるので、処理する間しゃへいを必要とする。

原子力施設で発生する廃棄物の量は、実施されている作業によって変化するものである。これらの廃棄物の量と性質については、2.0 節で述べている。核燃料サイクル施設における代表的な可燃性固体廃棄物の量については、表 9-2 に示す。焼却プロセスの研究開発に使用した可燃性固体廃棄物の組成は、20~50 wt% の繊維、10~40 wt% のゴム、20~40 wt% のプラスチックであった。⁽²⁻⁴⁾ これらの組成範囲が核燃料サイクル施設で発生する廃棄物の代表物であると考えられている。

TABLE 9-2. Characteristics and Source of Combustible Wastes

FACILITY	WASTE SOURCE	TYPE OF WASTE	ESTIMATED AS-GENERATED VOLUMES, M ³ /GWe-yr
Reactor	General trash	Protective clothing, plastic sheets and bags, rubber gloves, shoe covers, paper, rags, towels.	280
	Water cleanup	Ion exchange resins, filter aids, filters	100
	Off-gas cleanup	HEPA filters	7
Fuel Reprocessing	General trash	Protective clothing, plastic sheets and bags, rubber gloves and mats, shoe covers, paper, rags, towels.	80
	Water cleanup	Ion exchange resins, filter aids, filters	2
	Off-gas cleanup	HEPA filters	6
	Solvent extraction	Waste solvent	0.5
Fuel Fabrication (MOX)	Glove box waste	Rubber gloves, plastic bags, paper wipes, lead-loaded gloves.	10
	Process area wastes (Non-glove box)	Protective clothing, plastic sheets and bags, rubber and plastic gloves, shoe covers, paper, rags, wipes.	6
	Off-gas cleanup	HEPA filters	1

9.2 処 理 方 法

ただ単に、圧縮して箱やスチール製ドラム缶で貯蔵処理する方法から、セメント固化、焼却処理にいたるまでのいろいろな処理方法が可燃性廃棄物に利用可能である。利用可能な廃棄物処理方法は、廃棄物貯蔵の費用、廃棄物処理技術の現状並びに可燃性の放射性廃棄物の貯蔵に関係すると考えられる規則などにより影響される。

混合された可燃性廃棄物、イオン交換樹脂並びに、有機溶媒の処理方法の例を図9-1に示す。混合された可燃性固体廃棄物に関して、現在、4つの処理方法が実施されている。

- (1) いかなる処理もおこなわない。
- (2) 圧縮をおこなう。
- (3) セメントや他の固体マトリックスによる固定化に伴う廃棄物の仕分けと細断。
- (4) 廃棄物を不燃性の残余物に変える焼却（あるいは他の焼却プロセス）に伴う廃棄物の仕分けと細断。

焼却方法が使用されたとき、その結果生じた残余物（あるいは灰）は固定化処理や貯蔵処理される前に Pu 回収のために処理される。これら4つの処理方法については、以下詳細に述べる。

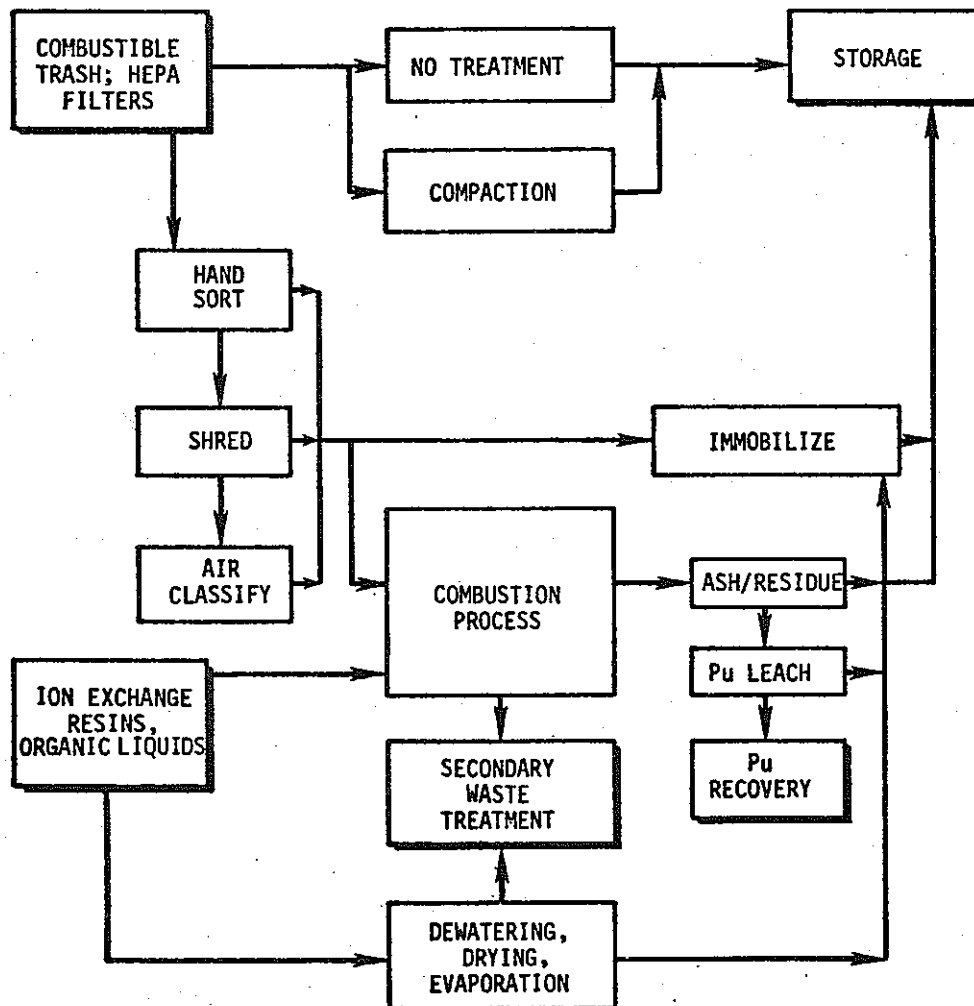


FIGURE 9-1. Treatment Options for Combustible Radioactive Wastes

混合された可燃性の放射性廃棄物における最も単純な処理方法は、いかなる処理方法もしないことである。たとえば、廃棄物は金属ドラム缶の中へ詰め込まれ、ただ単に貯蔵される。しかしながら、廃棄物貯蔵費用が増加するので、経済的観点から貯蔵する前に、廃棄物の減容化処理を必要とする。

圧縮は、原子力産業で最も広く使用されている減容化技術である。圧縮によって得られる減容比は、廃棄物の組成、圧力に依存するが、普通3～5程度になる。圧縮することによって、可燃性廃棄物の容量が確実に減少する一方、焼却処理の可能性は低くなる。しかし、焼却できないということではない。

セメントのような不燃性マトリックスで混合することにより細断された可燃性廃棄物の固定化が実行された(12.0節を参照)。この方法は、普通、焼却処理を不可能にし、廃棄物中の放射性物質のありうる移動性を減少する。

原子力施設から発生する可燃性廃棄物の焼却処理は、アメリカを含む諸外国で、25年以上も実行されてきた。放射性固体廃棄物を焼却するために、各所で使用されている焼却炉のリストを表9-3に示す。焼却炉は、以下に述べる様な各種の問題をかかえている。

- オフガス装置の過度の腐食
- 有機物の不完全燃焼
- フィルターや他のオフガス処理装置を目詰まりさせるタールやすすの生成
- 効果のないオフガス洗浄系
- 放射能環境下での焼却炉の運転に関連する機械的な問題。

これらの問題を解決するために、放射性の可燃性廃棄物(特にTRU汚染廃棄物)を処理する焼却炉やその他の焼却装置の開発計画が、アメリカで幅広く実施されている。この計画の目的は、放射性物質で汚染した廃棄物を用いた実証スケールの装置で、実際的な経験を得ることである。開発されている焼却プロセスは、従来型そして新型の焼却炉、熱分解、熔融塩燃焼、化学的浸漬などを含んでいる。これら焼却プロセスの一般的性質と表9-4に示す。現在の開発状況の内容も含めて、特にプロセスの詳細を9.5節に述べる。

TABLE 9-3. Incinerators Used for Combustion of Radioactive Solid Wastes

INCINERATOR INSTALLATIONS	LOCATION	YEAR BUILT	OPERATIONAL STATUS	CAPACITY kg/hr	OPERATING FEATURES	COMBUSTIBLE WASTE TYPE	WASTE ACTIVITY	REFERENCES
Knolls Atomic Power Lab.	N.Y.	1949	Not in operation	9-18	Single chamber; pure O ₂ ; 550°C	Cellulosic	Low	5
Argonne Nat'l Lab.	Ill.	1951	" " "	68	Single chamber; 450-600°C; vibrating grate; gas fired	"	Low	5
Bettis Atomic Power Lab.	Penn.	1953	" " "	—	Single chamber; cyclone air feed	"	Low	5
Shippingport Atomic Power Station	Penn.	—	" " "	18	Cyclone air feed	"	Low	6
United Nuclear Corp. Metals and Controls	Conn.	~1960	" " "	95	—	"	U	7
Pratt and Whitney Aircraft	Mass.	~1960	" " "	90	—	"	U	7
Douglas United Nuclear	Conn.	~1960	" " "	270	—	"	U	7
	Wash.	1967	" " "	—	Natural draft incinerator for open pit burning	"	Low	8
Yankee Rowe Atomic Elec. Co. Bradwell Power Station	Mass.	~1968	In operation	18	Cyclone air feed	"	Low	9
Berkeley Nuclear Lab.	U.K.	1967	" "	—	Rocking grate; afterburner	"	Low	10
Hunterston "A"	U.K.	1965	" "	—	—	"	Low	10
Cadarache Nuc. Study Center	U.K.	1967	" "	—	—	"	Low	10
Fontenay-Aux-Roses Center	France	—	" "	30	Dual chamber; 1000-1100°C	"	Low	11
	France	1967	" "	50	Dual chamber; 800-1000°C; oil or propane fired	"	Low	11
Bhabha Atomic Research Center	India	1966	" "	45	Dual chamber; 500-1000°C; Kerosine fired	"	Low	11
JAERI - Tokai	Japan	1966	" "	50	Dual chamber; 1000°C, oil fired	"	Low	12
JAERI - Oarai Research Establishment	Japan	1973	" "	30	Four chambers; 600-900°C; Kerosine fired	"	Low	13
Chalk River Nuc. Lab.	Canada	~1960	Not in operation	200	Dual chamber; 815-1200°C; tilting grate; propane fired	"	Low	5
Bruce Nuclear Complex	Canada	(1976)	Under construction	—	—	"	Low	14
Chalk River Nuc. Lab.	Canada	—	" "	—	—	"	Low	—
Nat'l. Lead Co. of Ohio	Ohio	1954	In operation	1000	Dual chamber; 980°C; gas fired	"	U	15
Union Carbide K-25	Tenn.	1972	" "	—	Dual chamber; 930-1100°C; gas fired	"	U	—
Union Carbide-Paducah	Ky.	—	Not in operation	—	—	"	U	—
G.E. Atomic Power Equipment Department	Calif.	1960	" "	45	Triple chamber; 760-820°C; gas fired	"	U	16,17
Goodyear Atomic Corp.	Ohio	1971	In operation	68	Dual chamber; 815-1000°C; gas fired	"	U	18
Gulf Gen. Atomics	Calif.	1963	" "	20	Dual chamber; 900-1200°C; gas fired	"	U	—

TABLE 9-3. Incinerators Used for Combustion of Radioactive Solid Wastes (cont'd.)

INCINERATOR INSTALLATIONS	LOCATION	YEAR BUILT	OPERATIONAL STATUS	CAPACITY kg/hr	OPERATING FEATURES	COMBUSTIBLE WASTE TYPE	WASTE ACTIVITY	REFERENCES
Nuclear Fuel Services	Tenn.	—	In operation	270	Dual chamber; gas fired	Cellulosic	U	—
Union Carbide Y-12	Tenn.	1955	" "	20	Single chamber; 870°C; gas fired	"	U	19
Babcock and Wilcox	Va.	1972	" "	80	Single chamber; 1090°C	"	U	20
LASL Pu recovery incinerator	N.M.	1952	" "	<1	Single basket; 800°C; electrically heated	"	Pu	5
Mound Lab. Pu recovery incinerator	Ohio	~1972	" "	23	Single basket; 800°C; electrically heated	"	Pu	—
U.S. Army Nuc. Defense Lab.	Md.	1963	Not in operation	23	Dual chamber; cyclone air feed	All (No Cl or S)	Low	21
Marcoule Center of Pu Prod.	France	1964	In operation	60-70	Triple chamber; 700-1100°C; propane heated	"	Pu	11
Center of Nuc. Studies - Grenoble	France	1961	" "	30	Dual chamber; 1000-1100°C	"	U	22
Kerr-McGee Nuc. Corp.	Okla.	1972	" "	70	Dual chamber; gas fired	"	U	—
Harwell Nuc. Research Center	U.K.	1962	" "	27	Dual chamber; 800°C	All	Low	11
Nat'l Center of Scientific Research - Strasbourg	France	1970	" "	15	Dual chamber; 700-800°C; moving grate; gas fired	"	Low	23
Nuc. Research Center (Pilot Plant) - Karlsruhe	Germany	1963	Not in operation	—	Single chamber; 900-1100°C; rotating bottom grid; electrically heated	"	Low	24
Nuc. Research Center - Karlsruhe	Germany	1971	In operation	50-70	Single chamber; 1000°C; rotating bottom grid; electrically heated	"	Low	25
Belgium Nuc. Center - Mol	Belgium	1960	Not in operation	200	Triple chamber; 900°C; gas fired	"	Low	11
Belgium Nuc. Center (Pilot Plant) - Mol	Belgium	1970	In operation	10	Single chamber; 900°C; tilting grate; propane fired	"	Low	26
LASL (Development)	N.M.	(1976)	Under construction	45	Dual chamber; 500-800°C; controlled air	"	Pu	3
Mound Lab. (Development)	Ohio	1975	In operation	35	Single chamber; cyclone air feed; 1100°C	"	Pu	—

TABLE 9-3. Incinerators Used for Combustion of Radioactive Solid Wastes (cont'd.)

INCINERATOR INSTALLATIONS	LOCATION	YEAR BUILT	OPERATIONAL STATUS	CAPACITY kg/hr	OPERATING FEATURES	COMBUSTIBLE WASTE TYPE	WASTE ACTIVITY	REFERENCES
Rocky Flats Plant (Development - Agitated Hearth)	Colo.	(~1980)	Under construction	70	Agitated hearth; 800-1000°C; diesel fired	All	Pu	4
G. E. Nuclear Fuel Plant	N.C.	1972	In operation	450	Vortex burner; 815-980°C; gas fired	"	U	27
Westinghouse Nuc. Fuel Div.	S.C.	1974	" "	—	Dual chamber; 650-1200°C; excess air burner	"	U	—
United Nuclear Corp.	R.I.	1967	Not in operation	45	Single chamber; gas fired	"	U	—
Windscale (Pilot Plant)	U.K.	1973	In operation	5	Pyrolysis unit; 1000°C electrically heated	"	Pu	28
Marcoule Center (Pilot Plant)	France	1970	" "	1	Dual chamber; 700-1100°C; electrically heated	"	Pu	29,30
Rocky Flats Plant (Development - Rotary Kiln)	Colo.	(~1980)	Under construction	40	Rotary kiln; 600-800°C; diesel fired	"	Pu	4
Rocky Flats Plant	Colo.	1959	In operation	16	Dual chamber; 1200-1400°C	"	Pu	11,31
Babcock & Wilcox Nuclear Materials Div.	Penn.	1969	Not in operation	9	Batch burner; dual chamber; gas fired	"	Pu	32
ARHCO Pu recovery incin.	Wash.	1961	In operation	2	Dual chamber; 700-800°C; moving grate	"	Pu	33

TABLE 9-4. Processes Under Development for Combustion of Radioactive Combustible Solid Wastes

PROCESS	PROCESS DESIGN FEATURES	VOLUME REDUCTION FACTOR*	PRODUCT	PRODUCT REMOVAL	PLUTONIUM RECOVERABILITY	DEVELOPMENT STATUS					REFERENCES
						SITE OF DEVELOPMENT	TESTED CAPACITY kg/hr	RADIOACTIVE UNITS		COMMERCIAL AVAILABILITY	
								DESIGN CAPACITY kg/hr	SCHEDULED STARTUP		
Controlled Air Incineration	Dual combustion chamber; primary chamber 500-800°C; secondary chamber 800-1100°C	30-50	Non-combustible, highly refractory oxide	Batch	Difficult; HNO ₃ -HF leach	LASL	45	45	1977	1978	3,34,35
Cyclone Incineration	Vertical combustion chamber; air swirls and cools the wall. Temperature 1100°C.	30-50	Non-combustible, highly refractory oxide	Batch	Difficult; HNO ₃ -HF leach	Mound Laboratory	35	35	1978	1980	
Fluid Bed Incineration	Preheated gas mixture, fluidizes waste in Na ₂ CO ₃ salt bed; primary bed 550-600°C; in situ neutralization of HCl	20-40	Non-combustible refractory oxide	Semi-continuous	Difficult; HNO ₃ -HF leach	Rocky Flats	9	82	1977	1980	36,37
Rotary Kiln Incineration	Inclined rotating horizontal cylinder; rotary hearth increases oxidation by exposing new waste; primary chamber 600-800°C; afterburner 1000°C	30-50	Non-combustible refractory oxide	Semi-continuous	Difficult; HNO ₃ -HF leach	Rocky Flats	2	40	1980	1982	4

各種の焼却プロセスによる可燃性廃棄物の減容比は、プロセス、廃棄物組成、発生廃棄物の見かけ密度に依存するが、ほぼ20～50である。一般的に言えば、あらゆる焼却プロセスは廃棄物中の無機物質を残余物として残し、有機物質を完全に酸化するので、各種の処理プロセスにより得られる減容比は、まったく同一である。その結果生じた残余物は、最終的な生成物としてこん包されるか、あるいは12.0節で述べる固定化技術の一方法によってさらに処理される。残余物は11.0節で述べる方法によりPu回収のために処理される。

図9-1に示すように、次の3つの処理方法がイオン交換樹脂や有機溶媒に対して実行されている。

- (1) 樹脂の乾燥や脱水、揮発性溶媒の蒸発
- (2) 固定化（たとえばセメント固化）
- (3) 不燃性の残余物を生成する焼却や化学的浸漬

焼却や化学的浸漬法が用いられたとき、その結果生じた残余物はPu回収のために処理される。これら3つの処理方法の中で、第3番目の方法だけをこの節で述べる。第2番目の処理方法は、12.0節で述べる。

スクラップ回収操作に関して、Puを灰の残余物から回収する場合の容易さは、各種の処理方法を選択するとき考慮に入れられるかもしれない。Puを硫酸塩に変換する酸浸漬法の例外はあるが、あらゆるプロセスは、最終的な生成物としてPu酸化物を得る。焼却温度が高いほど溶解しがたい酸化物（溶けにくい）を生成するので、Pu酸化物の回収能力は、通常、処理温度に依存する。溶解しにくいPu化合物は、一般に沸とうしている HNO_3 -HF混合液に浸漬することにより残余物から回収される。酸による浸漬や熔融塩焼却法の残余物からのPu回収に関しては、 HNO_3 に浸漬するだけで十分かも知れない。

9.3 機械的仕分けと減容化技術

焼却や貯蔵処理の前の、可燃性固体廃棄物の機械的プロセスにとって有効な技術は、手による仕分け、細断、空気による分類（air classification）、圧縮/圧縮包装（baling）などである。特殊技術による処理方法にとって、処理しやすい成分に廃棄物を分類するために、仕分けは利用される。

9.3.1 手による仕分け

手による仕分けは、混合廃棄物を分類するために最も簡単な方法である。これは、仕分けの最初の段階で最もよくおこなわれるかもしれない。しかしながら、しばしば、廃棄物処理作業の一部として廃棄物を収集した後、手によって仕分けがおこなわれる。仕分けのカテ

ゴリーは、利用可能な処理方法により決定される。不燃性物質から可燃性物質の分類を保障するためには、手による仕分けは有効であるかもしれない。また、手による仕分けは危険な物質（例えば、自然発火するような物質や爆発性の物質）が、処理領域には入り込むことを防ぐかもしれない。また、手による仕分けは、溶解不可能な可燃物から溶解可能な可燃物を同様に、ハロゲンを含まない可燃物からハロゲンを含む可燃物を分離するためにも、利用できる。

手による仕分けは、廃棄物と近密な接触を持つので、放射線被曝に対する個人的な防護が必要であり、そのために防護衣や放射線しゃへいが適当なものとして使用される。Pu 汚染廃棄物の仕分けは、グローボックス中でおこなわれるか、あるいは与圧服を着用して Walk-in 室でおこなわれる。^(11,47,48) この後者の作業は、予備の機械的作業（例、切断、細断など）と同じ場所でおこなわれる。可燃性廃棄物中の放射能汚染レベルはかなり異なるが、放射能レベルによる仕分けは、TRU 汚染廃棄物の容量がかなり減少することを除けば、いかなる利益もない。

ERDA 処理施設で応用された仕分け作業の例を以下に簡単に述べる。

Rocky Flats Plant において作業工程より発生する可燃物の仕分け

Rocky Flats Plant において、作業工程より発生するあらゆる可燃物は、圧縮による減容化処理の前処理としてルーチンの仕分けされる。これらの廃棄物は、紙、ウエス、プラスチックなどであり、それらはドライボックスシステムの中で発生し、bag-out 技術により取り出される。廃棄物は、ドラム缶の中に入れられ、いっぱいになったドラム缶はグラム量の Pu を計量するために NaI 検出器を用いて測定される。Pu 量を測定した結果、経済的に廃棄限界以下であることが判明したドラム缶は廃棄物を申告され、仕分けボックスへ送られる。ドラム缶は、圧縮機のドライボックスシステムの中に置かれ、そこで廃棄物は圧縮できないものを取り除くために仕分けされ、γ線検出器でサーベイされる。過度の放射能を持つ廃棄物は、さらにそれ以上処理するために元にもどされる。都合よく仕分けされた廃棄物は、圧縮機に運ばれ、廃棄物は一度にただ一種類の廃棄物を供給するよりもむしろ多種類の廃棄物を混合して、圧縮機にゆっくりと供給される。この作業システムは、1973年3月に開始され、Rocky Flats において発生する廃棄物のドラム缶の本数を、減容比約25で減少することに成功した。核燃料サイクル施設のために、このシステムを適応できる可能性があるのは、主に Pu 汚染廃棄物に対してである。

LASL における放射性廃棄物の仕分け

LASL における Pu 実験室から発生する廃棄物は、α放射能 10 nci/g 以上を含むわずかに汚染された廃棄物を検知し分離するために手で仕分けされる。⁽⁵⁰⁾ 実験室の廃棄物ボックスは、TRU 汚染廃棄物を含む廃棄物ボックスを見分けるために MEGAS (Multi-Energy

Gamma Assay System) により測定される。一般に、 α 放射能で10 nci/g以上の廃棄物ボックスの数は10%より少ない。高放射能ボックス中の固々の廃棄物の仕分けはFIELDER (Field Instruction for the Detection of Low-Energy) すなわち高汚染廃棄物を検知し計測するためのPancakeカウンターを使用して手でおこなわれる。高密度の廃棄物を測定する場合には、MEGASカウンターの検出能力と正確さが限定されるので問題を生ずる。放射能測定法については、11.0節に述べる。

LASLにおける低レベルTRU汚染廃棄物のために行なうリサイクル可能な仕分け

LASLにおいては、R&D業務のプロセスより生じるPu混合固体廃棄物は、手で仕分けされ分離され、Puを多量に含む廃棄物は分離後リサイクルされ、Puを少量しか含まない廃棄物は、取り出しが可能な貯蔵とするために、可燃性廃棄物と不燃性廃棄物に分類される。⁽⁵⁰⁾ポータブル型の β 、 γ カウンターにより大まかな測定が行われた後に、 γ -スキャンや中性子カウンターを用いた非破壊計測法によって、より正確な測定が行われる。

9.3.2 細断

可燃性あるいは焼却可能な廃棄物を小片に細断することは、その後おこなう処理や貯蔵のために時として望ましいものである。低レベル廃棄物に応用するために、利用可能な細断装置の調査と評価は、Atomics Internationalによって行なわれた。^(34, 51)細断装置の主要なタイプは、ハンマーミルやナイフカッター、およびそれらを改良したものや組み合わせたものである。

ハンマーミルは、垂直あるいは水平なシャフトやローターに取り付けられた回転型のハンマーか固定型のハンマーによって成り立っている。ハンマーは、長方形かのみ形であろう。粉碎や細断は、ハンマーとブレードプレートの間の衝突によりおこなわれる。

寸法減少のために商業的に利用可能なナイフカッターは次の三種類に大別される。

- (1) 静止したベッドナイフに対して可動するローターの切線上に取り付けられたフライナイフ型
 - (2) 静止したかなとこに対して可動するローターに軸方向に取り付けられたフィンガーナイフ型
 - (3) 各々逆方向に回転する2つのローターの軸方向に取り付けられたフィンガーナイフ型
- 最初の型は、紙も含めてプラスチック、ゴム、繊維を細断するために使用される。2番目の型は、ゴム、バルブ、食品工場などで使用されるものである。3番目の型は、混合廃棄物を減容化するために使用される。与えられた供給物のタイプと大きさに対して、ナイフカッターは一般的にハンマーミルよりも少ない力で済むものである。ナイフカッターは、供給物のtramp metalにより損傷を受けやすいということと、定期的にナイフの取り換えが必要

であるという欠点を持っている。

ハンマーミルとナイフカッターの両方の特徴を組み合わせた2段階操作による細断機も、利用可能なものである。例えば、ナイフカッターより荒けずりなハンマーミルが第2段階として使用されるのに対して、ナイフカッターが、第1段階で使用されるかもしれない。

ハンマーミルとナイフカッターの両方により細断された廃棄物は、空気輸送にかけやすいものである。プラスチックのような熱に弱い物質に対して、冷却媒体として空気が使用されるので、ミルにプラスチックが付着することは防げる。

Rocky Flatsにおいて、次の4つの細断機を使用した一連の細断試験が代表的な廃棄物を用いて実行された。

- リング型ハンマーを備えた垂直シャフトハンマーミル
- 固定ハンマーを備えた水平シャフトハンマーミル
- 回転ハンマーあるいは刃と静止したかなとこの間で、ゴムチョッパーにより細断された物質は、静止したオリフィス板を通して送られ、オリフィス板を通るときに回転ナイフにより再び細断される。
- 異なるスピードでお互いに反対方向に回転する2つの平行な水平シャフトに据え付けられたカッターの間で、物質を細断する低速細断機。

試験された廃棄物は、紙やプラスチック(PVC, ポリエチレン)並びに廃棄物中には普通見られない様な、チオックス、Pbを詰めたグローブ、HEPAフィルター、水カートリッジフィルター等であった。

最も良好な細断機は低速カッターユニット(前述した最後の装置)であり、それはグローブボックス中に設置して作業をすることができた。(他のユニットは適当な作業空間を得るためにcanyonやhot-cellの中に設置する必要があった。)廃棄物中に存在するかもしれないtramp metalによる損傷を防ぐために細断機は、オーバートルク装置を備えている。同様の細断機がHEDLにおいて試験され、満足な結果を得た。

ゴムチョッパーは、すぐれた成果を示したが、tramp metalによる損傷を防ぐことができないという大きな理由により、考慮されなかった。大きすぎることと、核安全検査のために分解を必要とするということを除けば、垂直シャフトハンマーミルは、すべての点で満足のいくものであった。水平シャフトハンマーミルは、大型パッケージをうまく細断できなかったために認められなかった。

9.3.3 空気による仕分け (Air Classification)

廃棄物の密度の違いを利用した空気による分類は、細断による寸法減少の後に行なえる。主に不燃性(高密度)廃棄物から可燃性(低密度)廃棄物を分類するために利用可能である。

クローズドシステムの空気による仕分けは、都市で発生する廃棄物を不燃性（ガラス、金属など）とエネルギー源として再利用されている可燃性（紙、プラスチックなど）に分類するために使用されているが、核施設のプロセス廃棄物の取り扱いに対しては今まで使用されなかった。放射能と処理施設の作業規模の違いを除いては、核燃料サイクル廃棄物と都市廃棄物の間には大きな違いはない。

焼却システムへ可燃物を供給するための空気による分類システムの概略図を図 9-2 に示す。手による仕分けは、分類システムに供給される廃棄物から tramp metal をおおよそ 75% 取り除くということが推定される。それから廃棄物は、細断され分類装置に導かれる。機械的な危険度が最も少ない空気流量速度のコントロールにより分類がおこなわれる。空気による分類は、わずかな負圧と室温のもとで作業すべきである。tramp metal や他の不燃物から可燃物を分類するために、約 500～600 m/min の空気速度が必要である。可燃物は空気の流れにより、サイクロンまで運ばれてそこで取り除かれ、空気は分類装置(classifier)でリサイクルされる。大きな密度をもつ物質は、空気の流れと反対方向に落下し、定期的に取り除かれるためにホッパーに集められる。

空気による分類システムは、Rocky Flats において開発中である。流動床焼却炉プロセスを支持する 2 つの装置が計画されている。1 つはパイロットプラントに対してであり、他の 1 つは建設中の実証プラントに対してである。試験は模擬（非放射性）廃棄物でおこなわれた。これらの装置のどちらも実規模プラントのスクラップやくずを処理するであろう。満足のいくパイロット規模での運転は、1976年に確認し、商業規模の運転は1977年に確認すべきである。

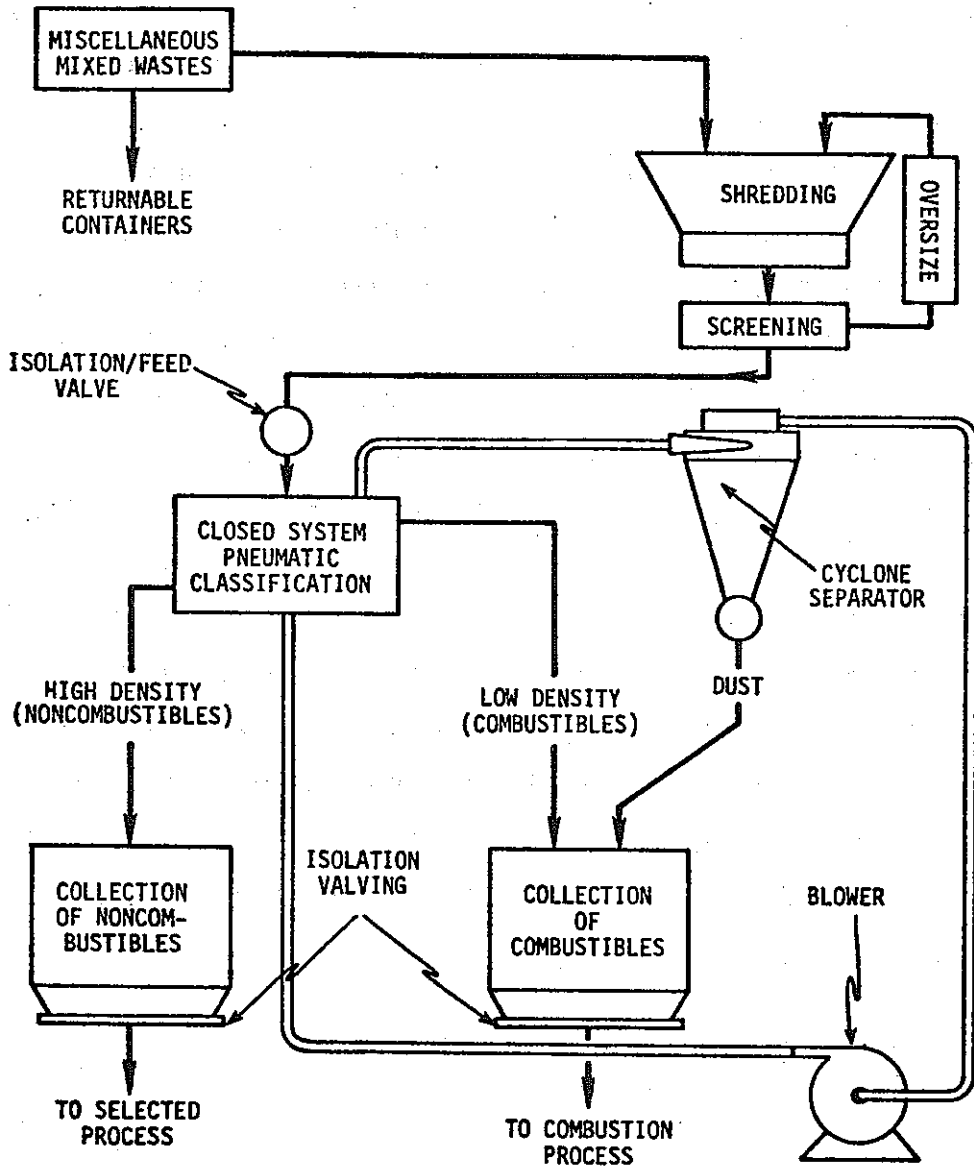


FIGURE 9-2. Air Classification System for Introducing Combustible Feed into a Combustion System

9.3.4 圧縮と圧縮包装

圧縮とは、廃棄物を飛散の危険性がない状態で取り扱えるパッケージにするまで、機械的に減容化処理することである。この問題は詳細に再検討された。^(11, 53) 産業界では、いろいろな術語が使用されているので、圧縮包装はしばしば圧縮と同意語であると考えられている。圧縮においては、廃棄物は容器（例えば 200 ㍉ドラム缶）の内部で圧縮され、それからふたをされる。しかしながら、圧縮包装は普通、廃棄物を圧縮しふくれあがらない様にひもでしばる。すなわち圧縮包装は、さらに処分するためにパッケージにすることもできる。

核燃料サイクル施設からの低レベル固体廃棄物の多くは、圧縮できるものであり、紙、プラスチックやゴムの小片、ウエス、ガラス製品、そして小さな金属物質が、このカテゴリーにはいる代表的なものである。圧縮処理法は次のものに対しては適用できない。

- 減容しても取るに足らないほど密か、あるいは固い物
- プレスに損害を与える物（例、プレスの底とへさきの間にはさまって動かなくなるほど長い金属物）あるいは、容器をつきさしてしまう物
- 自然発火するような物質や爆発性の物質
- 含水率の高い廃棄物

応用性と利用可能な空間により、水平な ram を備えたプレスか又は、垂直な ram を備えたプレスが使用される。使用される圧力は必要とする減容比に応じて、 $30 \sim 150 \text{ Kg/cm}^2$ の間で変化する。おのおのの廃棄物の減容比により、発端圧力領域が決定する。このように発端圧力領域以上の圧縮圧力は、作動圧力領域での圧縮と比較したときに、ただわずかな体積増加を示すだけである。

平均的な物質については、減容比が最大となるには、およそ 65 Kg/cm^2 の圧力を必要とするが、一般的には $30 \sim 50 \text{ Kg/cm}^2$ の圧力が適当であるということが系統的な試験により判明した。⁽¹¹⁾

代表的な廃棄物について、 30 Kg/cm^2 の圧力で圧縮すると 2～5 の減容比を得る。一方、 50 Kg/cm^2 の圧力で圧縮すると 5～15 の減容比を得る。圧縮された廃棄物から得られる減容比は、加えられる圧力、廃棄物の全体的な密度、圧力が取り除かれたときの廃棄物のもどりにより異なる。もどり（springback）は圧縮される廃棄物の弾性により、生じるものである。廃棄物が大きな弾性を持つほど、もどりは大きくなり、減容比は小さくなる。もどりにより生じる体積増加は、圧力が取り除かれてからの最初の 2、3 分間が最も顕著である。圧縮包装を行なうか又は、圧縮する前に薄い肉厚の缶の中に置くことにより、もどりは顕著に減少できる。圧縮された紙あるいは、半弾性物質のようにふるまう他の廃棄物から生じるもどりも、より高い圧力を応用したり、長時間にわたり加圧することにより減少できる。

圧縮は、廃棄物中に含まれる空気を追い出すので、空気汚染の危険性を生じる。それ故、

追い出された空気を外へもらさないための予防策をとらなければならない。TRU汚染廃棄物、あるいは Be のような有毒な物質を含む廃棄物に対しては、圧縮装置は換気フード内に置かなければならない。重大な場合でない限り、換気フードは、十分圧縮プロセスによって生成するエアロゾルを十分に取り除くことができる。

代表的な乾燥廃棄物の圧縮機が図 9-3 に示されている。それは、垂直に下方に作動する ram を備えた水圧系、輪郭をつけた支持板、装荷テーブルを備えたわくと安全囲い、換気ファンやゲージ、そして調節器を備えたフィルター系から成り立っている。ドラム缶のある空間は、ラフフィルター、H E P A フィルターの順に空気を通し、作り付けのファンにより排気される。

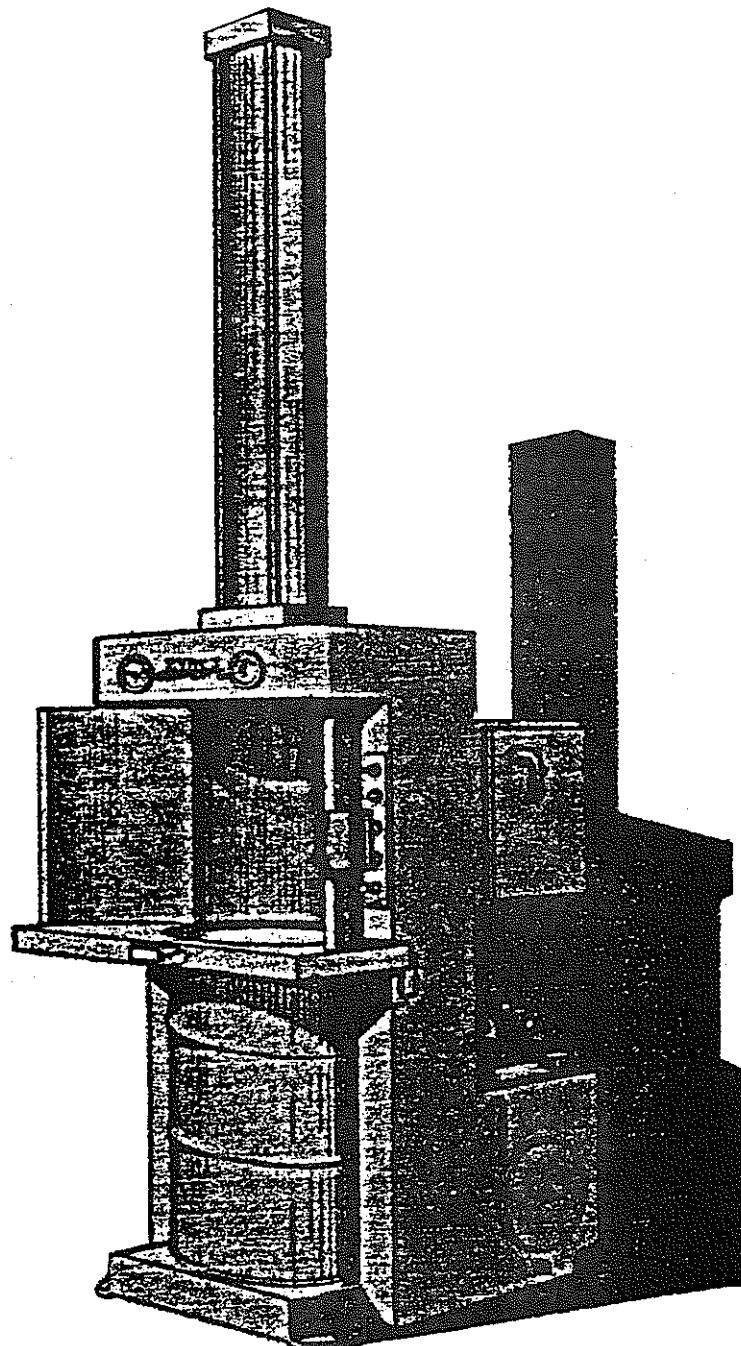


FIGURE 9-3. Drum Compactor for Dry Wastes
(Courtesy Stock Equipment Company)

9.4 これからの焼却プロセス

焼却は原理的には簡単なものであるが、付帯設備運転上の技術に代表されるように、多くの技術的な問題がある。AECの報告書(1970年)に、焼却炉の運転に関して、本質的な欠陥ではないが、技術的な問題点が報告されている。

- ・フィルターやその他の廃ガス処理設備の閉塞を誘因する、焼却炉から出た廃ガス中の有機物の問題
 - ・不適當な洗浄塔の使用から生ずるHEPAフィルターの交換頻度の増大
 - ・焼却される廃棄物および焼却プロセスから生ずる固形残渣の取り扱いミスによる汚染の拡大
- 一般に焼却装置は期待された性能を発揮していない。また、その保守費用は高くなっている。米国ではこれらの問題を軽減するため種々の焼却プロセスの開発が行なわれている。放射性可燃物を安全で効率よく焼却する技術もまもなく実用化されるであろう。

9.4.1 焼却システムの概要

可燃性固体廃棄物の燃焼あるいは焼却処理において一つの廃棄物処理システムとして構成するには、数種のプロセスあるいはユニット操作の組み合わせが必要である。これを図9-4および次項で述べる。

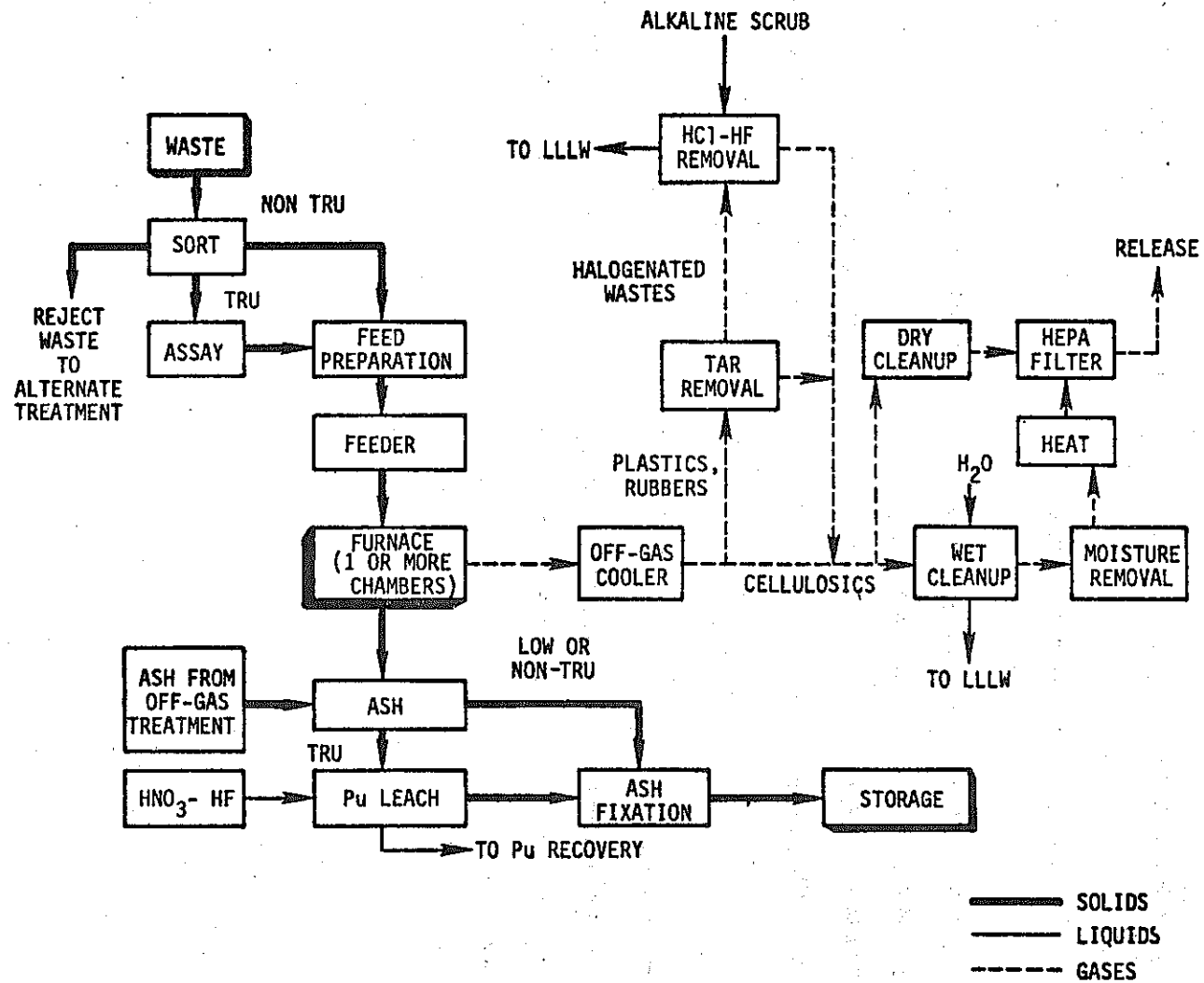


FIGURE 9-4. Conventional Incinerator Flow Diagram

焼却システムは廃棄物の組成や汚染度合を主要因として設計される。これらの要因の影響について以下に記述する。

セルローズ類

純セルローズ類を供給物とすることが、焼却システムの設計およびその運転の最低必要条件である。他の望ましくないものが焼却システム系内に入らないようにするための仕分け作業が事前に必要である。

一般に、現在の実用化されている技術は、組成が均一な低放射性のセルローズ類廃棄物の焼却に直接適用することができる。また、どんな処理容量の焼却炉でも製作できる。

プラスチック類とゴム類（ハロゲン含有物は除く）

プラスチックの熔融物は、供給系や炉の閉塞を起こすという問題があり、熔融プラスチックはフィーダーに固着し、供給系での火災の原因となる。従って、供給系には水スプレーもしくは不活性ガスシステムの消火機構が必要である。

メッシュの細かい火格子を使用した炉では熔融プラスチックによる火格子の閉塞が起こり、逆にメッシュの粗い火格子を使用した炉では不完全燃焼のプラスチックが溶け落ちて灰に混入する。火格子を使用しない炉では炉圧部の取り出し口を閉塞するため、段状もしくはさら型の火格子を使用したり、取り出し口を炉の底部の燃焼床よりも高くする。

プラスチック類やゴム類は、大部分のセルローズ類よりも焼却温度が高いという問題がある。従って燃焼時の圧力変動を防ぐために、他の廃棄物と微細仕して（時折効果的でないことがある）、均一に混合してから焼却される。この場合でも、酸素の供給が不十分であると低分子炭化水素の熱分解やクラッキングを起こし、酸化困難なタールやススを発生する。オフガス系に同伴されたススはオフガス清浄系の閉塞やフィルター火災の原因となる。

従って、混合廃棄物の焼却には、不完全燃焼することを考慮して、フィルター交換のし易さとフィルター火災について留意する必要がある。

炉の設計およびオフガス系に同伴されたススの除去について、次のような改良が行なわれている。

プラスチック類やゴム類の良好な燃焼を得るための多段燃焼室炉で、充分な滞留時間、充分な酸素の供給と高温度での運転条件が採用されている。ある施設では酸化促進のために最終燃焼室にシリコンカーバイト製のバッフルやベッドを採用している。

含ハロゲンプラスチック類、ゴム類

含ハロゲン廃棄物の焼却を行なう時は、塩化水素やフッ化水素などを含むオフガスによる腐食を最少限にするための充分な注意が必要である。

通常、オフガス中の酸性成分の除去には湿式法が採用されている。腐食を防ぐために機器の材質にはグラファイト、FRP、チタン、ガラス、ポリエチレン等を使用する。しかし、

これらの多くは高温での使用が困難であるため、系内に入る事前に、ガスは冷却させる。

他に炭酸ソーダペレットの充填層で塩化水素を除去する乾式法がある。この場合には、流入ガスを露点以上の温度に保つ必要がある。

他の廃棄物

焼却されることが少ない廃棄物についても、特別な設計または操作上の考慮が必要である。

TBPは P_2O_5 エアロゾルを発生し、その除去は極めて困難である。ナトリウムやバナジウム塩は炉の耐火物を損傷する。含鉛グローブは充填剤(Pb_3O_4 , MgO , Al_2O_3 , SiO_2 , ZnO , TiO_2)を含んでいるため、約 $650^\circ C$ で共融物を形成する。スルホン酸ポリステレン系のイオン交換樹脂の焼却を行なうと亜硫酸ガスが発生する。実験室で発生する種々の組成の液体(水溶液および有機溶媒)でも少量であれば、焼却炉で処理することができる。これは液体と固体廃棄物とを同じ燃焼室で同時に焼却することで可能になるのである。

放射性物質による汚染

放射性廃棄物の焼却処理を行なうと、当然、系内が汚染する。従って装置の設計にあたっては補修時および定常作業時における個人の被曝線量を低減化するために、充分なしゃへいとエアロゾルの閉じ込めを行なう必要がある。

核燃料再処理および加工工程で発生する廃棄物の中には ^{239}Pu のような核分裂性生成物を含有するものがある。

これらの廃棄物の処理を行なう時は安全設計上臨界管理についても考慮を必要とする。この臨界安全には厳密な計量管理、安全形状寸法、警報器および中性子毒の方法が採用されている。

9.4.2 供給物の調整

焼却されることになった廃棄物は、仕分けと検査とを行ない、システムに合わない廃棄物は供給計画から除かれる。これには、前章で述べた手による仕分け、細断、空気を用いた分級などが適切に選択される。

廃棄物を焼却システムに投入する前に焼却可能な状態にする必要がある。この供給物の調整のなかで重要なことは焼却システムの選択と廃棄物の組成調整である。細断による減容化は、多くの焼却システムの先行条件として欠かせないものである。仕分けと細断の技術は、9.3章ですでに述べた。

9.4.3 供給方法

供給方法は手動による回分式供給から自動仕分け，分類，混合，細断，空気式供給を備えた連続システムにいたるまで幅広く行なわれている。供給方法は供給する廃棄物の特性および焼却システムの操作性と設計を考慮して決定されるが，よく用いられる装置の概要を次に述べる。

回分式供給（手動）

この最も簡単な供給システムは，ウラン取扱い施設でスクラップ処理に広く用いられているが，数時間を要するような大きなバッチのものが手動で大型焼却炉に装荷され完全に焼却される。完全に焼却した後，新しいバッチを装荷するというサイクルを繰り返し行うことになる。

半回分式供給

半回分式供給は少量のバッチをどんどん燃焼室に投入していく方法である。この方法は焼却プロセスの制御が容易であり，灰の性状が取扱い易いものであり，燃焼ガスの変動を少なくすることが出来るのでオフガス処理が容易になる。

供給は，上部エアロックから落下させる方法と，ラムフィーダーで側面から供給する方法があり，開口部からの空気の流入変動を最少限にし，フィーダーへの逆火を防ぐため2重ドア式エアロックを採用している。空気の流入が変動すると燃焼室およびオフガス系の運転が不安定になる。この方法は供給物を密閉された装置の中で取り扱うので放射性廃棄物の処理に適している。

連続式供給

連続式供給は燃焼プロセスの制御とその安定化の点で優れている。また，供給物の組成変動を減少するために供給物の細断，混合操作および焼却システムの安定化のための機構と組み合わせて使用することができる。

供給はコンベア，スクリーフィーダー，あるいは空気輸送でおこなわれる。空気式供給方法では炉の容積に対する処理能力が増大し，燃焼効率が上がる。しかし，前もって廃棄物を密封化した利点が失われ，供給操作系が機械的に複雑化するという欠点がある。また混入金属や装置に損傷を与えるものを除去するための仕分けが必要である。

9.4.4 焼却灰／残渣の取り出しシステム

焼却灰や残渣の取り扱いと取り出しシステムは，くま手による手動操作から，全自動の機械操作にいたるまでいろいろあるが，全システムの特徴と必要性に合わせて選定される。

次に放射性的焼却灰の取り扱いに用いられている方法について述べる。

手動による取り出し

第一燃焼室あるいは、灰貯めピットから灰を取り出し容器に入れる作業はシャベルやくま手で行われる。これは最も簡単な方法で、処理容量の小さい場合に用いられる。作業員の保護のためにグローブボックスもしくはそれ以外の同様の隔壁が必要である。

空気式取り出し

通常の真空掃除機あるいはその改良型が焼却灰を取り扱うのに使用される。特に、運転後の計量管理や臨界管理が必要な場合に有効である。

しかし、この空気式取り出し法では掃除機から排出されるガスの処理が必要であり、これには既存の焼却オフガスシステムが利用できる。しかし、焼却灰中に存在するクリンカーのような大きなものや重量物には適応できない。

自動取り出し

移動格子、回転格子やロータリーキルン焼却炉などの自己清掃型のものがあり、高放射性廃棄物の処理には複雑な装置が付加される。焼却灰はラムフィーダーによって半回分式に受皿や容器に取り出す方法が採用されている。

9.4.5 オフガス処理

廃棄物の組成、焼却プロセス、型、汚染度によってオフガス処理の様式が決定される。供給物の組成と燃焼生成物の腐食性によって、装置の材質が決定される。換言すれば、この材質上の問題が洗浄装置の選定の要因となる。

環境にガスを放出するために、燃焼ガスの放射線量と核種に応じて、十分な除染性能が必要となる。

オフガス処理には湿式法および乾式法がある。

湿式法ではフライアッシュと酸性蒸気を同時に除去できる洗浄塔が使用される。

乾式法ではフライアッシュやエアロゾルの除去にサイクロン、電気集塵装置、フィルターもしくは、こちらに類似した装置が使用される。

焼却炉の第1燃焼室あるいは第2燃焼室から不完全燃焼によって生ずるススやタールの除去には、特殊フィルターが有効であり、代表的な例を次項に記述する。

湿式法

フライアッシュや酸性蒸気の除去に、オフガスクラバーとして、充填塔と噴霧室が使われている。

スクラバー用の循環水として、水が使用されることが多いが、アルカリ水溶液の使用は、酸を中和して除去する点でより効果的である。

排出ガス中のエアロゾルを除去する装置と組み合わせることにより、スクラバーの効率を上げ

ることができる。

Monsanto Company製のBrink Mist Eliminatorはこの処理を目的にテストされた装置の中で有効なものの一つであるが、閉塞せずにフライアッシュが除去可能かどうか実証されていない。この装置を備えたスプレースクラバーは、Mound Laboratoryのサイクロン、焼却炉開発計画に基づいて試験されている。

エアロゾルの除去には、ベンチュリースクラバーのような強力なスクラバーが有効であり、ミクロンからサブミクロン程度の粒子の除去も可能で、使用エネルギーに応じて除去効率が上がる。

米国で開発中の焼却装置の中には、オフガスの一次処理にベンチュリースクラバーを使っているものがある。

文献54にスクラバーの理論と実際について記載されている。

乾式法

乾式法の利点は、湿式法のように二次廃棄物である廃液の発生しないため、その処理が不要であることである。

しかし、乾式法でも効果が良くなるほど生ずる閉塞の問題と酸性ガスの除去が出来ないという欠点がある。従って、多くのシステムは湿式法と乾式法を組合せて両方の利点を生かしている。フライアッシュを除くためのサイクロン、酸性ガスを除去するためのスクラバー、ガスを乾燥するための凝縮器と加熱器、エアロゾルや残渣を除去するためのアブソリュートフィルターから構成されている除去装置が典型的な例である。

乾式法的具体例を次に示す。

サイクロン

サイクロンは遠心力を使ってガス渦流から粒子を分離して取り出すものである。

これは、10 μ 以上の粒子の除去に有効であり、経済的であるため、一般工業界で広く使用されている。その経済性は、オフガスの一次処理にサイクロンを使用することで以降のオフガス処理への負荷を低減化していることにより得られる。しかし、サブミクロン程度の粒子除去には有効でないため、他の有効な装置と組合わせて使用される。サイクロンの設計理論および応用についての詳細は引用文献(55)に記述されている。

電気集塵装置

大規模な石炭火力発電所や溶鉱炉の排煙中のエアロゾル除去に電気集塵装置が使用されていて、⁽⁵⁶⁾その効率は95~99%である。圧力損失が少なく、所要エネルギーが少ないため大規模な処理(3000 m^3/min)に適している。

その他の電気集塵装置の利点として

- 1) 微粒子でも効率が良い

- 2) 乾燥状態で回収可能
- 3) 高温(550℃以上)でも使用可能
- 4) 操業費が安い

が挙げられる。

電気集塵装置の欠点として

- 1) 実態に合った設計が必要
- 2) 使用条件が設計基準から変動した場合の効率低下が急激であること
- 3) 建設費が高価
- 4) 高圧電源系の安全確保

がある。

電気集塵装置のような除去法の場合には、燃焼オフガスの組成変動によるプロセスの不安定性、高価な建設費、システム柔軟性の欠如のために、放射性廃棄物処理システムとしては不適である。ただし、微粒子の除去効率が良い電気集塵装置と粗粒子の除去効率が良いサイクロンなどを組合せ使用の可能性はあり、放射性廃棄物処理システムに使用して99.99%の除去効率を得たという報告もある。⁽⁵⁷⁾

バッグフィルター

市販のバッグフィルターでもエアロゾル除去に有効であり、ろ過面積の大きい場合(0.3~3.0 m² per m³/min), タールの除去も可能である。
大型バッグフィルター、ブローバッグ方式の保守として、バッグの交換やバッグの破損があり、放射性廃棄物の処理に適さない。

キャンドルフィルター

セラミックや不燃性金属製のキャンドルフィルターが燃焼オフガス中のススの除去用に開発され、ヨーロッパや日本で研究されている。貯まったススは適宜焼き取る方式である。⁽²⁴⁾

焼結金属フィルター

多孔性金属フィルターも放射性燃焼オフガスの清浄システムに使用可能である。⁽³⁷⁾ 多層構造にすることで通気抵抗はバッグフィルター同程度と良好であり、500℃以上の高温に耐えるため、バッグフィルターよりも有効である。

これはススの除去にも使用できるが、不完全燃焼により生ずるタールによって目詰まりを起こす可能性がある。

サンドフィルター

燃焼オフガス中のススやタールの除去にサンドフィルターを使用する方法もある。

Belgonuclaireで使用している移動床方式は、砂を仮焼して再生使用する方法を採用している。⁽²⁶⁾

HEPAフィルター

HEPAフィルターは0.3 μ の粒子での除去率は99.95～99.97%であり、他の高性能フィルターと同程度の効率である。その欠点は高濃度ダストを吸引した時に起こる目詰まりの問題であり、それは回避できず、また清掃もできない。またフィルターを設置するにあたって、圧力損失を考慮して、炉室からの圧力が低下する前に設置する必要がある。

高い除去効率が要求される部門で、HEPAフィルターが試用され、原子力工業界では使用されている。高濃度ダストに使用される場合や自由な変更が危険もしくは不便な場合にはHEPAフィルターに通す前に清浄工程もしくは粗粒子除去を行なう。

乾式フィルターの適応例は13章と文献58に示す。

9.5 焼却技術

如何なる焼却炉においても完全燃焼するためには、次のような条件が必要である。

- 1) 適切な滞留時間
- 2) 適切な温度（完全燃焼を促進するため）
- 3) 乱流（良好な混合を促進するため）
- 4) 十分な酸素

以前には、構造材の砕けやゆがみ、不完全燃焼（それは灰中に多量のCを含んだり、またオフガスの洗浄系に問題を起こす）、目詰まり、焼却炉燃焼室外での燃焼（供給側への火炎の照り返しや、オフガス洗浄系でのすすの燃焼）、不適当な灰処理とオフガス洗浄系、そして腐食（特に廃棄物中にSやハロゲン化合物が含まれているとき）などが問題であった。

現在我が国では、明らかにされた問題点を軽減するために特別な改善策を実証し、適用するために広範囲を開発計画が進められている。U.S.Aで開発中の焼却法の概要を3つの稼動中の装置（General Electricの渦流焼却炉、ARHCOの移動火床型焼却炉、Windscaleで使われている熱分解型焼却炉）の検討を通して以後に述べる。これらの装置は放射性廃棄物の焼却のために独特の特徴を持っている。これらに加え、汚染廃溶媒を焼却するために特に考えられた2つの焼却炉についても述べる。

9.5.1 焼却炉の型式

1つの燃焼室を持つものから複雑な複数の燃焼室を持つもの、また流動床、移動火格子式、ロータリーキルン型のものなど広範囲を多数の型式の焼却炉が使用されている。

焼却炉は共通した基準ではないが種々の特徴により分類される。たとえばオープンピットまたは複式燃焼室といった形による分類、供給される空気が調節されるか過剰であるかによる供給空気量による分類、回転式または移動火格子式といった動作部分による分類などがある。与えられた焼却炉はこれらの分類法のうち1つのみに着目するだけで通例明らかにされ

る。原子力工業界で使われている装置型式に関しその概要を次に述べる。

過剰空気型焼却炉

やや古い型の単一燃焼室型焼却炉は燃焼に必要な空気量に対し過剰の空気を供給する。過剰空気型焼却炉は現代的な空気流量調節型焼却炉を使用する場合に比較し、焼却温度が低くフライアッシュのオフガス中への同伴が大きい。

空気流量調節型焼却炉

空気流量調節システムでは固体廃棄物が完全燃焼するために複式燃焼室を採用している。供給された廃棄物は第1燃焼室に入り、そこで準化学量論的に必要な空気量の存在下で燃焼する。不完全な酸化、揮発生成物は第2燃焼室へ移動し、そこで過剰空気により完全燃焼する。この操作方式では第1燃焼室の燃焼雰囲気中に乱れを生じないのでフライアッシュの同伴を最小にする。

最もしばしば使われる型式は、2つ重ねられた水平円筒型である。小さなものは第2燃焼室を持たず、二次燃焼もしくは気相の燃焼に煙道を用いる。大抵のものは燃焼室の温度調整のために複数の天然ガスバーナを持っている。

熱分解型焼却炉

熱分解型焼却炉では可燃物は酸素不足の状態では熱分解され、揮発性ガスを発生し、続いて過剰空気と準化学量論的に化合して第2燃焼室で燃焼する。熱分解炉を効率的に操作するためには燃焼室に供給する空気量を正確に調節する必要がある。

渦流型焼却炉

渦流、または浮遊粒子燃焼型焼却炉は、固定された耐火材を内張りした円筒からなり、その中に細かく砕かれた廃棄物が空気流で供給される。過剰空気（化学量論的に必要な量の～300%の空気量）が接線方向に吹き込まれ、浮遊廃棄物は焼却炉の中でらせん状の燃焼パターンを描いて燃焼する。燃焼室内を高速で流れる過剰空気は多量のフライアッシュの同拌を生じるため大きなガス処理系を必要とする。当初燃焼速度を早くするために設計されたこの焼却炉は、製材工業で木材や切りくずを燃やすのに使われている。焼却炉の成功の要因は空気式輸送による供給法を採用するため、容易に細かな粒子に細断、粉碎できるような機構を応用したことにある。

流動床型焼却炉

細断された廃棄物は垂直な不活性物質の流動床に投入される。流動床システムは攪拌を十分に行なうので、混合と燃焼効率を改善する。又、流動床システムでは不活性物質が流動しているので熱分散特性が改善され、温度調節が容易になる。ペレット状の Na_2CO_3 を不活性（流動）床物質に用いると、 HCl のような酸性の燃焼生成物を中和して良い効果を与え、焼却炉やオフガス処理系に安価な構造材の使用を可能にする。

ロータリーキルン型焼却炉

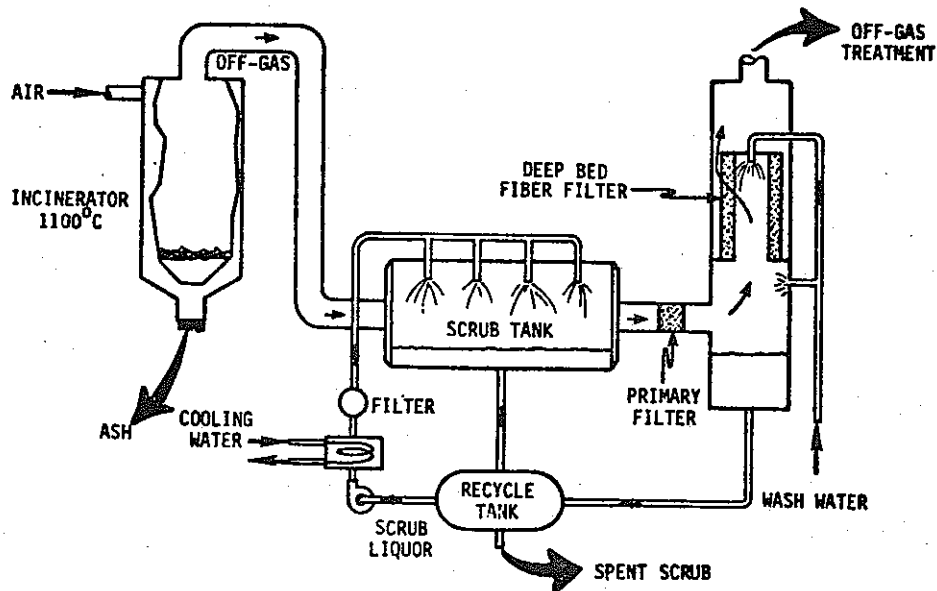
主燃焼室は水平に傾いた円筒で、燃焼効率向上のために円筒は長軸の回りに回転して、中の燃焼物をかき混ぜる。この装置は燃焼室から灰を確実に除去できるので Pu の在庫管理を確実にするのに大変都合がよい。これらの利点をうまく生かすには複雑な作動機構と効果的なシールを必要とする。このシールは密封の問題上、燃焼空気の調節の難しさを引き起こす。

移動火床型焼却炉

移動火床型や回転火床型の焼却炉は火床が動いて廃棄物を移動し、新しいまだ燃えていないものを常に燃えやすくする。移動火床型焼却炉もロータリーキルン型焼却炉と同様に Pu の在庫管理に好都合な確実に灰除去をする。このシステムでは内部作動部のため他の型式の焼却炉よりもメンテナンス上、重要な問題がある。

9.5.2 サイクロン型焼却炉 (Mound Laboratory)

プロセスの要約



プロセスの概要：可燃性廃棄物は垂直な円筒状燃焼室で空気攪拌を用いてバッチ式で燃焼される。オフガス中の酸、ガス、フライアッシュ等は灰や粒子を除去するために洗浄集塵や除塵をされる。開発中のプロセスの変更には燃焼室の代わりに 0.2 m³ 貯蔵ドラム缶を使って焼却する。

対象となる廃棄物：全ての可燃性廃棄物

前処理：バッチプロセスでは、仕分けと細断が望ましい。ドラム缶代用焼却には前処理は必要としない。

最終生成物の形状：熱的，放射能的に安定な乾燥灰とオフガス洗浄系から出る少量の湿った灰。

プロセス流体：燃焼ガスと中和洗浄廃液

原理的な利点：焼却は貯蔵容器（0.2 m³ドラム）で如何なる前処理も必要とせずに直接行なわれる。

問題点：スクラバー廃液の容量と処分に関し大きな制限がある。

開発の状況：非放射性用パイロットプラントで35 Kg/hr以上のバッチ操作で²³⁸Puを入られた廃棄物（<100 nCi/g）の試験が行なわれた。ディーブベッドファイバーフィルターによる除塵後のガス流体に，放射能は検知されなかった。この技術は商業用プラントとして1978年に利用可能となるだろう。

9.5.2 サイクロン型焼却炉（Mound Laboratory）

Mound Laboratoryでは1965年にPu回収のために可燃性廃棄物の焼却を始めた。1973年には低放射性可燃物減容化を目的として焼却炉の開発に直接力を注ぐようになった。焼却炉の設計に必要な情報を得るために1974年にパイロットプラント用装置の詳細設計を始めた。パイロットプラントは，1975年初頭に完成し35 Kg/hr以上の処理速度で非放射性廃棄物の処理をした。

プロセスの運転条件と特徴

焼却炉は渦巻いている空気とともに廃棄物を垂直燃焼室内で燃やす。過剰の空気は廃棄物と十分な接触をするだけでなく焼却炉の外壁を冷却するのにも役立つ。布，紙，ポリエチレン，ビニルクロライド，ゴムのような可燃物は約1100℃で焼却された。可燃性廃棄物はステンレススチール製の燃焼室に手動投入されるかまたは代わりに前もって装荷された0.2 m³ドラム缶が燃焼室として使われる。どちらの方法でも焼却炉システムは高価な構造材や補助燃料を必要としない。このシステムは基準化された設計にもかなう。燃焼室とそこに据え付けられる代用ドラム缶は中央オフガス処理システムによって換気される。

焼却炉からのオフガスは，まずスクラバーで冷却され中和される。それからオフガスはHEPAフィルターに近い集塵効率を持つ洗浄水注入，自己洗浄型ディーブベッドファイバーフィルターで除塵される。スクラバーとフィルターからの使用済洗浄液は普通のろ過により残留固形化物を除き，リサイクルされる。集塵された固形化物は焼却後に残る灰とともにその後Pu回収のための処理を施されるか，または固定化され貯蔵される。

開発の状況

このシステムは²³⁸Puを含んだ物質で首尾よく試験された。プロセスの最適条件が追求されている。試験は種々の割合の繊維，ゴム，プラスチックを含む廃棄物をバッチ操作により

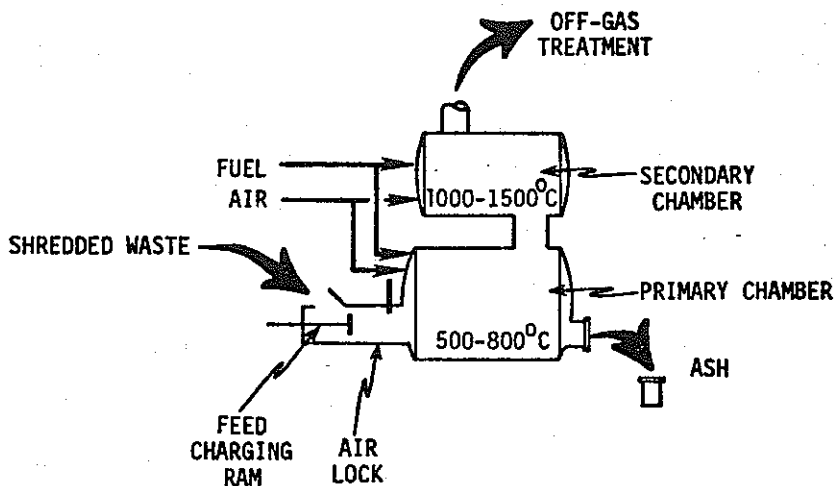
35kg/hr 以上の処理能力で進められた。

主要な開発事項

第1の目的は貯蔵を必要とする廃棄物の充分なる減容化のために乱流空気焼却炉システムの開発をすることである。基準化および遠隔操作化された乱流空気焼却炉システムのパイロットプラントは1977年中に設計、建設する。廃棄物収納ドラム缶の再利用を含むパイロットプラントの設置は1978年初期までに完了する。パイロットプラントは予期し得ない問題点を明らかにし商業用プラントの設計に必要な工学的データを蓄積するために年に9ヶ月間連続運転する。パイロットプラントは放射性汚染廃棄物で試験を行なう。

9.5.3 調整空気型焼却炉 (LASL)

プロセスの要約



プロセスの概要：可燃性固体廃棄物は空気量が少ない燃焼室で500～800℃で焼却される。揮発性成分や同伴固形化物は1000～1500℃で操作される空気量の多い2次燃焼室でさらに酸化される。

対象となる廃棄物：すべての可燃性廃棄物。

前処理：燃焼の安定性を良くするために廃棄物の仕分け，細断，混合。

最終生成物の形状：熱的，放射能的に安定な乾燥灰。

プロセス流体：燃焼ガスと酸性または中和されたオフガスクラバー廃液。

原理的な利点：主燃焼室へ入る空気量の制限は灰の同伴を減少するとともに良好に調節した燃焼を生ぜしめる。

問題点：酸性ガスによるオフガス系の腐食とオフガス洗浄系の複雑さ。

開発の状況：空気流量調節型焼却炉はLASLで設置され非放射性物質で試験が行なわれている。プラントの操業規模でのシステムの適合性を実証するために装置の始動計画が1977年に予定されている。このシステムにおける処理能力は45kg/hrである。

9.5.3 空気流量調節型焼却炉 (LASL)

商業的に利用可能な空気量を少なくして燃焼する型式の焼却炉を放射性廃棄物に適用するために必要な改良点を、明らかにするための試験が、LASLで行なわれている(3, 34, 35)。焼却に関する研究はTRU汚染固体廃棄物処理プロセス開発計画の一部である。

プロセスの運転条件と特徴

LASLの空気流量調節型焼却炉は、上下に重なった2つの燃焼室からできている。1次燃焼室は直径1.8m、長さ約2.4mの円筒からなる。2次燃焼室は直径約1.7m、長さ約2.1mである。廃棄物はラムフィーダーで1次燃焼室に供給され、そこで500~800℃で空気量を少なくした条件下で焼却される。

焼却炉の外筒は炭素鋼でできている。高密度、2000℃プラスチック型耐火材(鑄造耐火物に比べ容易に補修でき耐熱性がある)が両方の燃焼室に内張りされている。耐火材と外筒の間には珪物綿の断熱材が入っており、外側の表面温度を120℃以下に低減する。焼却炉の外筒の内側は燃焼生成物の酸から守るためクロロスルフォネイトゴムを含有する工業用しゅくい層で5mmの被覆が施されている。試料(採取)口と観察用のぞき窓は両燃焼室にある。遠隔操作で十分な余裕をもたせるために特大の搬出入ドアが取り付けられている。

燃焼室からのオフガスは供給される空気と混合され、2次燃焼室で燃えなかった揮発性成分と同伴固形化物を1000~1500℃でさらに酸化する。両燃焼室は補助天然ガスバーナーで加熱される。放射性物質が燃えなかった場合、2次燃焼室からのオフガスは耐火材内張りや施された煙道内に直接廃気されるか、または種々の試験用オフガス洗浄系で捕集される。試験される最初のオフガス洗浄系は、順に冷却チャンバー、可変首部を持つベンチュリースクラバー、充填塔、水冷凝縮機、ヒーター、粗フィルター、2つのHEPAフィルターを有している。オフガス洗浄系は装置を取りはずしたり、新しい装置を加えたりすることができるよう設計されている。こうして選択された構成機器が全体のオフガス洗浄性能を改善するために研究される。

燃焼で蓄積した灰は燃焼室の底にあるすき間を通して落されるか、または燃焼室から取り出される。

開発の状況

空気流量調節型焼却炉は産業廃棄物の焼却にとって実験的な方法である。放射性廃棄物のLASL研究開発焼却炉はブルトニウム施設に設置され、現在非放射性物質による試験が進

められている。施設の Pu 量は 100g に制限される。試験施設は 1) 包装物の分析, 仕分け, 供給装置, 2) 焼却炉, 3) オフガス処理設備を備えている。この装置は汚染廃棄物の実規模焼却を行うために 1977 年に始動する計画である。

主要な開発事項

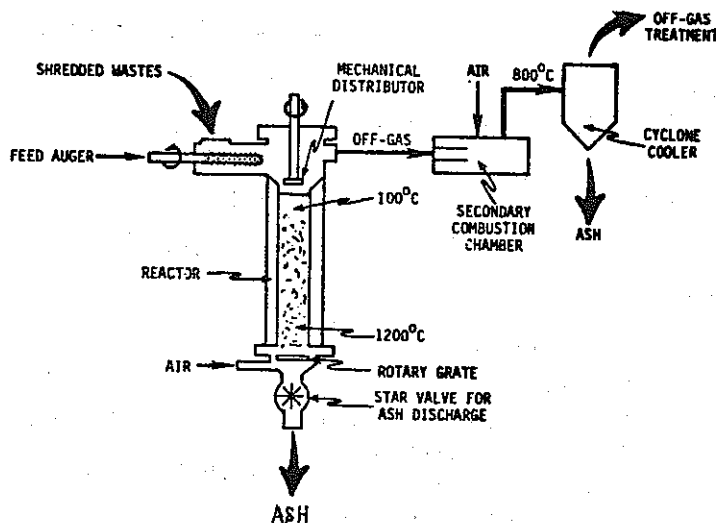
L A S L の焼却炉開発計画においては幾つかの主要な開発目的がある。これらには以下の事柄の確立を含む。

- ・放射性廃棄物を取り扱う上での保護, 安全基準を満たすために必要なシステムの改良。
- ・予想される廃棄物成分の最大限の燃焼を達成するために必要な操作条件。
- ・満足が行く供給法と連続的な灰の除去。
- ・廃棄物の前処理法。
- ・適切な公害対策を取り, また非常に少ない液流体とするためのオフガスの洗浄設備。
- ・Pu 汚染廃棄物の安全な操作条件。

一方, 焼却炉試験計画では始めは非放射廃棄物を使い, 最後に Pu 処理能力と装置の維持性を実証するために TRU で少しばかり汚染された廃棄物を用いる。TRU で汚染された廃棄物の放射能試験は 1977 年に計画している。

9.5.4 熱分解型焼却装置 (P N L)

プロセスの要約



プロセスの概要 : 可燃性廃棄物は固定床縦型レトルト (Deep, fixed-bed vertical retort) 内で空気 (完全燃焼のための化学量論的に必要な量の約 20% の空気量) により

乾燥され、熱分解されて、更に燃焼される。揮発燃焼生成物は2次燃焼室で燃焼される。

対象となる廃棄物：適切に混合されたすべての可燃性固体廃棄物が処理される。可燃性液体の処理も可能な様にプロセスは設計されている。

前処理：仕分けと可能な限りの細断。

最終生成物の形状：無機質の灰。それは他の低浸出性形態たとえばガラスのようなものへの交換に適した特性を持つ熱的に安定なものである。

プロセス流体：燃焼ガス。それは、おそらく排気前にHCl除去のために水またはアルカリ洗浄を必要とする。

原理的な利点：炭素質残留物がそれ自身によるディーベッドの底で実質的に無火炎燃焼を起こし、燃焼損失を最小にする。HClのその場での中和も利点として考えられる。

問題点：流れを防げることなく生成ガス中のタールの分解と、塩化物の処理が行なわれねばならない。

開発の状況：プロセスは非放射能のパイロットプラント施設で15Kg/hrの処理能力で非放射性廃棄物をシュミレートして行なわれた。放射性廃棄物による研究開発は延期されている。

9.5.4 熱分解型焼却装置(PNL)

写真原板のAg回収のための熱分解プロセスの開発が1969年にPNLで始められた。この仕事は環境保護委員会とWashington州のKennewick市の後援による自治体のゴミの熱分解型焼却炉プロセスの開発に応用された。プロセス固有の優れている点は、第1に本質的に灰を含まないオフガスの生成、簡単で安全な操作、TRU汚染固体廃棄物の処理に適用できること等である。⁽³⁸⁻⁴⁰⁾ 原子力産業特有の廃棄物の熱分解に関する非放射性廃棄物での研究は1974年に始まった。このプロセスは固定床ガス化(装置)で木炭、無煙灰、石炭からの都市ガスの連続的製造に何年も使われている技術に基づいている。⁽⁵⁹⁾

プロセスの運転条件と特徴

細断された可燃性廃棄物は高さ2.1m、直径28cmの縦型柱状レトルト上部のロックホッパーとオーガー供給器を通して供給される。縦型レトルトは耐火材内張りの炭素鋼からできている。炭素鋼コンパクターは廃棄物を縦型本体内に押し出しレトルト断面に廃棄物を分配する。廃棄物はレトルト内で固定床(Deep, fixed bed)を形成する。それらは低反応域で空気と炭素質熱分解生成物の燃焼から生じた1200℃のガスと向流接触をし降下するとき、乾燥、熱分解され層の底で灰に変換される。定常状態で炉の廃棄物層は底から上部まで次の領域にある。

・灰の層は約20cmでそれは炉の底にある回転火床とスターバルブから連続的に除去される。

- ・ 次の 15 cm の高さの燃焼域では上部熱分解域における廃棄物の熱分解からの炭素質残留物と空气中酸素の反応によりプロセスの全熱量が発生する。
- ・ 熱分解域は約 50 cm の高さで燃焼域から上昇してくる高温ガスにより廃棄物が熱分解される。
- ・ 40 ~ 80 cm の高さの予熱、乾燥域では廃棄物がレトルト内を降下するにつれ上昇してくる高温ガスにより乾燥予熱される。

廃棄物は初めに空の燃焼室に 5 Kg の火をつけた木炭を投入して、空気を流し細断した廃棄物を入れることによって点火される。廃棄物点火の代用法として熱分解チャンバーの底部に熱素子や外部炉を用いる。

レトルトの上方では、ガスの見かけ線速度は通常 15 cm/sec 以下である。この低流速とまた上部域の廃棄物のろ過作用により灰の同伴は非常に少ない、ガスは熱分解生成物 (HCl, 水蒸気, 炭化水素) と燃焼生成物 (H₂O, CO₂, CO) を伴ない、それらは低熱量ガスバーナーで燃焼される。このガスは、煙突からのガス放出に関する大気放出基準に十分適合するほどの低い煙霧体 (aerosol) であるが、放射性廃棄物のためにナブソリュートフィルターでの処理を必要とする。

熱分解システムは、常にガスの流れに入ってくる塩化物を捕集するために改良できる。固体 Na₂CO₃ を可燃性廃棄物とともに主反応炉に加えると、その場合塩化物の大部分は灰の中に保持される。

開発状況

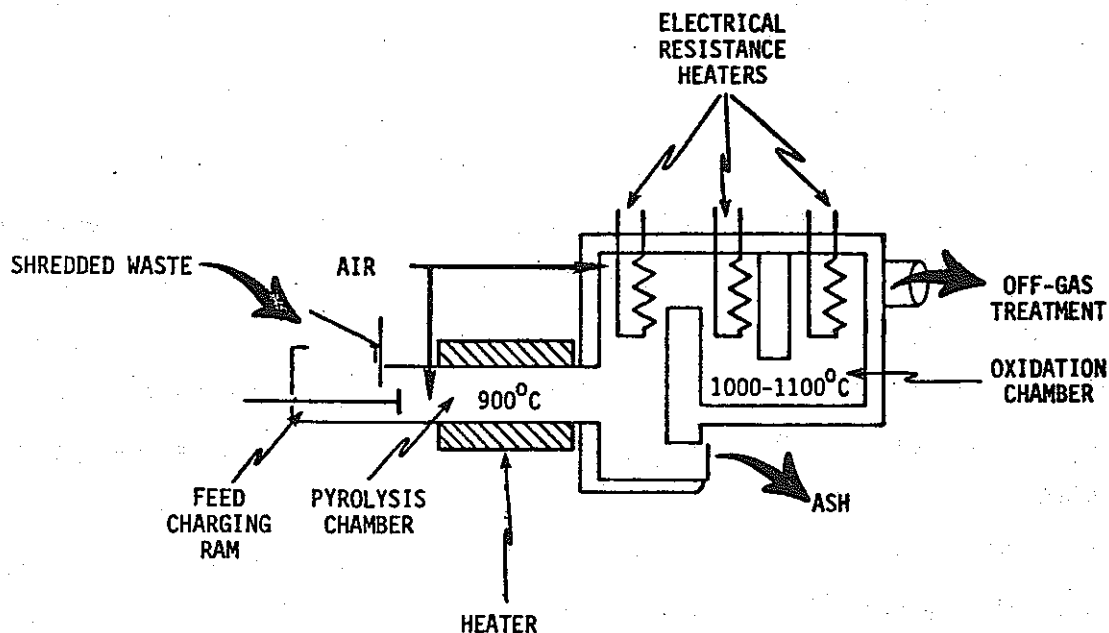
基礎的な熱分解型焼却プロセスがパイロットプラントレトルトを用い 15 Kg/hr の処理速度で、非放射性廃棄物をシュミレートして試験された。高密度、アルミナ耐火材が主反応炉容器の構造材として適切であることがわかった。

主要な開発事項

次の事項の決定のために試験装置の長期間にわたる運転が 1976 年初期までに行なわれる： 1) ガス生成物と灰残留物中の無機物の分布 2) オフガス洗浄系の設計と塩化物除去に関するガス洗浄の必要条件 3) プロセスで生ずるタールの量と特性。灰のガラス固化に必要な事項とガラスの特性は 1976 年までに決定される。熱分解型焼却炉による TRU 汚染廃棄物処理のための研究開発は延期されている。

9.5.5 熱分解型焼却炉 (Windscale, UK)

プロセスの要約



プロセスの概要：細断された廃棄物は空気量の不足した燃焼室内で900°Cで熱分解される。揮発した物質は2次燃焼室へ送られ、そこで過剰空気と結びつき熱電素子により温度測定されながら1000°Cに加熱され完全に酸化される。灰はフィード供給用ラムで熱分解チャンバーからアッシュピットへ集められる。

対象となる廃棄物：すべての可燃性固体廃棄物の適切な混合物。

前処理：仕分けはかさばったものや不燃物を除くのに望ましい。廃棄物の細断と混合は熱分解を改善するので望ましい。

最終生成物の形状：乾燥灰はより安定性と集灰に適している。灰は多量のCを含む。

プロセス流体：燃焼ガスとHClを含むスクラバー廃液。

原理的な利点：安全で不活性な生成物を生ずる無火炎燃焼であり、補助燃料を必要としない。

問題点：廃棄物の不完全分解とすすの形成。

開発の状況：装置はイギリスのBNFL Windscaleで1973年以来動かされている。

9.5.5 熱分解型焼却炉 (Windscale, UK)

1950年以来英国では種々の放射性廃棄物の焼却炉が運転され種々の成功を修めた(10, 11)。種々雑多の放射性廃棄物の効果的燃焼という課題が、熱分解型焼却炉の開発を促した。

パイロットプラント試験装置は Windscale に建設され、1973年の初めに平均供給量 5 Kg/hr で放射性廃棄物による運転が始まった。(29)

プロセスの運転条件と特徴

小さいカートンボックスに詰められた細断可燃性廃棄物は直径 30 cm, 長さ 2 m の電気加熱の水平インコネル管に供給される。供給ラムは廃棄物を燃焼室内に押し出し、またガスの流路を維持するのに用いられる。廃棄物は空気量の不足した 1 次燃焼室内で約 900℃ で熱分解される。揮発性成分は 2 次燃焼室で過剰空気の下、約 1000℃ で燃焼する。2 次燃焼室はアルミナの磁器円筒で囲まれた熱電素子を含むブロック内張りの複雑な構造をしている。1 次燃焼室内に蓄積した灰は供給ラムで燃焼室内から灰ビットに落とされ、灰は直径 15 cm のインコネル管を通して、フランジ部を合わせた容器内に手動でかき落とされる。灰は通常 4 日ごとに除去される。

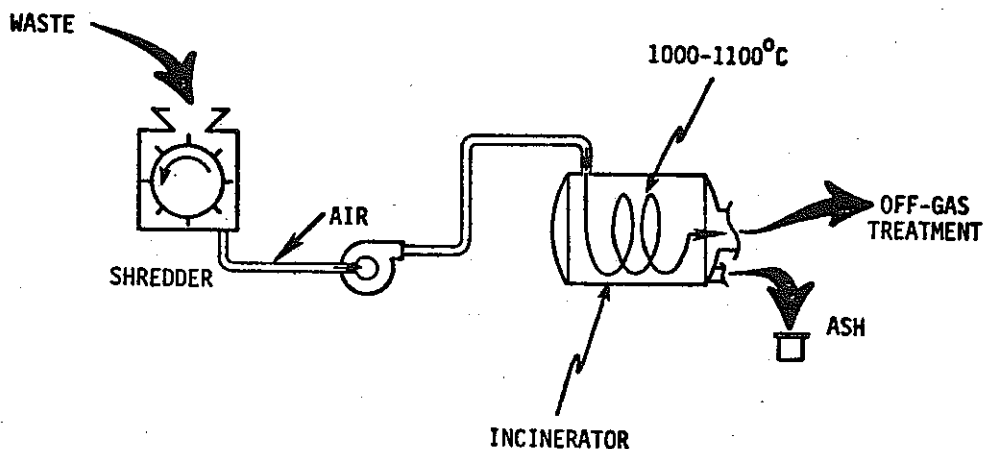
2 次燃焼室からのオフガスは空気冷却された後さらにガスを冷却する水スプレー塔を通過し、そこで HCl 約 90% と、幾らかの粒子が除かれる。ガスはスクラバーで約 100℃ 冷却されたあと、水蒸気と残留 HCl を除去する 2 つの水冷凝縮機を通る。それからガスはポリエチレンフェルトの粗フィルター、ヒーター、最後に数列の HEPA フィルターを通過する。

開発の状況

この技術は、Pu 汚染廃棄物の処理と回収操作で十分に試験された。C の完全燃焼を達成するために、またより良い炉材を開発するための研究が続けられており、装置のスケールアップが計画されている。

9.5.6 渦流型焼却炉 (G. E., Wilmington, NC)

プロセスの要約



プロセスの概要：可燃性廃棄物は細断され、円筒状燃焼室内に廃棄物移送用ファンで接線方向に吹き込まれる。燃焼室では遠心力が完全酸化に必要な乱流を起こし、灰の分離を助長する。

対象となる廃棄物：可燃性で空気移送のできる廃棄物。

前処理：仕分けと細断。

最終生成物の形状：乾燥灰で熱的、放射能的に安定なもの。

プロセス流体：燃焼ガスと HCl を含むスクラバー廃液。

原理的な利点：比較的小さな燃焼室で大きな処理能力と完全な燃焼が得られる。

問題点：仕分け、高度のメンテナンスを要する細断機、廃棄物移送システム等が必要。

開発の状況：この装置はウラン燃料加工工場では 1972 年から運転されている。

9.5.6 渦流型焼却炉 (G. E., Wilmington, NC)

商業的に利用可能な Vortex I 渦流型焼却炉 (ボルシネレーター (Vorcinerator)) が North Carolina 州 Wilmington の General Electric Company のウラン燃料加工工場に 1972 年に設置された。その焼却炉は多量の可燃性廃棄物から U を回収するために使われる。装置の処理能力は約 450 Kg/hr である。(27)

プロセスの運転条件と特徴

渦流型焼却炉 (Vorcinerator) は、非常に大量の負荷処理の可能な高性能ガス燃焼固体廃棄物処分システムである。それは直径約 1.4 m、長さ 2.4 m の単一燃焼室からなり、それと同規模の一般的な焼却炉システムよりも、10～20 倍の焼却処理能力を持っている。この大きな処理能力はサイクロン燃焼方式のユニークな使用により得られた。細断された可燃性廃棄物は燃焼室に接線方向に入り、完全燃焼が成されるまで、サイクロン型式で燃焼室を通過する。燃焼は燃焼室内で 1000～1100℃ で行なわれる。燃焼の間、ガスは燃焼室の中心へ流れ、遠心力が灰粒子をチャンバーの外壁へ押しつけそこで灰粒子は排出管へ排出される。

焼却炉からのガスと同伴粒子はチタニウムスクラバーへと入り、そこでガスは冷却されフライアッシュと酸性蒸気は除去される。ガスはスクラバーで約 100℃ まで冷却されたあとミストエリミネーター、ヒーター、プレフィルターを通り、最後に排出される前に一段の HEPA フィルターを通過する。フライアッシュで飽和されたスクラバー廃液は内側にフィルターバッグのある圧力槽システムを通り吸い出される。ろ過廃液はスクラバータンクにリサイクルされる。いっぱいになったフィルターバッグは U 回収のために処理される。

開発の状況

この装置は現在、North Carolina 州 Wilmington の G. E. 社ウラン燃料加工工場

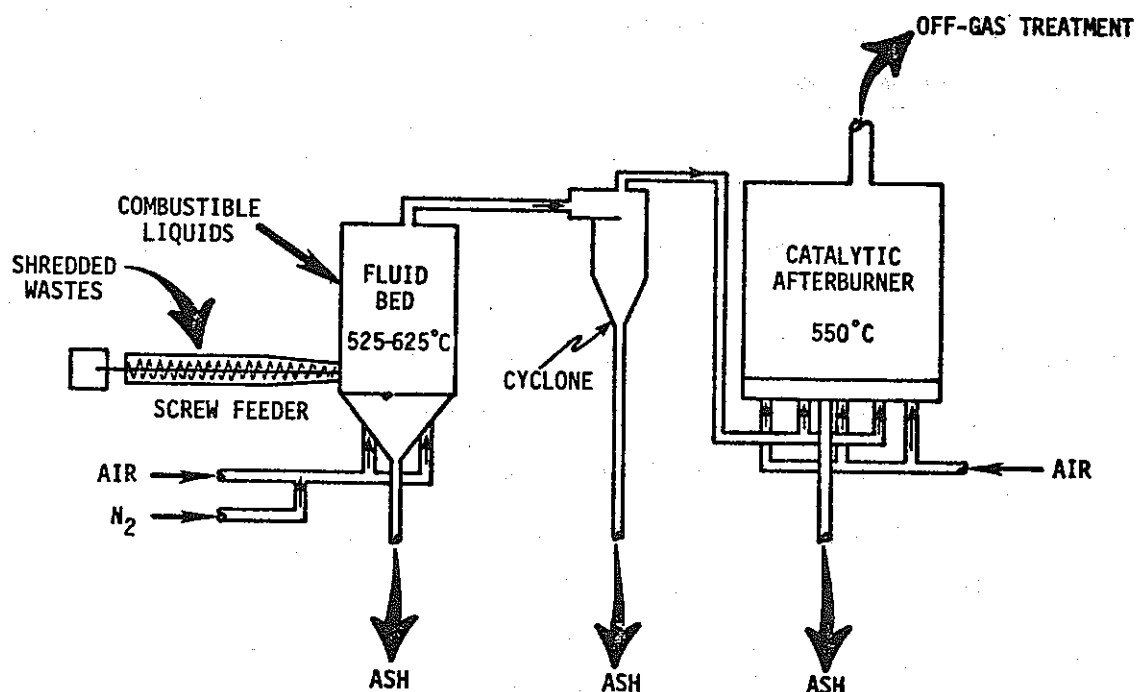
U汚染固体廃棄物の処理に使われている。

主な開発事項

主要な開発計画はUの回収目的で建設された現在の装置が、その要求を満足しているかが進められていない。一般的なプロセスの改善は日常運転やメンテナンスの間に常に行なわれている。

9.5.7 流動床型焼却炉 (R F)

プロセスの要約



プロセスの概要：可燃性廃棄物は Na_2CO_3 の流動床で $525^\circ\text{C} \sim 625^\circ\text{C}$ で燃焼される。

HCl , HNO_3 のような酸性ガスはそこで Na_2CO_3 流動床の働きで中和される。

対象となる廃棄物：少量の不燃性液体を含むすべての可燃性固体、液体廃棄物。

前処理：仕分け，細断。

最終生成物の形状：乾燥した塩の粉末と混合された灰。

プロセス流体：酸を含まない燃焼ガス。

原理的な利点：比較的低い燃焼温度とその場所での HCl の中和は腐食を最小にする。流動化は燃焼効率を改善する。

問題点：Pu の在庫管理や塩から灰の分離が困難。

開発の状況：9 Kg/hrの非放射性パイロットプラントで試験が行なわれた。パイロットプ

ラントでは現在、TRU固体、液体模擬廃棄物を燃やしている。82 kg/hrの処理能力の放射性試験プラントが現在設計されている。

9.5.7 流動床型焼却炉 (RF)

流動床型焼却炉はRocky Flatsで1972年以来開発中である。初期には塩化物含有廃棄物の分解により生ずるHClの中和を含む可燃性廃棄物の処理のために流動床型焼却プロセスの可能性について研究室規模の試験⁽⁶⁰⁾が行われた。次いでパイロットプラントの研究開発が4.5 kg/hrの流動床バーナーを用いて行われた(36,37)。試験は相対的に低い運転温度(550℃)での効率的な運転、煙道ガス中の最小量の不燃物、効率的なHClの中和に関する事柄を含むプロセスのすべての工学的可能性について探究した。

プロセスの運転条件と特徴

Rocky Flatsの流動床型燃焼プロセスは、 Na_2CO_3 の流動床で廃棄物を燃焼するために300～500℃に予熱されたガス混合物(空気と窒素)を使用する。細断された廃棄物は圧縮スクリーフィーダーで燃焼室へ導びかれる。塩と廃棄物は流動床を通り抜ける燃焼ガスにより流動化される。予熱ガスが廃棄物と反応すると、さらに熱が発生し廃棄物は550～600℃で燃焼される。廃棄物は急激に酸化され、不活性残渣(フライアッシュ)とガス状燃焼生成物(煙道ガス)を生じる。大部分のフライアッシュ(約70～80%)は流動床から運ばれ、サイクロン分離器や除塵系で捕集される。残ったフライアッシュ(約20～30%)は流動床に蓄積し定期的に流動床内物質である Na_2CO_3 とともに除かれる。

プロセスからのオフガスはCO、 CO_2 、HCl、炭化水素、水蒸気のような典型的な燃焼生成物からなる。オフガスが流動床の上部から出るとき、塩化物含有廃棄物の分解で発生するHClが流動床内物質である Na_2CO_3 と反応する。残った煙道ガスはサイクロン分離器を通り、粒状フライアッシュが除かれ、それから触媒充填アフターバーナーへ入る。そこで煙道ガス中の炭化水素は $\text{Cr}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 触媒と接触し燃焼される。空気が燃焼用酸素を供給するとともに、反応熱の熱除去を行なうために、アフターバーナー内で煙道ガスと混ぜられる。ガスは次に2次サイクロン分離器、焼結金属フィルターを通り、最後にHEPAフィルターを通過する。

流動床型焼却炉の主たる利点は、一定な低い運転温度(～550℃)と燃焼室内でのHClの中和である。相対的に低い運転温度は耐火材ライニングの必要性を無くし、またPuが、回収困難な非常に処理しにくいPu酸化物に変化するのを避けることができる。酸性ガスの燃焼室内中和は焼却炉とオフガス系の腐食を非常に減少させる。それは、また乾式オフガス処理系の使用を可能にし、その結果、複雑なスクラバーシステムやそれに付随するスクラバー廃液の処理の必要性を無くす。インコネルとステンレススチールが構造材として望ましい。

技術状況

約 8 Kg/hr の廃棄物処理能力をもつパイロットプラント試験装置が固体廃棄物として少しばかり汚染されたゴミクスを用いて運転された。また種々の有機溶媒や、実験薬品の処分に使われた。

放射性固体、液体廃棄物の処理のための商業用流動床型焼却炉（仮焼炉）が Idaho 州 Idaho Falls の Energy Incorporated と Virginia 州 Newport News の Newport News Industrial Corporation により共同開発されている。Idaho Falls の実規模パイロットプラント焼却炉（仮焼炉）は樹脂および可燃性廃棄物の両方の焼却と液体およびスラッジの仮焼を充分に行なうことができた。約 90 Kg/hr の混合固体廃棄物、45 Kg/hr のイオン交換樹脂または 130 l/hr の液体スラッジ廃棄物の処理が可能な商業用焼却炉が 1976 年の中頃までに市場化されると考えられている。

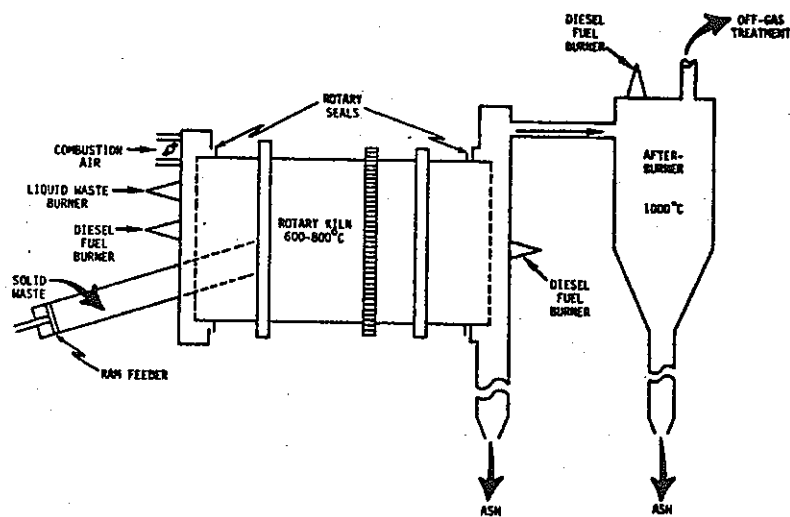
主要な開発事項

放射性汚染廃棄物処理のための流動床型焼却炉の適応性をさらに実証するために、研究開発が Rocky Flats で進められている。特に H E P A フィルター、イオン交換樹脂、鉛ゴムグローブの分解にそのプロセスを使い試験が計画されている。さらに他の中和塩や酸化触媒の使用を考えた研究開発が計画されている。処理能力 82 Kg/hr の実証用プラントが設計されており 1977 年操業をめざし建設されている。実証用プラントは Rocky Flats の運転経験から T R U 汚染可燃性廃棄物を用いて運転される。

タイトル I（予備）の設計情報は 1977 年の終りまでには利用可能になる。商業的応用段階の流動床型焼却炉の開発は 1980 年までに成就されると予想される。

9.5.8 ロータリーキルン型焼却炉（R F）

プロセスの要約



プロセスの概要：可燃性固体廃棄物，H E P A フィルター，イオン交換樹脂，そして分析実験室からの液体廃棄物は軽油燃料燃焼のロータリーキルンにより600～800℃で燃焼または仮焼をされる。オフガスは1000℃で運転されるアフターバーナーを通る。

対象となる廃棄物：すべてのPu含有可燃性固体，液体廃棄物，H E P A フィルター，分析実験室からの液体廃棄物。

前処理：仕分け，細断，切り裂き，粉碎。

最終生成物の形状：不活性な乾燥酸化物残渣。

プロセス流体：燃焼ガスおよびフライアッシュを含む酸性溶液とアルカリスクラバー廃液。

原理的な利点：キルンの回転動作は常に廃棄物の新しい表面を露出させ，廃棄物に，より急激で完全な酸化を起こさせる。灰の連続的排出は臨界問題を最小にする。

問題点：不完全なグラファイト燃焼，鉛ゴムグローブの分解により，耐火材ライニング上にガラスを形成する可能性およびロータリーキルンの良好なシールの維持等が問題である。

開発の状況：処理能力2Kg/hrのコールドパイロットプラントで試験が行なわれた。試験プラントは現在～40Kg/hrの処理能力を有するものが設計されている。プラントはRocky Flats Plantに設置され，1980年のPu汚染廃棄物(>0.02g Pu/g waste)の処理に備えている。

9.5.8 ロータリーキルン型焼却炉(RF)

放射性廃棄物の燃焼にロータリーキルン型焼却炉を用いることが1972年以来Rocky Flatsで研究されている。⁽⁴⁾ プロセスは処理能力2Kg/hrのコールドパイロットプラントで充分に実証された。40Kg/hrの設計能力をもつ工学的規模の焼却炉が0.02g Pu/g waste以上のTRU汚染廃棄物処分のため焼却炉と運転に関し現在Rocky Flats Plantで設計されている。

プロセスの運転条件と特徴

ロータリーキルン型焼却炉は水平に傾斜した円筒状キルンから成る。そのキルンは内径1.8m，長さ4.6mで長軸の回りに約1～2rpmで回転する。約0.3cmH₂Oの負圧で運転されるキルンのシールはBel-Slipと呼ばれる固いグラファイト物質でできている。焼却炉は通常，点火，運転温度の維持および完全燃焼を確実にするために3つの軽油燃料バーナーで600～800℃で運転される。

廃棄物はラムフィーダーで耐火材内張りの鋼製ロータリーキルンに供給され，キルンの継続動作で未燃焼物が露出され燃焼される。キルンのゆっくりとした回転は廃棄物を燃焼域の長さ方向に沿ってゆっくりと移動する。キルン内の廃棄物の滞留時間は約1時間である。

焼却炉からの灰は，灰冷却器に排出され，ボールミルを通り，集灰グローブボックスに導

かれる。集められた灰は HNO_3 浸出法か又は全溶解法による Pu 回収に先だち Pu の分析をされる。連続的な灰の排出により Pu による臨界が起こらないことが保証される。

可燃性オフガスとエアゾールは耐火材内張りの鋼鉄製の 2 次混合燃焼室に運ばれ、軽油燃料バーナーにより約 1000°C で完全燃焼される。アフターバーナーを出たオフガスは、耐火材内張りのダクトを通り HCl とフライアッシュを除去するための 1 次、2 次のベンチュリースクラバーへ導びかれる。1 次スクラバーは水を使い大部分の HCl を吸収する。2 次スクラバーは KOH 溶液を使い残った HCl を除く。ガスは最終的に焼却炉の 4 段の H E P A フィルターを経て排出前の排気プレナムに導びかれる。

H E P A フィルターとグローブボックス用の鉛ゴムグローブは耐火壁面上にガラス形成やスラッグ付着を防ぐため低温度 (700°C 以下) でそれぞれ焼却される。

ロータリーキルン型焼却炉は、イオン交換樹脂や分析実験室からの廃液および廃溶媒の処理にも使われる。これらの廃棄物はキャンペーンでは Delavan Swirl-Air ノズルで霧状に吹き込まれる。

開発の状況

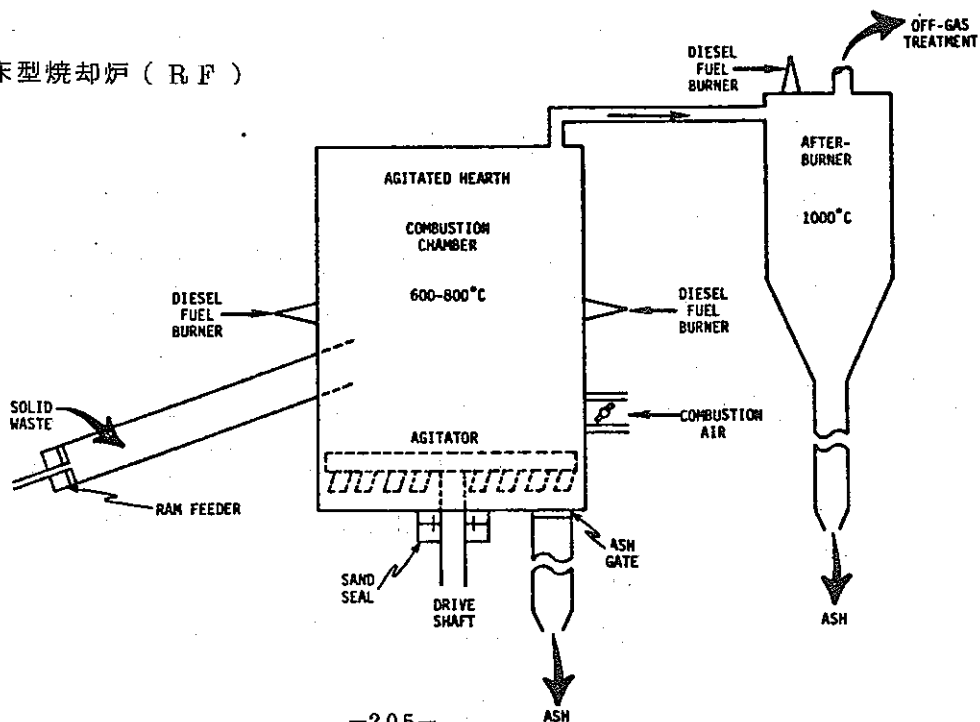
Rocky Flats でのコールドパイロットプラント試験の結果は (California 州 Alameda の U.F. Braun & Company で約 40kg waste/hr の処理能力のロータリーキルン型焼却炉を設計するのに使われている。焼却炉は、Illinois 州 Chicago の CER/Bartlett-Snow により建設され、Pu 含有廃棄物処理のため Rocky Flats Plant に 1980 年までに設置される。

主要な開発事項

焼却炉の設置前には焼却炉に関し主たる開発計画はない。

9.5.9 攪拌炉床型焼却炉 (RF)

プロセスの要約



プロセスの概要：可燃性固体廃棄物は軽油燃焼焼却炉で600～800℃で焼却される。可燃物はラムフィーダーで円形炉床の上に投入され、かき混ぜ棒により焼却炉内でかき混ぜられる。灰は完全燃焼の後バッチで排出される。ガスとフライアッシュはアフターバーナーで～1000℃でさらに燃焼される。

対象となる廃棄物：Rocky Flats Plant で発生するPu含有量0.02g Pu/g waste以下の全ての可燃性固体廃棄物である。

前処理：仕分け（随意細断）。

最終生成物の形状：不活性乾燥灰。

プロセス流体：燃焼ガスとアルカリスクラバー廃液。

原理的な利点：回転するかき混ぜ棒が廃棄物をかき混ぜてバーナーの火を通す。この操作により対象廃棄物は新しい表面を連続的に露出され、より急激に完全酸化される。

問題点：焼却炉の可動部。

開発の状況：4 Kg/hrの処理能力の非放射性試験モデルで行なわれた。70 Kg/hrの廃棄物処理能力をもつ焼却炉が、低レベル汚染廃棄物（<0.02 g Pu/g waste）の燃焼のために組立てられている。焼却炉は1980年の汚染廃棄物での運転に備え準備されている。

9.5.9 攪拌炉床型焼却炉（RF）

California州 San Mateoの Environtech, Inc., で開発された攪拌炉床型焼却炉は、コールドパイロットプラントで典型的な原子力産業廃棄物を約4 Kg/hrの処理能力で満足のいく試験が行なわれた。これらの試験結果はCalifornia州 Alhambraの G.F. Braunにより約70 Kg/hrの混合廃棄物処理能力を持つ焼却炉の設計に使われている⁽⁴⁾。70 Kg/hrの処理能力を持つ焼却炉は Environtech, Inc. により建設され、Rocky FlatsでPu含有量0.02 g Pu/g waste以下の低放射性廃棄物の処理に使用される。この焼却炉の運転は大体1980年に始められると予想される。

プロセスの運転条件と特徴

Rocky Flatsの攪拌炉床型焼却炉は固定された直径2.6 m、高さ4.6 mの耐火材内張りの鋼鉄製円形火床からなり、燃焼域で廃棄物をかき混ぜたり貯まった灰を冷却容器に移動するための回転火かき棒を備えている。

主燃焼域は、温度を維持するため補助として軽油燃料バーナーを用い600～800℃に加熱される。廃棄物は半連続供給のバッチ操作で焼却炉で燃やされる。廃棄物は～2 Kgずつに仕分けされて、カートンボックスに詰められ2分間に1ボックスの割合でラムフィーダーにより主燃焼室に供給される。

廃棄物の焼却により貯まった灰は、4時間の供給とさらに1時間の燃焼後、焼却炉から取り

除かれる。灰は回転火かき棒により排出スライド開口部からコンベア式冷却器に押し出され冷却されたあと、灰は、プラスチック内張り廃棄物ドラムに収納される。集められた灰は貯蔵運搬前に Pu の分析をされる。

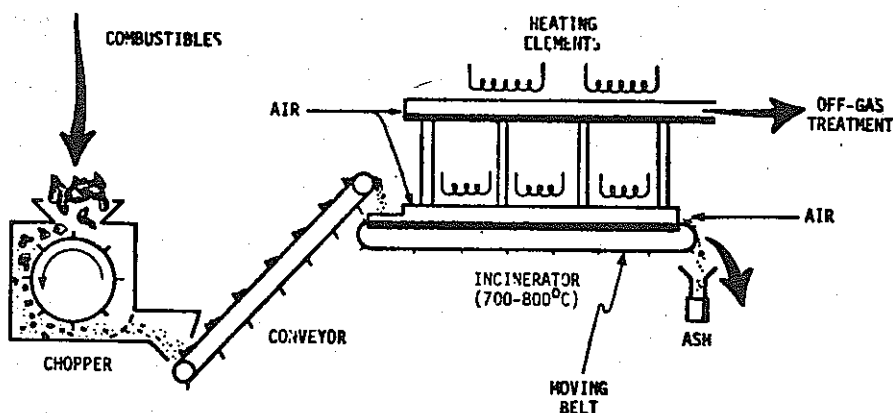
可燃性オフガスと同伴される可燃性粒子は、2次燃焼室かまたはアフターバーナーに導びかれ、約 1000°C で燃焼される。アフターバーナーを出たオフガスは、耐火材内張りダクトを通り2つの KOH 洗浄装置へ導びかれる。その両方とも、気液分離器を備えた湿式ベンチュリースクラバーからなり、酸性ガスと残留フライアッシュを除去する。ガスは数段の HEPA フィルターを通った後、最終的に排出される。スクラバー廃液はオフガス洗浄系に一部リサイクルされ、他の排出廃液は廃液回収に送られる。

開発の状況

約 70 Kg/hr の処理設計能力を持つ攪拌炉床型焼却炉は Environtech, Inc. , により Rocky Flats Plant で使用するために建設されている。その焼却炉は 1980 年に低レベル Pu 汚染廃棄物の処理をするのに準備されている。本焼却炉の設置前には Rocky Flats では主たる開発計画はない。

9.5.10 移動火床型焼却炉 (ARHCO)

プロセスの要約



プロセスの概要：可燃性廃棄物は電気加熱の水平円筒状の燃焼炉内を移動式ベルト火床で運ばれ、700~800°C で焼却される。揮発性成分とフライアッシュは主燃焼炉の上に設置された2次管状形燃焼炉で燃焼される。

対象となる廃棄物：鉛ゴムグローブ以外のすべての可燃性固体廃棄物と少量の非揮発性可燃性廃液。

前処理：仕分けと細断。

最終生成物の形状：少量の可燃物が混入した乾燥灰。

プロセス流体：燃焼ガスとアルカリスクラバー廃液。

原理的な利点：炉内に蓄積する灰が少ないので臨界管理が容易となる。

問題点：不完全な燃焼と頻度の多いメンテナンス（特にニクロム線ベルトにおけるメンテナンス）とオフガス系の目づまり。

開発の状況：処理能力 2 Kg scrap/hr の工業プラントで 10 年以上運転されている。技術については工業利用が可能であるが、メンテナンス問題を最小にするために幾つか付け加えるべき改良を必要とする。

9.5.10 移動火床型焼却炉（ARHCO）

移動火床型焼却炉は Hanford プルトニウム再処理施設で使用するために開発され、可燃性廃棄物から Pu を回収するため 1961 年以来使われている⁽³³⁾。焼却炉の処理能力は 1 日約 10～20 Kg/8 hr である。

プロセスの運転条件と特徴

焼却炉は上下に連なる 2 つの水平管状燃焼室からなり、4 本の煙道とつながっている。下の主燃焼室は平底半円筒で直径 0.2 m、長さ 3 m である。管はインカロイ (Incalloy) 800 と 321 ステンレススチールで製作加工され、そのまわりを厚さ 30 cm の耐火レンガ断熱材でおおわれている。連続したニクロム線の V 型に織られたワイヤベルトが、燃焼室の底を移動し、入口で焼却される廃棄物を受け取り、出口でホッパーへ灰を排出する。主燃焼室は外から熱電素子により 700～800℃ に保たれる。主燃焼室からのオフガスは 2 次燃焼室でさらに酸化される。両方の燃焼室とも過剰空気下で運転される。

2 次燃焼室に存在するガスは、2 つの低い圧損のサイクロン分離器を通る。そこで大きな粒子は除かれ、次にフライアッシュ、HCl、HClO を除くため H₂O、NaOH、CO(NH₂)₂ 溶液を用いる 316 ステンレススチール製スクラバーシステムに導びかれる。洗浄されたガスは主建屋煙突から排気される前にヒーターと数段のアブソリュートフィルターを通過する。

開発の状況

現在の焼却炉は 1961 年以来 Hanford 廃棄物回収施設で非浸出性可燃性廃棄物からの Pu 回収に使用されている。プラスチックやゴムは腐食とすすの問題があるため可能な限り避ける。焼却炉は現在改造修理のために停止している。

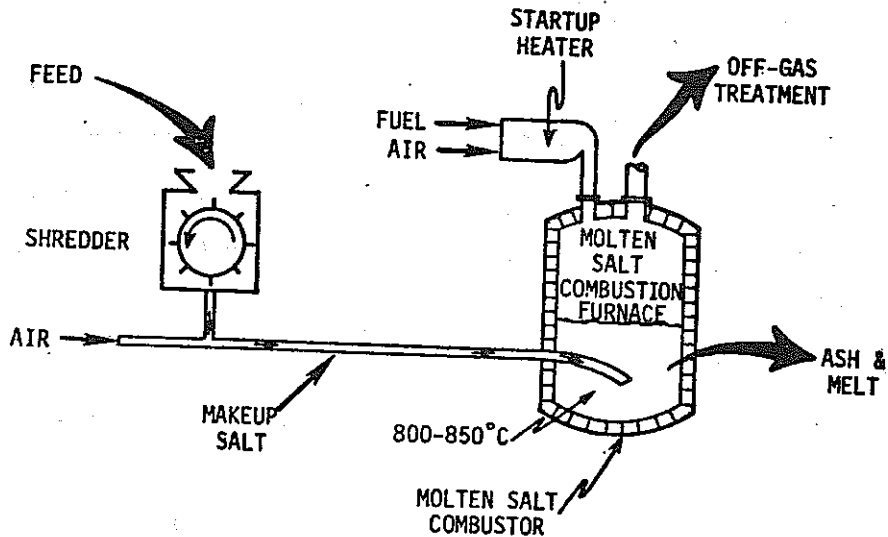
主要な開発事項

建設された現在の焼却炉が Pu 回収の目的を満足しているため、上述のような焼却システムの特別な開発計画はない。この焼却炉の設計は実用的であるが、メンテナンス問題を減ら

すことと燃焼生成物の完全酸化を実現するためにさらに改良が必要である。

9.5.11 熔融塩型焼却装置 (A I)

プロセスの要約



プロセスの概要：可燃性廃棄物は熔融 Na_2CO_3 や熔融 Na_2SO_4 中で空気により燃焼される。無機生成物（金属酸化物，灰， NaCl ，核分裂性物質）は熔融塩中に保持される。塩-灰生成物は貯蔵ドラムに収納されるか，または塩とTRUを回収するための処理をされる。

対象となる廃棄物：可燃性物質（固体，液体，樹脂，フィルタースラッジ）とHEPAフィルター，金属管，ガラス容器のようなものを含む多くの無機質固体も処理できる。

前処理：大きな様々の金属を除くための仕分けと細断。

最終生成物の形状：20 wt%の灰を含む固化熔融塩ケーキ。

プロセス流体：非酸性燃焼ガス。

原理的な利点：廃棄物は熔融塩の表面下で酸化されるので，酸性ガスと粒子状物質は熔融塩中に捕えられる。これは本質的にオフガス洗浄系の腐食を減少する。また金属とガラスは容易に熔融塩中で溶解される。

問題点：オフガスへの同伴粒子（主として NaCl ）と熱の浪費。

開発の状況：燃焼試験はPuと β -7汚染廃棄物を用いてベンチスケール（0.5 kg/hr）で行なわれ，また非汚染廃棄物を用いてパイロットプラント規模（50 kg/hr）で行なわれた。熔融鑄造生成物を生ずるプロセスの予備設計準備と塩回収法の選択のために大規模試験を必要とする。有機溶媒の燃焼にはさらに開発試験が必要。

9.5.11 溶融塩型焼却装置 (A I)

可燃性物質の酸化のために溶融塩プロセスが1966年以来Atomics Internationalで研究されている。本プロセスは有機物の燃焼，粒子状物質の捕集，燃焼で発生する酸性ガスと化学反応をさせるために媒体として溶融塩を用いる^(41, 42, 61)。本プロセスは塩素と化合した液体廃棄物の分解，有毒な致死薬品の分解，他の可燃性物質の分解に十分に適用できた⁽⁴¹⁾。また本プロセスはプロセスオフガス流体から NO_x や SO_2 のような公害物質の除去^(63, 64)と石炭のガス化に使われた⁽⁶⁵⁾。供給速度 $\sim 50 \text{kg/hr}$ で溶融塩燃焼試験施設が1971年以来A Iで運転されている。TRU廃棄物の処分はこの技術を応用するため1974年にベンチスケール試験が始められ，最終的には模擬TRU廃棄物（非放射性）を用いて燃焼能力約 50kg/hr で行なわれた。

プロセスの運転条件と特徴

溶融塩燃焼プロセスは，可燃性廃棄物の空気酸化の媒体として，アルミナレンが内張り鋼製炉に入れられた Na_2CO_3 と Na_2SO_4 の溶融塩混合物を用いる。 Na_2CO_3 は伝熱媒体，また燃焼中生成する HCl ， SO_2 のような酸性ガスの中和試薬として働く。 Na_2SO_4 は，燃焼反応の触媒として，また CO や揮発性炭化水素の発生を最少にするために使用される。

細断された可燃性廃棄物は燃焼工程で $800\sim 850^\circ\text{C}$ に保たれる溶融塩の表面下に空気（100%過剰）とともに供給される。廃棄物はすぐ燃焼を始める。燃焼で放出される粒子や酸性ガスは溶融塩に捕集される。反応をしないガス（ CO_2 ，水蒸気等）は溶融塩から放出され，オフガス処理系に送られる。燃焼残渣は溶融塩中に蓄積して溶融塩の粘性を増す。一部の溶融塩は定期的（通常，灰含有率が20wt%になったとき）に取り換えられ，その結果ほとんど一定の塩組成が保たれる。もしも溶融塩が不溶性物質の蓄積により粘性が大きくなりすぎた時には，溶融温度を上げたりまたはさらに塩を添加することでその流動性が回復される。しかしながら NaCl の揮発を最小にするために 850°C 以上に温度は上げない。

溶融塩工程でのオフガスの洗浄問題は炉内での HCl 中和により非常に簡単になる。非酸性燃焼オフガスはミストエリミネーター，水冷却器，バッグハウスを通る。それからヒーター，1段のHEPAフィルターを通過し煙突から大気に放出される。バッグハウスからの粒状蓄積物は溶融塩炉にリサイクルされる。

廃棄物の処理後，溶融塩廃棄物処理のために2つの方法が研究されている。1) 溶融塩の廃棄，2) 塩とTRU回収。

前者の方法では塩の一部は定期的に炉から除かれ貯蔵ドラムに直接収納される。使用済塩の組成は大体50wt% Na_2CO_3 ，10wt% Na_2SO_4 ，20wt% NaCl ，20wt%灰である。固化温度は約 720°C で，溶融塩ブロックの密度は 1600kg/m^3 である。減容係数は8wt%灰を含む混合廃棄物（ 90kg/m^3 嵩密度）で約4.5である。

後者の方法では溶融塩-灰混合物から Na_2CO_3 と Na_2SO_4 は回収して燃焼炉へリサイクルし、灰と NaCl は貯蔵するために、溶融塩-灰混合物は処理される。これはろ過前に1時間の放置で冷却された溶融塩-灰混合物から、溶解 Na 塩をろ過することで行なわれる。沸点(106°C)で濃縮された塩溶液の部分的結晶化は、燃焼炉へリサイクルするための結晶質 Na_2CO_3 - Na_2SO_4 生成物とさらに蒸発、結晶化、処分をするための NaCl を生成する。塩回収工程で除かれた水はリサイクルされる。 Pu は HNO_3 または HCl で灰から容易に溶かされる(反応時間30分以下)。しかしコロイド状ケイ酸(ゲル状)も形成されるので、 Pu を現在の技術で回収するためには、前もって脱水(蒸発乾燥)しなければならない。非常にわずかの Pu が塩中に残る。後者の方法による減容係数は前者の方法と同じ混合廃棄物を用いて約57である。

溶融塩燃焼プロセスは、有機溶媒、油、固体を燃焼するばかりでなく、薄板状金属やガラスを溶解するので種々の可燃性物質の処理に用いられる。これらの処理方法はそれぞれの開発計画の中で追求されている。

開発状況

プロセスの試験的確認は、3つの異なる試験から得られた。初めに、模擬TRU廃棄物を処理能力0.5 Kg/hrで処理する直径15 cmの研究室規模の焼却炉が、基礎的な燃焼パラメータを得るために使われた。その後、TRU廃棄物を処理能力0.3 Kg/hrで処理する直径10 cmの焼却炉がグローブボックス内に設置され、実際にTRU廃棄物を燃やすことによって、そのシステムでのUやTRUの性質が決定された。その後大規模の(50 Kg/hr)模擬TRU廃棄物による焼却試験が、直径90 cmの溶融塩型焼却炉試験施設を使って行なわれた。有機溶媒と油の燃焼が処理能力2 Kg/hrの規模で研究された。金属とガラスの溶融は研究室規模パイロットプラント規模の両方で研究された。現在、処理能力50 Kg/hrの装置をERDAの敷地内に設置するために概念設計が進んでいる。

石炭ガス化や毒性廃棄物(DDT, 除草剤, $\text{C}_2\text{H}_3\text{Cl}_3$, CHCl_3 , $\text{C}_2\text{H}_5\text{NO}_2$ 等)の処分のために計画されている溶融塩型焼却装置は現在タイトルI(予備)の設計を進行中である。

主要な開発事項

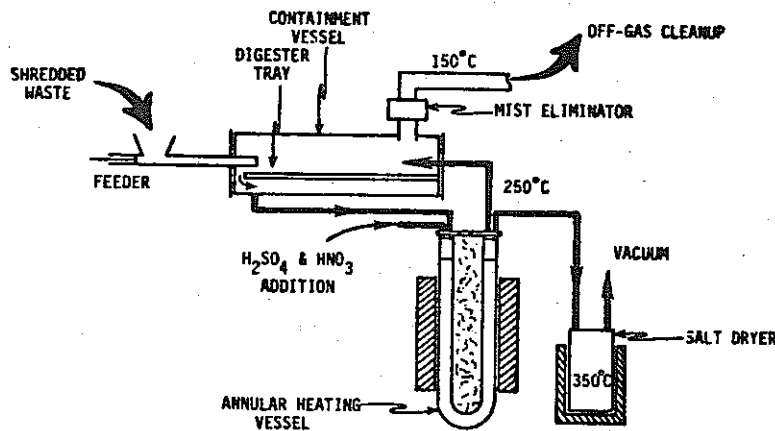
他の放射性廃棄物の処理のために溶融塩燃焼プロセスの開発が力説される。この研究開発には高レベル汚染廃棄物によるホットセルでの焼却試験ばかりでなく、溶融塩型焼却炉試験施設(50 Kg/hr)での放射能トレーサーを用いた廃棄物の焼却試験も含まれる。処理される実際の廃棄物に合わせた付随的な供給システムの開発が計画されている。基礎的な焼却炉容器が開発されたが、さらにドレンコントロールバルブやオーバーフローシステムの開発が必要とされる。TRU廃棄物を処理するために、オフガス系が開発された。しかし開発された

オフガス系がすべてに適用できるかどうかを決定するためには、幾つかの試験が必要となる。貯蔵ドラムに熔融塩を遠隔操作で収納するためにも、技術開発が必要である。熔融塩流動の遠隔再始動とともに熔融塩排出作業中の熔融塩流動の遠隔シャ断が試験された。

もしも塩と Pu の回収方法に前述した後者の方法が選択されるならば大規模な塩の結晶化と Pu の回収精製試験が必要となる。最適な Pu 回収に必要なとされる正確な条件決定には、さらに開発試験が必要である。

9.5.12 酸消化法設備 (HEDL 研究所)

プロセスの要約



プロセスの概要：可燃性廃棄物は、230～250℃の硫酸で処理することにより、ガス体 (CO₂, H₂O, HCl) および硫酸塩・酸化物に変換される。

対象となる廃棄物：テフロンを除く、すべての可燃性固体廃棄物およびある種の可燃性液体廃棄物。

HEPA フィルター、シリコン類、揮発性の高い液体は勧めない。

前処理：廃棄物の仕分けと切断が必要である。

最終生成物の形状：乾燥状態のケーキ状塩、主として、無機硫酸塩と酸化物を生成する。この生成物は熱的に安定である。

二次廃棄物：洗浄後のオフガス (CO₂, CO, O₂, N₂, N₂O) および NaCl, 少量の NaNO₃, NaNO₂ および Na₂SO₄ を含んだアルカリ洗浄廃液が発生する。

プロセスの利点：酸消化法では、幅広いの廃棄物を処理することができる。反応は容易に制御することができる。プルトニウムは硝酸可溶性となる。

このプロセスは、比較的低温の一段の反応操作で行なわれる。

問題点：処理容量に臨界上の制限がある。揮発性のFP (Ru, I₂) に対するコンテナメント、および塩化物の処理上の問題がある。

開発の状況：処理容量 5 Kg/hr のパイロットプラントについてコールドで確性試験が行われた。Pu の挙動に関する確性試験は、実験室規模で行われている。放射性物質を処理できる 100 Kg/日規模のパイロットプラントは 現在設計段階にある。この技術は 1980 年までには、工業的に利用可能になるだろう。

9.5.12 酸消化法設備

1960年代の初期に、デンマークのRisøにおいて、可燃性廃棄物を硫酸と触媒にセレンを用いて湿式酸化する化学処理プロセスをパイロットプラント規模で試験が行われた。⁽⁶⁶⁾

1971年の初め、HEDLでは、セレン触媒の代わりに、酸化剤として硝酸が先ず検討された。

実験室規模試験の初め頃には、熱濃硫酸と硝酸を組み合わせる用い、多種類の模擬廃棄物の分解を容易に行うことができた。⁽⁶⁷⁾ 硫酸は主として廃棄物の炭化作用と、高温雰囲気(250℃)をもたらししている。硝酸は、この温度で、炭化廃棄物の酸化に作用する。

プロセスの運転条件とその将来の見通し

この酸消化プロセスで、細片化された可燃性廃棄物は沸騰状態に近い硫酸溶液(～91wt% H₂SO₄, 250℃)中へ硝酸と共に半連続的に供給される。

硝酸は、廃棄物をCO₂とH₂Oに酸化するために必要な酸素当量の75～100%になるよう計算された速度で添加される。原子力施設で発生する代表的な廃棄物を模擬した非放射性廃棄物を、ガラス製の試験設備を用い、5 Kg/hrの速度で処理が行われた。^(43, 46)

このプロセスは、反応温度、硝酸の添加速度あるいは廃棄物の添加速度を調整することにより容易にコントロールすることができる。

臨界に関しては幾何学的形状をもちいた機器を使用することにより管理される。⁽²⁾

現行のシステムでは、細片化された廃棄物は、底の浅いトレイに投入される。硝酸と硫酸は幾何学的形状の加熱貯槽からエアリフトでトレイの中へ供給され廃棄物と接触する。この硝酸と硫酸はトレイと貯槽間をリサイクルするようになっている。

工程内に固形分が蓄積するので、周期的に、酸スラリーと共に、別の蒸発ポットへ移送される。このポットで350℃に加熱され、硫酸の蒸発回収が行われる。回収硫酸は、再びダイジェスター(Digester)に戻される。

空気中で加熱されて生成した乾燥粉末は主として無機硫酸塩および酸化物である。これは熱的に安定である。

Pu (炉燃料用プルトニウム酸化物を含む)はこの酸消化処理により、硫酸塩に変換され

沈んでいるので、他のプロセス残渣と共存している（酸消化溶液中のプルトニウム硫酸塩の溶解度は、約 0.1 g/l である）。

残渣を含んだ溶液から硫酸を蒸発回収した後、希硝酸で浸出処理することにより Pu は硝酸溶液となる。

ダイジェスターから出てくるオフガスは、主として H_2O 、 CO_2 、 CO 、 SO_2 、 SO_3 、 NO_2 、 NO 、 N_2O 、 N_2 および HCl （これは塩化物を含有した廃棄物を処理した場合に発生する）である。

オフガス中の NO_2 は SO_2 をたやすく SO_3 に酸化する。また、オフガスに O_2 を添加して NO を NO_2 に変換する。

これらの NO_2 、 SO_3 および HCl は水あるいは低濃度の酸による洗浄により、オフガスから除去される。この洗浄廃液は濃縮され、回収硫酸と硝酸に分離される（硝酸装荷量の約 70%）。

回収硫酸と硝酸はダイジェスターに戻される。

水分、 HCl および少量の硝酸は、低レベル廃液となる。

残りの硝酸（硝酸装荷量の 30%）は酸消化処理において N_2 および N_2O に変換されている。

開発の状況

この酸消化プロセスの工学的可能性について、5 Kg/hr の処理能力をもった非放射性試験設備で実証されている。

放射性廃棄物を処理する 5 Kg/hr の設備が H & D L に建設中である。1977 年には、プルトニウム汚染廃棄物の処理も可能であるとみられている。

酸消化プロセスの開発がすすみ、商業ベースになるのは 1980 年と予測される。

主要な開発項目

酸消化プロセスは、放射性廃棄物を用いた工業的規模での実証は 1977 年に開始されるであろう。

商業ベースとしての設備の設計基準および設計パラメータなど関連事項の開発完了は 1979 年末となろう。

酸消化プロセスの開発におけるいくつかの問題点は注意を要するものである。混酸およびダイジェスターから出る蒸気の強い腐食性は、ダイジェスターの構造材料を限定している。すなわち、ガラス、ガラス・ライニング鋼、およびある種のセラミック材が、ダイジェスターの容器として最も有力である。

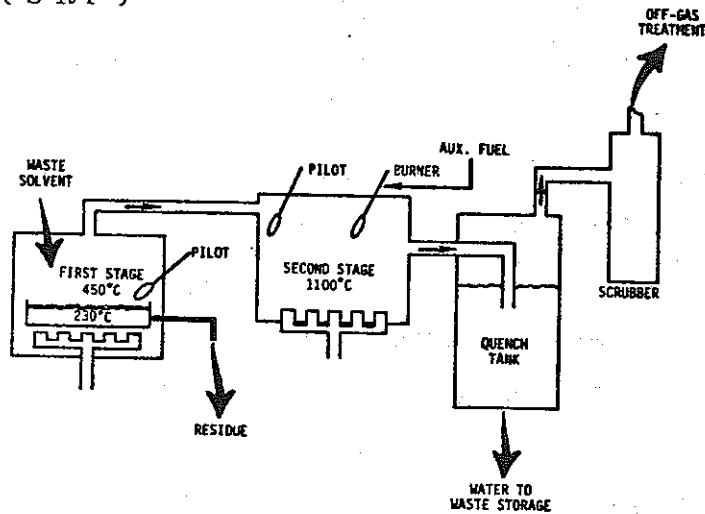
HCl の処分も確性されなければならない。塩酸は循環式水洗浄により、硝酸および硫酸と共に容易にオフガスから除去される。しかしながら、回収酸から HCl の除去は、相当量

の硝酸が随伴する。この点について確性する必要がある。

Pu の回収に関連して、残渣の取扱い、乾燥、処理についても確性試験が必要である。

9.5.13 廃溶媒の焼却炉 (SRP)

プロセスの要約



プロセスの概要：放射性物質で汚染されたケロシン・TBP 廃溶媒は、2 段式焼却炉で処理され、ガス生成物と水溶性のりん酸ポリマーになる。放射性物質は第 1 段の燃焼床に残る。

対象となる廃棄物：TBP を 50% まで含んだケロシン・TBP 溶媒を処理することができる。その放射能レベルは、比較的 low レベルのものに限られる。放射能レベルの上限については、まだ確性されていないが、そのサイトにおけるオフガス中の放射能の放出基準やオフガスのフィルター設備の度合によって異なる。

前処理：放射性物質を除くため、 Na_2CO_3 溶液で溶媒の洗浄を行う。水分と溶媒をデカンテーションにより分離する。

最終生成物の形状：廃溶媒中に含まれていた放射性物質の大部分を含んだ水溶性のりん酸塩残渣を生成する。

二次廃棄物：燃焼ガスが発生する。

プロセスの利点：第 1 段の簡単な燃焼床に放射性物質が保持される。第 2 段は、燃焼ガスの無煙化を確実にしている。

問題点：このプロセスの問題点として、残渣の取り出し法、第 1 段の燃焼床にすすが生成すること、炉内の圧力がプラスの状態に運転されること、および廃溶媒の放射能レベルに限度があることなどが挙げられる。

開発の状況：パイロットプラント試験で、煙の発生が極めて少なくなっていることが確性された。放射性物質の放出に関するコントロールおよびその他の技術は 1978 年までに確性されるだろう。

9.5.13 廃溶媒焼却炉 (SRP)

サバンナ・リバー・プラントには、約570000Lの廃溶媒(約45キュリーの α 放射能および45キュリーの β - γ 放射能をもったクロシン・TBPである)が地下タンク内に貯蔵されている。

大気開放型の燃焼床⁽⁶⁸⁾で、1971年まで上記廃溶媒の処理が行われた。しかし、おびただしい量の黒煙が発生するので、それ以来中止された。

州および合衆国の基準に適合した“Smokeless”の溶媒焼却炉が、現在貯溜されている廃溶媒を処分するために開発されている。

平皿型燃焼床は放射性物質に対する除染係数が高いので($10^3 \sim 10^4$ という値が報告されている)、焼却炉の第1段の炉室の設計に採用されている。

第1段炉室からのオフガスを、強制燃焼室に吸い込み付属バーナーで燃焼することにより30~50% TBP-クロシンを用いたコールドテストで無煙化が達成された。

オフガス洗浄は、TBPの燃焼により生成したりん酸塩を除去するため必要である。

プロセスの操作条件および今後の見通し

廃溶媒は耐火物をライニングした鋼鉄製焼却炉の第1段の平皿型燃焼床に供給される。そこでパイロット・バーナーにより燃焼される。燃焼に必要な酸素は、ブローアで空気を送り込むことによっておこなわれ、同時に、炉内温度の調節を兼ねている。

燃焼は、平皿型燃焼床の液表面から揮発したガスの燃焼により進行する。従って、不揮発性の溶質および有機重合物が残る。

第1段炉室を出たオフガスは、第2段炉内にとり入れられ、付属バーナーにより1100℃で処理されることにより、オフガス中の有機ガスおよび未燃焼の炭素の酸化が完全に進行する。

このオフガスは、スクラバーに入り、冷却されると共にTBPの燃焼で生成したオフガス中の P_2O_5 がりん酸の形で除去される。この洗浄廃液および平皿型燃焼床に残っている水溶性残渣は低放射性廃液として貯槽へ送られる。そして、更に蒸発濃縮される。

焼却炉で処理される廃棄物中に含まれる放射性物質の量は、燃焼炉、洗浄塔およびこのシステムに付随している除染装置あるいはフィルターなどによって得られる全除染係数によってきまる。この焼却システムで処理可能な廃溶媒中の放射性物質の限度は、実際の廃溶媒で運転されるまでは確定しないのであるが、旧型の平皿型燃焼床の焼却システムで $0.5 \mu\text{Ci}/\text{ml}^{106}\text{Ru}$ が確性されており、本システムでは、それ以上のレベルを取扱うことができるであろう。

このシステムにおける大きな課題は、第1段燃焼床に生成した残渣の除去とその処分に関するものである。

また、第1燃焼床における壁部にカーボンが蓄積するであろうし、このことは、燃焼特性

に影響を与える。

開発の状況

平皿型燃焼床は放射性廃溶媒を焼却処分するに効果的であることが確性されている。2段の燃焼システムをもったパイロットプラント規模の試験で煙の発生を実用可能なレベルまでコントロールできることが確性された。

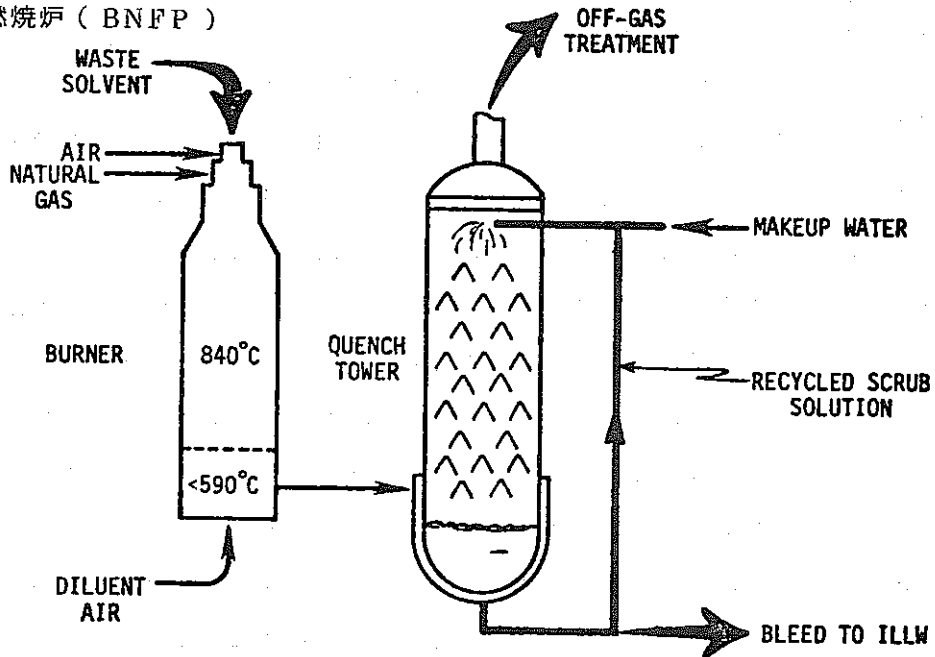
プロセス概要の項で述べた焼却システムと同型で75ℓ/hrの容量をもった焼却システムの設計と建設のプロジェクトをすすめることが必要となっている。放射性物質の除染および他の関連技術について1978年までに確性されるであろう。

主要な開発項目

- 必要なオフガス処理の確立。
- 第1段燃焼床中に生成した残渣の除去ならびに処分法の開発。
- 第1段燃焼床壁面へのすす(炭素)の蓄積量と燃焼特性に与えるその影響の推定。

9.5.14 廃溶媒燃焼炉 (BNFP)

プロセスの要約



プロセスの概要：TBPを含有した廃溶媒は、その燃焼に必要な空気および天然ガスと共に、1本のノズルを通して燃焼室の中へその頂部から噴霧される。

オフガスは別に設けられた洗浄塔で処理され、オフガス中の P_2O_5 と未燃焼炭素が除去される。

対象となる廃棄物：抽出分離プロセスで発主する廃溶媒および他のハロゲン系元素を含まない可燃性液体がこの焼却炉で処理される。若干の水溶液が含まれていても処理可能である。

前処理：廃溶媒中のFPおよびアクチナイド類を除くため、硝酸、炭酸ナトリウム溶液でバッチ式に洗浄される。

最終生成物の形状：T B P の燃焼で生成した希りん酸水溶液が、最終生成物となる。

二次廃棄物：燃焼ガスが生成する。

利点：天然ガス用バーナを用いた焼却システムは、燃焼のコントロールをスムーズに行うことができる。インターロック・システムは運転の安全性を高めている。

問題点：バーナのノズル部分の浸食 (erosion) および腐食 (corrosion) の問題がある。また、パイロット点火システムの不良、火えん検出機構の不良などがある。

開発の状況：商業的に利用可能である。BNFPでは、重用化されている。

9.5.14 廃溶媒焼却炉 (BNFP)

BNFPで発生した有機の液体廃棄物はPAのウエストチェスターのAGNSおよびオキシカタリスト社によって設計された溶媒用焼却炉で処理されるだろう。⁽⁶⁹⁾

運転条件およびその見通し

この廃溶媒焼却炉は、強制対流式燃焼を採用したもので、他のオイルバーナ方式とは逆になっている。

この簡単な説明図は前述のプロセス概要の項に示してある。図に示されているように、この廃溶媒焼却炉は、2個の工程、すなわち、溶媒燃焼室と洗浄塔とからなっている。バーナのノズルの位置は燃焼室の頂部にあり、下向きに取付けてある。このノズルは2セットあり1つは天然ガス用、他は溶媒用である。燃焼に必要な空気もこのバーナを通して供給される。

燃焼室の内部はインコネルのライニングが施工されており、外側は10cmの熱しゃへい材が取り巻き、更にエアージ用の304Lステンレス鋼製ジャケットが取付けてある。

この焼却炉の運転は、先ず天然ガスで炉内温度が840℃に達するまでゆっくりと昇温を行う。所定温度に達し、安定状態になった後、廃溶媒をバーナノズルから供給し始める。天然ガスの燃焼えんは中空の円錐状となり、廃溶媒はその円錐状えんの中で燃焼するようになっている。天然ガスの流量は燃焼室の温度によって加減される。廃溶媒の供給量が増えると燃焼室の温度が上昇するので、天然ガスの流量は、定められた最少量にまで減らされる。この最少流量は、もし廃溶媒の供給が途切れたり、停止しても、燃焼えんが連続的に保持することができる量である。

この炉の特徴は、溶媒と水溶液が混合してもよく、水溶液だけがバーナに入っても炉の運転が停止しないところにある。

このBNFPの溶媒焼却炉の処理能力は $\sim 0.3 \text{ m}^3/\text{d}$ である。

燃焼室からの廃ガスは洗浄塔に入り、ガス温度の低下と、ガス中の燃焼生成物の除去がおこなわれる。

洗浄液は洗浄塔の下部から頂部へエアリフトにより連続的にリサイクルしており、燃焼廃

ガスの流れに対して向流式に塔の接触板を流れ落ちる。この洗浄溶液は中レベル放射性廃液処理系へ少しづつ抜き出すことにより、その比重が調節されている。そして、調製された洗浄溶液は、蒸発量および抜き出し量に見合った分だけ自動的に補充される。

洗浄塔から出た廃ガスは、ミスト除去装置を通り抜け更に槽類廃ガス処理系で処理される。

開発の状況

この焼却炉は、BNFPに設置されたものであるが、固形の焼却炉は、商業的にも利用可能なものである。

REFERENCES

1. K.H. Lin, Use of Ion Exchange for the Treatment of Liquids in Nuclear Power Plants, ORNL-4792, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, December 1973.
2. Commercial Alpha Waste Program Quarterly Progress Report, January to March, 1975, C.R. Cooley, Compiler, HEDL-TME 75-87, Hanford Engineering Development Laboratory, Richland, WA, October 1975.
3. Transuranic Waste Management Programs, July 1974 to December 1974, LA-6100-PR, Los Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos, NM, October 1975.
4. D.L. Zeigler, "Incineration Process Fire and Explosion Protection", Thirteenth AEC Air Cleaning Conference, August 12-15, 1974, San Francisco, CA, CONF-740807, pp. 911-923, 1974.
5. W.L. Lennemann, W.P. Ingalls, E.R. Jackson, G. Lohse, D.O. Yarbrow, D.L. Zeigler and D.B. Zippler, Incineration of Radioactive Solid Wastes, WASH-1168, USAEC, August 1970.
6. Radioactive Waste Handling in the Nuclear Power Industry, EEI Publication No. 60-46, Edison Electric Institute, New York, NY, March 1960.
7. P. Larsen, "Discussion," Seventh AEC Air Cleaning Conference, October 10-12, 1961, Brookhaven National Laboratory, Upton, NY TID-7627, pp. 454-456, 1961.
8. C.D. Corbit, Incineration, Compaction, Segregation, and Burial of Solid Radioactive Wastes, DUN-6748, Douglas United Nuclear, Inc., Richland, WA, February 1970.
9. M.I. Goldman, "Appendix 4. U.S. Practice in Management of Radioactive Wastes at Nuclear Power Plants", Management of Radioactive Wastes at Nuclear Power Plants, Safety Series No. 28, STI/PUB/208, International Atomic Energy Agency, Vienna, pp. 149-225, 1968.
10. I. Dougall, "The Management of Radioactive Wastes from Commercial Nuclear Power Stations in the United Kingdom," Management of Radioactive Wastes at Nuclear Power Plants, Safety Series No. 28, STI/PUB/208, International Atomic Energy Agency, Vienna, pp. 95-146, 1968.
11. J. Pradel, P.J. Parsons and E. Malasek, The Volume Reduction of Low-Activity Solid Wastes, Technical Reports Series No. 106, STI/DOC/10/106, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1970.
12. Y. Nagai, Radioactive Waste Management Practices in Japan, The OECD Nuclear Energy Agency, Paris, 1974.

13. S. Sakata, M. Kajiyoshi, A. Matsumoto and I. Oshima, "Management of Plutonium-Contaminated Solid Wastes at the Oarai Site," Management of Plutonium-Contaminated Solid Wastes, Proceedings of the NEA Seminar at Marcoule, 1974, The OECD Nuclear Energy Agency, Paris, pp. 96-106, 1974.
14. Radioactive Waste Incinerator, Basic Design Information, available from Trecan Limited, Mississauga, Ontario, 1975.
15. K.E. Brandner, R.L. Bipes and L. Williams, "Incineration of Waste Contaminated Oil," Eighth AEC Air Cleaning Conference, October 22-25, 1963, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, TID-7677, pp. 674-679, 1963.
16. R.C. Thorburn and R.J. Chandler, "Incinerator Reduces Volume of U-Contaminated Paper," Nucleonics, Vol. 19, No. 5, pp.86-87, May 1961.
17. L. Silverman, "Disposal of Low-Level Combustible Solid Wastes by Incineration," Practices in the Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes, Proceedings of a Symposium at Vienna, December 6-10, 1965, STI/PUB/116, International Atomic Energy Agency, Vienna, pp. 89-115, 1966.
18. Radicator Bulletin-RP-12467, available from Midland Ross Corporation, Toledo, Ohio.
19. R.S. Foster, Incineration of Plutonium Contaminated Waste Materials, RFP-735, Rocky Flats Plant, Golden, CO, May 1966.
20. Bulletin - Paco Incinerator, available from North State Pyrophyllite Company, Incorporated, Greensboro, North Carolina.
21. D. Lachapelle, "An Engineering Evaluation of a Radioactive-Waste Incinerator," Ninth AEC Air Cleaning Conference, September 13-16, 1966 Boston, MA, AEC-660904, Vol. 1, pp. 509-569, 1966.
22. F. Wormser, J. Rodier, E. de Robien et N. Fernandez, "Ameliorations apportees aux traitements des residus radioactifs," Proceedings of the Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, August 31 to September 9, 1964, Geneva, United Nations, New York, NY, Vol. 14, pp. 219-227, 1965.
23. R. Delarue, J. Pradel and C. Teissier, "L'incineration de Dechets Radioactifs au Groupe de Laboratoires du C.N.R.S. a Strasbourg-Cronenbourg," Industries Atomiques and Spatiales, Vol. 5, pp. 53-64, 1972.
24. W. Bahr, W. Hempelmann, H. Krause and O. Nentwich, "Experiences in the Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes in the Nuclear Research Center, Karlsruhe," Management of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes, Proceedings of a Symposium at Aix-en-Provence, September 7-11, 1970, STI/PUB/264, International Atomic Energy Agency, pp. 461-484, 1970.
25. W. Bahr, W. Hild and K. Scheffer, "Experiences in the Management of Plutonium-Containing Solid Wastes at the Nuclear Research Center Karlsruhe," Management of Plutonium-Contaminated Solid Wastes, Proceedings of the NEA Seminar at Marcoule, 1974, The OECD Nuclear Energy Agency, Paris, pp. 41-51, 1974.
26. N. Van de Voorde, G.E. Cantillon, Ch. de Raikem, E. Detilleux and H. Spriet, "Low- and Intermediate-Level Radioactive-Waste Management in Belgium, in Particular at Mol," Management of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes, Proceedings of a Symposium at Aix-en-Provence, September 7-11, 1970, STI/PUB/264, International Atomic Energy Agency, Vienna, pp. 433-459, 1970.

27. G. Sakash and P.M. Dawson, "Incineration of Low Uranium Content Wastes," paper presented at the American Nuclear Society Meeting held in San Francisco, CA, November 11-15, 1973, Trans. Amer. Nucl. Soc., Vol. 17, pp. 330-331, 1973.
28. H.A. Taylor, R.H. Allardice, J.G. Boyle, L.P. O'Connor and M.J.S. Smith, "UK Experience in the Management of Pu Contaminated Solid Waste," Management of Plutonium-Contaminated Solid Wastes, Proceedings of the NEA Seminar at Marcoule, 1974, The OECD Nuclear Energy Agency, Paris pp. 52-61, 1974.
29. J.M. Auchapt, "Etude du Procédé, de la Technologies et du Comportement en Routine de l'Incinerator Alpha de Marcoule," Management of Plutonium-Contaminated Solid Wastes, Proceedings of the NEA Seminar at Marcoule, 1974, The OECD Nuclear Energy Agency, Paris, pp. 155-162, 1974.
30. H. Soulier, "Incinerateur de Rejets Riches en Emetteurs Alpha de Marcoule Fonctionnement," Management of Plutonium-Contaminated Solid Wastes, Proceedings of the NEA Seminar at Marcoule, 1974, The OECD Nuclear Energy Agency, Paris, pp. 163-171, 1974.
31. R. Dennis and L. Silverman, "Radioactive Waste Incinerator Design and Operational Experience - A Review," Seventh AEC Air Cleaning Conference, October 10-12, 1961, Brookhaven National Laboratory, Upton, NY, TID -7627, pp. 419-426, 1961.
32. F.D. Fisher and M.C. Gilchrist, Recovery of Plutonium from ZPPR Unmeasurable Wastes, Progress Report, July 26, 1969 to January 29, 1970 NUMEC-1661-5, Nuclear Materials and Equipment Corporation, Apollo, PA, 1970.
33. L.M. Knights, The Continuous Incineration of Plutonium-Bearing Scrap, ARH-SA-39, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, Wa., September 1969.
34. Transuranic Waste Research and Development Program, March - June 1973, LA-5451-PR, Los Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos, NM, November 1973.
35. Transuranic Solid Waste Management Research Programs, October - December 1973, LA-5614-PR, Los Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos, NM, May 1974.
36. D.L. Ziegler, A.J. Johnson and L.J. Meile, Fluid Bed Incineration, RFP-2016, Rocky Flats Plant, Golden, CO., June 1973.
37. D.L. Ziegler, A.J. Johnson, L.J. Meile, A.L. Johnston and E.L. Shamhart, Pilot Plant Development of A Fluidized Bed Incineration Process, RFP-2271, Rocky Flats Plant, Golden, CO, October 1974.
38. L.K. Mudge, R.A. Walter and G.F. Schiefelbein, Waste Treatment and Handling Processes Annual Report, BNWL-1861, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, September 1974.
39. L.K. Mudge, G.F. Schiefelbein, R.G. Sullivan and R.A. Walter, Pyrolysis-Incineration of Simulated Combustible Alpha Wastes, BNWL-1945, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, October 1975.
40. L.K. Mudge and P.E. Walkup, "Pyrolysis-Incineration of Combustible Alpha Wastes," in Nuclear Waste Management and Transportation Quarterly Progress Report July through September 1975, A.M. Platt, Compiler, BNWL-1952, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, pp. 31-34, November 1975.

41. D.E. McKenzie, L.F. Grantham, R.B. Paulson, W.L. Richards, and R.B. Rennick, Disposal of Transuranic Solid Waste Using Atomics International Molten Salt Combustion Process, AI-ERDA-13151, Rockwell International, Atomics International Division, Canoga Park, CA, May 1975.
42. L. F. Grantham, D. E. McKenzie, R. D. Oldenkamp and W. L. Richards, Disposal of Transuranic Solid Waste Using Atomics International Molten Salt Combustion Process II, AI-ERDA-13169, Rockwell International, Atomics International Division, Canoga Park, CA, March 1976.
43. Commercial Alpha Waste Program Quarterly Progress Report, April to June, 1975, C.R. Cooley, Compiler, HEDL-TME 75-102, Hanford Engineering Development Laboratory, Richland, WA, December 1975.
44. C.R. Cooley and R.E. Lerch, "The Acid Digestion Process for Treatment of Combustible Wastes," Management of Plutonium-Contaminated Solid Wastes, Proceedings of the NEA Seminar at Marcoule, 1974, The OECD Nuclear Energy Agency, Paris, pp. 172-185, 1974.
45. R.E. Lerch, Acid Digestion of Combustible Wastes: A Status Report, HEDL-TME 75-5, Hanford Engineering Development Laboratory, Richland, WA, May 1975.
46. R.E. Lerch and J.R. Divine, "Waste Volume Reduction by Acid Digestion", paper presented at the American Institute of Chemical Engineers Meeting, Boston, MA, September 1975, Hanford Engineering Development Laboratory, Richland, WA, 1975.
47. W. Wasling and F.E. Griffin, "The Treatment of Low-Level Solid Wastes by Compression and Baling," Practices in the Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes, Proceedings of a Symposium at Vienna, December 6-10, 1965, STI/PUB/116, International Atomic Energy Agency, Vienna, pp. 731-745, 1966.
48. R.H. Burns, G.W. Clare, A.J. Smith and D.A. Dunkason, "The Treatment of Low-Level Solid Wastes at the Atomic Energy Research Establishment, Harwell," Practices in the Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes, Proceedings of a Symposium at Vienna, December 6-10, 1965, STI/PUB/116, International Atomic Energy Agency Vienna, pp. 639-661, 1966.
49. J.B. Owen, "Management of Plutonium Contaminated Wastes at Rocky Flats," Management of Plutonium-Contaminated Solid Wastes, Proceedings of the NEA Seminar at Marcoule, 1974, The OECD Nuclear Energy Agency, Paris, pp. 107-110, 1974.
50. Ray Mulkin, Characterization of Transuranic Solid Wastes from a Plutonium Processing Facility, LA-5993, Los Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos, NM, June 1975.
51. Survey and Preliminary Evaluation of Shredding Equipment for Low Level Radioactive Waste, AI-73-42, Rockwell International, Atomics International Division, Canoga Park, CA, 1973.
52. N.W. Snyder, "Energy Recovery and Resource Recycling," Chemical Engineering, vol. 81, No. 22, pp. 65-72, 1974.
53. D.M. Anderson, C.W. Christenson, D.J. Coon, Jr., F.L. Hannon, D. Nelson, G.F. Trudeau and R.D. Walton, Jr., Compaction of Radioactive Solid Waste, WASH-1167, USAEC, June 1970.

54. Removal of Particulate Matter from Gaseous Wastes - Wet Collectors, available from American Petroleum Institute, Washington, D.C., 1959.
55. Removal of Particulate Matter from Gaseous Wastes - Cyclone Dust Collectors, available from American Petroleum Institute, Washington, D.C., 1955.
56. Removal of Particulate Matter from Gaseous Wastes - Electrostatic Precipitators, available from American Petroleum Institute, Washington, D.C., 1958.
57. H. E. Anderson, "Filtering Radioactive Particles From Stack Gas," Air Conditioning, Heating, and Ventilation, Volume 55, No. 2, pp. 71-77, February, 1958
58. Removal of Particulate Matter from Gaseous Wastes - Filtration, available from American Petroleum Institute, Washington, D.C., 1961.
59. C.G. Von Fredersdorff and M.A. Elliott, "Coal Gasification," in Chemistry of Coal Utilization, H.H. Lowry, Editor, Supplementary Vol., John Wiley and Sons, Inc., New York, NY, pp. 892-1022, 1963.
60. M.A. Thompson, Research and Ecology Semiannual Progress Report, RFP-1921-A, Rocky Flats Plant, Golden, CO, p. 36, August 1972.
61. D. E. McKenzie, L. F. Grantham, W. L. Richards and R. B. Paulson, "Mass Reduction of Solid Transuranic Waste by Molten Salt Combustion," paper presented at Meeting of American Institute of Chemical Engineers, Boston, MA, September 1975, Rockwell International, Atomics International Division, Canoga Park, CA, 1975.
62. L. F. Grantham, et al., Disposal of Organic Pesticides, U.S. Patent 3,845,190, 1972.
63. L.F. Grantham, Removal of Nitrogen Oxide and Other Impurities, U.S. Patent 3,754,074, 1973.
64. R.D. Oldenkamp and E.D. Margolin, "The Molten Carbonate Process for Sulfur Oxide Emissions," Chemical Engineering Progress, 65, p. 73, 1969.
65. C.A. Trilling, "Coal Gasification by the Atomics International Rockgas Process," paper presented at ASME Meeting: Symposium on Coal Gasification, Cleveland, Ohio, November 1970, Rockwell International, Atomics International Division, Canoga Park, CA, 1970.
66. I. Larson, "Treatment of Combustible, Solid Low-Level Radioactive Waste at Risø, the Danish Atomic Energy Commission Research Establishment," Practices in the Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes, Proceedings of a Symposium at Vienna, December 6-10, 1965, STI/PUB/116, International Atomic Energy Agency, Vienna, pp. 763-771, 1966.
67. R.E. Lerch and C.R. Cooley, Treatment of Low-Level, Alpha-Contaminated Solid Waste by Acid Digestion, HEDL-TME 73-22, Hanford Engineering Development Laboratory, Richland, WA, April 1973.
68. D.W. Tharin, Burning of Radioactive Process Solvent, DP-942, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, February 1965.
69. Final Safety Analysis Report, Barnwell Nuclear Fuel Plant, Separations Facility, Docket 50332-41, Allied-Gulf Nuclear Services, Barnwell, SC, pp. 4-74 to 4-79, October 1973.

10.0 非高放射性液体廃棄物の処理

10.1 廃棄物の特性

高放射性液体廃棄物は連邦規制法のコード中の Title 10. Part 50.(10CFR50) “使用済燃料再処理施設において、第一溶媒抽出サイクル作業から生ずる液体廃棄物またはこれに相当するもの、及びこれに続く抽出サイクルからの濃縮廃棄物またはこれに相当するもの”として定義されている。

本書に於いて、“非高放射性液体廃棄物”(non-high-level liquid waste)という言葉が使われる時、これは高放射性液体廃棄物(HLLW)以外のすべての液体廃棄物を意味している。そしてこれらの液体廃棄物は、放射性核種除去のためにさらに処理をしなければプラント廃液として放出することはできない。定義によって、HLLWは再処理工場からしか生じないから、再処理工場を除く他の核燃料サイクル施設では、非高放射性液体廃棄物しか生じない。上述のHLLWの定義によると、再処理工場からのどんな放射性液体廃棄物も濃縮の度合いによってはHLLWに成り得ることを示している。しかし本書に於いては、それ以降のHLLW処理において、それらの廃棄物が、第一溶媒抽出サイクルからの廃液またはこれに相当するものと実際に一緒にされなければ、非高放射性液体廃棄物と考える。HLLWの処理工程については6章に述べられている。

非高放射性液体廃棄物は、その化学的組成、放射能レベル、超ウラン元素(TRU)の含有量、燃焼性等が多種多様な広範囲の放射性液体廃棄物を包含しており、さらに一般的に、中放射性液体廃棄物(ILLW)と低放射性液体廃棄物(LLLW)に分類される。ILLWとLLLWの間の相違は、主に相対的な放射能レベルに基づいているが、これらの2つの液体廃棄物の分類に、一般的に認められている数値上の境界がないため判断的要素で左右される。一般にILLWは、比較的溶存固形物含有量が高く、処理施設の遮蔽と遠隔操作が十分に必要となる量の放射性物質を含有し、超ウラン元素で相当汚染されている可能性が比較的高いと考えられる。他方、LLLWは一般的に放出する前にさらに処理を必要とする放射性物質を含んでいる化学的に薄い溶液と考えられており、処理設備に必要な遮蔽は最少でよい。ごく一部を除いたILLW及びLLLWは、暫定貯槽に熱交換設備を必要とする程に放射性壊変熱を発生するものはない。この章の後の方でみられるように、個々の廃棄物処理法は、主な適応性に従ってILLWかLLLWのどちらかにたい分類される。

再処理工場に於けるILLWの典型的な発生源は、槽類オフガス処理工程からの洗浄溶液、使用済燃料及び固化した高放射性廃棄物の貯蔵プールの水処理系のイオン交換再生廃液、カスク及びプラントの除染溶液、溶媒洗浄工程からの廃液ならびに保守及び分析作業からの種々雑

多な廃液などである。また再処理工場の L L L W の潜在的な発生源は、U 及び Pu 精製サイクルならびに製品転換工程からの廃液、濃縮器からの凝縮液、槽換気からの凝縮液および洗濯廃液などである。

混合酸化物燃料加工プラントの作業は、洗浄、エッチング及び水洗操作、燃料棒の除染及び脱脂、分析操作などからの廃液ならびに、スクラップ回収工程が組込まれている場合の溶媒抽出操作からの廃液などの I L L W または L L L W を生ずる。この種のプラントからの液体廃棄物中の FP 含有量は、ごく微量であるが T R U で相当汚染されていることがある。

原子炉の一次冷却水および使用済燃料貯蔵の冷却水の中には、少量の放射性物質が含まれることがある。この汚染は、腐食生成物および化学的添加物の中性子による放射化、燃料棒外面の微量の U の核分裂、または燃料被覆の破損によって生ずる。これらの冷却材は循環冷却材中の汚染物の蓄積を防ぐため、および放出する廃液中の放射性物質含有量を合理的に達成可能な限り低く抑えるために、日常的にイオン交換によって清浄にする。イオン交換体を廃棄せずに再生する場合は、再生廃液はさらに処理が必要な液体廃棄物となる。この廃液は、種々雑多な廃液（冷却材のもれ、床廃水、洗濯廃水、除染作業に使用した溶液、その他）とともに、一般に蒸発処理して濃縮スラリーとし、さらに処理を必要とする廃棄物の量を減らす。

前述の非高放射性液体廃棄物の発生源は、典型的なものであり、ほんの一例にすぎない。工程フローシートによって、液体廃棄物の組成が変わるので、非高放射性液体廃棄物の発生源、特性及び量を完全かつ最終的にリストアップするにはフローシートの根拠の確立が必要である。

I L L W 及び L L L W の発生源については、その推定化学的組成及び量なども含めて、2章でさらに詳しくのべた。

10.2 1 次廃棄物の各種処理法

ある放射性液体廃棄物の流れ、または混合した流れを適当に処理するには、選択された処理方法の適応及びその結果が、廃棄物特性に適合するとともに処理目的を達成することを確かめるため、広範囲な処理フローシートの開発が必要である。

このような処理フローシートは、本章及び 12 章の“種々雑多な非高放射性廃棄物の固定化”でのべる単一処理方法か又はこれを組み合わせた処理方法から成っている。特定の 1 次廃棄物処理法によって生ずる 2 次廃棄物の付随的処理法は、1 次廃棄物の処理フローシート開発の間に確立すべきである。約言すれば、非高放射性液体廃棄物の処理目的は下記のようにである。

- (1) 放射性物質の封じ込めの継続
- (2) 貯蔵、監視を継続しなければならない放射性廃棄物の減容
- (3) 放射性成分のより拡散しない廃棄物形または素地中への混和

本章で述べる処理方法の共通の目的は、非放射性物質からの放射性成分の分離である。すなわち、与えられた廃棄物組成に対して、この分離が成し遂げられる実際の度合は、処理方法によって変化する。分離した放射性成分を固体素地中に混和する処理方法は12章で述べる。

総合的な液体廃棄物の処理フローシートの開発に当たっての必然的な第1段階は、液体廃棄物を工程内で再循環して再利用することが可能な計画を検討することである。このような計画によって、さらに処理を必要とする液体廃棄物の量及び種類を減少させ、また工程で必要な化学薬品及び脱イオン水の使用量を減少させることができる(5章参照)。その他に処理方法の選択に当たって考慮すべきことは、お互に両立する組成の廃液の混合である。この種の廃液の混合によって必要な廃棄物処理施設の数及び型を減らすことができる。

本章で記述する処理方法は、製品(U, Pu)及び工程に使用する化学薬品を回収するための処理操作後に行なわれると仮定している。一連の廃液処理システムの最終段階で、製品、または工程に使用した化学薬品を容易に回収する可能性と溶出性の低い廃棄物形とする目的とはお互に矛盾すると考えられる。時々工程の乱れによって異常に多量の超ウラン元素を含む廃液が数バッチ生ずることがあるが、このような場合には通常の廃棄物処理操作を行なう前に工程内で再び処理することが望ましい。非高放射廃棄物から超ウラン元素を回収するための基本的な方法は11章で述べる。いくつかの代表的な処理システムをILLWについてはFig 10-1にLLWについてはFig 10-2に示す。数値は液体廃棄物の入量を100とした場合、選択された処理システムにおける代表的な量的変化を推定したものである。しかしながら、実際の量的変化は特殊な流れの組成及び後続する処理計画によって大きく変わりうる。

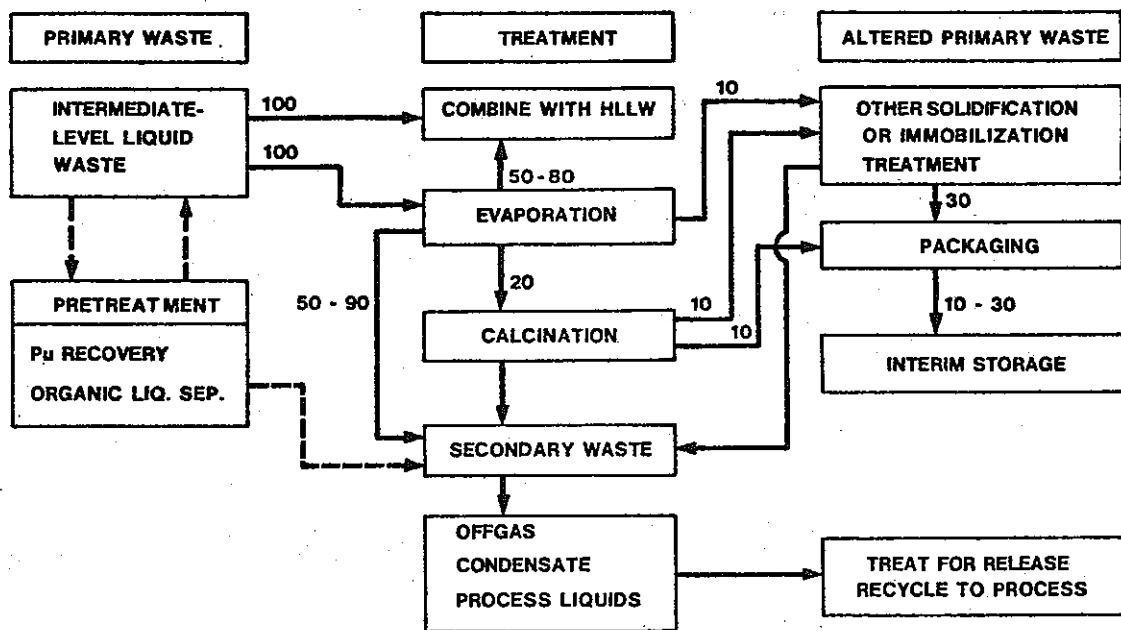


FIGURE 10-1. Intermediate-Level Liquid Waste Flow Diagram

Fig 10-1 及び Fig 10-2 ならびに以下にのべる情報は、処理法または処理系統がその ILLW または LLLW への適応性によって分類できることを暗に意図したものではない。ILLW と LLLW の間に明確な境界がないことは別として多くの処理方法は、多分経済的ではないが、少なくとも技術的には、ILLW と LLLW のどちらにも適用することができる。従って、Fig 10-1 及び Fig 10-2 に示した各種の廃棄物処理系統はすべて包含するものではなくて典型的なものであると考えるべきである。

10.2.1 中放射性液体廃棄物

再処理工場に必要な廃棄物処理施設を全体的にへらす ILLW の処理方法は、HLLW 及び後続する HLLW の処理法と化学的に両立する ILLW を HLLW と混合することである。これらの廃棄物は、HLLW の固化及び固定化処理またはいずれか一方に先立って普通行なわれる蒸発濃縮工程の前または後のどちらかで混合することができよう。HLLW の処理法は 6 章に述べた。

ILLW 単独処理（すなわち、HLLW と混合処理しない場合）の第一段階では、次の処理工程へ送られる液の割合を少なくするため、通常は蒸発処理が行なわれる。蒸発処理について濃縮溶液またはスラリーは仮焼工程で処理され、含まれる固形物は酸化物のような安定な非溶融化合物に高温で乾燥及び熱分解される。つぎに蒸発濃縮物及び仮焼廃棄物は 12 章でのべる処理法の 1 つをもちいて固定化できる。全体的な ILLW 処理作業によって生ずる固化生成物は適当な容器（密閉構造）に封入し、最終貯蔵または処分されるまでの間暫定貯蔵場所に移される。

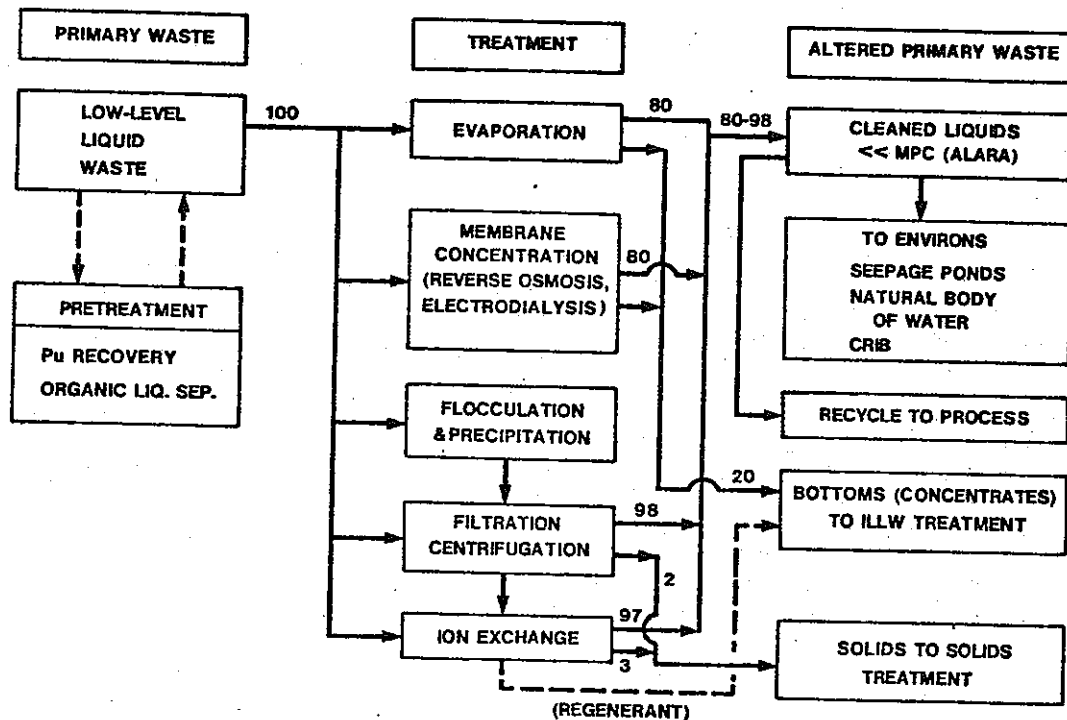


FIGURE 10-2. Low-Level Liquid Waste Flow Diagram

10.2.2 低放射性液体廃棄物

溶質濃縮または除去をする別の方法、特にイオン交換法は、低い溶質濃度で大量の廃棄物に適用して経済的で有利であるが、LLLWの処理には蒸発濃縮処理が代表的である。生成する蒸発濃縮溶液はLLLW処理工程の給液となる。LLLW蒸発処理よりの凝縮液は、工場廃水として放出するかまたは工程内で再利用できる程に一般的には汚染濃度が十分低い。

ろ過法または遠心分離法は不溶性粒状物質を除去するため、一連の廃液処理作業のほとんどの段階でも使用することができる。不溶性物質が下流の処理工程や装置に有害な影響を与える場合には、微粒子の除去は第1段階で行なわれることが多い。いくつかの特殊な適用例では、ろ過もしくは遠心分離だけでろ過液の再利用または放出ができることがある。しかしながらより一般的には化学薬品の添加によって容易に凝集または沈殿できる汚染物質を含む廃液に対しては、微粒子の除去は一連の処理工程の第2段階で行なわれる。事実希望する除染効果を得るには1段以上の沈殿ろ過操作が必要であろう。ろ過法または遠心分離法は、他の処理工程を経てきた少量の浮遊物質を含んでいる液体廃棄物の最終仕上げ(polishing)段階としても用いることができる。比較的イオンの汚染物質の含有量の低いLLLWの除染に対して、イオン交換処理法を相対的に共通して用いることは効果的であると立証されている。これらの処理法で、固形のイオン交換処理物質(通常は有機樹脂または無機ゼオライト)は、もともとイオン交換物質中に存在するより危険性の少ないイオンよりもむしろ除去すべき放射性イオンと選択的に結合する。このようにして、イオン交換処理によって、固形マトリックス(イオン交換物質)中に供給した放射性成分を捕集しつつ、事実上非放射性の排水を理論的には生成することができる。放射性成分を吸着したイオン交換物質は固体廃棄物処理法によって処理するか又は化学的に再生してさらに再使用するが、後者の場合にはLLLW処理法でさらに処理しなければならない一層濃縮された再生廃液を生ずる。イオン交換床の液流量は粒状物質の蓄積により減少するので、ろ過または遠心分離工程がしばしばイオン交換処理に先行して行なわれる。

広範囲に適用するためにはさらに開発が必要でありまたより有利な経済的な動機が必要であるが、逆浸透法及び電気透析法はLLLWの精製処理に潜在的に使うことができる隔膜法である。根本的に、これら両処理法は隔膜を通じての選択的な移行によって溶質を含まない液体から溶解性成分を分離する。この分離はそれぞれ供給溶液の逆浸透圧ならびに供給溶液中の電流の通過による電気透析によって引き起されるものである。どちらの処理法も単独にあるいは他の処理法と組合せて使用することができよう。特殊な組成の廃棄物溶液は、より一般的に用いられている蒸発処理及びイオン交換処理によるよりも、逆浸透または電気透析による方が処理しやすい場合がある。

10.3 2次廃棄物の処理

本章で述べたすべての非高放射性液体廃棄物処理法は、放出、貯蔵または処分する前にさらに処理を必要とする2次廃棄物を生ずる可能性がある。個々の1次廃棄物処理法に特有な2次廃棄物処理の必要条件は10.4節にそれぞれ分類して述べる。

10.3.1 気体

多くの処理法は、排ガス処理系を必要とする。この排ガス処理系はHEPAフィルタのみかまたはそれに付随する凝縮器、スクラバ、同伴物質分離装置および加熱器等から成っている。これらの装置を運転すると処理の必要な廃棄物（たとえばスクラバ、廃HEPAフィルタ等）がさらに生ずる。

10.3.2 液体

処理法のなかには、放出する前にさらに処理をしなければならないほどの放射性核種を含んだ2次液体廃棄物を生ずるものがある。たとえば、ILLWを蒸発処理すると凝縮液を生ずるが、凝縮液は飛沫同伴の分離効果によってはイオン交換または再蒸発処理による再純化が必要かもしれない。これに類似した状態は、1次廃棄物をイオン交換、逆浸透、または電気透析によって処理する場合にもおこりうるが、得られる除染効果は工程廃液として処理済液を放出するには不十分である。オフガス処理系も凝縮液及びスクラバ溶液などの2次液体廃棄物を生ずる。

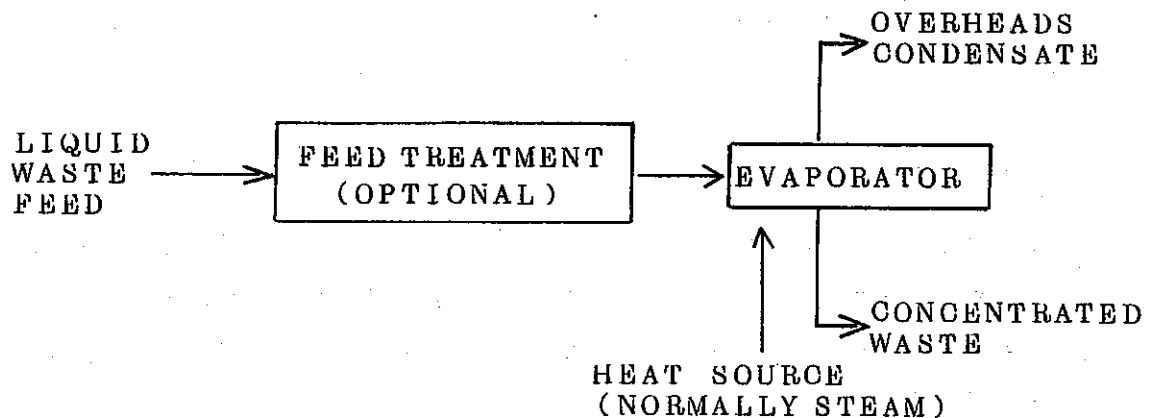
10.3.3 固体

すべての処理法からはさらに処理を必要とする固体廃棄物が生ずるが、この種の廃棄物には、使用済みイオン交換樹脂、フィルタ素材、破損装置及び放射能で汚染された一般のくずがある。

10.4 各種の処理技術の説明

10.4.1 蒸発処理

プロセスの要約



工程の概要

液体廃棄物は蒸発されて、給液中のほとんどすべての不揮発性成分を含む減容された濃縮液缶残と、水蒸気（つづいて凝縮する）、他の揮発性成分及びごく微量の給液成分からなる上部留出物とを生ずる。

開発の現状

現在の蒸発処理技術は、多数の処理施設で放射性液体廃棄物の処理に適用されて実証されている。

対象となる廃棄物

蒸発処理法はあらゆる廃棄物の流れに適用できるが、通常は高汚染溶液や高濃度の塩を含んでいる溶液に適用する。

生成物の形状

濃縮生成物はすべて液状、スラリー状、または若干の適用例では固体である。

フィードの前処理

腐食防止のための化学的調整あるいはスケールの生成または発泡の傾向を防止するための微量の化学試薬の添加が望ましいことがある。

10.4.1.1 背景

蒸発処理は加熱によって溶媒蒸気を追い出して溶液やスラリーを濃縮する処理法であり、廃棄物を減容し排出液中の放射性核種の量をへらすために原子力産業で広く適用されている単一操作である。蒸発処理はそれによってえられる揮発性成分及び不揮発性成分間の高い分

離効果が必要な放射性廃棄物に普通用いられるが、沈澱、ろ過、イオン交換のようなより安価な低温処理では処理できない廃棄物に対しても用いられる。蒸発缶は元来溶液又はスラリーに熱を移送する装置と液相から気相を分離する装置とから成っており、その設計の主要な要素は伝熱、気・液体分離及びエネルギーの利用である。

放射性液体を濃縮する蒸発缶の設計では、液体の除染が最も重要な目的であって加熱費はそれほど重要でないから、気・液分離が最重要因子となる。少量の飛沫同伴でも凝縮した蒸気を予想以上に高いレベルで汚染することができる。蒸発缶の除染係数 (decontamination factor) は缶内の汚染物濃度と留出凝縮液の汚染物濃度との比率で通常定義され、1段の蒸発及び飛沫同伴分離でえられるこの除染係数は普通 $10^4 \sim 10^6$ の範囲である。蒸発缶の型式及び設計、付加する飛沫同伴分離装置の設計及び性能ならびに供給液中の汚染物の揮発性が、えられる除染係数に最も重要な影響を与える。放射性の I, Ru 及び ^3H が蒸発処理で除染しにくい最も著名な元素である。

蒸発缶に関連して数種の型式の飛沫同伴分離装置が用いられており、この種の装置は蒸発缶内又は缶体とは離して別に蒸気の通路に放置される。バフフルプレート及びワイヤメッシュ・スクリーンなどの衝突型 (impingement) 分離器が最も一般的に用いられる。蒸気流通断面積を大きくすると蒸気速度が低下して同伴する液滴の重力沈降が助長されることがある。サイクロンミストセパレーターも遠心力によって水滴を取り除くため用いられるが、より完全に飛沫同伴を分離するために洗浄塔が用いられることもある。数種類のこの種の分離装置が容易に商業的に利用可能であり、設計パラメータは十分に確立されている。

この項で数種の一般的な蒸発装置及び処理法について述べるが、これは利用可能なすべての特殊な選択を包含するものではない。放射性液体廃棄物の処理法としての蒸発処理に関する追加情報及びより詳細な知見は参考文献の 1~5 を参照されたい。

蒸発処理は固体濃度が高くてその放射性核含有量から高度の除染が必要な液体廃棄物の処理に最も適当であるが、原子力施設においてはこの種の液体廃棄物の量は、より低い放射性液体廃棄物の量と比較して少ないのが普通である。多量の低放射性液体廃棄物の処理に対しては、蒸発処理よりも安価なその他の液体廃棄物処理法 (例えばイオン交換法、フロッキングレーション法、ろ過法等) が経済的な配慮から一般に好んで用いられる。液体廃棄物がスケール生成、発泡性または腐食性物質を含む場合には、ある種の前処理 (通常は、化学薬品の添加による) または他廃棄物処理法と組み合わせることが望ましいことが多い。

10.4.1.2 生成物の特性

蒸発処理法の生成物の特性は、供給液体の特性及び実施する蒸発処理の程度によって広く変化する。蒸発処理が全液体廃棄物処理工程の最終段階になることはめったにないので実施する蒸発処理の程度は 12 章に述べる後続する処理作業の必要条件によって左右される。蒸

発缶で濃縮した生成物の化学的特性は沈澱成分をより多く含んでいる可能性はあるが、蒸発缶に供給した物質の不揮発性成分の特性と基本的に同じである。流動性のよい固体状生成物のえられる蒸発缶も利用可能であるが、典型的な蒸発缶の生成溶液（缶残）は約10～50wt%の溶存固体を含んでいる。

10.4.1.3. 工程の概要

蒸発方式は、幾世紀も一般産業で用いられてきた工程である。現在利用できる蒸発装置の種類を次に示す。

○コイルあるいはポット型蒸発缶

この型式の蒸発缶は、小容量処理用で、最も簡単でよく使用されているものの一つである。主として回分操作で使用されるもので、装置は、単なる容器であり、その中に液体をいれ、加熱し、蒸発させる。普通、加熱は、コイルの内部、あるいは周囲の外套での水蒸気凝縮でおこなう。直火や電熱器で加熱することもある。容器から発生した蒸気は、普通外部の気液分離器および水冷凝縮器を通過させる。この型式の蒸発缶の例としては、酒蒸留器がある。この場合、凝縮液は、再循環または廃棄する除染済み廃液ではなくて、むしろ消費用の製品となる。この蒸発システムは、スケールの生成または発泡の傾向の激しい廃液処理には不適である。

○自然循環型蒸発缶

自然循環型蒸発缶は、一般に、シェル・チューブ熱交換器中で蒸気を凝縮させて加熱する。電熱器を使用する場合もある。最も簡単な自然循環蒸発缶は、水平円筒形容器中に水平に加熱管をおき、加熱管中には凝縮する水蒸気を流し、外側には蒸発すべき液体を満たしているものである。この型式の自然循環蒸発缶は、高さの制限が要求される所に設置するのに適している。スケール生成、塩析あるいは発泡の傾向のある液体の蒸発には適していない。

縦管型自然循環蒸発缶は横管型より一般によく使用されている。この蒸発缶は普通シェル・チューブ熱交換器のシェル側での水蒸気凝縮で加熱される。この結果、蒸気が生じ液体は加熱管中を縦上方に流れる。蒸気の生成によって、見掛け上の加熱管中の液体の密度は、周囲の液体の密度より相当低くなる。この密度差が循環速度を高めしたがって高伝熱係数が得られる。縦管型自然循環蒸発缶に使用する熱交換器は、蒸発缶本体の円部あるいは必要な配管をして外側に設置するかのどちらでもよい。普通は加熱管群の保守交換に便利のため、外部熱交換器が使用される。外部縦加熱管型自然循環蒸発缶の概要図を Fig. 10-3 に示す。

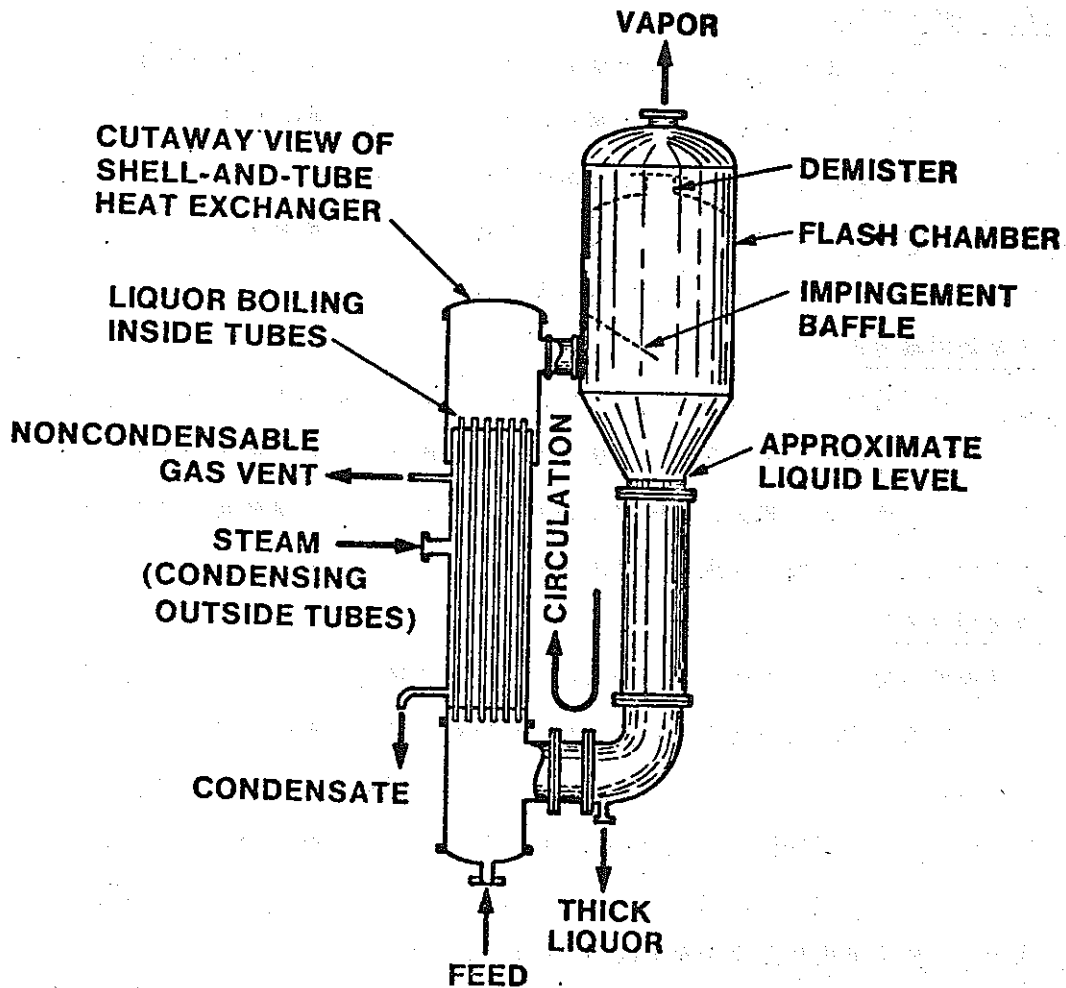


FIGURE 10-3. Natural Circulation Evaporator With External Vertical-Tube Heat Exchanger

○強制循環型蒸発缶

強制循環型蒸発缶では、ポンプで加熱管内を通してかなり早い速度で溶液を再循環させる。この場合1循環当りの蒸発量は比較的少ない。循環速度は普通、一定に保ち、蒸発速度とは無関係である。熱交換器は、一般に、洗浄、保守、交換を容易にするため、蒸発缶本体に組込まないで分離して設置する。

この蒸発缶型式は、熱交換器配管中を高速で流体を流すためにスケールの沈積が減少するので、スケールがしやすい流体を処理するのに適している。蒸発缶の通常液位と関連させて熱交換器を適正配置するかまたは熱交換器の循環配管の出口に流れを制限する装置を取付けることにより、熱交換器内の沸騰を防ぐことができる。これによって、総括伝熱効率が上がり、さらにスケールが生成する傾向が低下する。

○蒸気圧縮型蒸発缶

蒸発エネルギーを再利用して次の蒸発の熱源とすれば、さらに熱の節約になる。蒸気圧縮型蒸発缶では、蒸発缶からの低圧蒸気の潜在エネルギーを蒸気圧縮によって増加し、より高温での凝縮潜熱が利用できる。加圧蒸気は生蒸気と一緒にし、加熱媒体として蒸発缶の熱交換器の蒸気側に再循環する。蒸気は、機械的圧縮機（電動機またはタービン駆動）あるいはスチームインセクターのいずれかで圧縮できる。

○多重効用蒸発缶

多重効用蒸発缶は、エネルギーの利用を高めるもう1つの方法である。この蒸発缶システムでは、次段の缶（より濃縮した液体）の加熱媒体として、前段の缶からの蒸気を利用してする。一連の缶は順次に減圧して普通運転されるので、蒸気加圧する必要はない。この形式の蒸発缶は一般に大規模で利用するときのみ用いられる。

○薄膜型蒸発缶

薄膜型蒸発缶は、機械的エネルギーを用いて熱伝導を向上させているので、強制循環型蒸発缶の特殊な変形と考えられる。加熱面は回転かくはん翼または一連のワイパーを含む円筒から成っており、これらは円筒内壁面と一定の間隔を保つかまたは、液体膜を介して壁面に接するように保持されている。一般には縦型および横型の両方があり、円筒には少しテーパがついている。円筒はスチームジャケットかまたは他の方法で外部より加熱する。代表的な横型薄膜型蒸発缶を Fig 10-4 に示す。

廃液は円筒の一端に供給し、回転翼により激しくかき回す、これによって加熱面上の廃液は薄いみだれた膜となる。膜面から部分的な蒸発が急速に起こり、次の翼の回転によりこの濃縮した薄膜が再分布される。廃液は連続的にこのような作用をうけて円筒の出口端に移動し、液体、スラリーまたはサラサラした固体の生成物としてノズルを通して円筒から排出される。濃縮物の再分配および移動のほかに、中央の蒸気空間部からの泡および同伴飛まつを除去するのにも回転翼は役立っている。この形式の蒸発缶の利点を上げると、熱伝導効率が高いこと、生成物の滞留時間が短いこと（すなわち、生成物の熱分解を減少させる。）および高い濃度まで生成物を、蒸発濃縮できることである。

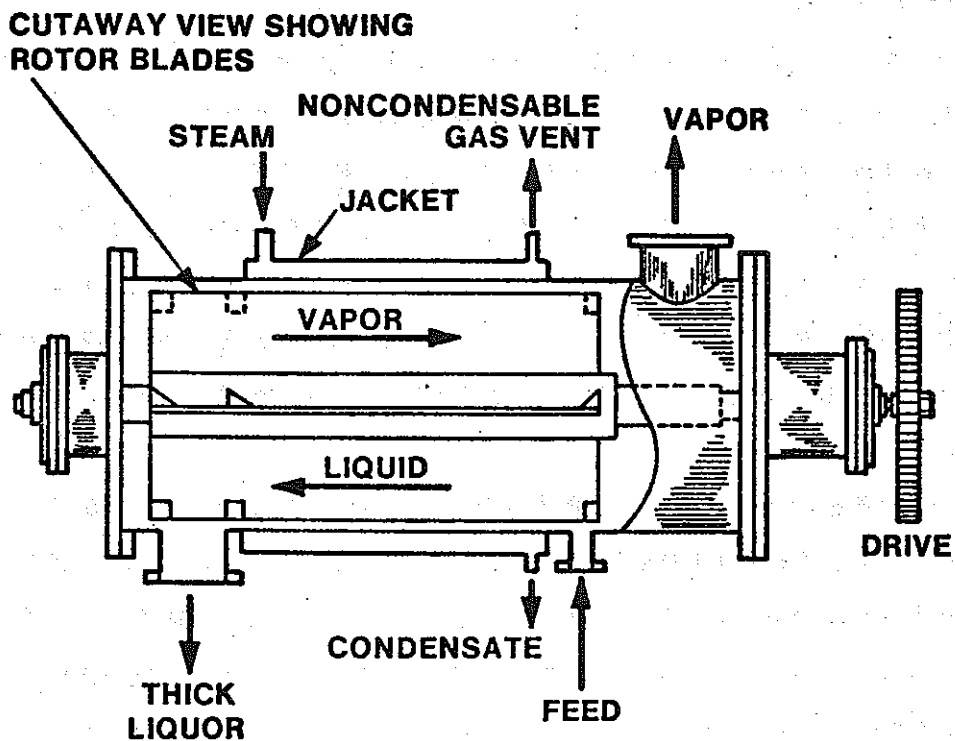


FIGURE 10-4. Wiped Film Evaporator

○乾燥機

乾燥機は、固体含有率の高い廃液を蒸発・固化するのに適当な方法であって蒸発缶の一種ということもできる。乾燥装置の一例はスプレー乾燥機であり、これには物質が直接接触する加熱面がなくスケールが生成するかまたは熱に敏感な物質の処理に特に応用されている。溶液は、ノズルまたは、機械駆動の急速回転噴霧ディスクを介して乾燥室内に噴霧される。乾燥室には供給する液体を完全に蒸発するのに十分な加熱した気体（普通は空気と燃焼生成物）を供給する、伝熱は加熱した気体と液滴との直接接触で行なわれる。他の加熱方法としてふく射加熱を用いるかまたは放射熱をもとにふく射加熱で乾燥機に供給する空気予備加熱を補足することもできる。小球状粒子から成る噴霧乾燥生成物は一連のサイクロンで捕集する。サイクロンの後段には一般にバッグフィルタが設けられ、また、毒性物質の場合にはさらにH B P Aフィルタシステムがある。使用目的に応じて、その他の型式の乾燥機も利用できる。噴霧乾燥の代りとなる主なものは流動床乾燥であり、これは6章で述べた流動床仮焼法の場合と同様に行なわれるが、操作温度は低い。先に述べた薄膜蒸発缶は、この操作モードに適した組成の廃液に対しては乾燥機として運転することができる。

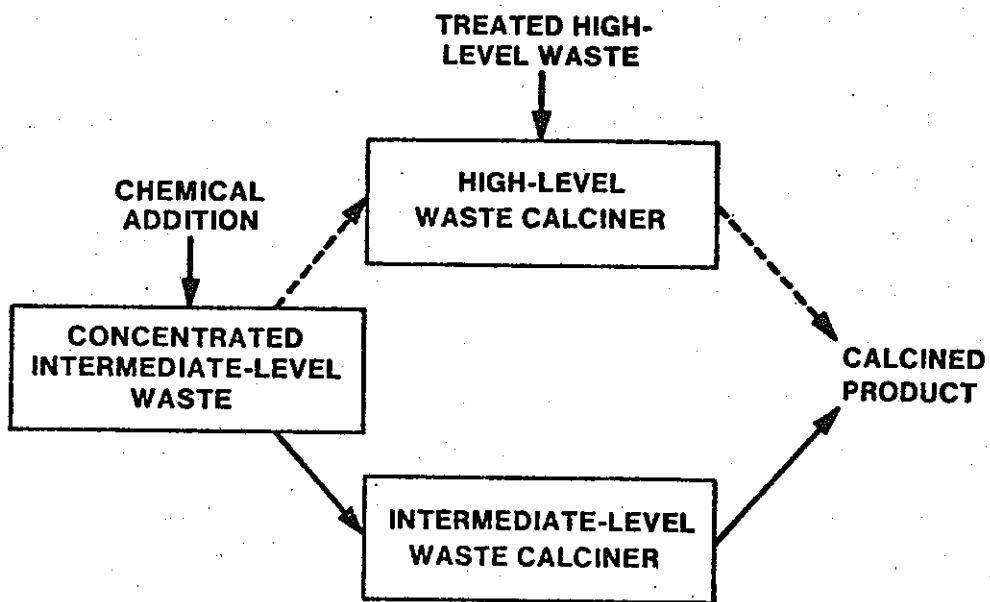
10.4.1.4 開発の現状および開発事項

蒸発単位操作はすでに原子力施設以外で長年にわたって使われているので、放射性廃液の蒸発技術は十分に開発されている。現存する蒸発技術を放射性物質の処理に応用するには遠隔または半遠隔の運転および保守が必要であるが、比較的広範囲でしかも成功して利用されている、蒸発技術を放射性物質の処理に使用するための基礎情報は、参考文献1および2に示されているが、これらにより特殊な情報も述べられている。最近の開発および実証研究の成果はERDAの発行する多数の報告書に記述されている。たとえば、参考文献3～5にはSAVANNAH RIVER PLANTとHANFORDにおける薄膜蒸発技術の適用例が示されている。

ERDAの各施設では、多数の蒸発技術の応用についてすでに設計・実証され、定常的に利用されている。また、ERDA施設程ではないが、文献で示したように、商業用原子力産業でも利用されている。このような適用状況からみて実用設計が可能なのは明らかである。しかしながら、特異な性質（例えば、異常な発泡あるいはスケール生成の傾向）の給液に対して多少特殊な蒸発技術の1つを用いることが望ましいと思われるような場合が生ずることがあり、既存の実験データを外挿しても役立つことがあろう。したがって、模擬（非放射性）廃液による限定したパイロット規模の実証試験が必要な場合があろう。各種型式の蒸発試験施設はすでに実在するので、この種の実証試験は1～2年以上かかることはなからう。

10.4.2 仮焼

プロセスの要約



○工程の概要

廃液中の塩類を高温で乾燥および分解して酸化物のような安定な化合物とする。水蒸気および揮発性の反応生成物はオフガスとして発生する。

○開発の現状

現在までのプロセス開発は高放射性廃液に集中されており、高放射性廃液用の仮焼プロセスは再処理工場に設計して設置できる状態である。限定した開発研究によれば、高放射性廃液と中放射性廃液を混合して仮焼用の供給物質とすることは可能である。

○対象となる廃棄物

仮焼プロセスフローシートは、全ての中放射性廃液に事実上実用できるものと考えられている。

○生成物の形状

仮焼生成物の形状は、粉末状ダスト、サラサラした粒状物質および多孔質のもろいケーキ状までいろいろである。

○フィードの前処理

ある種の廃液成分の腐食性または揮発性を制御するために化学的調整は必要であろう。

10.4.2.1 背景

仮焼は、廃液を乾燥および熱分解して酸化物のような熔融していない安定な固体化合物に高温で変換する工程である。仮焼は変換法開発のため最初に研究された技術の一つであって、その実証の努力はHLLWを固化することに注がれている。いくつかの仮焼処理法については6章で述べたが、このうちの大部分はHLLWの固化用として商業的に実施できる段階にある。ある種のILLWはHLLWに似た長期間にわたる放射線的な危険性を有するので、HLLWと同様にこれらのILLWも固化する必要がある。

実証試験によれば、仮焼工程の給液としてHLLWにILLWを混合することは可能性があり、ある種の廃液成分の揮発性を制御するために補足的に化学的添加剤を加えることが必要である。この章では、HLLWと比較したILLWの仮焼の類似点および相異点を主に述べる。また、個々の仮焼法に特有なものよりむしろ一般的なことについて述べる。議論は独特な仮焼プロセスの特性というよりむしろ一般的なものであろう。

10.4.2.2 生成物の特性

仮焼生成物の形状は、粉末状ダスト、サラサラした粒状物質および多孔質のもろいケーキ状までいろいろである。特有の生成物の特性は6章に述べている。

10.4.2.3 工程の概要

HLLW処理用に開発された基礎仮焼プロセスはILLWにも利用できると思われる。この場合、ILLWは単独で処理するかまたはHLLWと混合して処理される。特定のILL

LW成分の腐食性または揮発性を制御するのに必要な化学的添加物は、HLLWで要求されるものとは違いかも知れないが、どちらの場合でも廃液の成分を十分に調査することが必要である。ある種のILLWを仮焼するには、オフガス処理システムを改造することも必要となろう。

放射能のレベルに関係なく、非放射性塩類に対する放射性核種の割合はILLWよりもHLLWの場合の方が相当高くなろう。それ故、ILLWを仮焼すれば放射能密度および熱密度の比較的低い生成物ができるだろう。したがって、放射性崩壊熱除去および生成物容器寸法に対する考慮は、仮焼したILLWの取扱いおよび貯蔵の場合にはより簡単となろう。

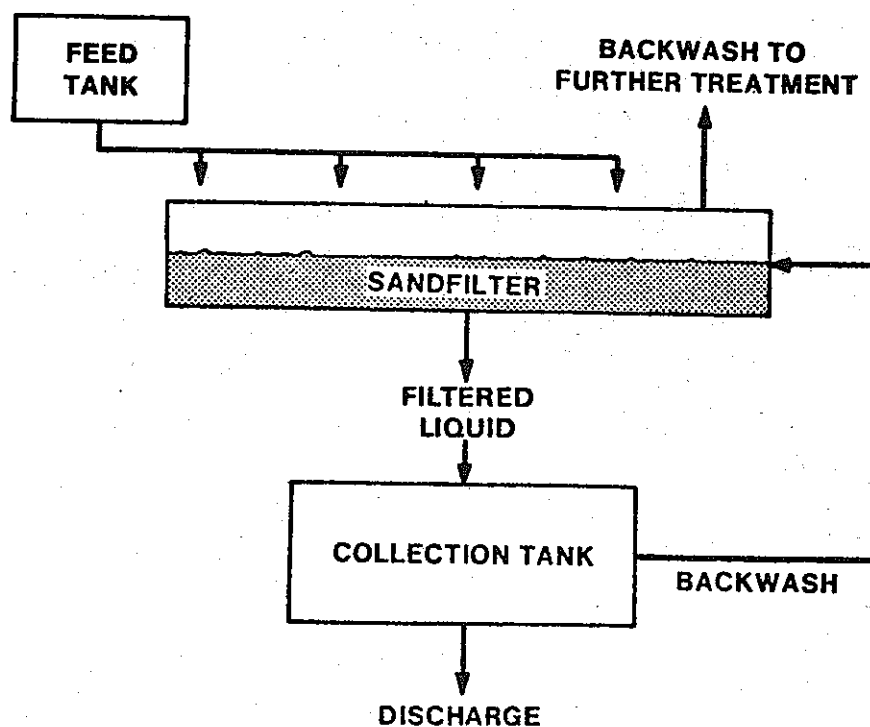
10.4.2.4 開発の現状および開発事項

数種の仮焼プロセスは実用設計ができる段階にまで開発され実証されている。実証したプロセスで用いたのと著しく異なる組成の廃液に対しては、仮焼フローシートの改善が必要となろう。このような場合は、実際に適用する前にフローシートの実証を行うべきである。

現在考えられている仮焼プロセスについては重要な開発計画は必要ないと思われる。仮焼処理が実証されていないような組成の廃液にこれらのプロセスを適用する場合には、さらにフローシートの確認、評価および実証を行なう必要がある。この作業には共通の健全性、オフガス処理システムの性能およびプロセスの安全性に対する影響の測定が含まれるであろう。

10.4.3 ろ過

プロセスの要約



○工程の概要

廃液は砂（略図参照）または他の多孔質媒体を通してろ過される。この工程は廃液を重力あるいは加圧により供給して運転される。これらの多孔質媒体により、荒い固体、懸濁した固体ならびにろ材の種類に応じて若干のコロイド状の固体が除去される。

○開発の現状

このプロセスは、放射性および非放射性の両方の適用で十分に実証されている。したがって、それ以上の技術開発は当面の適用には必要でない。

○対象となる廃棄物

懸濁した固体またはコロイド状物質を含む全ての廃液はろ過工程に供給するのに適している。

○生成物の形状

ろ過生成物は除染された流出液およびろ過できる固体を含んだ逆洗液である。

○フィードの前処理

沈澱または凝集を促進してろ過中に汚染物質が除去されやすくするために化学的添加物がよく使用される。

10.4.3.1 背景

ろ過は、液を多孔質媒体を通過させて廃液中の固体を除去する工程である。この多孔質媒体は荒い固体や懸濁した固体を除去し、ろ材の種類に応じて若干のコロイド状の固体も除去する。ろ過処理の前段に、放射性汚染物を最大限に回収するために、化学的な沈澱または凝集工程を設けることがある。回収した固体はろ材とともに固体廃棄物とするか、またはフィルタから除いて（例えば逆洗による）さらに処理することもできる。

ろ過に使用される多孔質媒体はいろいろの物理的形状につくることができる。粒状媒体が最も一般に使用されているが、シーブプレート、繊維織物、焼結金属等を用いたフィルタもある。水フィルタに使用されている粒状媒体には砂、粉砕した無煙炭、けいそう土、パーライトおよび粉末または粒状活性炭がある。また、これらの媒体を各種組合せたものも使用されている。砂を石炭でおおった二重ろ材フィルタは広く使用されている。下からざくろ石砂、けい砂および石炭を重ねた多重媒体フィルタの利用も増加しつつある。粒状の媒体を使用しないフィルタの例をつぎにのべるが、詳細は参考文献6に示されている。

○使い捨てフィルタ

使い捨てフィルタは汚染したら捨てられる交換可能なエレメントを有するよう設計されている。これらのエレメントは、一般に圧縮した紙、マット状繊維または磁器物質から成っている。なかでも、木綿織物は、原価が安いことと非常に入手しやすいために最も一般的なものである。使い捨てフィルタは、10 m μ から数100 μ の孔径のものが入手でき

る。一般に、この型式のエレメントは、低圧・低温システムからの粗除染に一番適している。

○金属製の非洗浄または部分洗浄型フィルタ

これらのエレメントはワイヤメッシュまたは焼結金属で作られている。使い捨てフィルタの場合と同様に数種のもが入手できる。ワイヤメッシュエレメントはおよそ8μの孔径のものまで入手可能であり、焼結金属は5μの孔径のものまで入手できる。逆洗ではこれらのフィルタは完全に洗浄されない。これらのフィルタは中程度の大きさの汚染の除去に最も適している。

○プレコートフィルタ

プレコートフィルタには、プレコート物質が洗い流されないで保持できるよう設計したエレメントを用いる。システムの汚染の実際のろ過はプレコート物質が行ない、フィルタが汚染するとプレコート物質を交換する。この型式のフィルタでは低いレベルまでろ過できるが、温度および圧力に制限がある。さらに、処分が必要な大量のプレコート物質が生ずるので、操作および処分する際に重要な問題を生ずる。けいそう土が一般に溶解または懸濁した油分を除去するのに有用である。

○金属製の洗浄可能なフィルタ

これらは原子力工業では比較的新しいフィルタであり、使用前の水準にまで洗浄できるよう設計されている。他の型式のものも利用可能であるが、化学的にエッチングしたディスク型のもが最も一般的である。余り大きな圧力降下(>100Psi)が生じなければ、エッチングしたディスク・フィルタは一般に逆洗によって清潔にできる。この方法は迅速かつ経済的であり、エレメントを操作しないで行うことができる。このことは放射性物質を取扱う場合に特に重要である。ろ過効率はエレメントの外面上にクラッドの被膜が生成されるため、洗浄後急激に増大する。クラッドの被膜はろ材となり、クラッド量が設計クラッド付着量の1%以下の場合には非常に有効である。けいそう土を少量使用すれば初期の保持効果があり、給液中の油分を吸収するであろう。

10.4.3.2 生成物の特性

ろ過処理では液体中の不溶性固体を除去するが、放射性廃液処理の場合、ろ過した固体中には除去すべき放射性核種およびその後の廃液処理工程に支障をきたす様な化合物が含まれる。ろ過して得られる固体またはろ液は化学的・物理的に変化しないが、前段の沈澱または凝集工程で、この種の化学的・物理的変化が意図的に引き起こされることがある。

10.4.3.3 工程の概要

ろ過は液体から固体を除去する比較的単純な方法である。特定のろ過システムの選定には下記の多くの選択項目がある。すなわち関係するおもな変数は、ろ材の型式、圧力操作と重

力操作，ろ材を廃棄する場合と洗浄して使用する場合，ならびにブリコートまたは吸着剤の使用などである。活性炭はより一般的な吸着剤の一つであり，少量の可溶性汚染除去のためのろ過で用いられることがある。

粒状ベッドろ過器の場合，理想的なろ材はろ過する大量の固体を保持する大きさのものであり，良好な透明度のろ液が得られるとともに逆洗により容易に清浄化されるものでなければならない。それらの必要条件は全体的には互いに両立しない。細かい砂を用いると最も透明なろ液が得られるが，ベッド中に多量の固体が貫入できず，従って有効なベッド中の貯蔵能力が利用されない。さらに，細かい砂の場合に生ずる大量の表面沈積物は緻密になる傾向があり，逆洗によって除去することは困難である。粗粒の砂を用いるとろ過継続時間は長くなり，ろ液の質は悪くなり，洗浄はより容易となるが，逆洗時にベッドを細粒の場合と同程度に流動させるためにはより高い洗浄水流速が必要となる。逆洗によってより細かい砂はろ過ベッドの頂部近くに集まり，粗粒の砂は底部近くに集まる。このことは細かい砂の表面移動傾向をさらに悪化させることとなる。これらの問題を克服するために，より粗粒の砂を用いるかあるいは二重層ろ過器を用いるように徐々に変りつつある。適当な前処理を施すと，粗粒の砂を用いてもろ過速度が速いままに満足なろ液の質とろ過継続時間が得られる。表面移動を最低にするために相当粒度の一律な砂を指定する傾向もあるが，粒度を揃えればそれだけコストが高くなる。

沈澱または凝集処理法は通常ろ過の前処理操作に用いられている。一例として，Pu 及び Am を含むたいていのアクチニドは Fe, Al 及び他の金属イオンとの共沈により廃水から除去することができる。Al は両性なので一般的に Fe が担体として好んで用いられるが，除染係数は廃液の種類により相当変化する。したがってアクチニドを十分除去するには，普通 1 段以上の沈澱処理が必要である。

この処理法の典型的な pH 領域は 8 ~ 14 であるが，溶液中にアクチニド錯体が含まれる場合は，高 pH (12 以上) 溶液が一般的に より効果的である。

ある処理法では，放射性廃液は急速混合槽に供給されて $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ (100-125 ppm Fe^{+++}) および MgSO_4 (200 ppm) の溶液と十分に反応する。鉄はかさばった $\text{Fe}(\text{OH})_3$ のフロックを形成し，後にキャリア-沈澱物のスカベンジャとして働く。 MgSO_4 はコロイドの形成を妨害するために加えられる。急速混合槽からの混合物は凝集槽にオーバーフローし，そこで穏やかにかきまぜられてフロックの成長が起こる。

フロックの成長を助長するために凝集剤が加えられる。凝集槽の溶液は沈降槽にオーバーフローし，放射性物質を含むフロックと処理済液との分離が行なわれる。処理済液は次段に送られ，そこで除染処理が繰り返される。

沈降層の下層流 (放射性物質を含むスラッジスラリー) はろ過供給タンクに一定間隔で抜き

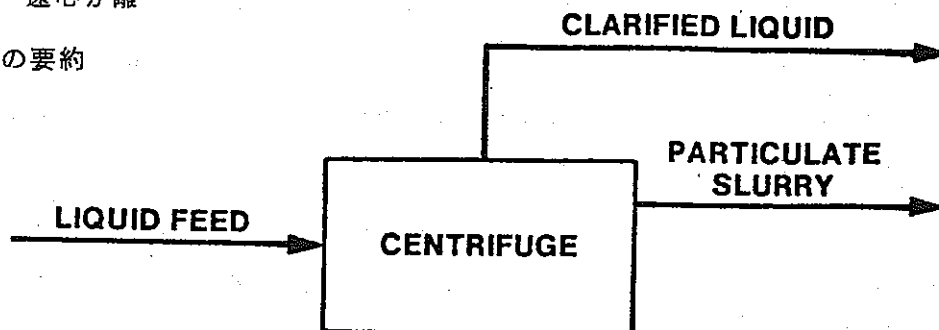
出される。ろ過処理の前段階としての沈殿または凝集処理法についての他の特殊の使用例については文献7に記述されている。

10.4.3.4 開発の現状および開発事項

ろ過技術は十分に開発され、原子力施設でうまく利用されており、ろ材を特別に意図した使用に調整する場合を除いてさらに開発が必要とされるものはない。

10.4.4 遠心分離

プロセスの要約



工程の概要

遠心分離は、液体に回転運動を与えて懸濁物質と清澄溶液を相対的に運動させて分離する方法である。回転運動はサイクロンへ接続方向に入る液流速または機械的に運転される回転装置（遠心機）により誘起される。

開発の現状

遠心分離装置は商業的に入手可能であり、既に進歩した技術がある。遠心機は時々原子炉の放射性廃液処理システムで用いられている。特別な技術開発は必要ではない。

対象となる廃棄物

懸濁状固体またはコロイド状物質を含む廃液はすべて遠心分離処理法への供給に適する。

生成物の形状

遠心分離法の生成物は、清澄液、湿潤固体またはスラリーである。

フィードの前処理

ろ過法と同様に、試薬の沈殿または凝集の促進に化学試薬の添加が望ましいことが多く、これによって遠心分離で得られる除染効力が増大する。

10.4.4.1 背景

遠心分離は液体に回転流動運動を与えて懸濁物質と液体とを相対的に移動させ、懸濁物質を液体から分離する方法である。ハイドロクロンは可動性の部分のない簡単な装置で、液流から比較的緻密な懸濁状固体を取り除くのに適用される。この装置ではある形状の容器内で液体の圧力のエネルギーが液体に回転運動を与えるのに使われ、この運動が流体中の懸濁物質に相対的な運動を誘起して分離を可能にする。液体の大部分は頂部出口から除かれるが、分

離された固体は軸上に位置した底部出口から除かれる。遠心機は多種多様な設計と運転特性をもった機械的に駆動される装置である。固体を含む液体を回転部に供給して懸濁物に回転運動を与える。回転部での滞留時間は供給速度と回転部の容積に依存している。回転部を横切る間に密度の高い物質ほど周辺に加速されるので、液相から懸濁粒子が分離される。固体及び清澄液用として、分離した別々の吐出口が用意されている。

10.4.4.2 生成物の特性

遠心機を用いて液体から固体を分離すると清澄液と理想的には放射性核種を含んだ湿潤固体とが生ずる。

これらの生成物は、遠心分離に先だつて沈殿又は凝集処理を行わなければ化学的物理的に変化しない。

10.4.4.3 工程の概要

遠心機は遠心力により液体から粒子を分離する。懸濁した放射性物質を含む液体を連続的に遠心機に供給すると、固体は遠心力により沈降して回転容器の壁に保持され、一方、清澄液はオーバーフローしてタンクに入る。定期的に蓄積した固体は除去されるが、これは供給液の供給を停止して固体を洗い出すかまたは強制的にかきまぜて重力によりホップへ取出す方法で行なわれる。しかしながら、この工程は連続的に固体を除去するように設計された遠心機についてはごくまれにしか必要でない。

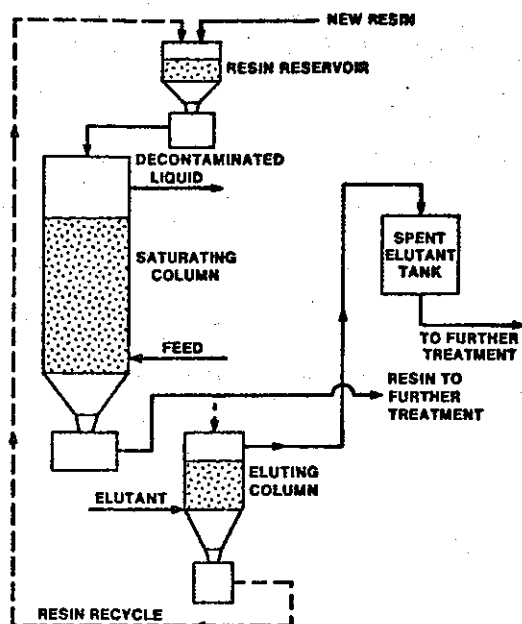
研磨または切断作業あるいは施設の床などから生ずる廃液中の砂状物質のようにかなりの量の高密度の固体を含む廃液はハイドロクロン分離に適している。しかし、より完全な固体の分離は機械的に操作される遠心機を用いることにより達成される。この場合、滞留時間と関連する回転エネルギーインプットは供給液の特性に適した設計および運転パラメータの選択により調節可能である。懸濁固体を含む廃液はすべて遠心分離で処理できよう。

10.4.4.4 開発の現状および開発事項

原子炉の放射性廃液処理系において、梱包及び移送のために蒸発缶スラリ及びろ過スラッジの脱水に遠心機が用いられることがある。遠心分離装置は経済的に利用可能であつて技術は非常に進歩している。最初のPu回収処理の固液分離にこの方法のみが用いられて以来、遠心分離法は原子力産業に適用されている。

10.45 イオン交換

プロセスの要約



工程の概要

イオン交換樹脂は、液相と固体イオン交換樹脂との間でイオンの交換を行なって、廃液中から放射性物質を除去する。この処理法は極性溶媒ならびにイオン化する高度に極性のある交換基をもつ不活性な固体マトリックス間でのイオンの移動を伴う処理法である。

開発の現状

イオン交換樹脂はかなり長期間に渡り用いられてきたが、新しい樹脂も開発されている。これらの樹脂は微粒子の付着、鉄の付着ならびに有機物または油付着に対しより大きな抵抗性を有する。いくつかの新しく開発されたイオン交換樹脂については、ベッドの交換容量、特定の同位体除去のための平衡定数、非放射性化学試薬との相互作用ならびに工学的な設計パラメータが決定されていない。

対象となる廃棄物

イオン交換樹脂は廃棄物処理廃液の最終処理には優れたものである。主な処理法として、イオン交換は凝縮液、除染廃液、排水およびその他多くの廃液に用いることが可能であり、 α および γ 両放射性物質を除去しうる。或る型の樹脂は放射性のコロイドを除去することができる。

生成物の形状

除染された廃液および飽和した樹脂スラリーがイオン交換の生成物である。樹脂スラリーは再生するかまたは固体廃棄物としてさらに処理される。

フィードの前処理

イオン交換処理法を用いる場合は（特に主要な処理法として用いる場合は），イオン交換ベッドの閉塞を防ぐため供給液をろ過する必要がある。

10.4.5.1 背景

イオン交換は溶媒及びイオン化する極性の交換基をもつ固体マトリックスとの間のイオンの移動を伴う処理法である。溶液とイオン交換体との間では等量のイオンが交換される。天然や合成物質の多くがイオン交換特性を有するが、商業的に重要な交換体はゼオライトならびに重合樹脂である。

イオン交換は放射性溶液処理の分野で多方面にわたり用いられており、これには鉱石処理、同位元素の分離および精製、除染ならびに廃液処理などがある。また多くの異った廃液が処理されており、これには原子炉冷却材、凝縮液、蒸気発生器のプロードダウンなどがある。原子力発電所におけるイオン交換法の商業的適用については、文献 8、9 およびこれらに関連した文献に包括的に紹介されている。

イオン交換体として crib と称する密封してない土壌カラムを使用する特殊なイオン交換の適用があり、これは B R D A 施設で低放射性廃液処理に実用化されている。crib は単位面積当りの液体流量が土壌の浸透量に一致するようにした、土壌区域全般にわたる表面下の液体分配システムから構成されている。Crib では土壌の天然イオン交換特性が放射性核種除去に利用されている。除去された放射性核種は容易には回収されないため、現在では cribbing 法はイオン交換処理法というよりむしろ、処理を必要としない廃液に対する処分法としてのみ適当と考えられている。

10.4.5.2 生成物の特性

放射性廃液のイオン交換処理から生ずる生成物は、実質的に非放射性の廃液であることが望ましい。供給液中の放射性成分は、イオン交換体に捕集されて残留する。イオン交換体は再生して再使用できるが、この場合は 2 次廃液が生ずる。再生しない場合はさらに処理して放射性固体廃棄物として梱包することもできる。

10.4.5.3 工程の概要

イオン交換樹脂は液相と固体イオン交換樹脂間のイオン交換によって廃液から放射性物質を除去するもので、全ての型の廃液を処理することができる。しかしながら、ベッドの詰りを防ぐため凝集沈殿及びろ過あるいはどちらか一方から成る前処理が多分必要である。典型的な固定層イオン交換法では樹脂ベッドの深さは 1～3 m であり、円柱状の圧力容器中に収められる。樹脂ベッドは樹脂は保持するが液は通す粒状ベッドまたは金属スクリーンから成る底部支持材上に載っている。

樹脂ベッドは容器の高さの 1/2 以上とし、ベッド表面より上に空間を設けて逆洗の際の

ベッドの流動化及び膨張の余地をつくる。主供給口は容器の頂部にあり、ベッド表面直上の第2の分配器は再生剤がベッド内を確実に均一に流下するようにする。通常の運転モードでは、逆洗を徐くすべての液はベッドの頂部から下方へ流れる。典型的な処理においては、ベッドの頂部は吸着イオンにより最初に装荷される。ついで吸着したイオンで濃くなった前面が徐々に下方に動き、前面がカラムの底部に達した時始めて、流出液中の除去されるべきイオンの濃度が多少上昇する。この時点で処理は完結し、樹脂は逆洗して再生するか、あるいは処分のための処理をする。

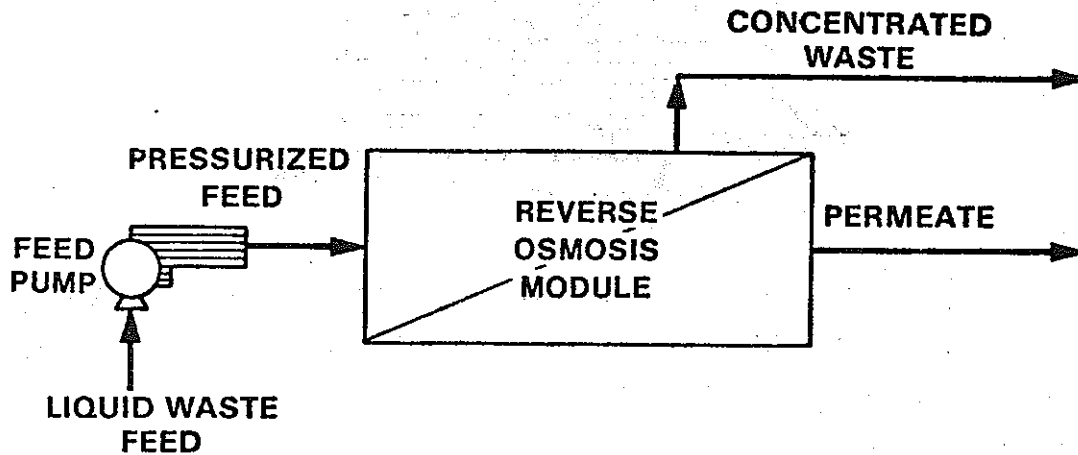
例えば凝縮液のような非常にイオン濃度の低い廃液はイオン交換樹脂により経済的に処理することが可能であり、樹脂は固体廃棄物として廃棄する。最近 macroporous なイオン交換樹脂が開発されており、この樹脂で若干の有機物を含む原料水を脱炭するのに成功している。多孔性であるために拡散的なイオン交換が妨げられないで有機物が樹脂マトリックスに吸着できる。有機物でひどく汚染されている水に対しては、特殊な吸着樹脂が開発されており、これは多量の有機物の除去を目的として、通常のイオン交換器の前処理で用いられる。これらの樹脂はさらにコロイド状の金属酸化物も吸着する。これらの新しい樹脂のおもな利点は、高度の多孔性、有機物や鉄の汚れに対する抵抗性、高い酸化性ふん囲気中での使用能力、極性有機溶媒中での使用能力、コロイドおよび有機性の錯体の除去能力にある。現在用いられているゲル樹脂は容易に汚れ、高度の前処理を必要とし、操作カラム内で大きい圧力損失を生ずるので、上述の樹脂を適用すると様相が変わってくる。

10.4.5.4 開発の現状および開発事項

イオン交換樹脂はかなりの期間用いられているが、最近の開発によって微粒子、鉄および有機物の汚染に対しより大きな抵抗を有するイオン交換樹脂が得られている。いくつかの同位体についてのベッドの交換容量および平衡定数は求められておらず、混合廃液を用いた場合のこれらのベッドの性能のみが測定されているにすぎない。種々の放射性核種と他の化学種との間の相互作用およびそのイオン交換樹脂性能に対する影響は不明である。装荷速度、ベッドの交換容量、滞留時間および除去される物質などの各種の工学的パラメータを種々の樹脂について検討する必要がある。

10.4.6 隔膜処理法

プロセスの要約逆浸透



工程の概要

逆浸透は水溶液を加圧（浸透圧以上）し、その溶液を半透膜に接触させて行なう。浸透液（permeate）は膜を通過する精製溶液であり、残留溶液は濃縮された溶質を含む。

開発の現状

より一般的な酢酸セルロース膜のように容易には加水分解を受けない新しい隔膜が開発されている。この新しい隔膜は広い領域の pH および多くの酸化剤に耐えることができる。逆浸透は主として非放射性廃液に対し用いられているが放射性廃液処理の面では蒸気発生器のブローダウン処理ならびに試験的に洗濯廃液に用いられている。しかしながら、逆浸透システムを放射性廃液処理用に設計するにはさらに開発研究が必要と考える。

対象となる廃棄物

逆浸透は実質上どんな低放射性廃液の処理にも用いることができよう。

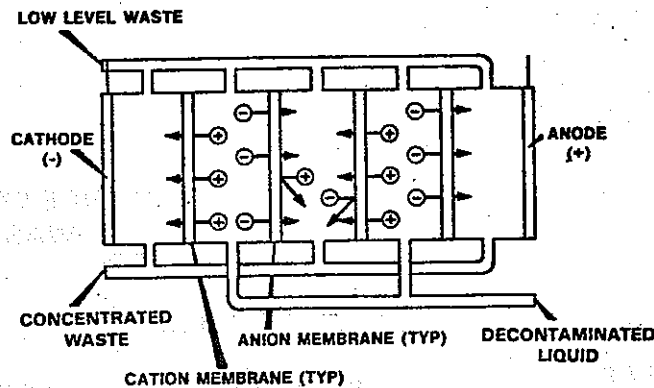
生成物の形状

最終生成物は清浄な浸透液すなわち生成液および追加処理が必要な濃縮されたブローダウン液である。

フィードの前処理

隔膜材質により良く適合するように廃液も化学処理することが望ましい。

プロセスの要約……電気透析

工程の概要

正と負のイオンは溶液中に浸された反対に帯電している電極側に動かされる。電極間に交互に陽イオン膜と陰イオン膜を置くことにより、溶液中の塩濃度は一つの出口側では減少し他の出口側では増加する。

開発の現状

この方法は海水から飲料水を製造するために長年にわたって大規模に運転されている。塩水をボイラ供給水へ転換するための連続電気透析処理に、新しく開発された膜が使われている。電気透析に関する原理は1950年ごろから知られており、塩水脱塩を主とする適用は1960年代の早くから始められている。電気透析を放射性廃液処理に使用するにはさらに開発が必要であろう。

対象となる廃棄物

電解質濃度が約20g/lまでの廃水がこの処理法の対象となる給液である。極低レベルの廃液は環境への放出が可能なレベルまで脱塩できよう。

生成物の形状

処理によって生ずるものは清浄水、濃縮電解質溶液ならびに場合によっては H_2 、 O_2 又は O_3 などのような微量の分解生成物である。

10.4.6.1 背景

隔膜分離の水および廃水処理の分野における役割はますます増大しつつある。電気透析及び逆浸透は現在塩水の脱塩で大規模に用いられている。限外ろ過は種々の水や廃液処理法に利用されている。

隔膜は分子またはイオン種の流れに対して障壁の役目をする。浸透は溶媒が理想的半透膜を通して希薄溶液側から濃厚溶液側へ自発的に移動することと定義される。この理想的半透膜は溶質の通過は妨げるが、溶媒は通過させる。溶媒流量は隔膜の濃厚溶液側に圧力をかけて減少させることができる。ある圧力（浸透圧）で平衡となり、それぞれの方向に流れる溶媒の量は等しくなる。浸透圧は隔膜が実際に半透圧である場合に溶液のみの有する特性であ

る。隔膜の溶液側の圧力を浸透圧以上上げると流れが逆になり、純溶媒は隔膜の濃厚溶液側から希薄溶液または純溶媒側へ通過する。この現象が水および廃水の逆浸透処理の根本原理である。

逆浸透は幾分ろ過に類似しており、どちらでも混合物の液体が装置を通して除去されその他の成分は装置に保持される。しかしながら、ろ過にくらべて逆浸透には少なくとも次の3つの重要な相異点がある。第1に、通常のろ過で殆ど問題とならない浸透圧が逆浸透では重要な役割を果たす。第2に、溶液の浸透圧は溶媒が除去されるにつれて増大するため、逆浸透では低湿度のろ過ケーキは得がたい。第3に、ろ過器は基本的には粒子のサイズによって混合物を分離するが、逆浸透膜の半透性はその上に他の要素によってかなり影響される。

逆浸透と同様に、隔膜限外ろ過は圧推進力ならびに溶液または混合物中の或る成分に対しては浸透性であって、他の成分に対しては不浸透性である隔膜が関係する。限外ろ過は浸透圧の妨害を受けず、0.5～0.7気圧の低い差圧で実施しうることがあるので逆浸透とは異なる。限外ろ過は分子量が500以上の溶質の分離に対して通常適用されるが、この種の溶質の適度な濃度の溶液の浸透圧は非常に小さい。

電気透析処理では溶液の陽イオンと陰イオンが液中の反対に荷電した電極に向い動かされる。電極間に陽イオンおよび陰イオンの隔膜を交互に設置すると溶液中の塩は一方の生成液中では濃縮し、他方では希釈される。2つの生成液の移動は互に向流であって、膜に対しては平行であるが、溶液中のイオンの移動は隔膜に対して垂直である。

10.4.6.2 生成物の特性

それぞれの隔膜分離処理の生成物は、清浄化された水溶液および供給液中の溶存成分を濃縮した液である。廃液中の成分には化学変化は生じないが、電気透析では H_2 、 O_2 または O_3 の様な少量の分解生成物を生ずることがある。

10.4.6.3 工程の概要

○逆浸透

逆浸透は水溶液を加圧し（浸透圧以上）、その溶液を半透膜に接触させて行なう。生成物（または浸透液）は隔膜を通過した溶液であり、この液の溶質濃度は供給液の溶質濃度より低い。残留する供給液の溶質濃度は高くなり、これはブローダウン（blowdown）と呼ばれる。隔膜はリン酸塩、放射性成分およびその他の溶存または懸濁固体を除去し、得られる浸透液の放射性物質濃度および溶存固体の濃度は非常に低くなる。濃縮液は蒸発のような他の処理に適するように十分にその容積が減少する。逆浸透についてのより詳細な情報は文献10を参照されたい。

○電気透析

電気透析では、隔膜で交互に分けられた隔室がそれぞれ希釈室及び濃縮室の役目をする。

供給液は多数の希釈室への多岐管によって希釈室を通過する。この液がおのおのの隔室を通過する間に、陽イオンは陽イオン膜を通過し陰極に向って隣接した濃縮室に入るが、隔室の反対側の陰イオン膜は通過できない。陰イオンは陽イオンとは反対方向に移動して隣接した濃縮室に入るが、隔室の反対側の陽イオン膜を通過することはできない。隔膜間の液体の通る径路は電気抵抗を極少化するためにできるだけ狭くし、径路の厚さは約 0.1 cm のオーダーである。溶液中の電極間を流れる直流電流の密度は最大約 1200 amp/m^2 である。処理法の詳細は文献 11～13 を参照されたい。処理に当っては、1 回のみ通過処理ならびに希薄および濃縮液またはいずれか一方をリサイクルする方法が用いられよう。分配隔膜にイオン交換物質を組み込んだ電気透析ユニットは選択性及び総括除染度あるいはどちらか一方を向上させるために直列で運転されると思われる。

10.4.6.4 開発の現状および開発事項

○逆浸透

酢酸セルロース膜が受ける程には加水分解を受けない、新しい逆浸透膜が開発されている。新しい隔膜は広い領域の pH および多くの酸化剤に耐えることができる。逆浸透は塩水脱塩、食物の処理および試験的な下水処理など主として非放射性廃液に対して用いられている。放射性廃液処理の面では蒸気発生器のブローダウンおよび試験的に洗濯廃液処理に用いられている。しかしながら、核燃料サイクルで放射性廃液処理にこの逆浸透処理を適用するには、さらに開発研究が必要であろう。溶媒流量、流量低下、種々の放射性汚染の除去および放射性環境下における隔膜の寿命を決めるため、種々の放射性廃液で隔膜を試験する必要がある。この試験計画が完成してはじめて、最終的なシステム設計を開発するための各種の廃液を用いた大規模なシステム研究を始めることができよう。

○電気透析

現在の電気透析技術は、ボイラー供給水の製造ならびに海水からの塩の回収を目的とした大規模塩水脱塩に盛んに用いられている。低放射性廃液の処理にこの方法を用いて放出又はリサイクルできる水をつくるのは有望と思われるが、逆浸透、イオン交換および蒸発法の代わりまたは補足としてこの方法を用いるためには実用試験および評価が必要と思われる。

低放射性廃液の電気透析処理の実際的なシステムの開発および実験には最大 5 年は必要と思われる。開発を要する技術事項は次の通りであるが、これのみには限られない。すなわち、1) イオン交換体に対して高度の機械的支持性をもつとともに、電解質イオンの移動に対し十分な透過性があり、さらに放射線損傷ならびにハロゲン化合物などの腐食性イオンに対して高度の抵抗性を有する隔膜材質の開発。2) 支持膜上の所定位置に固定でき、廃水中のイオン汚染物に対する高い選択性および水イオンに対する低い移動性を有するイオン交換物質の選定である。

REFERENCES

1. Y. Yamamoto, N. Mitsuishi, and S. Kadoya (compilers), Design and Operation of Evaporators for Radioactive Wastes, Technical Report Series No. 87, STI/DOC/10/87. International Atomic Energy Agency, Vienna, 1968.
2. H. W. Godbee, "Use of Evaporation for the Treatment of Liquids in the Nuclear Industry," ORNL-4790, September 1973.
3. R. D. Dierks and W. F. Bonner, "The Performance of a Wiped-Film Evaporator With Simulated High-Level Waste Slurries," presented at the AIChE 68th Annual Meeting, Los Angeles, California, November 16-20, 1975.
4. J. L. McElroy, Quarterly Progress Report, Research and Development Activities--Waste Fixation Program - July through September 1975, BNWL-1949.
5. C. B. Goodlett, "Concentration of Aqueous Radioactive Waste With Wiped-Film Evaporators," presented at the AIChE 68th Annual Meeting, Los Angeles, California, November 16-20, 1975.
6. E. H. Gischel, "Radioactive Fluid Filtration Systems," presented at the American Society of Mechanical Engineers winter annual meeting, New York, New York, November 17-22, 1974.
7. Symposium Proceedings, International Atomic Energy Agency, Vienna, "Practices in the Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes," 1966.
8. Technical Report Series No. 78, International Atomic Energy Agency, Vienna, "Operation and Control of Ion Exchange Processes for Treatment of Radioactive Wastes," 1967.
9. K. H. Lin, "Use of Ion Exchange for the Treatment of Liquids in Nuclear Power Plants," ORNL-4792, December 1973.
10. G. B. Kniazewycz, "The Treatment of Liquid Radwaste by Reverse Osmosis, Conception to Operation," presented at ASME-IEEE Joint Power Generation Conference, Portland, Oregon, September 1975.
11. D. R. Jordan et al., "Blowdown Concentration by Electrodialysis," Chemical Engineering Progress, Vol. 71, No. 7, pp 77-82, July 1975.
12. Mitsubishi Petrochemical, "Membrane Makes Strong Treatment Bid," Chemical Week, Vol. 117, No. 11, pp 31-32, September 10, 1975.
13. J. W. Riggle, "Electrodialysis," Perry's Chemical Engineer's Handbook, 4th Ed., pp 17-45 to 17-48, 1963.

1 1.0 非高放射性廃棄物からの超ウラン元素の回収

超ウラン元素を有効に利用するため、非高放射性廃棄物およびスクラップ物質からの超ウラン元素の回収は ERDA および商業的燃料サイクル施設で定期的に行なわれている。廃棄物の型が多様であり、廃棄物中で最も一般的な Pu の化学形である PuO_2 が溶解しにくいいため、めったに高い回収率は得られない。規制されないうで放出可能な低汚染レベルまで廃棄物を除染することは通常、回収作業の目的ではない。

非高放射性廃棄物に存在するであろうと思われる 3 種の超ウラン元素のうちで Pu が最も一般的である。Pu は燃料再処理、 PuO_2 製造および混合酸化物燃料加工廃棄物のほとんどすべてに回収可能な量で潜在的に存在する。原子炉中で生成される Am は再処理されて高放射性廃棄物となるが、 ^{241}Pu の崩壊で生成する ^{241}Am は通常、中性子源として利用するために古い Pu の精製廃液から回収される。Np もまた通常高放射性廃棄物となるが、製品とするときは回収しやすくするため簡単な工程の変更によって Np をより放射能の低い廃液系に移行させることが可能である。高放射性液体廃棄物から超ウラン元素を回収する方法は本報告書の 16 章で述べる。

超ウラン元素の回収のために処理される非放射性廃棄物は、一般に次の 5 つに分類される。

- 表面汚染固体、これには封じこめ構造物（たとえばグローブボックス）、工程容器および装置、プラスチック袋、ドライボックスグローブがある。
- プルトニウム含浸材、一般的に多孔質または粒状の固体である。例えば拭取った布および紙類、焼却炉灰、土、絶縁体、イオン交換樹脂がある。

HEPA (high-efficiency particulate air ; 高性能微粒子空気) フィルタ

- 有機溶媒および潤滑剤
- 水溶液、主生産ラインおよび廃棄物回収作業の両方で生ずる。

上記の廃棄物から超ウラン元素を回収するために開発され現在使われている処理法を、処理前後の廃棄物中の超ウラン元素の測定に用いる非破壊分析 (NDA) 技術とともに以下に述べる。回収処理は除染、廃棄物の減容およびスクラップ回収作業に関連して行なわれるので、施設の廃棄物の処分問題には必ずしも重要な貢献はしない。

1 1.1 固体からの回収

固体廃棄物中の Pu はたいてい溶解しにくい酸化物として存在するが、吸着または沈澱した塩の形のものもある。回収作業は次の方法の 1 つまたはそれ以上の方法で行なわれる。

- ・汚染表面からの物理的または化学的なPuの除去
- ・廃棄物の浸出しやすい形への変換
- ・固体からのPuの化学的な浸出または溶解

溶解したイオン状のアクチニド元素しか在来の湿式技術で回収され精製されないから、溶解工程がこれらの作業のうちで最も重要である。溶解は結晶表面の転位または欠陥から進行するが、高温処理するとその様な不完全部分が少なくなる。従って高度に加熱したアクチニド酸化物の溶解は困難である。600°C以下に加熱された酸化物は一般に比較的溶解しやすく、600°Cから1,000°Cの間に加熱された酸化物はさらにきびしい処理が必要であり、1,000°C以上に焼かれた酸化物は過激な処理が必要である。⁽¹⁾

硝酸単独はPuO₂に対して良い溶媒ではなく、0.03M以上のフッ化物イオンを添加すると著しく溶解速度が増す。⁽²⁾ フッ化物と強く錯化するイオン(たとえばAl, ZrおよびMo)が存在すれば、PuO₂を完全に溶解するためにはこれらを除去するかまたは添加するフッ化物をさらに増加しなければならない。最も難溶性の化合物を可溶性に変換するには塩溶融技術が必要な場合がある。

廃棄物およびスクラップの溶解技術の大部分は、通常の燃料サイクルの主工程ラインでは取り扱わない高い腐食性の化学薬品、例えばHFを必要とする。小規模の溶解ではプラスチック製の装置がしばしば用いられる。フッ化物を錯化するためAl(NO₃)₃を加える場合はステンレス鋼製の装置を用いることができるが、⁽²⁾ プラスチックライニングの装置を用いるとさらに融通性が増す。Hanford Plutonium Reclamation Facilityではフッ化水素酸、⁽³⁾ 硝酸、塩酸、硫酸を含む試薬を取り扱う装置には上記の様な装置を広範に用いている。

Penwalt製のKynarと称するポリビニリデン・フッ化物プラスチックはこの応用にとくに有益である。

種々の分類の廃棄物へ適用される典型的な回収作業を次に述べる。

1.1.1.1 表面汚染物質

グローブボックス中の遊離粉末は後のPuの回収のために真空掃除機またはブランにより掃き集められ、缶の中に入れられる。布および紙は、水または硝酸でしめらせることもあるが、表面を清掃するのに用いられる。ドライボックスのゴムグローブは取り外したのちただちに掃除すれば、⁽¹⁾ 上述の技術で通常十分に除染される。拭取りに用いたものは焼却し、灰の中からPuを回収する。

インライン工程装置を清掃するためにMound Laboratoryでは高圧清掃ユニットを用いている。このユニットは2個の携帯用グローブボックスに取付けられた高圧ポンプ、連続排式遠心分離機、循環ポンプ、液体貯槽ならびに制御機能および連絡配管で構成され、高圧液

体(最大 70 Kg/cm^2)をスプレインズルに供給する。洗浄液はポンプで連続排出式遠心分離機を通って貯槽に送られ、循環される。遠心分離機で除去された固体は通常の回収方法で再生される。この方式は²³⁸Puで汚染された工程装置を含む直線で 60 m のグローブボックスを清掃するのに用いられた。

蒸気ジェットと水ジェットの両方を用いた同様な方式がHanford および Savannah Riverで装置の除染に用いられている。⁽⁴⁾水だけを用いたジェット技術には、1) 装置を除染するのに効果的な助けとなり、2) 後の処理を妨げる化学薬品や洗剤を生じないという2つの大きい利点がある。

表面が汚染した小さい部品(例えばゴムグローブ、プラスチック、ガラス、金属類)のPuの回収には別々の浸出トレイまたは加熱浸出槽がよく用いられる。目的によつて、 HNO_3 または HNO_3 と HF 混合物($10 \text{ M HNO}_3 - 0.1 \text{ M HF}$ が典型的である。)が浸出剤に用いられる。ゴムおよびプラスチック材料は焼却し、灰を処理してPuを回収する方法もある。

超音波エネルギーを浸出処理の効率を改良するのに用いることができる。超音波洗浄の原理はキャビテーションにもとずき、汚染物は溶解によるよりもむしろ物理的に対象物の表面から除去される。超音波浸出法はMound Laboratoryで生産ベースで、金属、ガラスおよび鋳造または押し出し加工されたプラスチックを清掃するのに用いられている。装置は液中に浸すことが可能な圧電気変換器および 0.35 M HNO_3 の洗浄剤を含む、巾 0.4 m 、長さ 0.6 m 、深さ 0.4 m の3個のタンクから成る。変換器は $1,000 \text{ W}$ の超音波発生機により周波数 25 KHZ で個々に駆動される。廃棄物質は3個のタンクの中それぞれでおよそ10分間超音波洗浄したのち水洗する。3回から4回の運転の後、汚れが少ない洗浄剤は次のタンクへ移すととも初めの洗浄タンクの洗浄剤はPuの再生のために濾過して貯蔵する。ときどきプラスチック廃棄物は超音波洗浄の妨げとなる。

汚染された鉛被覆のグローブボックスおよび種々の金属廃棄物からPuを回収するためRocky Flatsでは熱水ボールミルを用いている。50個の鉛被覆グローブおよび約 40 Kg の金属廃棄物が別々に定常的に処理され、この際洗浄作業のために2組の使い捨てカバオールが用いられる。熱水は回転ボールミルを通って20分から30分の周期で再循環される。グローブ上の発火性の硝酸鉛は上述の操作で除去される。得られたスラリはfull flow filter系列で濾過したのち、フィルタはPuを回収するために灰化する。処理したグローブおよびメタルは汚染廃棄物として梱包し、濾過液は他の廃液とともに処理して廃棄スラッジとする。

低温粉碎処理がゴム製グローブ、プラスチック袋および類似の廃棄物からPuを回収するための処理としてフランスのCadache Nuclear Study Centerで計画されている。⁽⁵⁾この処理法ではしなやかなプラスチックが粉碎しやすくなる様に零下 70°C に液体窒素または

CO₂で冷却される。粉碎した物質(2 cm以下)はまず可溶性Puをのぞくために0.1 Mのクエン酸で浸出し、次に付着したPuO₂を除去するために洗剤で処理する。洗剤は遠心分離によりPuO₂を除去したのち再循環する。

ARHCOと協同で行なったPNLの研究で電気研磨法が比較的複雑な金属表面からPu酸化物汚染を除去するのに迅速(10分以内)で効果的な技術であることが判明した。汚染金属はH₃PO₄・H₂SO₄の電解液中で陽極として作用する。汚染表面の陽極溶解がPuO₂を(溶解することなく)解放し、同時に起こる表面研磨が再汚染を最小にする。Puを含む電解液を除いて汚染のない表面とするには電解研磨の後の簡単な水洗で通常十分である。初期の研究では表面積1,000 cm²までの試料を除染するのに40 lの電解液を使用した。この処理法は容易に規模を拡大しやすいが、電解液からのPuの回収はまだ実証されていない。

Argonne National Laboratoryでは鋼のPu汚染を除去する溶融精錬(melt refining)⁽⁶⁾の可能性を調査するための実験計画を開始している。スラッグを用いた場合および用いない場合の溶解ならびにスラッグ—るつぼの組合せの適合性が試験されよう。この仕事の初期の目的はPuの回収ではないが、もし望むならばスラッグからの回収は可能であろう。

1.1.1.2 Pu含有物質

燃焼性、吸収性物質からPuを回収するには浸出し易い形にするために廃棄物を燃焼する。HNO₃を拭くのに用いた布片は、爆発しやすいニトロセルローズの生成を避けるためにただちに水洗しなければならない。⁽¹⁾燃焼処理からの灰は典型的に0.2から10 wt%のPuを含み、必要ならば粉碎して次の1つまたはそれ以上の手順で処理される。

LASLでは、灰を希硝酸で浸出し可溶性成分を取りのぞいたのち水洗して硝酸を取りのぞく。残留物はSiO₂を揮発性のSiF₄に転換するために室温でHFガスで処理する。⁽¹⁾生成したPuF₄を除くためにHNO₃-Al(NO₃)₃で浸出したのち残留物を乾燥し、残留物1に対して10;1に混合したK₂S₂O₇-NaF₆を用いて残留物を550°Cで2時間溶融する。この処理によって、冷却後1.0 M HNO₃-0.3 M Al(NO₃)₃で溶かして残留Puが回収できる溶融物がえられる。

Rocky Flatsでは、Puは焼却炉の灰をHNO₃-HFに浸漬して回収されている。⁽⁷⁾灰の形式が決まり、HNO₃の濃度が一定ならば、溶解速度は少なくとも0.4 Mまではフッ化物イオンの濃度に比例して上昇する。粉碎した灰および酸溶剤(典型的には1.0 M HNO₃-0.2 M CaF₂)は蒸気コイルで90°C-100°Cに加熱したエアリフト溶解槽へ連続的に送る。得られた溶液は濾過して過剰のフッ化物を錯化するためAlイオンを添加し、次にPu回収のための陰イオン交換工程に送る。残留物はSiをSiF₄として除去するため、さらに室温で

HFで処理されるかも知れない。次に、フッ化した残留物は硝酸で浸出する。同様の技術をグローブボックスの清掃屑、土壌、粉碎した耐火レンガおよび繊維状絶縁体に用いることができる。⁽⁷⁾

フランスのMarcouleで開発中の処理法では、PuからSiO₂を溶解するために室温で焼却灰に濃厚HFを添加する。⁽⁸⁾フッ化物溶液を廃棄したのち、Pu含有残渣はHNO₃-HFを用いて高温で溶解して残留するSiはSiF₄として蒸留して除去する。Al(NO₃)₃と一諸に沸騰させて溶解が完結する。この方法で5%以上のPuの回収が実証されている。

粉碎した焼却灰中の90%以上のPuが、1.0M HCl - 0.5M NH₄F - 0.1M SnCl₂を含む浸出溶液で回収されている。⁽⁹⁾同様の浸出方法(90°Cで1時間攪拌)でHanfordのPuで汚染した土壌はうまく除染されている。⁽¹⁰⁾

焼却炉灰および遠心分離機のスラッジからPuを回収するために過酸化水素法が提案されている。⁽¹¹⁾灰は、NaOHおよびNa₂O₂が1対1の混合塩を用い、塩対灰の重量比を約5対1として1回しか使用しない軟鋼の缶で溶融する。500°C-700°Cに1時間保った後、缶および冷却した溶融物は希硝酸で溶解する。実験室の試験では95%以上のPuが回収されているが、後続のPuの精製で妨げとなる可能性があるゼラチン状の固体が幾つかの試験では生成している。

開発中の2つの燃焼処理法にはAlの溶融塩の燃焼法およびHEDLの酸浸漬法があり、これらは難溶性のPuO₂をHNO₃で可溶性の形に転換する。これらの処理法は9章で述べる。

Puの回収のため、イオン交換樹脂を熱硫酸で炭化しさらに完全溶解のために濃硝酸を加えて溶解することができる。Dowex 50などの陽イオンスルホン酸樹脂は、10⁻³Mの第一鉄塩または第二鉄塩を触媒とした0.1M HNO₃-6% H₂O₂を用いて80°Cで溶解できる。⁽¹²⁾イオン交換樹脂および他の有機半固体(グリース)もまたPuの回収のために焼却できる。

1.1.1.3 HEPAフィルタからの回収

HEPAフィルタは、フードおよびグローブボックスの排気ならびに工程排気などの換排気中の浮遊汚染粒子の捕集に用いる。PuO₂の製造および混合酸化物燃料加工施設に用いられたフィルタはときどきかなりの量のPu(20g以上/フィルタ)を含み、Puの回収処理が必要なことがある。これらのフィルタは、典型的なサイズが0.2~0.6m平方×0.15~0.3m厚さで、グラスファイバ製のハチの巣状のひだつき濾過面を持ち、ときどきAlまたはアスベストスペーサで分離されており、その外面は難燃性の合板、パーティクルボードあるいは金属枠で囲まれている。

HEPAフィルタからPuを回収するには種々の方法が用いられる。簡単ではあるがいくらか効果のある方法(多分回収率は30%以下)は塵を取るためにフィルタを軽く叩くこと

である。時間はかかるがもっと効果的な方法（90%回収）はフィルタを切断し、フィルタの表面のPuを小さなブラシではらい落とすことである。LASLではフィルタを分解し、フィルタ媒体を10M HNO₃-0.2M CaF₂で1度ないし2度浸出し、枠は湿った布で拭いて廃棄物としている。

Rocky FlatsはPuを捕集したHEPAフィルタを処理するため、フィルタ寸断・焼却施設を設置中である。1980年に運転開始予定のこの施設では寸断したフィルタ物質（金属枠は寸断前に取り除く）をレンガ積み保守前の特別キャンペン中にロータリキルン焼却炉に入れて700°Cで焼却する予定である。焼却炉灰はPuの回収のためにHNO₃-HFで浸出されるだろう。焼却してPuを回収する装置はHanfordでARHCOも用いている。

1.1.2 液体からの回収

種々の廃棄物からのPuの回収は、Puが溶媒抽出またはイオン交換処理に適したイオンの形で存在するかどうかにかかっている。固体廃棄物からPuを溶解するか可溶性にする方法は前節で述べたが、得られる溶液および液体として生ずる他の廃棄物は次の処理をする前に錯化剤、不安定な試薬、腐食性物質および表面活性剤を除去する追加処理が必要である。さらに、若干の有機液体（例えば洗浄剤と潤滑剤）は水相の処理の前に取り除かなければならない溶存または懸たくPuを含む可能性がある。

溶媒抽出かイオン交換かの選択は多少操作の規模により、小規模な適用にはバッチ式イオン交換法の簡便さが好ましく、大規模な適用には連続溶媒抽出装置で得られる高容量が好ましい。また溶媒抽出装置はイオン交換ベッドを急速に詰まらせる供給液中の固体の存在もある程度までは許容する。

次に典型的な供給液の調整方法および溶媒抽出技術とイオン交換技術の適用について述べる。

1.1.2.1 供給液の調製

Puの回収のための液体廃棄物の調整に用いられる典型的な方法は次のようである。

- しゅう酸塩濾液はしゅう酸塩錯化剤を分解するため、12M HNO₃による蒸発、室温でのKMnO₄による酸化、65°Cでの重クロム酸塩による酸化または80°Cでのオゾンによる酸化⁽⁷⁾で処理する。
- Pu過酸化物濾液は過酸化物を分解するために50°Cと90°Cに段階的に加熱し、KMnO₄で酸化するか、またはNaOHを添加して処理する。後者の場合、生成したPu水酸化物は濾過し硝酸に溶解して回収できる⁽⁷⁾。

- フッ化物含有溶液は $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ を添加してフッ化物を錯化することによりうまく処理できる。⁽⁷⁾
- 各種の分析廃液中の Pu は、Pu をアスコルビン酸 (1 M H^+) で Pu を Pu(III) に還元し、2 倍過剰の 1.5 M しゅう酸を加えて Pu のしゅう酸塩を沈澱させることにより回収できる。濾過および乾燥した後、沈澱物は硝酸可溶性の酸化物とするために 350°C から 400°C で仮焼する。⁽⁷⁾
- 有機溶液は粒状の Pu を除くために濾過するかまたは他の可燃性廃棄物とともに焼却する。アセトンなどの少量の揮発性洗浄溶剤は空气中で放置して蒸発させてもよい。幾つかの有機溶液は Pu の除去のため適当な試薬水溶液で処理される。⁽¹⁾
- エマルジョン生成の問題を避けるため、溶存またはコロイド状の SiO_2 を含む廃液は、溶媒抽出処理の前に SiO_2 を凝固させて除去するための浸漬処理が必要である。⁽⁷⁾ 蒸発して乾燥しても、効果的にゼラチン状の SiO_2 が脱水され、Pu を希硝酸で再溶解しても再分散しない。

1.1.2.2 溶媒抽出技術

Pu の回収

Hanford のプルトニウム再生施設 (Plutonium Reclamation Facility, PRF) はスクラップと廃棄物から Pu を回収するのに溶媒抽出法を用いているアメリカでただ 1 つの主要な施設である。溶媒は CCl_4 で 20 vol% に希釈したトリ・ノルマル・ブチル・ホスヘート (TBP) である。現在の処理法はよく知られた Purex 処理法から派生したものであり、以前の Hanford Recuplex Facility で開発され使用されてきた TBP 抽出技術を過去 ^(13, 14) 20 年にわたって発展させたものである。

Hanford の PRF で現在用いられている還流型 (reflux-type) Pu 抽出フローシート of 簡略化した説明図を Fig 1.1 に示す。この工程への供給液は種々の Pu スクラップ材 (主として金属スクラップと PuO_2) を HNO_3 -HF で溶かして調製する。フッ化物を錯化しさらに Pu 抽出時の塩析効果を強めるため得られる溶液に $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ を添加する。

最初のカラムでは調整した溶解液中の 99% 以上の Pu(IV) が 20 vol% TBP 溶媒で抽出される。ごくわずかに抽出された抽出液中の不純物は、同じカラムの低部で硝酸で洗浄される。次に第 2 のカラムで Pu を抽出されにくい Pu(III) に還元する硝酸ヒドロキシルアミンを含む希硝酸で Pu は逆抽出される。再酸化の後、大部分の Pu プロダクト (70~90%) はプロダクトの Pu 濃度を高めるために還流として最初のカラムに返される。第 2 のカラムよりの使用済溶媒中には少量の Pu がディブチル・ホスヘート (DBP) 錯体としてしっかりと保持されるが、これは第 3 (CO) カラムで少量の HNO_3 -HF 溶液で洗浄して除去される。

COカラムからの使用済洗浄液は試薬調整槽へ導かれ、溶媒は溶媒を再生するCOカラム以下のカラムで処理される。

PRFフローシートの還流 (reflux) の特徴は容易に区別しやすい特性により明らかである。濃縮したPuプロダクトが得られることに加えて、還流フローシートでは供給液のPu濃度が大きく変動してもプロダクトの濃度はほぼ一定となる。

PuおよびUの両方を含む給液用として改良した分配工程のフローシートがPRFで開発され⁽¹⁵⁾ 運転されている。基本的なフローシートはFig 11.1に類似しているが、Puプロダクトの流れからUを再抽出するために第2 (CO)カラムの頂上部に溶媒洗浄流が付け加えられている。Uは溶媒洗浄系へ送られる。

PRFで経験する最も大きい運転上の問題は、TBPが放射線および化学的に劣化してPu錯体を形成しやすいDBPを生成することに起因する。還流フローシートではPu濃度がより高くなるために放射線分解は相当なものとなる。錯化したPu ($> 0.3 \text{ g/l}$) がフッ化物洗浄 (CO) カラムに過剰に随伴してPuF₄として沈澱するのを防止するため、定期的に溶媒を炭酸塩洗浄してDBPを除去することが絶対に必要である。このような析出物は工程の運転を非常に複雑にするが、このようなことは定常的な洗浄装置を取り付ける前まではしばしば経験された。溶媒洗浄系で生ずる廃液はPRFの運転で発生する廃液の総容量の約1/4になる。

DBPの生成を最小にするかまたは生成しないようにしてPRFの性能を改良する目的の最近の研究室での研究はつぎの2つの方法に集中している。すなわち、CCl₄希釈剤の適当な芳香族試薬での置換およびTBP溶媒の同等な第2アミン溶媒による置換またはどちらか一方の置換による方法である。⁽¹⁶⁾

放射線分解によるTBPからのDBPの生成は希釈剤によって非常に差がある。⁽¹⁷⁾ 例えば現在のCCl₄希釈剤は、炭化水素希釈剤に較べて著しくDBPの生成を高める。芳香族化合物はその共鳴的な特性によってエネルギーの“スポンジ”として作用し、TBPが放射線分解されるのを防ぐ。研究された幾つかの化合物の中で、トリクロベンジンは高い放射線安定性及び密度 (現用の重い溶媒系における水力学的性能には不可欠) から見てPRFで使用するのに最適と考えられる。

例えばAmberlite LA-2 (Rohm and Haas Co.)の様な第2アミンの α 放射線分解生成物のPu (IV) との錯化の程度はDBPに較べるとはるかに弱い。さらに、高度に照射された (100 Whr/l) Amberlite LA-2 溶液に保持されるPuは少量のHFを含む⁽¹⁶⁾ HNO₃ 溶液で除去される。PRF用の概念的な3カラムを用いたアミン抽出Pu還流フローシートが考案され、順を追った実験室試験で成功裡に実証されているが、開発とプラント規模の試験をさらに行うことが勧められている。

Am の回収

Pu の回収および精製で生ずる廃液中には ^{241}Pu の β 崩壊で生ずる ^{241}Am を量的な変動はあるが相当量含んでいる。3 価のイオンである Am は廃液からの Pu の回収を主目的として設計された溶媒抽出法および陰イオン交換法では回収されないから、Am を回収するには別の処理が必要となる。

PRF 抽出処理の主工程から生ずる酸性廃液から ^{241}Am および残留 Pu を回収するために、Hanford の PRF では 5 年以上溶媒抽出処理を用いている。抽出用溶媒として CCl_4 、希釈剤と 30 vol% のダイブチルブチルホスヘート (DBBP) を用いる Am 抽出計画は、非高放射性廃棄物から特に Am を除去し回収するために米国で運転されている唯一のプラント規模の溶媒抽出処理法である。

DBBP による Am 抽出処理への給液は、酸性の CAW 流 (Fig 11-1) の NaOH による約 0.1 M HNO_3 へのインラインで中和調製される。DBBP および TBP などの一般的な有機リン酸エステルは酸性溶液から能率的には 3 価のアクチニドを抽出しないから、高硝酸塩で低酸性の給液が必要となる。

DBBP 処理では 3 つのバルス充填カラムを直列に用いる。Am (III) および Pu (IV) は最初の抽出カラムで 30 vol% の DBBP 溶媒中に同時に抽出される。第 2 のカラムでは希硝酸を用いてより強く抽出されている Pu (IV) から Am (III) を分離し、最後のカラムでは HNO_3 - HF 溶液を用いて溶媒から Pu (IV) および残留 Am (III) を逆抽する。回収した Pu は主工程の PRF・TBP 工程へ戻し、回収した Am は濃縮してイオン交換法により精製する。プロセスフローシートおよび詳細は文献 18 に述べられている。

調整した CAW 溶液からの DBBP 処理法による代表的な回収率は可溶性 Pu に対しては 99% 以上であるが、可溶性の Am に対してはわずか 60 から 80% である。Am の回収が貧弱なのは不十分な段数および不適当な給液の酸調製またはどちらか 1 つが原因である。

最近の研究所の研究で酸性の CAW から直接 Pu および Am の両方を回収するのに "bidentate" な有機リン溶媒 (bidentate organophosphorus solvents) を応用するものがある。^(19, 20) DHDECMP (dihexyl-N, N-diethylcarbonylmethylene phosphonate) の様な bidentate 試薬は強硝酸性溶液中の 3 価アクチニドに対しても 4 価、6 価のアクチニドと同様に強い親和力を持っている。実際の CAW 溶液を用いた最近の実験室試験で、適当なフローシートの条件下では、30 ~ 40 vol% の DHDECMP 抽出剤を用いて Pu および Am の両方を非常に低いレベルの濃度に下げ得ることが実証された。現在の好結果は、さらに bidentate 抽出剤を開発・探究すれば、超ウラン元素を含む酸性廃液からすべての可溶性アクチニドを容易にかつ十分除去するに必要な手段が得られる可能性があることを示唆している。

Np の回収

Np は通常、再処理法の高レベル廃棄物の流れに捨てられるが、その化学的性質はUおよびPuに大変似ているのでTBPを用いる再処理ではどちらか一方の製品の流れに導くことができる。希硝酸液中で最も安定なNpの原子価状態はNp(V)であり、これはTBPに抽出されない。しかしながら、給液中にNa₂Cr₂O₇を加えるかまたは第1抽出カラムで溶媒にHNO₂を触媒的な量加えることによりNp(V)は非常に抽出されやすいNp(VI)にたやすく酸化される。鉄イオンやヒドロキシルアミンの様な普通のPu還元剤もまたNp(V)を抽出されやすいNp(IV)に還元する。

BenedictおよびSchulzは酸化-還元反応によってNpを回収する幾つかの溶媒抽出法(21)を述べている。HanfordのPurex処理法ではHNO₂の触媒による酸化でNpをNp(VI)に酸化し、第1抽出カラムで約90%のNpをUおよびPuとともに抽出している。Pu分配カラムでは、NpはPu還元剤でNp(IV)に還元されてUの流れに同伴する。最終的にNpはU精製サイクルの抽出カラムからの水相廃液中に集まり、さらにTBP溶媒抽出を受けて、この廃液から回収し精製される。

ヘキソン、トリラウリルアミンおよび他の溶媒を用いるNpの抽出法についても上記の両氏(21)は述べている。一般的に言ってUおよびPuの回収に適応できる溶媒抽出法は普通の適切な原子価調製剤を用いればNpの回収にも利用できる。

1.1.2.3 イオン交換技術

イオン交換技術は、使用済燃料、燃料加工スクラップ材および特殊な照射ターゲット物質からU、Np、Pu、AmおよびCmを回収し精製および濃縮するために原子力産業で広く用いられている(22~24)。イオン交換はまた鉍石からのUの回収、ある種のFPの回収および精製(25)、ならびに広範な材料からの各種のアクチニドおよびFPの分析規模の分離に用いる。イオン交換の基礎的な理論ならびにイオン交換物質を用いる各種の分離方法の原理および理論が詳しく再調査されており(26)、超ウラン元素のイオン交換の基礎化学も最近調査されている(27)。

陽イオン交換

大部分の有機陽イオン交換樹脂は、水和イオンとして最も高い荷電密度を持つイオンに対して最大の親和力を示す。この結果、3価および4価のPu、AmおよびCm、ランタニドに対して非常に強い交換親和力が得られるが、3価のAlおよびFeに対する親和力はそれ程ではなくなる。陽イオン交換樹脂は比較的弱いイオン強度の廃液からPu、AmおよびCmを除去するかまたは回収するのに特に有効である。1例として、非常に弱いイオン強度のPu含有廃液(汚染した蒸気凝縮液、洗浄水などを混合したもの)に対して、10⁴から10⁵のPu(III)の分配係数が得られている(28)。

陽イオン交換法は比較的弱いイオン強度においてのみ有効である。なぜなら3価のイオンの分配係数は1価のイオン濃度の3乗に比例して、また2価のイオン濃度の $3/2$ 乗に比例して減少するからである。このような理由により、陽イオン交換樹脂は4から5Nの無機酸で溶離される。その高いイオン強度に加えてフッ化物などの錯化剤は妨害する傾向があるから、より容易に錯化し加水分解するPu(IV)よりはPu(III)を吸着する方が良い。

このように、有機陽イオン交換剤の使用は、比較的低いイオン強度の廃液、特に高荷電イオンおよび錯化剤の低い廃液からの超ウラン元素の回収を考える1つの道筋であって、この様な方法は汚染冷却水、洗浄水、蒸気凝縮水などから3価のPu, AmまたはCmの回収に特に適応可能である。数種の陽イオン交換の応用例を次に述べる。

- 0.3M HNO₃および0.001M スルファミン酸第1鉄を含有するU溶液から痕跡程度のNp(IV)を回収する陽イオン交換が用いられている。⁽²⁹⁾
- 溶融Pu金属からAmの溶融塩(NaCl-KCl-MgCl₂)抽出で生ずる塩廃棄物からAmおよびPuを回収するのに、Rocky Flatsでは陽イオン交換を用いている。⁽³⁰⁾ AmおよびPuは、約4g Pu/lおよび0.4g Am/lの0.5M HCl溶液としてDowex 50, X-8に吸着される。次に、樹脂は水洗したのち7.5M HNO₃で溶離し、プロダクトはPu除去のために陽イオン交換にかけられる。
- HanfordのPRFではDBBP抽出処理で得られる希薄な製品溶液中のAmおよびPuを濃縮するのに陽イオン交換を用いている。
- 陽イオン交換クロマトグラフ法は、種々の工程流または廃棄物(高レベル廃棄物を含む)から回収した後のAmおよびCmのFPであるランタニド不純物からの分離精製ならびにAmおよびCmの相互分離に広く用いられている。⁽³¹⁻³⁴⁾
- 陽イオン交換吸着およびクロマトグラフ的な溶離によって、高放射性再処理廃棄物から直接AmおよびCmを回収することが提案されている。⁽³⁵⁾

LWR燃料サイクルの非高放射性廃棄物からの超ウラン元素の回収法として陽イオン交換法を適用して最も有望なのは、陰イオン交換または溶媒抽出で古いPuを再び処理した場合に生ずる廃棄物から²⁴¹Amを回収することであろう。これらの比較的酸度が高く塩濃度の低い廃棄物は、加熱濃縮および脱硝またはいずれか一方の方法で大部分の硝酸を除去したのち、0.1から0.5M HNO₃に希釈して陽イオン交換吸着される。焼却炉灰溶解液またはその他の高塩濃度廃液などは、金属の含有量が高く、イオン強度が大きく、錯化剤および珪酸質固体の存在の可能性があるので、陽イオン交換で直接Amを回収しにくいとも考えられる。

陰イオン交換

陰イオン交換樹脂による金属イオンの吸着は、金属イオンが樹脂相中で陰イオン錯体を形成できるときに行なわれる。超ウラン元素は幾つかの酸化状態において、硝酸塩、塩化物、

チオシアン酸塩などを含む数種の陰イオン錯化剤の溶液から陰イオン交換体に強く吸着されるが、再処理で最も広く適用されているのは硝酸塩溶液である。

Np (IV) および Pu (IV) の両方とも、約 4.5 から 10 M の硝酸塩を含む HNO₃ (あるいは硝酸塩) 溶液から強く、選択的に吸着され、HNO₃ 中では硝酸塩が 7.5 M のときに吸着は最大となる。⁽³⁶⁾ 選択性が非常に高いので、Np または Pu の陰イオン交換による回収法はほとんどの硝酸塩廃液に対して大変効果的である。

陰イオン交換は次の様な物質から Pu および Np を回収するのに用いられている。すなわち、高放射性 FP、^(29, 37-40) しゅう酸塩沈澱上澄廃液、⁽⁴¹⁾ 過酸化物沈澱上澄廃液、⁽²¹⁾ 金属還元残渣、^(42, 43) 燃料加工スクラップ、⁽²³⁾ 焼却炉灰溶解液および実験室廃液などである。陰イオン交換は広範囲に種々の主工程へも適用されている。^(21, 23, 29, 30, 37, 44)

錯化剤は多少分配係数を低下するが、大部分の錯化剤は強酸性溶液中では解離しない遊離酸に変換するためほとんど影響がなくなる。フッ化物は分配係数を低くするが、この影響は Al(NO₃)₃ の添加で打ち消される。多量の硫酸塩あるいは磷酸塩もまた有害である。しゅう酸塩上澄液の場合は、酸度を 9 M HNO₃ にするとしゅう酸塩錯体生成が抑えられるので良好な樹脂への吸着がえられる。

充填カラムを用いる場合はベッドの閉塞を避けるため、給液の清澄化が必要となる。固体の除去を避けるため攪拌ベット (agitated bed) が陰イオン交換で用いられている。^(40, 43) 攪拌ベッドの効率は充填ベッドよりもかなり低いが、陰イオン交換分配係数が高いので 2 個あるいは 3 個の攪拌ベッドを直列にすれば満足できる回収率が得られる。過酸化物上澄液は加熱して過酸化物を分解すべきであり、こうすれば樹脂の劣化攻撃およびガスの発生が防止される。陰イオン交換の給液中に Pu (VI) が存在する場合は、適当な還元剤により還元したのち Pu (III) を再酸化するための加熱が必要となる。

1.1.3 非破壊分析法

放射性廃棄物中の超ウラン元素の含有量を測定するために用いられてる非破壊分析法 (NDA) は、次の超ウラン元素の特質の 1 つまたはそれ以上を利用する。

- 放射性崩壊
- 自発核分裂
- 誘導核分裂

これらの特性に基く方法で完全に適用範囲を網羅するものはなく、また特有の妨害のない方法はない。実際には分析を確証するために幾つかの方法が用いられる。

低密度の Pu 含有廃棄物に求められる方法を選択順に示すと、受動的ガンマスベクトル分

析法，自発核分裂法および誘導核分裂法となる。⁽⁴⁵⁾ 高密度で特殊核物質 (SNM) 含有量の高い物質に対してはガンマスベクトル分析と組合せた自発核分裂法および熱量分析法もすすめられる。大部分のNDAは μ から θ の量のPuを含む廃棄物の梱包またはドラム缶の選別に適用されるが，廃棄物1 θ 当たり 10^{-9} キュリ程度の²³⁹Puを含む廃棄物を選別する技術は開発中であって利用は限定されている。⁽⁴⁶⁾

次に一般に用いられているNDA法を，分析の機構とともに簡単に述べる。特有な分析の妨害は指摘する。

1.1.3.1 放射性崩壊

放射性崩壊を利用できる非破壊分析 (NDA) 法を Fig 11-2 に示した。これには，熱量測定法，受動的^{*}(passive)ガンマ線およびX線スペクトロメトリ， α 線スペクトロメトリ，ならびに携帯用 α および γ モニターがある。

* 訳者注

1.1.3章ではガンマ線スペクトロメトリにはPassive(受動的な)という言葉が付いているが，これは測定対象自身からのガンマ線エネルギーを分析または測定する一般的な方法である。Passiveに対しActive(能動的な)という言葉があるが，これは試料を外部からの中性子線源等で照射し(n, γ)反応等を起こさせ，そのときに試料から放射されるガンマ線のエネルギーを分析または測定する方法である。

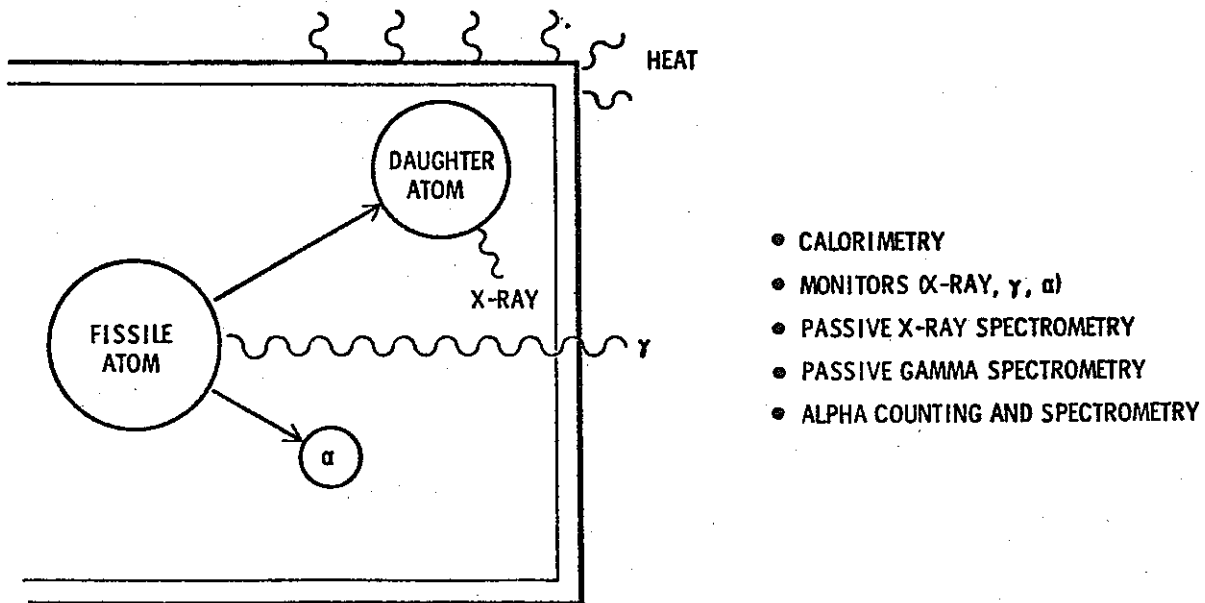


FIGURE 11-2. NDA Applications Based on Radioactive Decay

熱量測定法

すべての放射性崩壊のモードは最終的には熱を生じ、この熱は非常に正確に測定できることから、熱量測定法は核燃料サイクル物質の最も古い非破壊分析法である。

本来、吸収された α 崩壊生成物からの熱増加はわずかであるので、測定容器は熱量計箱に納められるぐらいに小さく、また、グラム量の核分裂性物質を含んでいなければならない。

熱量計チェンバーは非常によく断熱されたボックスである。これは1つつ熱を直接測定するかあるいは既知の熱源と比較し、その示差熱を測定するかのどちらかの方法で使用される。どちらの型式のものも市販されている。分析時間を長くすれば1% (2σ)以下の精度及び正確さが容易に得られる。

測定するのは熱だけなので、分析はサンプル中の各同位体の比放射能及び存在比についての分析者の知識から得られるものと同程度になる。燃料及び兵器製造スクラップ、燃料ピンなどのサンプルでは、同位体存在比は破壊法である質量分析法できる。つぎにその存在比はサンプルの金パッチに適用できる。以上の方法が適用されない物質は、受動的 γ スペクトロメトリによって非破壊的に測定される。この分析方法の制限因子は、放射性崩壊をする同位体存在比の正確な測定が困難なことである。主な誤差の原因は、非 γ 放射性同位体あるいは化学的な熱反応などの説明しにくい熱源が存在することである。

受動的ガンマスペクトロメトリ

熱量測定法は最も正確なNDA法であるが、直接ガンマスペクトロメトリも広く使用されている。この方法は、サンプル容器から放射される γ 線を検出器を用いて分析する方法である。 γ 線の透過力は大きい、その強度はエネルギー、原子番号、線源と検出器間の距離、及びその中間媒体の密度に関連して減少する。これらの機構による各種の γ 線の減衰が、 γ スペクトロメトリNDAの誤差の最大の原因となる。

γ スペクトロメトリの検出器は、 γ 光子をその活性領域内で吸収し、吸収したその光子エネルギーに比例した電圧パルスに転換する。光子が検出器内で十分に吸収されない場合には、出力パルスは全エネルギーパルスより小さくなり、連続した低エネルギー部分として記録される(コンプトン部分)。検出器の全パルス出力は、パルス波高分析器で分析され、エネルギーと計数率のスペクトルで示される。光子放射体の放射能は、その放射体の特性エネルギーのネットピーク面積に比例している。放射体は0か1種類あるいは多種のエネルギーピークを有する場合があるが、いずれのピークもその放射体の放射性崩壊率($\gamma/\text{disintegration}$)とある一定の比例関係をもっている。

検出器の性能は以下によってきめられる。

- 特性エネルギー(通例、 ^{60}Co の1,332 KeVのピーク)のガンマ光子の全吸収効率
- ピークの半分の高さでの幅で測定される分解能

(FWHM : full width at half maximum, 半値幅)

- ・連続低エネルギー部分に対するピークの高さの割合 (ピークとコンプトン部分の割合)

初期の検出器としては、Tℓで活性化したNaI検出器〔NaI(Tℓ)〕が選ばれた。この検出器は光子に対して高い吸収効率を持ち、非常に大きなサイズのものが入手出来る。

この型の検出器はシンチレータといわれ、 γ 光子を吸収して可視光線の螢光を発生し、その光は光学的に接続した光電子増倍管で電圧パルスに変換される。分解能は一般には7%かまたは ^{60}Co の1,332 KeV・ピークでの半値幅が約93 KeVであり、ピーク対コンプトン比は2である。同位体組成に変化がほとんどなく、堅実梱包した燃料サイクルからのスクラップや廃棄物試料に対しては、NaI(Tℓ)が非常に適している。10分以下の計測時間で、1 m²当たり1グラムの ^{239}Pu を±5% (2 σ)の精度で容易に測定できる。測定時間を増すとさらに高い感度がえられる。 ^{239}Pu が比較の基準として用いられるのは、これが1崩壊当たりの γ 線放出値が非常に低い興味ある特別の同位体 (limiting isotope) であるからである。

ごく最近、リシウム・ドリフトド・ゲルマニウム〔Ge(Li)〕と真性ゲルマニウム (IG) の半導体検出器が開発されており、同軸円筒形とプレーナ型の両方の形のもが使われている。両型式とも高真空の低温保持装置に封入し液体窒素温度で操作しなければならない。全ての検出器には高吸収性の不感層があり、したがってそれらの検出面のゲルマニウム表面数百オングストロームは検出しない。代表的なものとして、1 cm²から100 cm²以上の有効容積の検出器が使用されている。分解能は<2.0 KeV FWHM (1,332 KeV) でピーク対コンプトン比が $^{735}/1$ である。検出器に入る光子数に対する正味の全吸収ピーク面積として定められる効率は、何倍も大きいシンチレーション検出器の効率と同等あるいはそれ以上であるが、これは半導体検出器の光子吸収断面積が大きいことと分解能が非常に改良されたことからである。

同位体組織や密度が不均一な試料の γ 線スペクトル分析には、シンチレータでは必要なピークが分解できないので、半導体検出器を用いるべきである。試料及び容器の吸収ロスによる減衰補正が必要である。雑多なものが梱包された廃棄物に対しては、標準となる梱包を使って外部線源からの光子の減衰を測定して、減衰補正するのが普通である。外部線源としては、測定するピークのエネルギーに近い光子を放出するものを選ばれる。例えば ^{239}Pu の413.7 KeVピークに対しては ^{133}Ba の356 KeVピークが選ばれる。

核分裂性物質が大型金属または酸化物粒子の場合にはその自己吸収のため、この受動的な γ 線分析法ではエネルギーの低い値へ片寄りを生ずるからであろう。不活性物質上に分散した溶液及び微細な粉塵はこの方法で精密分析される。一定容量の試料に対しては、分析の感度は計測時間と検出器の面積の関数である。この関係を高めかつ減衰効果を平均化するには、

検出器の前で試料を回転するかまたは回転・振動させる。検出器の表面積を増大させるため複数の検出器を並べて使用する方法が用いられる。梱包の一部だけを測つたり、または回転している梱包の放射線中心効果を低減するためにコリメーションを行なう。このような γ 線スペクトロメトリに対するこれらの適用の仕方については、使用されているシステムでわかり、しばしば1つの設備(46)に数種の変形が用いられることがある。各種のデータ取得システムは市販されておるかまたは、市販のコンポーネントを組合せてできている。コンピュータによるデータ整理のプログラムは、国内のパルス波高分析器メーカーからも市販されており公開文献としてもでていて、このようなシステムの1つの主要な部分として利用できる。

1 m²当り1グラムの²³⁹Puを10分以下の時間で計測して±5% (2 σ)の精度は容易にえられる。半導体検出器を複数個並べて使うことにより大型の梱包試料で1グラム当たり10 nci以下の²³⁹Puを検出できる感度がえられている。⁽⁴⁶⁾

薄窓型の半導体検出器は、X線及び低エネルギー γ 線分析で用いられるプレーナ型検出器の1つの変形である。これらのプレーナ型検出器の特徴は低エネルギー光子に対して効率が最高となるように検出器の非検出層を非常に薄くでき、そしてこの検出器に最適の高エネルギー光子による低エネルギー部の妨害に対して最低の検出器深度とすることが容易にできるところである。受動的な同位体分析には特性として⁵⁷Coの121.9 KeVのピークで<0.600 KeV FWHMの分解能の薄窓ゲルマニウム検出器が使われている。このような分解能は、²³⁹Puの161.45 KeVピークから²⁴⁰Puの160.35 KeVピークを分解するのに必要である。

受動的なX線スペクトロメトリ

1個の原子が放射性崩壊すると過剰のエネルギーを伴った娘核種が生成される。このエネルギーは娘元素の特性X線として放出される。従って、プルトニウムの α 放射体はウランのX線を放出する。これらのX線の大部分は、約17 KeV (L系列)のエネルギーとこれよりはるかに少ない割合で約98 KeV (K系列)のエネルギーとを有する。⁽⁴⁹⁾これらの低エネルギー光子は容易に吸収されるので、これらの放射線を分析に利用するには検出器を線源物質に密着させなければならない。従って、この方法は低放射性溶液のインライン分析に向いている。この場合、薄窓半導体検出器かまたは薄いシンチレーションのどちらかをを用いることができよう。この分析方法は、条件を整えることによりすぐれた感度を有するので、破壊分析によく用いられる。

FIDLERプローブは薄くて大きい表面積(直径12~20 cm, 厚さ1.5~5 mm)のシンチレーション検出器を内蔵している。⁽⁵⁰⁾これは本来PuやAmの表面付着をモニターする目的のものであったが、例えば新たな洩れや排気筒からのフォールアウトなどの垂直分布がわかっているような表面区域の分析によく使われている。汚染した可能性のある低密度の廃棄物

をTRu及び非TRu廃棄物に仕分けするために、LASLのPancake型カウンタの中にこれが用いられている。また、吸収及び散乱を測定するため、ファントムと関連して生物体中(in vivo)における肺負荷分析でも用いられている。検出器は高エネルギー放射線の妨害を制限するために薄くし、捕獲範囲内の放射線に対する感度を上げるためにその面積を大きくしている。

LASLが開発したMEGAS (Multiple Energy Gamma Assay System) は、X線及び γ 線の両方が検出できるハイブリッドシステムであり、結晶中へX線を透過させる薄いベリリウム窓を有するNaI(Tl)結晶を使用している。検出器はターンテーブルの中心線から1.3 mの距離に設置し、幅25 mm高さ100 mmの鉄製コリメータを通して回転する梱包を測定するようになっている。これは、 10^{-9} キュリー/gレベル以上のTRu汚染で、操作区域から発生する低密度の廃棄物を入れた0.06 m³のカートン・ボックスをモニターするよう設計されている。マトリックス物質による光子の吸収及び超ウラン元素の自己しゃへいは測定誤差の原因となるが、低エネルギーのL系列X線の時はこれが特に大きくなる。ハイブリッドシステムは、 10^{-9} キュリー/gのレベルのX線の検出に対して高い感度(と比較的低い精度)を有し、より高い放射線レベルでの γ 線の検出に対して感度は低いが高い精度を持つという2つの面を備えている。

α 計数及び α スペクトロメトリ

放射性 α 崩壊では親原子から荷電したヘリウム核が放射される。 α 粒子は放出同位体の特性である高いエネルギー(2~8 MeV)をもっている。 α 粒子は相対的に大きいためその透迫力は非常に弱く、空気中の飛程は約2 cmに過ぎない。従って、放出される粒子が検出器に到達するためには、 α 放射体は極めて薄い層にしなければならない。このため、 α 放射を利用する非破壊分析は正式には空気フィルタの分析だけである。

α 線計測は、一般には β 線を分別するように電圧プラトー領域にセットした比例計数管内に置いて行なう。比例計数管の α 線計数効率が高いが、親同位体間の α 線エネルギーの相違を識別することができない。この機能は他の薄窓のプレーナ型半導体検出器が有している。これらの検出器はX線用の検出器より、更に薄い金の分子層位の入射窓と検出器の厚さも100 μ m程度と非常に薄い。通常、検出器はシリコンでつくられ、室温またはそれより多少低い温度で使われる。試料は検出器と一緒に真空チャンバ内に置かれる。これらの検出器は、その寸法が小さいので、計数ジオメトリもよくない。その検出器は α 放射性元素を同定し、その相対的放射能強度をパルス波高分析器への信号として供給する。この結果は、個々の α 放射体の定量分析を行うための全 α 計数データとして使われる。

(脚注)

※ ジオメトリとは線源と検出器間の立体角及び検出器の効率の組合せで表わされる。

α 計数及びスペクトロメトリは、最も大きい感度幅をもっているため、核分裂性物質の破壊分析のあらゆる面で広く使用されている。通常核分裂性物質を精製し円盤上に電着させ、分解能のゆがみを最小にしている。

携帯用の薄窓型電離箱検出器は市販されており、 α 汚染モニターとして使われている。

1 1.3.2 自発核分裂

自発核分裂の性質は、直接に核分裂性同位体には利用できないが、多くの超ウラン元素の非破壊分析に効果的に用いることができる。自発核分裂により高い比放射能を伴う原子は質量数が偶数の同位体であり、一方核分裂性原子は質量数が奇数である。⁽⁴⁹⁾

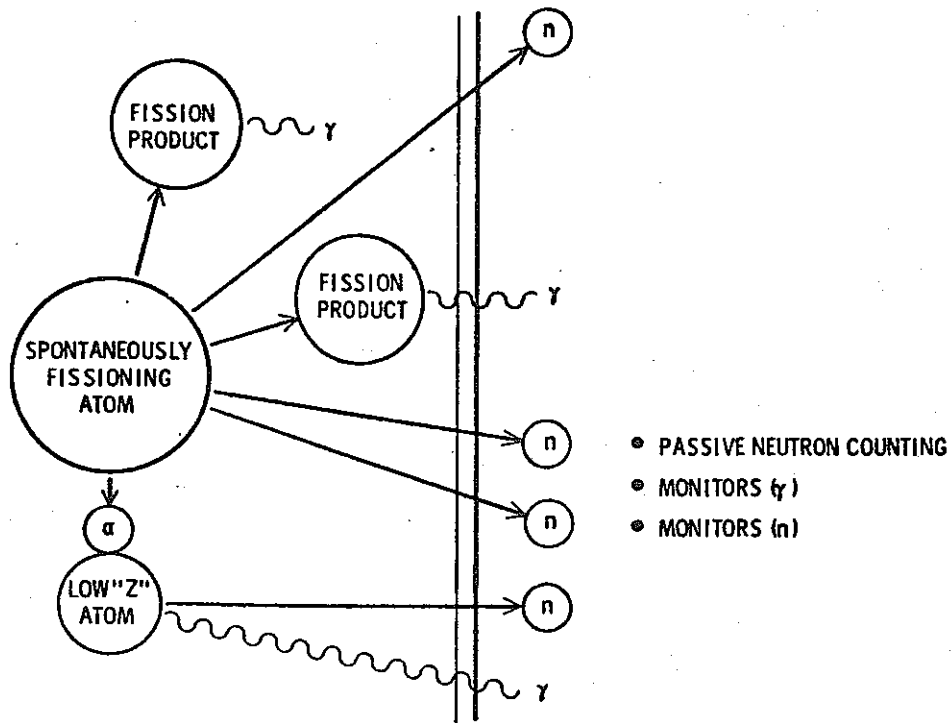


FIGURE 11-3. NDA Applications Based on Spontaneous Fission

自発核分裂 (Fig. 11 - 3) では、2 個の核分裂片、これらの核分裂片からの即発 γ 線の放出、その核分裂による同位体個々の放射性崩壊及び 2 ないしそれ以上の同時に放射される即発中性子を生ずる。核分裂生成物に関連した放射線は大部分試料中で失われて分析の目的には使用できないが、中性子はその捕獲断面積が小さくて試料容器外での分析信号として利用できる。捕獲断面積が小さいために中性子検出器の計数ジオメトリは非常に低く、従って、複数の検出器を配列しなければならない。最も初期の受動的な中性子計数システムでは、

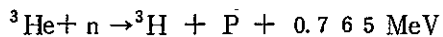
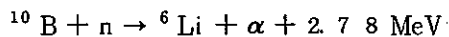
捕足できるすべての中性子を計数してその効率を最大にしている。この原理に基づいて、金属及び金属酸化物の分析用の非常に正確な分析システムがつくられている。

大部分の自発核分裂同位体は α 崩壊する。これらの同位体が水素及び酸素以外の小さい原子番号の同位体と、化学的にあるいはより弱い度合で物理的に結合していると、 $\alpha-n$ 反応の起る確率が高くなる。原子番号の小さい同位元素は放射性同位元素に変換されると中性子を放出する。新しく生成した同位体は特性 γ 線を出して崩壊し、試料中の原子番号の小さい同位体組成を半定量的に測定する手段が得られる。逆に、水素含有量の高い大きいパッケージでは、検出に利用できる前に中性子が吸収される傾向がある。

受動的中性子計数で考慮すべき重要なことは、自発核分裂で2ないしそれ以上の中性子が同時に放されることである。ほとんどの受動的中性子システムが複数の検出器群に分けられるのは、多数の中性子を生ずる核分裂と単一な(α, n)反応を区別するために少なくとも2個の中性子を同時に検出することが必要となるからである。

最も普通に用いられている2種の中性子検出器は、 $^{10}\text{BF}_3$ 及び ^3He ガスを充填した比例計数管である。熱中性子との相互作用が最も高い断面積を有するので、ガス検出管を中性子減速材で囲まなければならない。この減速材は水、パラフィンまたはポリエチレンのような水素含有量の多い物質であり、これらの物質は継続的な相互作用によって中性子のエネルギーを熱運動領域にまで減速する。通常、この層はホウ素かカドミニウムの層とその他の減速材の層で囲まれている。ホウ素及びカドミニウムは熱中性子に対して高い捕獲断面積を有し、この2重の外周層によって外部の中性子源によるバックグラウンドを減らす。以上のことから、これらの中性子検出器システムが大型になることは明白である。ガス充填値は検出器の $\frac{1}{10}$ 気圧である。この計数管は直径数cmで長さは1mに達し、1つのシステムに3~4本から100本以上を組込むことができる。コンポーネントは市販されているが、その需要と適用に変動があるためにストックシステムはごくまれにしか利用できない。

検出器として $^{10}\text{BF}_3$ 及び ^3He 管が使える核反応は次の通りである。



両方とも生成物の飛程が短くて、正味効率の高い比例計数管内で記録されている。両方とも外部 γ 線にはほとんど感じない。得られる精度は非常によいが、生産ラインで使用する場合を除いて正確さは劣る。シンチレータはまた、中性子検出器としても用いられ、シンチレータ内での(n, γ)、(n, P)、(n, f)及び(n, α)反応を利用して放射線を検出する。代表的な検出器材料は ^6LiI であり、ガス型の検出器に比べ、これは熱中性子を非常に高効率で検出するが、しかし、 γ 線の検出に対しても効率は高く、そして、それは熱中性子の測定に際し妨害となる。

薄い金属箔を使用するのも受動的な中性子検出法の1つであるが、同時計数の区別ができない。中性子放射化分析の1つに、廃液タンク中の自発核分裂からの非常に低い中性子束を非常に大きい薄い金属箔(1 m²)に照射する方法がある。長期間の照射中に典型的な(n, γ)または(n, P)反応が起る。次に、金属箔は小さくまとめるか溶解して測定用試料とし、γ線エネルギー分析が行なわれる。そして、誘導放射能から初期の中性子束を算出する。その中性子束は核分裂性物質の量と関連している。

1.1.3.3 誘導核分裂

誘導核分裂(Fig 11.4)では、放射性崩壊や自発核分裂と同様な放射線及び生成物が生ずるが、核分裂が誘導されるために非破壊分析上いくつかの利点がえられる。第1に、核分裂性物質の含有量が核分裂によって直接測定される。第2に、試料中の核分裂性物質の量や核分裂を誘導している中性子または制動放射線束によって、感度がほとんど一様に制御される。少なからず重要なことは、誘導核分裂の前後に試料が入手できて測定方式の如何にかかわらず干渉のバックグラウンドの測定ができることである。これらの方法が高いγ線バックグラウンドの廃棄物、スクラップ及び照射済燃料に対する唯一の実用可能な非破壊分析法である。

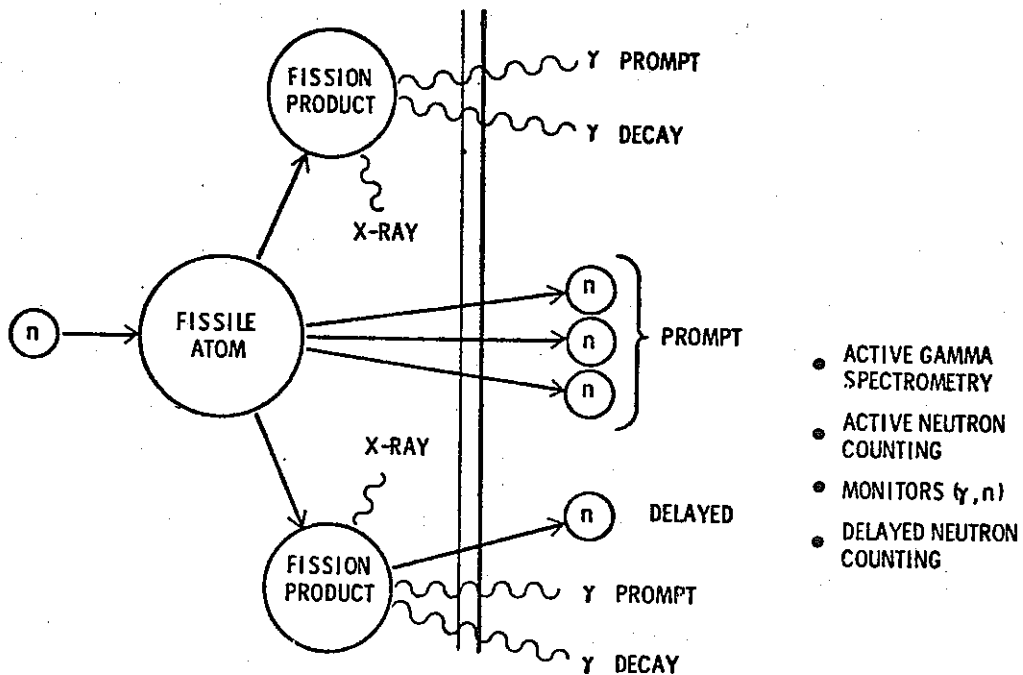


FIGURE 11-4. NDA Applications Based on Induced Fission

即発システム

即発生成物による分析システムは、通常、複数の高エネルギー γ 線と高速中性子のあるいはいずれか一方の同時放射を利用する。入射する熱中性子及び放出される即発 γ 線のコリメーションに強く依存するいくつかの分析システムが開発されている。このため、試料は小型に限定されるのが普通である。コリメートする度合が減るかまたはコリメータがないときは、より大きい試料（ボックスまたはドラム缶まで）が分析できる。核分裂により放出される即発 γ 線及び中性子が非常に多様であり、一方バックグラウンドのような核分裂に関連しない現象の特徴は多様化が低いことである。バックグラウンドが一定比率で妨害するとすれば、自発核分裂は低いレベルまで測定可能である。

制動放射で誘起される核分裂では、入射エネルギーを反応のしきい値の上または下に変化させることができる。これによって、同一試料パッケージ中の核分裂性物質及び親物質の量の両方を放射化（誘導）分析することが可能となる。

使用される検出器はすでに述べたのと同じものである。放射化放射線をシャ断すれば、検出システムはバックグラウンドまたは親物質の測定用の受動的システムとなる。精度は良好であり、核分裂性物質を数グラム含有する試料では特に精度がよい。

遅発システム

誘導核分裂が非常に多方面で好んで使われるのは遅発放射能システムにある。中性子束をパルス的に放出できまたは試料を物理的核分裂を起す中性子束外に移動できる。燃料棒スキヤナの多くは、燃料棒を照射場中を通過させたのち、中性子線の下流で特性遅発核分裂 γ 線を測定するという原理に基づいてつくられている。試料の方向を逆にするとバックグラウンドが得られる。

小さい試料は計数チャンバ内で受動的に γ 線または中性子線で分析できよう。つぎに、試料はそのままの位置で短時間照射したのち、同じチャンバ内で放射能分析される。感度及び精度を上げるためにこの操作を反覆することができる。

遅発中性子測定法は、 10^{-9} g/g の核分裂性物質を含むグラム量の試料と同程度の精度で燃料ピンの分析に利用できるので、特に用途が広い方法である。また、この測定法は γ 線に対して不感にすることもできる。高いグラム数の含有量の試料は同位元素の中性子源を使って低い収率で照射してよい。臨界未満集合体、原子炉またはパルス炉を用いて中性子束密度を高めることにより感度を上げられる。照射後の試料はすみやかにバックグラウンドの低い遅発中性子計数管に移して計測し、必要に応じて繰り返される。前に述べたように、バックグラウンドは照射前の試料を同じ計数システムで確かめることができる。主要な妨害は、核分裂に関連のない物質の(n, dn)反応であり、これの主なもの、1.7秒半減期の遅発中性子をもつ酸素である。しかし、半減期の数倍経過して計数すれば、これの影響は大幅にへる。

精度は、高レベルで2%ならびに低レベルでは10%(2σ)がかえられる。⁽⁵²⁾

これらのいろんな組み合わせの全てが市販品としてある。分析のいろんな方式を実施に移すには、多大の経費と場所が必要となるので、有料サービス分析と多くの施設を対象とするか移動式ユニットにまとめられる。

REFERENCES

1. E. L. Christensen and W. J. Maraman, Plutonium Processing at the Los Alamos Scientific Laboratory, LA-3542, Los Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos, NM, April 1969.
2. E. R. Russell and M. C. Thompson, Recovery of Plutonium-238 from Scrap Materials, DP-1330, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, April 1974.
3. L. E. Bruns, "Plastics in Nuclear Processing Plants," Chem. Eng. Prog., Vol 71, p 59, 1975.
4. M. J. Steindler, et al, Chemical Engineering Division Waste Management Programs Quarterly Report October-December 1973, ANL-8087, Argonne National Laboratory, Argonne, IL, Feb 1974.
5. M. Ganivet, G. Cousinou, "Reduction du Volume et de l'Activite des Dechets Solides Alpha Contamines par Concassage Cryogenique et Lixiviation," Management of Plutonium-Contaminated-Solid Wastes, Organisation for Economic Co-operation and Development, Paris, France, p. 186, 1975.
6. N. Levitz, T. J. Gerding, I. O. Winsch, T. F. Cannon, and M. J. Steindler, "Volume Reduction and Salvage Considerations for Plutonium-Contaminated Ferrous Metal," Presented at the 80th National Meeting of the AIChE, Boston, Sept 7-10, 1975.
7. J. M. Cleveland, The Chemistry of Plutonium, Gordon and Breach Science Publishers, New York, pp. 563-684, 1970.
8. H. Soulier, "Incinerateur de Dechets Riches en Emetteurs Alpha de Marcoule Fonctionnement", Management of Plutonium-Contaminated Solid Wastes, op. cit., p. 163.
9. H. A. Taylor, R. H. Allardice, J. G. Boyle, L. P. O'Connor, M. J. S. Smith, "UK Experience in the Management of Pu Contaminated Solid Waste", Management of Plutonium-Contaminated Solid Wastes, op. cit., p. 52.
10. Atlantic Richfield Hanford Company Semiannual Report BB Process Development May 1, 1974 through October 31, 1974, R. D. Fox, editor, ARH-ST-118 B, Atlantic Richfield Hanford Co., Richland, WA, Jan. 1975.
11. J. A. Partridge and E. J. Wheelwright, Plutonium Recovery from Incinerator Ash and Centrifuge Sludge by Peroxide Fusion. An Interim Report, BNWL-B-419, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, May 1975.
12. N. E. Bibler and E. G. Orebaugh, Iron-Catalyzed Dissolution of Polystyrene Sulfonate Cation Resin in Hydrogen Peroxide DP-MS-74-56, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, 1975 (Submitted for publication in I&EC Prod. Res. Develop.)
13. B. F. Judson, "Performance of a Plutonium Reflux Solvent Extraction System", Process Chemistry, Progress in Nuclear Energy, Series III, Vol. 2, F. R. Brown, J. M. Fletcher, and H. H. Hyman, editors, Pergamon Press, New York, pp. 302-306, 1958.
14. L. E. Bruns, "Geometrically Favorable Plutonium Scrap Recovery Plant," Chem. Eng. Prog. Sym. Ser. No. 80, vol 63, p. 156, 1957.

15. L. E. Bruns, "Plutonium-Uranium Partitioning by a Reflux Extraction Flowsheet", Proceedings International Solvent Extraction Conference, ISEC 71, Vol. 1, Society of Chemical Industry, London, p. 186, 1971.
16. W. W. Schulz, D. G. Bouse, and M. J. Kupfer, "Reflux Amine Flowsheet for Plutonium Recovery from Metallurgical Scrap," Proceedings International Solvent Extraction Conference, ISEC 74, Vol. 3, Society of Chemical Industry, London, p. 2035, 1974.
17. L. L. Burger and E. D. McClanahan, "Gamma Radiolysis - Tributyl Phosphate and Its Diluent System", Ind. Eng. Chem., vol. 50, p 153, 1958.
18. W. W. Schulz, The Chemistry of Americium, TID-26971, USERDA Critical Review Series, USERDA Technical Information Center, Oak Ridge, TN, 1976.
19. W. W. Schulz, Bidentate Organophosphorus Extraction of Americium and Plutonium from Hanford Plutonium Reclamation Facility Waste, ARH-SA-203, Atlantic Richfield Hanford Co., Richland, WA, Sept 1974.
20. W. W. Schulz and L. D. McIsaac, Removal of Actinides from Nuclear Fuel Reprocessing Waste Solutions with Bidentate Organophosphorus Extractants, ARH-SA-217, Atlantic Richfield Hanford Co., Richland, WA, July 1975.
21. W. W. Schulz and G. E. Benedict, Neptunium-237 Production and Recovery, TID-25955, USAEC Critical Review Series, USAEC Technical Information Center, Oak Ridge, TN, Oct. 1972.
22. Reactor Handbook, Volume II, Fuel Reprocessing, S. M. Stoller and R. B. Richards, editors, Interscience Publishers, Inc., New York, 1961.
23. J. M. Cleveland, The Chemistry of Plutonium, Gordon and Breach Science Publishers, Inc., New York, pp. 142-159, 1970.
24. J. T. Long, Engineering for Nuclear Fuel Reprocessing, Gordon and Breach Science Publishers, Inc., New York, p. 685 ff., 1967.
25. R. C. Merritt, The Extractive Metallurgy of Uranium, Colorado School of Mines Research Institute, Golden, CO, 1971.
26. F. Helfferich, Ion Exchange, McGraw-Hill, Inc., New York, 1962.
27. J. L. Ryan, "Ion Exchange," Gmelin's Handbuch der Anorganischen Chemie, Band 71, Transurane, Teil D, G. Koch, editor, Verlag Chemie GmbH, Weinheim, Germany, 1976.
28. J. L. Ryan, Evolution of Process Variables in the Cation Exchange Recovery of Plutonium from 234-5 Building Sump Water, BNWL-CC-759, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA., July 1966.
29. H. J. Groh and C. S. Schlea, "The Recovery of Neptunium-237 and Plutonium-238," Progress in Nuclear Energy, Series III., Vol. 4, C. E. Stevenson, E. A. Mason, and A. T. Gresky, editors, Pergamon Press, Inc., New York, pp. 507-547, 1970.
30. S. G. Proctor, Cation Exchange Process for Molten Salt Extraction Residues, RFP-2347, Rocky Flats Plant, Golden, CO, Mar. 1975.

31. E. J. Wheelwright, F. P. Roberts, The Use of Alternating DPTA and NTA Cation Exchange Flowsheets for the Simultaneous Recovery and Purification of Pm, Am, and Cm, BNWL-1072, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, July 1969.
32. E. J. Wheelwright, "Ion Exchange - A Generic Nuclear Industry Process for Recovery and Final Purification of Am, Cm, Pm, Sr, Pu, Np, Cs, Tc, Rh, and Pd," Ion Exchange Process Ind., Pap. Conf., p. 202, 1969.
33. J. T. Lowe, W. H. Hale, Jr., and D. F. Hallman, "Development of a Pressurized Cation Exchange Chromatographic Process for Separation of Transplutonium Actinides," I&EC Process Design & Develop., vol. 10, p. 131, 1971.
34. R. M. Harbour, W. H. Hale, G. A. Burney, and J. T. Lowe, "Large-Scale Separation of Transplutonium Actinides by Pressurized Cation Exchange," At. Energy Rev., vol. 10, p. 379, 1972.
35. E. J. Wheelwright, L. A. Bray, H. H. Van Tuyl, H. T. Fullam, Flowsheet for Recovery of Curium from Power Reactor Fuel Reprocessing Plant Waste, BNWL-1831, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, May 1974.
36. J. L. Ryan, "Species Involved in the Anion Exchange Absorption of Quadrivalent Actinide Nitrates," J. Phys. Chem., vol. 64, p. 1375, 1960.
37. J. L. Ryan and E. J. Wheelwright, The Recovery, Purification and Concentration of Plutonium by Anion Exchange in Nitric Acid, HW-55893, General Electric Co., Richland, WA, Jan. 1959.
38. H. H. Van Tuyl, Recovery of Plutonium and Neptunium from Purex 1WW by Anion Exchange, HW-61145 (Del.), General Electric Co., Richland, WA, 1959.
39. W. L. Poe, A. W. Joyce, and R. I. Masters, "²³⁷Np and ²³⁸Pu Separation at the Savannah River Plant," I & EC Process Design Develop., vol. 3, p. 314, 1964.
40. V. P. Caracciolo, Anion Exchange in a Large-Scale Agitated Bed, DP-624, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, Sept. 1961.
41. E. J. Wheelwright, Anion Exchange Recovery of Plutonium from 234-5 Building Button Line - Task I Oxalate Filtrate, HW-75309, General Electric Co., Richland, WA, Nov. 1962.
42. E. R. Russell, Anion Exchange Recovery of Plutonium from Reduction Residues, DP-447, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, June 1961.
43. E. K. Dukes and W. E. Prout, Recovery of Plutonium from Metallurgical Reduction Wastes, DP-580, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, June, 1961.
44. A. K. Williams, Americium Capability at Rocky Flats, RFP-349, Rocky Flats Plant, Golden, CO, 1964.
45. "Nondestructive Assay of Special Nuclear Material Contained in Scrap and Waste," Regulatory Guide 5.11, U.S. Atomic Energy Commission Oct. 1973.

46. L. A. Kull, Catalog of Nuclear Material Safeguards Instrumentation JRB-72-505-LJ, JRB Associates Inc., La Jolla, CA, July 1972.
47. J. E. Cline, A Relatively Simple and Precise Technique for the Assay of Plutonium Waste. ANCR-1055, Aerojet Nuclear Company, Idaho Falls, ID, February 1972.
48. R. Gunnink and J. F. Tinney, Total Fissile Content and Isotopic Analysis of Nuclear Materials by Gamma-Ray Spectrometry, UCRL-73274, Lawrence Radiation Laboratory; Livermore, CA, October 19, 1971.
49. C. M. Lederer, J. M. Hollander, J. Perlman, Table of Isotopes, Sixth Edition, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1967.
50. R. J. Budnitz, Plutonium: A Review of Measurement Techniques for Environmental Monitoring, LBL-2039, Lawrence Berkeley Laboratory, Berkeley, CA, November 1973.
51. C. J. Umbarger and L. R. Crowder, "Measurements of Transuranic Solid Wastes at the 10nCi/g Activity Level," Nuclear Technology, vol. 27, pp 500-510, 1975.
52. H. R. Lukens, D. M. Fleishman, R. L. Bramblett, "Determination of ^{235}U in Highly Enriched Reactor Fuel Sticks," Radioanalyt. Chem., vol. 16, pp. 97-104, 1973.

1 2.0 高放射性以外の各種放射性廃棄物の固定化

核燃料サイクルの全工程から発生する液体あるいは固体の放射性廃棄物は、それらを安全に移送又は貯蔵するために固定化する必要がある。このことは、本報告書の前章で記述した廃棄物処理における一次および二次廃棄物について適用される。表-12.1に本章で述べる種々の固定化技術により処理された各種の廃棄物の発生源とその一般的な特性（形状、主なる成分）を示す。

TABLE 12-1. Waste Characteristics

Waste Forms	Waste Description	Source	Composition
Liquids:	Radwaste evaporator concentrates	PWR BWR, PWR	Boric acid Sulfate & basic phosphate residues
	Intermediate Level Waste (ILW)	Reprocessing Plants	Sodium & mercuric nitrates, iodine, sodium carbonate & various other sodium salts

TABLE 12-1. Waste Characteristics (cont'd)

	Low Level Liquid Wastes (LLLW)	Reprocessing Plants & General	Sodium nitrate solutions containing a wide variety of other salts
	Neutralized scrap recovery wastes	Fab. Plants & Reprocessing	Sodium & ammonium nitrate solutions, may contain fluoride
	Resin regeneration liquids	General	Sodium nitrate, sulfate, or nitric acid solutions
	Organic solvents & Waste Oils	General	TBP, lubricants, cleaning solvents
	Neutralized lab liquids	General	Varied but mostly nitrates sulfates & chlorides
	Decontamination Soln's	General	Complexing agents in either acidic or basic solutions
	Laundry liquids	General	Detergents, bleaches & some complexing agents
Solids:	Spent resin (de-watered)	Reactors & General	Ion-exchange media
	Spent filters	LWR	Filter cartridge assemblies with high activity filter sludge
	Dewatered sludges	Reactors & General	Clay, zeolites, manganese dioxide, ferric & aluminum hydroxide, filter aids, powdered resins

Incinerator Ash	Waste Treatment Facility	Various siliceous & clay materials with some metal salts & oxides
Evaporator Salts	Waste Treatment Facility	Sodium nitrate & other common sodium salts
Calcine	Waste Treatment Facility	Metal oxides

なお，高放射性液体廃棄物，ハルおよび揮発性の放射性廃棄物の固定化技術については，別章に述べる。本章における「固定化」(immobilization)とは，各工程から発生した廃棄物の流動性を減少させるための処理のことである。その方法は，ほとんどの場合，浸出率の低い均一の固体中へ廃棄物を封じ込める事によるものである。

1 2.1 固定化(処理)法

固定化処理にあたって，廃棄物は次の三種に分けることができる。

- バッキング(梱包)のみで，固化(solidification)あるいは固定化(immobilization)といった処理を必要としない廃棄物(例えば，破損し廃棄処分となった装置)
- バッキングのみであるが，経済的にあるいは安全性の向上の面から，ある種の固定化又は，固化処理が必要な廃棄物(例えば，灰類，乾燥塩類，イオン交換樹脂および飛散しやすい固体(粉体)類)
- 米連邦政府および州政府の「移送」ならびに「貯蔵」に係る規則により固定処理を必要とする廃棄物。(例えば，ある種の液体廃棄物)

表 1 2 . 2 に示すように，本章で述べる固定化技術は，二つに大きく分類される。すなわち

- 1) アメリカおよび諸外国において，現在実際に一般的に使用されている技術
- 2) 技術的により完成されるべく，あるいは経済性の向上のため，現在開発段階にある技術

TABLE 12-2. Immobilization Alternatives

<u>Technologies in Use</u>	<u>Technologies under Development</u>
Absorbents	Aluminosilicate minerals (clay)
Salt matrix	Glass/ceramics
Urea-formaldehyde resins	Pelletization/compaction
Cement/concrete	Polyethylene and other organic polymers
Bitumen (asphalt)	Metal matrix

今日使用されている種々の固定化技術のほとんどは、もつばら廃液、スラッジノイオン交換樹脂、および類似した含水廃棄物について行われている。それらの技術の比較を表12.3に示す。

TABLE 12-3. Comparison of Available Immobilization Technologies

Comparison Factor	Absorbent	Salt Cake	Urea-Formaldehyde	Portland Cement ^(a)	Bitumen
Shelf life of immobilizing agent:	Long	NA ^(b)	Short (months)	Long	Long
Mix fluidity	Fair	NA	Good	Poor	Fair
Mixer cleanability	Good	NA	Good	Poor	Fair
Chemical tolerances					
Boric acid Sol'n	--	--	Good	Poor	Good
Na ₂ SO ₄	--	Good	Reduced efficiency	Fair	Good
NaNO ₃	--	Good	Fair	Good	Not recommended
Alkaline	--	--	Reduced efficiency	Good	Good
Laundry det.	Good	--	Poor	Poor	Fair
Organic liquids	Good	NA	Poor	Poor	Fair
Ion exch. resins	NA	NA	Good	Fair	Fair
Sludges	NA	NA	Good, may require pH adjustment	Good	Good; hazardous with MnO ₂ sludge
Volumetric Efficiency ^(c)	Low (0.3-0.5)	High (4-8)	Moderate (0.6-1.0)	Low (0.5)	High (>2)
Product Form	Moist granules or paste	Monolithic cake	Monolith	Monolith	Monolith
Product density, kg/m ³	400-1000	2000-2500	1000-1300	1500-2000	1000-1300
Water binding strength	Poor	Water evap. during preparations	Fair	Good	Water evap. during preparations
Residual free water	Occasionally	Occasionally	Occasionally	Seldom	Never
Mechanical strength	Nil	Low	Fair	Good	Good
Product stability	Poor	Fair	Fair(loses water and strength in open system)	Very Good	Good
Combustibility	Depends on liquid absorbed	No	Yes	No	Yes
Freeze/thaw resistance	NA	NA	Poor	Fair to good	Good
Leach resistance	Very low	Low	Moderate	Moderate to high	High

a. Without additives
 b. NA = not applicable
 c. Ratio of the as-generated waste volume to the solidified waste volume

現在、各種の吸着剤による固定化法は、その他の方法によつてはうまく固定化されないもの、たとえば有機溶媒のような液体廃棄物に、時より使用されている。

塩ケーキにするために、廃液を蒸発濃縮する方法が E R D A の再処理工場では当初行なわれた。その方法で、長期間減衰されかつ中和された高レベルの廃液が固定化されたのである。尿素-ホルムアルデヒド樹脂による方法と、ポルランド・セメントによる方法が原子炉から発生する種々の廃棄物の固化の為に、広く使用されている。アスファルトによる固定化処理法はアメリカでは使用されていないが、諸外国において原子力施設でかなり用いられている。開発段階にある技術は主として、固化体の浸出性を改善するために行なわれている。この分野における主要技術としては、「ガラス化」がある。この「ガラス化」によると、最も浸出しやすい成分について、その浸出率を $5 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^2\text{-day}$ 以下にすることが出来る。ペレット法によるセラミックあるいは、サーメット (cermet) も同様の低浸出性を有する。

ポリエチレンによる固化体の浸出性は、アスファルト固化体と同程度であり、また、ケイ酸アルミニウムによる塩固体のそれは、ほぼセメント固化体と同程度である。各種の固化体の浸出率の比較を図 12.1 及び 12.2 に示す。(1)

WASTE PRODUCTS

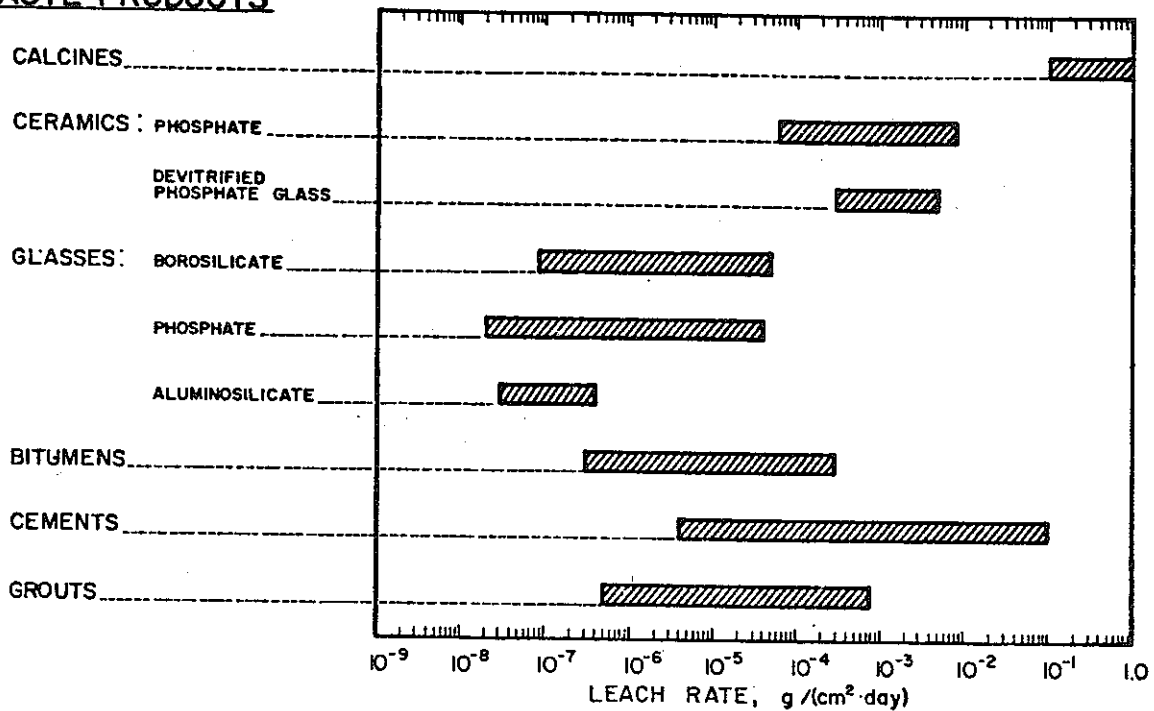


FIGURE 12-1. Comparison of Leach rates for Alkali and Alkaline-Earth Elements from Various Waste Products

WASTE PRODUCTS

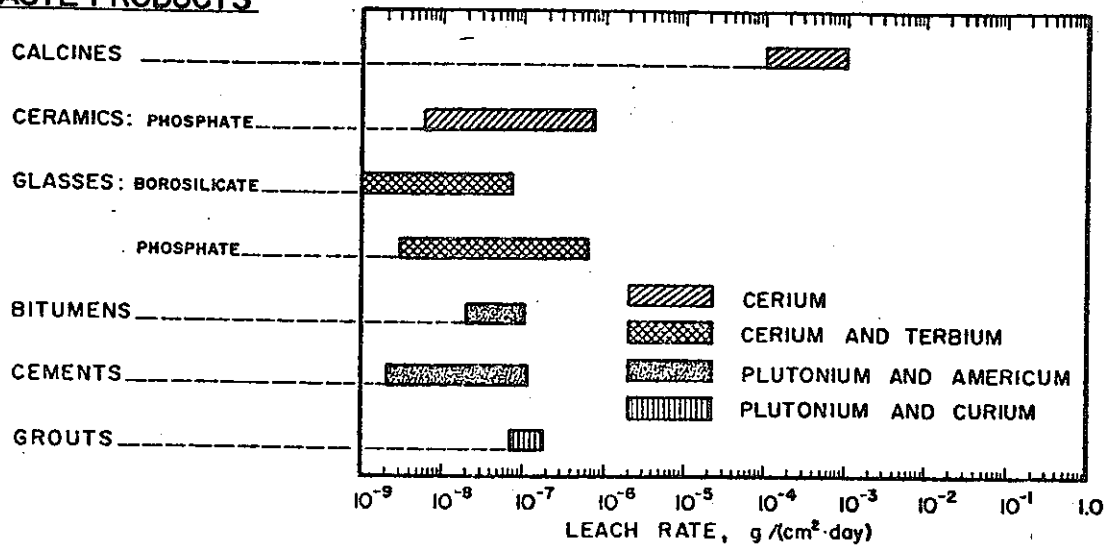


FIGURE 12-2. Comparison of Leach Rates for Rare-Earth and Actinide Elements from Various Waste Products

その図から希土類元素及びアクチナイドの元素の浸出率は、アルカリ金属元素及びアルカリ土類金属元素のそれより数桁も小さいことがわかる。従って、もし超ウラン元素だけを固定化する目的であれば、セメント固化体で充分である。それは、放射性物質を長期間確実に封じ込めておくための固化体として、費用のかかるガラス固化体と同等の効果がある。

現在、実用に供されている種々の固定化技術についても、常に開発・研究が行なわれている。とりわけ、改良セメントと尿素-ホルムアルデヒド樹脂との混合体がよりすぐれた減容効果とセシウムに対する浸出性を向上するために、開発されている。これらの改良については以下に記述する種々の固化処理の項で述べることにする。

1 2.2 利用可能な固化技術

この項では、固化技術として吸着剤による方法、塩マトリックス法 (saltmatrix)、尿素-ホルムアルデヒド樹脂による方法、セメントあるいはコンクリート固化法および、アスファルト固化法について述べる。

1 2.2.1 吸着剤による固定化法

いろいろな吸着剤が廃液を固化して移送するとか、埋没処分をするため、原子力工業において広く使用されている。吸着剤は、他の手段で固化することが困難な油、溶媒およびその他の有機あるいは無機廃液の固化のために有効である。しかしながら本法は、比放射能の低

い廃液に(49 CFR 173-389)に限られている。比放射能の高い場合には、廃棄処分用容器は更に別のコンテナ(D.O.T -acceptable outer container)に入れることになる。

固化体の概要とその特性

放射性廃液の固定化にごく一般的に使用されている吸着剤は、粒状あるいは粉体状の次のような物質である。

- (イ) パーミキュライト(ひる石)
- (ロ) 種々の粘土
- (ハ) diatomite (生物作用により沈殿されたケイ酸カルシウム)
- (ニ) 硫酸カルシウム
- (ホ) シリカゲル
- (ヘ) ポルトランド・セメント
- (ト) 焼き石膏

パーミキュライトは、多分、最も広く一般的に使用されているが、その他に脱水された粒状の粘土やdiatomiteも放射性廃液の吸着剤としてごく一般的に使用されている。ANSIの指針では、廃液とパーミキュライトの重量比が6:1をこえないようになっている。

80kg/m³の#3級パーミキュライトについては、パーミキュライトに対する廃液の比が体積比で1~3でその添加された廃液が完全に吸着され、吸着されないフリーの廃液は、皆無になるのであるが指針では1~2とされている。ほぼ同様なことがdiatomiteについても推奨されている。⁽²⁾この吸着剤による固定化の方法は、本法が適当に用いられている場合には廃液を物理的に十分に吸着し、もし貯蔵ドラムが破損した時であっても、廃液が洩れ出すような事はない。先にリストアップしたほとんどの吸着剤により、廃液は物理的に吸着固定される。又、必要ならば水を添加する事により吸着された廃液を再び分離する事も可能である。

従って、本章において記述するその他の固定化法と比較した場合、吸着剤により固定化された固化体は分散しやすく、又長出性が高いと言える。故に、これらの理由のために、この吸着法は、今後の固定化処理基準に合致しなくなるであろう。

固定化の方法

パーミキュライトの場合、まず貯蔵容器にパーミキュライトを満たし、次いでその容器の体積の $\frac{1}{3}$ ~ $\frac{1}{2}$ の廃液が添加される。容器のサイズが大きくなるとチャンネリングを起こしやすくなるので、廃液の添加は容器内に付けられている分散用パイプを通して添加すべきである。またある種の吸着剤、例えばdiatomiteのような場合には吸着剤に廃液が均一に吸着されるように、廃液と吸着剤の物理的混合が必要となる。

例えば、Rocky Flatsでは、diatomiteに有機性廃液を吸着固定させる為に、ミキサ

ー・エクストルーダーを用いている。diatomite 1kgあたり2.8ℓの廃液を添加混合すると、濃厚なピーナッツ・バター状の固定化体が出る。どの吸着剤を使う場合であっても、廃液の添加しすぎによる過飽和をさけるように注意しなければならない。

技術の現状

本吸着法は、有機質の廃液および非酸性で低レベルの無機廃液の処理に関して、十分確立されている。

1 2.2.2 塩マトリックス法

塩マトリックス中へ放射性廃液を混入して固定化するために、二つの方法が研究開発されている。その第1の方法は、高塩濃度の無機廃液を蒸発濃縮する方法である。蒸発濃縮により、さらに高塩濃度に濃縮されたその廃液は、結晶性のスラリーとなり、それは冷却されることがつしりした塩ケーキとなって固定化される。長期間冷却減衰された高レベル廃液の固定化の為に開発されたハンフォードのタンク内固化プロセス (Hanford In-tank Solidification process) は、その一例である。⁽³⁾

第二の方法は、無水塩のがつしりした塊として、容器内に放射性物質を含有する熔融塩を流しこんで固定する方法である。A. I (Atomics International社) の熔融塩燃焼プロセス (第9.0章参照) はこの方法を応用したものである。⁽⁴⁾

固化体の概要とその特性

全ての中性塩は、塩マトリックス法に適用できる可能性がある。塩マトリックスは、それ自体が放射性廃棄物であることもあり、又固体廃棄物が廃棄物処理のために、特に開発された塩マトリックス中に固めこまれる場合もある。一般に塩マトリックス固化体は腐食を最小限にするために、貯蔵の期間中に考えられるいかなる温度よりもずっと高い融解あるいは液化温度特性をもたなければならない。

熔融塩は、非常に腐食性が強いものであり、従ってその腐食を防止するために通常耐腐食性の物質による特別なコンテインメントが必要である。しかし、固化された中性塩は軟鋼製あるいはステンレス製の容器に収納されており、その腐食は極めて微妙である。⁽⁵⁾ 腐食の問題から見れば少量の残存水分 (10~20 w/o) は、許容される。しかしながら、その密閉容器が加熱されたり、あるいは放射的分解により内圧上昇をもたらすことがある。

本法による固化体は、それが塩であるが故に、非常に浸出性が高い。従って、長期間にわたる封じ込めについては、困難である。しかし、逆に将来、アクチナイド族元素の回収といった面からは有利である。

塩ケーキ (塩マトリックス固化体) の機械的強度は低く問題にならないけれども、それらのがつしりと塊っているので、その収納容器が何らかの事故等で破壊したような場合でも、

放射性廃棄物の分散は、はるかに僅少である。

固定化の方法

二つの蒸発濃縮法が高塩濃度の無機質廃液を塊状の塩ケーキを作るために使用されている。第一の方法は、貯蔵容器内で放射性廃液を加熱して水分を蒸発させ、発生した蒸気をエアージャケットすることにより取り除く方法である。小容量の貯蔵容器、例えば55ガロン(200ℓ)ドラムのような場合には、外部加熱式が適当である。⁽⁶⁾ 大容量の容器の場合には、加熱空気吹き込み法、投込みヒーターのような内部加熱が必要である。

外部蒸発濃縮法は大容量の容器内で塩ケーキを作るために考えられた方法である。つまり、まず液体廃棄物は高塩濃度にするため、蒸発缶で蒸発濃縮され、次いで最終的に貯蔵すべき貯蔵容器に送り込まれ、その容器内で冷却され、結晶化が起こり固定化されるのである。結晶化以後に残った廃液は、他の廃液と共に蒸発缶に供給される。

貯蔵容器内で結晶化したその固化体の表面に残存した水分は、その容器へエアージャケットすることにより除去される。廃液中の水分を十分に減少させる(20%以下に)ために、薄膜式蒸発缶が使用される。そして、高温下では流動性のあるスラリーは、冷却されると完全に固化する。⁽⁷⁾

熔融塩流し込み法においては、独立の熔融槽が必要である。そして、その槽に塩マトリックスの為の塩成分が添加される。放射性セシウムの塩化物のカプセルを作る目的で、ハンフォードにおいて行なわれた熔融塩流し込み法のように小規模な場合には、流し込み前の熔融槽で、塩を含んだ廃液をバッチ的に乾燥状態まで蒸発するように設計することもできる。⁽⁸⁾

熔融塩は、凍結栓型バルブを通して、重力フローかあるいは加圧式か真空式移送ラインによって貯蔵容器に送られる。

技術の現状

タンク内固化法は、水を除去するために外部蒸発缶を使用する方法であるが、本法はここ数年の間長期間冷却減衰させた高放射性廃液の固化処理のために、ハンフォードで使用されている。この処理によって熱を放出する同位元素の大部分が除去されている。^(3,9) 固化された塩ケーキは、大型の地下式の鋼鉄製の貯槽群(～3,800m³)に貯蔵される。その塩ケーキの充填レベルは、熱発生量により変わるが5～7mである。

この計画は1980年代の初期に完結するが、およそ140,000m³の塩ケーキが貯蔵されることになろう。塩ケーキの代表的な組成はNaNO₃; 70～100w/o, NaNO₂; 2～10w/o, NaOH; 0～5w/o, NaAlO₂; 0～5w/o, Na₂CO₃; 2～10w/o である。又、同塩ケーキには5～10w/oと見積られている、塩で飽和され水を含んでいる。

(ii)

最近のパイロット・スケールの研究によれば、伝熱面積0.46m²の薄膜式蒸発法で60ℓ/hrの処理速度で、NaNO₃-NaNO₂から成る強アルカリの模擬廃液を含水率25w/oまで濃縮可能である

と云う事が示されている。この低水分にまで濃縮された固化中間体は、それが蒸発缶から拔出された時点では流動性であるが貯蔵容器に移され、それが室温にまで冷却されると完全に固化し、その表面に水分を見ることは出来ない。

同様の「こころみ」がサバンナ・リバーの研究所 (Savannah River Laboratory) で、同所の廃液とハンフォードのアルカリ塩廃液の模擬廃液⁽⁷⁾について行なわれた。その時のS.R.L.の処理ユニットの蒸発法の伝熱面積は 0.92 m^2 であり、廃液供給速度は、約 70 l/hr であった。

蒸発濃縮処理によるドラム缶内固化法については、ドイツ Kraftwerk ユニオンの Wurgassen 原子力発電所 (K.W.W)⁽⁹⁾で発生した放射性廃液の蒸発濃縮液について確性されている。その結果、固形分を $15\sim 20\text{ w/o}$ 含有する蒸発濃縮されたスラリーは、貯蔵ドラム缶内いっばいに固化体が生ずるまで、外部から加熱されているその 200 l のドラム缶へ、回分式に添加される。その時発生する水蒸気は、エア-ペースによって除去される。そして完成されたその固体化は $10\sim 20\text{ w/o}$ の水分を含有しているのであるが、「その量は腐食あるいは発臭、又は貯蔵期間に二次反応等が起こって危険になるような量よりは、はるかに少ない。」と云う事が報告されている。

E.B.R-2の燃料を再処理するためのANLの高温冶金法、ハンフォードの溶融塩サイクル法 (Salt-cycle process)およびORNLの溶融塩炉などの技術的協力により、溶融塩^(12,13)技術は開発がよくすすんでいる。又放射性セシウムの塩化物をカプセルにするための溶融流し込み法は、ARHCOで約1年間使用されている⁽⁸⁾。廃棄物処理のためのより直接的な適用としてA.Iは溶融塩酸化法を発表させた方法によって灰を含有する塩の $1,000\sim 1,500\text{ Kg}$ の固化体を作成している。この固化体は約 $50\text{ w/o Na}_2\text{CO}_3$ 、 $10\text{ w/o Na}_2\text{SO}_4$ 、 20 w/o NaOH と 20 w/o 灰を主成分とする。それらの固化体は、まず溶融状態でステンレス製のカートの中に流しこまれ、次いで冷却される ($M.P=720\text{ }^\circ\text{C}$) ことにより固化し、固化した廃棄物固化体はカートから投げおろされる。この方法について非放射性的の物質を用いた試験が数ヶ月間行われたが、カートの腐食は認められなかった。もし必要なら、同様な方法で小さなドラム缶内へ(直接)流し込み溶融塩固化体を作ることも可能である。

本法、つまり塩マトリックス法はハルあるいはゼオライトのような廃棄物をカプセル化するためにも、溶融流し込み法によって行うことが出来る。

主要な開発項目

本法(塩マトリックスによる固化法)によって作られた固化体が、どのくらい長期間の貯蔵に耐えうるかを確定すること。特殊な塩類、及びそのような塩を含有する廃液の固定化の為の実験及びパイロット・プラント規模の開発、塩ケーキを作る時の塩組成の最適化、マトリックスの最適化、又流し込み技術の向上等。

1 2.2.3 尿素-ホルムアルデヒド樹脂による固定化法

尿素-ホルムアルデヒド樹脂(以下U-Fと表す)は熱硬化性樹脂の成型材として広く利用されており、原子力関係では糊付テープ(adhesive)や、セメント糊(grouting material)といった形で、ルーズコンタミの固定とかしゃへい用ブロックの接着剤として利用されている。

U-F adhesiveは1971年に原子炉からの廃棄物を固化する目的でProtective Packaging会社(Nuclear Engineering Co.の子会社)によって研究開発され、1972年にはTigerlock systemとして市販され始めた。それ以後多くの会社が研究開発し、そして市販するようになり、Casco-Resin(Borden Chemical会社)、Cyanaloc chemical grouts(American Cyanamid会社)といった安くて実用になるU-F adhesiveおよびU-F groutsが生まれた。

U-F樹脂は、尿素とホルムアルデヒドの縮合化合物であり、その反応は中性あるいはアルカリ性の条件下で尿素とホルムアルデヒドの配合比によって、monomethylol urea ($\text{NH}_2 \cdot \text{CO} \cdot \text{NH} \cdot \text{CH}_2 \cdot \text{OH}$)あるいは、dimethylol urea ($\text{CH}_2 \cdot \text{OH} \cdot \text{NH} \cdot \text{CO} \cdot \text{NH} \cdot \text{CH}_2 \cdot \text{OH}$)を生じるものである。⁽¹⁴⁾ adhesiveとgrouting用としてはその樹脂は密度 $1,300 \pm 50 \text{ Kg/m}^3$ 、樹脂含量60~70 w/o、粘土200~600 c.p.の水溶性に調製される。

U-F adhesiveは製造の過程でその一部分は、弱酸性の状態下で作られるために、すでに重合してしまっている。その後その溶液は、PH=7~8に中和され、過剰の水は真空蒸留法により除去される。出来上った製品は、その保管温度によっても変るが約6ヶ月の安定性を持っている。そしてその特性は水と混和できるが、非極性の溶媒とは混合しない。この樹脂(製品: adhesive)は、熱硬化性ではあるが、通常使用する時には硬化をさらに促進させるために酸性触媒を添加する。その硬化つまり架橋重合反応は、やや発熱反応であり、又温度とPHによってコントロールできる。

通常酸性触媒としては弱酸である NaHSO_4 又はリン酸が重合反応をコントロールするために使用される。そこで典型的なadhesiveであるCyanaloc 62について、⁽¹⁵⁾ 解媒として NaHSO_4 を使用した時の温度とPHの硬化時間との関係を図12-3に示す。

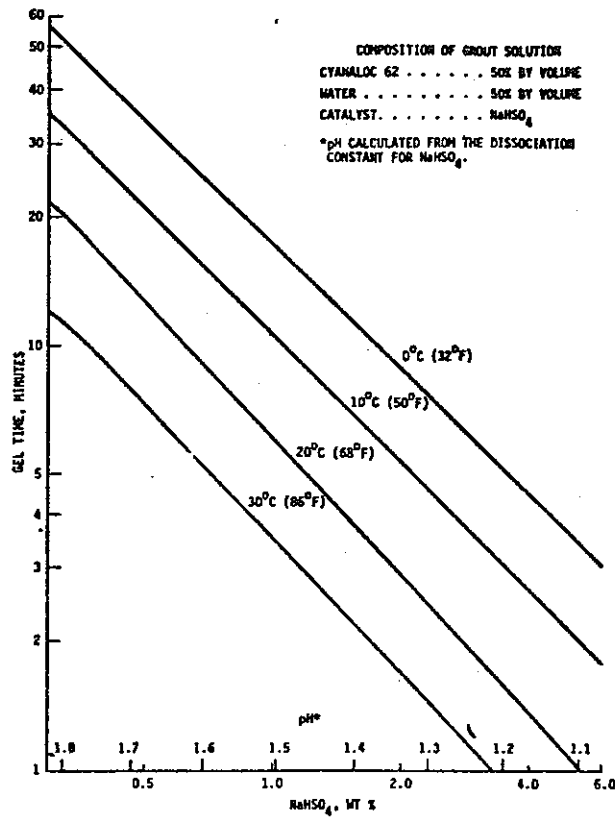


FIGURE 12-3. U-F Gel Times at Varying Catalyst Concentrations

放射性廃棄物を固化する為には、通常PHを1.5 ± 0.5に調整し、その時添加される弱酸性触媒は高濃度の溶液が用いられる。又、adhesiveは、緩衝性が強いので添加触媒量を最小にするために、一部中和された強酸であるホウ酸の薄められた溶液が、PHコントロールの助剤として使用される。

固化剤としてのU-F樹脂の機構を簡単に述べれば、U-F樹脂が重合反応によって架橋され、硬化する時にその反応自体から発生する水を含めて、廃液をその中からみ込ませることによって廃液を固定化するものである。酸性触媒を使用するために固化体内に包含された水分は弱酸性であり、従って腐食性は中程度である。又、固化体を大気中に放置した場合、その表面から水分が蒸発してゆくため、時としてその体積が若干減少することがある。又、U-F樹脂によって固定された固化体は、その中に含有されている水分が多いため不燃性である。

固化体の概要とその特性

無機質廃液は、U-F樹脂と混合される。その割合は体積比でU-F樹脂1に対して1～3である。次いで、重合-固化反応を開始させるために、触媒として通常飽和NaHSO₄溶液が約2～3%添加される。PH = 1～2にするために添加する最適な酸性触媒の量は、各々

の廃液毎に決定されなければならない。

弱酸を使用する理由は、もし過剰の強酸を添加すると急激な重合-固化が起こるので、その事をさける為である。触媒が添加されると1~2分以内でゲル化(重合-固化)が始まり、一般的に30分以内で廃液はうまく固化される。さらに適当な硬さになるまで数時間、まだ十分固化されていない固化体は、その内部で重合-固化反応が続けられ、その間に、しばしば弱酸性の水が固化体内から外部へ放出される。それで廃液が完全にゲル化(固化)された後に放出されたその水を吸着させる為に、ポルトランド・セメントあるいはその他の吸着剤が、しばしばその廃液を固化した容器内へ添加される。そして出来上った固化体の密度は、処理された廃液量によって変るが、通常 $1,000\sim 1,300\text{ Kg/m}^3$ の間である。

U-F樹脂はフィルター・スラッジや廃イオン交換樹脂のような固体廃棄物をカプセル化するためにも使用される。そのような固体廃棄物は、一般に取扱い性及び減量効果を良くするために、まず少量の廃液を加えてスラリー状にし、それからU-F樹脂と混合し固化される。ごく一般的にその時のU-F樹脂とスラリーの混合比は、体積比で7:4~6である。U-F樹脂とスラリー液から作られた固化体は、その中に固定化された固体粒子間に多量のポイド(気孔)があるために、場合によっては若干体積が増加することがある。

石けん水あるいは高濃度の Na_2SO_4 を含有するようなある種の廃液は、U-F樹脂による固定化は困難である。それで、含 Na_2SO_4 廃液の場合には、まず Na_2SO_4 の濃度を10w/o以下に希釈してから新しいU-F樹脂で処理するか、又は CaCl_2 を添加し、過剰の Na_2SO_4 ^(16,17)を沈殿させてからU-F樹脂で処理することによって良好な固化体を得ることが出来る。

いろいろな助剤がU-F樹脂による固化体の機械的強度、あるいは浸出率を改善するために添加されている。漂白された紙パルプ(α -セルロース)や木の粉末は、機械的強度を増すためによく、U-F樹脂成型に用いられる。

セシウムの浸出率を低くするために、セメント糊に種々の粘土類が添加されるが、同様の目的でU-F樹脂による固定処理にも添加使用されている。⁽¹⁸⁾

本法により固定化処理された廃棄物の固化体の特性は、U-F樹脂と混合された廃液又は、固体廃棄物の量によって変ってくる。詳細な情報は大変すくない。一般的に本法による固化体の強度及び浸出率は、その時処理した廃液の量に対して加えたU-F樹脂が多い程、それぞれ減少し増大する。⁽¹⁹⁾

一般にその妥協点として、体積比でU-F樹脂1に対して廃液2~1が良いとされている。大気開放型の処理システムの場合には、そこで出来た固化体は、その表面から水分がどんどん蒸発して失われて行く。この固化体のある程度の乾燥では、固化体の機械的形狀に影響を与えないが、もし完全に脱水された場合には、その固化体はもろく砕けやすくなるだろう。

固定化の方法

U-F樹脂による廃棄物の固化の処理システムは、セメントによる方法と類似している。一般に適当量のU-F樹脂と中和された（PH=5~8に）廃棄物が、まずミキサーで混合され、次いでPH=1.5にするために十分な量の触媒が添加される。

廃棄物とU-F樹脂は貯蔵容器内で回分式に混合されるか、あるいは図12-4に示すような連続システムで、前もってミキサーで混合されてから貯蔵容器に入れられる。

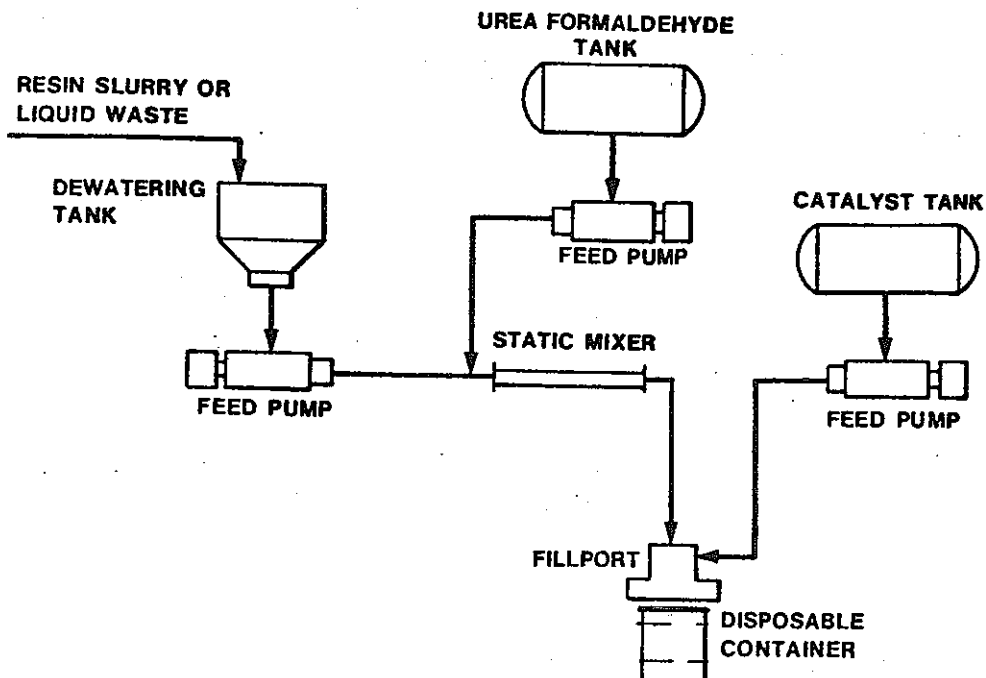


FIGURE 12-4. Urea-Formaldehyde Radwaste Solidification System (United Nuclear Industries, Inc.)

後者の場合には触媒はU-F樹脂と廃棄物（廃液）の混合体が貯蔵容器に入れられる時に添加される。図12-4では廃棄物（廃液）とU-F樹脂の混合のために、スタティックインライン・ミキサーが使用されている。又そのインライン・ミキサーへは、フラッシュ水が自動的に供給されてU-F樹脂と混合されるようになっており、それは貯蔵ドラム内で廃棄物と共に固化される。

技術の現状

現在、原子炉及びその他の核燃料サイクルの各所から発生してくる放射性廃棄物や放射性廃液を固定化処理するために、U-F樹脂を使用する本法は十分に確立されており、アメリカにおいては広く使用されている。
(20, 21, 22)

主要な開発項目

U-F樹脂固化処理プロセスは、ある民間工業の特定処理法として開発されたものである。従って、その生成固化体の特性あるいは、その製造技術の詳細な情報は限られている。故に

U-F樹脂による固定化の方法等について、現在もおお開発研究等がなされている。

その一つは、U-F樹脂の製造会社で行なわれている現在のU-F樹脂の応用範囲をさらに拡大するための主として、今まで扱われていない新しい廃棄物に対するU-F樹脂による固化技術の開発であり、もう一つは機械的強度及び浸出性を改善するためのU-F樹脂そのものの新しい製造法に関する試験研究である。従って、U-F樹脂による固化体に関するデータのより多くの蓄積とその発表が原子力工業における本法の最適な利用を確立するために必要であろう。

1 2.2.4 セメント又はコンクリート固化法

長い年月の間添加剤を加えたり、あるいは使用しないでセメント又はコンクリートによる放射性廃棄物を固定化する方法が、ごく一般的な方法としてこれまで実施されてきた。

本法を使用してきた2つの主な理由は、廃棄物の移送および貯蔵に簡単であること。又、環境へ放射性核種が浸出する可能性を減少させる事が出来るためである。

セメント及びコンクリートの化学的、物理的特性はよく解明されており、建造物の素材として数十年の間使用されてきた。又、セメントは、現在いつでもすぐに利用出来るし、その価格は比較的廉価である。しかしながら、放射性廃棄物のセメントによる固化体の種々の効果についての知識は今も不十分であり、セメント固化による固化処理の最適化のために、これからもしばしば試験研究が必要であろう。

「セメント」という言葉は、いろいろな接着剤に対して使われる語であるが、ここでは水硬性のいわゆるセメントについてのみその適用を限定する。このセメントは、水の存在で硬化し、その成分は主としてケイ酸カルシウムとアルミン酸カルシウムである。高放射性以外の廃棄物を固化するのに最も一般的に使用されているセメントは、アルミナを多く含んでいるポルトランド・セメントであり、又ボゾラン・セメントも使用される。(ボゾランとは、主としてケイ酸分とアルミナから成り、それは常温で水の存在下で石灰と反応してセメント状の化合物を生成する物質である。)ポルトランド・セメントの真の密度は約 $3,100 \text{ Kg/m}^3$ であるが、粉体状のいわゆるセメントのかさ密度は約 $1,500 \text{ Kg/m}^3$ である。典型的なポルトランド・セメント及び高アルミナ含有セメントの組成を表 1 2 - 4 に示す。⁽²³⁾

TABLE 12-4. Typical Cement Compositions

	Oxide Analysis, wt%			
	Portland Cements			Lumnite Cement (High Alumina)
	Type I (a)	Type II (b)	Type III (c)	
CaO	64	63	65	37
SiO ₂	21	22	20	9.6
Al ₂ O ₃	6.5	5	5.5	41
Fe ₂ O ₃	2.5	4	3	4.9
FeO	--	--	--	5.6
MgO	2.5	3	2.3	1.0
SO ₃	2.1	1.5	2.5	0.2

(a) Standard portland cement

(b) Sulfate resistant, less reactive and slower setting

(c) High early strength (ground to high fineness)

現在もなお、セメントがどのようなメカニズムによってセッティング（固化）するのか、その定説は無い。まず第一段階として、セメントの成分と水が反応し、次いで固体粒子の表面で局部的に水和物の溶液が生成される。第二段階には、酸性ケイ酸カルシウム、水酸化アルミニウムと水酸化鉄の結晶化が起こる。そして、その結晶化の時に、それらの化合物の結晶がたがいにからみ合い組み合わされて、その固まったセメントに機械的強度が与えられるのだらうと考えられている。セメントはコンクリートを作るために、通常不活性な混合材を使用する。そして、その混合材の種類によって出来上がったコンクリートの強度が大きく左右される。

濃縮した廃液あるいはスラッジを加えて作られたセメントのブロック（つまり、放射性廃棄物のセメント固化体）の強度は、一般に普通のコンクリートより小さい。セメントの強度は、特に添加した廃液中および、そのセメント・ブロック中の全塩含有量によって左右される。又、最終生成物中のアルカリ性酸化物と酸性の酸化物との比は（強度等を最上にするためには）かなり狭い範囲におさめなければならない。

例えば廃液中の成分によって、その比が極端に小さくなるとセメント・ブロックの強度がかなり低くなる。機械的強度の低いセメント固化体は、クラックを生じたり、あるいは割れが生じたりする。このことは、浸出に寄与する表面積が増加することになるので好ましくない。

固化体の概要とその特性

セメントと廃棄物との最適比は、その処理される廃棄物の種類によってかわる。固化体中の最大廃棄物含有量は、一般的に固体廃棄物では75 w/oであり、無機質の廃液やスラリーの場合には33 w/oである。セメントには、混和するための最少限の水が必要である。

セメントに対する水の最小必要量は、重量比で高アルミナ含有セメント、ポルランド・セメント^(24, 25)について、それぞれ0.22および0.25である。ある種の固体廃棄物（例えば、鉄やアルミニウムの水酸化物のスラッジ、フィルター・スラッジ、ゼオライトとか、廃イオン交換樹脂）の中には水を多量に吸収したり保有するものがある。そのような固体廃棄物を固化処理する場合には、それらの固体廃棄物がセメントをねるために加えられた水を吸収し、乾燥したような状態になり混合が出来なくなるので、それに見合った量の水を加えてやらなければならない。逆に過剰に水が加えられた場合には、その余分の水は固化体の表面に遊離し水層を形成することになる。このような場合、水分を出来るだけ固化するためにパーミキュライトのような吸着剤をセメントに添加してやるとよい。吸着剤を加えない場合のポルランド・セメントに対する最大添加水量は、重量比で約0.5である。

パーミキュライト、珪藻土、あるいは類似の吸着剤を添加する場合には、セメントに対する最大添加水量は重量比で0.7～1.1と高くすることが出来る。廃溶媒も分散剤を加えることによつて少量（つつ）ではあるが、セメントで固化処理することが出来る。15%以上の分散された廃溶媒を含有する濃廃液がノルウエーのKjeller⁽¹⁸⁾において固化されている。

パーミキュライトに吸着された少量の廃溶媒もセメントで固化処理出来る。

表12・5の文献に報告されたセメントによる廃棄物の固化法の実施例を示す。

TABLE 12-5. Typical Cement - Radwaste Formulations

Solutions and Slurries:

<u>Waste Type</u>	<u>Weight Ratio, Waste Constituent/Cement</u>		<u>References</u>
	<u>Dry Waste Salt</u>	<u>Total Water</u>	
25 wt% Na ₂ SO ₄	0.12	0.37	16
70 wt% NaNO ₃ slurry	0.52	0.22	24,25
30 wt% NaNO ₃ solution	0.15	0.35	24,25
Neutralized HNO ₃ -Al(NO ₃) ₃	0.37	0.37	26
20-25% water treatment sludge ^(a)	0.09-0.17	0.27-0.51	26
30-40% evaporator sludge	0.28-0.35	0.42-0.53	18
Conc. BWR reactor waste ^(b)	0.17	0.51	27
400 g/l evaporator concentrate	0.33 ^(c)	0.70	26

Solids and Wet Sludges:

<u>Waste Type</u>	<u>Weight Ratio, Waste Constituent/Cement</u>				<u>Wt% Water in Wet Sludge</u>	<u>References</u>
	<u>Dry Solid Basis</u>		<u>Wet Solid Basis</u>			
	<u>Solid</u>	<u>Water</u>	<u>Solid</u>	<u>Water</u>		
Acid digestion process residue	0.12	0.37	--	--	--	28
Al ₂ O ₃ -ZrO ₂ calcine	2.4	0.25	--	--	--	24,25
Fly ash	0.33	0.30	--	--	--	24,25
Fe/Al hydroxide sludge	3.1	2.0	4.9	0.22	58	24,25
Diatomaceous earth	0.42	1.1	1.3	0.25	67	24,25
Linde AW-500 zeolite	1.21	1.0	2.0	0.23	39	24,25
Amberlite 200 cation resin	0.83	1.1	1.7	0.23	~50	24,25
BWR bead resins, recommended ^(d)	0.25	0.56	0.51	0.31	50	27
BWR bead resins, range ^(d)	0.25-1.0	0.45-1.3	--	--	50	27
BWR filter sludge, recommended ^(e)	0.26	1.19	0.51	0.94	50	27
BWR filter sludge, range ^(e)	0.04-0.28	0.48-1.3	--	--	50	27

(a) Miscellaneous flocculating and scavenging agents

(b) Assumed to be ~25% Na₂SO₄

(c) Plus 0.13 kg of vermiculite/kg cement

(d) Preneutralized with NaOH to prevent swelling and crumbling

(e) Cellulose fiber filter aid, powdered resins, etc.

多くの場合、初期のデータは体積を基準にして与えられていたが、適当な密度を仮定して一般的な重量比基準に交換されている。廃液中の溶質量、あるいはスラリー中のそれが重量比で、セメントに対して約 0.5 以上でも固化処理出来る事がデータからわかる。一般的には、その比は 0.15 ~ 0.3 である。主として、含水量によって変化するが生成された固化体の密度の範囲は約 1,500 ~ 2,000 Kg/m³ である。

セメント又はコンクリート固化を行う場合には、廃棄物に含まれる成分とセメントとが相互作用を起こす可能性があるために、それぞれの廃棄物について検討がなされなければならない。そのような相互作用の一つとして考えるべき事は、セメント(マトリックス)のセッティング(硬化)におよぼす影響があげられる。つまりセッティングは、廃液中の成分によって全然影響を受けないか加速されるか、又は減速されるかである。

水酸化物を含有するスラッジの場合には、セメントの硬化が促進されその結果、固化処理工程中の装置の中でセメントが硬化してしまいような不都合が生じる事になる。逆にホウ酸は、ポルランド・セメントの硬化を抑制するので、もし十分過剰に加えられるとそのセメントは硬化しなくなる。

セメントと廃棄物との間に起こる相互作用の度合は、廃棄物に含まれている相互作用をする成分とそういった成分を含む廃棄物の添加の方法(例えば、溶液中に含まれる塩として添加されるか、あるいは反対に固体塩として添加、混合の仕方等)によって変わってくる。このセメント固化法における硬化特性や減容効果を改善するために、特別な添加剤が使用されることがある。処理廃液に、その体積の約 10% の濃縮液状のケイ酸ナトリウム溶液(Nタイプと呼ばれている)を加えることにより、そのような目的が得られることがわかっている(16,17)。又、ケイ酸ナトリウムは、ホウ酸を含有する廃液をうまく硬化させるばかりでなく、原子炉からの濃縮廃液を固化する場合に普通のセメント固化法で、その時の体積増大係数を約 2 から約 1.4 に下げる働きもある。

典型的なセメント固化法である United Nuclear Industries Inc (略称 U.N.I.) で開発された方法(その特許はベンディングになっている)を、表 12・6 に示す。

TABLE 12-6. Formulations for Solidifying Radwastes with Portland Cement - Sodium Silicate

Waste Type	Weight Ratio of Waste to Solidifying Agents		Volume Increase Factor	
	Dry Waste	Total (a) Water	With Silicate	Without Silicate
Bead resins (50 wt% water)	0.77	1.1	1.04	1.00
Powdered resin sludge (50 wt% water)	0.81	1.3	1.03	1.19
Diatomaceous earth (60 wt% water)	0.54	2.1	0.77	1.54
10 wt% boric acid	0.11	0.99	1.46	1.92 ^(b)
25 wt% Na ₂ SO ₄	0.46	1.4	1.33	1.92

(a) Excludes water added with sodium silicate solution.

(b) Free water is absorbed at this formulation, but the cement remains soft.

Cementitious grouts have been used for the disposal of intermediate level wastes in the Hydrofracture Facility at ORNL for about eight years. (29) The grout is made by combining the desired volume of waste solutions with a dry mixture consisting of the following components:

	wt%
Portland cement, Type I	38.5
Fly ash (a pozzolan-to improve strontium retention)	38.5
Attapulgate-150 (a drilling clay-to suspend the cement)	15.4
Grundite (an illite clay with a high affinity for cesium)	7.7

添加剤としてケイ酸ナトリウムを使用して作られた固化体の密度は、1,300~1,500 Kg/m³ の範囲である。このケイ酸ナトリウムを使用しての固化法は、その固化体の体積を最小にするものであって、その機械的強度を高めるために考案されたものではない。

ORNLのHydrofracture Facility(水圧試験施設)で、中レベルの廃棄物の処分のために、約8年間セメント・グルート(grout)固化体が使用されている。(29)

そのグルート固化体は以下に示すような各成分からなる乾燥状態(dry mix)の混合物と廃液の、ある一定量をまぜ合わせることによって作られた。

ポルトランド・セメント (タイプ1型)	38.5 w/o
粉末状の灰 (Srの保持力を改善するための火山灰)	38.5 w/o
Attapulgate-150 (セメントを浮遊させるための、 穴のあいた粘土)	15.4 "
Grundite (セシウムと高親和力のある illite 粘土)	7.7 "

又、少量のδ-グルコリ・ラクトン(硬化速度を抑制させるため)とT.B.P.(混合させる時の発泡を防ぐため)を添加する。

最終的に出来上った固化体は、約40w/oのドライミックス(上記の乾燥混合物質)、6w/oの中和塩と54w/oの水から成っている。又、この固化体の密度は約 $1,400\text{Kg}/\text{m}^3$ であつて、体積は先に述べた添加剤を使用しないセメント固化体の約1.3倍である。さらにその圧縮強度は $14\sim 20\text{Kg}/\text{m}^2$ であり、これは在来のセメントによる廃棄物固化体のそれの約 $\frac{1}{3}\sim \frac{1}{10}$ である⁽¹⁸⁾。そして、F.P.の浸出率は鉍物性の添加剤が加えられているので改善され、ホウケイ酸ガラス固化体のそれに匹敵する。

セメント固化体は、セメントが硬化熟成される時に生ずる多くの気孔の故に、open-cell構造である。そのため、セメント固化体は水の浸透が大であり、浸出および置換反応により固化体内に封じこめた放射性核種の洩れ出しが大きい。ある種の同位元素は、その他の元素に比べてセメント・マトリックス内にしっかりと固定されるので、それらの浸出はすくない。つまりSr、希土類元素、PuおよびAmは、強固にセメント・マトリックスと結合している。Csは、その逆である。

従つてベンナイトとかグラナタイトのような、ある種の粘土がセメントのCsに対する保持力を改善するために添加される⁽¹⁸⁾。種々の放射性元素のトレーサーによつて、セメント固化体からのそれらの元素の浸出速度を測定してみると $2\times 10^{-9}\sim 0.1\text{g}/\text{cm}^2\text{-day}$ の範囲である。その違いは使用したトレーサー、廃液の種類および、その廃液を固化体に成形する方法等によるものである^(30, 31)。

アスファルトのようなある種のコーティング剤が、セメント固化体内に生じた多数の細孔をおおつたり、あるいはそれを充填するのに利用される。その結果、浸出速度は低下する。ごく最近、Brookhaven National Laboratoryで、スチレン・モノマーによるセメント内の細孔を充填するための浸漬技術が開発された。そのスチレン・モノマーは、 $50\sim 70^\circ\text{C}$ に加熱されることにより重合される^(24, 25)。その結果出来上ったコンクリート(固化体)は、「ポリマー・充填コンクリート(略称PIC)」と呼ばれ、機械的強度、耐久性、および耐薬品性が改善され本質的に不浸透性となる。

スチレンがPIC開発のために選ばれた理由はスチレンの粘度が低く、したがつて細孔の充填性に優れ、かつその重合体は優れた耐放射能性を持っているからである。この浸漬充填は、コンクリートが硬化熟成された後で行なわれる。セメントの硬化熟成時間は、アルミナ含有の多いポルトランド・セメントタイプIIIや他のセメントの大型成型品の場合には約24hrである。

スチレン・モノマーは、水圧で混合槽の上部のポートあるいは、その底部から流入される。浸漬充填時間は、その方法にもよるが2~3hrを要し、その結果スチレン・モノマーはコンクリートにその重量の5~15w/o含浸される。

モノマー中の約0.5w/oの過酸化ベンゾールあるいは、AIBN[2,2-アゾビス-(2-

メチル・プロピオンナイトリル)の略称]により、50～70°Cに加温された状態で数時間で重合され、スチレン・ポリマーとなる。この重合反応がうまく進むように、触媒の量とか反応温度がコントロールされる。こうして出来たP I Cの浸出率は、同じ条件での一般的な方法による廃棄物のセメント固化体の $\frac{1}{100}$ 以下となり、圧縮強度は3～10倍になる。この固化体は不燃性であるが、スチレン・ポリマーは約250°Cで熱分解を始める。

セメントの耐放射能については抜群である。30w/o以上のNaNO₃を含有するセメント固化体は、10⁹ラドの集積線量(⁶⁰Coのγ線による)によっても機械的強度、浸出性共になんの低下も起こらない。水とか硝酸塩とか、その他の放射線に対して不安定な化合物が存在するとガス状の放射性物質が作り出される場合があるが、それらのガスはセメント・マトリックス内に存在する多くの細孔の中に吸収されてしまい外部へは出てこないで、たいした問題とはならない。

固定化の方法

セメントに放射性廃棄物を封じ込めるための固定化の方法は、以下に述べる3つの大きなカテゴリーに分類される。すなわち、①混合しない方法、②ドラム内混合法、と③外部混合法の3種である。

混合しない方法

典型的な混合比として、セメント1に対して重量比でパーミキュライト8～10といったセメントとある適量の軽量の吸着剤とをあらかじめ混合しておき、廃液を添加する。するとパーミキュライトが膨潤し多孔質になり、その細孔の中にセメントが入りこむ。^(18, 25)

パーミキュライトは、スポンジのように廃液を吸収し、その結果セメントが反応するためのより増大した表面積を提供することになる。この方法のために推奨されている廃液のセメントに対する重量比は、約0.5であり廃液は均一に分散されなければならない。

ドラム内混合法

この技術(方法)を簡単に述べれば、ミキシング・ウエート(小石あるいは半レンガ状の塊)を所要量のセメントと共に収納用ドラムに添加する方法であると言えよう。次いで、あらかじめきめられた量の廃棄物スラリーが添加され、そのドラムの栓が閉められる。それから、そのドラムはタンブラーあるいはローリング・マシンにかけられ、そこでドラム内の廃棄物とセメントが十分に混合攪拌されるのである。

以上のようなシステムの概要のダイヤグラムを表12・5に示す。

もう一つのシステム(方法)では、外部攪拌器をドラム内に廃棄物(廃液)とセメントを流入しているときからか、あるいは流入が終了してからそれらを混合攪拌するためにさげおろして、ドラム内でミキシングする方法である。

B.W.Rからの廃棄物を処理するために設計されたドラム内混合法の装置を図12-6に示す。

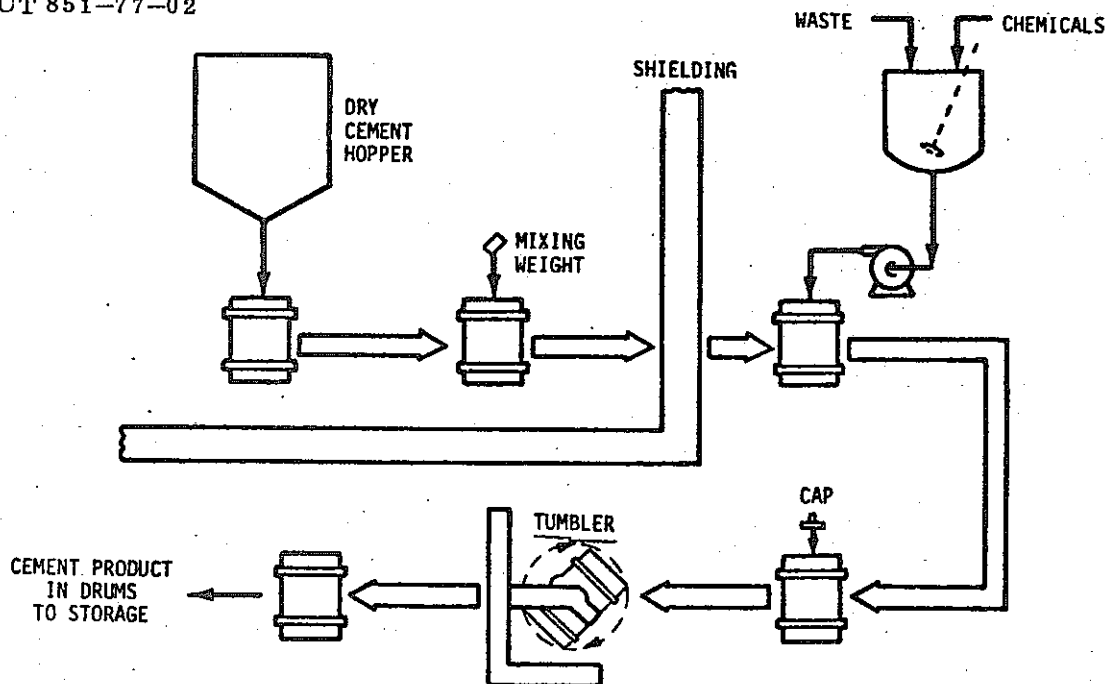


FIGURE 12-5. Drum Tumbling Mixing Process for Incorporating Waste in Cement

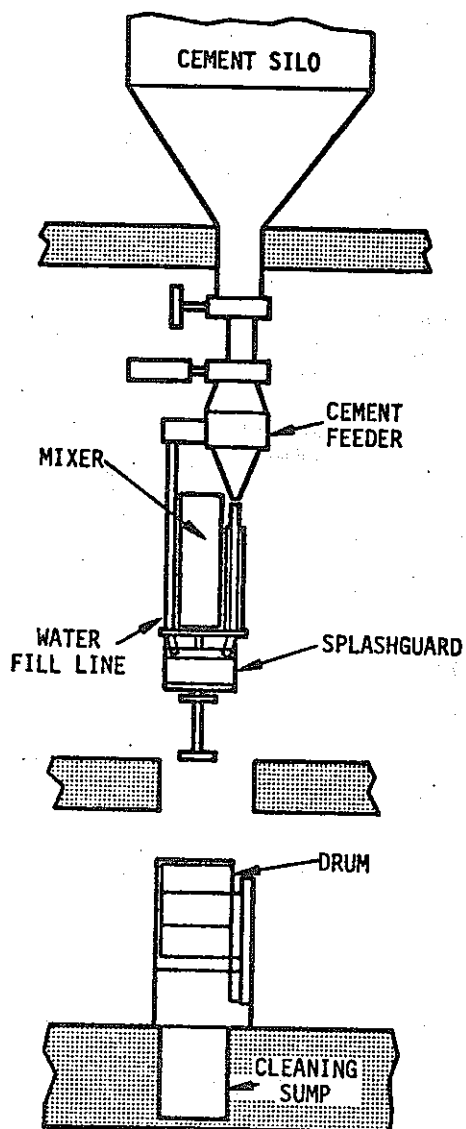


FIGURE 12-6. In-Drum Mixer Station

外部混合法

連続式のインライン・ミキサーとごく一般的な回分式のセメント・ミキサーの両方が使用される。それから廃棄物とセメントの混合物はドラムに入れられる。しかし、ホールド・アップ・ボリュームが小さく、かつ洗浄が簡単であるといった理由からインライン・ブレンダー（ミキサー）の方がよく使用されている。

インライン・ミキサーとしては、Ribbon-Mixer、Pug-millsとか、open-throat Mayno type positive displacement ポンプといったいろいろな型のもが使用されている。一般的には、ある定められた割合の水と固体廃棄物によってあらかじめ調製された廃棄物スラリーとセメントが、ある決められた速度で同時にミキサーに供給される。そして、ミキサーで混合された廃棄物とセメントの混合体は、直接貯蔵ドラムに流入される。貯蔵ドラムへの装荷が終ると、ミキサーは水でフラッシングされる。必要に応じてそのフラッシュ水は、分離タンクへ送ることが可能であり、それは次のバッチの廃棄物スラリーを作るために使用される。

UNIにより開発されたケイ酸ナトリウムを使用する方法の典型的な本法のシステムを図12・7に示す。

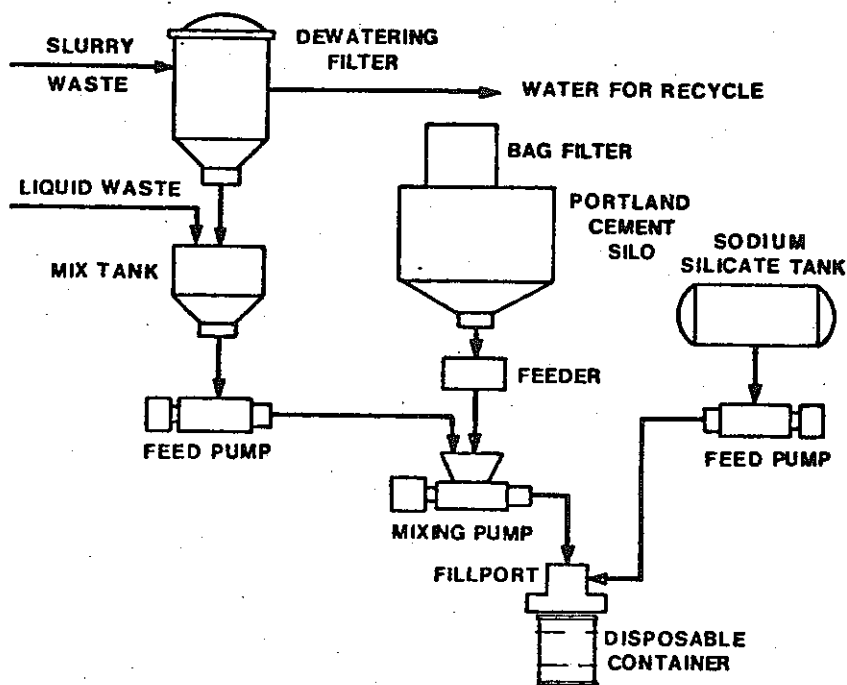


FIGURE 12-7. In-Line Mixing System for Portland Cement With Sodium Silicate Additive (United Nuclear Industries, Inc.)

以上に述べた種々のセメント固化技術は、一般に廃液、スラリー、粒状固体廃棄物の処理に使用されるものであるが、なおセメント固化技術は、より大きな固体廃棄物である廃棄処分された装置、ハル、その他一般的なくずといったものをカプセル化するためにも使用可能である。

なお、「くず」のようにぎっしり詰めることが可能な固体廃棄物の場合には、それをずたずたに切りきざんだりぎっしりと湿状セメントの中に詰め込むことによって、より改善された減容効果を得ることが出来る。

後者の技術は Aldermaston や Harwell, U.K. で採用されている。

技術の現状

現在セメント固化法は、燃料サイクルの各所から発生する高レベル以外の全てのタイプの廃棄物を固化したり、あるいはカプセル化するために、実際に世界各国で広く用いられている。そして、多くの会社が原子炉あるいは、その他の原子力関係の施設から発生する廃液やスラッジの処理のために特注品も含めて、“total rad waste solidification system”（全廃棄物・セメント固化処理システム）を供給している。

又、UN I が開発したボルトランド・セメントとケイ酸ナトリウムによる廃棄物固化処理システムが5つの公益事業会社によって発注されているが、このシステムは現在のところまだ商業的ベースでは使用されていない。

セメント固化処理は、原子力界で種々の錯化合物が使用されるようになってきたので、さらに特殊なセメント固化を必要とするいろいろな新しい廃棄物処理に関する実験室的試験研究が行なわれている。

主要な開発項目

セメント固化技術は、現在までにかなり開発されているが機械的強度をさらに高めるため、浸出率をより小さくするため、あるいは減容効果をもっと高めると云った分野、又さらに改善された処理システムの開発のために改良、開発が今も続けられている。そして、これらの各分野での開発努力がセメント固化処理技術以外の固化処理技術との競争に打ち勝つために今後も続けられることであろう。放射性廃棄物のセメント固化処理のためのポリマー注入技術は、今も実験室的段階である。つまりこの技術に関しては、大型（つまり、直径30 cm以上の）コンクリート成型のポリマー注入法の確性と最適化のための多くの研究開発が残されている。

一般に、ある一つの新しい廃棄物のセメント固化処理のための装置の設計とプロセスの最適化には、そのための努力程度とか固化処理すべきその廃棄物の種々の特性、あるいは成型される大きさ等いろいろな問題によって変わるが、6ヶ月から2年の歳月を必要とする。

1 2.2.5 ビチューメン（アスファルト）固化処理

アスファルト及びビチューメンは、天然の地層で発見される高分子量の炭化水素の混合物に対して用いられる同義語であるが、これらは、石油又はコールタールの精製の残留物として得られる。アスファルトは、低及び中レベルの放射性廃棄物を固化するすぐれた性質を持っている。そしてアスファルトは、化学的に不活性で水に不溶性であり被覆性にすぐれており、さらに適度の柔軟性と弾性を持っている。アスファルトは、これらの性質により外国の原子力施設において数々の利用が行なわれているが、米国におけるアスファルトの利用は、研究室及びパイロットプラント規模の開発研究にかぎられている。^(18, 26, 32-44)

数種のアスファルトが使用されており、それらは次の2種より得られる。

- 石油の直接蒸留
- 石油の空気吹き込み酸化（ブロンアスファルト）
- 重油の分留（クラックトアスファルト）

直接蒸留のアスファルトが、もつとも広く使われている。ブロンアスファルトは、耐放射線性にはすぐれているが、発火温度が低いという問題もある。アスファルトは、水とエマルジョンを形成するので、それは廃棄物とアスファルトの初期の混合の際に有益である。アスファルトは、天然の生成物なのでバッチ毎変えることができ、不利な効果は軟化点、引火点、柔軟性及び硬さなどのような物理的性質に依存する種々の等級で製造される製品を使用することで減少させることができる。

廃棄物アスファルト固化工程の運転温度範囲は、150～230℃であり、ガラス固化工程のそれよりは著しく低い。しかしながら、セメント固化及び尿素ホルムアルデヒド固化と比較すれば、この高い温度は不利である。しかしこの高い温度により、廃棄物中に含まれている大部分の水は蒸発され、貯蔵する廃棄物の容積は十分に減少させられる。

しかしながら、処理に伴って発生する凝縮液は、放出前に処理を必要とする余分の低いレベルの液体廃棄物として取り扱わなければならない。

アスファルト固化方法とその固化体の性質

アスファルト固化は、中和済みの蒸発濃縮液、スラッジ、イオン交換樹脂及び鉍物、焼却灰、砂、パーミキュライトなどを含む広範囲の廃棄物の固形分を固化するのに用いられる。⁽¹⁸⁾

一般に、実用上十分な機械的強度と低浸出率を満足するアスファルト固化体は、40～60w%の固形分を含んでいる。TBPは、微細な粘土、コロイド状のシリカ及びカーボンブラックを37～40w%の濃度で添加することによって、25w%までアスファルト中に混入させることができる。⁽⁴³⁾イオン交換樹脂は、アスファルトに混ぜ合わすことができるが、高温のアスファルトを混合させると過剰のあわ立ちを生ずる傾向にある。またアスファルト中に存在する硝酸塩形の陰イオン交換樹脂は、貯蔵中に分解する。それ故に樹脂は、アスファルト固化

するよりも焼却処理する方が好ましい。

アスファルトは、廃棄物に対する被覆材及びシール材としてもまた使用出来る。AERE, Harwell, U.K.は、製品貯蔵用ドラム缶内に収納された廃棄物の上に高温のアスファルトとスラッジの混合物を流し込むことによつて、アスファルト中にプラスチック廃棄物を50 w%⁽¹⁸⁾まで混入出来ることを実証している。この技術は、他の固体廃棄物を被覆するのにもまた使用出来る。

アスファルト固化体は、一般に軟鋼に対して非腐食性である。バクテリアによるアスファルトの浸食は、長い期間の試験が必要であるが、ほとんど問題はない。

アスファルト固化体の熱に対する安定性は、温度を調節出来る雰囲気⁽⁴⁶⁻⁵²⁾に置かれた場合、良好で、適度の温度ではよいが(やわらかくなる程度)、高温では好ましくない(アスファルトが発火する)。塩のあるものは、この固化体の性質に不利な効果を与える。それ故に、幅広い研究が硝酸塩及び亜硝酸塩に関して行なわれている。なぜならば、これらの塩を多量に混合すること及び、それらの塩の酸化剤としての性質により、火災事故の危険性が増すからである。硝酸ナトリウム及び亜硝酸ナトリウムを40~75 w%含むアスファルトの発火温度は、硝酸塩に対して約330°Cであり、亜硝酸塩に対しては約275°Cである。アスファルトそのものは、450°Cまでは、発火しない。⁽⁴³⁾アスファルトは、燃焼中に発生する温度で分解する酸化性化合物(例えば NaNO_3 , NaNO_2 , MnO_2)の適当量が存在するときは、はげしく燃焼する。⁽⁴⁶⁻⁵²⁾硝酸ナトリウム及びその他の塩、特に鉄及びアルミニウム化合物は、過剰の硬化をもたらす。鉄及びアルミニウム塩によつてもたらされる硬化は、アスファルト固化に先だつて廃棄物を中和することにより低下させることが出来る。硼酸は、揮発を防止するために、アスファルトに混合する前に中和しなければならない。しかしながら水酸化ナトリウムは、硬化の問題をさけるために、テトラ硼酸塩($\text{Na/B}=0.5$)よりもむしろメタ硼酸塩($\text{Na/B}=1$)⁽⁴³⁾を形成するように添加しなければならない。硝酸ナトリウムの硬化効果は、230°Cにおける加熱時間に比例する。それ故に低温アスファルトの使用、またはより短い滞留時間をもつ処理方法の選択(例えばスクリュウ型エクスルーダ)によつて、その硬化は最小限にすることが出来る。

アスファルト固化体は、アクチナイドトレーサの結果からは、 $10^{-3} \sim 10^{-7} \text{ g/cm}^2\text{-day}$ の浸出率があり、アルカリ及びアルカリ類のトレーサーによる浸出率は、その1,000倍である。セシウムの浸出率は、アスファルトにGrundite(illite clayの商品名)及びメタ珪酸ナトリウムをそれぞれ2 w%混ぜることによつてその係数を2~10下げることが出来る。⁽⁵³⁾共沈剤の添加及び水酸化物を生成さすための中和は、また浸出率を低下さすうえで有効である。塩に対する浸出率は、結晶の大きさとともに直線的に増加し、塩の量及び残留水(通常1%以下)にも影響される。貯蔵温度は、塩とアスファルトの分離をさけるために

60°C以下に保つべきである。

アスファルト固化体の耐放射線性は、約 10^9 ラドまで良好であるが、それぞれの廃棄物に対して評価すべきである。放射線損傷は、水素、メタン、炭酸ガス、一酸化炭素の発生によって生ずるスエリング（多孔性に乏しい製品に対して 10^9 ラドで70%の体積増加）によって特徴づけられる。潜在的なスエリングを調節するために貯蔵容器は、完全に満たさない状態にしておく（一般に80~90%まで）とよい。放射線分解で生成したある種のガスは、高い燃焼性があり、ある貯蔵条件下で爆発の問題を残すことになる。

固化処理法

アスファルト固化の工程は、バッチ及び連続の両工程が用いられる。バッチの工程は、一般に220~230°C温度で運転され、一方連続の工程は160~180°Cの温度で運転される。大部分の処理法において低融点のろう又は、ポリエチレン又はポリプロピレンのようなプラスチックをアスファルトの代りに用いることが出来る。^(43, 44)

図・12・8に示したアスファルトに廃棄物を固化するためのバッチ式攪拌蒸発プロセス（Elirred-evaporator batch process）は、ベルギーのモルにあるベルギー原子力センター（CEN）及び、英国のハウエルで開発された。^(18, 32-35) ^(18, 32, 54)

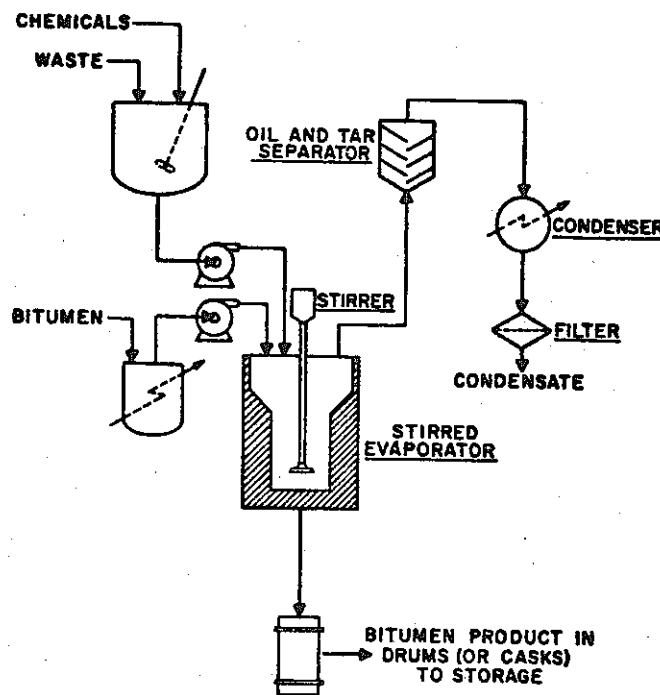


FIGURE 12-8. Stirred-Evaporator Batch Process for Incorporating Waste in Bitumen

(32)
 ソビエトもまた同様のプロセスを報告している。CENの施設は、1964年以来運転中であり、一方英国の施設は1968年に受け取り試験を終えたが、現在は使用されていない。CENのバッチプロセスにおいては、予熱されたアスファルトが蒸発缶に供給され、廃棄物はアスファルトをかき混ぜながらその中へ計量して供給される。加熱には、外熱および投げ入れ式電気ヒータを用いる。調整可能な刃を備えた特殊の攪拌機が、廃棄物とアスファルトの混合物を攪拌し、均一にするために用いられる。蒸発缶へのアスファルトの供給に要す平均滞留時間は、数時間である。オフガスは、凝縮器を通した後静電式集塵機(コットレル)及びアブソリュートフィルタへ送られる。蒸発缶内の長い滞留時間とこの工程における高い表面温度は、アスファルトの硬化及び軽い油分及びタールの溜出を困難なものにする。

図・12・9に示すアスファルト固化用の攪拌、薄膜式蒸発缶を用いた連続式のプロセス(44, 53, 55, 56) (57) (33, 37, 39) は、ORNL及び日本においてパイロットプラント規模で、フランスにおいては工業規模で開発されている。商業規模のプラントは、フランスのサクレーで運転されている。図・12・10にフランス(マルクール, サクレー)で使用されている蒸発缶(LUWA社製)の断面図を示す。この装置は、加熱ジャケット(蒸気)付の堅型円筒部とその内部ロータとから構成されており、ロータの回転によりアスファルトと廃棄物の混合物を加熱された円筒内面に薄膜を形成させるものである。予熱されたアスファルトと廃棄物は、装置へ連続的に供給され、水分は連続的に蒸発される。蒸気は、装置の上部より除去され、廃棄物とアスファルトの混合物は、底部より取り出される。

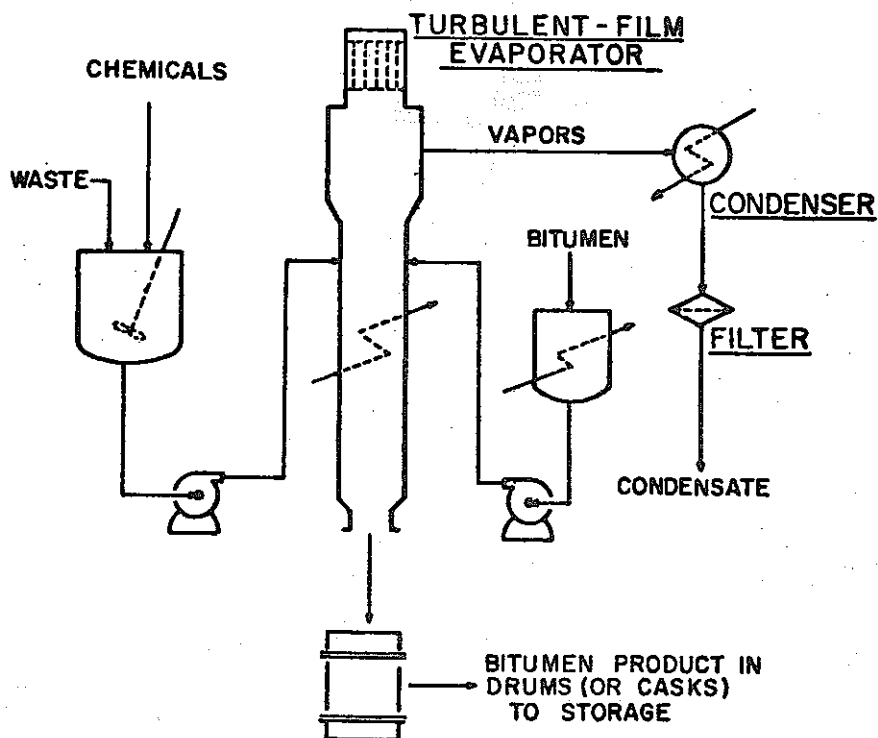


FIGURE 12-9. Turbulent-Film Evaporator Continuous Process for Incorporating Waste in Bitumen

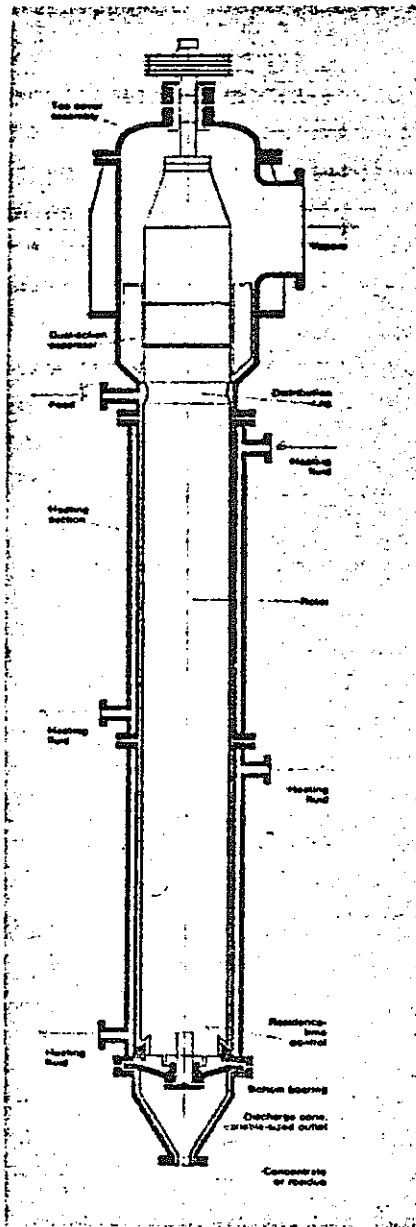


FIGURE 12-10. Turbulent-Film Evaporator Used to Incorporate Waste in Bitumen

蒸発缶内の平均滞留時間は、数分間であり、アスファルトのような熱的に敏感な物質に対しては有利である。この装置は、SGN（サンゴバン社）によって商業的に提供されている。
 SGNは、スウェーデンの原子力発電所に同種の装置を納入した実績がある。⁽³⁷⁾

図・12・11に示すスクリー式エクスルーダの連続プロセスは、フランスのマルクー

(33,38,41,42)

ル及び西独のカールスルーエで開発された。このエクスルーダの概略図(Werner and pflaidener社製)を図・12・12に示す。このエクスルーダは、蒸気によって別々に加熱される10段に分割された鉄製円筒容器とその中で回転する2軸(又は4軸)のスクリーユで構成される。予熱されたアスファルトと廃棄物は、エクスルーダのトランスミッション側のスクリーユ部にポンプで連続的に供給される。スクリーユは、円筒容器内で廃棄物とアスファルトを混合し、それを薄い膜に回転させ、それを前方に移送する。水分は連続的に蒸発し、その蒸気は、円筒容器に取り付けられた太い配管(スチームドーム)を通して取り除かれ、オイルフィルタを通した後凝縮される。凝縮液中への放射性物質の混入は、0.1%以下である。廃棄物とアスファルトの混合物は、スクリーユの端部からドラム缶へ排出される。混合物を充填したドラム缶は、ふたをして貯蔵する前に24時間冷却される。

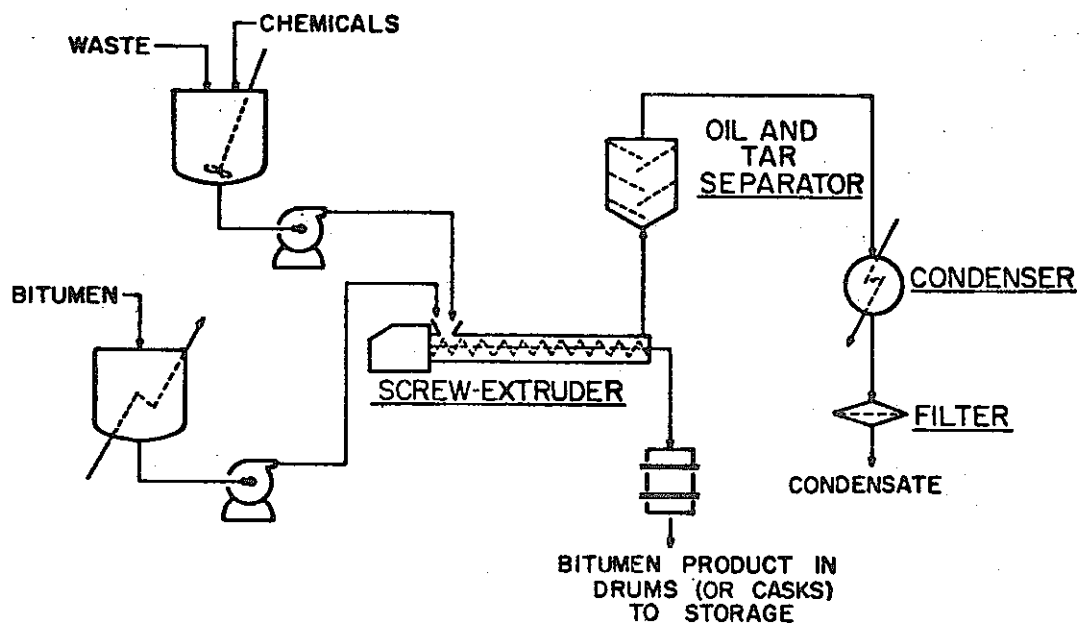
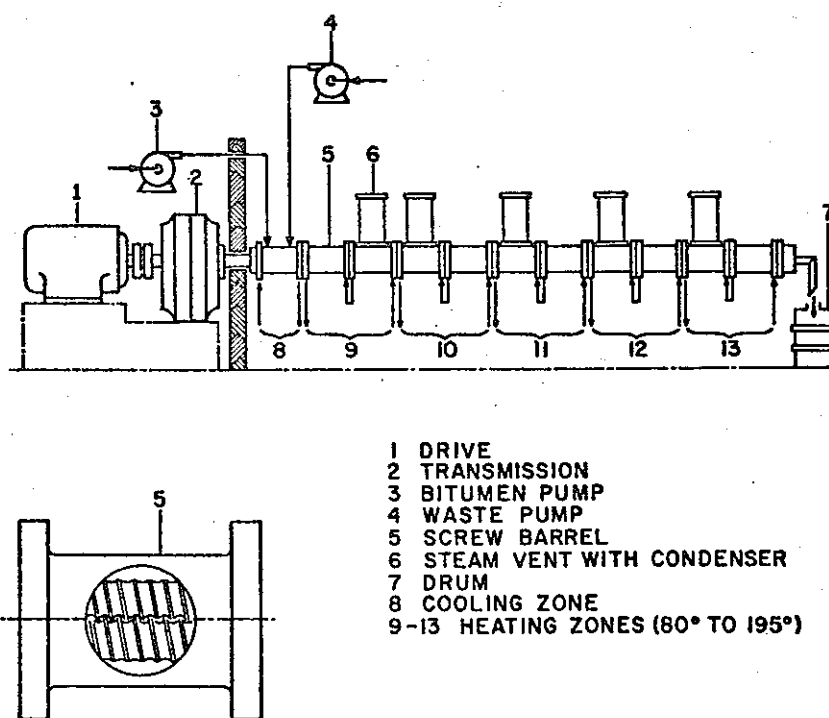


FIGURE 12-11. Screw-Extruder Continuous Process for Incorporating Waste in Bitumen



- 1 DRIVE
- 2 TRANSMISSION
- 3 BITUMEN PUMP
- 4 WASTE PUMP
- 5 SCREW BARREL
- 6 STEAM VENT WITH CONDENSER
- 7 DRUM
- 8 COOLING ZONE
- 9-13 HEATING ZONES (80° TO 195°)

FIGURE 12-12. Twin-Screw Extruder for Incorporating Waste in Bitumen

エクスルーダ内の平均滞留時間は数分である。この装置は、SGN及びWerner and pfleiderer 社によつて商業的提供されている。この装置は、フランスのマルクール及び西独のカールスルーエで運転されている。⁽⁴²⁾ さらに1基は、1975年末にユーロケミック⁽⁴⁰⁾ (ベルギーのモル)で運転を開始する予定である。またアルゼンチン及びオランダの原子力発電所でも運転中である。⁽⁴²⁾

技術の現状

アスファルト固化技術及びその装置は、多くの放射性廃棄物に適用するために開発された。スクリー型エクスルーダは、蒸発能力4~210Kg/hの装置に適用される。(約1~100ℓ/hの能力で固化体が生成される。)

主要な開発項目

アスファルト固化は、比較的確立された技術であり、今後の開発項目は今の技術を改善すること、特殊な廃棄物成分の影響及び固化体の性質に対する放射能レベルの効果を評価することにある。米国においては、現在アスファルト固化は行なわれていない。

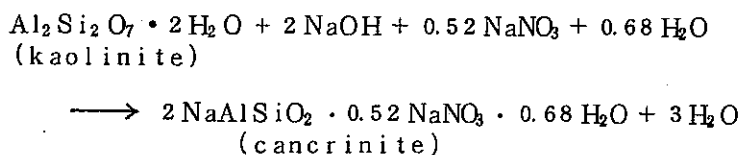
1 2. 3 開発の必要な固定化技術

この節では、無機ケイ酸アルミニウム、ガラス、ペレット、ポリエチレン、乳化ポリマー等による固定化技術の概要を述べる。

1 2. 3. 1 無機ケイ酸アルミニウム (Clay) 固化

無機ケイ酸アルミニウムは、ガラス形成剤⁽¹⁰⁾およびイオン交換樹脂⁽⁵⁸⁾ならびに熱水処理によって、無機ケイ酸アルミニウムの結晶構造中に、原子力産業廃液を結合させる試薬のような放射性廃棄物を固定化するために使用される。^(59, 60) 目下、ARHCOで開発中である Aqueous Silicate プロセスと呼ばれる無機ケイ酸アルミニウムによる固定化技術が、この節で述べる主題である。

Aqueous Silicate プロセスは、Hanford の高放射性廃液 (HLLW) の初期処理工程より出る高塩濃度の廃棄物を固定化するために特に開発されている。これらの廃棄物は、主として NaNO_3 , NaNO_2 , NaOH , NaAlO_2 , Na_2CO_3 からなる典型的な塩ケーキか、高温濃度の濃縮廃液である。このプロセスでは、無機構造物の一部として、塩を含んだキャンクリナイト (cancrinite $2\text{NaAlSiO}_2 \cdot 0.52\text{NaNO}_3 \cdot 0.68\text{H}_2\text{O}$) を形成するために、カオリン (kaolin) や、ベントナイト (bentonite) の様な粉末状の無機ケイ酸アルミニウムと濃縮廃液⁽⁶¹⁾の反応が、低温度 ($30 \sim 100^\circ\text{C}$) で起こる。カオリンによる反応は、次の反応により説明される。



化学量論的には、1 mol のキャンクリナイトを形成するために、2 mol の NaOH が必要となる。この反応は発熱反応でキャンクリナイトの小さな結晶 ($\sim 0.5 \mu\text{m}$) を生ずる。このキャンクリナイトの結晶は 11 の辺や面からなるバードゲージ型の結晶構造体や、結晶構造体により封じ込められた広範囲にわたるみぞの中に廃液や塩を結合する。

固化体の形状と物性

模擬廃棄物での初期の試験結果から、三種の技術的諸方法の定義づけとして、概念的なフローシートを 図 12.13 に示す。⁽⁶²⁾ Rick Clay プロセスと呼ばれる最も簡単で最も安価な方法では、相対的に浸出率が高く、凝集力の弱いキャンクリナイト粒子による固化体を得る。この固化体は、過剰の無機ケイ酸アルミニウムで、個々のキャンクリナイト粒子を固めることにより得られる。この固化体の形態をもう少し詳細に述べるならば、この固化体は 3 1

wt% キャンクリナイト, 16 wt% カオリン, 17 wt% ナトリウム塩 (主に NaNO_3) および 36 wt% の水である。無機ケイ酸アルミニウムとキャンクリナイトで固められた固化体の塩と水の含有量は, それぞれ 21 wt% と 39 wt% である。最初はやわらかめに混合し, ほぼピーナツバター程度の固さにしたのち, 自然乾燥か, 又は加熱して, 日干しれんがのように固める。この固化体には, 未反応の水と塩が残る。

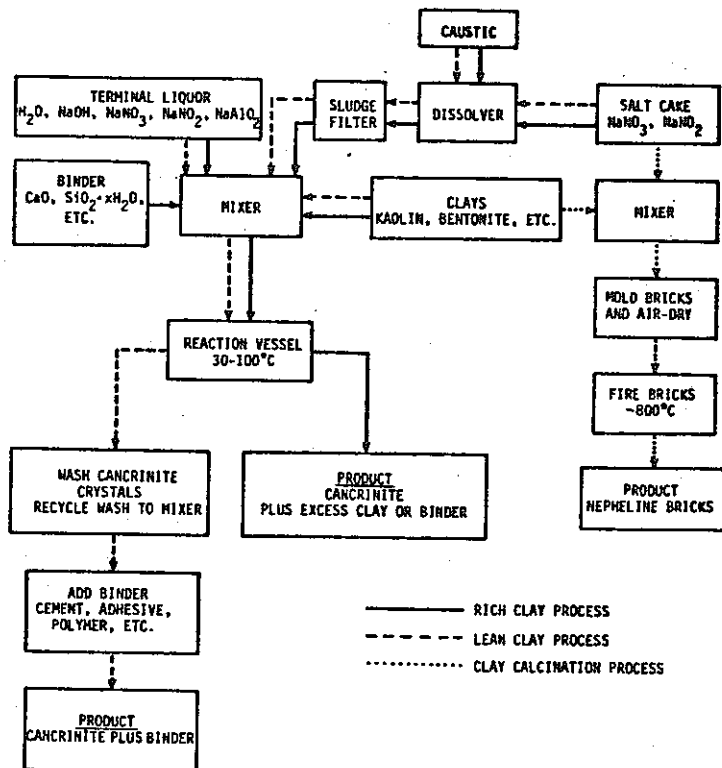


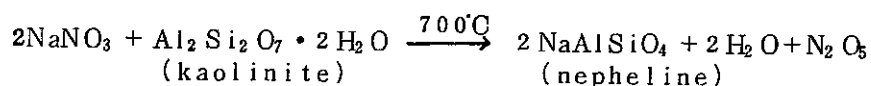
FIGURE 12-13. A Conceptual Flow Diagram for the Conversion of Radioactive Wastes to Aluminosilicate Minerals

無機ケイ酸アルミニウムと廃液の容量比は, ほぼ, 無機ケイ酸アルミニウム 1 g に対し 0.38 ml である。固化体をつくるために必要とする無機ケイ酸アルミニウムの量は, 使用する無機ケイ酸アルミニウムの仕様及び廃液組成によって異なる。Hanford の最終的な総合廃液に要する無機ケイ酸アルミニウムの最小量は 0.7 ~ 1.3 g/ml である。か焼した無機ケイ酸アルミニウム (700 °C に加熱した無機ケイ酸アルミニウム) を使用すれば, 結晶構造中に廃液を組み込むことによつて, か焼していない無機ケイ酸アルミニウムを使用する場合よりも, 発生する固化体は容量が減り, より固くなり, 水と接してもくずれない。しかも, 反応速度は 5 倍から 30 倍程度速くなる。

Lean Clay プロセスでは, 浸出率が改善される。このプロセスでは, 無機ケイ酸アルミニウムを当量加えるので未反応の無機ケイ酸アルミニウムは残らない。反応後キャンクリナイト中に残った未反応の塩を除去するために洗浄工程が必要となる。これらの塩は, リサイ

クルされて、より多くのNaOHと無機ケイ酸アルミニウムで処理される。Lean Clay プロセスによる固化体は、Rich Clay プロセスによる固化体よりも機械的強度が劣るので、機械的強度を増すため、ポルトランドセメント、石灰、ケイ酸ナトリウム、または適当な有機ポリマーのようなバインダーを加える。

Clay Calcination プロセスでは、無機ケイ酸アルミニウムと塩の混合ケーキは、700～800°Cに加熱され、次の反応によりネッフエリン (nepheline, $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$) になる。



このプロセスでの固化体は、容量も小さく、熱的及び放射線の安定性も良い。カオリンから純粋なネッフエリンを形成するための NaNO_3 の理論上の上限濃度は、反応混合物で40wt%である。すでに述べた二種のプロセスのキャンクリナイト粒子による固化体を530～595°Cに加熱することによってもネッフエリンは得られる。加熱によって沸騰水 (zeolitic water) は、100～300°Cで除去され、約700°Cで分解しはじめる NaNO_3 及び NaNO_2 に捕集される。固化体の融点は900～1,200°Cである。

固化体の浸出率は、採用するプロセスによって非常に異なる。Hanford の最終実廃液を用いたそれぞれのプロセスによる固化体の浸出速度は、 ^{137}Cs を基にして測定した結果、Rich Clay プロセスで $10^{-3} \sim 10^{-2} \text{ g/cm}^2\text{-day}$ 、Lean Clay プロセスで $1 \sim 4 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2\text{-day}$ (バインダーとしてポルトランドセメント使用)、Clay Calcination プロセスで $2 \sim 6 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2\text{-day}$ (62) であった。

調整法

種々の無機ケイ酸アルミニウム固化体を調整するために使用される基本的な要素を図12・13に図解する。すべてのプロセスで、ほぼ乾燥して、粒状でやわらかく、ピーナツバターの様な生成物を連続して混練しながら移送できるミキサーをプロセスの中心部に必要とする。この仕様上に改良できると思われる装置が商業上利用可能である。

Rich Clay プロセスの場合、廃液、NaOH及び粉末状の無機ケイ酸アルミニウムを準備しなければならない。混合生成物は、焼入れのため貯蔵容器に入れられる。容器は、焼入れプロセスを促進するために、低温度の炉(75～100°C)の中におかれる。か焼無機ケイ酸アルミニウムを使用すれば、焼入れ時間は短縮でき、100°Cで1～2時間か、あるいは75°Cで10時間以内で焼入れは完了する。100°C以上の温度で焼入れを行なうと、生成れんがに空隙やスウェリングが発生しやすくなる。

Clay Calcination プロセスのネッフエリンれんがを調整するため、二種の方法が提案された。(62) 1) 無機ケイ酸アルミニウム—塩の混合物(30～40wt%塩)をれんがの鑄型に入れ、風乾して700～900°Cに加熱する。2) 柔らかく練りあげた混合物を加熱

し、バインダーとともに混練してれんがに形づくる。前者の方法では前もってれんがを形成してから、加熱するため、加熱の間にガスが気散し、亀裂を生じるが、後者の方法では加熱後にれんがを形成するため、高密度のれんがを得ることができる。

技術の現状

Aqueous Silicateプロセスの改良型Rich Clayプロセスの開発は、初期のパイロットプラント試験であり、放射能の工学的概念設計である。最も開発を必要とする研究は、実行可能なプロセスとするための、研究室規模の試験である。Hanfordのアルカリ塩廃液で形成される固化体の特徴は一定している。パイロットプラントによる試験は、1時間あたり約5 Kgまでの生成物を得る処理能力で、Hanfordの最終廃液と無機ケイ酸アルミニウムを混練できることを実証することである。

実用に適した設計にありプロセスを製作するための付加的な工学的開発研究に、おおよそ1～3年が費やされるだろう。この必要とする期間は、ミキサーの開発、あるいは改良の必要性と遠隔操作や保守のための装置をいかに早く入手するかで決定する。

1 2.3.2 ガラス固化

ガラスの化学的耐久性および多数の全然異なる元素を封じ込める能力は、数種の高放射廃棄物のガラス固化処理プロセスにおける過去20年間の研究開発で明らかになっている。この研究については6.0節に述べた。従って、高放射性廃棄物以外の廃棄物のガラス固化の開発の必要性はない。けれども、もしそのような固化体の形成が求められるとするならば、これらの廃棄物のガラス固化に適応できる様に、ガラス形成の一定原理は、すでに開発されている。高放射性廃棄物以外の廃棄物は、多量のFPの存在がないため、あらゆる意味でガラス固化の問題は簡単になる。参考として、現在の廃棄物の固化処理研究に用いられる高放射性廃液のFP含有量（主に不揮発性酸化物）をみると、55wt%である。これに対して、高放射性廃液以外の廃棄物の固形化物は、主にナトリウム塩である。その他の固形化物は、灰や無機イオン交換樹脂のような非金属残留物及びガラス固化に、主として一般に用いるケイ酸塩や金属酸化物である。

固化体の形状と物性

ガラスは、網目形成イオンと網目修飾イオンから成る。Si, B, Al及びPは、網目形成イオンとして高結合力で酸素と結合し、広く網目を形成する。これらの元素は単独もしくは共同で、ガラス固化体やセメント固化体の大部分を構成する。例えば、Bは融点を低くするし、AlとBは化学的安定性を増す（浸出率試験によって測定）とともにガラスの不透明速度を遅くする。AlとBが多すぎると、高融点の粘性体となる。ホウケイ酸ガラスは、不透明生成物の化学的安定性の良さと低浸出率ということで、普通、リン酸塩ガラス以上に評

(64)
 価が高い。

ガラス形成に使用されているその他の元素，例えばNa, K, Ca, Fe, Mgは，ガラスの網目のすきまに入るので，網目修飾イオンと呼ばれる。これらのおのおのの元素は，ガラスのすべての物性に特有の影響を与える。アルカリ金属酸化物は，粘性を下げることによってガラスの融点を低くする。しかし，過剰の場合は，化学的安定性がなくなる。Csは，ガラス形成温度では揮発性である。しかし，その揮発性は，ホウ素酸化物，チタン酸化物及びモリブデン酸化物によって効果的に抑えられる。(65) 化学的耐久性の向上に役立つカルシウム及びマグネシウム酸化物は，結晶化を妨げる。要求する物性を持ったガラスを得ることができる形態によって，廃棄物の構成要素と添加剤の組み合わせが決定する。通常放射性廃棄物を特性の良いガラスに転換するために，酸化物としてガラス形成添加剤を廃棄物重量の2倍以上は必要としない。

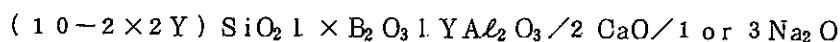
(66,67)
 二種の半経験的研究によって，物性上，満足できるガラスを形成するための指針値を得た。

別 添 資 料

<u>Designation</u>	<u>Atom Ratio</u>
A	$\frac{\text{Si}}{\text{Al} + \text{B}}$
B	$\frac{\text{oxygen}}{\text{network formers}}$
C	$\frac{\text{network formers}}{\text{network modifiers}}$
D	$\frac{\text{network modifiers}}{\text{oxygen} - 2(\text{network formers})}$

ガラス成分のうち重要な原子比率を示す。比率Aが1.5以上の時は，浸出率は低くなる。比率Aが大きくなるに従って，ガラスの融点は上昇する。比率Bが2.2～2.4の範囲の時は，ガラス形成は最良であり，浸出率は低い。網目修飾イオンの電子荷をあわせるために，過剰の酸素が必要である。比率Aが減少し，比率Bが増加すれば密度は増加する。比率Cが～2であれば，物性の良いガラスを形成できる。比率Cが減少すれば，網目は形成できなくなり，ガラスとしての物性を失なう。比率Dは，網目修飾イオンに対する網目形成イオンの4等量以上の過剰酸素の比である。比率Dは，可能な限り2に近づける。

(68)
 Hahn Meitner 原理の展開モデルを用いて，最適なガラス成分を決定するための公式を次に示す。そのガラス成分は，4 mol SiO₂，2 mol B₂O₃，1 mol Al₂O₃，2 mol CaO，



$Y = 0.5 \text{ to } 1.0$; m. P. = 1,100 to 1,200°C

$X = \sim 2$ with $Y > 0.5$

1 もしくは 3 mol Na₂O, 及び 20 wt% の廃棄物である。

Savannah River 研究所で、前記の指針値を越えた値を用いて、Fe-Al と Fe-Mn 水酸化物スラッジに対する最適なガラス混合物を開発した。模擬スラッジは、ガラス混合添加剤 (5.25 wt% SiO₂, 1.0 wt% B₂O₃, 2.25 wt% Na₂O, 5 wt% CaO, 1.0 wt% TiO₂) を用いることによって、1,150°C で溶融しながら 45 wt% までガラスに結合させた。25°C での長期耐性試験による浸出速度は、Cs と Sr をトレーサーとして測定した結果、初期の 10^{-6} g/cm²-day から 10^{-8} g/cm²-day に減少した。研究室規模の研究では、SRP (Savannah River Plant) の実放射性スラッジを用いて確証している。⁽⁶⁵⁾⁽⁶⁹⁾

ある中放射性廃液は、相当量の NaNO₃ か Na₂CO₃ を含むことが予想される。そのような場合にナトリウム成分は、ガラスの構成要素として供給できる。この原理は、タンクの中で廃棄物が固形化することによって得られる塩ケーキに利用できるため、ARHCO が開発している Silicate melt プロセスに使われる。ナトリウム石灰、ホウケイ酸及び岩石ガラス形成イオンは 1,100 ~ 1,250°C で溶融して、ガラスの最終成分で約 25 wt% Na₂O になるまで結合する。岩石ガラスに 1.0 wt% B₂O₃ を添加することによって、融点は 100 ~ 150°C 下がり、Cs の揮発が 1% もしくはそれ以下に減少した。⁽⁷⁰⁾ 25°C での典型的な浸出速度は、Cs をトレーサーとして測定した結果、ナトリウム石灰を形成するために、初期の 3×10^{-5} g/cm²-day から約 2×10^{-6} g/cm²-day に減少した。B を含んだ岩石ガラスの長期耐性試験における浸出率は、 $\frac{1}{10}$ まで低くなった。ガラス密度は、岩石ガラス形成によって高くなり 2,400 ~ 2,800 Kg/m³ となった。

岩石ガラスとホウケイ酸ガラスの形態は、Pu 汚染土、焼却灰、及び Cs を含むゼオライト (Na 型 chabazite) をガラス化するために用いられる。⁽⁶⁵⁾ これらの廃棄物は、大部分、ガラス形成無機塩 (主に Si と Al 混合物) で構成されているので、たやすくガラスに結合する。汚染土や焼却灰に対するガラスの組成は、融点を下げるために溶剤として添加した 5 ~ 10 wt% Na₂O と 5 ~ 10 wt% B₂O₃、及び約 45 ~ 50 wt% の SiO₂ であった。長期耐性試験における 25°C での浸出速度は、Pu をトレーサーとして測定した結果、 10^{-8} ~ 10^{-7} g/cm²-day であった。40 wt% までの焼却灰も同様に、高放射性廃棄物のガラス化に広く用いられるホウケイ酸亜鉛ガラスの原料混合物 (~ 29 wt% ZnO) に容易に結合した。⁽⁷²⁾

24wt% SiO₂, 10wt% Al₂O₃, 24wt% B₂O₃, 19wt% Na₂O, 12wt% CaO 及び 12wt% TiO₂ を含むゼオライトで形成されたガラスの浸出率は、Savannah River Plant の模擬スラッジを用いて固形化したガラスの浸出率と同程度であった。焼却灰、パーミキュライト及び

スラッジのガラス固化に関する研究は、参考文献 73 に報告している。

大部分の元素は、酸化物としてガラスに結合するが、2, 3 の元素は標準的なガラス形成に適合しない。高放射性廃棄物以外の廃棄物でガラス形成に適合しない元素は、ハロゲン、S, Hg である。Hg, OI 及び I は、溶融している間に完全に揮発する。硫酸塩としての S は、可能な限界がある。約 1 wt% 以上の硫酸塩の場合、水相を形成し分離する。流酸塩は適当な還元剤の添加によって SO_2 として揮発する。F も同様に揮発する。しかし、Ca を加えることによって CaF_2 を形成し、溶融状態でも揮発しないで残る。もし RuO_2 が存在するならば、 RuO_2 は溶解しないで粒子として被膜の中に包まれるだろう。もし、硝酸塩及び MgO_2 のような酸化剤が存在するならば若干の RuO_2 を揮発性の RuO_4 に転換するだろう。

調整法

高放射性廃棄物のガラス固化に、過去 1,000 年を超えて発達してきた商業ガラスの製造技術が利用されるが、直接転用できるわけではない。遠隔自動操作で出来るようにすべての製造工程を可能な限り簡素にしなければならない。ガラスを対象として製造する場合、3つの製造工程、すなわち混合、溶融、型入が必要となる。

放射性廃棄物のガラス固化で、ガラス溶融器での投入物質の混合が最も重要な製造工程である。この製造工程には、成分の選択、物理形態及び溶融前の混合を含む。処理される廃棄物に応じた最適なガラスを製造するために、全成分が選択されるので、廃棄物の組成は、約 20% 以内の正確さで確認されなければならない。溶融までに廃棄物の成分を早く溶解するために、固体廃棄物は溶解を目的とするよりも、むしろ被膜の中に包まれないように、細かく粉砕された形態 (100 ミクロン以下の粒子) であることが望ましい。

低粘性ガラスの形態は、混合装置を最小にする。低融点ガラスの形態は、成分の揮発が最少になるので、オフガス浄化装置も最小になるという利点がある。すべての商業ガラスの総トン数の約 90% を占める標準的なナトリウム石灰ガラス (72 wt% SiO_2 , 15 wt% Na_2O , 10 wt% CaO-MgO , 2 wt% Al_2O_3 , 1 wt% その他) は、1,475 ~ 1,500 °C で溶融される。放射性廃棄物のガラス固化で実証された形態のガラスは、約 1,000 ~ 1,250 °C で溶融される。普通、融点で 2 ~ 3 時間溶融状態を保てば、均一な溶融状態が得られる。

型入の製造工程では、最も簡単に放射性廃棄物のガラス固化体をつくり続ける。高放射性廃棄物のガラス固化のために、前に記述した装置と同様の装置で調整されるガラスは、大きな鋼鉄製の円柱に注がれる。ガラスを冷却する時、大きなガラスブロックに割れが発生することを防ぐために、焼きなおしを注意深く行なう必要がある。

技術の現状

高放射性廃棄物のガラス固化のために、数種のプロセスが実践的な計画として準備されて

いる。高放射性廃棄物以外の廃棄物に関するガラス固化の研究は、実験室規模で実行されているだけである。多くの場合、高放射性廃棄物のガラス固化技術及び商業ガラス製造技術は、相対的にわずかな開発努力（2～3年）で、低放射性廃液及び中放射性廃液のガラス固化に適応できるはずである。ガラスマトリックス中で固体廃棄物が被膜形成するか、又は結合するかの問題に関しては、実践的な計画を立案するまでにおよそ4～6年かかるだろう。

主要な開発項目

開発目的は、ガラス固化処理される廃棄物によって異なる。一般的な目的は、特殊廃棄物に対する低融点、低粘性ガラス形態の定義づけであり、完璧さへの追求である。又、オフガス処理のプロセス開発であり、適当な溶融器とその構造材料の開発か、又は改良であり、溶融器を遠隔操作するためのハードウェアの開発である。固形粒子が被膜に包まれることに関しては、適当な鑄造法か、もしくはガラス被覆法が必要となる。

1 2.3.3 ペレット加工／圧縮

焼却灰や無機イオン交換樹脂のような多数の固体廃棄物は、飛散しやすく、低密度で浸出しやすい。これらの残留廃棄物は、貯蔵や輸送中の安全性を改善するために、そのみか、あるいはバインダーとともに圧縮されるか、ペレットに加工される。

圧縮技術とペレット加工技術の組み合わせは、利用可能なものであり、ERDA 研究所で利用している。放射性セラミック物質（ PuO_2 、 UO_2 ）は、多種の型に形成し、コールドプレス及びホットプレスによって寸法をあわせている。

放射性物質や種々の非放射性酸化物のセラミックペレット（直径1～6 cm、厚さ1 cm）は、真空ホットプレスによって製造されている。⁽⁷⁴⁻⁷⁶⁾現在の製作プログラムは、理論密度80～85%⁽⁷⁷⁾で直径3.8 cmの $^{238}\text{PuO}_2$ の球を製作する。15～20%の空洞容積は、 α 崩壊によって生ずるHeの逸脱を可能にし、初期の球形を保つ。広範囲にわたる種々の廃棄物及び廃棄物-添加剤の形態は、定常的にホットプレスできるということを、Sandia Corporation (SLA)での無機水酸化物イオン交換樹脂の真空ホットプレスに関する研究は指摘している。技術的にホットプレス技術は、単一操作で焼、プレス及び焼結を兼ねるので、残留廃棄物-添加剤の混合物に対して、特に適している。

種々のコールドプレス技術は、広範囲にわたる種々の可能性をもたらす。それらは、ペレットの加工及び自動プレス技術により圧縮-ペレット加工を可能にする。数種類のプレスは利用可能であり、ERDA 研究所で利用している。自動プレス技術は、高度に開発されており、現在Mound Laboratoryでは、雷管に使用するアルミナ絶縁体及び爆発性ペレットのプレスに、自動プレス技術を利用している。コールドプレスによるペレットが、多孔性で浸出性であるが、その物性は、多種の添加剤で改善できるということが、SLAでのコールド

プレス焼結に関する簡単な研究によって証明された。現在の技術で、このプロセスの開発を行なうことによって、あらゆる点でふさわしい生成物を得ることは十分可能である。

均衡プレスは、放射性物質の処理に対して、前に述べた二種のプロセスほどには高度に開発されていない。しかしながら、均衡プレスは、一定密度の多くの生成物を得る利点をもたらす。この技術は、小さなペレットを加工する場合及びピレットを加工する場合の両方に利用することができる。 α 放射性物質を取り扱う必要性のある環境に、この不安定な技術を適応することが困難なため、高放射性物質に対して無制限に均衡プレスを応用することはできない。

セラミック分野での注入-転送型入技術は、比較的新しいものである。その技術は、放射性物質には応用できないし、たぶん純粋な放射性物質を製造するためには、なおのこと適応できないであろう。しかしながら、このプロセスは、 SiO_2 不純物による影響をうけない物質に関して利用する場合には、特に適している。Mount Laboratoryでは、このプロセスを開発することによって、雷管に使用する Al_2O_3 絶縁体を加工するために利用している。残留廃棄物を用いて圧縮-ペレット加工技術を行なうために適した形態は、開発できる範囲内で充分である。注入-転送型入加工技術は、いくつかの利点をもたらす。種々の形態の一部は、容易に加工することができ、そのプロセスは自動化に適する。

固化体の形状と物性

固化体の形態は、焼却灰及び無機イオン交換樹脂のような種々の残留廃棄物に、セラミックマトリックス物質が加えられて成り立つであろう。添加剤の組成及びこのセラミックマトリックス物質に対して加えられるべき残留廃棄物の量を決定するためには、かなりの開発努力が必要である。三相のセラミック混合物を利用することによって、核分裂性物質とFPの両方を分散させて保つために、格子“vaults”を与えることができるという説があつた。⁽⁷⁸⁾

最終生成物は、放射性核種をセラミック格子中に分散して保つために、強い非浸出性のセラミックとなるだろう。固化体の寸法は、ピレットから小さなペレットで加工できる圧縮プロセスの選択によって異なるだろう。

サーメット合成物は、金属粉と残留廃棄物をホットプレスすることによって製造される。サーメット合成物の利点は、金属と同様の強度、熱伝導性、柔軟性をもったピレットやペレットが製造できるということである。サーメット合成物は、化学的揮発性を利用したプロセスを用いるため、金属被覆を応用することによって、ペレットやピレットを全体的に不活性にすることができるという利点もある。⁽⁷⁹⁾

調製技術

コールドプレス及びホットプレスによるペレット加工-圧縮法に関する調整工程を図12・14に示す。この二種のプロセスに関する調製工程は、似かよっている。必要に応じ

て、残留廃棄物は、適当なセラミックもしくは金属をマトリックスとする物質とともに混練され、その混合物は選択したプレス形態でプレスされる。コールドプレスによって形成された物質は、適当な密度に焼結される。もし、黒鉛鑄型を使用するならば、ホットプレスによって形成された物質は、付着する黒鉛を除去するために酸化処理を必要とするかもしれない。

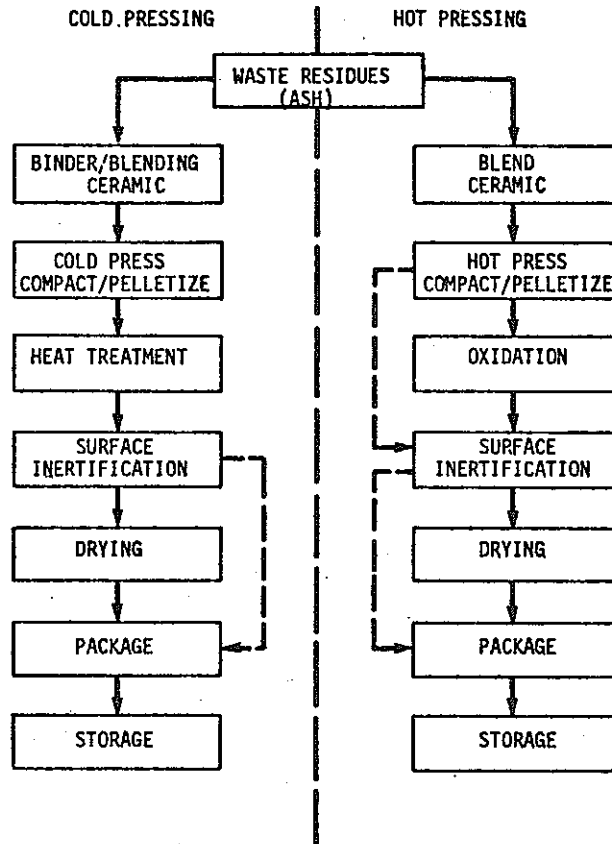


FIGURE 12-14. Pelletization/Compaction Preparation Steps

焼結固化体の表面は、適当なセラミック、金属又はエポキシ樹脂の被膜で被覆することによって、全体的に密封する（不活性にする）ことができる。被覆を行なうために、次のプロセスのうちの1つが適用できる。

- プラズマスプレープロセス
- 鑄造、アルミナ（スプレー法又は浸漬法）プロセス
- 化学蒸気沈澱（CVD）プロセス
- エポキシ樹脂浸漬（被覆）プロセス

セラミック又は金属被覆生成物の封じ込め性能を改良するために、エポキシ樹脂被覆を適用することができる。

技術の現状

ここで述べたペレット加工-圧縮技術は、ERDA やセラミック工業を通して高度に開発され、広く核燃料加工工場に用いられている。技術の多くは、現在放射性物質の圧縮-ペレット加工に用いられている。残留廃棄物処理という特殊な環境に用いるための装置を改良するためには、工学技術を未だ必要とする。

主要な開発項目

セラミックマトリックスか、または金属マトリックスに、残留廃棄物を結合させるための実践的な技術開発には、未だ時間を必要とする。技術開発の主なるものは、現在利用可能である結晶化学や焼結技術を特殊残留廃棄物に応用する事である。固化体及びそれらの成形プロセスを完全なものとするためには、かなりの選抜したプロセスが必要となるだろう。主に次に述べる範囲で技術開発を必要とする。

- 真空又は不活性ガス雰囲気でのホットプレスによる圧縮-ペレット加工法は、鋳型の再利用と自動化の開発を必要とする。(現在の黒鉛鋳型は、化学的及び機械的衝撃により20回以上のプレスに耐えられない)。金属及びセラミックの複合体を形成するための操作パラメーターを決定することが必要である。
- 種々のコールドプレス技術は、残留廃棄物を圧縮-ペレット加工するために、各々のシステム改良を必要とする。固化体の製造に用いる適当な操作パラメーターやバインダーを決定する必要がある。
- 固化体の熱処理に必要なパラメーターや外的条件が決定されなければならない。
- 被覆技術を含む固化体の全体的な不活性技術の評価が、検討されなければならない。
- 研究室規模の研究開発により、選択されたプロセスの工学的開発及び実証が行なわれなければならないだろう。

1 2.3.4. その他の固化システム

高放射性廃棄物以外の廃棄物を固化するために、数種のシステムが開発されたり提唱されたりしているが、それらのうちの大部分の情報が不明確であるため、現在あるプロセスのうちで、もつとも注目されているものについて述べる。

ポリエチレン固化

(43,80)
無機廃棄物及び有機廃棄物のどちらも、十分ポリエチレンに結合する。大部分の研究が、実験装置規模のバッチプロセスによって行なわれている。ポリエチレンの物性は、アスファルトと同様であるので、同一装置が両プロセスに使用される。

バッチプロセスにより、ポリエチレンを融解するためにポリエチレンを混合攪拌槽に加え、100～170°Cに加熱した。その後、固体廃棄物としての量がプラスチック固化体を形成

するのに可能な量（理論的に約40 wt%）になるまで、混合攪拌槽の蒸発能力に応じて廃液が加えられた。揮発性液体のすべてが蒸発したのち、プラスチック生成物は180°Cで鑄型か処分容器に流しこまれた。⁽⁴³⁾ そのプラスチック固化体の浸出率は、アスファルト固化体と同等であった。

有機イオン交換樹脂は、融解したポリエチレンに加えられる前に最小容量にするために乾燥されることを除けば、前記と同様に処理された。有機イオン交換樹脂を80 wt%までプラスチックに結合することができたが、粘性が増加するため実際的な樹脂の含有量は、約50 wt%が限度であろう。その50 wt%固化体の圧縮性強度は、約300 Kg/cm²であった。⁽⁸⁰⁾ 一般的に、混合プラスチックの強度及び化学的耐久性は、純粋なプラスチックと同等であった。⁽⁴³⁾

TBPを含む有機溶媒も40 wt%までポリエチレンに結合する。その固化体は、プラスチックマトリックス物質の物性を維持した。

ポリエチレン固化体の放射線的耐久性は、アスファルト固化体と同等か、それ以上である。⁽⁴³⁾ 10⁷ラドでは、目に見える影響はなく10⁸ラドで、わずかな変色だけが見られた。

ORNLの蒸発濃縮液（主にNaNO₃溶液）から得られる固体廃棄物を40 wt%含むポリエチレン固化体の自然発火温度が550°Cから440°Cに下がることが、燃焼試験の結果判明した。その燃焼は、アスファルト固化体で得られた激しい燃焼とは違って、一様な黄色炎での静かな燃焼であった。⁽⁴³⁾ ポリエチレン固化プロセスは、酸化塩に適用するには、たぶん利用可能であろう。しかし、安全性を評価するためには、付随的な研究が必要であるという結論に達した。

乳化ポリエステル固化

H₃BO₃ 及びNa₂SO₄ 溶液、イオン交換樹脂、フィルタースラッジを含む軽水炉で発生する代表的な模擬廃棄物は、乳化ポリエステル樹脂に結合する。⁽⁸¹⁾ この試験には、Laminac EP X-289-4 (American Cyanamid Company) 及びPE-725 (Cargill Company) ポリエステル樹脂が使用された。試験に提供されたポリエステル樹脂には、有機過酸化物触媒を加えると過酸化物を分解し、重合を行ない、樹脂を固めるための促進剤が入っていた。

実験室での乳化処分の際に廃液又はスラリーは、高速度攪拌でポリエステル樹脂に加えられた。形成されたポリエステル樹脂の乳濁液は、適当な容器に注入されたのち、普通、樹脂重量に対し1 wt%の触媒を加えることによって固化された。一般に含水率が増加すると、固化時間は長くなった。触媒添加のない乳濁液は、安定で相分離がない状態で貯蔵できる。研究結果を以下の様に要約する。

- 厳しい条件下で製造された固化体のNa₂SO₄ 溶液（10～24 wt%）とポリエステル樹脂の比率は1：1～2.3：1であった。
- 厳しい条件下で得られた固化体のB₂O₃ 溶液又は、B₂O₃スラリー（1～20 wt%）とポ

リエステル樹脂の比率は 23 : 1 であった。

- 20 g までの湿った廃イオン交換樹脂は、前もって形成されたポリエステル樹脂乳濁液（水：ポリエステル樹脂 = 0.7 : 1）50 g に結合することができた。
- ポリエステル樹脂とともに廃イオン交換樹脂スラリーを直接乳剤にした場合は、重合が進まなかった。
- 廃イオン交換樹脂とポリエステル樹脂の同量を混合し、触媒を用いた場合、20 数時間で固化するソフト・ゲルを形成した。粉末イオン交換樹脂も同様に処理された。
- ろ過剤 Solka Floc の 20 wt% スラリーは、スラリー対樹脂の比率が 2 : 1 でポリエステル固化体を形成した。

平均 600 ~ 900 Kg の廃液又はスラリー（60 ~ 80 % 水分）は、固化体 1 m³ あたりに結合させることができた。固化体は⁶⁰Co による 10⁸ ラドまでの照射線量に対しても、明らかな劣化は観察されず、凝集性もあり堅固で衝撃にも強かった。

プロセス実用化の可能性は証明されているが、プロセスを完全なものとするためにも、そして、イオン交換樹脂によって引き起こされる重合を妨げる原因を追求するためにも、より一層の研究がなされるべきである。

金属マトリックス固化

残留廃棄物は、6.0 節と 12.3.3 節で述べた被膜法によつて、金属マトリックスに結合することができる。

REFERENCES

1. Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending March 31, 1975, ORNL-5050, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, October 1975.
2. Packaging of Liquid Aqueous Radioactive Wastes from Nuclear Power Plants for Transport, proposed American National Standard 14.9.1 Draft, March 1975, American National Standards Committee N 14.9, E. C. Tarnuzzer, Chairman.
3. M. J. Kirkman and W. L. Godfrey, Treatment of Liquid Wastes by Evaporation to Salt Cakes, ARH-SA-25, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, August 4, 1969.
4. D. E. McKenzie, L. F. Grantham, R. B. Paulson, W. L. Richards, and R. B. Rennick, Disposal of Transuranic Solid Waste Using Atomic International Molten Salt Combustion Process, AI-ERDA-13151, Rockwell International, Atomic International Division, Canoga Park, CA, May 5, 1975.
5. R. F. Maness, Corrosion of Mild Steel Tank Liners Exposed to Simulated Solidified Alkaline High-Level Waste, BNWL-1869, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, October 1974.
6. H. Queiser, "Treatment of Radioactive Slurry and Storage of Concentrated Waste," Nuclear Engineering International, vol. 20, p. 103, 1975.
7. C. B. Goodlett, Concentration of Aqueous Radioactive Waste with Wiped-Film Evaporation, DP-MS-75-17, Savannah River Laboratory, paper presented at AIChE 68th Annual Meeting, Los Angeles, November 16-20, 1975.
8. D. E. Braden, C. B. Foster, J. R. Houston, G. R. Kiel, R. A. Watrous, R. A. Zinsli, Safety Analysis Report - Waste Encapsulation and Storage Facilities, ARH-1986, Atlantic Richfield Hanford Co., Richland, WA, December 1971.
9. J. C. Petrie, R. I. Donovan, R. E. Van der Cook, W. R. Christensen, Processing of Radioactive Waste Solutions in a Vacuum Evaporator-Crystallizer, ARH-SA-240, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, September 1975.
10. W. W. Schulz, A. L. Dressen, C. W. Hobbick, H. Babad, Glass Forms for Immobilization of Hanford Wastes, ARH-SA-210, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, April 1975.
11. Atlantic Richfield Hanford Company Semi-Annual Report BB Process Development May 1, 1974, through October 31, 1974, R. D. Fox, editor, ARH-ST-118 B, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, January 1975.
12. J. T. Long, Engineering for Nuclear Fuel Reprocessing, Gordon and Breach Science Publishers, Inc., New York, 1967.
13. Nuclear Metallurgy, Vol. 15: Symposium on Reprocessing of Nuclear Fuels, P. Chiotti, editor, CONF-690801, USAEC, August 1969.
14. B. Golding, Polymers and Resins, Their Chemistry and Chemical Engineering, D. Van Nostrand Company, Inc., Princeton, New Jersey, pp. 264-276, 1959.
15. Cyanoloc 62 Chemical Grout, American Cyanamid Company, Wayne, NJ, May 1, 1974.
16. H. W. Heacock and J. W. Riches, "Waste Solidification - Cement or Urea-Formaldehyde," Paper 74-WA/NE-9 presented at ASME Winter Annual Meeting, New York, November 17-22, 1974.
17. H. W. Heacock, "Alternative Nuclear Waste Solidification Processes," Waste Management 75, University of Arizona, p. 177, July 1975.
18. R. H. Burns, "Solidification of Low- and Intermediate-Level Wastes," Atomic Energy Review, vol. 9, pp. 547-599, 1971.

19. J. H. Leonard and K. A. Gablin, "Leachability Evaluation of Radwaste Solidified with Various Agents," Paper 74-WA/NE-8 presented at ASME Winter Annual Meeting, New York, November 17-22, 1974.
20. J. A. Richardson, "Radioactive Waste Quantities Produced by Light Water Reactors," Nuclear Engineering International, vol. 19, p. 31, 1974.
21. R. A. Burns, "Liquid and Solid Radwaste Experience at the Nine Mile Point BWR," Paper 75-PWR-9 presented at ASME-IEEE Joint Power Generation Conference, Portland, Oregon, September 28-October 1, 1975.
22. F. L. Fey, "Monticello Nuclear Plant Radwaste System Operating Experience," Paper 75-PWR-24 presented at ASME-IEEE Joint Power Generation Conference, Portland, Oregon, September 28-October 1, 1975.
23. R. F. Blanks and H. L. Kennedy, The Technology of Cement and Concrete, Volume I, Concrete Materials, John Wiley & Sons, Inc., New York, pp. 28 and 204, 1955.
24. Brookhaven National Laboratory Progress Reports for the Development of Durable Long-Term Radioactive Waste Composite Materials, No. 1-10, July 1972-April 1975, Brookhaven National Laboratory, Upton, NY.
25. Brookhaven National Laboratory Progress Reports for the SRL Long-Term Waste Storage Support Progress, No. 1-8, July 1973-January 1975, Brookhaven National Laboratory, Upton, NY.
26. Treatment of Low- and Intermediate-Level Radioactive Waste Concentrates, Technical Report Series No. 82, STI/DOC/10/82, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria 1968.
27. H. L. Loy and D. C. Saxena, "Processing and Packaging of Solid Wastes from BWR's," Proceedings of the Third International Symposium on Packaging and Transportation of Radioactive Materials, August 16-20, 1971, Richland, WA., CONF-71081 (Vol. 1), USAEC, pp. 478-489, 1971.
28. Commercial Alpha Waste Program Quarterly Progress Report October-December 1974, compiled by C. R. Cooley, HEDL-TME 75-41, Hanford Engineering Development Laboratory, Richland, WA, February 1975.
29. J. G. Moore, H. W. Godbee, A. H. Kibbey, D. S. Joy, Development of Cementitious Grouts for the Incorporation of Radioactive Wastes, Part I: Leach Studies, ORNL-4962, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, April 1975.
30. R. M. Wallace, H. L. Hull, R. F. Bradley, Solid Forms for Savannah River Plant High-Level Waste, DP-1335, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, December 1973.
31. Savannah River Laboratory Quarterly Report - Waste Management, January-March 1973, DPST-73-125-1, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, 1973.
32. Bituminization of Radioactive Wastes, Technical Report Series No. 116, STI/DOC/10/116, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 1970.
33. Management of Low- and Intermediate-Level Radioactive Wastes, STI/PUB/264, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 1970.
34. H. Witte, J. Herzog, and R. Christ, Disposal of Radioactive Wastes from Nuclear Power Plants, Part I: Test and Part II: Appendices. Nukem GmbH and Transnuklear GmbH, Wolfgang bei Hanau/Main, NUKEM-73, April 1972, ORNL-tr-2684, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN.
35. W. Drent and H. Eschrich, Bituminization of Radioactive Wastes- Bibliography, ETR-274, Eurochemic, Mol, Belgium, June 1972.
36. Ib Larsen, Incorporation in Bitumen of Low-Level Radioactive Waste Water Evaporator Concentrate at the Danish Atomic Energy Commission Research Establishment Risø, Risø Report No. 276, Risø, Denmark, October 1972.

37. Y. Sousselier, Y. Schwob, G. Lefillatre, D. Cuaz, and A. Baer, "Conditioning of Wastes from Power Reactors," paper presented at the 1973 Winter Meeting of the American Nuclear Society held in San Francisco, CA, November 11-16, 1973.
38. W. Bahr, W. Hild, and W. Kluger, "Bitumenization of Radioactive Wastes at the Nuclear Research Center Karlsruhe," paper presented at the 1974 Winter Meeting of the American Nuclear Society held in Washington, D.C. on October 27-31, 1974. See also Karlsruhe report KFK-2119, Karlsruhe, Germany, October 1974.
39. G. Lefillatre and J. Leconnetable, "Bituminization of Radioactive Wastes: Safety Problems and Application Fields," Trans. Am. Nucl. Soc., vol. 20, p. 657, 1975.
40. E. Detilleux, et al, "Medium Level Waste Bituminization Plant and Engineered Storage Facility at Eurochemic," Trans. Am. Nucl. Soc., vol. 20, p. 658, 1975.
41. G. Meier and W. Bahr, The Incorporation of Radioactive Wastes into Bitumen, Part I: The Bituminization Plant for Radioactive Evaporator Concentrates at the Karlsruhe Nuclear Research Center, Karlsruhe Report KFK-2104, Karlsruhe, Germany, April 1975.
42. J. E. Stewart and Rainer Herter, "Solid Radwaste Experience in Europe Using Asphalt," paper presented at the American Society of Mechanical Engineers Conference held in Portland, Oregon, September 28-October 1, 1975.
43. C. L. Fitzgerald, H. W. Godbee, R. E. Blanco, and W. Davis, Jr., "The Feasibility of Incorporating Radioactive Wastes in Asphalt or Polyethylene," Nucl. Appl. Technol., vol. 9, p. 821, 1970.
44. Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending March 31, 1971, ORNL-4682, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, July 1971.
45. W. Drent, Effects of Microorganisms on Bituminous Materials - A Literature Review, ETR-275, Eurochemic, Mol, Belgium, June 1972.
46. J. A. Herickes and W. Shicker, Safety Characteristics of Waste-Asphalt Products, Summary Report TR-PL-9278, Dec. 1966. (Work performed under Contract P. O. No. 2064 with Atlantic Research Corporation, Alexandria, VA).
47. W. G. Courtney and D. R. Forshey, Investigation of Potential Hazards of Asphalt Fixation Wastes, Final Report No. 4066, July 23-October 31, 1968, U. S. Bureau of Mines, Explosives Research Center, Pittsburgh, PA. (Work performed under Contract No. 14-09-0050-3080 for General Electric Company.)
48. E. Backof and W. Diepold, Evaluation of Thermal and Mechanical Stability of Bitumen/Salt Mixtures, Institute for the Chemistry of Propellants and Explosive Materials, Berghusen/Karlsruhe Technical Report No. 9/70, Karlsruhe, Germany, Dec. 1970. (In German)
49. Investigations on the Hazards Caused by Incorporating NaNO_3 and NaNO_2 into Bitumen, work performed during 1970-1972 by the Laboratory of Applied Chemistry of the Royal Military School at Brussels under the direction of Professor E. Tits, IDL-Report No. 67, Eurochemic Industrial Development Laboratory, Brussels, Belgium, Feb., 1973.

50. Savannah River Laboratory Quarterly Report - Waste Management, July-September 1973, DSPT-73-125-3, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, 1973.
51. Savannah River Laboratory Quarterly Report - Waste Management, October-December 1973, DPST-73-125-4, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, 1973.
52. Savannah River Laboratory Quarterly Report - Waste Management, January-March 1974, DPST-74-125-1, Savannah River Laboratory, Aiken, S.C., 1974.
53. Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending May 31, 1967, ORNL-4145, pp. 115-22, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, Oct. 1967.
54. R. H. Burns and G. W. Clare, Bitumen Incorporation - A.E.R.E. Operational Experiences, AERE-M2143, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, UK, Nov. 1968.
55. Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending May 31, 1968, ORNL-4272, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, Sept. 1968.
56. Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending May 31, 1969, ORNL-4361, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, pp. 79-81, Oct. 1969.
57. T. Segawa, T. Hoshino, H. Miyao, H. Muto, and M. Yamamoto, Bituminization of Radioactive Wastes, Tests with a Bench-Scale Pilot Plant, Report PNCT-841-74-14, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp., Tokyo, Japan, June 1974. (In Japanese)
58. Uses of Local Minerals in the Treatment of Radioactive Wastes, Technical Report No. 136, STI/DOC/10/136, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, June 1972.
59. L. E. Brownell, C. H. Kindle, T. L. Theis, Review of Literature Pertinent to the Aqueous Conversion of Radionuclides to Insoluble Silicates with Selected References and Bibliography (Revised), ARH-2731 REV, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, December 1973.
60. G. H. Thompson, Evaluation of Mineralization Processes for SRP Wastes, DP-1389, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, July 1975.
61. G. S. Barney, Fixation of Radioactive Waste by Hydrothermal Reactions with Clays, ARH-SA-174, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, January 1974.
62. Atlantic Richfield Hanford Company Quarterly Report Waste Management and Transportation Technology Development, January 1975 through March 1975, M. J. Kupfer and W. J. Van Slyke, editors, ARH-ST-110 C, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, May 1975.
63. Atlantic Richfield Hanford Company Quarterly Report Waste Management and Transportation Technology Development, July 1974 through September 1974, M. H. Campbell and M. R. Kupfer, editors, ARH-ST-110 A, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, November 1974.
64. J. E. Mendel and J. L. McElroy, Waste Solidification Program, Volume 10: Evaluation of Solidified Waste Products, BNWL-1666, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, June 1972.
65. J. A. Kelley, Evaluation of Glass as a Matrix for Solidification of Savannah River Plant Waste, Nonradioactive and Tracer Studies, DP-1382, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, May 1975.
66. J. R. Grover and B. E. Chidley, Glasses Suitable for the Long Term Storage of Fission Products, AERE-R-3178, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, UK, 1960.

67. W. Bocola, A. Donato, and G. Sgalambro, "Survey of the Present State of Studies on the Solidification of Fission Product Solutions in Italy," Symposium on the Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, IAEA, Paris, France, p. 449, 1972.
68. W. Heimerl, et al, Research on Glasses for Fission Product Fixation, HMI-B109, Hahn-Meitner Institute, Berlin, Germany, 1971.
69. J. A. Kelley, Evaluation of Glass as a Matrix for Solidification of Savannah River Plant Waste, Radioactive Studies, DP-1397, Savannah River Laboratory, Aiken, SC, October 1975.
70. M. J. Kupfer and W. W. Schulz, The Endothermic Process--Application to Immobilization of Hanford In-Tank Solidified Waste, ARH-2800, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, July 1973.
71. M. J. Kupfer, W. W. Schulz, C. W. Hobbick, and J. E. Mendel, Glass Forms for Alpha Waste Management, ARH-SA-239, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, July 1975.
72. Quarterly Progress Report Research and Development Activities Waste Fixation Program April through June 1974, compiled by J. L. McElroy, BNWL-1841, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, July 1974.
73. R. C. Rastogi, J. D. Sehgal, K. Chandra, and K. T. Thomas, Investigation of Materials and Methods for Fixation of Low and Medium Level Radioactive Waste in Stable Solid Media, BARC-400, Bhabha Atomic Research Center, Bombay, India, 1969.
74. D. T. Rankin, J. J. Stiglich, D. R. Petrak, and R. Ruh, "Hot-Pressing and Mechanical Properties of Al_2O_3 with an Mo-Dispersed Phase," J. of Am. Cer. Soc., vol. 54, p. 277, 1971.
75. A. Dogu, G. Petitjean, and A. Accary, "Study of the Mechanism of Reaction Sintering Under Pressure," J. Nucl. Mat., vol. 30, p. 282, 1969.
76. S. Janes and J. Nixdorf, "Production of Dense Bodies from Carbides, Borides, Nitrides, Silicides, Oxides, and Cermets by Pressure Sintering," Ber. Deut. Keram. Ges., vol. 46, p. 60, 1969.
77. W. D. Pardieck and W. A. Zanolli, "Hot Pressing of Spherical ^{238}Pu Fuel Forms," presented at the American Ceramic Society Fall Meeting, Nuclear Division, San Francisco, CA, October 30-November 2, 1973.
78. R. Roy, "Ceramic Science of Nuclear Waste Fixation," presented at the 77th Annual Meeting of the American Ceramic Society, Washington, DC, May 3-8, 1975.
79. R. R. Jaeger, et al, "Production Process for Molybdenum Coating of $^{238}PuO_2$," MLM-1969, Mound Laboratory, Miamisburg, Ohio, November 18, 1972.
80. N. Moriyama, S. Dojiri, S. Emura, "Incorporation of Radioactive Spent Ion Exchange Resins in Plastics," J. Inorg. Sci. Tech., vol. 12, pp. 362-369, 1975.
81. R. V. Subramanian and R. A. V. Raff, "Immobilization of Low-Level Radioactive Wastes," presented at AIChE 80th National Meeting, Boston, MA, September 7-10, 1975.

1 3.0 揮発性放射性同位体の回収とオフガス処理

揮発性廃棄物は、再処理で燃料集合体をせん断及び溶解中に放出されるか、又は 2 次廃棄物の減容あるいは焼却処理で生ずる。 ^{85}Kr 、 ^{129}I 、 ^3H 及び ^{14}C は燃料の前処理及び溶解の過程で、Ru、窒素酸化物及び微粒子は副産物溶液の固化体、塩化水素および微粒子は塩素化された炭化水素を含んだ固体廃棄物の燃焼中に放出される。

揮発性放射性同位体および他のオフガス廃棄物は、環境への影響の度合によって放出されるか、あるいは回収される。主な放出法としては、高い排気筒からの希釈および拡散が用いられる。回収および処理法は、扱う廃棄物の種類によって大きく異なる。より複雑なシステムは、濃縮、単離および固定化を含む工程の組合せとなる。

揮発性放射性同位体を取扱う廃棄物管理システムには共通な問題がある。管理システムは、逃げる確率の高い ($P = I$) 低濃度の (たぶん取るに足らない濃度) 廃棄物を逃げる確率の低い高濃度の廃棄物に変換する傾向にあるので効果的な処理技術によって捕集した揮発性廃棄物を固定化するための信頼できる物理的あるいは化学的システムをつくらなければならない。

この章で述べる技術は、現在の環境保護規準を満足するためには必要ないかも知れないが、気体廃棄物管理に関して現在及び将来利用可能な方法を展望するために、これらの技術の概要を述べる。

1 3.1 クリプトン-85 (^{85}Kr)

核分裂で生成する希ガス (Kr 及び Xe) のうち、 ^{85}Kr だけは半減期が長いので再処理時に存在する。燃料中の大部分の ^{85}Kr はせん断及び溶解時に放出され、低濃度でオフガス中に入る。(^{85}Kr は存在する全 Kr 同位体の ~6% を占め、Kr は全オフガス成分の ~0.003% である。) ^{85}Kr の主要な放射線は 0.65 MeV のエネルギーの β 線で、その半減期は 10.73 年である。

^{85}Kr の大気中への拡散技術はあるが、地球全体での長期間にわたる蓄積を防ぐために ^{85}Kr の捕集及び貯蔵方法が提案されており、これらの中で低温蒸留 (深冷分離) による ^{85}Kr の捕集及び加圧シリンダへの貯蔵が現在適用できる技術と考えられている。商用再処理工場で利用可能であるがさらに開発を要する方法には、 ^{85}Kr の液体炭化フッ素による吸収、捕集およびゼオライト中への封入 (encapsulation) 貯蔵方法がある。他にも捕集および貯蔵方法が考えられているが、それを商用施設で予定されるプロセス流 (~12 mol/s 又は

550 stdft³/min)に適用するのは疑問である。

代表的な商用再処理工場に適用可能な方法で、⁸⁵Krを貯蔵するための年あたりの必要条件をTable 1に掲げる。

1,500トン/年の再処理工場からの年あたりの⁸⁵Kr生成量は9.81 MCi/年⁽⁹⁾と推測される。⁽⁸⁾加圧シリンダ(利用可能技術)およびゼオライト中への封入(開発が必要)は、Table 1で比較して示してある。Krはかなり純粋な組成を持っていると仮定しているが、もしXeのような不純物があれば貯蔵設備としてより大きな場所が必要である。これらの貯蔵技術のさらに詳しい評価は後で(14.1参照)述べる。

TABLE 1. Annual ⁸⁵Kr Storage Requirements for a 1500 Tonne/Yr Reprocessing Plant

Annual Production:

9.81 MCi of 6% ⁸⁵Kr in Krypton

Storage Alternatives:

Pressurized Cylinders (50-l)

77 Cylinders @ 35 Atm (500 psig), 60°C wall temperature

24 Cylinders @ 137 Atm (2000 psig), 127°C wall temperature

Zeolite Encapsulation (1.8 x 10⁻³ mole Kr g⁻¹ zeolite or 40 std. cm³ Kr g⁻¹ zeolite)

2,800 Kg Zeolite in 82 50-l containers

13.1.1 利用可能な技術

13.1.1.1 放出

この技術では再処理で生ずる⁸⁵Krを高い排気筒から大気中へ放出する。排気筒を設計し大気中へ放出する。排気筒を設計し大気中のガスの拡散を評価する技術は入手可能である。⁽¹⁾

使用済燃料中に存在する希ガスのほとんどすべては、燃料溶解の前処理中に放出される。大部分の商用核燃料の溶解は硝酸で行なわれ、溶解中にFPの希ガスであるKrおよびXeは回収されない窒素酸化物、空気および水蒸気とともに放出される。HNO₃の回収およびIの除去処理後、これらのオフガスはヒーター(凝縮を避ける必要があるとき)、プレフィルタを通り最後に高性能フィルタを経て高い排気筒から排出される。溶解オフガスは、排気筒から排出される前に普通はるかに大容量の換気空気と混合される。

排気筒から排出されると、⁸⁵Kr(唯一の残留放射性希ガス成分)はかなり広く知られてい

る拡散プロセスによって現在の規制条件以下に薄められるが、これは気象条件によって変わる。公衆の被曝は、主としてプルーム (plume) 中の浸積による。地表面の濃度は、通常の風の状態では排気筒から約 1,000 m の地点で最高となり、それを越えると連続的に低くなる。

プルーム中のあるガス成分の通常の濃度は、排気量、排気筒からの距り、排気筒の高さおよび拡散に左右される。拡散は風向、風速、地形 (高低) および気象上の特徴による。

^{85}Kr は食物連鎖に組み込まれないので、人の被曝は大部分プルーム中での浸積による。

公衆の被曝計算では人口密度と同様に排気筒から周辺監視区域境界までの距離が重要である。各種の気象条件における空気中の廃棄物濃度の評価について多くのレポートが発表されている。⁽¹⁰⁻¹²⁾

放射性希ガス成分による被曝線量は非常に小さいが、再処理工業の拡大に伴ってより多くの排出が予想され、局地的な ^{85}Kr 濃度が制限される可能性がある。最終的には全世界的なレベルが制限値まで上昇する可能性がある^(13, 14)と評価されている。

利用の可能性の現状

開発計画は必要では無いが、大気中への拡散を計画している特定の場所についての気象データは必要である。多くの場合、生の気象データは入手可能であるが、完全に拡散を解析するには数年間の十分なデータが必要である。

1.3.1.1.2 低温蒸留 (深冷分離)

希ガスの Kr 及び Xe を溶解槽のオフガスから低温で分離するには主成分の沸点の違いを利用する。^(2, 4) 例えば 1 気圧における沸点は、 N_2 , -196°C ; Kr, -157°C ; Xe, -108°C ^(15, 16) である。この種の Kr (6% ^{85}Kr 含有) および Xe の分離法の工程概略図を Fig 1 に示す。潜在的な危険性がある成分またはトラブルとなる成分を様々な前処理で除いた後、Kr および Xe は回収カラムでオフガスと分離され、さらに分離カラムで相互分離される。Kr および Xe のシリンダへの圧縮、封入ならびに遮蔽した移送カスク中への ^{85}Kr シリンダの設置を示した Fig 1 のその後の工程は、液体炭化フッ素吸収法のような他の Kr 除去法でも応用できる。1,500 トン/年の再処理工場に対する Fig 1 での全オフガス流量は $\sim 12 \text{ mole/sec}$ ($\sim 550 \text{ stdft}^3/\text{min}$) である。

Fig 1 に示したプロセスの個々の工程の詳細は以下に示す。中間貯槽 (hold tank) の目的は深冷分離装置の短時間の停止の間も燃料溶解工程の運転が続けられるようにするためだが、同じ目的は Kr 分離工程の装置を重複させれば達成できる。重複した装置及び中間貯槽の経済的優劣は個々の処理速度に対して決定される。

NO_x は NO_2 の固化を防止するために除去しなければならない。溶液洗浄及び固体床吸着が Idaho Chemical Processing Plant (ICPP) では用いられているが、その他の除

去技術については後で述べる(13.4参照)。

O₂除去工程は、深冷分離カラム中での放射線分解によるオゾンの生成を最小にするために必要である(爆発の危険のため)。O₂の除去法は、H₂との接触反応による再結合で水を作る方法である。(H₂ガスは約550°CのPd-Pt触媒上を通して工程に導入される)ICPPでは深冷分離システム中のオゾンの生成を他の方法で制御しているが、この方法を実規模で実証しないと再結合器を排除することはできない。^(15,16)

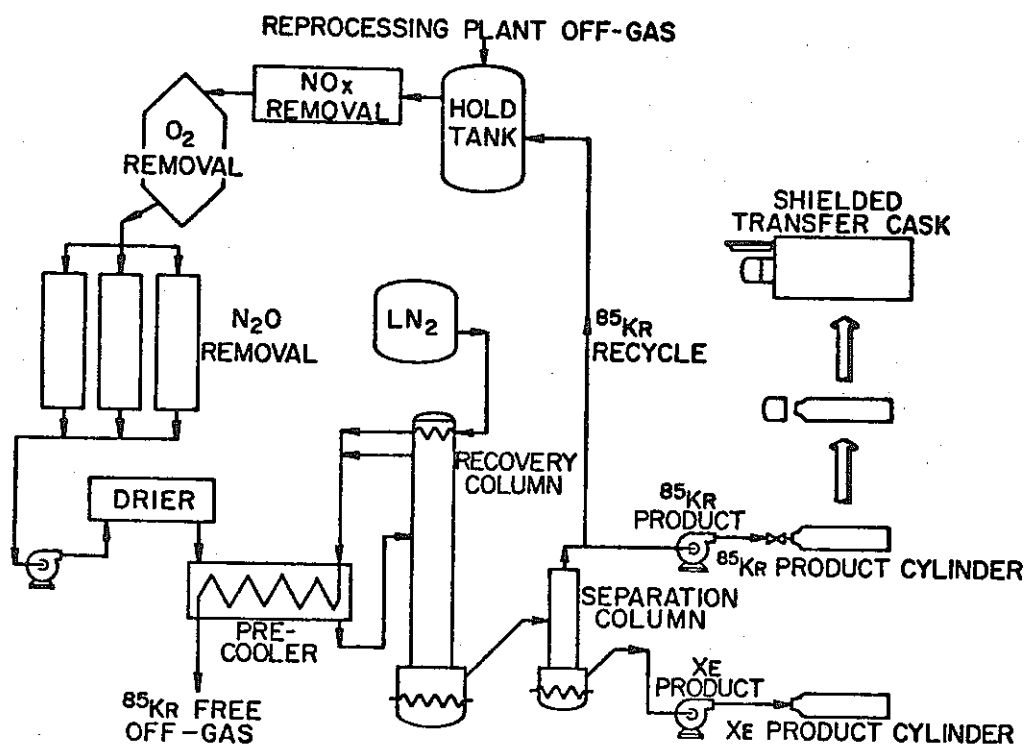


FIGURE 1. Process for the Collection of ⁸⁵Kr by Cryogenic Distillation

低温装置の過度の凍結及び閉塞を防止するためにN₂Oおよび水の除去が必要である。N₂O除去法には高温(370°C~600°C)触媒工程があり、ここでN₂OをN₂およびO₂に分解する。ICPPでは、基質にコーティングしたRh金属をN₂Oの除去に用い、870°CでH₂ガスの還元雰囲気^(15,16)で再生される。ドライヤによる水の除去は、吸着床又は凍結除去ユニットで行なり事ができる。

精製した工程ガスは再生可能なブローラで冷された後回収カラムにはいる。Krおよび

Xe は向流の液体 N_2 によってガス流から除かれ、カラムの下部で濃縮される。濃縮された Kr および Xe は流量を落してカラムの底部から、2 段階で運転される分離カラムへ入る。第 1 段階では、分離カラムには回収カラムの底部の液が連続的に供給される。Kr および Xe は連続的に集められ、一方軽いガス（主として N_2 と Ar）は中間貯槽にリサイクルされる。第 2 段階は周期的な運転であって、分離カラムへの供給を止めて分留によって塔頂から Kr ($\gtrsim 75\%$ Kr, $\lesssim 25\%$ Xe) 塔底から Xe ($\gtrsim 99.9\%$ Xe, $\lesssim 0.1\%$ Kr) を得る。Kr 生成物中にも 6% の ^{85}Kr が存在する事から、そのコンプレッサおよびシリンダはしゃへいされた遠隔操作のできる小部屋に収められている。次に、充填されたシリンダは貯蔵施設へ⁽¹⁷⁾ 輸送するためにしゃへいした移送カスク中に置かれる。このシステムの低温部分で必要となる多量の液体窒素の供給元は、商用供給が得られないときには小規模の液体空気分離プラントとなる。全ての低温装置は、不測の工程ガスの漏洩を封じ込められる隔離した構造の密閉された冷却ボックス内に置かれる。このプロセスは遠隔操作で運転される。

利用の可能性の現状

この処理法を構成する機器はすべて、 ^{85}Kr の除去で計画されているよりもはるかに大規模な液体空気プラントで広く用いられている。研究および工業的応用に供する ^{85}Kr を再処理工程のオフガスから回収するため、ICPP では深冷分離プロセスが断続的に運転されている^(15, 16)。ICPP の装置は環境規制に必要な高度の ^{85}Kr 回収効率を得られるようには設計されていないが、その運転によってこのような可能性が示されている。従って深冷分離による ^{85}Kr の回収技術は、商用スケールの再処理工場の実証システムの設計に利用可能な状態にある^(2, 4)。

主要な開発事項

商用再処理工場で ^{85}Kr を回収する実用上の限界を確認するため、統合した処理法の全体的な実証が必要である。全体的なシステムを長期間（1年もしくはそれ以上）連続運転することによって、信頼性、触媒の寿命、オゾン制御、運転コスト、装置の重複および ^{85}Kr の漏れの可能性の実用上の限界が確立されると思われる。

1.3.1.2 開発の必要な技術

1.3.1.2.1 液体炭化フッ素吸収

液体炭化フッ素による選択的吸収法は、PWR 及び BWR オフガスからの Kr の除去に商業的に提案されているが、この技術は商用再処理工場のオフガスからの Kr の除去ではまだ実証されていない^(18, 19)。この場合の Kr 除去の問題は、窒素酸化物 (NO , NO_2 , N_2O)、 CO_2 、水、I および ヨウ化メチルなどの代表的なオフガス不純物の存在が面倒なことである。いくつかの処理溶媒の再処理への応用が考えられているが、溶媒の容量、分離係数、⁽²⁰⁻²²⁾

不純物許容度，熱および放射線安定性ならびに総合的なプロセスの安全性及び経済性を考えると，refrigerant-12 (dechlorodifluoromethane) が最も総合的に有望であると判明した。^(20,23) 溶解度のデータによるとKrはN₂，O₂およびArよりも，refrigerant-12に著しく良く溶ける。⁽²⁴⁻²⁶⁾ さらに別の結果によれば，Kr除去用に設計した炭化フッ素ベースの処理法は，代表的な供給ガス中の不純物が妨害とならないばかりでなく，FP，I，ヨウ化メチルならびにCO₂としての¹⁴Cおよび窒素酸化物のような化学種を同じく効果的に除去する可能性がある。現在のところ選択的吸収処理法の長期間にわたっての信頼性を確立する必要がある。

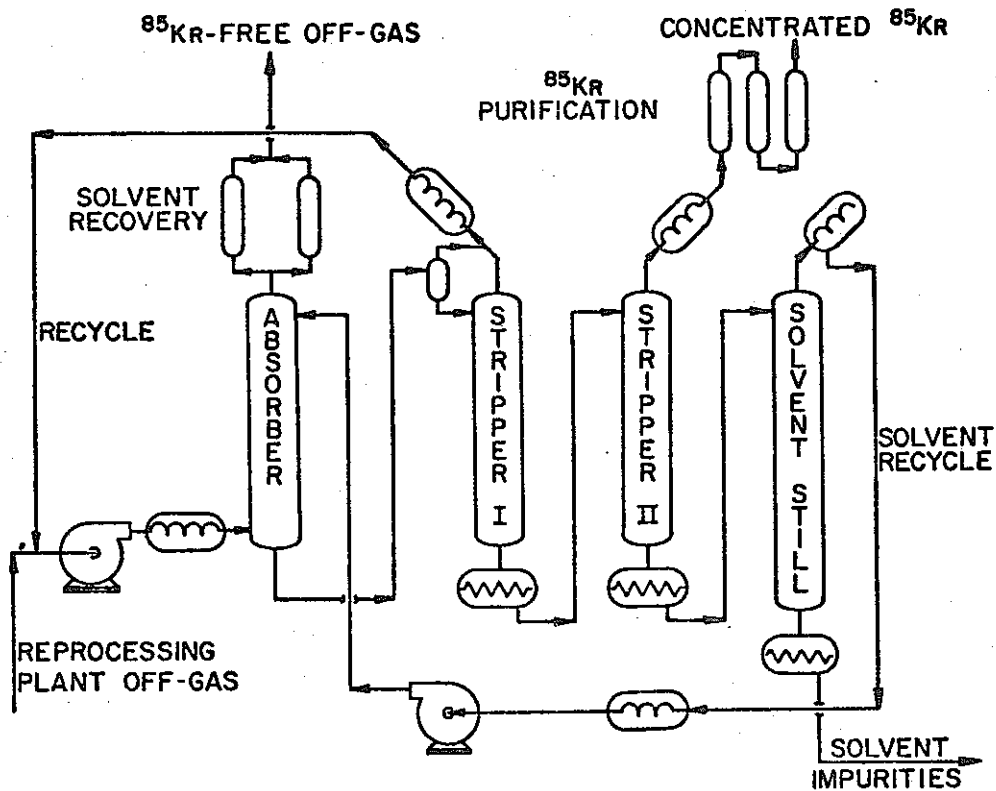


FIGURE 2. Process for the Collection of ⁸⁵Kr by Liquid Fluorocarbon Absorption

Fig 2はLWR燃料再処理工場のオフガス中からのKr除去を目的とした炭化フッ素ベースの選択的吸収処理法の概要図であり，3つの充填カラムがこの方法の主要な装置である。それぞれのカラムは，存在する可能性のある種々のガス成分および溶媒の気液間の一定溶解度の違いを利用するように設計されている。希ガス類の主な分離は吸収カラムで行なわれる。他の2つのカラムはそれぞれリボイラおよびオーバーヘッドコンデンサを有し，プラントの中間および最終のストリップ部を構成する。第1段ストリップカラムの目的は，吸収カラム底部から，装荷溶媒中の同時に吸収された担体 (carrier gas) の大半を除去する事にあ

る。最終ストリップカラムは、溶媒から残存する溶解ガスを除いて長期間の貯蔵に適する高濃度のKrガスを生成する。その他の主要な処理装置はガスコンプレッサ、溶媒ポンプ、ガスおよび溶媒熱交換器ならびにいくつかの冷却コンプレッサである。再処理工場で適用するのに必要な関連するその他の装置には、溶媒回収及び生成物精製の再生可能な吸着トラップおよび化学トラップならびに溶媒精製の蒸留カラムがある。⁽²⁷⁾

利用の可能性の現状

炭化フッ素処理法のパイロットプラント規模での開発は、1968年からOak Ridge Gaseous Diffusion Plant (ORGDGP) で進められている。原子炉への適用を指向していた初期の開発努力の結果99.9%のKr除去率が実証されており、⁽²⁸⁾LMFBR燃料の再処理工場のオフガス中のKr回収法への適用についての開発は1972年より開始されている。^(24,25)新しい計画のパイロットプラントは1973-1974年(会計年度)に建設され、1975年^(26,27)に運転を開始した。パイロット施設は5トン/日(1,500トン/年)のLMFBR再処理工場に必要なもの約1/5の規模で処理法の運転性、信頼性および模擬再処理工場オフガスを利用した性能についての評価をする計画である。計画された一連の7つのパイロットプラントキャンペーンならびに3つの実証および適用試験のうち、最初の2つのキャンペーンが完了している。

主要な開発事項

炭化フッ素吸収処理法を使ったKr回収システムを組み込んだフローシートは、Allied-General Nuclear ServiceのBarnwell再処理工場及びNuclear Fuel Service⁽²⁸⁾のWest Valley再処理工場⁽³⁰⁾で適用するために開発されている。これら2つの研究で選択的吸収法の商用再処理工場への適用性を実証した際に、さらに処理法の開発が必要とことが指摘された。特に生成物の精製の探究が必要であり、例えば最終ストリップカラムのオフガスをdesublimerおよび1つまたはそれ以上の吸収トラップまたはいずれか一方よりなる付加精製装置を通せば、かなり純粋なKr生成物が得られることが試験によってわかっている。⁽²⁷⁾長期間の不純物の影響および処理法の信頼性も確立する必要がある。入手できるデータによれば炭化フッ素処理法は再処理工場のオフガスからの他のFPの除去に使用可能である。試験の結果によれば、オフガス中の99.9%のKrを除去するように設計した炭化フッ素処理法は、オフガス中の¹⁴CがCO₂の形で存在すれば少なくともKrと同様の除去率でこれも除去する可能性が高い。基礎的処理法のこの潜在的な可能性は重要であって、さらに良くその限界を明らかにする必要がある。

REFERENCES

1. C. M. Slansky, H. K. Peterson, and V. G. Johnson, "Nuclear Power Growth Spurs Interest in Fuel Plant Wastes," Environ. Sci. & Technol., vol. 3, pp. 446-451, 1969.
2. C. M. Slansky, "Separation Processes for Noble Gas Fission Products from the Off-Gas of Fuel-Reprocessing Plants," At. Energy Rev., vol. 9, pp. 423-440, 1971.
3. B. J. Kullen, L. E. Trevorow, and M. J. Steindler, Tritium and Noble-Gas Fission Products in the Nuclear Fuel Cycle. II. Fuel Reprocessing Plants, ANL-8135, Argonne National Laboratory, Argonne, IL, March 1975.
4. C. J. Barton, "Separation and Containment of Noble Gases (A Review of Nine Papers Presented at the 1973 Noble Gases Symposium at Las Vegas)," Nuclear Safety, vol. 15, pp. 302-305, 1974.
5. J. O. Blomeke and J. J. Perona, Management of Noble-Gas Fission-Product Wastes from Reprocessing Spent Fuels, ORNL-TM-2677, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, November 1969.
6. G. W. Keilholtz, "Krypton-Xenon Removal Systems," Nuclear Safety, vol. 12, pp. 591-599, 1971.
7. B. A. Foster, D. T. Pence, and B. A. Staples, "Long Term Storage Techniques for ^{85}Kr ," Proc. Thirteenth AEC Air Clean. Conf., 1974, CONF-740807, NTIS, Springfield, VA, vol. 1, pp. 293-298, March 1975.
8. B. A. Foster and D. T. Pence, An Evaluation of High Pressure Steel Cylinders for Fission Product Noble Gas Storage, ICP-1044, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, ID, February 1975.
9. C. W. Kee, ORIGEN Code, PWR U-Equilibrium and Pu-Recycle Fuel, 25,000 MWd/MTHM Burnup, 35 MW/MTHM Specific Power; Program Output, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, October 1975.
10. F. Pasquill, "The Estimation of the Dispersion of Windborne Material," The Meteorolog. Magazine, vol. 90, pp. 33-49, 1961.

11. G. R. Yanskey, E. H. Markee, Jr., and A. P. Richter, Climatology of the National Reactor Testing Station, IDO-12048, Environmental Science Services Administration, Idaho Falls, ID, January 1966.
12. I. Van der Hoven, "Atmospheric Transport and Diffusion at Coastal Sites," Nuclear Safety, vol. 8, pp. 490-499, 1967.
13. M. M. Hendrickson, "The Dose From ^{85}Kr Released to the Earths' Atmosphere," Environmental Aspects of Nuclear Power Stations, IAEA Proceeding Series No. STI/TUB/261, IAEA, Vienna, Austria, pp. 237-246, 1971.
14. J. R. Coleman and R. Liberace, "Nuclear Power Production and Estimated ^{85}Kr Levels," Radiolog. Health Data and Reports, vol. 7, pp. 615-621, 1966.
15. C. L. Bendixsen and G. F. Offutt, Rare Gas Recovery Facility at the Idaho Chemical Processing Plant, IN-1221, Idaho Nuclear Corp., Idaho Falls, ID, April 1969.
16. C. L. Bendixsen and F. O. German, 1974 Operation of the ICPP Rare Gas Recovery Facility, ICP-1057, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, ID, March 1975.
17. C. W. Nielsen, Safety Analysis Report for Packaging Krypton Shipping Container, ICP-1077, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, ID, June 1975.
18. G. Griffith, "99% Cleanup of Nuclear Gaseous Wastes," Power Engineering, pp. 62-64, March 1973.
19. R. M. Hogg, "New Radwaste Retention System," Nuclear Engineering International, pp. 98-99, February 1972.
20. M. Steinberg, The Recovery of Fission Product Xe and Kr by Absorption Processes, BNL-542, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, 1959.
21. R. F. Taylor, "The Recovery of Fission Product Krypton from Nuclear Fuels," Industrial Chemist, pp. 358-364, July 1963.
22. M. E. Whatley, "Decontamination of HTGR Reprocessing Off-Gas," Proc. Twelfth AEC Air Clean. Conf., 1972, CONF-720823, NTIS, Springfield, VA, vol. 1, pp. 86-102, January 1973.
23. J. R. Merriman, Analysis of a Multicomponent Gas Coabsorption, Ph. D. thesis, The University of Tennessee, 1975.
24. J. R. Merriman et al., Removal of ^{85}Kr from Reprocessing Plant Off-Gas by Selective Absorption, K-L-6201, Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, Oak Ridge, TN, September 1972.

25. M. J. Stephenson et al., "Experimental Demonstration of the Selective Absorption Process for Kr and Xe Removal," Proc. Twelfth AEC Air Clean. Conf., 1972, CONF-720823, NTIS, Springfield, VA., vol. 1, pp. 11-27, January 1973.
26. M. J. Stephenson et al., "Absorption Process for Removing Krypton from the Off-Gas of an LMFBR Fuel Reprocessing Plant," Proc. Thirteenth AEC Air Clean. Conf., 1974, CONF-740807, NTIS, Springfield, VA, vol. 1, pp. 263-275, March 1975.
27. M. J. Stephenson and R. S. Eby, ORGBP Selective Absorption Pilot Plant for Decontamination of Fuel Reprocessing Plant Off-Gas, K-1876, Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, Oak Ridge, TN, to be published, 1976.
28. M. J. Stephenson et al., Application of the Selective Absorption Process to the Removal of Kr and Xe from Reactor Off-Gas, K-L-6288, Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, Oak Ridge, TN, February 1972.
29. E. W. Murbach et al., Fission Product Gas Retention Process and Equipment Design Study, ORNL-TM-4560, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, May 1974.
30. E. D. North and R. L. Booth, Fission Product Gas Retention Study Final Report, ORNL-TM-4409, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, August 1973.

1 3.2 ヨウ素 - 1 2 9

1 3.2.1.1 放 出

ガス状のヨウ素類は、元素状もしくは有機ヨウ素化合物の形で煙突から大気中に放出される。概算では、5 T/日の能力をもつ再処理工場から ^{129}I が 380 Kg/年生ずる。

ヨウ素浄化装置を使用しない場合は 90% 以上の I は放出され、この大部分は工場周辺区域に沈積するであろう。^(1, 2)

1 3.2.1.2 苛性洗浄

苛性洗浄はオフガス流から I を除去するのに用いられている。還元剤としてチオ硫酸ソーダを添加した苛性洗浄液（～1 モル）を用いれば純粋な空気中の元素状 I を効率よく除去することができる。この洗浄法は、代表的な再処理工場から生ずる全ヨウ素類の相当量を占める有機ヨウ素類に対しては効果がない。比較的多量の I が含まれる溶解オフガス系に苛性洗浄装置を使用すると、2 ケタの I の保持係数が期待できよう。槽類オフガス流に苛性洗浄装置を使用すると、I の存在量が相対的に低いためおよび反応しない化学種の割合が高いため、2 以下の保持係数しか得られないことが多い。

苛性洗浄媒体は、苛性溶液の循環している充填塔で一般に使用される。I を含有する苛性溶液はそのシステムから除去し、新しい苛性溶液を加えて苛性と炭酸塩の濃度を許容範囲内に保つ。この苛性洗浄媒体はまたオフガス流から CO_2 を除去する。もし洗浄媒体に NaOH を用いると、常に炭酸ソーダの溶解度が低いためにカラムの充填物中で閉塞の問題が起こることが多い。この問題は、洗浄媒体に KOH を用いると少なくなる。生ずる廃棄物の容量は通常、炭酸塩の蓄積量によって決まり、従って空気の処理量に比例する。例えば、 $60\text{ m}^3/\text{min}$ の洗浄装置では、0.6 モル KOH と 0.2 モルの K_2CO_3 を含む廃液を年間で $1,800\text{ m}^3$ 生ずる。

利用の可能性の現状

苛性洗浄技術は多数の再処理システムで利用されており、十分に開発済みであると考えられる。この苛性洗浄システムは、I の除去効率が低くて大量の I を含む廃棄物を発生するため、商業用の再処理工業で I の除去に適用するには限りがある。

1 3.2.2 開発の必要な技術

1 3.2.2.1 銀含浸吸着材による化学吸着

原則として、プロセスオフガス中のガス状ヨウ素類に銀交換（exchanged）または銀含浸吸着材（例えばゼオライト、シリカまたはアルミナ）と反応して化学吸着したヨウ化銀を

生ずる。この種の技術の利点は、a) 簡単で、b) 吸着材が不燃性であり、c) 高い吸着床温度を利用できること、d) 生ずる廃棄物が取扱いおよび梱包が簡単な乾いた固体であること、f) この吸着材はガス流中の有機および無機ヨウ素化合物を除去するのに非常に効果的なことである。欠点は、銀が高価なことと一回限りの使い捨て方法であるため貴重な資源が失われることである。代表的な操作条件ならびにI吸着床の位置等をFig1で説明する。揮発性のIを含むオフガスはすべて吸着材を通過させなければならない。さもないと、再処理工場のIの総括除染係数(DF)は吸着材をバイパスするIの量によって限定されることとなる。

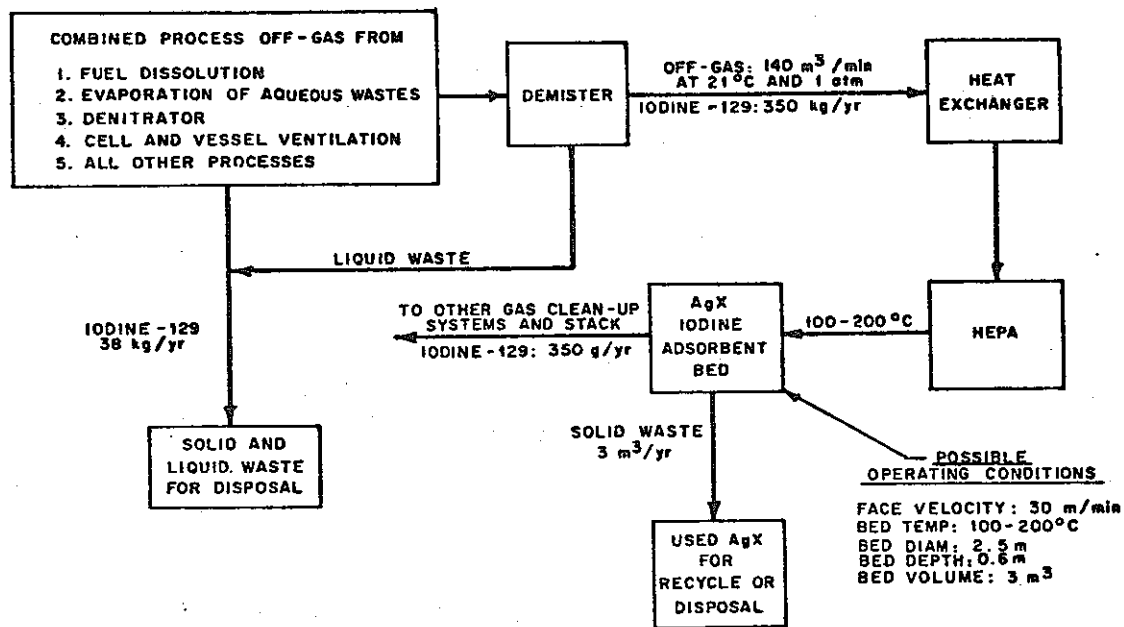


FIGURE 1. Iodine-129 Waste Disposal Process for a 5 Tonne/Day Plant

下記の仮定によれば、5トン/日の再処理工場から生ずる廃棄物の量は約3.5トン/年となり、3 m³の容積を占めよう。すなわち、a) ¹²⁹Iの年間発生量は380 Kgであり、b) 核燃料中に含まれるIの90%がプロセスオフガス中に放出され、c) 1,000以上のDFの場合の吸着材の吸着容量が100 mg(I)/g(吸着材)以上であると仮定する。

Iの除去に無機吸着材を使用すれば、腐蝕性の液体、高圧のシステムおよび可燃性の物質がないので、プロセスの安全性が相対的に高くなる。吸着床は望ましい操作温度に維持(たとえば、少なくともガス流の露点以上)してプロセスオフガスを通過させる。使用済の吸着床は新しいものと交換する。吸着した¹²⁹Iによる職業上被曝は、この核種の比放射能が低くて(1.63 × 10⁻⁴ Ci/g)、しかもβ放射体であるため特に問題はなからう。吸着した¹³¹Iは急速に消滅しよう。これらヨウ素廃棄物は簡単な金属またはプラスチック製の容器で暫定貯蔵できよう。

利用の可能性の現状

空気流中の I の除去に銀含浸吸着材を利用する方法は実証されている。^(4,5,6) 実験室試験では I₂ と CH₃I に対して 10² ~ 10⁵ の除染係数が得られている。このときの条件は吸着床の深さ 5 ~ 10 cm、フェイス速度 1.5 ~ 3.0 m/min、吸着床温度 25 ~ 400 °C である。プラントの後流の試験^(7,8)においても同様な操作条件下で 10³ 以上の DF 値が得られている。AGNS の Barnwell Plant (BNFP) で、1 次ヨウ素除去システムである硝酸第 2 水銀-硝酸溶液洗浄装置のバックアップとして銀・ゼオライト吸着材が設置されつつある。

主要な開発事項

銀交換ゼオライト (AgX) は商業的に適用するために開発されているが、さらに改善が必要である。フェイス速度およびベッドの厚さと AgX の吸着容量の関係を求めるため、Idaho National Engineering Laboratory (INEL) で 1 つの実験計画⁽⁹⁾が実施されつつある。そのほかにも、水蒸気、窒素酸化物および吸着床温度の影響が検討されている。

Ag は高価な資源であるため、使用済の AgX を再生する方法ができれば、吸着材を使用する技術の経済的な実用性が向上しよう。使用済の AgX を再生して再使用する乾式法⁽¹⁰⁾が検討されており、Fig 2 にこのプロセスの概念設計を示す。この方法では吸着サイクル用と脱着サイクル用の 2 系統の吸着床が設けられ、脱着した I は、500 ~ 600 °C のベッド温度で、純粋な水素気流により気体状の HI として除去されよう。そして、この HI は約 150 °C のベッド温度の鉛交換ゼオライト (PbX) に化学吸着されよう。5 トン/日の再処理工場の使用済 PbX の年間発生推定量は約 1.5 m³ である。リサイクルする時間は吸着期間にくらべて相当短いため、AgX の必要量は Fig 1 の場合よりも少なくなるだろう。

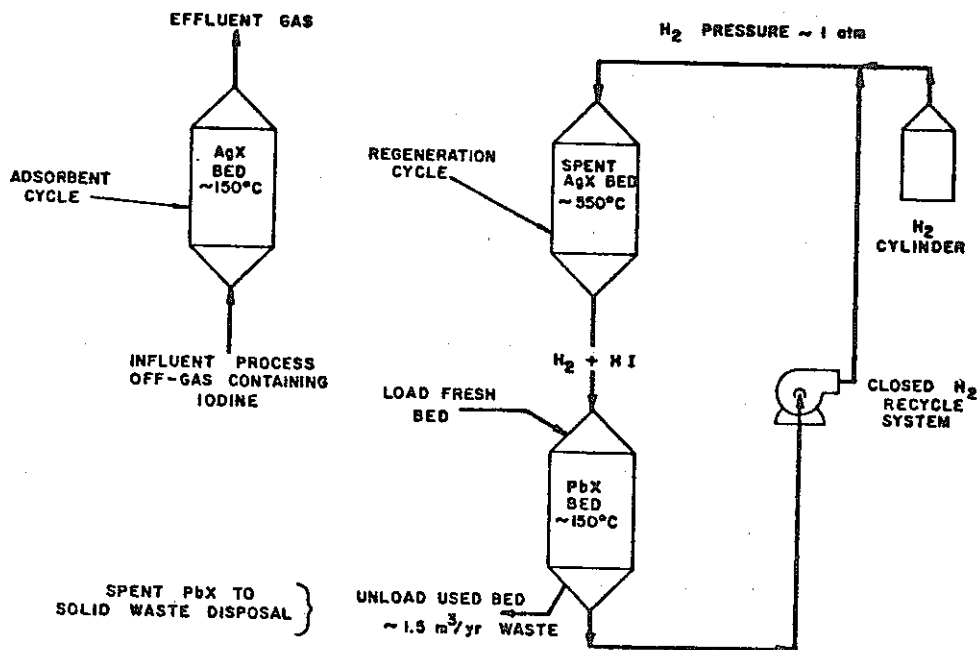


FIGURE 2. Regeneration and Recycle of AgX for Iodine-129 Removal

再処理工場へ適用するための設計基準は 1980 会計年度までには完成する見込みである。

1.3.2.2.2 金属含浸吸着材による化学吸着

この技術の原理および利点は銀含浸吸着材を用いた場合と同様である。より豊富で安価な興味ある金属は、鉛、カドミウムおよび第 1 列の遷移金属類である。この方法のさらに有利な点は、吸着材が安価であって使用済み物質の廃棄についての気づかいが少ないことであろう。欠点は、現在までに試験した吸着材の有機ヨウ化物に対する除去効率が低いことである^(4,6)が、しかし元素状の I の除去についてはこれらの吸着材が適用できそうである⁽³⁾。安全性および環境への影響については銀含浸吸着材を用いた場合と同様であろう。

利用の可能性の現状

この技術はまだ研究室レベルで開発されている段階である。実用設計が可能になる時期は研究室での研究結果による。現在、元素状 I に対する金属含浸ゼオライト（銀も含まれる）の吸着容量についてのデータはまだ報告されていない。カドミウム含浸ゼオライトが CH_3I で試験されているが、その吸着効率は重さ約 1% を吸着すると急激に低下する。これらの結果はさらに試験を続けるにはあまりにも低すぎると考えられた。

主要な開発事項

もし、 AgX 以外の適当な金属交換ゼオライトが開発されると、ヨウ素の除去に吸着材を用いる技術の経済的な実用性は大いに進展するであろう。数種の金属交換ゼオライトのヨウ素吸着容量を検討するため、INEL で 1 つの実験計画が行なわれている⁽⁹⁾。もし可能性がない場合は、使用済 AgX を再生するときに PbX を再生するときに PbX を 2 次吸着材として用いる構想が魅力的に思われる（銀含浸吸着材による化学吸着の項を参照のこと）。2 次吸着材としての PbX の開発は INEL で進行中である。

1.3.2.2.3 硝酸第 2 水銀—硝酸洗浄

最初に開発された硝酸第 2 水銀—硝酸洗浄システムでは、1 モル程度の硝酸および 0.1 ~ 0.4 モルの濃度の硝酸第 2 水銀 ($\text{Hg}(\text{NO}_3)_2$) を用いた⁽¹¹⁾。洗浄溶液は普通充填床型洗浄装置内でリサイクルされたが、溶液中の Hg と I のモル比が 4~10 へ落ちると洗浄溶液は廃液として除かれた。このシステムはオフガス流から元素状 I を除去するには効果的であったが、有機ヨウ化物に対しては効果がなかった。これは有機ヨウ化物に対する反応機構が非常に遅いためである。実際に工場に応用した場合には、前に除去された I がリサイクルする溶液から再放出されるので効果がさらに低くなる。

0.2 ~ 0.4 モルの Hg 濃度で硝酸濃度を 8 ~ 12 モルに上げると、有機ヨウ化物の除去効率が相当よくなる⁽¹²⁾。しかし、リサイクルシステムで前に I 除去された I が再放出されるので、I の実効総括保持係数は約 100 が限度であろう。廃液中に入る I の量は Hg 4 モルに対し I 4 モルが一般的である。従って、5 トン/日の再処理工場の硝酸水銀洗浄装置からの代

表的な廃液は、発生量が100ℓ/日であり、組成は8モルHNO₃、0.4モルHg(NO₃)₂でこれにIが1,300g含まれたものとなる。これは年間廃液量として30m³となる。固体のヨウ素酸第2水銀とするかまたはヨウ素酸ソーダとしてHgをリサイクルするヨウ化第2水銀の濃縮方法が、限られた実験室規模の研究で開発されている。⁽¹³⁾

利用の可能性の現状

充填塔を通して溶液をリサイクルして生ずる廃液を直接貯蔵または処分する硝酸第2水銀-硝酸洗浄システムは、政府直轄の施設で用いられており、またBNFPで建設中である。再処理工場のオフガスからのIの除去にこの方法を用いれば、多分Iの除染係数は約100となる。硝酸第2水銀を回収してリサイクルするとともにヨウ素廃棄物をヨウ素酸ソーダに変換する処理法の改善は、実験室である程度まで実証されている。

主要な開発事項

硝酸水銀-硝酸洗浄システムより生ずる廃液量を減少する方法および水銀のリサイクル方法をさらに開発すれば、この処理法の総合的な応用性は改善されるであろう。

1.3.2.2.4 Iodox 洗浄

ガス流からIを除去するIodox法(Fig 3参照)は、泡鐘塔の洗浄液として20~22モルの濃縮硝酸を使用する。この方法は溶解槽及び槽のオフガス中の全てのヨウ素類を効果的に除去し、不揮発性のヨウ素酸塩の形に酸化する。普通の設計の泡鐘塔において、ガス流速が約30m/分の場合のCH₃Iの保持係数は1段当り2~3であるが、これはガス流速に逆相関して変動する。⁽¹⁴⁾ 元素状ヨウ素の保持係数は、CH₃Iに対するそれとくらべて、通常約2倍高い。硝酸濃度が約20モル以上に維持されかつ除かれたHI₃O₈がその溶解度(25℃、20モルの硝酸中で~1.4g/ℓ)を越えない場合は、ヨウ素の保持係数は溶液の流量に余り影響されない。泡鐘塔の底からの流出液に含まれる除去されたIは、硝酸を蒸発して処分のために固体状にしてHI₃O₈として濃縮できる。I廃液から蒸発された硝酸はオフガス中に含まれる水分でいくぶん希釈されるので、I洗浄カラムの上部にリサイクルする前に再濃縮する必要がある。この濃縮段階は、共沸平衡を破って超共沸硝酸がえられるようにするため、⁽¹⁵⁾ 硝酸マグネシウムを用いた抽出蒸留によって達成できる。生ずるHI₃O₈を金属容器に直接入れて処分する場合は、処理能力5トン/日の再処理工場から生ずるI廃棄物を0.4m³/年にすることは可能である。ヨウ素酸塩を他の形状に変換するか、またはコンクリートで固めて処分する場合は、この容量は2~10倍大きくなる。

濃縮硝酸システムは普通のステンレス鋼に対しては非常に腐食性を示すので、Iodoxシステムの大部分はZrまたはTiの様な耐腐食性材料を用いてつくらなければならないだろう。

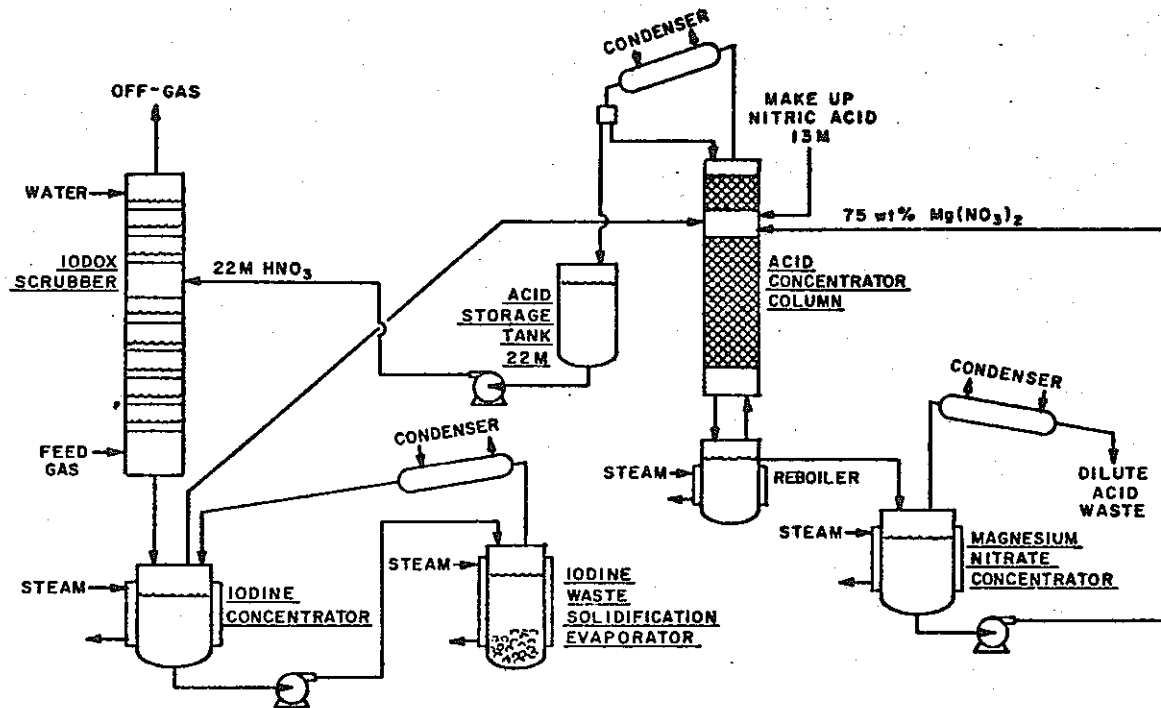


FIGURE 3. Iodox Process Flowsheet for Iodine Removal

利用の可能性の現状

(16)

洗浄カラム技術は実験室規模および小型工学規模で十分に実証されており、達成できるヨウ素保持係数には実用上の限界がないと思われ、 10^6 の保持係数が得られている。Iの保持は入気ガス中の NO_2 で悪影響をうける。そのため、 NO_2 を数パーセントにまで除去するかまたはこのことをシステムの設計で考慮に入れなければならない。ヨウ素廃棄物の濃縮及び取り扱い段階については実験室規模で限定された温度範囲内で実証されている。酸濃縮及びリサイクルシステムは商業の硝酸工場で多年にわたって実際使用されており、実証済の技術であると考えられる。現在、Iodox法の全工程を含む工学システムが、このシステムの可能性及び操作性を実証するために運転されている。この工程には、洗浄カラム、I廃棄物の濃縮及び固化システムならびに酸回収およびリサイクルシステムがある。このIodox法は、現在進行中の工学規模システムでの実験を終了し、商業利用が可能となる段階まで開発すべきである。

主要な開発事項

長時間にわたって運転してシステムの可能性と操作性を実証する必要があり、このことは現在の実験で計画されている。建設に使用する材料の長期間の耐食性についても確認する必要がある。

REFERENCES

1. D. T. Pence and B. A. Staples, "Solid Adsorbents for Collection and Storage of Iodine-129 from Reprocessing Plants", Proceedings of the 13th AEC Air Cleaning Conference, CONF 740807, p. 758, August 1974.
2. J. L. Russell and P. B. Hahn, "Public Health Aspects of Iodine-129 from the Nuclear Power Industry", Radiol. Health and Data Report, 12, p. 189, April 1971.
3. W. J. Maeck and D. T. Pence, "Application of Metal Zeolites to Radioiodine Air Cleaning Problems", Proceedings of the 11th AEC Air Cleaning Conference, CONF 700816, p. 607, September 1970.
4. D. T. Pence et al., "A Study of the Adsorption Properties of Metal Zeolites for Airborne Iodine Species", see reference 3, p. 581.
5. J. G. Wilhelm and H. Schuettelkopf, "Inorganic Adsorber Materials for Trapping of Fission Product Iodine", see reference 3, p. 568.
6. R. D. Ackley and Z. Combs, Applicability of Inorganic Sorbents for Trapping Radioiodine from LMFBR Fuel Reprocessing Off-Gas, ORNL-TM-4227, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, May 1973.
7. J. G. Wilhelm and H. Schuettelkopf, "An Inorganic Adsorber Material for Off-Gas Cleaning in Fuel Reprocessing Plants", Proceedings of the 12th AEC Air Cleaning Conference, CONF 720823, p. 540, August 1972.
8. G. H. Thompson and J. A. Kelley, Evaluation of Methods for Retention of Radioiodine During Processing of Irradiated ^{257}Np , DP-1373, E. I. duPont de Nemours & Co., Savannah River Laboratory, S. C., June 1975.
9. L. P. Murphy et al., "Airborne Elemental Iodine Loading Capacities of Metal Zeolites", Proceedings of the 14th ERDA Air Cleaning Conference, August 1976, to be published.
10. B. A. Staples et al., "A Dry Method for Recycling Silver Zeolite Used for Airborne Radioiodine Removal", see reference 9.
11. W. E. Unger et al., LMFBR Fuel Cycle Studies Progress Report for February 1970, No. 12, ORNL-TM-2918, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, pp. 29-31, March 1970.
12. W. E. Unger et al., Aqueous Fuel Reprocessing Quarterly Report for Period Ending December 31, 1972, ORNL-TM-4141, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, pp. 45-48, April 1973.
13. W. E. Unger et al., LMFBR Fuel Cycle Studies Progress Report for November 1971, No. 33, ORNL-TM-3663, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, pp. 23-27, January 1972.
14. W. E. Unger et al., Aqueous Fuel Reprocessing Quarterly Report for Period Ending September 30, 1973, ORNL-TM-4394, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, pp. 39-41, February 1974.

15. W. D. Burch, W. E. Unger, et al., LMFBR Fuel Recycle Program Progress Report for Period April 1 to December 31, 1974, ORNL-TM-4836, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, pp. 54-60, April 1975.
16. W. S. Groenier and B. A. Hannaford, An Engineering Evaluation of the Iodex Process; Part 2: Removal of Iodine from Air Using a Nitric Acid Scrub in a Bubble-Cap Column; Part 3: Correlation of Mass-Transfer Data; Part 4: Process Sensitivity to Impurities, ORNL-TM-4701, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, May 1975.

1 3.3 トリチウム

1 3.3.1 利用可能な技術

1 3.3.1.1 放出

再処理工場で生ずる³Hの放出については現行法を何等変更する必要はなく、また開発する⁽¹⁾必要もない。原子炉で生ずる³Hの98%またはそれ以上が燃料要素の中に保持されよう。再処理の過程に於る³Hの放出の分布はあまり明らかにされておらず、燃料の型式や再処理方法によって放出の分布が大きく変わることが観察、または予想されてきている。軽水炉燃料の再処理方法としてはビューレックス法が代表的である。再処理工場に於る³Hの十分な物質収支は入手できないが、再処理システムの一部に関する参考文献から推定される。^(2, 4~10)

核分裂によって生ずる³Hの一部は(その量に変動はある)ジルコニウム被覆管へ拡散し、ここで拘束されよう。この量は10~50%程度であり、炉内に於る燃料ピンの時間-温度履歴に依存する可能性がある。溶解操作を通じて約1%がHTとして逃げ、残りはHTO(³H₂O)となろう。ボロキシデーション(Voloxidation)または他のヘッドエンド工程を採用しない場合は、このHTOは水相に入って液体または気体のいずれかの形で放出されよう。

排気筒から蒸気として放出するには、居住区域へ到達する前に希釈するようにplume分散させなければならない。HTはHTOに比べ生物学的効果(経口摂取)がかなり小さく、またHTは大気中で非常にゆっくりとHTOへ転換するので、HTはHTOよりも多量に放出することが許されよう。^(3, 4) HTのRCG(Radioactivity Concentration Guide)はHTOよりも200倍高いので、少量のトリチウム水はHTへ電解して、気体として放出できよう。

溶解槽オフガス中のHTのHTOへの転換は、Kr回収用の低温装置からの非凝縮気体を酸化することによって行われようが、このような気体または液体を大気または地表水へ放出しても現行法以上の利点はない。^(3, 7)

1 3.3.2 開発の必要な技術

1 3.3.2.1 ボロキシデーション(Voloxidation)

ボロキシデーションとは、高温で更に酸化して酸化物燃料中の気体FPの放出を促進させるのに提案されているヘッドエンドプロセスである。このプロセスでは、せん断燃料を空気中で400~500°Cに加熱する。UO₂をU₃O₈に酸化すると生ずる相変化によって燃料ペレットはくずれる。物理的粉砕および結晶構造の変化によって、貯溜または結合してい

た気体は容易に追出される。このプロセスは、溶解前に照射燃料から ^3H 、I、Kr および Xe を除去する方法として具体化している。

(11)

Goode は、1973年までの研究を集約している。I および希ガスの除去に関しては部分的に成功しているだけであるが、このプロセスで ^3H は完全に放出されると思われる。したがって少量の水蒸気中に ^3H を濃縮することが可能で、この水蒸気は捕集して隔離できる。概念的フローシートを Fig 1 に示す。

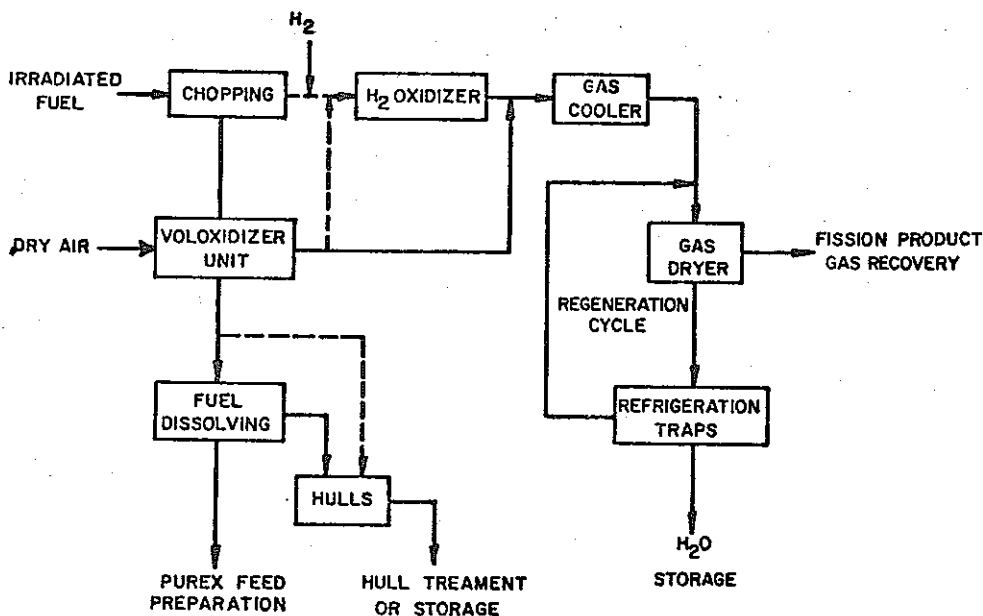


FIGURE 1. Voloxidation Process

最初に、乾燥した燃料要素を細片にせん断して連続ロータリキルンへ供給する。温度を $450 \sim 500^\circ\text{C}$ に保持し、 $\text{UO}_2 \rightarrow \text{U}_3\text{O}_8$ の酸化に必要な過剰な酸素が十分に供給されるように空気を導入する。酸化された燃料は溶解槽へ送り、一方ジルカロイハルは洗浄して廃棄処分とする。代りの方法として、ハルを溶解槽に導入してもよい。せん断工程のオフガスは、接触酸化塔を通して ^3H をすべて HTO へ転換したのち、ボロキシデーションユニットからのオフガスと合流させる。水分は、冷却モレキュラーシーブサイクルを組合せて利用し、除去する。水の除去には種々の方法が可能である。 HTO の除去率を上げるため、水素を酸化塔の前へ加えるか、または過剰の水をサイクルの乾燥部分へ添加することもありうる。考えられる添加場所を Fig 1 に示す。

水の排水量は確定していないが、ピューレックス法による工場の総排出量 10^5 l/日 に比べ、5 MT/日の工場で 100 l/日 以下となる。

ボロキシダイザとしては、直径1 m、長さ2～7 mのロータリキルンが提案されている。^(12,13,14)
ロータリキルンを小さくすることにはUO₂の酸化による発熱、被覆管内のペレットの酸化に要する時間および良好な温度コントロールが必要なために一定の限度があろう。Stearns-Rogers, Incの最近の設計では、最小直径として約1 m、最大長さ約50 mのものを推奨している。⁽¹⁵⁾

構造材としては、軟鉄の殻を持った鑄造した25-12 HH合金やインコネルが提案されているが、機械的研摩や酸化性ガスによる腐食に問題がある。漏洩防止のため、キルンの両端を十分に密封しなければならない。発熱反応であつて、キルンからの除熱が必要であるが、キルンは電気加熱されよう。

H₂またはHTをH₂OおよびHTOへ酸化するには標準の再結合触媒を用いるが、もしヘッドエンドのせん断ガスがすべて加熱された炉を通過するのであれば必要でないかもしれない。⁽¹³⁾
AGNSの調査によれば400～600℃で用いるNi-Cr-Pdリボン触媒が示唆されている。

ボロキシダイザの運転条件は主として温度によって決められる。PuO₂を含む燃料や照射履歴が異なる燃料では多少この温度を調整する必要があるあろう。³Hの放出は100～150℃で始まるが、最大濃度は450℃またはそれ以上で起こる。^(11,16)
LWR用UO₂燃料では450～500℃の範囲が提案されており、帯留時間は約4～6時間が必要となる。

これまで、より高い温度が用いられてきたが、あまり高いと a) はげしい発熱反応の制御が困難になること、および b) 局所的な焼結が起こるためにFPガスが捕捉されてその拡散が妨げられることの原因から一般的には好ましくない。酸化速度は気体中の酸素含有量の増加とともに増加するが、⁽¹¹⁾反応速度を遅くし、また熱除去を増加させるなどのプロセス制御上の理由から空気が選択される。高い温度、すなわち480℃以上ではUO₂の酸化率は減少する。

問題点としては次のようなものがある。

- 1) 熱除去が不十分であるために起こるUO₂とO₂の暴走的反応
- 2) Zrの微粒子が存在するとき生ずる可能性のあるジルコニウムハルの急激な酸化。
- 3) キルンの密封部やシステムの他の部分の破損を通しての³Hおよび他のFP気体の漏洩。
- 4) Ruおよび他のFPオフガス系で沈積する可能性があること。ボロキシダイザ内で空気を向流で流すとこの問題が悪化するキルンでの還流が起こるかも知れないこと。
- 5) U₃O₈微粉末が生成すると操作上の危険が増し、溶解の制御が厄介になる可能性があること。
- 6) ボロキシダイザユニットに於る臨界管理の確証が必要。
- 7) 照射燃料を装荷しているキルンの運転が停止した場合にキルンの殻の熱歪および破損の可能性があること。

8) ダストのコントロール

9) ボロキンダイザの洗浄

利用の可能性の現状

LMFBR 計画のもとに、種々の (U, Pu)O₂ 未照射燃料および照射燃料を用いた広範な実験データが得られている。これらの内容は、温度、時間、回転速度、燃料の事前調整ならびに燃料の燃焼度および温度を含めた照射履歴などのパラメータ研究である。しかし、これらの研究は大部分概要調査的なものであつて一様な燃料サンプルが入手可能かどうかによつて制限を受けた。X線結晶学および熱重量分析研究を通じて反応の詳細に関するデータも得られている。⁽¹¹⁾

工学的開発は回転式か焼炉での未照射 UO₂ を用いた限られた試験だけであり、照射された LWR 燃料を用いたパイロットプラントでの実証が必要である。⁽¹³⁾ AGNS の研究によれば、(再処理工場に於る)計画開始からコールドテストまでに 4.5 年を要することが示唆されている。また操作ユニットが "on line" となるには 5~7 年が必要であろう。

主要な開発事項

F P 気体の燃料中よりの放出(または逆に保持)機構は完全に理解されていない。特に I および希ガスはその一部分だけしか放出されないことを考えるとそうである。これらの元素の照射燃料中に於る形態および進行する反応の研究が望まれる。

設計の情報を含めた技術的なニーズは次のようである。

- ボロキンダイザの構造材
- 回転ユニットの密封機構の開発
- 大きさおよび運転条件の計算のためのデータ
- Ru と Cs の沈積および除去方法に関する情報
- 要求されるせん断燃料片の大きさに関する情報
- 燃料組成および照射履歴の影響に関する追加データ
- 元素状水素 (³H) の量の決定および再結合と水除去の実証
- キルンからの熱分散を実証するための構造上および運転上の詳細

1.3.3.2.2 高温化学処理

高温化学処理には高温の乾式法が含まれるが、本論では酸溶解する前に行なう燃料の処理、たとえばヘッドエンド処理だけを考える。ボロキシデーションと同様にヘッドエンド処理は 2 つの段階がある。すなわち、a) せん断および脱被覆またはいずれか一方と b) 揮発性 F P を放出させるための酸化物燃料の処理である。

種々の概念も含めてかなりの開発研究が行われてきたが、Purex 法のヘッドエンド工程として可能性があると思われる LWR 用の個々のプロセスについては、完結したプロセスが

実証されていない。

溶融による脱被覆はステンレス鋼被覆燃料に研究されてきており、基本的にはジルコニウム被覆燃料に使用できよう。しかしステンレス鋼の約 1,450°C に対して Zr の 1,840°C という高い融点を考えると、多分この方法はジルコニウム被覆燃料に対しては実際的でない。

他の方法として、被覆管を他の溶融金属で合金にするものがある。ステンレス鋼被覆燃料には Zn が広く研究されている。シルカロイも 800°C で溶解することがわかっており、したがって LWR 燃料の Zn (又は他の溶融金属) 脱被覆は可能である。Sn についても示唆されている。

他に、酸化燃料が第 2 段階の揮発性 FP の放出過程で露出するように燃料を小片にせん断する方法がある。

第 2 段階は、 UO_2 が U_3O_8 に酸化されるポロキシネーションとは対照的に、普通は還元工程であって、溶融塩の存在下での還元により、U および Pu は金属に還元されよう。Zn, Ca, Mg, 他の還元性合金および $CaCl_2$ のような塩の混合物を酸化燃料といっしょに約 800~900°C に加熱する。主な反応は $UO_2 + 2Ca \rightarrow 2CaO + U$ で、塩は金属相から分離される。再循環のために Mg, および Zn を蒸留した後、U および Pu は水-溶媒抽出処理のために酸溶解槽へ送る。

金属の蒸留に問題があることが知られており、代りの方法にカルシウム窒化物を添加して U および Pu を窒化物として沈澱させるものがある。^(20, 21) 窒化物は酸溶解槽へ送って Purex 法の給液を調整する。

反応を次に示す。



FP である 3H および希ガスは、いずれも脱被覆と還元の間で放出され、ポロキシネーション工程に於ると同様に扱われる。I は大部分、塩の相に保持される形跡がある。他の FP の揮発が著るしいので重要な問題となる可能性がある。

簡略化した高温化学のヘッドエンドを Fig 2 に示す。

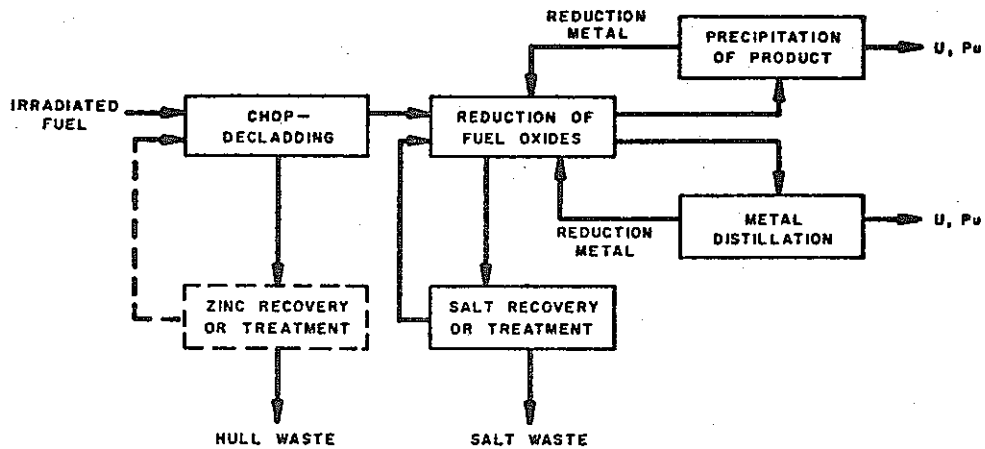


FIGURE 2. Pyrochemical Process

工程は次の様に集約できる。

- 脱被覆
- Zn-Mg-Ca 合金による還元
- 組成の調整。十分に存在する CaCl_2 が CaO の分離するのを妨げる。過剰の Ca と反応し、溶融体中に U を保持するよう MgCl_2 を添加する。
- 生成溶媒の蒸発、または U 、 Pu プロダクトの沈澱。
- 蒸発による Zn の回収。(亜鉛脱被覆の場合)

構造材としては、 W 、 Mo 、 Ta などの融点の高い金属がセラミックやグラファイトといっしょに使用され、反応槽の他にポンプおよびその他の移送装置にも材料の制限が生じよう。

このプロセスより生ずるものには、貯蔵処理される FP 気体、溶解すべき金属燃料、塩廃棄物ならびにリサイクルおよび貯蔵される金属廃棄物がある。 Cs や他の金属 FP はその揮発性が高いので FP 気体の回収が複雑になる可能性がある。それは別として、高温化学処理の大きい変化は、 Zn 、 Mg などの金属廃棄物ならびに CaCl_2 、 MgCl_2 、 KCl などの塩廃棄物の生成である。廃棄物管理全体に対するこれらの影響は、リサイクルの範囲およびその難易に依存しよう。 Zn 、または他の液体金属による脱被覆法が採用される場合には、多量の Zn 廃棄物が生成する。

塩相には、還元によって生ずる CaO に加えて、 I を含む相当多量の FP が含有されよ
(22) (18)
 う。塩をリサイクルすれば、 CaO の一部は少量の塩の中に沈澱する。

高温冶金法の長所は、(a) 亜鉛脱被覆を除き小容量で済む可能性があること、(b) 気体 F P が効率よく除去され I が捕集されること、(c) 発生する廃棄物が固体であること、(d) 中性子減速材が無いこと、および(e) プロセスの融通性があることである。短所は、(a) 腐食性金属を含む高温プロセスが、主として経験不足のために困難であること、(b) 種々の金属 F P の過度の揮発性に伴う問題が生ずるおそれのあること、(c) もし回収できないときは Z n 廃棄物の量が多くなることである。

利用の可能性の現状

高温冶金法の技術的な可能性は実験室で実証されている。研究はほとんどすべて Argonne National Laboratory (ANL) で行われているが、研究の対象はこの方法を用いて特殊な利点がある LMFBR 燃料が主である。装置の開発はさらに必要であり、各種の案の最適な組合せの決定、装置の開発、構造材料に関する情報の収集ならびに F P の挙動の決定のために、照射済燃料を用いて実験室およびパイロットプラント規模でさらに試験しなければならない。したがって、高温化学法は技術的には可能と考えられるが、プロセスとしては実証されていないものとして分類すべきものである。

主要な開発事項

上で論じたように、高温化学操作に関する技術データが不足するために必要な情報が得られていない。個々のフローシートの装置を製作して、徹底的な試験を行ない、また、システム全体を操作および保守の立場から評価する必要がある。LWR 燃料のための脱被覆プロセスは深く研究されていない。必要な科学データは、金属合金および塩類中に於る平衡および反応速度（特に F P に関する）に関する情報である。³H の挙動は未知であり、種々の化合物の安定性に基づいて予測することはできるが、測定が必要である。まだ研究されていないが、一つの可能性のある問題として、溶解された被覆の Zr による照射された酸化物の部分的な還元がある。

1.3.3.2.3 HT/H₂O 接触交換 (catalytic exchange) による同位体濃縮

³H は例外として、軽水炉の運転中に生ずるすべての放射性同位体は化学的または物理的分離プロセスによって廃液流から除去される。しかし、これらの廃液から ³H を除去するには、同位体分離プロセスを開発しなければならない。水からの ³H の同位体分離については、これまでに 100 以上のアイデアが考えられている。^(23,27) Ribnikar と Pupezin の論文にも他の方法について記述されている。⁽²³⁾ 可能性のある ³H 除去法については多くの技術的および経済的なフイジビリティ研究が行われており、これらのうちの多くは重水 (D₂O) 分離プロセスの経験およびデータに基づいている。^(24,27)

重水生産プロセスの基本的な分離方法の多くは、水中の ³H の除去に対しても技術的に可能性がある。しかし、³H の除去には重水生産の場合より大きなストリップン

グおよび回収係数が必要である。必要とする高い回収性を得るために、実行可能な³H除去プロセスでは高い同位体分離係数が要求されよう。

水素-水の化学的交換プロセスは要求される高い同位体分離係数を持っており、水のフィードに非常に適している。さらに、水素と水との交換を通じての水素同位体濃縮の技術的可能性は確証されており、このプロセスは重水の大規模生産に用いられている。⁽²⁸⁾従って高い同位体分離係数および技術的可能性に基づいて、廃水中の³Hの除去法の開発および実証にもっとも見込のあるものとして選定されている。

basin プロセスの改良法を開発し、また、軽水炉および再処理工場から生ずる特殊な濃度と種類の低放射性廃液(LLAW)中の³Hの分離を実証するため、Mound Laboratoryで研究が進行中である。このプロセスは、いくつかの研究炉およびすべてのアメリカ政府の生産炉で減速材および冷却材として用いられている重水(D₂O)からの³H除去にも利用されよう。

HT/H₂O接触交換の改善方法は濡れない(antiwetting)疎水性触媒の使用に基づいており、これによって液体の水と気体の水素とが直接接触して化学交換反応することが可能となり、その結果、現行の接触交換技術で普通経験される触媒の非活性化および反応炉設計の複雑さの問題がなくなる。^(29,30)疎水性触媒の使用は改良型重水プロセスを目的とした研究に関連して最初に報告されている。⁽³²⁾その触媒は、シリコンやテフロンのような半透膜の水をはじく材料でコーティングしたアルミナ基質の白金でできている。

HT/H₂O交換の最も高い同位体分離係数は低温で得られるが、これは化学平衡 $HT + H_2O \rightleftharpoons HTO + H_2$ が低温では右方向へ移動する性質によるものである。平衡定数は25°Cで約6である。蒸気の状態での蒸気-水素反応を含むプロセスは、水の凝縮防止のためにより高い温度が必要であり、結果的には同位体分離係数が低くなる。疎水性低温混合相系は潜在的に気相系より多くの長所を持っている。例えば、同位体分離係数および処理容量は高く、エネルギー消費は低く、しかも装置が簡単である。

LLAW中のトリチウム除去のために、HT/HTO接触交換プロセスの二つの選択的な適用法がある。第1の方法は、そのプロセスを全廃液流に応用して、処理済み廃液流が環境へ放出できる程度にまでトリチウムを減少させるものである。この方法は、RibnikarとPupczyn⁽²³⁾が“ストリッピング”法と称している。第2の方法は、第1の方法と同様な濃縮されたトリチウムの流れを生ずるが、³Hの除去の割合は低くて処理済液は原子炉へリサイクルされ、³H濃度を工場内従事者に適用される被曝規制値に見合った一定値に維持する。⁽²³⁾RibnikarとPupczynは、これを“リサイクル”法と称している。

³H除去系の設計基準を選ぶに当たっては、上記の2方法について広い選択の巾がある。例えば、LLAW処理量および³H濃度レベルなどの規制因子および工場内のパラメータ

ならびに必要な³Hの分離および濃縮度に影響する。

LLAWからの³Hの除去に必要な処理量は、適用法によって広範囲に変化しよう。同様に、必要な分離および回収の割合もかなり変化する可能性がある。例えば、PWR冷却水の³H除去にリサイクリング法を適用したときの内部の水の流れは10-50ℓ/hrであり、総括分離係数は100から1,000が必要であろう。これと比較して、再処理工場のLLAWへストリッピング法を適用すれば500-2,500ℓ/hrの処理容量と $10^{11} \sim 10^{13}$ の総括分離係数が必要となる。水の³H除去に係る経費は処理量の増加とともに増加し、また総括分離係数の増加とともに増加するので、“ストリッピング”法(Fig 3)の再処理工場への応用は、経費の観点から最も好ましくないと言えよう。その理由は、再処理工場のLLAWにストリッピング法を適用した場合、処理量および分離に対する要求が最大となるからである。

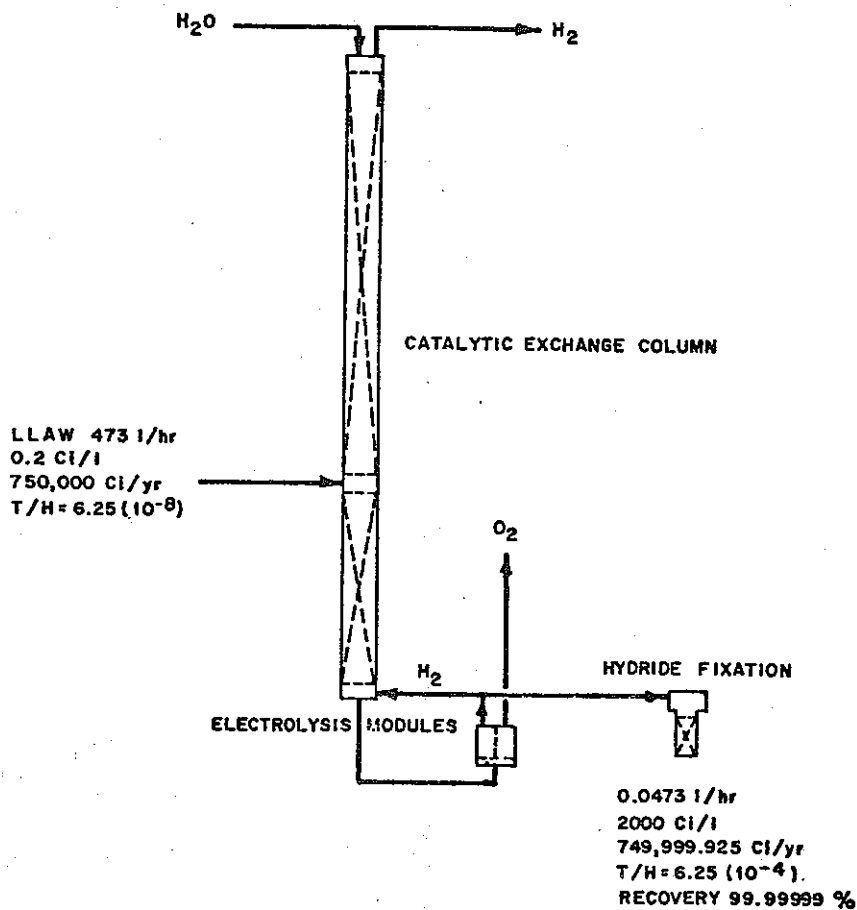


FIGURE 3. Isotopic Enrichment by HT/H₂O Catalytic Exchange

利用の可能性の現状

HT/H₂O 接触交換プロセスを用い、廃液中のトリチウムを除去するための実証ユニットの製作を目的とする計画は、現在Mound Laboratoryで進行中であり、触媒評価を終えて1976年には完成する予定である。もし、触媒評価試験が成功すれば、実証試験に先立って多段のパイロット規模のトリチウム除去システムが評価されるであろう。

接触トリチウム除去プロセスの基本設計のパラメータは1976年にはほぼ入手可能と思われる。また、実証ユニット概念設計はその後開始されることとなる。実証プラントの詳細設計と装置の調達、製作および試験に3年を要するとすれば、HT/H₂O 接触交換トリチウム除去プロセスの実証プラントの準備には約5年が必要であろう。

主要な開発事項

このプロセスの実証を成功させるために最も重要な事は、疎水性触媒の活動度および寿命に対する微量の有機溶媒、HNO₃、FP、I、および金属FPのイオンの影響であろう。PWRや再処理工場のLLAWを用いての実際の実証試験で得られるデータだけで最終的なプロセスの可能性は十分確認されよう。

1.3.3.2.4 レーザー励起による同位体濃縮

光による分子励起は、化学反応を開始したり、影響を与えたりするために化学者によって長く用いられてきた。しかし、レーザーが利用されるまでは、そのような光触媒反応は実際にはすべて太陽光線や光ランプなどの広帯域の放射線を使用して行っていた。今では、レーザーは極端に狭い周波数幅の非常に強力なものが得られている。多くの場合、周波数幅がこのように狭いため、ある特定のタイプの分子を同じ系にある同様な（同じではない）分子に影響を与えることなく、選択的に励起することができる。したがって、レーザー励起を用いれば、系の中の特殊な反応速度に影響を及ぼして熱反応とは異った特性の生成物が得られよう。⁽³³⁾ GoodmanとThieleは、光触媒反応では、反応速度を10⁵程度高めることが可能であることを理論的に示している。

HTOとH₂O分子は異なった振動単位を持っており、レーザー照射で一つの同位体核種を選択的に励起することが可能であり、従ってこれを選択的に反応させることができる。理論的には非常に高い分離係数が得られるので、濃縮された³H生成物を貯蔵できる。

光学的な励起法を用いて水素の同位体を分離できる可能性のある方法は少なくない。第1に、³Hを含む分子を直接、不安定な電子状態にまで励起できよう。第2に、³Hを含む分子を励起して、そのポテンシャル作用表面（action surface）が不安定な電子状態と交差して自由な解離プロセスが可能となるような安定な状態とすることができよう。このプロセスは前期解離（Predissociation）と呼ばれるものである。第3に、³Hを含み基底電子状態にある分子は、他の分子と迅速かつ選択的に反応して化学的に水

から分離される生成物を生ずるよう、十分高い準位に振動励起できよう。第4に、選択性を与える振動励起および解離を生ずる電子励起の組み合わせも有用かも知れない。これらのプロセスはすべて考慮されてきた。

もし、紫外線レーザーが利用できれば、周辺の分子へのエネルギー損失もなく水を直接解離することができよう。HTOも適切な実験条件のもとでこのプロセスを用いることにより、効率的かつ選択的に解離できる可能性がある。これらの条件は、HTOの電子スペクトルによって決まると思われる。しかし、基本的な問題は、この方法を実行するための適切なレーザーが現在利用できないことである。第2の方法、すなわち前期解離は、最初のものより周波数の高いレーザーが必要であっていつそう非能率的となる。

技術の現状でもっと有望と思われる方法は、HTO分子を振動励起するものである。これは下記のいくつかの方法で行なえよう。すなわち、(1)基底状態および励起状態の振動/回転の遷移に関する詳細な知識が得られれば、数回の遷移を経てHTO分子を反応レベルにまで引き上げることのできる1つ以上の振動数を選ぶことができよう、(2)HTO分子を高い振動準位に励起すると同時に、第2のレーザーまたは光ランプでエネルギーを供給して、この分子を選択的に不安定な電子状態にまで励起する、(3)HTO分子の内部緩和により高いレベルに移って分子が解離するように最初の振動転移に十分な出力を与えるなどの方法である。

これら3つの方法はすべて可能性があるように思われる。基本的な分光分析データが不足しているために、実験のあるものはその設計に支障を来している。しかし、Battle
(35)
NorthwestおよびMound Laboratoryで行われた計算および測定は、この概念の可能性を示すために続けられている。

概念的プロセスをFig 4に示す。流出物は、リサイクルまたは放出できるHTOの減損した水ならびにHT、水または他の化合物として³Hを含む少量の流れである。水の蒸発およびレーザー運転にエネルギーが必要である。

利用の可能性の現状

この方法は基礎研究の段階である。

主要な開発事項

- 種々の励起および分離方式に関する実験
- 最適条件設計に必要な基本的な分子データの決定
- 経済的評価をするに十分な規模での、より有望な方法についての試験
- 開発のためには約10年が必要であろう。

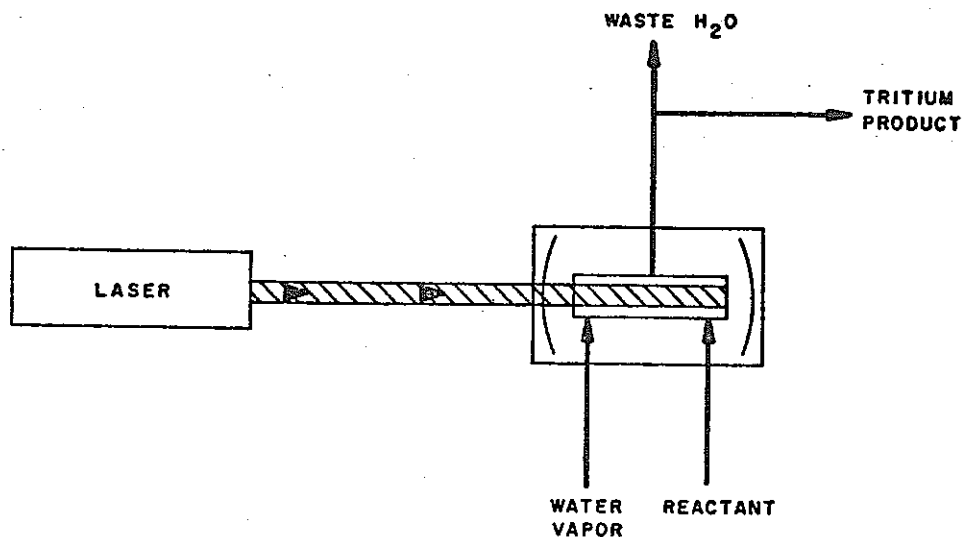


FIGURE 4. Conceptual System for Laser Isotopic Enrichment

1.3.3.2.5 可逆電解による同位体濃縮

電解によってトリチウム廃水から ^3H を分離する方法は、 H_2O および HTO の電気化学分解の分離係数が高いので(10~15)、関心が持たれている。しかしながら、主として電気料が高いため水の電解単独では使用するにはコストがかかりすぎる。可逆電解は、一般にはステージ間で水素を生成することなくおこなえるので、普通の電解の改良型として提案されてきている。こうすれば、普通の電解の一段に必要なセル電位で多数分離することができる。⁽³⁶⁾

もともと提唱されていた可逆電解は、必要なパラジウム膜が高価であるために全く利用されていない。Belgrade Univ工学部で最近行われた研究⁽³⁷⁾によってカーボンとポリエチレンでできた実用できる電極が製作され、この技術に基づく新しい ^3H 分離プロセスの可能性が開けている。この電極を用いた実験によれば、可能性のある値の半分、約8の分離係数が得られている。

利用の可能性の現状

技術は実験室での開発段階である。

主要な開発事項

二極のカーボン電極が、トリチウム水からの ^3H の電気化学的分離に有効なことがわかったので、さらにプロセスの経済性を評価するための研究を行なうことができよう。もし、提案されている他の廃水の ^3H 除去プロセスと比較して経済的に有利なことが判明すれば、直列に数個のセルを備えたパイロットプラント規模の電気化学的分離施設を建設し、典型的な再処理工場からの給液を使用してそのシステムの操作特性の評価を行なうべきであろう。

1 3. 3. 2. 6 リサイクル

再処理工場からの ^3H の放出量は、すべての ^3H を含む液流を再処理システムの前段にリサイクルすることによって変更できよう。^(3.4.5)

Idaho Chemical Processing Plant における 1971 年のジルコニウム燃料処理キャンペーン期間中に、第 1 サイクルの U 抽出系のいくつかの溶液流のサンプルについて ^3H が分析された。Fig 5 に示すように、抽出系では ^3H はすべて ICP および IAR 系に移る。ICP 流には ^3H 入量の 0.1% 以下しか含まれないので、系内の ^3H の約 99.9% は IAR 流に含まれる。

さらに、有機相の流れを調べた結果、有機物質中の不安定でない位置には検出できる量の ^3H が存在しないことが判明している。 ^3H が移行できない 1 つのプロセス障壁が第 1 抽出系にできよう。このためには、抽出系において、溶存あるいは同伴する水の移送が防止され、さらに水または化合物が不安定な水素の位置と錯化するような物質が全く存在しないことが必要となる。リサイクルシステムの運転をうまくおこなえば、すべてを廃水流とする場合よりも経済的に移送および貯蔵できる ^3H の濃縮液がえられよう。

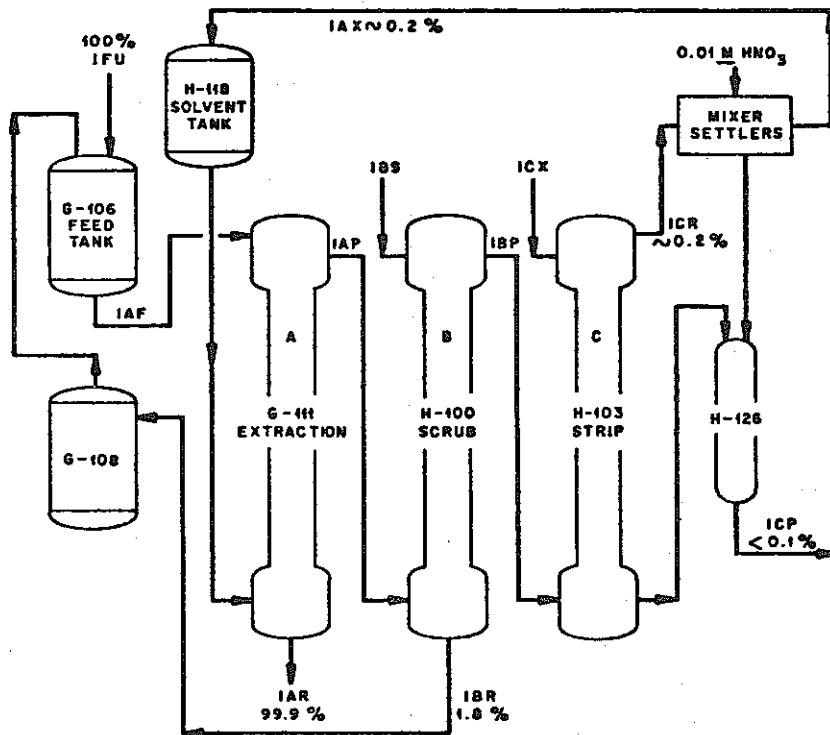


FIGURE 5. Distribution of Tritium in the First-Cycle Extraction System at the ICPP

リサイクル法は、同位体分離を併用するかまたは併用しないで運転できよう。実用的であれば、同位体分離プロセスをリサイクル処理しないときにも用いることができよう。リサイクルシステムは異なった3方法で行なえようが、これらをFig 6～9に示す。第1の場合、 ^3H が最大許容蓄積量に達した時に、全リサイクル流を貯槽に送って処分する。 ^3H の流入率が十分低いプロセスでは、施設の全運転期間にわたってすべての流れがリサイクルされるかも知れない (Fig.6)。このような場合、最終的な施設の閉鎖には、化学的に純化した水をコンクリート固化したものをサイト内に保管して ^3H を崩壊させることが含まれよう。

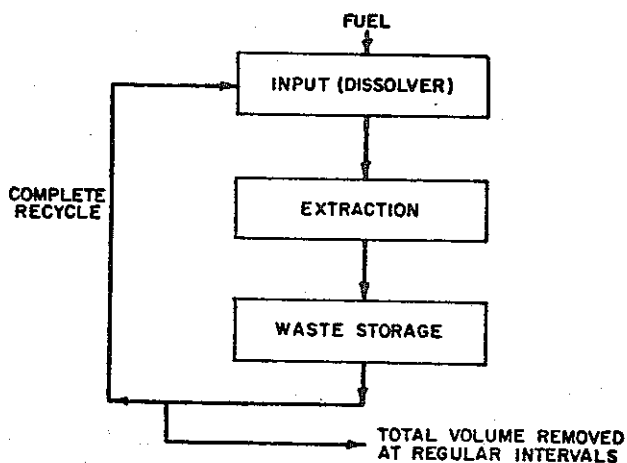


FIGURE 6. Recycle and Batch Removal

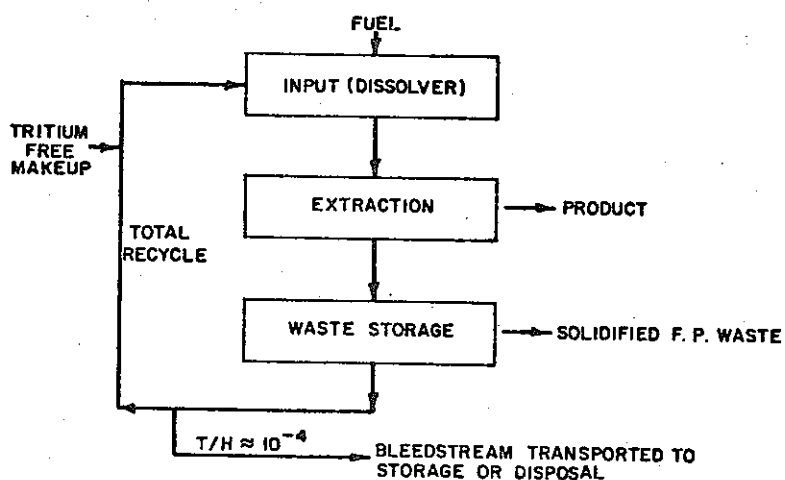


FIGURE 7. Recycle with Bleedstream Removal

濃度が (T/H 比が 3.1×10^{-7} から) 最終的に最大許容レベルまで増大するようリサイクル運転では, リサイクル流の一部を抜き出して同位体を分離するか, または全体を除去する必要がある (Fig. 6, 7)。ブリード流の抜き出しおよび新しいフィードによる連続的な置換は, リサイクル流全量を置換する方法の特殊なケースである。いずれの運転でも, 3H は予想導入量と等しいか, またはそれ以上に除去しなければならない。Fig. 7 に示すブリード流の一定の抜き出し法は, それが連続的または断続的であっても, プロセス流の総入れ替えよりも, より実際的な操作であろう。このブリード流は, 3H が減衰すれば貯蔵されている水が無害となるように, 化学薬品及び数年以上の半減期の放射性同位体を全て除去するために処理する必要がある。

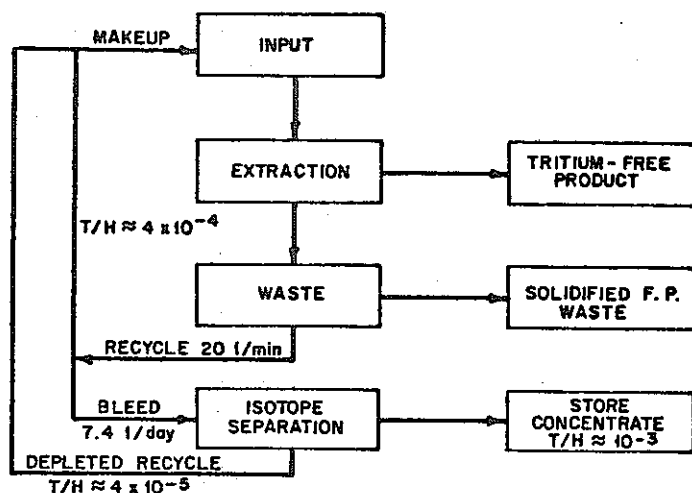


FIGURE 8. Recycle System for Tritium Control with Isotopic Separation for the Bleed Stream

Fig. 8 に示すように, 少し異なった方法でリサイクルシステムを運転することもできよう。このシステムでは, 同位体分離によって入量に等しい 3H を除去する。ここで同位体分離プロセスに必要な条件は, 規制されないで放出できるように 3H を除去するプロセスに要求されるほどきびしいものではない。この場合, 3H の分離ならびに希薄 (リサイクル) 流及び濃縮 (廃棄) 流でえられる濃度比に対する選択的なアプローチには相当の自由度がある。同位体分離システムは, 既存の 3H 及び重水技術の普通のフィードの範囲外の領域で運転されよう。しかしながら, この場合の必要条件は, 高い処理容量及び濃度といった普通の濃縮で要求されるものと同様であり, テールの濃度は特に重視されない。テールはプロセスに戻される。この除去プロセスは連続的または間欠的に運転できようが, 同位体分離プロセスは定常状態すなわち連続運転時に一番その性能が発揮されやすいであろう。

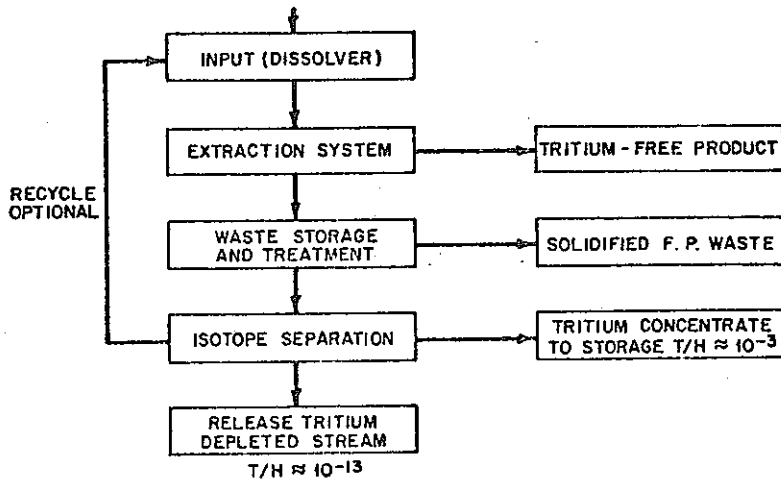


FIGURE 9. Recycle System for Tritium Control with Isotopic Separation of the Entire Aqueous Inventory

第4の³H除去法をFig. 9に示す。この場合、溶液流は連続的にリサイクルしないベースで処理し、貯蔵する濃縮液と³Hの少ない処理済み放出液とに分ける。このようにリサイクルしないで運転するには、非常に高い処理容量と極めて大きい分離係数のプロセスが必要である。LWR燃料再処理工場における液体H₂Oの流量は約20ℓ/分であり、そのT/H原子比は 2.8×10^{-8} である。また、必要な分離係数は 10^{10} となる。

Fig. 8にのべたシステムで同様にプラント運転必要条件を使用すれば、リサイクルの有利なことが明らかとなる。トリチウムの低減した流れをプロセス前段に戻すこのリサイクル方式では、プロセス流の初期濃度はT/H比で約 3.1×10^{-7} 、その流量は約20ℓ/分となる。300回リサイクルすると、濃度は $T/H = 8.4 \times 10^{-5}$ レベルとなり、1日当たり3,500キュリーのトリチウムを除去するようなブリード率が必要となる。リサイクル流中の³H濃度は約300キュリー/ℓとなる。従って、プロセスに要求されることは、約12ℓ/日すなわち120ℓ/日の10%、またはこれに相当するものからの“完全な除去”である。設計で要求される事項を下記に示す。

Tritium System Operational Requirements

Isotope ratio in feed T/H - 8.4×10^{-5}

Curie Removal Rate3,500 Ci/day

T/H (Feed)	Feed Flow (ℓ/day)	T/H (Depleted Recycle)	Assumed Recycle Flow (ℓ/day)	Isotopic Separation Factor
8.4×10^{-5}	12	2.6×10^{-6}	11	385
8.4×10^{-5}	120	7.6×10^{-5}	119	12

エネルギーの使用を最小にするため、同位体分離プロセスは水素へ転換するよりも水のフイードで運転されよう。しかし、小さい水相流に対しては、電解による水素の生成は禁止的にはならないだろう。電解は、同位体分離システムの1段階に対する1つの候補でもある。適当な条件下で水を電解すれば、存在する ^3H の $\frac{1}{2}$ が最初の容量の0.1%以下に濃縮されよう。放出される水素は、ほぼ100%もとの水素よりなるが、プロセスの低減係数を2として最初の ^3H の $\frac{1}{2}$ を含むだろう。濃縮液は約500倍に同位体濃縮される。

抜き出した水は、この濃度の水の流出は許容されないので、その ^3H 含有量の如何にかかわらず同じように注意して取扱わねばならないであろう。この取扱い及び処分のコストはその容量に比例するものと考えられ、従って、可能な限り最大限リサイクルする(すなわち、 ^3H の蓄積は最大となる)ことによってのみこの取扱いコストを減少させることができる。

これらのプロセスに要求される条件は、使い捨てする液流あるいはブリード流を放出できるように完全に除去する試みに同位体除去を適用するプロセスの場合程にはきびしくない。この概念がうまく適用できるかどうかは、再処理工場の前段にリサイクルできることの実証に依存している。

利用の可能性の現状

^3H をリサイクルする技術はまだ利用できない。概念研究が行なわれており、開発計画が提案されているが、システムを評価するための技術的研究が必要であろう。総合的なパイロットプラントまたはプラント規模の計画を完成するには5~6年を要しよう。高い ^3H の濃度に附随する潜在的な技術及び作業上の安全の問題のため、利益とコストの比率が不利になる可能性がある。

主要な開発事項

提案されている ^3H 管理開発計画の第1段階では、下記の事項に必要な情報が得られるだろう。

- 数種の燃料の再処理からの ^3H の放出の分布と型式の確認
- ^3H をリサイクルすることによって、その環境への放出が最少となるような、再処理システムの予備的な概念的な評価。

第2段階では、下記の事項に必要な実験室及びパイロットプラントでのデータが得られるだろう。

- リサイクル流中でのFPの蓄積の影響の予測。
- リサイクル流中での有機廃棄物の蓄積の制御方法の決定及び開発。
- 無水硝酸の調製及び添加技術の開発。
- 空気流量の制御及びセルの密封を含む ^3H の封じ込め技術の開発。

- ・濃縮した³H (HTO)の化学的または物理的“安定化”(stabilization)技術の開発。

最終的な段階では、総合的なパイロットプラントまたは改良した再処理工場のいずれかにおける開発したリサイクル技術のホットでの実証が含まれよう。開発計画の完了には約6年が必要となるろう。

REFERENCES

1. A Research Proposal for the Development of Tritium Waste Management Technology, CI-1198, Idaho Nuclear Corporation, Idaho Falls, Idaho, p. 3, November 1970.
2. B. J. Kullen, L. E. Trevorow, and M. J. Steindler, Tritium and Noble Gas Fission Products in the Nuclear Fuel Cycle, II. Fuel Reprocessing Plants, Argonne, Illinois, pp. 15-32, March 1975.
3. D. G. Jacobs, Sources of Tritium and Its Behavior Upon Release to the Environment, TID-24534, USAEC/Division of Technical Information, pp. 21-27, pp. 73-85, 1968.
4. B. C. Musgrave, Tritium Distribution in the Nuclear Industry, ICP-1041, Allied Chemical Corporation, Idaho Falls, Idaho, p. 1, January 1974.
5. E. L. Albenesius and R. S. Ondrejcin, "Nuclear Fission Produces Tritium", Nucleonics, 18 (9):100, September 1960.
6. H. Kouts and J. Long, "Tritium Production in Nuclear Reactors", Tritium, A. A. Moghissi, Editor, CONF-710809, pp. 38-45, May 1973.
7. J. O. Blomeke, Management of Fission Product Tritium in Fuel Reprocessing Wastes, USAEC Report ORNL-TM-851, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, May 1964.
8. L. N. Grossman and J. O. Hegland, Tritium Distribution in High Power Zircalloy Fuel Elements, USAEC Report GEAP-12205, Pleasanton, California, June 1971.
9. F. H. Megerth (compiler), Zircalloy-Clad UO₂ Fuel Rod Evaluation Program Quarterly Progress Report No. 11, May-July, 1970, USAEC Report GEAP-10217, San Jose, California, August 1970.
10. J. A. Cochran et al, Observation of Airborne Tritium Waste Discharge from a Nuclear Fuel Reprocessing Plant, EPA-ORP-73-1, Washington, D.C., 1973.
11. J. H. Goode, Voloxidation, Removal of Volatile Fission Products from Spent LMFBR Fuels, ORNL-TM-3723, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, 1973.
12. E. D. North, R. L. Booth, Fission Product Gas Retention Study, ORNL-TM-4409, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, 1973.

13. E. W. Murbach, W. H. Carr, J. H. Gray, III., Fission Product Gas Retention Process and Equipment Design Study, ORNL-TM-4560, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, 1974.
14. R. E. Blanco et al., Correlation of Radioactive Waste Treatment Costs and the Environmental Impact of Waste Effluents in the Nuclear Fuel Cycle for Use in Establishing "As Low as Practicable" Guides, ORNL-TM-4901, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge Tennessee; 1974.
15. W. E. Unger, LMFBR Fuel Recycle Program Progress Report for Period April 1 to December 31, 1974, ORNL-TM-4836, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, 1975.
16. W. E. Unger, LMFBR Fuel Cycle Studies Progress Report for November 1970, No. 21, ORNL-TM-3250, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, 1970.
17. I. O. Winsch et al., Melt Decladding of Fast Reactor Fuels, ANL-8142, Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, 1974.
18. D. S. Webster et al., Chem. Engr. Div., Fuel Cycle Technology Quarterly Report, July-September 1971, ANL-7871, Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, 1971.
19. R. H. Anderson et al., "Applications of Nitride-Forming Reactions to Reprocessing of Spent Nuclear Fuels," Nuclear Technology, Vol. 13, p. 29, 1972.
20. D. S. Webster et al., Chem. Engr. Div., Fuel Cycle Technology Final Report, ANL-7994, Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, 1973.
21. D. S. Webster et al., Chem. Engr. Div., Fuel Cycle Technology Quarterly Report, Jan.-Mar. 1972, ANL-7931, Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, 1972.
22. D. S. Webster et al., Chem. Engr. Div., Fuel Cycle Technology Quarterly Report, ANL-7972, Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, 1972.
23. S. V. Ribnikar and J. D. Pupezin, "Possibilities of Tritium Removal from Waste Waters of Pressurized Water Reactors and Fuel Reprocessing Plants", Proceedings of the Thirteenth AEC Air Cleaning Conference, San Francisco, California, CONF-74087, Aug. 12-15, 1974, pp. 929-945.
24. J. J. Kueck, Tritium Removal From Primary Coolant of a Power Reactor, Thesis submitted to the Department of Chemical and Nuclear Engineering, University of Cincinnati, 1972.

25. K. H. Lin, Tritium Enrichment by Isotope Separation Technique, ORNL-TM-3976, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, December 1972.
26. L. L. Burger, The Separation and Control of Tritium, State-of-the-Art Study, Report to the EPA, Battelle Northwest, Richland, WN, April 1972.
27. D. Leger, D. Dirjan, and E. Roth, "Detritiation of Heavy Water from Nuclear Reactors", Energ. Nucl. (Paris), vol. 12, pp. 135-142, 1970, AEC-tr-7464, 1973.
28. G. M. Murphy, H. C. Urey, and I. Kirshenbaum, Production of Heavy Water, McGraw-Hill Book Co., Inc., New York, 1955.
29. V. Mercea, N. Palibroda, T. Fudor, and L. Stoicovici, "Depletion Column for the Collection of Protium Oxide, H_2O , by Isotopic Exchange Between Hydrogen and Water", Isotopenpraxis, vol. 4, p. 328, 1968.
30. P. Savic, S. Ribnikar, and B. Pavlovic, "Efficiency of Some Catalysts in the Exchange Reaction Between Heavy Water and Hydrogen", Proc. Int. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 1955, vol. 8, p. 414, United Nations, New York, 1956.
31. V. Mercea, Estimative Calculation of a Tritium Decontamination Unit for a Nuclear Power Plant, Institute for Atomic Physics of the Rumanian Academy of Sciences, Klug, Rumania.
32. W. H. Stevens and F. P. Blackstein, "Heavy Water Production Using Hydrogen-Water Exchange", AECL Research and Development in Eng., Winter 1973, Atomic Energy of Canada, Ltd., AECL-4606, Winter 1973.
33. M. F. Goodman, E. Thiele, Phys. Rev. A, vol. 5, p. 1355, 1972.
34. T. J. Whitaker et al., Deuterium and Tritium Separation in Water by Selective Molecular Excitation, BNWL-B-432, Battelle Northwest Laboratory, Richland, Washington, 1975.
35. C. J. Kershner, Tritium Effluent Control Project Progress Report: October-December, 1974, MLM-2217, Monsanto Mound Laboratories, Miamisburg, Ohio, August, 1975.
36. F. T. Barr and W. P. Drews, "The Future for Cheap Heavy Water", Chemical Engineering Progress, vol. 56, pp. 49-60, 1960.
37. D. M. Drazic, L. Z. Vorkapic, and M. Atanackovic, Yugoslav Patent Appl., No. 331/74.
38. N. E. Hall and G. N. Ward, Tritium Control by Water Recycle in a Nuclear Fuel Reprocessing Plant, NEDG-11342, General Electric Company, San Jose, California, June 1975.

13.4 窒素酸化物

13.4.1 利用可能な技術

13.4.1.1 放出

再処理工場で発生する窒素酸化物（NOおよびNO₂を一括してNO_xと記す）は、燃料棒の硝酸による溶解および硝酸塩を含む廃液の仮焼の際に生成される。NOのNO₂に対する比はプロセスオフガス中のO₂の含有量、NO_xの濃度およびプラントのオフガスの滞留時間に依存する。NO_x低減システムのない5t/日の再処理工場では、仮焼および燃料溶解系より年間約500tのNO_x（NO₂換算）が、排気筒から放出される。

発生源が燃料溶解工程だけであり、プロセスオフガスからのNO_xの70%を除去する洗浄システムを設置した場合は、NO_xの年間放出量は100t（NO₂換算）となる。

13.4.1.2 水洗浄

NO_xを含むプロセスオフガスを洗浄溶液に通すと、NO_xは可溶性化合物として除去される。洗浄溶液はアルカリ、酸、アンモニア、アミン、アンモニウム塩もしくは酸化剤であるが、添加剤を入れない水も使用され、反応生成物は一般に硝酸塩や硝酸イオンを含む塩および酸である。発生した廃液は環境に放出されるかあるいは処理して再使用される。

利用の可能性の現状

水溶液洗浄は利用可能ではあるが限界がある。70%以上の低減効率はほとんど得られず多量の廃液が発生する。水洗浄装置はBarnwell再処理工場で計画されており、70%のNO_x低減効率が期待されている。1975年現在、液体洗浄システムを供給しているアメリカの85の業者のうち、商業用のNO_x低減システムを製作しているのは2社にすぎない。⁽¹⁾

いくつかの実験室およびパイロットプラントでの実験でも、満足すべき結果は得られていない。オハイオのNational Leadのパイロットプラントの実験で得られた結論は、a)アルカリ洗浄の最大除去効率は64%で、b)廃液の処分は未解決の問題であり、c)尿素を使用すると90%以上の効率が得られるが、廃液の処分と経済性は疑問であるというものである。⁽²⁾

広範囲な実験が、Esso・R & E社によって行なわれ、a)Ca, Mg, ZnおよびNaの水酸化物は吸収剤として劣り、b)濃縮アミンは良い吸収剤（減少効率で78%）ではあるが、安全に環境に放出できない生成物を形成し、c)亜硫酸溶液はNO₂にはすぐれた吸収剤であるが、NOはほとんど吸収しないと結論づけられている。⁽³⁾ Western Electric Indianapolis

Worksで、苛性ソーダ、クロム酸および過マンガン酸溶液を用いてパイロットプラント実験が行なわれた。⁽⁴⁾ その実験の条件下では67%以上の除去効率は得られず、NO₂の制御に湿式洗浄法は推奨できないとしている。American Cyanamid Company⁽⁵⁾ は業社調査を行い、洗浄装置の製造会社はNO_xの除去についての経験がほとんどなく、また90%の効率を

得る装置は非実用的な大きさになると結論している。さらに、NO_xの低減についての National Research Council の特別パネルでは、⁽⁶⁾ 洗浄システムではNOは除去されないという結論になった。

再処理工場で発生する廃液は最終的には仮焼されるため、硝酸塩および亜硝酸塩からNO_xを放出する。したがって洗浄は、NO_xの低減に関しては単に中間的な解決策にすぎないと考えられる。

13.4.1.3 非選択的気相還元

プロセスオフガス中のNO_xは、気相中で還元剤(H₂, CO, CH₄, プロパン等)と反応してN₂とH₂Oとなる。大部分のNO_xを還元するにはガス中のO₂のほとんどあるいはすべてが消費される必要がある。空気中では、温度制御のために多段バーナーは熱交換器または水噴射と併用しなければならない。

利用の可能性の現状

商用NO_x分解装置はJohn Zink社⁽⁷⁾から販売されている。この装置は、Atlantic Richfield Hanford Co.⁽⁸⁾およびAmerican Cyanamid⁽⁵⁾が据付けて試験を行なった。両社は空気中の1%のNO_xを、約90%低減可能であると報告しているが、このプロセスの経済性についてはさらに試験が必要である。

13.4.2 開発の必要な技術

13.4.2.1 NH₃による接触還元

NH₃ガスを、NO_xを含むプロセスオフガスと混合し、a)金属含浸のアルミナおよびシリカ b)金属交換したゼオライト、またはc)水素およびナトリウム型のゼオライトなどの熱した触媒に通す。反応生成物は、N₂およびH₂Oそして時には酸化窒素(N₂O)である。

利用の可能性の現状

日本の化学会社4社がこのプロセスを市販している。⁽⁹⁾ 最大ガス処理量は $3 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{min}$ であり、350 ppm またはそれ以上のNO_x濃度を10 ppmに低減できる。Exxon Nuclear Company⁽¹¹⁾は水素-モルデナイト(mordenite)触媒を使用し、プロセスオフガス中の2~6%のNO_xを50 ppmまで減少させている。研究室の実験では、^(11,12) 触媒に水素-モルデナイトを使用したこのプロセスが、空気中のNOおよびNO₂に対して99%以上の除去効率を有することを実証した。必要なNH₃量はNO_x1モルに対して約1.3モルである。

Fig. 1にNO_x低減システムのブロック図を示す。140 m³/minのプロセスオフガスに対し直径2.5 m、深さ0.6 mのベッドおよび約400℃のベッド温度が必要である。NO_x低減システムの設置位置は、すべての潜在的なNO_x発生源とNO_xによって影響を受けるガス浄化系の中間である。

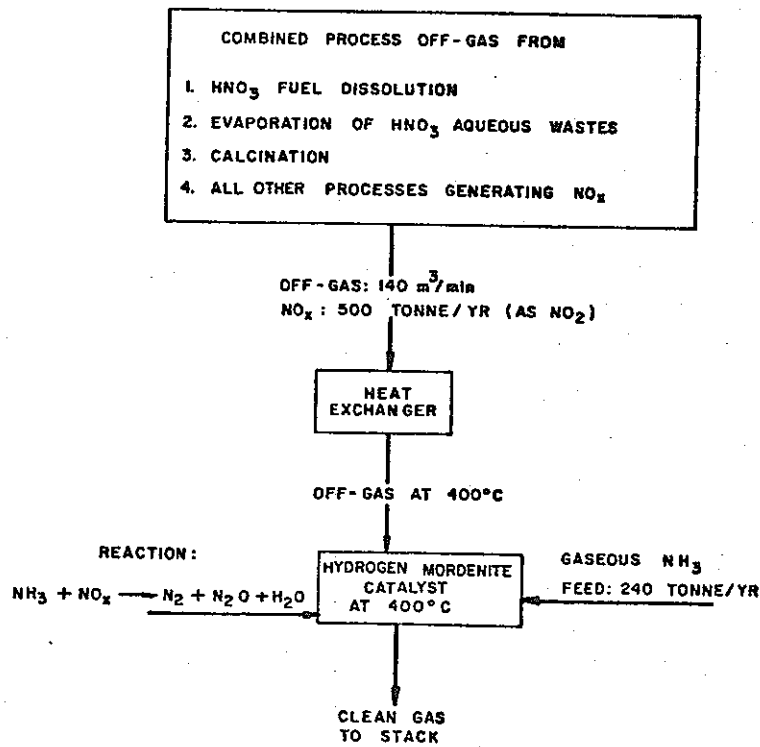


FIGURE 1. NO_x Abatement Process for a 5 Tonne/Day Plant

主要な開発事項

この技術は比較的新しいため、さらにパイロットプラントおよび実規模での実証が必要である。研究室での計画はNO_x-NH₃接触反応を定量的に示す動的モデルを開発するように遂行すべきである。パイロットプラントでの計画は、研究室の結果を立証し、スケールアップの効果を研究し、触媒の寿命を決定し、そして実規模の概念設計の運転基準を得るように遂行すべきである。そして、最終的には再処理工場にこのプロセスを適用して証明すべきである。研究室およびパイロットプラントでの計画実行に約5年間、再処理工場に据付けて試験するのにさらに約5年間が必要である。

REFERENCES

1. Rimbach Publishing Company, "Selecting Air Pollution Scrubbers", Pollution Equipment News, p. 33, June 1975.
2. A. F. Pennak et al., "Reduction of Nitrogen Oxides in Vent Gases by Scrubbing", Proceedings of AEC Pollution Control Conference, CONF-721030, p. 97, October 1972.
3. G. A. Chappel, "Aqueous Scrubbing of Nitrogen Oxides from Stack Gases", Pollution Control and Energy Needs, R. M. Jameson and R. S. Spindt, editors, Adv. in Chem. Series 127, 1973.
4. D. H. Bowman et al., "Removal of Plating Area NO₂ Emissions by Wet Scrubbing", Pollution Engineering, p. 38, November 1974.
5. N. A. Kaye and M. R. Newberger, "NO, NO_x - But How? - An Industrial Case History", Proceedings of the 67th Annual Meeting of the Air Pollution Control Association, Paper No. 74-260, June 1974.
6. Abatement of Nitrogen Oxides Emissions from Stationary Sources, Government Report PB-208-100, National Research Council, Washington, D. C., National Technical Information Service, Springfield, Va., 1972.
7. "What is John Zink Doing About NO_x?", Chemical Engineering, p. 32, March 19, 1973.
8. G. E. Benedict, "Test Experience with a Commercial NO_x Destructor", Proceedings of AEC Pollution Control Conference", CONF-721030, p. 87, October 1972.
9. "Japan's NO_x Cleanup Routes", Chemical Engineering, p. 70, July 21, 1975.
10. E. B. Mays and M. R. Schwab, "Elimination of NO_x Fumes", Chemical Engineering, p. 112, February 17, 1975.
11. D. T. Pence and T. R. Thomas, "NO_x Abatement at Nuclear Processing Plants", Proceedings of the Second AEC Environmental Protection Conference, WASH-1332(74), April 1974.
12. T. R. Thomas and D. T. Pence, "Reduction of NO_x with Ammonia Over Zeolite Catalyst", Proceedings of the 67th Annual Meeting of the Air Pollution Control Association, Paper No. 75-258, June 1974.

13.5 塩化水素

13.5.1 利用可能な技術

なし

13.5.2 開発の必要な技術

13.5.2.1 水洗浄

HClを含むプロセスオフガスを苛性ソーダ溶液または水に通すと、可溶性の塩化物または塩酸を生成する。廃液は環境に放出されるか、または容器に貯蔵される。

利用の可能性の現状

洗浄によってガスからHClを除去する技術は十分開発されていて、約28社⁽¹⁾が99%以上の効率でHClを除去する商用洗浄装置を製作している。しかしながら、この技術が原子力工業における焼却炉のオフガス浄化に適用できるかどうかは疑問である。というのも、可燃物がHClを発生するポリ塩化ビニール(PVC)と共に少量の超ウラン元素を含んでおり、したがって発生する廃液は腐食性の塩素と超ウラン元素を含むこととなり、固化が必要となるからである。PVC等の固体廃棄物の量よりも多い液体廃棄物が発生するので、固化段階の経済性は低くなると思われる。

主要な開発事項

洗浄と廃液固化に使用されるプロセス機器の耐食性をプロトタイプの焼却炉で実証し、また固化段階で超ウラン元素が濃縮され、中に包み込まれることを証明しなければならない。プロトタイプのプラントを建設し、HClの低減システムを実証するのに約5年を要する。

13.5.2.2 バーナー中でのNaClへの転換

PVCの燃焼で生成するHClガスを固体または熔融状態の Na_2CO_3 と高温で接触させると、流動床にNaClが形成される。

利用の可能性の現状

流動床バーナーのパイロットプラント規模の研究がRocky Flatsで行なわれており⁽²⁾、HClは効果的に除去されるがわずか25%の Na_2CO_3 がNaClに変換するに過ぎない。このプロセスでは、廃棄物の量は(重量で)焼却したPVCの240%以上に増加する。Atomics Internationalは熔融塩を使用したバーナーで実験し⁽³⁾、HClが効果的にNaClに変換して燃焼したPVCの重量に比べ廃棄物の正味が減少することを見出した。

主要な開発事項

上記の各種プロセスは、プロトタイプのプラントで長期間運転して実証すべきである。主

要目標は、down time を最小にする燃焼および放射能の封じ込めの制御を実証することである。したがって、この方法のどちらをとるかはHClの低減能力によっては決められないと考えられる。

13.5.2.3 NH₃との気相反応

NH₃ガスをHClを含むガスと約300℃で混合し、約150℃で凝縮器および収集器を通すと、NH₄Clの霧が形成されて器壁に凝着する。NH₄Clの層が厚くなるともろい結晶となり、最終的にははがれて容器の底に落ち、容器外に取出される。Fig.1にプロセスの概略を示す。器外に出て行く粒子は、サイクロンおよびバックアップフィルタで捕集する。

利用の可能性の現状

この方法は研究室段階で実験されているにすぎない。⁽⁴⁾

主要な開発事項

この方法の成功は適当な凝縮器の設計いかんにかかっており、最初に形成されるミクロン以下のNH₄Clの粒子は凝縮器中で100%の効率で凝着しなければならない。さもないとこれら粒子は下流のダクト系で凝着して閉塞の原因となる。器壁から脱離する大きな粒子は容易にサイクロンおよびバックアップフィルタで捕集できる。このプロセスを、実験室およびパイロットプラント規模で開発し、実証するのに約5年を要する。

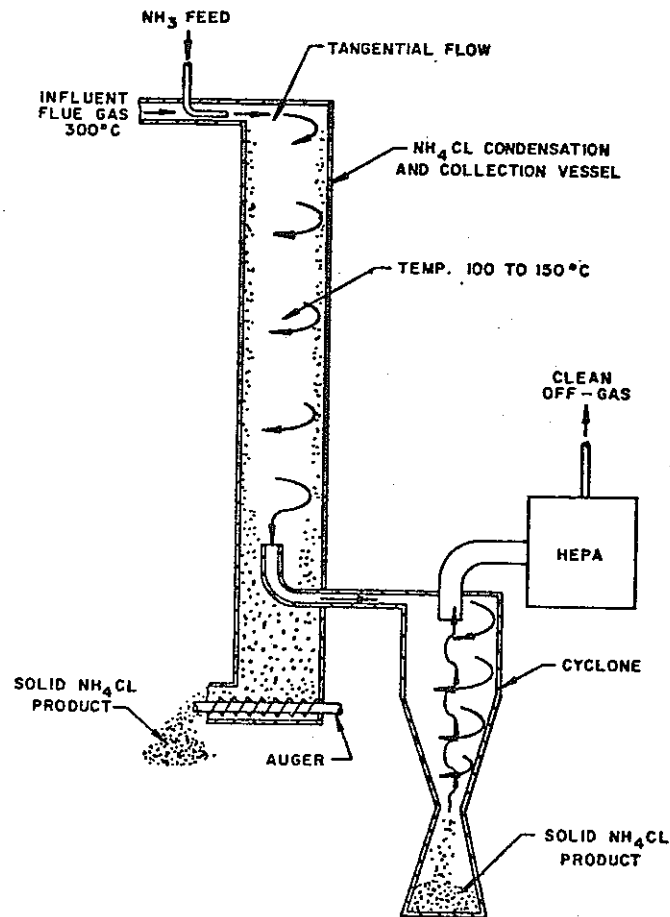


FIGURE 1. Conceptual Process for HCL Abatement

REFERENCES

1. Rimbach Publishing Company, "Selecting Air Pollution Scrubbers", Pollution Equipment News, p. 33, June 1975.
2. D. L. Ziegler et al., Pilot-Plant Development of a Fluidized Bed Incinerator Process, RFP-2271, Rocky Flats Plant, Dow Chemical U.S.A., Rocky Flats Division, Golden, CO, October 1974.
3. S. J. Yosim et al., A Feasibility Study of Disposal of Low Level Radioactive Wastes by the Atomics International Molten Salt Combustion Process, AI-7377, Atomics International, Division of Rockwell International, Canoga Park, CF, July 1973.
4. S. J. Winston and T. R. Thomas, "A Potential Method for Abatement of HCL Generated in the Incineration of PVC Plastics", Proceedings of the PNWIS-APCA, Paper No. 74-AP-27, November 1974.

13.6 炭 素 — 14

炭素 14 (^{14}C)は原子炉運転中に、微量成分の窒素 14 (^{14}N)、炭素 13 (^{13}C)、酸素 17 (^{17}O)と中性子との反応による放射化生成物として生ずる。使用済燃料中の大部分の ^{14}C の生成源は、燃料中にもともと含まれる約 25 ppm の窒素である。LWR 燃料中の ^{14}C の概算生成量は、750 から 2000 Ci/50GWe 年である。^(1,2)

^{14}C は、原子炉の燃料領域以外でも生成されるが、^(3,4)原子炉オフガスからの ^{14}C の回収は、再処理工場の溶解オフガスからの回収よりも困難である。原子炉オフガス中の ^{14}C の量は使用済燃料中の量と同程度である。燃料中の ^{14}N の含有量を減らすことにより、ある程度 ^{14}C の生成を減少できる場合もある。

13.6.1 利用可能な技術

13.6.1.1 放 出

今日まで、原子炉および再処理工場の廃棄物中の ^{14}C を除去する努力はされていない。

^{14}C は再処理工場で使用済燃料の溶解時に $^{14}\text{CO}_2$ として放出され、その概算量は750 から 2000 Ci/50GWe 年である。溶解オフガスは、大部分が中濃度の窒素酸化物を含む空気中で、その他に、1 から 1000 ppm の微量濃度の希ガス、 CO_2 、I、H および ^3H を含んでいる。事実上、 $^{14}\text{CO}_2$ は100%大気に放出されるが、溶解系に漏洩してきた天然の $^{12}\text{CO}_2$ と混合される。空気中の CO_2 濃度は約 0.03 vol.% であり、溶解オフガス中の $^{14}\text{CO}_2$ の最大濃度は約 250 ppm (0.025%) である。

再処理工場(排気筒)から $^{14}\text{CO}_2$ を放出する技術は、現在の方法を変更または開発する必要はない。燃料を酸溶解すれば、事実上すべての ^{14}C がこの期間に放出されると思われる。分散技術については、 ^{85}Kr の放出の項で述べた。

13.6.2 開発の必要な技術

13.6.2.1 苛性ソーダ洗浄

溶解オフガス中の CO_2 は苛性ソーダと反応し、可溶性の炭酸塩を生成して除去される。Fig.1 のブロック図はこの処理法の各工程を示している。オフガスポンプは苛性ソーダ溶液を潤滑剤に用いており、 NO 、 NO_2 、 CO_2 のような酸性ガスも大部分除去するが、さらに約 99% の CO_2 を回収するために2段目の洗浄器を直列に置き、後で CO_2 を回収するために洗浄液を一緒にする。次に、酸性化工程中での揮発性酸化窒素の発生を最少にするために亜硝酸を酸化する。酸性化工程で空気攪拌しながら希硝酸を加えると $^{14}\text{CO}_2$ が定量的に洗浄液から除去される。次に、空気と CO_2 の混合ガスは石灰スクラバを通し、 CO_2 を CaCO_3 として

沈殿させる。沈殿した CaCO_3 は口過して乾燥し、中期もしくは長期貯蔵のための金属容器に収納する。年間平均 1,000 Ci の $^{14}\text{CO}_2$ の 99% を回収すると仮定すると、 $\text{Ca}^{14}\text{CO}_3$ の年間排出量は 1.6 Kg となるが、空気中の CO_2 から生成する CaCO_3 が ^{14}C から生成するものの 10 から 100 倍となるので、年間の CaCO_3 の量は、16 から 160 Kg となる。

主要な 2 次廃棄物は酸性化工程の CO_2 除去後のスクラバ溶液で、この中には溶解槽オフガス中の FP が含まれるが、この溶液は中放射性廃液貯槽に送られよう。

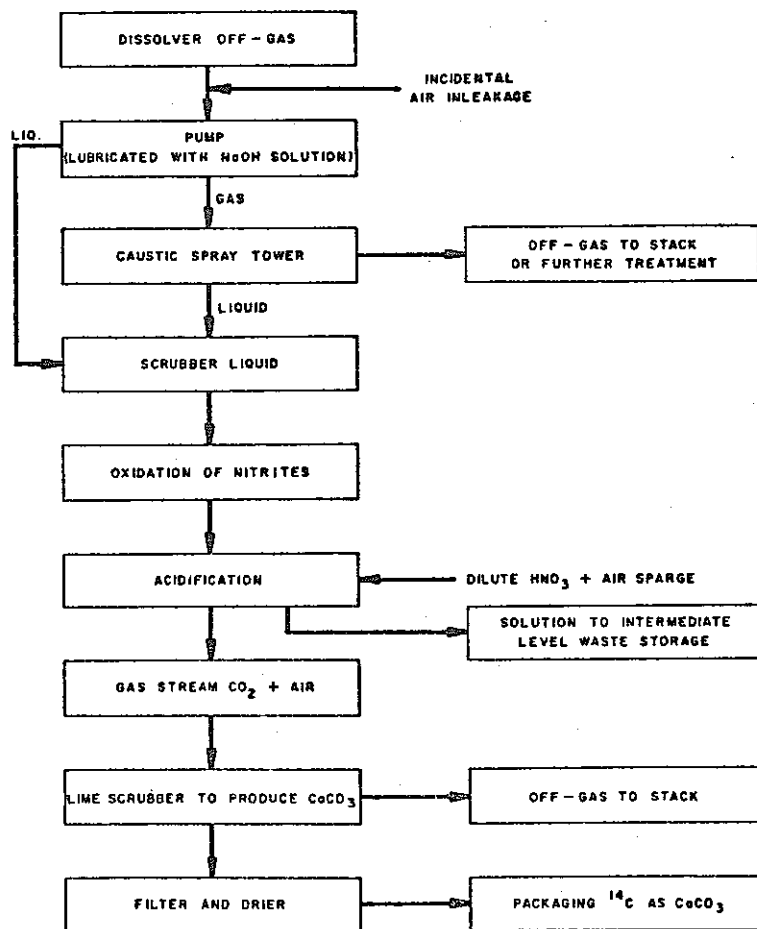


FIGURE 1. Caustic Scrubber Process for $^{14}\text{CO}_2$ Removal From Dissolver Off-Gas

利用の可能性の現状

溶解オフガスのポンプ輸送技術は、Idaho Chemical Processing Plant (ICPP) で溶解オフガスからの ^{85}Kr の回収に関連して開発された⁽⁵⁾。苛性ソーダ洗浄液から $^{14}\text{CO}_2$ を回収することは実証されてはいないが、その化学は良く知られている。同様に石灰液から $^{14}\text{CO}_2$ を回収することも実証されてはいないが、この作業は化学工業では一般的に行なわれているので各種の洗浄液を使うことは可能である。

主要な開発事項

主要な開発目標は、 $^{14}\text{CO}_2$ を CaCO_3 として99%回収するFig. 1のようなケミカルフローシートを作成し、スケールアップデータを得るために単位操作装置でケミカルフローシートを試験し、実際の溶解オフガスを用いたパイロットプラントで全プロセスを実証することである。なおそのプロセスは、放射性的 CaCO_3 の収納まで含む必要がある。

1.3.6.2.2 モレキュラーシープ吸着

溶解オフガス中の CO_2 は、Fig. 2に示したように、モレキュラーシープ5A型で吸着して除去される。ポンプの潤滑剤を酸性にしておけばポンプ輸送中 CO_2 は気相中に含まれる。NOだけでなく NO_2 を十分に除去するためには、2台のポンプを直列に使用することが必要である。窒素酸化物は接触分解によって除去され、⁽⁵⁾生成したガスはモレキュラーシープ3Aで乾燥され、モレキュラーシープ5Aで捕集される。つぎに、 $^{14}\text{CO}_2$ は脱着し、石灰スラリーで洗浄し、ろ過、乾燥して、固体の CaCO_3 として回収する。えられた CaCO_3 は、中期または長期貯蔵のための金属容器に収納する。前項のプロセスと同様に、このプロセスの年間の CaCO_3 発生量は16から160kgである。主な廃棄物は CO_2 を除去したオフガスで、これは環境に放出するかまたはさらに処理して希ガスを除去する。

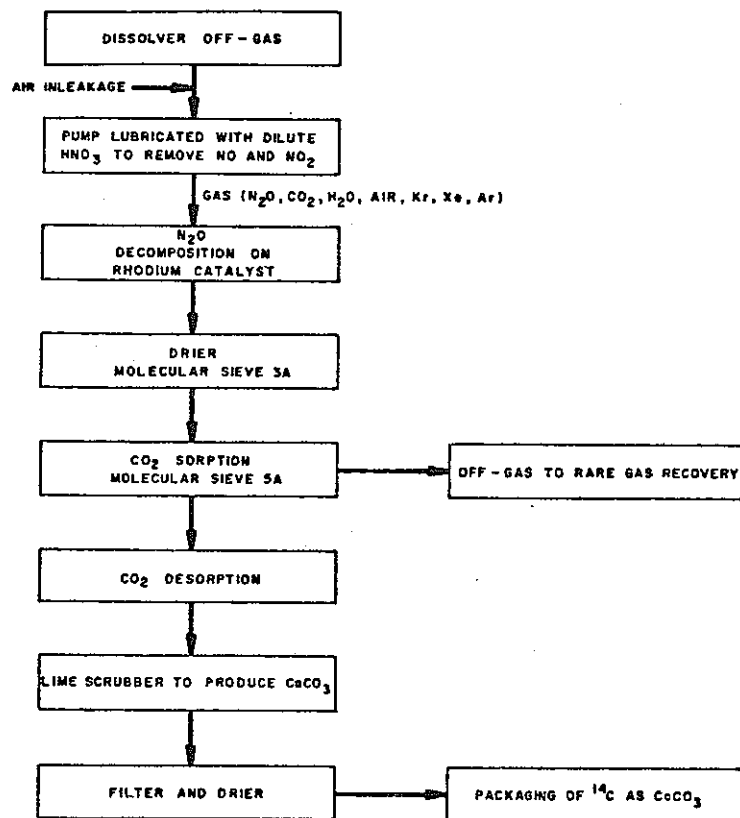


FIGURE 2. Molecular Sieve Adsorption Process for $^{14}\text{CO}_2$ Removal from Dissolver Off-Gas

利用の可能性の現状

酸性潤滑剤を用いた溶解オフガスのポンプ輸送法は開発されてはいないが、ICPPの希ガスプラントに設置される予定である。ガスから水分およびCO₂を除去するのに数種のモレキュラーシーブが使用されているが、溶解オフガスについては使用されていない。同様に、石灰スラリーは、ガス中のCO₂の洗浄に使用されている。したがって、これらの工程のすべてを溶解オフガスに応用して実証することが必要である。

主要な開発事項

主要な開発目標は、¹⁴CO₂をCaCO₃として99%回収するためにFig.2に示したケミカルフローシートを証明し、装置の単位操作データを収集し、実際の溶解オフガスを用いたパイロットプラントでフローシートを実証することである。

13.6.2.3 フッ化炭素吸収

CO₂はrefrigerant 12のようなフッ化炭素中に容易に溶解し、高い効率で回収できる。CO₂は、⁸⁵Krの回収の際に同じプロセスで回収できる。Fig.3では、アルカリ洗浄液を用いた場合のCO₂の損失を避けるために、酸性ポンプ潤滑剤を使用する。乾燥機は、レクトロドライヤ(rectrodryer)またはモレキュラーシーブ3Aのベッドである。フッ化炭素を使用した吸着-脱離システムは、⁸⁵Kr回収の項で述べたものと同様である。^(6,7) 分離したCO₂は、前述の2つのプロセスと同様にCaCO₃として回収する。

このプロセスには主要な放射性廃棄物の流れはないので、使用済フッ化炭素吸着剤は時々廃棄する必要があるが、問題になるような放射能は含まれていない。

利用の可能性の現状

溶解オフガスのフッ化炭素吸着は、Oak Ridge^(6,7,8)でパイロットプラント規模で開発されたが、実際の溶解オフガスについての実証はされていない。今日までに開発されたプロセスは、⁸⁵Krを対象としているが、CO₂にも適用できるであろう。

主要な開発事項

溶解オフガス中のKrを回収するために使用されている処理法から、CO₂回収のために必要なシステムを開発することである。

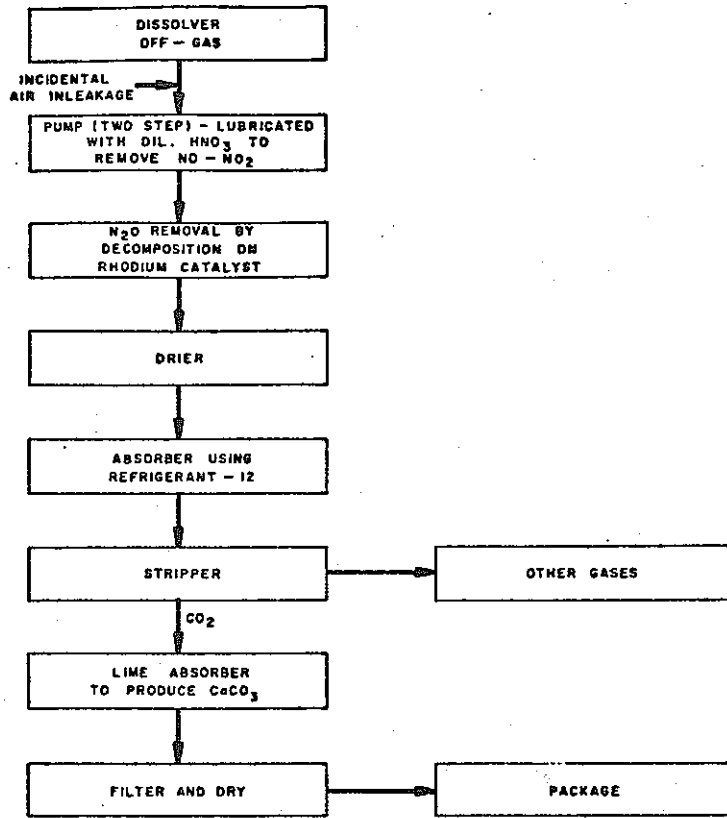


FIGURE 3. Fluorocarbon Absorption Process for ¹⁴C0₂ Removal From Dissolver Off-Gas

REFERENCES

1. P. J. Magno, C. B. Nelson and W. H. Ellett, "A Consideration of the Significance of Carbon-14 Discharges from the Nuclear Power Industry", Proceedings of the Thirteenth AEC Air Cleaning Conference, Conf-74080 NITS, Springfield, VA, vol. 2, pp 1047-1055, March 1975.
2. V. P. Rublenskiy et al., Atomic Electric Power Stations as Sources of Carbon-14 Discharge, Presented at the Third International Congress of the International Radiation Protection Association, Washington, D. C., 1974.
3. C. O. Kunz, ^{14}C Gaseous Effluents From BWR's, American Nuclear Soc. Annual Meeting, New Orleans, LA, June 8, 1975.
4. C. O. Kunz, ^{14}C Gaseous Effluents From PWR's, Health Physics Soc., Knoxville, TN, October 21, 1974.
5. C. J. Bendixsen and F. O. German, 1974 Operation of the ICPP Rare Gas Recovery Facility, ICP-1057 Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, ID, March 1975.
6. J. R. Merriman et al., Removal of ^{85}Kr From Reprocessing Plant Off-Gas by Selective Absorption, K-L-6201, Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, Oak Ridge, TN, 1972.
7. M. J. Stephenson and R. S. Eby, ORGDP Selective Absorption Pilot Plant for Decontamination of Fuel Reprocessing Plant Off-Gas, K-1876, Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, Oak Ridge, TN, to be published in 1976.
8. U. S. Patent No. 3,762,133, "Process for Separation of Components from Gas Mixtures", M. J. Stephenson, Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, Oak Ridge, TN.

13.7 ルテニウム - 106

再処理施設で生ずる抽出廃液を高温で固化処理する際に Ru は揮発し、オフガス系から除去せねばならない唯一の FP である。25,000 MWD/MTU まで照射した燃料の再処理廃液を 1 年間冷却した後の廃液中の Ru で重要な放射性同位元素は ^{106}Ru である。この ^{106}Ru は 2.5×10^5 Ci/MTU の濃度であり、全 Ru 中のほぼ 3.7 % を占める。 ^{106}Ru は β 崩壊 (0.040 MeV) し、その半減期は 1.0 年である。

5 トン/日の再処理よりの廃棄物を処理する場合、 1.25×10^6 Ci の ^{106}Ru が固化処理施設へ供給される。揮発性 Ru は可溶性であり、高温固化処理プロセスからの粒子状の Ru は不溶性と考えられる。しかし、気体状のものを不溶性のものに一部分転換させることが出来る。

Barnwell Separation Facility (BSF) の最終版安全解析書⁽¹⁾では、排気筒からの放出量を ^{106}Ru 、4.6 mCi/日と推定しているが、この放出量は州政府および連邦政府の全ての規準値および仕様 (specification) を満足している。⁽²⁾

現在、廃棄物固化処理における揮発性 Ru の発生についてはほとんど知られていない。模擬 LWR 商用廃棄物を流動床か焼した時に揮発する Ru については、実験室規模のデータがあり、流動床内燃焼加熱方式の場合には、 1.7×10^{-3} % が揮発する。この値は恐らく他の高温処理プロセスで得られる値と同じくらい低いであろう。

13.7.1 利用可能な技術

13.7.1.1 放出

各種の方法で廃棄物を固化処理する時にオフガス系へ行く Ru の量は知られていない。このことがオフガス洗浄で要求される条件に与える一般的影響については、13.7.2.2 で述べる。同様に考えると、発生したガス状の Ru の放出に関する決定にも影響を与える。

クエンチ・タンクおよびベンチュリースクラバでオフガス中の粒子を除去すれば、同時に大部分の Ru も除去されるであろう。13.7.2.1 で述べたように、揮発した Ru に対する循環式クエンチ・タンクスクラバ系の除染係数 (DF) は約 20 である。

利用の可能性の現状

実験室規模で模擬 LWR 廃棄物の流動床か焼処理時に揮発する Ru が測定されているが、実際の廃棄物による研究は実施されていない。パイロットプラントおよび実証プラントでの研究も行なわれていない。

ガス状態で発生する Ru の量は予想放出量を計算するうえで一番重要である。現在のよく使われるオフガス処理コンポーネントが揮発した Ru に与える影響も調べなければならない。

揮発性が高い条件におけるオフガス系へのRuの影響も考慮すべきであり、ある種の条件下^(3,4)では、揮発したRuの1部は器壁に析出して閉塞の問題を生ずる恐れがある。

13.7.2 開発の必要な技術

13.7.2.1 流動床か焼

再処理より生ずる廃棄物は流動床を外部から加熱して固化することが出来る。外部加熱は、例えば、管の束を流動床の中に挿入し、この管に熱媒体を循環させて行なえる。この方法は Idaho National Engineering Laboratory (INEL) の廃棄物か焼施設 (WCF) で、最初の3回のキャンペーン期間で利用された。この代りに現在用いられている加熱方式は、流動床内でケロシンを直接燃料するものである。

加熱方式によって気体として発生し、オフガス系に流出するRuの量の変動する(廃棄物の型式もまた発生する量とオフガス洗浄系での安定性に影響を及ぼす)。模擬LWR廃棄物を用いたINELでの最近の研究では、流動床か焼炉に供給したRuのうち間接加熱中にか焼炉で生ずるガス状Ruの量は温度によって変わり、570°Cで 6×10^{-4} %, 500°Cで 3×10^{-2} %, 375°C以下で100%となることを示している。流動床内燃焼加熱(IBC)の場合、500°Cおよび570°Cで同じ揮発率(2×10^{-3} %)となる。(この値は、間接加熱方式では550°Cの時にえられる。)

流動床か焼処理では、揮発性Ruの抑制を別にすれば、出来るだけ低い温度で運転するのが望ましい。間接的加熱方式で550°Cより著しく低い温度では、Ruの揮発量は非常に高くなる(2×10^{-3} %を超える)。従って、内部燃焼加熱方式が運転上望ましく、この方式で操作温度を出来る限り低くすることが可能となろう。間接的加熱方式では、不注意な温度降下により大量の¹⁰⁶Ruが発生することがある。IBC方式では、ケロシンの燃焼効率を保証するためには、475~500°C付近の最低操作温度が必要となる。

か焼炉からのRu(気体状のものと粒子状のもの)は、排気筒に達する前にオフガス洗浄系のコンポーネントで除去しなければならない。固体粒子状のRuの除去については、本質的には他の放射性核種と同じ洗浄の条件が要求される。粒子状およびガス状のRuの除去装置として考えられるコンポーネントには、サイクロン、クエンチタンク、ベンチュリースクラバ、Ru用の吸着塔およびHEPAフィルタがあげられる。これらのうち、揮発したRuの除去に一番効果的なものは吸着塔である。多くの吸着材が実験室で研究されており、研究された吸着材のうちではシリカゲル(Davidson Grade 40)が最適であった。それは、揮発したRuに対して高いDF(>1,000)をもち、高い吸着容量(>140g Ru/ft³)を示し、適度の温度で吸着し、オフガスに侵されることなく、また容易に再生することが出来る。

WCFの運転によって、か焼した各種の廃棄物についてのRuの揮発率が測定されたとともに、サイクロン、クエンチタンクーベンチュリースクラバ、シリカゲル吸着塔およびHEPAフィルタなどの種々のオフガス処理コンポーネントのRu（粒子および揮発したもの）に対するDFの概算値が計算出来る情報がえられている。これらの概算値をTable1に示す。またこのTableには、LWR廃棄物からの揮発性Ruに対するか焼炉およびサイクロン系のDFをも示す。

TABLE 1
Approximate DF's for Ruthenium Across Off-Gas Components

	<u>Calciner and Cyclone</u>	<u>Quench Tank and Scrubber</u>	<u>Silica Gel Adsorber</u>	<u>HEPA Filter</u>
Particulate Ru	---	40	8	940
Volatilized Ru	5.9×10^4	20	1000	1

WCFでは、生成した全固体の30~40%は微粒子であり、生成した全固体の約10%はサイクロンから出てしまう。このサイクロンの総括効率は75%である。INELの新廃棄物か焼施設用に設計された最新のサイクロンは約99%の効率をもつものとなろう。LWR廃棄物は25~30%の微粒子を生ずるだろうから、全固体のうちサイクロンを通過するのはわずか0.3%となろう。凝縮器を使用すれば揮発したRuに対して10~50のDFがえられよすが、凝縮液の処理処分にもない諸問題が生じて余り好ましくない。

Ruの揮発に関する実験室での測定およびWCFの運転データから推論したオフガス処理コンポーネントのDF値に基づいた、Ruの流れを示したプロセスフローシートをFig.1に示す。

シリカゲルは温水で洗浄して再生することが出来る。洗浄溶液はか焼した廃棄物と比較して量が少なく、蒸発または給液タンクに送りか焼することが出来る。

洗浄系で除去されたRuは、廃棄物給液と混合してか焼炉に循環されよう。物質収支を解析すれば、Ruは固体生成物に蓄積することが判る。か焼炉に供給されて洗浄系に入るRuの量およびリサイクルする洗浄液の給液に対する容量比に応じて、洗浄液中のRu濃度は一定値に達しよう。

か焼固体中のRuはさておき、オフガス処理系で発生する唯一の廃棄物は、Ruも含めた各種の微粒子を除去するために使用したフィルタである。フィルタの交換頻度は、その装荷容量と同時に、フィルタに達する全微粒子の量により決められよう。

利用の可能性の現状

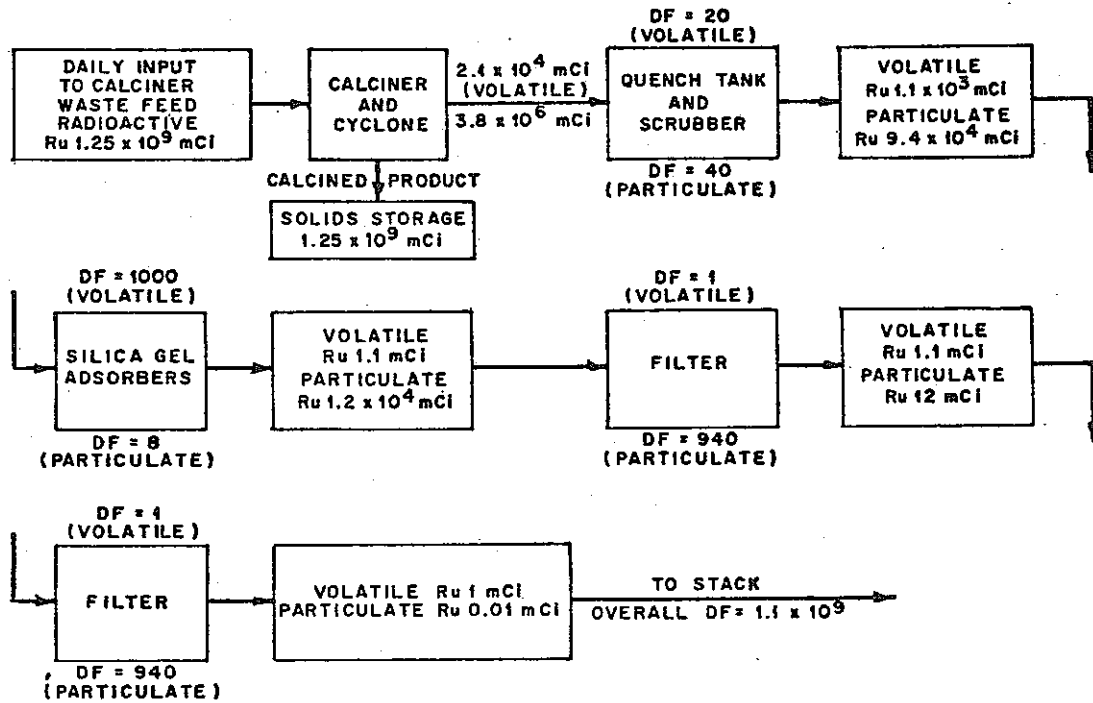
模擬廃棄物を流動床か焼した時のRuの揮発性に関する実験室での研究はほぼ完成している。しかし、実際のLWR廃棄物での測定は行なわれていない。模擬廃棄物を用いるパイロ

ットプラントでの測定は、1年以内に行なわれるだろう。LWR実廃棄物または模擬廃棄物を用いた実証運転は行なわれていない。

主要な開発事項

模擬LWR廃棄物を用いたパイロットプラントの研究を、給液前処理工程の選択が出来るまで続けるべきである。そして、選択したプロセスについて、実際のLWR廃棄物を用いたホットラボ施設またはパイロットプラントでの試験が必要であり、この試験でRuの流路の研究も行なうべきである。この試験では、種々の運転条件において、か焼体中により完全にRuが封じ込められるようにするために、給液中への化学試薬添加の影響がしらべられるかもしれない。

Ru除去用のオフガス処理コンポーネントの有効性はパイロットプラント規模で徹底的に研究し、工場規模の装置に外挿出来るように十分なパラメータ的データをえなければならぬ。



BASES FOR FLOWSHEET

1. CALCINATION AT 500°C WITH IBC-Ru VOLATILITY $1.7 \times 10^{-3} \%$.
2. 0.3% OF TOTAL SOLIDS ENTER OFF-GAS STREAM.
3. AGNS WASTE; ONE YEAR COOLED; FROM 25,000 MWD/MTU FUEL.
4. CALCINATION RATE = WASTE FROM PROCESSING 5 MTU/DAY.
5. DF'S FROM WCF OPERATING EXPERIENCE (TABLE 1).

FIGURE 1. Conceptual Process for Containment of Ruthenium During Fluid-Bed Calcination of Commercial Waste

13.7.2.2 その他の固化処理プロセス

その他の廃棄物固化処理法からの揮発したRuを含むオフガスの処理は、13.7.2.1で述べた流動床か焼プロセスの場合と本質的には同じである。違いがあるとすれば、揮発したRuの量に直接関係するものとなる。揮発性の高さに比例して、いっそう高い総括DFおよび吸着容量が必要となる。

固化プロセスによってはRuの揮発量が非常に大きいため、十分なオフガス処理が不可能かまたは可能としても非常に困難であり高価となる。例えば、予備的な実験室データによれば、ロータリ・キルンか焼法ではRuの1～10%が揮発する。この結果、ロータリ・キルン法では流動床か焼法の500～5,000倍の高い総括DFと吸着容量が必要となる。このような状態に対処して、Ruがパイプおよびコンポーネント内壁に析出して閉塞の原因となりえないように十分に配慮することも必要である。これの主な対策として、壁温を150～300℃に維持せねばならない。^(3,4)

オフガスからRuを除去する方法の代替法として、固体中にRuを保持するための添加物を用いるものがある。例えば、高温のpHの高い(塩基性)システムでは、熔融体中でアルミノシリケートが生成してRuを固定する。⁽⁶⁾

利用の可能性の現状

流動床か焼法以外の各種のプロセスによって、LWR廃棄物を固化処理した場合のRuの挙動に関する重要なデータはない。

主要な開発事項

選択したいかなるプロセスにおいても、13.7.2.1で概説した一般的開発事項は考慮せねばならない。さらに、コールド模擬LWR廃棄物を用いて、処理中のRuの流路に関する相当な実験室規模のデータをまず入手すべきである。この後に、プロセスの可能性あるいはRuの制御に必要な付加的な開発について、予備的に評価することが出来よう。

REFERENCES

1. Barnwell Nuclear Fuel Plant Separations Facility Final Safety Analysis Report, Allied-Gulf Nuclear Services, Barnwell, S.C., Table 8.5-2 and Figure 5.24.1.
2. Barnwell Nuclear Fuel Plant Separations Facility Final Safety Analysis Report, Allied-Gulf Nuclear Services, Barnwell, S.C., p. 8-2.
3. J. R. Bower, ed., Idaho Chemical Programs Annual Technical Report Fiscal Year 1973, ICP-1047, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, ID, 00. 88-90, June 1974.
4. A. O. de Bettencourt and A. Jouan, Ruthenium Volatility During Vitrification of Fission Products. Part II. Fixation on a Steel Tube. Peroxide Decomposition, Report CEA-R-3663 (II), January 1969.
5. B. J. Newby and V. H. Barnes, Volatile Ruthenium Removal from Calciner Off-Gas Using Solid Sorbents, ICP-1078, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, ID, July 1975.
6. R. E. Isaacson and L. E. Brownell, Continuous Process for Immobilizing Radionuclides, Including Cesium and Ruthenium Fission Products, ARH-SA-222, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, Washington, April 1975.

13.8 微粒子の除去

13.8.1 利用可能な技術

直径 3 μ 以下の固体およびエアゾルのような微粒子は、換気空気中ならびに施設の排気およびオフガスから除去することが困難なために、核物質取扱い操作上非常に重要な課題である。直径 3 μ 以下の微粒子は一般にエアボーン粒子の質量の 96~97% を占めるが、これはすでに確立した方法で比較的容易に除去出来る。しかし、これよりも小さな粒子の数は、存在する粒子数の 99.999% 以上とみなされる。原子力施設においては、これら微粒子は砂またはガラス繊維のディーブ・ベッドもしくはよりコンパクトな高性能粒子フィルタ (HEPA) で一般に除去される。ろ過工程は、しばしば、前処理またはプレフィルタもしくはその両方の後段に設置される。前処理ではサイクロン、沈降室、湿式集塵装置、繊維 (例えば振動可能なバッグ) フィルタ、静電気集塵装置ならびに工業的および汚染低減サービスに使用されているその他の空気洗浄装置が用いられる。オフガスを他の空気またはガス処理装置へ通す前に、前処理装置はある種の作業で発生する高濃度のダスト、ヒュームまたは煙を除去するのに用いられることがある。前処理装置の多くは微粒子の除去に対しては有効ではない。繊維フィルタおよび静電気集塵装置のような効果的な装置は捕捉した物質を再同伴する運転サイクルを有している。物質の再同伴は、例えば、繊維 (バッグ) フィルタの振動サイクル時または、静電気集塵装置のラッピングサイクル時に起こりうる。そのうえ、サイクロンまたは静電気集塵装置のような“能動的 (active)”な空気洗浄装置で動力が停止した場合、空気洗浄機能の全体的損失となる。^(1,2,3)

13.8.1.1 プレフィルタ

プレフィルタとしては、下流側の最終フィルタの寿命を伸ばすため、大きな粒子およびリント (糸くず) を捕集する普通の換気型空気フィルタを使用する。プレフィルタの材質は、住宅用および商業用エアコンディショナならびに炉 (furnace) によく用いられている 1~2 インチ厚のガラス繊維または金属メッシュ型から、“ダストスポット”^{*} 効率試験で 90~95% もの高い効率を示す乾式型フィルタ⁽⁴⁾までいろいろである。原子力施設で用いられる大部分のプレフィルタは、空気流量容量 15,000, 30,000 または 60,000 l/min のモジュールユニット 60 m^2 (24 \times 24 in) のものであり、これらは用途で要求される設備容量に応じて単体または複数で使用される。

モジュールプレフィルタには、洗浄可能な材、交換可能な材および使い捨ての材の 3 型式がある。洗浄可能な材型は原子力施設ではめったに使われない。洗浄することは単に

*ダストスポットテストは商用フィルタの標準効率試験である。フィルタにガスを通す前と後とでフィルタ紙上の汚染度を比較する。

気体廃棄物の問題を液体廃棄物の問題に置き変えるだけであるからである。また、洗浄可能なろ材フィルタは効率が低くて不利益である。交換可能なろ材フィルタはろ材を固定するための耐久性（しかし取外し可能で、永久に設置されるものではない）フレームを有している。このろ材は一定の形に編むかまたは織ったバッグあるいは“袋状”のもの、もしくは単に一枚の不織ガラス繊維マットであり、このろ材を支持するための網または組合せ針金を用いることも、用いないこともある。使い捨てフィルタは、不織のガラス繊維マット製の低効率のパネルまたは“炉”フィルタから高効率（95%のダストスポット）の乾式型フィルタまでろ材はいろいろである。“炉”型フィルタは大きな粒子やリント（lint）の捕集には有効であっておおまかに集塵する場合によく使われるが、最終段のHEPAフィルタをあまり保護することにはならない。現在、最もよく用いられている使い捨てプレフィルタは、中程度の効率のもの（35%ダストスポット）から高性能フィルタに至るユニットである。このユニットのコアは、アルミニウムまたはアスベスト-紙隔離板と交差して前後にヒダをつけたガラス繊維ろ材であり、このコアの外側をすっぽり包む長方形の金属、木材または無機材板ケーシングに収納されている。ダストが蓄積すると、単に古いフィルタを廃棄し新しいフィルタと交換してろ過機能が回復される。

利用の可能性の現状

色々な設計および効率をもったプレフィルタは商業的に入手可能である。

主要な開発事項

使用済フィルタの処分は、さらに配慮しなければならない分野である。現在、大部分のモジュールプレフィルタは、その形状をかえないうちに単に地中埋没されている（ドラム缶に収納するかまたは時によってはコンクリートに箱詰めされた後で）。微粒子の再同伴や汚染の問題が生じない方法でフィルタを経済的に減容する方法が必要である。フィルタの処理方法は9章に述べた。

13.8.1.2 砂フィルタおよびディープ・ベッドガラス繊維（DBGF）フィルタ

非常に大流量の空気を処理する場合、多数のモジュールプレフィルタに代わるものとして、砂フィルタおよびDBGFフィルタがある。砂フィルタは1948年以来小数のERDA施設で放射化学工場および建家排気用に用いられている。^(5,6) これらは密度の少しずつ変化した砂およびじゃりを充てんした非常に大きな（深さ2~3m、面積数十平方メートル）ベッドからなり、ベッドはコンクリート側壁の大型地下ピットに收容されている。砂フィルタの利点は、大きいダストの保持容量、低い保守の必要度、化学的浸食に対する不活性、すぐれた耐火性および熱吸収性ならびに大きな圧力変動に対する抵抗性および衝撃装荷しても機能の低下や喪失のないことである。粒子の除去効率はHEPAフィルタの粒子除去効率に近いと

称されているが、これは充てん層の厚さおよび使用する砂の種類に依存する。欠点は設備コストが高いこと、広いスペースが必要なこと、圧力損失が大きいこと、適当な砂の選択および入手可能性が不確定なことならびに使用済ユニットの処分にコストがかかりすぎること（現在までは、処分は使用済のユニットを密封し、新しいユニットをその近くに建設することにより行なわれている。）である。いくつかの施設では、砂フィルタに導入される排気およびプロセスダクトには一般にHEPAフィルタが設置されているが、砂フィルタが最終の微粒子除去装置として用いられている。

DBGFフィルタは多くのERDAの放射化学施設でより高価な砂フィルタの代りに使用されている。DBGFフィルタは、上下両端に孔をあけたプレートスクリーンを付けた大きなステンレス鋼製の箱（ $1 \times 3 \text{ m}$ の表面積で厚さは 2 m ）に収容した“ガラス繊維”絶縁材または“ウール”の厚いベッドから成っている。普通、ウールの充てん密度をそれぞれに変えた2つ以上のベッドを直列に使用する。必要なシステムの空気流量が大きいときは、これに応じて多数のフィルタベッドを並列に設置できる。これらのフィルタはすべて地下のコンクリート壁のピット中に配置される。砂フィルタと同様に、DBGFフィルタは粒子やダストの保持容量が非常に大きく、保守の必要性が少なく、大きな圧力変動に耐え、設計上の融通性があり、正しく使えば寿命が長い。砂フィルタにくらべると、DBGFの圧力損失は小さく従って運転コストが低くなり、また設備コストも少ない。使用済システムの再生はフィルタベッドを交換して行ない、同じピットを再使用する。一方、砂フィルタにくらべてDBGFフィルタが劣る点は、熱容量または耐火性が低いこと、化学的抵抗が低いこと、爆発的過大圧または衝撃波の緩衝能力もしくは自己修復性がないことである。現在までにただ1つの繊維物質のみが満足すべきものであることが知られている。すなわち、ろ過効率はウールの充てん密度またはベッドを通過する空気の流速を変えただけで変動させることが出来る。DBGFで実際に得られる最良の効率は、中ぐらいの効率をもつモジュールプレフィルタ（例えば、35～50%のダストスポット効率）と同程度のものであろう。⁽⁷⁾しかし、高い効率のDBGFフィルタについての報告もある。^(8,9)

利用の可能性の現状

砂フィルタおよびDBGFフィルタは両方とも多くの原子力工業施設で使用されており、そのコンポーネントおよび設計データは容易に利用出来る。

主要な開発事項

設備コストの低減および使用済フィルタの処分に関してはさらに考慮する必要がある。

13.8.1.3 HEPAフィルタ

アブソリュートまたは最終ろ過は、ほとんどいつもHEPA (high efficiency particulate air) フィルタを用いて行なわれている。⁽¹⁰⁾定義によれば、これは丈夫なフレ

ームを持つ使い捨ての広げたる過媒体を有する乾式型フィルタであり、加熱して発生させた 0.3μ の単分散のジオクチルフタレート (DOP) エアゾルで試験して、 0.3μ の粒子に対して 99.97% 以上の粒子捕集効率をもっている。また、このフィルタの所定の空気流量における最大圧損は、新品フィルタで $2.5 \text{ cm H}_2\text{O}$ である。HEPA フィルタは木製または耐腐食性の鋼のフレーム中に収容され、一般に波形をしたアルミニウムまたはアスベスト紙の隔離板とこれをはさんで前後にひだを付けたガラス繊維紙の連続した織物状のものからできたコアを有するが、ある製造業者は隔離板の付いていないコアをつくっている。モジュール・プレフィルタの最良のものは、 0.3μ およびそれ以下の粒子に対して $6 \sim 7$ の除染係数 (DFs) を示す。これに対して、HEPA フィルタではこの範囲の粒子に対しては最低 $3,333$ の DF が要求され、現在製造されている HEPA フィルタの大部分は約 $10,000$ またはそれ以上の DF (効率にして 99.99% またはそれ以上) を示す。このように効率が高いため、プレフィルタを設置して多量の大きな粒子、ダスト、煙およびヒュームを除去し、HEPA フィルタを防護しなければならない。(13.8.1.2 および 2 で述べたことは主としてこの機能に関するものである。) Pu, 超ウラン元素およびさらに高い除染係数を必要とするその他の目的に使用する場合には、HEPA フィルタを直列に設置することも出来よう。各段について個々に試験出来る場合、通常の運転条件下で HEPA フィルタを直列に 2 段および 3 段にすれば、それぞれ 9×10^6 および 3×10^{10} の除染係数は無理なく得られる。実際の除染係数はこれより相当高くなる⁽¹¹⁾。HEPA フィルタを適切に設置することが、ミクロン以下のエアゾルに対してこのような高い除染係数を得られるかどうかの決め手であり、Nuclear Air Cleaning Handbook (ERDA 76-21) の勧告をよく守るべきである。⁽¹²⁾

利用の可能性の現状

高い効率で微粒子を捕集する理論および技術は十分に確立しており、設計、性能およびコストデータは容易に利用出来る。厳格な標準化した試験手順も確立している。HEPA フィルタは現在広く用いられている。

主要な開発事項

プレフィルタの場合と同様に、使用済フィルタの処分は関心のもたれる問題である。HEPA フィルタの処理は 9 章で述べた。新たな汚染の問題を生じないような処分のための減容方法を開発する必要がある。

REFERENCES

1. John A. Danielson, Ed., Air Pollution Engineering Manual, Environmental Protection Agency, May 1973.
2. Proceedings: Symposium on the Use of Fabric Filters for the Control of Submicron Particulates, EPA-650/2-74-043, Environmental Protection Agency, May 1974.
3. Symposium on Electrostatic Precipitation for the Control of Fine Particles, EPA-650/2-75-016, Environmental Protection Agency, January 1975.
4. C. A. Burchsted, et al., Nuclear Air Cleaning Handbook, ERDA 76-21, Energy Research and Development Administration, 1976, Section 3.3, "Prefilters."
5. C. A. Burchsted, et al., Nuclear Air Cleaning Handbook, ERDA 76-21, Energy Research and Development Administration, 1976, Section 9.6, "Sand Filters."
6. R. A. Juvinal, et al., Sand Bed Filtration of Aerosols: A Review of Published Information on Their Use in Industrial and Atomic Energy Facilities, ANL-7683, 1970.
7. C. A. Burchsted, et al., Nuclear Air Cleaning Handbook, ERDA 76-21, Energy Research and Development Administration, 1976, Section 9.7, "Deep Bed Glass Fiber Filters."
8. A. G. Blasewitz, W. C. Schmidt, Treatment of Radioactive Waste Gases, Progress in Nuclear Energy, Series III, vol. 3, Process Chemistry, Pergamon Press, 1961.
9. G. A. Schurr, et al., Deep Bed Filter Performance Tests, 12th AEC Air Cleaning Conference, Oak Ridge, TN, CONF-720823, August 1972.
10. AACC Standard CS-1, Standard for HEPA Filters, American Association for Contamination Control, May 1968, paragraph 4.a.
11. C. A. Burchsted, et al., Nuclear Air Cleaning Handbook, ERDA 76-21, Energy Research and Development Administration, 1976, Table 2.6, "Recommended Safety Credit Decontamination Factors for Multi-Stage HEPA Filter Systems."
12. C. A. Burchsted, et al., Nuclear Air Cleaning Handbook, ERDA 76-21, Energy Research and Development Administration, 1976, Section 3.2, "HEPA Filters."

1 4 0 揮発性放射性同位元素の固定化

1 3 章で記述した技術によつて，分離，濃縮あるいは捕集した揮発性放射性同位元素は，安全に長期貯蔵するために固定される。

分離法および濃縮法のいずれも工学的貯蔵または物理的もしくは化学的固定技術によつてその意義を増大させなければならない。揮発性放射性同位元素捕集技術の多くは固定法としても十分に適用できるが，このようにして固定した廃棄物の封じ込めおよび移送のための物理的方法にはさらに若干の開発が必要と思われる。

2 次封じ込めの必要な度合は，1 次貯蔵技術によつて変わる。工学的貯蔵システムには相当の支援技術が必要であり，非常に安定性の高い化学的または物理的形態を利用する方法では，2 次系はより簡単となる。

1 4.1 クリプトン-85

1 4.1.1 利用可能な技術

1 4.1.1.1 圧力シリンダ

現在の技術では放射性希ガスの貯蔵は圧縮ガスシリンダに限られているが，このような圧力シリンダ貯蔵が暫定的または長期的（～200年）な貯蔵に適用可能かどうかはまだ決定されていない。Fig 1 に示すように，工学的貯蔵施設は遠隔操作の移送ケーブルおよび密閉貯蔵区域の2つの部分から成っている。圧力シリンダはしゃへいした移送カスク⁽³⁾に収容して台車（straddle carrier）でケーブルに移送し，この移送ケーブル内でカスクから取り出し，密閉貯蔵区域内の貯蔵スロットに移送する。これらの操作は天井クレーン，メカニカルマニプレータおよびのぞき窓により遠隔操作で行なう。

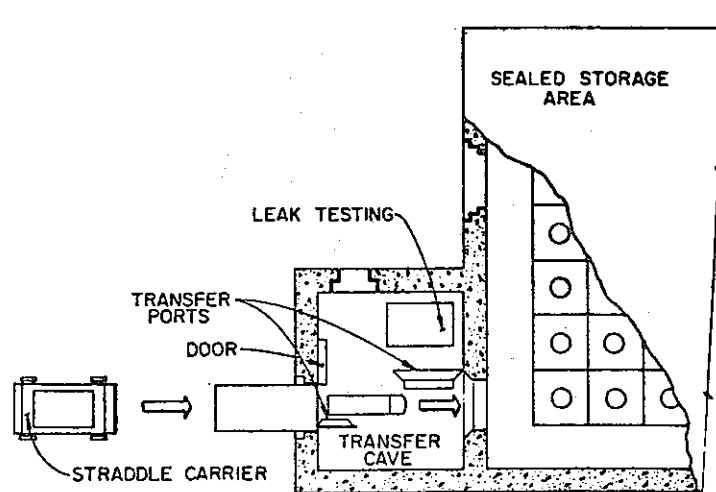


FIGURE 1. Pressurized Cylinder Storage Facility for ^{85}Kr

貯蔵庫はシリンダの1つの漏洩による ^{85}Kr の異常放出を防ぐため密閉構造にする。この施設は120本から386本のシリンダを貯蔵するよう設計される(1,500トン/年の再処理工場で5年間に発生する量に相当する)。シリンダの正確な本数は、シリンダの最大許容圧力および分離工程で得られるKrの純度によって異なる。1本あるいはそれ以上のシリンダが破損した場合、放出された ^{85}Kr は、接するKr回収施設を通してリサイクル出来るまで、貯蔵施設に閉じ込めなければならない。 ^{85}Kr の崩壊熱を十分に冷却するよう設計することが必要である。⁽²⁾

利用の可能性の現状

提唱されている設計は、使用済燃料集合体のような放射性物質の貯蔵に現在使用されている乾式貯蔵施設に類似している。したがって、圧力シリンダ中に ^{85}Kr を貯蔵する実証施設を設計する技術は利用可能である。

主要な開発事項

貯蔵施設の実証では、冷却方法、Krリサイクル方法の信頼性および崩壊生成物であるRbの貯蔵容器に対する起こりうる長期効果を確認することが必要となる。

1.4.1.2 開発の必要な技術

1.4.1.2.1 ゼオライトカプセル化法

ゼオライトは一様なサイズの空洞が規則正しく配列した結晶性アルミノケイ酸塩であり、ある型のゼオライトではその空洞の大きさは結晶構造により特性的に決まる。⁽⁴⁾ Fig 2に一群の方ソーダ石(sodalite)ゼオライトのかご(cage)構造を示す。各々のかご内に1個のKr原子を収容している。各々の方ソーダ石のかごは稜を面取りした八面体($\sim 6.6 \text{ \AA}$ の自由径)から成り、6つの環面はそれぞれ接する方ソーダ石と共有して全体として結晶構造を構成する。各々のかごを占有しているKr原子の室温での気体動力的直径は $\sim 3.5 \text{ \AA}$

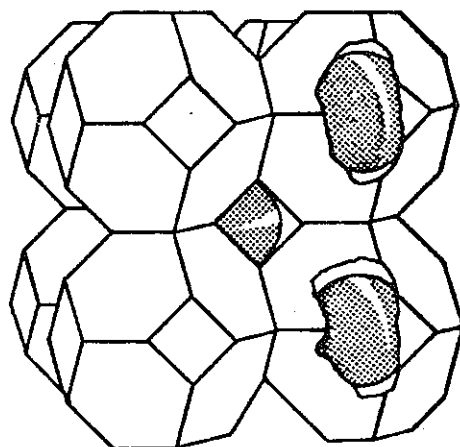


FIGURE 2. Representation of Sodalite Crystals Containing Krypton Atoms

Kr がこのような空洞構造を通して拡散する過程は、活性拡散 (activated diffusion) として知られている。というのは、Kr 原子が $2.3 \overset{(4-6)}{\text{Å}}$ のすき間を通り抜けるには活性化エネルギーを必要とするからである。高温および高圧 (450°C , $1,000 \text{ atm}$) では、Kr 原子は結晶構造のかご内へ拡散するのに十分なエネルギーを有するが、低温 ($< 150^\circ\text{C}$) では収容されている Kr 原子は感知できる程の速度で外へ拡散するだけのエネルギーを有しない。したがって、Kr 原子は迅速拡散しうる条件下でかごの中に導入し、各々の Kr 原子がそのかごの内部で高い実効圧力を受けていても、周囲の外圧で方ソーダ石中に保持することが出来る。

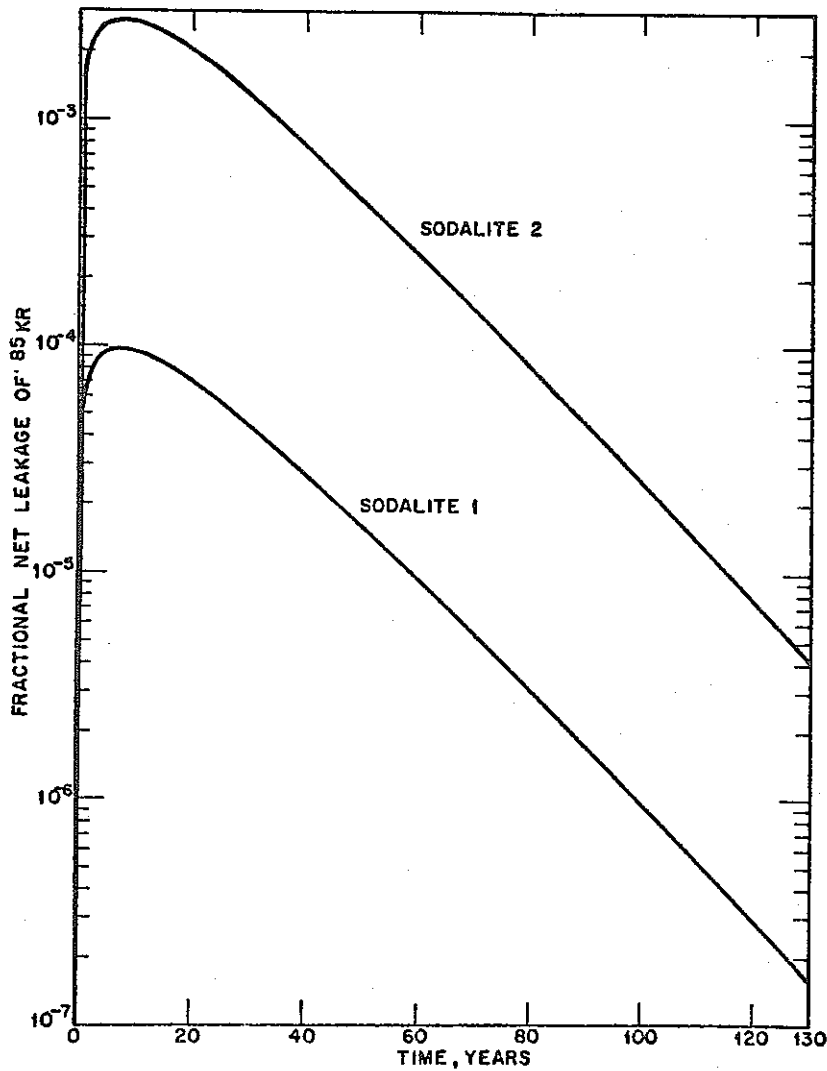


FIGURE 3. Calculated Release of Original ^{85}Kr Inventory from Sodalite as a Function of Time

方ソーダ石中への Ar (アルゴン) および Kr のカプセル封入 (encapsulation) の実験研究が行なわれている。⁽⁵⁾ これらのデータから、⁸⁵Kr の放出量 (⁸⁵Kr の正味の漏洩率) は 150°C の貯蔵温度における時間の関数として表わすことが出来る。Fig 3 には、この結果と ⁸⁵Kr の崩壊を考慮して、2 種類の方ソーダ石試料についての放出曲線を示してある。最大の正味漏洩率 (net leakage) が 0.3% から 0.01% であるとする、压力容器貯蔵では (破損した貯蔵容器よりの潜在的な漏洩を基準とした) 安全係数が 200 ~ 6,000 であることを意味している。活性拡散速度は温度に関して指数関数的に変化する、貯蔵中の ⁸⁵Kr の放射性崩壊熱の放散速度が重要な因子となる。ゼオライトを充てんした時の容器内温度分布 (プロファイル) を推定するのに、直径 23 cm の鋼製貯蔵容器の熱伝導モデルを使用した。ゼオライトへの Kr 装荷量 1.8×10^{-3} mole/g (40 Ncm³/g) および外周温度 (対流伝熱) では、計算による中心温度は 150°C、平均温度は約 120°C であった。したがって、Fig 3 に示した 150°C での推定漏洩率は、このような条件については控え目であるといえる。

Fig 4 に、ゼオライト内へ Kr 原子をカプセル封入する代表的な工程フローシートを示す。活性化ゼオライト (格子間水を除去) を压力容器内に導入し、カプセル封入温度に加熱する。⁸⁵Kr を含有する Kr を導入し、ゼオライトの空孔が満たされるまでカプセル封入圧力に加圧する。ついで、温度を下げ、過剰の Kr の圧力を下げて貯蔵シリンダへ戻す。⁸⁵Kr をカプセル封入したゼオライトを取り出し、工学的貯蔵施設で長期貯蔵するための貯蔵容器内に収容する。

1,500 トン/年の再処理工場では年間約 9.81 MCi の ⁸⁵Kr が発生する。もし、 1.8×10^{-3} mole/g (40 Ncm³/g) の Kr (6% ⁸⁵Kr) を方ソーダ石のようなゼオライトにカプセル封入する場合は、約 2,800 Kg/年のゼオライトが必要となる。もし、50,000 Ci の ⁸⁵Kr を 1 バッチでカプセル封入するとすれば 20 l の高压容器が必要であろう。これらの作業に必要な技術は標準的な高压工業の技術でまかなえる。

固体移送作業を含め、このカプセル封入処理は、高放射線下で行なわれるので遠隔操作しなければならない。高压プロセス機器の機械的な防御に加えて、加圧系の破損の場合は大量の放射性 Kr を確実に封じ込めることが必要である。

ゼオライトにカプセル封入した ⁸⁵Kr の貯蔵は、圧力シリンダの貯蔵に用いたと似た方法で、工学的貯蔵施設で行なうことが出来る。そのような施設については、この章の初めの部分で述べた (1.4.1.1.1 参照)。

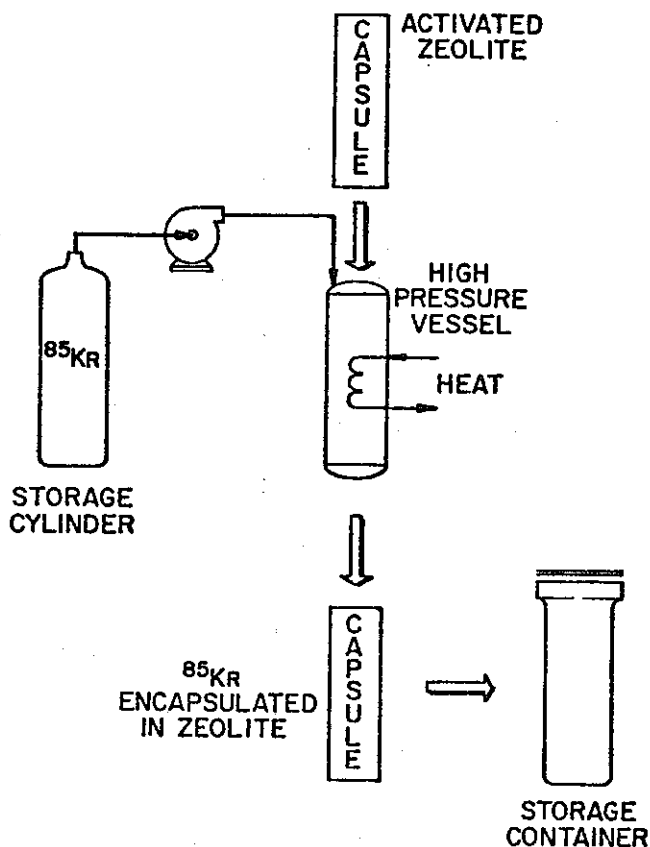


FIGURE 4. Process for High Pressure Encapsulation of ^{85}Kr in Zeolite

利用の可能性の現状

この処理法の実験的試験は Idaho National Engineering Laboratory (INEL) で現在行なわれている。パイロット規模の開発研究は、約3年間の実験室規模の試験の終了をまって着手可能と考えられ、概念設計基準は1980年に設計する再処理工場には間に合わせて確立することが出来る。実験研究は、貯蔵特性を求めため、新型のゼオライトはもちろん方ソーダ石のような既知物質についても試験が行なわれている。カプセル封入条件の最適化について研究されているが、これはパイロットプラント規模の開発中も続けられる予定である。パイロットプラント設計には、圧力容器のスケールアップ、工場規模のプロトタイプの可能性および遠隔操作の可能性に関することが含まれている。

主要な開発事項

実験室規模の研究により、方ソーダ石および有望な構造を有する他の適当なゼオライト中に ^{85}Kr をカプセル封入するための最適な条件を求めなければならない。種々の温度における漏洩速度の基礎的研究によって Fig 3 に示したような漏洩曲線を求めなければならない。

工場規模のカプセル封入システムを設計する必要がある。高圧，遠隔作業および遠隔操作する技術はあるが，これらを組み合わせて一つの作業システムとする必要がある。工場規模のカプセル封入作業中には比較的大量の ^{85}Kr を取扱うので，放射性崩壊熱を十分に冷却する必要がある。

長期貯蔵のための基準をさらに明確にする必要がある。ゼオライト中に貯蔵した ^{85}Kr は熱を発生する。したがって，貯蔵温度がゼオライト空孔中の ^{85}Kr の拡散放出が起こる値（方ソーダ石では Fig 3 に示したように約 150°C ）を超えないように熱を放散させなければならない。 ^{85}Kr の崩壊生成物 Rb（ルビジウム）の影響もまた評価しなければならない。⁽⁸⁾（Rb の有利な影響として，方ソーダ石中の空孔の閉塞を助ける可能性があげられる。） ^{85}Kr をカプセル封入したゼオライトを取扱う際は，たえずほこりの発生をおさえるかまたは封じ込めなければならない。

REFERENCES

1. B. A. Foster, D. T. Pence, and B. A. Staples, "Long Term Storage Techniques for ^{85}Kr ," Proc. Thirteenth AEC Air Clean. Conf., 1974, CONF-740807, NTIS, Springfield, VA, vol. 1, pp. 293-298, March 1975.
2. B. A. Foster and D. T. Pence, An Evaluation of High Pressure Steel Cylinders for Fission Product Noble Gas Storage, ICP-1044, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, ID, February 1975.
3. C. W. Nielsen, Safety Analysis Report for Packaging Krypton Shipping Container, ICP-1077, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, ID, June 1975.
4. D. W. Breck, Zeolite Molecular Sieves, John Wiley & Sons, New York, N.Y., 1974.
5. R. M. Barrer and D. E. W. Vaughan, "Trapping of Inert Gases in Sodalite and Cancrinite Crystals," J. Phys. Chem. Solids, vol. 32, pp. 731-743, 1971.
6. P. L. Walker, Jr., et al., "Activated Diffusion of Gases in Molecular-Sieve Materials," The Chemistry and Physics of Carbon, vol. 2, pp. 257-371, 1966.
7. R. M. Barrer and J. F. Cole, "Interaction of Sodium Vapor with Synthetic Sodalite: Sorption and Formation of Color Centers," J. Phys. Chem. Solids, vol. 29, pp. 1755-1758, 1968.

1 4 2 ヨ ウ 素 - 1 2 9

再処理工場から生ずる ^{129}I を固定 (immobilization) することは、その極端に長い半減期 (1.56×10^6 年) のため義務づけられる (mandate) かも知れない。もし、将来の貯蔵基準で物理的な単離方法の使用が除外されれば、大装荷容量で浸出性が小さく、不燃性でしかも取扱いが簡単な固体素地 (matrix) が望ましいと思われる。

Oak Ridge National Laboratory (ORNL) ではヨウ素固定にセメントの利用を検討しており、⁽¹⁾ 9 wt% の I がヨウ素酸バリウム⁽¹⁾ の形で素地中に混和できるとの知見を得ている。この技術は特に Iodox 法で捕集した I を固定するよう設計されている。5 トン/日の LMFBR 再処理工場から発生する ^{129}I を固定するには約 3 m^3 /年のセメントが必要であるとされている。

現在 Idaho National Engineering Laboratory (INEL) では、 ^{129}I の回収および貯蔵に銀および鉛で置換したゼオライトの使用が研究されている ($1.3.2.2.1$ 参照)^(2, 3)。気相の I は吸着材中で金属イオンと反応して化学吸着ヨウ化物を生成する。この方法の利点は、I の捕集と固定が同一プロセスで起こることである。化学吸着したヨウ化物は純粋なヨウ化物と同じ溶解度をもっていると予想される。5 トン/日の再処理工場で発生する I を回収するには概算で 1.5 m^3 /年の鉛置換ゼオライトが必要である。I を吸着したゼオライト物質は、セメント、ガラスまたは他の簡単な固化処理法を使用してさらに固定することが出来る。

REFERENCES

1. W. E. Clark et al., Fixation of Radioiodine with Portland Cement. I. Preliminary Scoping Studies, ORNL-TM-5064, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, December 1975.
2. L. P. Murphy et al., "Airborne Elemental Iodine Loading Capacities of Metal Zeolites", Proceedings of the 14th ERDA Air Cleaning Conference, August 1976, to be published.
3. B. A. Staples et al., "A Dry Method for Recycling Silver Zeolite used for Airborne Radioiodine Removal", Proceedings of the 14th ERDA Air Cleaning Conference, August 1976, to be published.

1 4.3 トリチウム

1 4.3.1 利用可能な技術

なし

1 4.3.2 開発の必要な技術

1 4.3.2.1 化学的貯蔵

トリチウム (^3H) の固体貯蔵媒体として使用出来そうな水素を含む化合物は多く存在し、それらには水和物、水酸化物、水素化物、有機固体および吸着材などがある。さらに、水素含有化合物を吸収する物質もまた考えられる。化合物評価に当って考慮すべき重要なことは、原料物質のコスト、調整の容易さおよびそれに関連したコスト、 ^3H 吸着容量、生成物の熱的、化学的および放射線安定性、種々の環境での浸出およびイオン交換の結果生ずる ^3H 放出の速度、生成物の機械的性質および分散性ならびに貯蔵容器との適合性である。

^3H 貯蔵媒体を評価する重要な因子は複雑で相互に関連しており、特定の選択の経済的および環境的影響を決定するに際しては、それらの因子をまとめて考慮しなければならない。どのひとつの物質をとっても、これらの基準をすべて満足出来そうなものはない。特定な廃棄物への応用は、最適な化合物（または化合物の種類）の選択に大きく影響する。例えば、 ^3H 化合物の調整コストは少量の高放射性廃液の固定に対してよりも大量の低放射性的含 ^3H 廃液の固定に対しての方がはるかに重要である。また、物質によつては元素状の ^3H の処理に優れているものもあれば、含 ^3H 廃液により適用しやすいものもある。

含 ^3H 廃棄物の発熱量は、 ^3H 崩壊に伴うエネルギーが低く (0.0181MeV) てその発熱量は 1.07×10^{-4} watts/ ^3H 1 キュリーであるためほとんど影響がない。同様に、 ^3H の生成速度もまた一般にあまり重用でないが、高放射性 ^3H 廃棄物については、 ^3He 生成および複合放射線分解による容器の加圧を考慮すべきである。

1 4.3.2.1.1 水和物

多くの水和物（水酸化物を含む）は考慮するに足らない。大部分は可溶性であり、高価である。不溶性または難溶性の物質のうち多くは水との結合力が弱く、大きな交換速度を示す。考慮するに足る低価格の化合物はシリカゲル、活性アルミナ、石こうおよびモレキュラーシーブのような化合物である。水硬セメントおよび粘土のような水和ケイ酸塩もまた ^3H 貯蔵にとつて有望な特性を示している。水硬セメントもまた一枚岩的な固体（均一固化体）を生成するという利点をもっているが、この固体は粉末状または顆粒状の化の水和物よりも小さな ^3H 放出速度を示すと予想される。

乾燥剤

一般に工業的に使用されている乾燥剤のうち、⁽¹⁾ 活性アルミナ、シリカゲル、石こうおよびモレキュラーシーブについて簡単に述べる。これらの試薬は空気中または他の気体中の水蒸気を除去するのに有効である。というのは水を急速に吸着することが出来るためである。長期間の³H貯蔵には、³Hの放出の原因となる水および水蒸気との接触を防止するため、これらの吸着材を封じ込めなければならない。これらの乾燥剤はすべて水を吸着した型および無水型で安定な固体である。これらは工業用に広く応用されており、その性質は詳細に研究されている。

石こうは水分6.2 wt%を含んだ半水合物(hemihydrate)であり、⁽¹⁾ -62°Cの露点を示すこの組成まで水を強力に吸着する。これ以上に多量の水を吸着することが出来るが、この水の結合度は強くない。これは低価格という利点はあるが、その吸着容量は小さい。

シリカゲルの水吸着容量は高く、40 wt%の水を吸着することが出来、水との結合力は強いが、低い吸着量においてしか低い水蒸気圧を示さない。⁽¹⁾ 活性アルミナによる水の吸着はシリカゲルに似ているが、その容量はシリカゲルの約50%である。

シリカゲルに比べて、モレキュラーシーブは高い水吸着容量を示し温度依存性が少ない。25°Cで、モレキュラーシーブは少なくともシリカゲルよりも高い水吸着容量をもつが、その水蒸気圧は最高となる。⁽²⁾ その容量は乾燥時重量基準で10-20%が代表的である。それらは、加熱、水および種々の化学的雰囲気による再生に対して安定である。モレキュラーシーブは他の吸着材よりも高い温度でもその乾燥剤としての特性を失わない。

ガス流中から含³H水蒸気を除去するためにモレキュラーシーブ充てん床を使用するが、この場合に、元素状³Hを酸化物に転換するために酸化銅またはプラジウム触媒が併用されることが多い。⁽³⁾ シリカゲル充てん床も使用されている。モレキュラーシーブおよびシリカゲル充てん床は、吸着後再生するよりもむしろ廃棄されることとなる。⁽⁴⁾

³H放出率を減少させるため、これら吸着材はカプセルまたは容器に封じ込めて空気および水との接触を防がなければならない。吸着したシリカゲル、ポリスチレン中にカプセル封入したモレキュラーシーブおよび重合体浸漬したコンクリートからの³H放出率をIAEA標準浸出試験の改良法により水浸出条件下で測定した。^(5, 6, 7) 大部分のものは $10^{-3} \sim 10^{-4}$ /日の割合で³Hを放出する。これらの方法によるHTO固定のコストは、吸着材の価格が大きい要素であるが、主に水の吸着形成および吸着度合により異なる。⁽⁸⁾

乾燥剤によるガス流からの水蒸気の吸着技術は良く知られており、文献に記述されているが、この種のプロセスは静的または動力学的である。動力学的プロセスは広く応用されており、乾燥剤充てん床に処理すべきガス流を通すだけのものである。必要な除去率を得るようガス流量および充てん床容積は最適化されるこの適用の場合には、乾燥剤充てん床は一般に

再生はしないでむしろ 固体廃棄物として処理・処分される。このプロセスはクローズドシステム内の ^3H 滞留量を少なくするかまたは十分な除染を行なったのちガス流を環境に放出するために用いる。

乾燥剤に水を加えるかまたは逆の方法で液態の含 ^3H 水の吸着にも乾燥剤は使用される。この方法では急激な吸着により熱が発生して水が蒸発する可能性があるので、封じ込めが必要である。

^3H の放出量を最少にするため、乾燥剤の封じ込めまたはカプセル封入が必要である。適当な環境下での容器の腐食および水を吸着した乾燥剤による腐食を考慮しなければならない。乾燥剤にはコンクリートまたは重合体中にカプセル封入し、一枚岩的な固体（均一固化体）とすることも出来る。コンクリートは多孔性物質であるが、有効表面積を効果的に減少させることにより、 ^3H の放出を制限する。このプロセスは簡単で乾燥剤を水硬セメント混合物に添加するだけであり、さらに ^3H の放出を制限するためセメント固体を被覆するかまたは重合体を含浸させることも出来る。（これらのプロセスは水硬セメントの項でさらに詳細に記述する。）乾燥剤をポリエチレン-スチレン物質中にカプセル封入するプロセスは比較的簡単である。⁽⁶⁾ すなわち、モノマーを乾燥剤上に注いで粒子間の空間をうめて粒子を被覆し、次に触媒または触媒促進剤を添加すればそれぞれ低温度（ $50 - 70^\circ\text{C}$ ）または室温でモノマーが硬化する。

利用の可能性の現状

ガス流または液体からトリチウム水蒸気を除去するために乾燥剤を使用する技術は利用可能であり、吸着した乾燥剤をコンクリートおよび重合体中に容器封入またはカプセル封入することもまた利用可能である。混合材として乾燥剤を含むコンクリートに重合体を含浸させる方法はさらに開発が必要で、これには努力の度合にもよるがあと 1～2 年を要すると思われる。しかしながら、今後の研究では ^3H の貯蔵、特に高放射性の含 ^3H 廃液の貯蔵に関するこれらの物質の特性をさらに十分に評価しなければならない。個々の型の廃棄物合成物へ適用するには、この評価は 3 ヶ月から 1 ケ年を要すると思われる。

主要な開発事項

重合体を含浸したコンクリートだけは相当の開発が必要である。浸透技術による大型の合成物（直径 15 cm 以上）の重合体含浸法については、コンクリート型式の最適化および実際的な試験が必要である。

水硬セメント

ポルトランドセメントは、含 ^3H 水との結合力が強くて交換速度が適度に小さいものの中で多分最も安価な物質であろう。⁽⁹⁾ 交換速度が小さいということは、コンクリートの実際の化学的交換速度よりもむしろ固体の一枚岩的な性質によるものである。ポルトランドセメント

よりも幾分高価ではあるが、高アルミナセメントも使用出来る。これらのセメントの水吸着容量は比較的高く、市販のポルトランドセメントは約 25 wt%，高アルミナセメントは約 50 wt% の水とそれぞれ結合する。⁽¹⁰⁾理論値は、市販のセメント中の非水和不純物量を無視している^(10, 11, 12)ので、いくらか高目である。これらのセメントの化学は複雑であるが、相当良く理解されている。

コンクリートは一枚岩的な固体（均一固化体）であるが多孔性である。水和セメントの BET 比表面積測定法による値では代表的なもので約 $200 \text{ m}^2/\text{g}$ （乾燥重量）である。⁽¹³⁾したがって、たとえ水和セメントの溶解度は低いとしても、⁽¹⁴⁾ ^3H のゆるやかな放出が予想される。水中におけるセメントのペーストブロックからの ^3H 浸出量は測定されている。^(6, 7, 15)代表的な 1 日当りの ^3H 放出率は始めの 1 ヶ月間は 1×10^{-2} のオーダーである。放出率は時間とともに減少するが、この ^3H 放出率はセメントブロックの被覆または重合体含浸によって減少させることが出来る。

ポルトランド I 型セメントのペーストブロックからの ^3H 放出量を減少させるのにアスファルト、みつろう、パラフィン、エナメルおよびグリース等の被覆剤が使用されている。⁽¹⁵⁾みつろうは、始めの 1 ヶ月平均で 1 日当りの ^3H 放出率を $\sim 2 \times 10^{-4}$ に減少させた。アスファルト被覆した試料は、始めの 1 ヶ月平均で 1 日当り $\sim 2.5 \times 10^{-3}$ の ^3H 放出率を示した。アスファルトはまたセメントブロックのまわりに注ぎ、厚さ 1 インチまでの被覆をすることが出来る。この方法では、最初の 1 ヶ月平均で 1 日当りの ^3H 放出率は 3×10^{-4} に減少した。しかしながら、このような被覆はひび割れ、ハク離および破碎しやすく、この結果 ^3H の放出率は被覆していないコンクリートと同程度の ^3H 放出率に急上昇すると思われる。アスファルト被覆は容易でしかも安価に含 ^3H コンクリートに応用することが出来る。

^(6, 7, 8, 16)重合体含浸法は開発中である。この方法では液体モノマーはそのまま重合して水に不浸透性の合成物となる。モノマー装荷量は代表的なもので 5 - 15 wt% である。水中浸出率試験では、始めの 1 ヶ月間の ^3H の放出率は 10^{-4} /日であった。重合体含浸すれば化学的耐蝕性のみならず、コンクリートの強度および耐久性も著しく増大する。

^(10, 11, 12)水硬セメント処理技術は良く知られている。しかしながら、これを含 ^3H 廃棄物の処分に応用するには、装置の保守、処理および取扱いにより、プロセスから生ずる低放射性廃液の減または排除を考えなければならない。プロセスの適当な選択および設計によって、通常運転中のこの種の廃液を排除することは可能である。混合はドラム缶ごと回転させる力 (gun-ite process) または回転羽根により行なうことが可能である。その他に、含 ^3H 水を攪はんすることなく乾燥セメントに加えてもよい。この水は混合物の均一化を促進するため多岐管系を経て添加できる。混合およびセメントの硬化は水の蒸発による ^3H の放出を防ぐため、密閉系内で行なわなければならない。

コンクリートブロック中の水素の被覆には、浸漬法、塗布法または厚肉被覆法などの種々の方法を応用することが出来る。方法の選定に当っては汚染の可能性をへらすために取扱操作を最少にしなければならない。プロセス設計を適当にして廃液が生じないようにすべきである。蒸発による ^3H の放出を防ぐためには被覆は密閉系内で行なう必要があり、蒸発量を最少にするために高温が避けられる被覆剤を選択しなければならない。

スチレンモノマーを用いた重合体含浸法は開発中である。^(6, 7, 8, 16) 浸透技術による含浸は、プロセスが単純となるので望ましい。触媒として0.5 wt%の過酸化ベンゾイルを含むスチレンモノマーは、セメントを収容した容器の上部または静水ヘッド(hydrostatic)で底部から導入する。直径30 cmの容器では含浸に普通1~3時間を要する。次にclamshellドラムヒーターをコンクリート容器のまわりに置き、重合を完全に行なわせるために容器を数時間50~70°Cに加熱する。このプロセスは、蒸発による ^3H の放出を防ぐために密閉系内で行なわなければならない。

利用の可能性の現状

セメント処理技術は利用可能である。この種のシステムからの ^3H の放出を最少にするかまたは防止する設計努力が必要と思われるが、このような努力は短期間(1年以下)のものである。

コンクリートブロックの被覆システムもまた利用可能な技術である。この場合も、 ^3H の放出を最少にするかまたは排除するようシステム設計が重要である。

重合体含浸法は努力にもよるが6ヶ月から2年の開発が必要である。

今後の研究では ^3H の貯蔵、特に高放射性的 ^3H 廃液の貯蔵に関連したこれらの物質の特性をさらに十分に評価しなければならない。

主要な開発事項

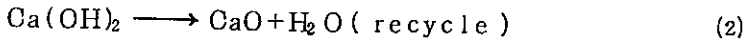
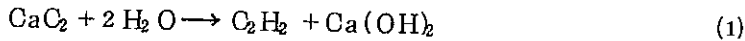
コンクリートの形式は大型(~15 cm直径)のコンクリート成型物の浸液含浸法に対して最適化する必要がある。

1.4.3.2.1.2 有機化合物

炭素-トリチウム結合を持った多くの有機化合物では、そのトリチウムの水の水素に対する交換速度が、遅い事を示している。従って、環境にさらしても、有機化合物中のトリチウムの著しい損失は生じないと思われる。炭化水素重合体は、その低揮発性、化学的安定性、及び疎水性と言う点において、特に関心が持たれる。トリチウムの固定及び貯蔵に関して研究中の重合物質には、アセチレン重合体、フェノール樹脂類似物質、アクリロニトル重合体及びスチレン重合体がある。プロセスコストから見て、重合物質が、高放射性トリチウム廃棄物処理に最も適しているようである。

アセチレン重合体

トリチウム水 (tritiated water, HTO) から、重合物質を製造する最も廉価で単純な方法⁽¹⁷⁾は、カルシウムカーバイドとの反応によって、アセチレン中間体を作る事である。



この反応において、トリチウムは、アセチレンと水酸化カルシウムとに等分割される。水酸化カルシウムは、トリチウム水のリサイクルの為に仮焼できる。

トリチウム化アセチレン重合体の重合は、⁶⁰Co の γ 線照射及び酸化第二銅の熱触媒によって行なわれている。^(6, 8, 18, 19, 20)

⁶⁰Co γ 線重合アセチレン重合体の浸出試験では、4%の放射能が短時間で放出されるが、これは、多分、表面汚染によるものであって、その後28日間は測定できる程の放出は認められなかつた。⁽¹⁸⁾この物質は、325°C迄は、熱的に安定であるが、この温度以上では、酸化分解が認められた。軟化点は観測されず、交差結合網状構造或いは、環式構造の生成を示している。アセチレン重合体は、試験した全ての溶媒に対して、不溶性であった。G(H₂)値 (照射エネルギー単位あたりの遊離水素分子数) 0.15 分子/100 eV が、アセチレン重合体を10⁹ラドの放射線分解線量で照射して測定されている。

水硬セメントや重合体が、生成したアセチレン粒子を一枚岩的な固体とするのに使用されるかも知れない。

この生成物は、浸出媒体との接触有効面積が小さいので、浸出による水素放出率は低いものと期待される。

0.68%のトリチウム水中の水素は、1%のアセチレン重合体に混和する事ができる。

トリチウム水におけるトリチウムのアセチレン重合体への変換による固定法のフローダイヤグラムをFig 1に示す。トリチウム水は、カルシウムカーバイドとの反応により、トリチウムを含むアセチレン及び水酸化カルシウムに変換される。トリチウムを含む水酸化カルシウムは、仮焼し、水は回収してリサイクルされる。仮焼して得られる酸化カルシウムは、放射能を含まない。トリチウムを含むアセチレンは、スクラバを通して、随伴する水を除去し、重合反応器へ送る。重合は、⁶⁰Co γ 線照射或いは、酸化第二銅による熱触媒のいずれかで行なわれるが、両方法共かなり詳細に研究されている。^(6, 8, 18)⁶⁰Co γ 線照射によるアセチレン交換のG値は、100 eVあたり75-140分子であった。酸化第二銅による熱重合反応は、200°Cで始まり、約280°Cで最大速度となるが、それ以上の高い温度では、副産物の生成が促進される。未反応アセチレンは、反応器へリサイクルし、副産物は焼却する。焼却時に発生する水は、リサイクルされる。アセチレン重合体は、洗浄して、トリチウムを含む副産物を除去した後一枚岩的な固体(コンクリート)に混和するかまたは貯蔵する。副産物は、焼却し、

生ずる水はリサイクルする。

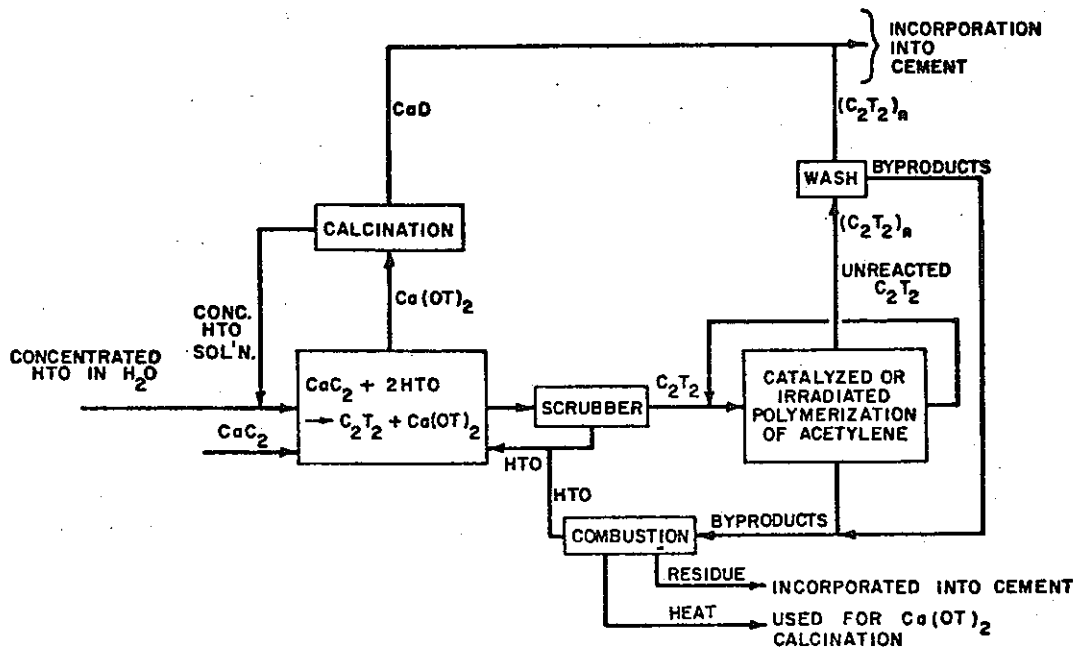


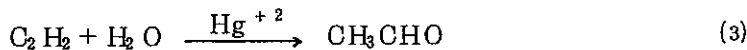
FIGURE 1. Tritium Fixation by the Polymerization of Tritiated Acetylene and Incorporation into Cement-Concrete

利用の可能性の現状

このプロセスに関する技術は利用可能であるが、実用的な触媒寿命を得る為の好適な重合反応条件の確認及び生成重合体からの触媒の効率的な回収法を開発する為、更に研究が必要である。水酸化カルシウム仮焼及びリサイクルに関する技術は利用可能である。

フェノール樹脂類似重合体

NaOH 溶液存在下でトリチウムを含むアセトアルデヒドとフェノール或いはレゾルシノール (resorcinol) との反応で形成されるフェノール樹脂類似重合体が、トリチウムの固定及び貯蔵の為に研究されている。(21, 22) トリチウムを含むアセトアルデヒドは、HgSO₄ の硫酸溶液中での普通のアセチレン或いはトリチウムを含むアセチレン (式(1)で形成される) とトリチウム水との反応により生成される。



レゾルシノール (或いはフェノール) とトリチウムを含むアセトアルデヒドは NaOH 溶液共存下で、混合され重合体を形成する。

これらのフェノール樹脂類似重合体は、硬くてもろく、水、アセトン、エタノール、ベンゼン、エーテル及び CCl₄ に不溶性である。浸出試験では、約 2% のトリチウムが洗浄中に

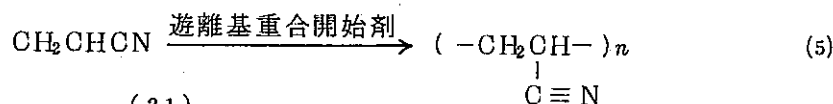
失なわれたが、恐らくこれは、未反応のトリチウムを含むアセトアルデヒドによるもので、4～6週間にわたって、それ以上の損失は検出されなかった。フェノール樹脂(フェノール・ホルムアルデヒド)の熱分解は、230℃以上で始まる。⁽²¹⁾フェノール・ホルムアルデヒドの放射線分解では、G(全ガス量)=0.08と報告されている。⁽²³⁾しかしながら充填剤を加えないフェノール樹脂は、耐放射線性がかなり低く、膨脹して極めてもろくなり、砕けやすい。⁽²⁴⁾

利用の可能性の現状

アセチレンからのアセトアルデヒドの製造及び重合(ホルムアルデヒドとの)は、工業プロセスとして完成している。レゾルシノール或いはフェノールを用いた重合は、最適化について更に開発が必要であるが、基本的には、利用可能な技術である。水をリサイクルするためのトリチウムを含む水酸化カルシウムの仮焼技術は利用可能である。放射性物質の制御の為のプロセス改良は考慮する必要がある。

アクリロニトリル重合体

トリチウム水とカルシウムカーバイドとの反応によって生成されるトリチウムを含むアセチレン(式1)は、HCNを添加し銅触媒によってアクリロニトリルに変換される(式4)。過硫酸カリウムの様な遊離基重合開始剤の存在によって、アクリロニトリル重合体が形成される(式5)。



浸出試験において、トリチウムを含むアクリロニトリル重合体は、最初の洗浄でその放射能の～5%を失う事が見いだされた。この損失は、重合反応に用いた少量の硫酸ラウリル乳化剤によって、低分子量重合体が水に溶け込んだためと考えられた。引き続いた4～6週間の浸出では、測定できる程のトリチウムの損失は生じていない。アクリロニトリル重合体は、多くの試薬に対して不活性であるが、アルカリ及び熱によって分解される。また、可燃性であり、200℃以上では、熱縮合を起こし、HCN、メタアクリロニトリル重合体の放射線分解では、全ガス及び水素放出のそれぞれに対して、G値は0.39及び0.1分子/100eVである。⁽²⁶⁾

このプロセスに関する概要をFig-3に示す。トリチウムを含むアセチレンはプロセスの中間体であり、カルシウムカーバイドと水との反応によって生成される。

トリチウムを含むアセチレンのアクリロニトリルへの変換は、Nieuwland触媒の存在下でHCNによって行なわれる。この触媒は、再生してリサイクルされる。

流出液は凝縮され、未反応アセチレンは回収してリサイクルされる。水溶液は、抽出系で精製し蒸留して精製アクリロニトリルとする。有機副産物は、焼却し、生成する水はリサイ

クルされる。アクリロニトリル重合体は、過硫酸カリウムの様な重合開始剤の存在下で乳化重合によって調製される。このプロセスは文献に更に詳しく記述されている。⁽²¹⁾

0.17 及び 0.18 のトリチウム水中の水素はレゾルシノール及びフェノールを用いて、それぞれ 1 の重合体に固定できる。Fig-2 は、フェノール樹脂類似重合体によるトリチウムの固定に関するフローダイヤグラムを示している。トリチウム水は、カルシウムカーバイドと反応してトリチウムを含むアセチレンを形成し、水酸化カルシウムは仮焼して、トリチウム水を除去し、このトリチウム水は反応器を通してリサイクルされる。トリチウムを含むアセチレンは、 $HgSO_4$ の硫酸溶液中でのアセチレンの水和の前に水を取り除く為に洗浄される。未反応アセチレンは、リサイクルされ、他方、副産物は焼却して、生ずる水はリサイクルされる。次に、精製されたアセトアルデヒドは NaOH 溶液中でレゾルシノール（或いはフェノール）と混合して重合させる。揮発性のアセトアルデヒド及び水はリサイクルされる。フェノールをレゾルシノールで置換すると、反応が著じるしく加速される事が認められた。⁽²²⁾ アセトアルデヒドとフェノールのモル比は、受入れられる反応速度を維持する為に、1 : 1 とすることが必要である。⁽²²⁾ トリチウムを含むアセトアルデヒドと完全に結合する為には、ホルムアルデヒドの添加が提案されている。このプロセスは文献に更に詳しく記述されている。⁽²¹⁾

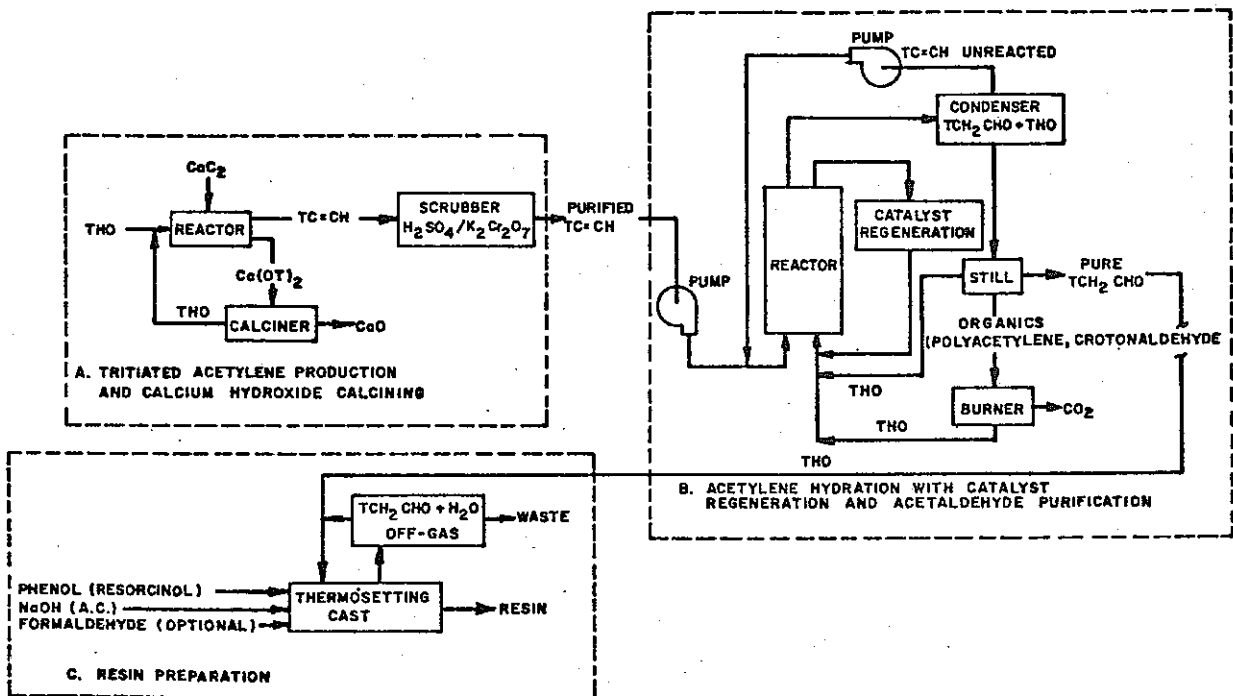


FIGURE 2. Bakelite Resin Process for Tritium Fixation

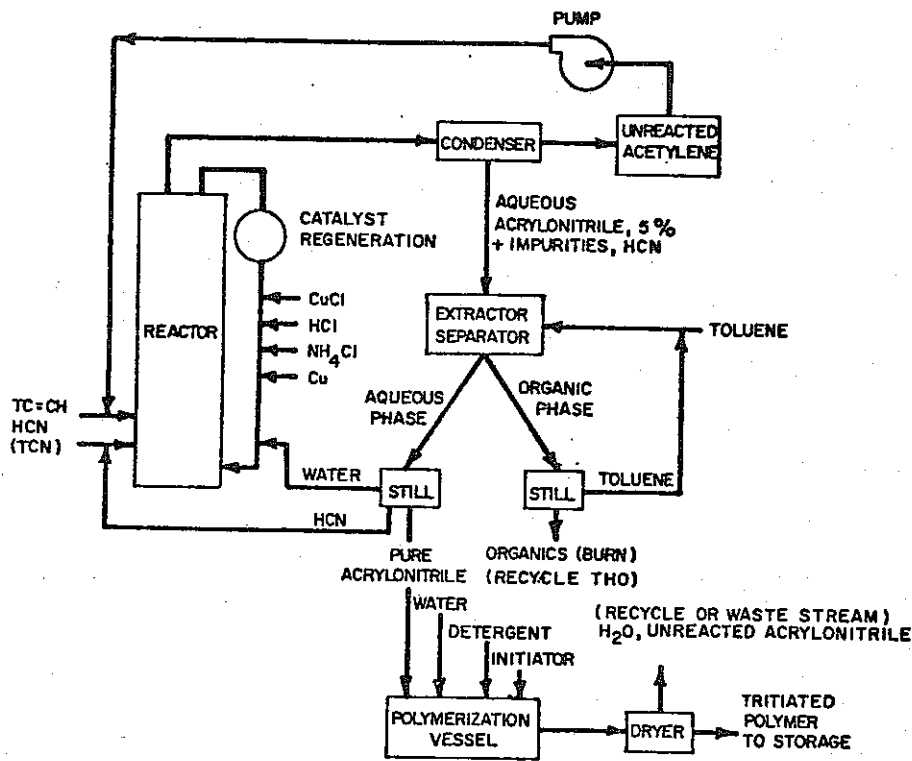


FIGURE 3. Process for Tritium Fixation in Polyacrylonitrile

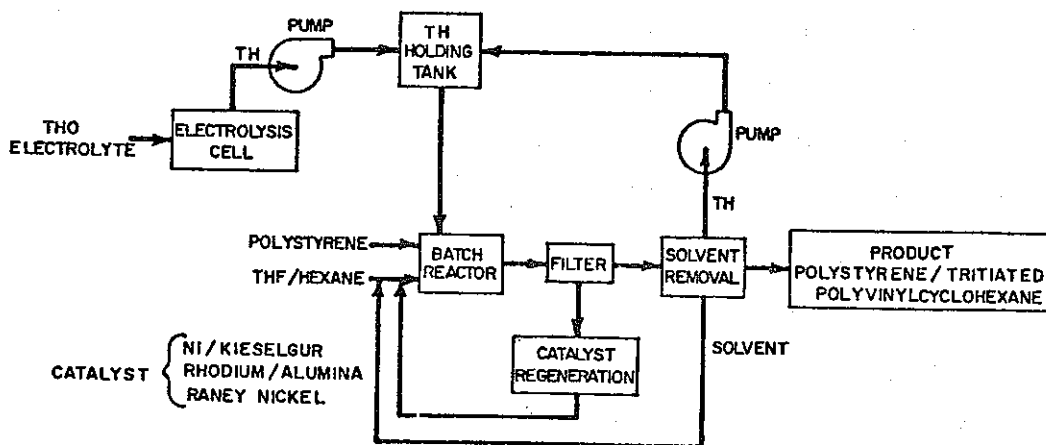


FIGURE 4. Process for Tritiation of Polystyrene

利用の可能性の現状

このプロセスの技術は、利用可能であるが、トリチウムを固定するには、アクリロニトリルの精製が必要である。精製技術はあるが、複雑でしかも高価である。このプロセスには、問題があるので広範なプロセス評価が必要である。

スチレン重合体

トリチウムは、nickel-on-kieselgur, Raneynickel, 或いは rhodium-on-alumina 触媒を用いてスチレン重合体に触媒的に水素を添加して固定できる。これには、気体に触媒的に水素を添加して固定できる。これには、気体状水素が必要であり、これは液体廃棄物の電解で生成される。

Raneynickel 或いは rhodium-on-alumina のいずれかど用いて調製したトリチウムを含むスチレン重合体では、洗浄或いは 4～6 週間にわたる浸出に対しても、測定できる程の放射能損失は認められなかった。⁽²¹⁾ 重合体は、280°C 以上で解重合し熱分解しがちである。スチレン重合体の放射線分解に関する全ガス生成と水素放出 G 値は、100 eV に対して、それぞれ 0.03 分子及び 0.02 分子と測定された。⁽²⁶⁾

このプロセスによって処理できるトリチウム水の量は、水素添加反応度によって変化する。⁽²¹⁾ このプロセスによるトリチウム固定の上限は、1g 重合あたり水 0.5g である。

トリチウム水溶液は、Fig-4 に示す水素添加工程によってスチレン重合体に固定される。トリチウム水の電解によつて生成した水素原料ガスは、スチレン重合体及び触媒を仕込んだ反応器に導入される。Nickel-on-kieselgur 及び Raneynickel 触媒を用いる水素添加反応では、高温及び高圧が必要であり、トリチウムの封じ込めが困難になる。大気圧のもとで、芳香族化合物の水素添加反応を促進させる事が知られている rhodium-on-alumina 触媒は、恐らく利用できるであろう。⁽²¹⁾ 未反応の水素は、水素添加反応ののち、除去してリサイクルし、触媒は、ろ過再生してリサイクルされる。水素添加スチレン重合体は、溶媒除去処理した後貯蔵される。このプロセスのより詳細については、文献を参照されたい。⁽²¹⁾

利用の可能性の現状

高温高圧下でのスチレン重合体の水素添加は、利用可能な技術であるが、この種のプロセスでのトリチウムコントロールには問題がある。大気圧及び室温で水素添加ができる rhodium-on-alumina の様な触媒の研究が必要である。生成物の特性に関する各種重合法の影響の研究ならびに広範囲にわたるコスト推計が必要である。

主要な開発事項—全有機化合物

重合法によるトリチウムの固定法は、経済的に見て濃縮トリチウム廃棄物に対して最も適切であると思われる。これらプロセスの設計及び評価において、高放射性トリチウム廃棄物の影響を更に詳細に評価すべきである。これらのプロセスは、大部分が従来の工業的手法の

改良であるが、これらをトリチウムの固定法として、開発するには、封じ込め、反応速度及び廃液に対する考察が必要である。計算によれば、重合体の放射線損傷は、極く微妙であるが、包蔵容器が必要であり、更に必要に応じて、放射線分解をさらに少なくする利用可能な技術を採用する事はできよう。

1.4.3.2.1.3 水素化物

大部分の金属は、元素状水素との直接結合によつて水素化物を生成し、Zr, Ti, Hf, Y, Nb, Ta 及びUの金属水素化物をトリチウムの固定及び処分に適用することが検討されている(16, 18, 19, 27)。有望な候補となる水素化物は、水及び空気との反応に対して安定で、しかも解離圧は低くなければならない。これらの必要条件を満足する可能性のある物質に、Zr, Ti, Hf 及びYがある。

金属のコストが比較的高いので、その利用が小容量のトリチウム濃縮廃棄物に限定される可能性があり、種々考慮して、より入手可能なZr 及びTi に制限されるかも知れない。金属水素化物は、相当よくその特性が知られており、その製造(水素による)技術もかなり検討されている。(18, 19) 特にZr 水素化物は、かなりの研究が行なわれている。熱的及び放射線安定性は、水素含量及び生成法にある程度依存する事が知られている。酸化に対する抵抗は、粒子径の関数であるが、Zr 及びTi 水素化物の粒子は、約300°C以下で安定と考えられ、塊状であれば更に高温迄加熱が可能である。(27)

Zr 水素化物としてのトリチウムの長期間貯蔵に関する定量的な研究は未だ報告されていない。

トリチウムと結合したZr 水素化物の浸出試験が報告されている。(16) サンプルは、蒸留水、KCl 及びNaCl 飽和溶液、NaOH溶液(PH = 11) 及びHCl (PH = 4) で、1年間にわたって浸出された。この期間での最大放射能放出率は、NaOH溶液における 5×10^{-4} であった。この試料は攪拌棒で粉碎されており、表面積が大きくなった結果、浸出率に大きく影響したと思われる。

この期間での他の溶液における放出率は、蒸留水での 4×10^{-5} からHCl での 2×10^{-4} 迄の範囲であった。

この技術によつて、固定及び貯蔵できる水素の量は、金属への水素装荷量に依存する。ZrH_{1.4} は1.5wt%の水素を含み、すなわち、当量的には、ZrH_{1.4} 1gは0.015gの水素或いは0.14gのトリチウム水に相当する。Zr のコストは、その物理的な形状と純度に大きく依存し、1970年におけるZr スポンジは、1ポンド当り\$ 5.50 ~ \$ 13.00の相場であった。(28) ジルカロイ被覆管ハル廃棄物が、トリチウムの固定に利用できるかも知れない。

水素化物は、濃縮トリチウムの一時的な貯蔵に利用されてきた。トリチウムガスを補集して、UH₃として貯蔵する為、ウランベットの利用が現在行なわれている。(29) 水素及びトリチウ

μの貯蔵に、Zr 水素化物を利用することが研究されている。水素化物は、脱ガス処理した Zr を水素雰囲気中で 500~900°C に加熱して作られる。水素-Zr の高い原子比 (>1.7) は、900°C で得られるが、最良の結果を示すものは、600°C で得られる $ZrH_{1.4}$ である。圧力を上昇させると水素取り込み率は、増加するが、生成物の損傷も多くなる。燃料に利用する水素貯蔵及び再生に関して、他の水素化物の研究が行なわれている。^(30, 31)

トリチウム水は、前以って電解処理したのち、このプロセスで処理できるが、概略プロセスを Fig-5 に示す。

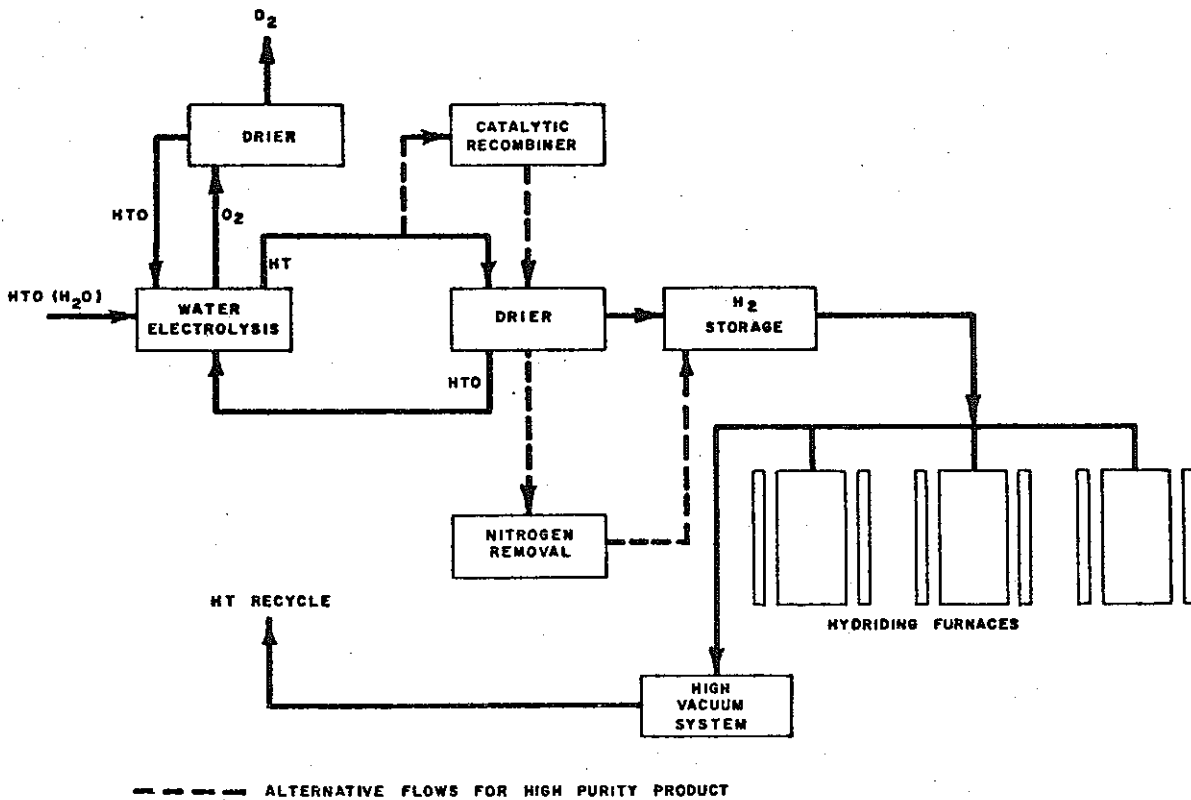


FIGURE 5. HT Fixation with Metal Hydrides

利用の可能性の現状

金属水素化物の基礎化学は、良く研究されている。また、技術は、他のプログラムで確立されており、これらには、原子炉減速材用金属水素化物の開発及び水素燃料利用のための水素貯蔵系の開発がある。前者には、Aircraft Nuclear Propulsion計画、SNAP計画及び若干のLMFBRが含まれる。これらは、高温で安定な水素化物を必要としており、得られたデータは、現在の計画に関連している。

水素貯蔵燃料概念は、比較的低温で循環できる水素化物、すなわち、高い分解圧の水素化物を必要としている。従って、考えられる水素化物の安定性は、一般的に不十分であるが、開発された技術の多くは利用できる。

研究室規模では、重要な工程が実証されているけれども、再処理工場の溶解前の前処理工程から生ずると思われる50 Kg H₂O/日を固定するのに必要な工学技術は未だ評価されていない。プロセス開発並びに生成物の試験及び評価の双方が必要である。次節に概説する問題に答え、工学規模実験を用意する為には、最低約4年は必要であろう。

主要な開発事項

水素化物の基礎化学や金属学は、良く知られているが、最も有望な候補の1つであるZrについては特にそうである。しかしながら、多くのプロセス化学上の問題があり、これらは必要な物質の純度、達成できる水素化率及び水素化物の物理的特性の影響に関するものである。

組成及び粒子径の関数としての水素化物の発火温度については、より明確にする必要があり、トリチウムの浸出率もまた更に研究しなければならない。

Zr, Tiなどの多くの金属間化合物は、水素化物を生成し、その反応率及び水素容量が高い。残念ながら、水素分解圧が固定に利用するには、一般に余りにも高すぎるが、更に研究する価値がある様に思われる。金属間化合物の水素化物は、純金属の水素化物との類似点は少ない様に思われる。⁽³⁴⁾

トリチウムに伴う危険性が相対的に低いのは、トリチウムの半減期12.3年に比較して、トリチウム水の生物学的半減期が数日と短かく、また、放出するβ線のエネルギーが低いためである。しかしながら、水溶液に対して不溶性であり、埃として飛散性を持つトリチウム金属を導入すれば、別の問題を生じ、この形態についての評価が必要である。

実験室のスケールアップ及び実証試験が必要であり、これには、トリチウム水の電解、乾燥及び必要な場合の水素の再精製、酸素の処分或いはその後の使用の為の精製、金属脱ガス用の高真空系の試験、ならびに水素化物への還元炉試験がある。

輸送或いは、貯蔵容器への水素化物金属の移送は、考慮されていない。最終容器中で水素化することは実行可能であるかも知れない。トリチウムの漏洩腐食に対するモニタリングシ

システム及びヘリウム生成などの問題は、どちらかと言うと単純であるが、未だ評価されていない。

1.4.3.2.2 工学的貯蔵

トリチウム水廃棄物をそのままの形で、貯蔵するのは、比較的簡単な技術であり、工程としては、濃縮したトリチウム水の貯蔵管理用の耐食性貯槽への配管移送である。貯槽は、密封構造でモニタされ必要ならば、放射線分解によって生じた水素を酸化して水に戻す再結合装置が備えられる。方法としては、分離、再使用或いは固定完了迄の暫定的な貯蔵又は長期貯蔵すなわち、十分な放射能崩壊が得られる迄の貯蔵の2つの適用がある。

貯蔵については、2つのケースを考えなければならない。第1に再処理工場のヘッドエンド工程を考える。この場合、5 MT/日の工場で、少量の水 (< 100 l) に濃縮されたトリチウムが約 3,000 Ci/日生ずる。第2は、トリチウムが再処理工場の抽出サイクルで工程水で希釈される場合であり、放出される水は、工場内でのリサイクルの割合にもよるが、1日当り $10^4 \sim 10^5$ l である。もちろん、同位体濃縮を適用すれば、第2のケースは第1のケースとなる。しかしながら、 10^7 l/年と比較して、 10^4 l/年程度の少い生成量では、貯蔵上の問題が異なるのは明らかである。Table-1 に2つのケースに関するデータを示す。^(4, 32)

TABLE 1

TRITIATED WATER PRODUCED BY 5 MT/DAY REPROCESSING PLANT

Source	Concentrated Tritium Waste	Diluted Tritium Waste
	Condensate from Head-End Process Such As Voloxidation	Condensate from Evaporators and Acid Fractionators
Volume/day	50 l ^(a) (50 kg)	10^5 l ^(b) (105 kg)
Ci T/l	60	3×10^{-2}
Wt T/l	6 mg	3.0 µg
H ₂ produced ^(c) by radiolysis	4×10^{-3} gms/day	4×10^{-3} gms/day

(a) Volume has not been determined. Probably less than 100 l/day.

(b) Approximate volume indicated for AGNS Plant. ⁽³²⁾

(c) Assuming a G value of 1. (See ref. 4)

再処理工場で、排気筒への漏洩量を制御しながら広範囲に水をリサイクルすれば、第2のケースの水の放出量は、著じるしく減少させることができよう。⁽³³⁾ GE社の研究では幾つかのフローシート改良が考えられている。

リサイクルを織込んでいる再処理工場では、水インベントリの1部を定期的に置換する事によつて、トリチウムのレベルは維持できると思われる。置換した過剰な分は、大気中に放出するか或いは貯蔵する。放出レベルが126,000 Ci/年の場合、2 Ci/lの定常状態濃度の1,500 MT/年(510 Ci/MTとして)工場では、約 5.7×10^6 lの水インベントリが必要と思われる。放出量を126,000 Ci/年以下に維持するためには、オフガス水分を減少させる必要があり、また、リサイクル水の1部が定期的に非放射性貯槽に取り除ける場合は、必要なインベントリ貯蔵量は、 3.2×10^5 lとなる。

高圧の鋼鉄製シリンダが少容量の貯蔵に考えられるが、大容量の貯蔵には、大型鋼製タンク(10^7 l)となると考えられる。本来必要な装置は、十分な寿命、必要な温度制御及びモニタリングを備えられる様に設計された貯蔵タンクのみである。

水貯蔵用の、 1.2×10^7 lの地上貯蔵タンクは、“nuclearly stimulated”なガス井戸⁽³⁵⁾から提案された。このタンクは、炭素鋼製で、断熱材及びタンクヒーターで凍結を防止する計画であり、寿命は40年と仮定された。(10^{-3} Ci/lの水はMPCの 3×10^{-3} μ Ci/mlに迄崩壊するのに100年必要である。)

濃縮されたトリチウムの場合には、移送及び貯蔵の両操作により十分な配慮を払わなければならない。少容量のものに対しては、高圧鋼鉄製シリンダの使用が考えられる。例えば、IH型ガスシリンダには、18 Kgの水が入り、温度が上昇しても安全に貯蔵できる。

この容積は、臨界圧218.3気圧における臨界容積を収納するに十分である。⁽³⁶⁾

Foster と Pense は、希ガスFPの貯蔵に高圧鋼鉄製シリンダの使用を試みて、この方法が実用的であるとの結論を得ている。その他の問題は、明らかに水の貯蔵で直面するものであり、特に腐食について評価する必要がある。⁽³⁷⁾

濃縮HTO貯蔵の場合におけるモニタリングには、放射線分解による水素及び酸素の生成観測が含まれる。

平衡圧に達すると、 H_2 及び O_2 は再結合して水を形成するが、逆反応は、極めて複雑である。⁽³⁸⁾ ガス相中に触媒を用意して、再結合を促進し、それによつて、圧力を低下させる事が望ましい。

トリチウム水が漏洩する可能性があるので、連続放射線モニタリングの必要性が、多分生ずるであろう。

幸いな事に、漏洩が発見された場合には、比較的簡単な方法で、内容液を次のタンクにポンプ移送する事ができる。高濃縮HTOを移送する場合には、二重構造の移送ラインが使用

されよう。モニタリングは、排気系を含んでおり、空気の流れは、容積（流量）と水の含量（湿度）の双方で制御されると思われる。必要な場合は、冷凍或いは、モレキュラーシーブトラップが採用できるが、これらはまた、タンク破損の場合には、2次封じ込めの役割をする。最悪の事故は、恐らく高濃縮HTOを含むタンクの急激な破裂であり、この場合は、2次封じ込めが必須となるらう。

少量のHT生成は許容され、HTOよりもかなり少量のHTが安全に大気中に放出できる。水素のモニタリングは、 H_2 と O_2 の爆鳴気が絶対生成しないようにするため、クローズドシステム内で行なわれる。

水の貯蔵は、一般的な作業であり、場所が必要な事を別とすれば、実質的に作業で不利な影響はない。環境への影響は、漏洩の管理及び2次的な管理の準備で決まる。

タンク貯蔵は、水が再使用されるか、或いは分離又は永久固定が決定される迄を間に合わせる暫定的な方法であらう。上に述べた様に、トリチウム水の希釈を、トリチウムが崩壊して放出できる様になる迄、貯蔵しようとする事は現実的ではない。

利用の可能性の現状

タンク貯蔵は、技術的には実用可能であり、この貯蔵法に適用するのに十分な経験が利用可能である。大規模な水の貯蔵は、一般的な工業手段であり、放射性液体廃棄物の貯蔵は、30年間実施されている。この技術をほぼ純粋な水の貯蔵と言う当面の問題に適用するに当っては、新機軸は殆んど必要なく、腐食制御の為にpH調節が唯一の必要事項であらう。

同様に、高圧の鋼鉄製シリンダ中へのガス貯蔵も十分完成された歴史を有している。水素-酸素再結合に対する若干の準備は必要であり、腐食の評価も必要であらう。

主要な開発事項

技術的な開発は、ほとんど必要ないが、どちらかと言えば、現在の水貯蔵技術と利用可能な材質の評価が必要である。高濃縮HTO貯蔵の場合（Table-1参照）の放射線分解の程度を確定する為と、最善の制御システムを開発する為に、若干の研究、開発が必要であらう。

長期間、例えば100年、或いはそれ以上の貯蔵については、腐食と材質の疲労に関するデータの再評価が必要となるかも知れない。

REFERENCES

1. A. Standen, Editor. Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology, 2nd Edition, John Wiley and Sons, New York, vol. 7, pp. 378-398, 1965.
2. Linde Molecular Sieves, Union Carbide Corp., Technical Bulletin, F-74.
3. T. B. Rhinehammer and P. H. Lamberger, Tritium Control Technology, WASH-1269, Monsanto Mound Laboratory, Miamisburg, Ohio, pp. 200-201, December 1973.

4. L. L. Burger and J. L. Ryan, The Technology of Tritium Fixation and Storage, BNWL-1807, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, Washington., p. 12, January 1974.
5. E. D. Hespe, "Leach Testing of Immobilized Radioactive Waste Solids", At. Energy Rev., vol. 9, pp. 195-207, 1971.
6. P. Colombo et al., Tritium Storage Development, BNL 19688, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, January 1975.
7. P. Colombo et al., Tritium Storage Development, BNL 19981, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, April 1975.
8. P. Colombo et al., Tritium Storage Development, BNL 19408, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, October 1974.
9. L. L. Burger et al., BNWL-1807, Ref. 39, p. 20.
10. F. M. Lea, The Chemistry of Cement and Concrete, 3rd Edition, Edward Arnold, Ltd., London, pp. 271, 509, 1970.
11. A. Standen, Ref. 1, vol. 4, pp. 684-710.
12. H. F. W. Taylor, Editor, The Chemistry of Cements, Volumes 1 and 2, Academic Press, New York, 1964.
13. F. M. Lea, Ref. 10, p. 272.
14. S. A. Greenburg, T. N. Chang, and E. Anderson, "Investigation of Colloidal Hydrated Calcium Silicates, I. Solubility Products", J. Phys. Chem., vol. 64, p. 1151, 1960.
15. L. A. Emelity, C. W. Christenson, and J. J. Wanner, Tritium Loss From Coated Cement Paste Blocks, LA-DC-12740, Los Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos, N. M., August 1971.
16. P. Colombo et al., Tritium Storage Development, BNL 20421, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, July 1975.
17. L. L. Burger, BNWL 1807, Ref. 4, p. 17.
18. M. Steinberg et al., Tritium Fixation and Concentration, BNL 18648, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, January 1974.
19. M. Steinberg et al., Tritium Fixation and Concentration, BNL 18879, Brookhaven National Laboratory, Upton, N. Y., April 1974.
20. M. Steinberg et al., Tritium Fixation and Concentration, BNL 19303, Brookhaven National Laboratory, Upton, N. Y., July 1974.
21. J. A. Franz and L. L. Burger, Polymeric Media for Tritium Fixation, BNWL-B-430, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, Washington, May 1975.
22. G. J. Dau et al., Nuclear Waste Management and Transportation Quarterly Progress Report, BNWL-1876, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, Washington, pp. 65-68, November 1974.

23. I. Ia Petrov and V. L. Korpov, "Investigation of Gas Evolution from the Action of Nuclear Radiation on Polymers", Proceedings of First All-Union Conf. Rad. Chem., Moscow, 1957, Consultants Bureau, New York, p. 263, 1959.
24. J. F. Kircher and R. E. Bowman, Effects of Radiation on Materials and Components, Reinhold, New York, p. 97, 1964.
25. N. Grassie and I. C. McNeill, J. Polymer Sci., vol. 29, p. 211, 1959.
26. C. O. Bopp and O. Sisman, Radiation Stability of Plastics and Elastomers, ORNL-1373, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, 1953.
27. W. M. Mueller, J. P. Blackledge, and G. C. Libowitz, Editors, Metal Hydrides, Academic Press, New York, p. 15, 1968.
28. A. Standen, Reference 1, vol. 22, p. 622, 1970.
29. T. B. Rhinehammer et al., Reference 3, p. 199, 234, 246.
30. J. J. Reilly, R. H. Wiswall, Jr. and K. C. Hoffman, Metal Hydrides as a Source of Hydrogen Fuel, BNL-14804, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, 1970.
31. K. C. Hoffman et al., Metal Hydrides as a Source of Fuel for Vehicular Propulsion, BNL-11754, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, 1970.
32. B. J. Kullen, L. E. Trevorow, and M. J. Steindler, Tritium and Noble Gas Fission Products in the Nuclear Fuel Cycle, II. Fuel Reprocessing Plants, ANL-8135, Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, pp. 15-32, March 1975.
33. N. E. Hall and G. N. Ward, Tritium Control by Water Recycle in a Nuclear Fuel Reprocessing Plant, NEDG-11342, General Electric Company, San Jose, California, June 1975.
34. G. C. Libowitz et al., J. Phys. Chem., vol. 62, p. 76, 1958.
35. W. D. Arnold, Preliminary Evaluation of Methods for the Disposal of Tritiated Water from Nuclearly Stimulated Gas Wells, ORNL-TM-4024, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, 1973.
36. A. M. Platt, Ed. Nuclear Waste Management and Transportation, Quarterly Progress Report, Jan-Mar 1975, BNWL-1913, Battelle Northwest Laboratory, Richland, Washington, 1975.
37. B. A. Foster, D. T. Pence, An Evaluation of High Pressure Steel Cylinders for Fission Product Noble Gas Storage, ICP-1044, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, Idaho, 1975.
38. A. O. Allen, The Radiation Chemistry of Water and Aqueous Solutions, O. Van Nostrand, 1961.

15.0 諸施設の廃止（除染と閉鎖）

燃料サイクル及び廃棄物処理作業を通じて汚染された諸施設は、その廃止と同時に燃料サイクルの廃棄物と化し、当然、潜在的に主要な一つの廃棄物となろう。

例えば、原子炉 50 基を長期間運転維持する為には、年間 1 基ないし 2 基の原子炉の新設および閉鎖が必要となり、再処理工場は 20～30 年毎に、混合酸化物加工工場は 5～10 年毎にそれぞれ 1 基の新設および閉鎖が必要と考えられる。^{*} 究極的な閉鎖方法を考慮せずにこれらのすべての施設の、設計、建設をすすめ、現在の解体技術によってその廃止を行うとすれば、廃棄物貯蔵及び埋没施設に大きい負担がかかるであろう。^{**}

歴史的には、損耗あるいは老朽化した放射性物質取扱施設は、種々の方法で閉鎖されている。研究施設、原子炉、燃料加工工場および再処理工場では、簡単な局所除染を施し、立入制限および継続監視を行って管理されているものがある。動力炉（Hallam 炉）では埋葬処分が行われており、又、除染後他に転用したり、完全に解体してその敷地を無条件に解放している施設もある。

これらの方法は

1) 保護的貯蔵、2) 埋葬処分、3) 汚染コンポーネントの除去及び解体

に区分されるが、その選択は、Regulatory Guide 1.86⁽¹⁾ で原子炉へ適用可能な方法として認められている。これらは潜在的には、軽水炉燃料サイクルおよび廃棄物処理に関わるすべての施設に適用可能である。

* 原子炉（軽水炉）50 基の複合体の、閉鎖割合推定については以下の仮定による。

- ・ 1000 MW(e)の軽水炉 50 基各々が 1 年間に排出する使用済燃料は 30 トン（MT）、これに対し 300 MT/年規模の混合酸化物燃料加工工場が 5 工場、1500 MT/年規模の再処理工場が 1 工場それぞれ、燃料供給、再処理役務を提供するものとした。
- ・ プラントの耐用年数は軽水炉、再処理については 20～30 年、混合酸化物燃料加工については 30～50 年と見込んだ。

廃棄物の推定発生量は、2.0 章に掲げてある。

** E R D A および N R C は、終局的に訪れる原子力施設の閉鎖を、設計及び建設中に計画することが必要であると強調している。例えば、E R D A Manual Appendix 6301 には新規のプルトニウム取扱施設の（閉鎖に関する）最低限度の設計基準が示されており、また Reference 20 にはプルトニウム取扱施設の新設について、E R D A が援助して行なった除染・閉鎖費用の軽減化に役立つ設計モデルの開発研究の結果が示されている。

汚染された諸施設を閉鎖する為には、非常に多くの各種技術が必要であるが、その大半は、改善すべきものも含めて、今日応用できる。その方法、手順は以下のとおりである。

- ・原子炉の炉内部材，熱交換器系統，再処理工場の配管系統，設備等からの表面汚染（F・P，超ウラン元素，放射化された腐蝕生成物など）の除去。
- ・高放射性の汚染機器類の遠隔操作による切断。

中性子による多量の放射化生成物を内蔵する原子炉圧力容器およびコンクリート遮蔽体，蒸発缶および溶解槽などの大型化学処理プロセス機器類がこの中に含まれる。

- ・コンクリート，金属製セルライニング，塗装などの構造物表面の除染。
- ・汚染土の除染あるいは梱包と，貯蔵又は埋没処分の実施。
- ・除染後の施設内部および汚染の可能性のある廃棄物の放射能レベルの測定。プルトニウムを取扱う施設の，超ウラン元素（TRU）の残留量の評価及び，廃棄物容器中のTRU量の分析。
- ・廃棄物の梱包および貯蔵又は埋没処分。

本章では，以下の区分に従って，原子力施設の除染と閉鎖（decontamination and decommissioning；D&D）の為の利用可能な方法と関連技術について述べる。

- ・軽水炉
- ・使用済燃料貯蔵ポンド
- ・再処理工場（FRPs）
- ・混合酸化物燃料加工工場
- ・固体廃棄物暫定貯蔵場
- ・埋没処分場

15.1 除染及び閉鎖のモード（Mode）とその選択

汚染した燃料サイクル諸施設の閉鎖のモードは，Regulatory Guide 1.86⁽¹⁾で3種類が示されており，以下の様に性格づけられている。

15.1.1 保護的貯蔵（文献1で“Mothballing”とされているもの）

施設は，数十年から2～3世紀の長期間にわたって，安全に保存される様準備される。一般的に，燃料集合体，固体および液体放射性廃棄物，非放射性プロセス部材などの総べてを除き，施設はそのまま残され，梱包された廃棄物はサイト外へ移される。公衆の健康と安全が危険に曝されることのない様，放射能モニタリング，環境監視および防護等の体制が確立される。

このモードは，¹⁴Cあるいは超ウラン元素などの長寿命核種による汚染がないので恒久処

置として採用できるが、この場合施設は放射能が減衰して非規制の状態利用できる状態まで、あるいは廃棄できるようになるまで管理される。また、崩壊により放射能レベルが或る程度低下するまで除染、解体作業を見合す場合にも暫定的にこのモードがとられる。保護的貯蔵は、他のモードに比し数多くの有望な長所を有している。すなわち

- 1) 初期投資が他に比べ少ない。
- 2) 除染、閉鎖作業従事者の汚染、被曝の危険の可能性が最も少ない。
- 3) 放射性物質を公共地を経て所定の貯蔵場あるいは埋没場へ運搬する場合の制限が最も少ない。
- 4) 施設の再利用の余地が在る。

等である。

このモードには、一方下記のような数多くの短所も含まれている。

- 1) 他のモードに比し、残留放射エネルギーが環境へ、より放出され易い。
- 2) 建屋換気系その他ユーティリティ等の継続的な運転、及び保守が必要となる。
- 3) 放出可能レベルに放射能が減衰するまで多年にわたって連続監視が必要であり、このためコストがかかりまた永続機関による委託管理が必要となる。

15.1.2 埋葬処分

総べての燃料集合体、プロセス部材、及び廃棄物を除去した後、残った高放射性あるいは汚染したコンポーネント（例えば、圧力容器および炉内部品等）は、完全密封構造の中に封じ込められる。この非核化作業の結果、最終的には、放射性物質を内蔵した施設あるいは区域が残り、放射能が無害なレベルへ減衰するまで一般住民、環境から安全に隔離される。施設内の非管理区域への出入は総べて無条件に可能であるが、掘削および放射性物質を内蔵する構造物が破損または貫通した部分に関連する場所では立入が制限される。警戒標示が行われ、標識区域内での行為、サーベイの方法について必要な事項が表示される。このような条件設定により、そのサイトの放射線安全性確保と転用が行えるが、無制限に将来の改造あるいは開発を行うことはできない。Nuclear Regulatory Commission(NRC)は、原子炉の埋葬処分については、認可を取得し環境モニタリングプログラムを完備しない限り、それを認めない意向である点に注目すべきである。

埋葬処分は、長所として、解体より低コストであること、保護的貯蔵に比し汚染拡大を防止し易いこと、そして殆んど保守、監視の必要がないことがあげられるが、一方、短所として次のようなものがある。

- 1) 数10万年の間、超ウラン元素を埋葬構造物中にメンテナンス・フリーで確実に封じ込められる技術がないこと。

- 2) 将来、周辺状況が変化して、埋葬構造物から放射能を除去する必要性が生じた場合、これが困難で高コストとなること。

15.1.3 放射性コンポーネントの撤去と解体

少なくとも、非規制基準（15.4節参照）を超える放射性汚染コンポーネント及び材料は総べてサイトから撤去する。更に非汚染コンポーネントも撤去し、構造物は解体し、サイトは転用に備えられよう。総べての放射能がなくなった後は、サイトの使用制限は総べて解除される。

このモードは、施設の廃止直後、あるいは保護的貯蔵を行って短半減期核種が充分崩壊した後用いられよう。このモードの長所としては、サイトあるいは解体除染した施設の非規制使用が可能であり、残留放射能による障害がなくなり、また長期にわたる保守、または監視が不用となることである。一方、短所としては、一般に施設の解体にコストがかかること、多量の汚染廃棄物の運搬、貯蔵あるいは埋没処分が必要となること、ならびに除染・閉鎖作業従事者が高い外部及び内部被曝を受ける恐れがあること、である。

15.1.4 除染・閉鎖のモードの選定理由

許可を免除されているERDAの施設については、WASH-1202⁽²⁾にその閉鎖の要領が示されており、それは以下の通りである。

1. 操業の停止にあたっては、残留する放射能あるいは化学薬品類が公衆あるいは従事者に危害あるいは迷惑を及ぼすおそれが最少となる様手順をふむこと。手順の例としては、原子炉装荷燃料の抜き出し、貯蔵してある放射性廃棄物コンテナならびに汚染された移動可能な装置及び携帯機器の撤去、実用上可能な限りの除染ならびに汚染固定のための外表面の塗装、施設内不法侵入に対する防護措置実施等である。但し、これら停止直後の手順によって、その後の除染、閉鎖作業に障害を来たしてはならない。例えば、電源系統およびクレーン、重機など分解運搬に必要なものは撤去してはならず、又、汚染区域への出入を確保しなければならない。
2. 施設の老朽化のためではなくて計画の変更により、AECの需要に対し施設が余剰となった場合、他の機関による核の有効利用を目的とした転用について充分調査すべきである。この場合の移管は、当事者間のとりきめにより“そのままの状態”かあるいはAECによる除染終了後のいずれの場合もある。受取側の機関は、AECが操業していた期間からの残留放射能の監視及び管理を含めて、施設を安全に動かす資格を有していなければならない。
3. AECの余剰施設の他の機関による核の有効利用の見込みがない場合、非核有効利用へ

の転用を検討すべきである。

4. 非核有効利用への転用の場合，その使用にあたって管理上の制限をつけるかつけないかは，明確に勧告できない。個々のケースに従って，除染費用との関係，無条件移管の長所，実施のしやすさを含めて公衆の安全確保の点からの規制の妥当性，将来の施設利用に対する規制の干渉等を考慮しなければならない。
5. 施設移管に関わる行政上の規制は地表の放射能に関わるものに限定すべきである。これらを望ましさの順に列記すれば以下のようである。
 - a 採掘権のAECへの保留。
 - b 地下水権のAECへの保留。
 - c 地中への廃液放出の規制。
 - d 掘削の規制

これ以上のアクティビティに対する規制は，適用実施が一層困難であり，また使用者側にとっては多分に異議があると考えられ，このような規制に基く施設移管は考慮すべきでない。例えば，固定した汚染のある建物の移管を行う際，将来の施設補修または保全による固定汚染の散逸に対する十分な安全管理を確実に義務づける為に行政上の規制をたのみとしても満足のゆくものとならないだろう。

6. 余剰なAEC所有施設を除染・閉鎖し他者による有効利用を決める優先順位は，以下の様にすべきである。
 - a 出願中の他者使用特別申請があり，それが特にその地域に多大な経済的利益をもたらす有望なものである場合。
 - b 出願されてはいないが，そのサイトの条件が良く，将来，出願が行なわれると思われる場合。
 - c 除染によりサイトの完全な解放，あるいは広大なサイトのかなりの部分が解放できる場合。
 - d その施設に対する知識のある人達がいなくなり，後になってからでは除染閉鎖は極めて困難と思われる場合。
 - e 除染閉鎖の実施により得られる経験が，同様な諸施設の同種のアクティビティの立案に有用であるかあるいは認可済の施設も含めた新規施設の設計にとって貴重と判断される場合。
7. 余剰な汚染したAEC施設を，即時除染または適時除染のいずれも総べて受取側が責任をとるものとして，“そのままの状態”で核物質を使用しない用途へ転用移管することは得策とはいえず，特別な場合に限って適用すべきである。この場合，移管にあたっては，受取側が残留汚染の種類と程度を完全に理解しており，十分な知識と財政上の責任をもつ

て除染作業を完遂し、所有権がAECへ復帰するおそれのないことが必要である。

8. “余剰”というよりは、むしろ“予備”としての性格をもつ諸施設については、それらが必要であるという現実的公算を確かめるために、定期的に見直しを行うべきである。もし、“予備”として再認定できない場合は、それらの施設は“余剰”施設に分類し、除染・閉鎖計画の中に編入すべきである。
9. 余剰な汚染施設を他者が何らかの有効用途に転用するという見込みがない場合には、その施設に対する必要な監視保守が激減できるように除染作業に集中すべきである。

民間の核燃料サイクル施設個々についての除染閉鎖モードの選定は、以下に掲げる様な問題に対する回答により決まると考えられる。

- ・施設の種類、放射性汚染の種類及びその放射能レベルは？
- ・施設の所在は？
(例えば、閉鎖待ちの原子炉の場合、数10年間にわたり一連の原子炉の建設が予定されていたり、あるいは新型炉が建設される可能性のある発電所にあることもありうる。)
- ・保護的貯蔵は、公衆、環境に対し十分に安全であるかどうか？
もし十分安全であれば、それは最も経済的な方法選択かどうか？
(保護的貯蔵は、初期コストが最少で済むが、監視および保全にかかる長期的経費は、特に施設状態が悪くなるにつれて相当な額になると思われる。)
- ・施設の将来に関連して、変更不可能な決定をすることを遅らせる何らかの誘因が存在するかどうか？
(埋葬処分は、今日、注目されている処分のモードであるが、周辺状況あるいは政策が変化すれば、将来、元に戻すことも必要となる。埋葬処分したものを元へ戻すのは困難でありまた、不経済である。)
- ・保護的貯蔵を実施した場合、数十年または数百年間にわたり継続しなければならない、保全監視の保証方法。
- ・除染閉鎖後のそのサイトあるいは残存施設の使用方法。
- ・プラントあるいはサイトに要求される除染の程度。
- ・当初のプラント設計に、除染が効果的にできる様なシステムが組込まれているかどうか。
すなわち、すべての表面について適切な条件と管理のもとで、表面除染剤を接触させられるかどうか？
- ・放射性廃棄物として貯蔵あるいは埋葬(廃止される施設も含め)される全不動産、作業従事者あるいは公衆の被曝の可能性ならびに短期及び長期経費を考慮した場合、選択した除染閉鎖モードは、投資/効果比を最少にするものであるかどうか？
- ・現時点で適用する規制基準が存在するか、また発生廃棄物に対する貯蔵または埋葬時の必

要条件は何か？

15.2 軽水炉燃料サイクル及び廃棄物管理諸施設への応用

ある施設の閉鎖を行うのに必要な技術は、処分のモード及びその施設の下記のような性格により定まる。すなわち、立入の難易、放射能レベル、除染・分解、またはその他の方法で処理する機器の寸法と重量、その施設が主として扱ったのは超ウラン元素か或いは β - γ 放射性物質か、汚染は表面処理により除去可能な表面汚染のみか或いはそれでは除去できない誘導放射能によるものか、通常のプラント保守技術により放射性部品の交換が行える様設計されている施設かどうか、その施設の構造上の特徴、例えば重遮蔽壁か、比較的簡単な遮蔽壁か、などである。

ここでは、種々の施設の除染閉鎖に関する重要な特徴を述べてそれら特徴と除染閉鎖計画立案との関わりを再考し、従来の除染閉鎖経験を要約することにする。

15.2.1 軽水炉

軽水炉の主要なコンポーネントは、炉心およびその他炉内機器、圧力容器、ならびに熱交換器系統である。これらの全ては、外部への放射能漏洩を防ぐ様設計されたコンテインメント構造内に納められている。軽水炉は、燃料及び内装機器の一部または総べてが交換できる様設計されている。圧力容器は、一般には数インチの肉厚の低炭素鋼にステンレス鋼内張りを施したもので、数百トンの重量があり、撤去する場合は細かく切断しなければならない。圧力容器と一次冷却系は、数フィートの厚さのコンクリートで遮蔽されており、このコンクリートにはより大きい比重とする為に鉄または鉄鉱石を混入することが多い。

15.2.1.1 汚染の種類とレベル

- ・炉心材料の放射化生成物は、炉心及び1次冷却系にあまねく分布している、と推定される。また超ウラン元素およびFPによってこれらのコンポーネントが汚染している可能性もある。汚染および放射線のレベルは、廃止時の除染の程度によって左右されよう。
- ・放射化生成物は、炉内内装機器、圧力容器及び遮蔽体などの様に中性子に曝されている総べてのコンポーネント中に存在する。遮蔽体内側の放射能レベルは、数千R/hr程度と予想される。運転停止後2～3年経ると、 ^{60}Co （強い γ 線放射体で半減期は5.3年）、 ^{63}Ni （弱い β 線放射体で半減期は100年）、 ^{14}C （弱い β 線放射体で半減期は5730年）および ^{55}Fe と ^{59}Ni （電子捕獲により崩壊し、半減期はそれぞれ2.7年、84,000年）を除き、全誘導放射能は減衰する。
- ・低～中レベルの汚染は原子炉プラント内の多くの区域で生じている可能性がある。

15.2.1.2 除染閉鎖との関連性

- ・ 圧力容器および冷却系の超ウラン元素，及びFPによる汚染の大部分は，原子炉を廃止する際に積極的に除染して除去できる。しかし，この様な除染を行えば処分が必要な汚染した，腐蝕性の廃液が多量に生ずることとなる。
- ・ 廃止後ただちに解体を行う場合には，放射能レベルが高くて遠隔操作が必要となり，更に除染閉鎖で生ずる廃棄物を埋没場あるいは貯蔵場へ運搬するには重遮蔽カスクの使用が必要となる。その他に，除染閉鎖作業従事者の被曝線量が相当に高くなる可能性がある。運転停止と解体までの間に，75～100年を置けば， ^{55}Fe および ^{60}Co は崩壊して放射能レベルは著しく減少するが，この場合でも残存する ^{59}Ni の為に遠隔操作がおそらく必要と思われる。

15.2.1.3 過去の事例

廃止された原子炉の閉鎖には種々の方法が今まで用いられてきた。

・保護的貯蔵

Hanford のプルトニウム生産炉

Hanford にある8基の原子炉はその全てが，軽水冷却—黒鉛減速—金属ウラン燃料使用の炉であるが，運転を停止し，局所的に除染して無期限の保護的貯蔵状態にある。このうちいくつかは，原子炉建屋への電源を切り換気システムは停止しているが，このために外部汚染管理上の短期的な悪影響は認められていない。

Enrico Fermi—1 高速増殖炉⁽³⁾

液体ナトリウム冷却のFBRであるミシガン州のFermi炉は廃止となり，燃料要素，ブランケット及びナトリウムの全てが除去されサイト外へ移された。その他の汚染，または被照射材料はサイト外へ移されたり，敷地内の規制区域へ貯蔵され，炉建屋は嚴重に封鎖された。また，一次及び二次ナトリウム冷却系は残留ナトリウムの不動態化を行った後密封された。そして監視計画が実行された。一次冷却系内の残留放射能は5000 Ciと推定されている。

・埋葬処分

ネブラスカ州Hallam近辺にあるHallam Nuclear Power Facilityは，75MWeのナトリウム冷却—黒鉛減速型の動力試験炉であるが，経済的に実行し得る限り施設を再利用するという計画のもとに1969年に閉鎖された。⁽⁴⁾ 高放射性のコンポーネントには，1969年当時でおよそ200,000 Ciの ^{55}Fe ，80,000 Ciの ^{60}Co ，12,000 Ciの ^{63}Ni および6000 Ciの ^{151}Sm が存在したが，これらは原子炉建屋の地下構造部へ貯蔵され，コンクリートおよびコールタール・エポキシで密封防護されている。一次冷却系建屋（これも封鎖された）と旧除染所建屋（一部分が封鎖された）のみが地上に残っている。

ナトリウムは再利用の為にサイト外へ運び出された。ナトリウムと接触していた部分は、窒素・水蒸気とナトリウムとを反応させて慎重に処理したのち解体した。切断部材の残留ナトリウム汚染は、スチーム・ランスを用いた蒸気洗浄によって除去した。解体されなかった部分については、生じた水酸化ナトリウムを高温乾燥して非腐蝕性の固体とし、そのまま残した。サイトはもはや使用されておらず最小限度の監視が必要なだけである。廃止にかかった費用は、310万ドル弱といわれている。⁽⁴⁾「同様の処置は他にも行われ、Carolinas Virginia Tube炉は汚染機器貯蔵庫に、⁽⁵⁾ Bonus (沸騰核過熱炉) 発電所は展示センターに、⁽⁶⁾ Pigua 炉は事務所と資材倉庫に、⁽⁷⁾ Pathfinder 炉は火力プラントへ、⁽⁸⁾ それぞれ転用されたが、Pathfinder 炉については、まださらに除染閉鎖作業が必要である。

・除染あるいは解体

Elk River 炉

ミネソタ州 Elk River にある Elk River 原子炉 (53 MWt の沸騰水型) は 4 年間の運転の後 1968 年に停止し、解体されて原子炉サイトは非制限区域へ戻された。^(9,10) その手順は次の様なものである。全ての配管、機器および遮蔽体外部の附属構造物の撤去→圧力容器内装設備の撤去→圧力容器の切断撤去→遮蔽体の撤去→原子炉建屋の撤去→ミネソタ州外の所定埋没場への全放射性廃棄物の運搬。この計画に要した全費用は 610 万ドルであり、実作業には 2 年かかった。

試算による残留放射能は 10,000 Ci であり、そのうち 1,200 Ci は圧力容器中に、8,700 Ci は圧力容器内装設備に残留した。最も放射能の高いコンポーネントは炉心支持プレートで、その線量率は 8,000 R/hr (表面) であった。内部遮蔽は 2½ cm 肉厚の円筒型で、直径 205 cm、高さ 365 cm であるが、これは最高で 1,300 R/hr (表面) で、埋没処分の為 26 体に分割された。

EBR-I

Idaho Nuclear Engineering Laboratory (INEL) の増殖実験炉 No. 1 は実行しうる限り除染された。⁽¹¹⁾ 安全なレベルまで除染できなかった部分については解体撤去あるいは立入封鎖を行った。その上で、施設は Registered National Historic Monument として公開された。

1.5.2.1.4 除染閉鎖計画の現状

以下の試験炉の除染閉鎖について準備が現在すすめられている。

- ・ INEL の材料試験炉⁽¹²⁾ (MTR)
- ・ Atomics International 社のナトリウム実験炉⁽¹³⁾
- ・ Savannah River の機器試験用重水炉 (HWCTR)⁽¹⁴⁾

15.2.2 燃料貯蔵施設

原子炉施設内の使用済燃料または再処理施設内で再処理待ちの使用済燃料は、集合体を立てた状態で水中移動できる様十分な深さ（約 1.4 m）を有する水を張ったプール内に貯蔵されている。プールは巨大なコンクリートの壁と床で出来ており、通常はステンレスライニングが施され、燃料取扱い機器が備え付けられている。プール水は極端な温度上昇を避ける為に熱交換器を循環し、また清浄化の為にイオン交換塔を循環している。

15.2.2.1 汚染の種類とレベル

廃止に至る間には、貯蔵プールの水面下は、燃料集合体より漏洩したFPおよび超ウラン元素により汚染され、また、燃料要素および一次冷却系からの放射化生成物により汚染されたりする。その場合、水処理系と冷却器も同様に汚染される。

15.2.2.2 除染閉鎖との関連性

プールライニングに漏洩が無ければ、ライニングと水処理系のみを汚染しているものとして扱うことができ、従って、これらコンポーネントおよび燃料取扱機器の除染または撤去を行えば汚染はないものとして、コンクリート構造を廃棄あるいは、破壊することができる。

15.2.3 再処理施設

除染閉鎖に関連して典型的再処理施設の有する重要な特徴は以下の通り要約される。

- ・プロセス運転（溶解、溶媒抽出、蒸発濃縮、及びイオン交換）は鉄筋コンクリート製セル内で行われ、コンクリートには耐酸塗装あるいはステンレスライニングが施されている。南カロライナ州のBarnwell再処理工場は、セル底面はステンレスライニングでそれより上は塗装されている。
- ・典型的な再処理施設には、多数の種々異った複雑なプロセス機器及び配管がある。プロセス系セル間を走る配管の一部はコンクリートに埋設されている。
- ・プロセス機器の遠隔保守あるいは直接保守が行える様設計されている。Barnwell再処理工場の場合、セル壁面および機器表面を全面的に噴射水洗しセル内線量率を下げる対策が施され、直接保守が主となる。
- ・大半のプロセス機器はセル上部から天井走行クレーンを用いて撤去できるが、槽類の一部は撤去するには分割が必要である。
- ・放射性液体廃棄物の貯蔵用タンクファームが設けられており、そこには2種の巨大な廃液貯槽（容量：数十万ガロン）が在る。すなわち、一種は崩壊熱除去用の冷却コイルを備えたものであり、他の一種は中および低放射性廃液貯蔵用の冷却系のないものである。
- ・再処理施設は、将来、廃液固化施設を併有すると考えられる。

1 5. 2. 3. 1 汚染の種類とレベル

全てのプロセス系と廃棄物処理系の機器類は、放射性プロセス溶液と接触してFPおよび超ウラン元素が表面に付着するために著しく汚染される。セル内部もプロセス溶液の漏洩によって汚染されよう。塗装だけを施した部分はコンクリート表面の内側も汚染されると考えられる。汚染のレベルは、前処理関係などの一部のセルでは高く、最終精製サイクル関係のセルははるかに低くなる。

1 5. 2. 3. 2 除染閉鎖との関連性

- ・ 通常の放射性液体廃棄物処理施設については、プラントの廃止に先立ってプロセス機器及びセルを除染溶液を用いて広範囲に洗浄することが可能である。
- ・ 超ウラン元素が存在する可能性がある場合は、許容される処分モードとしておそらく埋葬を行わざるを得ない。
- ・ 高放射廃液貯槽の洗浄による除染は、槽内構造の為に極めて困難であり、また解体には特殊な技術を必要とするため、これは未だ実証されていない。

1 5. 2. 3. 3 過去の実例

商業規模の再処理工場が完全に閉鎖されたことは今までないが、多くのサイトで関連した情報が得られている。以下、例示する。

- ・ Hanford の化学処理プラントとパイロットプラントは、他の目的へ使用する為の機器の再設置あるいは封鎖して限定した監視のもとに置くことができる様、十分な除染が行われ、好結果が得られている。
- ・ ORNLでは、照射燃料の再処理系を含むパイロットプラント計画で経験が得られている。この場合、全再処理系は除染して、機器は解体され、そしてサイトは新しいパイロットプラント用機器が直接設置できる様準備された。⁽¹⁵⁾ 同様の経験はHanfordおよびSavannar Riverでも得られている。
- ・ ORNLのMetal Recovery Plantは9年間運転されたが、再処理プラントと共通のすべての単位操作を有していた（照射燃料の貯蔵および取出し、溶解、溶媒抽出、蒸発濃縮、イオン交換、そして製品精製など）。1959年の停止と同時に、施設は無機酸で除染され待機の状態に放置された。それ以来、残留放射能の環境への放出が検知されたことはない。⁽¹⁵⁾
- ・ フランスのFontenay-Aux-Roses Nuclear Research Centreの小型プロトタイプ再処理プラントは、全体が解体された。⁽¹⁶⁾ この作業には3年の歳月と150,000人時の工数がかかった。撤去されたコンポーネントは固定汚染を残して除染され、圧縮梱包した後、汚染土壌および破砕された建築部材と共にSaclayへ運んで貯蔵された。3000トン以上の放射性固体廃棄物がこれにより発生した。

- ・ Savannah River Plant の照射燃料化学処理プラント（複数）の1つにある高放射性キャニオンの5つのモジュールは、新プロセスの設置の為に成功裡に除染された。⁽¹⁷⁾ 作業は次の様なものである。

旧プロセス機器類の撤去→ホット・キャニオンクレーンを使用した壁および床の遠隔除染→洗浄すべき5つのモジュールのキャニオンからの隔離→1²/₃m厚さの壁に作業用出入口の貫通→所要の直接除染作業（例えばコンクリート汚染部分のりおよびコンクリート再充填と再塗装など）の実施。この作業には1年かかり、費用は約15万ドルであった。

1.5.2.3.4 再処理工場の除染閉鎖方法の調査研究

NRCの為に最近行なった軽水炉燃料サイクルの調査研究⁽¹⁸⁾は、南カロライナ州のBarnwell再処理工場の設計に基づいて、プロトタイプ化学分離施設の除染閉鎖に対する代案を提示しており、除染閉鎖の各モードが検討されている。解体について提案されている主要事項を、要求される技術の把握の為に以下に概説する。

- ・ プロセス機器類およびセル内表面は全面的に除染液で洗浄し、使用済除染液は廃液処理蒸発缶で濃縮して貯槽へ送る。
- ・ セル内のプロセス機器類は、直接保守の方法（セル内に設けた遮蔽付作業用昇降カゴから作業する）で切離し、さらに必要ならば細断してセル上部の出入口を通じて撤去する。
- ・ セル内コンクリート面は、火薬類、削岩機、あるいはジャックハンマーを使用してコンクリートを削りとることによって除染する。
- ・ セル床面上のステンレス鋼ライニングは、プラズマトーチを用い運搬用コンテナ寸法に合せ小区分に溶断する。
- ・ プロセス建屋内のその他の機器類は撤去し表面除染を行う。
- ・ 燃料貯蔵プールは水抜きを行い除染した後、機器を撤去し、プールライニングを分割して撤去する。
- ・ 廃液貯槽については、貯槽内につり下げた遮蔽付作業用昇降カゴから解体作業を行う。立入が可能となれば貯槽内部材に除染液の散布を行う。内装部材はプラズマトーチで分割切断し撤去する。貯槽容器は部分的に除染し分割する。
- ・ 残った機器類を除染し撤去する。
- ・ 総べての汚染機器類と廃材は容器に収納し貯蔵場あるいは埋没場へ運搬する。
- ・ 残留構造物に対し全面サーベイを行ない、放射能レベルが非規制使用基準値以下であることを確認する。
- ・ 残留構造物を通常 of 取壊し建設要領で、破壊し土盛りする。

1.5.2.4 混合酸化物燃料加工工場

典型的な燃料加工工場は比較的軽量構造となっており、溶液、粉末、ペレット各形態のプルトニウムおよびウランを確実に閉じ込める様設計されている。従って、高レベルの放射線作業^{*}の為に設計建設されてはいない。ペレット加工の全工程は負圧調整した密閉設備の中で行われ、廃気は大気放出をする前に高性能フィルターでろ過される。プロセス施設には、給液および廃液を固体に変換する装置、粉末混合機、ペレットプレス、ペレット研削機、焼結炉ならびにスクラップ回収系などの機器類が備わっている。普通はこれら機器類は通常の保守作業により交換できる様設計設置されている。

1.5.2.4.1 汚染の種類とレベル

プロセス関係セル、機器およびこれらの換気系は、プルトニウム及びウランで著しく汚染すると考えられる。 β - γ 放射能レベルが著しく高くなるとは考えられず、自発核分裂による中性子あるいは誘導核反応がプロセス機器類を測定しうる程放射化するとは考えられない。

1.5.2.4.2 除染閉鎖との関連性

- ・問題となる程の量で存在する放射性核種はプルトニウムとウランのみであるから、遠隔除染および解体作業は不要であり、高放射線量率作業環境で個人被曝が問題になることもない。しかし、吸入、体内摂取あるいは皮膚汚染に対する注意は払わなければならない。
- ・²³⁹Puの半減期は25000年であり、従って燃料加工工場を埋葬し、プルトニウムが崩壊して無害レベルになるまで(25万年以上)密封構造の健全性を保証するような既知の技術はない。
- ・NRCの提示基準をあてはめるならば、含超ウラン元素廃棄物区分基準を超える汚染廃棄物(機器、構造部材等)は再取出し可能な貯蔵用の梱包をして許可された貯蔵処分場へ運搬しなければならない。
- ・汚染の可能性のあるすべての構造物表面を完全に除染でき、構造物(コンクリート壁等)を汚染廃棄物として取扱わなくてもよいように建設すれば、燃料加工工場の除染閉鎖による廃棄物発生量は最少になると考えられる。

1.5.2.4.3 過去の実例

混合酸化物燃料加工工場に適用できると考えられる技術を用い、プルトニウム取扱施設の保護的貯蔵、除染及び解体については国内で多くの経験が得られている。報告されている例

* 例えば、Westinghouse Electric社が設計した燃料加工工場は⁽¹⁹⁾、プルトニウム溶液および粉末の処理及び貯蔵を2階建キャニオン区域に限定し、この区域は想定される天災あるいは施設内事故にも耐えるようになっている。キャニオンの壁と天井は厚さ45cmの鉄筋コンクリートで、床と間仕切壁は厚さ20cmである。一方、強い放射線に対する遮蔽壁は典型的なもので約170cm厚さである。

としては次のものがある。

- ・ Los Alamos の 12 号棟の解体——この施設はプルトニウム汚染廃気処理施設で、多年にわたりプルトニウム加工主プラントからの廃気を処理した。⁽²¹⁾
- ・ Hanford の P-11 号棟の取壊し——この施設はプルトニウム臨界量の研究施設で、⁽²²⁾取壊し経費は 265,000 ドルであった。
- ・ Mound Laboratory 施設の除染閉鎖——この施設は ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{227}Ac および ^{238}Pu を取扱っていた。⁽²³⁾
- ・ Savannah River のプルトニウム回収施設の解体。⁽²⁴⁾

1.5.2.4.4 混合酸化物燃料加工工場の除染閉鎖方法の調査研究

NRC の為に行なった最近の軽水炉燃料サイクルの調査研究は、⁽²⁵⁾ Westinghouse Electric 社の工場⁽¹⁹⁾を模倣した、プロトタイプ混合酸化物燃料加工工場の除染閉鎖に対する方策を提示しており、除染閉鎖の各モードが検討されている。解体について提案されている主要事項を、必要な技術検討の把握の為に以下に概説する。

- ・ キャニオン区域からの総べての機器類は除染保守セルへ運搬し、汚染固定剤散布を行なって、貯蔵用容器に収納する。
- ・ キャニオン全表面を除染する。鋼製セルライニングはプラズマトーチを用い溶断し、切断片は貯蔵の為容器に収納する。コンクリート面は、必要ならば、削岩機で表面を削り取って除染する。
- ・ ダクトは金鋸を用いて切断撤去して容器に収納する。
- ・ キャニオン区域は再汚染を避ける為、施設のその他の部分と隔離する。
- ・ その他の建屋内区域も上記と同様の手順で除染する。
- ・ 建物は通常の手順で取壊す。
- ・ 掘り起した部分は全て埋戻しを行い、サイトは施設の建設前とほぼ同じ状態に復帰させる。

1.5.2.5 固体廃棄物の暫定貯蔵場

これら貯蔵場（2.0.0 章，2.1.0 章 参照）の除染閉鎖に関わる注目すべき特徴は、以下の通りである。

- 1) 廃棄物収納容器の再取出しが可能な様設計されていること。
- 2) 地表面上への貯蔵から地下貯蔵までその設計建設は実際は様々かもしれないが、原子炉および再処理工場程複雑ではないこと。
- 3) 廃棄物容器からの漏洩により土壌，構造物，取扱い設備および他の廃棄物容器の汚染が考えられること。

1.5.1 節で定義した除染閉鎖形態のいずれかは、この種の施設に適用可能と考えられる。

いずれを選択するかは、汚染の範囲、(もしあれば)汚染構造物の性格および価値、サイトの将来利用計画および残存汚染基準(15.4節)により左右されよう。汚染範囲が狭い場合は、施設再使用の為に除染は容易で且つ経済的である。汚染範囲が広範にわたり放射線のレベルが高い場合は、問題はより困難であって別の除染閉鎖モードが必要となろう。

どのモードを選定するにせよ、他施設の除染閉鎖作業で得られた経験は指針として有効である。例えば、プルトニウム取扱い施設および再処理施設の閉鎖で実証された技術は、コンクリート製貯蔵台および建物も含めて暫定貯蔵場の除染閉鎖に応用できるであろう。

15.2.6 固体廃棄物地下埋没場

固体廃棄物地下埋没場(23.2節参照)は放射性廃棄物の永久貯蔵を目的として設置され従って埋没容量に達した埋没場は、規制解除基準レベル(15.4節参照)に埋没物放射能が減衰するまで保護的貯蔵または埋葬するかのいずれかによって通常処分される。以下の2案が適当と考えられる。

- ・整地舗装設計の一部に必要な地表水管理上の特殊性を配慮した上で、舗装駐車場あるいは倉庫などの制限付公共利用にサイトを解放する。これらの公共利用による収入は監視および保守費に充当し公費負担を減ずる。
- ・立入制限を伴うサイトの永久管理。この場合、公衆の偶然あるいは故意のサイト内侵入を防ぎ、危険な廃棄物のサイト外移動を避ける為に、無期限に埋没場の管理監督が必要となろう。

以下に示すいずれの案も幾つかの処置が必要である。

- ・サイトに保護カバーをかけ汚染区域への人間あるいは動物の侵入および汚染植物発生の潜在的可能性を最小にする。
- ・放射性核種のサイト外移動がないことを確認するために定常的に環境モニタリングを行う。
- ・必要な期間中管理監督を確実にを行う為に、計画を確立し資金を確保する。(Reference 26は、南カロライナ州の依頼を受けて行われた調査研究で、当初の閉鎖予定期日以前に設置者が運転を停止した場合、州の自衛に必要な長期管理及び資金準備のための所要額を決める為に行ったものである。Reference 27は「原子力アクティビティに関わる約定と永久監督」調査グループによる報告書で、その目的は、約定と永久監督(Bonding and Perpetual Care)のプログラムを開発する為に州政府に必要な指針を集大成することであった。報告書では、財政上の州責任が明らかになった場合、その財政上の責任を果す為に州がとるべき手続を要約している。財源として引当てられるのは、Performance bondとtrust fundである。

勿論、可能性としては、周辺公衆に対する許容被曝量を上回る程に放射性核種がサイト外

に移行するかあるいは管理経費が高い為に、埋没場から放射性物質を除去する必要があるかもしれない。

15.3 除 染 ・ 閉 鎖

保護的貯蔵及び埋葬モードでは、一般的な除染、保守及び破壊技術を利用しなければならず、時にはこれに汚染管理上の問題処理上、適宜修正を加える。設備の解体もまた、一般的な保守及び破壊技術に基づくが、工場の解体の難しさ及び費用は、放射性の施設の方が非放射性施設に較べはるかに大きい。というのは、作業員の過剰な被ばくを避けるための遠隔操作の器具、放射性ダストやエアゾルの管理を確実にするための防護手段、放射性廃棄物の梱包、輸送及び貯蔵または埋没処分のための特殊な措置、ならびに潜在的汚染廃棄物あるいは廃物の適切な処分を決めるための設備を必要とするからである。

除染及び閉鎖（D & D）の方法と技術は、最近のいくつかの刊行物に、概観されている。これには、1) Bainbridge 等によるD & Dの経験と技術の現状（1974年）の討議⁽²⁸⁾、2) 合衆国のD & D政策、D & Dの経験及び将来計画の概要を論じた報告書の集録⁽²⁹⁾、3) 関係書誌の注釈^(30,31)、4) プルトニウム施設の設計基準に関連した合衆国内原子力施設でのD & D経験の概括⁽²⁰⁾、5) 及び Ayres の編集になる、原子炉及び原子力機器の除染方法に関する広範な論説⁽³²⁾等がある。

利用できるD & D技術を詳細に述べるよりむしろ、次節以降では、実施されている操作の種類及び用いられている器具をいくつか概観し、詳細は参考文献に委ねることとする。

15.3.1 汚染管理

汚染拡大に対する管理は、以下の方法の1つあるいは組合せで行う。これらの方法には、1) 作業区域を覆うグリーン・ハウスまたは半密閉構造物を設けること、2) エア・ライン・スーツを着用すること、3) 機器、ライニング、コンクリート壁等のコーティング材として、塩素系水性ゴム・エマルジョン・ペイントを利用すること、4) 操作に際しては、HEPAフィルタを通して建屋換気系に排出するような、ローカル換気系を利用することがある。

15.3.2 非多孔性表面の除染

原子炉の熱伝達系、再処理工場及びセルは洗浄による除染が望ましい。内部洗浄には種々の化学除染剤が使われる⁽³²⁾。すなわちグリース、泥及び有機溶媒除去のための溶媒及び洗浄剤；酸化被膜溶解のための酸、酸性塩またはアルカリ；或るイオンを溶解する錯化剤；界面活性剤；或る種の皮膜を溶解する酸化剤；その他希望する化学的效果を持つ還元剤等々である。

施設を再利用したり機器を廃物利用する意図がない場合は、機器の表面を浸す腐蝕性除染剤を利用すれば有効に除染できよう。

特に施設に洗浄廃液を収集処分する装置があり、後程直接D & D作業を実施する場合は、化学処理用機器及びセルの表面を蒸気洗浄、水洗または、高圧スプレー洗浄することもできよう。

壁、床、天井、付属配管等の表面除染が必要となるが、これはサンド・ブラストや液体洗浄剤を噴霧して行なえることがあり、時には、はくり性ペイントの塗布及び除去が有効なこともある。種々の洗浄剤を使って手で洗うことが必要なことも多い。

使用済の除染剤廃液の処分の問題のために、しばしばこれらの利用が著しく妨げられることがある。サイト内に、蒸発、仮焼或いは廃液貯蔵施設がない場合は、汚染した洗浄廃液は何らかの方法（例、コンクリートへの混和）で固体に変えて固体廃棄物として処分するために梱包しなければならない。

15.3.3 コンクリート表面の除染

コンクリート表面の汚染防護のため、通常、耐酸ペイントまたはステンレス・ライニングが施されるが、ペイントははげ、ライニングは漏洩するかも知れない。特に液体汚染が裸のコンクリートにふれると、通常吸収され、一般的除染技術は使えない。このような場合、全ての汚染を除去するのに十分な深さ迄コンクリートを砧り取るか、または全てのコンクリートの壁、床あるいは天井は汚染しているものとして処理する。

コンクリートの表層の除去は爆薬、ジャック・ハンマー、グリット・ブラスト（grit blaster）で行われてきたが⁽⁹⁾これらの3つの技術には限界がある。爆薬は、爆発力が周りの構造を損壊せず、コンテインメントを侵害しない場所あるいは、汚染が管理できない程拡大しない場所に限って用いられる。ジャック・ハンマーを壁または天井に使うのは難しい。また、グリット・ブラストは時間がかかる。

15.3.4 汚染機器、セルライニング及び換気系の除去

通常保守器具及び保守手順を、主要三施設（原子炉、加工、再処理）に於ける大半の機器撤去に応用することができる。機器を解体したり搬出及び梱包のため小片に切る必要のある所では、プラズマ・トーチ、酸素アセチレン・トーチ、電動かなのこ、携帯式切削機、または、爆薬（Shaped explosive charges）を使用する。

切断を遠隔的に行なう必要があるところでは、特殊な工具やマニプレータをその作業のため設計する必要がある。

セルのライニングは、梱包するのに十分小さいサイズになるよう切る必要がある。この目

的のための道具としてはプラズマ・トーチが有効である。

多くのコンポーネントは、一般的な保守技術で撤去して梱包することができ、また、ダクト工作物は、ハックスソー、トーチまたはサーベル・ソーで切断できる。汚染散逸を防ぐために、機械的切断の実施に先だって、内部表面にペイントを吹きつけるかまたは、ダクト工作物に発泡ポリウレタンを詰めることも併用できる。

15.3.5 廃棄物の減容

貯蔵または埋没する汚染廃棄物の減容処理は、液体については蒸発処理及び仮焼（第10章）、可燃物に対しては焼却或いは熱分解、その他機械圧縮、せん断—容器収納等（第9.0章）により行なわれる。

15.3.6 D&D技術の改善の必要性

上に述べたD&Dの経験と現在の技術から、軽水炉燃料サイクル施設の除染或いは解体が単純で簡単な操作であるとの印象を受けるかもしれないが、この通りでないことは、過去のD&D計画のコストが高く、さらに将来予想されるD&D計画^{*}のコスト試算の規模が立証している。燃料サイクル施設の解体のコストは、大部分の非原子力施設の場合、より下記の種々の理由で高くなる。すなわち、1) 原子力施設は、通常鉄筋コンクリート製の巨大な構造物であること、2) 放射性廃棄物の容器収納、輸送及び貯蔵或いは、埋没が主たるコスト要因となり、これは解体した廃棄物を市のゴミ捨場に運搬投棄するよりはるかに高くつくこと、3) 遠隔操作、汚染管理並びに放射能監視及び防護システムの維持が必要な為に、これがコストに大きく加算されること、そして、4) 一般に放射線区域での作業の場合には工数の能率が悪いこと等である。しかし、原子力施設の閉鎖のコストを評価するに当たって、忘れてはならないのは、原子力であるがゆえのコスト増分のみが原子力の実質負担部分と考えるべきだということである。

過去に於けるD&D作業がコスト高になった原因の1部は一般的に閉鎖の努力が、閉鎖する特定の施設に特別に適應させた比較的通常の閉鎖、取壊し手順を用いるか、あるいはD&D操作の為に特に計画された手順要領によるよりもむしろ現存施設の特殊補修用に開発した技術を適應して遂行されたことにあるかも知れない。

従って、D&Dを専門とした改良技術を、開発しようという相当強い誘因があると考えられる。着目すべき事項には下記のものがある。

1. 終局的閉鎖を簡単にするための工場設計の変更（汚染区域及び表面へより容易に立入て

* Barnwell再処理工場についての詳細な見積りによれば、建設費の約20%の解体費コストが示されている。これは、最低コストで精度は2倍以内と考えられている。

き，大型機器及び構造物をより簡単に解体できる様にする等）

2. 除染技術の開発

- ・僅かに表面汚染した（或いは，微弱な誘導放射能をもった）金属を埋没したり貯蔵したりするよりもむしろ回収し再利用できるよう除染する簡単な技術。
- ・多孔質の物質，（例 コンクリート）の（薄層の削除）除染技術。
- ・使用済除染剤の再利用または処分についての処理技術。

3. 大型機器，グローブ・ボックス，セルライニング，構造物等の切断方法の改良

- ・金属及びコンクリート用の種々の切断工具
- ・爆破技術

4. 遠隔操作技術の開発

- ・工具類の遠隔操作用特殊機器
- ・遠隔作業区域を監視する手法の改善

5. 廃棄物の梱包，貯蔵或いは埋没技術の改良

- ・解体及び取壊しの結果生ずる大量の低レベル汚染構造材料に対する，より効果的または経済的な方法
- ・埋没場及び暫定貯蔵場をゼロ放出システムとするための固体廃棄物の改良容器収納方法。

6. 危険区域での個人防護策の強化

7. サイト，物質または，機器の断片が，無制限放出限界レベル以上に汚染していないことを確認するための， α 及び β - γ 放射体の現場測定用機器の改良

15.4 規制及び規準

閉鎖施設を許容汚染レベルにするための，軽水炉燃料サイクル施設の閉鎖に関する合衆国の公式の指針及び規準の最近の情勢は次の通りである。

15.4.1 閉鎖指針

- ・規制指針 (Regulatory Guide) 1.86⁽¹⁾は，原子炉の運転免許の停止について規定している。
- ・再処理工場または混合酸化物燃料加工工場の閉鎖に対しては，同様な指針はない。連邦規制，Title 10, Part 50 Appendix F では，“…再処理工場の設計方針は，施設が永久に閉鎖されるときは，除染及び全ての主要な放射性廃棄物の除去が容易に行えるものでなければならない”としている。
- ・アメリカ国内規準委員会 (American National Standards) N 46 が提起した規準は，

“再処理工場の閉鎖の設計基準（N300-1974）”と題して起草されているが未だ承認されていない。この規準案では、Hallam型の埋葬処分が使用済燃料再処理事業全体にわたっての基準となるであろうことを暗黙のうちに仮定している。草案は、再処理工場の将来の閉鎖を容易にするため設計に取り入れるべき規準並びに閉鎖作業に関する規準を提起している。

15.4.2 残留汚染の規準

原子力施設のD&D計画は、残留放射能汚染の最大許容レベルに依存する。規制指針（Regulatory Guide）1.86⁽¹⁾は、原子炉の運転免許の廃止のための許容表面汚染レベルを示している（Table 15.1）。これらの値は、原則として、その他の燃料サイクル施設の表面汚染に拡大適用できようが、土壌または多孔質のコンクリート壁のような物体全体が汚染しているような場合の指針とはならない。

環境中の超ウラン元素汚染の最大許容レベルに対する普遍的な許容基準は未だない。一般的に、現場サーベイ機器の検出性が低いために、プルトニウム汚染土壌の除染に対しては種々の限界が勧告（使用）されている。例えば以下の通りである。^{*}

- ・ Palomares 事件では、空軍はスペイン政府と協力して以下の規準を定めた。⁽³³⁾

地表下1 cmの汚染

措置

> 4700 dpm/g・乾燥土 米国内での処分のため、地表下10 cmを除去し容器に収納する。

470~4700 dpm/g・乾燥土 区域を約30 cmの深さ迄すき返す。

- ・ 1968年、Kathren は、酸化プルトニウムに対して10 dpm/g・土に相当する暫定許容表面汚染レベルを勧告値とする提案を発表した。⁽³⁴⁾ この提案は、最大許容個人線量にもとづくもので、一般公衆被曝線量によるものではない。
- ・ 1973年1月にコロラド州は、土壌中のプルトニウムに対して、0.2 dpm/g・乾燥土の緊急暫定規準を義務づけた。この規準を超えるサイトは、住宅や業務用建物には使えなくなった。この規準は、後に10倍引上げられて2 dpm/g となり、現在も有効である。この規準を超える区域は、住宅または業務用建物の建設許可がおりる前にすき返すかまたは除染しなければならない。
- ・ Healy は、土壌中のプルトニウムに対して、Table 15.2 に示す暫定規準を勧告している。⁽³⁵⁾
- ・ Waite と Jenkins は、許容残留放射能汚染をサイトの利用計画と結びつけた、サイトの解放基準を開発する方法論を提案した。⁽³⁶⁾ 彼らは、この方法論をプルトニウム施設の場合に適用し、Fig 15.1 に示す規準を勧告した。

* 参考のため比較すると、代表的な天然アルファ放射体（ウラン及びトリウム系列）の濃度は、1~10 dpm/g・乾燥土である。もっとも、鉱床地域ではこれよりはるかに高い値を示す。

TABLE 15.1. Acceptable Surface Contamination Levels

Nuclide (a)	Average (b,c)	Maximum (b,d)	Removable (b,c)
U-nat, ²³⁵ U, ²³⁸ U, and associated decay products	5,000 dis/min α-100 cm ²	15,000 dis/min α-100 cm ²	1,000 dis/min α-100 cm ²
Transuranics, ²²⁶ Ra, ²²⁸ Ra, ²³⁰ Th, ²²⁸ Th, ²³¹ Pa, ²²⁷ Ac, ¹²⁵ I, ¹²⁹ I	100 dis/min-100 cm ²	300 dis/min-100 cm ²	20 dis/min-100 cm ²
Th-nat, ²³² Th, ⁹⁰ Sr, ²²³ Ra, ²²⁴ Ra, ²³² U, ¹²⁶ I, ¹³¹ I, ¹³³ I	1,000 dis/min-100 cm ²	3,000 dis/min-100 cm ²	200 dis/min-100 cm ²
Beta-gamma emitters (nuclides) with decay modes other than alpha emission or spontaneous fission) except ⁹⁰ Sr and others noted above	5,000 dis/min β,γ-100 cm ²	15,000 dis/min β,γ-100 cm ²	1,000 dis/min β,γ-100 cm ²

- a. Where surface contamination by both alpha- and beta-gamma-emitting nuclides exists, the limits established for alpha- and beta-gamma-emitting nuclides should apply independently.
- b. As used in this table, dis/min (disintegrations per minute) means the rate of emission by radioactive material as determined by correcting the counts per minute observed by an appropriate detector for background, efficiency, and geometric factors associated with the instrumentation.
- c. Measurements of average contaminant should not be averaged over more than 1 m². For objects of less surface area, the average should be derived for each such object.
- d. The maximum contamination level applies to an area of not more than 100 cm².
- e. The amount of removable radioactive material per 100 cm² of surface area should be determined by wiping that area with dry filter or soft absorbent paper, applying moderate pressure, and assessing the amount of radioactive material on the wipe with an appropriate instrument of known efficiency. When removable contamination on objects of less surface area is determined, the pertinent levels should be reduced proportionally and the entire surface should be wiped.

TABLE 15.2. Recommended Interim Standards for Plutonium in Soils

	In <100 μ m Particle Size Fraction			Total (a)		
	dis/min-g	μ Ci/g	μ Ci/m ²	dis/min-g	μ Ci/g	μ Ci/m ³
Top 0.1 cm (b)	500	2×10^{-4}	0.4	1,000	4×10^{-4}	0.8
Any 1-cm Layer	500	2×10^{-4}	4	10,000	4×10^{-4}	8

- a. With the provision that the fraction with particle sizes less than 100 μ m is known not to exceed the limits given. If this is not known, the values for the <100 μ m fraction should be applied to the total.
- b. For bare soil or areas with sparse vegetation. Where the area is reasonably well vegetated (greater than 50% of the area is covered with low vegetation) and a reasonable root mat exists to hold the soil, the concentration listed can be applied to a 0.5-cm layer, which would permit up to 2 μ Ci/m² in this layer.

	SURFACE CONTAMINATION	ACTIVITY/MASS CONCENTRATION
UNRESTRICTED	220 dis/min-100 cm ² fixed 220 dis/min-m ² smearable	10 pCi/g
CONDITIONAL (NONSURVEILLANCE)	2,200 dis/min-100 cm ² fixed 220 dis/min-m ² smearable	100 pCi/g
CONDITIONAL (SURVEILLANCE)	22,000 dis/min-100 cm ² fixed 220 dis/min-m ² smearable	1 nCi/g
RESTRICTED	22,000 dis/min-100 cm ² fixed 220 dis/min-m ² smearable	>1 nCi/g

FIGURE 15.1. Disposition Criteria Matrix

15. 5 D & D の主要問題に対するコメント

原子力施設の D & D アクティビティの廃棄物管理全般にわたる問題に対する将来の動向は以下の様に特徴づけられるであろう。

1. 閉鎖によって、特性的にも量的にも新たな、或いは重要な問題を提起するような大量の廃棄する放射性核種を生ずることはないであろう。
2. D & D によって（キュリー値から明らかな様に）多量の放射性廃棄物が発生し新たなあるいは重要な問題を提起することになるかもしれない。例えば、輸送を容易にする為に大型対象物形状を変更する必要にせまられて諸問題が生じたり、あるいは数多くの大規模 D & D 計画で発生する廃棄物が、一時に貯蔵処分場へ搬入された場合にはそれら廃棄物の短時間処理の問題が予想される。
3. 埋葬が閉鎖のモードとして採用された場合、D & D によって、量的にも放射能的にも多量の放射性廃棄物をほぼ無期限に貯蔵あるいは埋没処分するための各種のサイトが著しく増加することとなる。

REFERENCES

1. U.S. Atomic Energy Commission Regulatory Guide 1.86, "Termination of Operating Licenses for Nuclear Reactors," June 1974.
2. U.S. Atomic Energy Commission, Plan for the Management of AEC-Generated Radioactive Wastes, WASH-1202(73), July 1973.
3. Power Reactor Development Company, Retirement of the Enrico Fermi Atomic Power Plant, March 1974.
4. Atomics International, Report on Retirement of Hallam Nuclear Power Facility, AI-AEC-12709, May 15, 1970.
5. W. Willoughby and H. T. Babb, Nucleonics News, vol. 13, no. 6, p. 48, 1970.
6. M. Iriarte and J. Hernandez-Fragoso, "Bonus," Nucleonics News, vol. 13, no. 6, p. 51, 1970.
7. C. W. Wheelock and R. A. Hewsen, "Retirement of the Piqua Power Facility," presented at the American Nuclear Society Conference Reactor Operating Experience, San Juan, 1969.
8. M. N. Bjeldanes, "Pathfinder," Nucleonics News, vol. 13, no. 6, p. 56, 1970.
9. United Power Associates, AEC-Elk River Reactor, Final Report, COO-651-93, September 1974.
10. B. J. Davis, "Elk River Reactor Dismantling," CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
11. E. W. Kendall, "Decontamination and Decommissioning Experience at Experimental Breeder Reactor No. I," CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
12. T. F. Jones, "Program Plan for Decontamination and Decommissioning the Materials Testing Reactor at the INEL," CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
13. W. F. Heine and A. W. Graves, "Preparation for Decontamination and Disposition of the Sodium Reactor Experiment (SRE) and Other Facilities at AI," CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
14. F. R. Field, "A Decommissioning Plan for the Heavy Water Components Test Reactor," CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
15. R. B. Chitwood, "Decontamination and Decommissioning of Licensed Fuel Reprocessing Plants," CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
16. P. Cerre, "Démantèlement de l'usine pilote d'extraction du plutonium de Fontenay-aux-Roses," Bull. Inf. Sci. Tech., Paris, vol. 70, pp. 55-74, 1963.
17. P. R. Moore, "Decontamination of a Highly Radioactive Chemical Processing Facility," CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
18. C. E. Jenkins, Editor, Decommissioning Study, Prototype Chemical Separations Facility (Draft), Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, 1975.

19. U.S. Atomic Energy Commission, Docket No. 70-1432, "Recycle Fuels Plant-License Application," Westinghouse Electric Co., July 1973.
20. R. K. Paschall, Decontamination and Decommissioning Criteria for Use in Design of New Plutonium Facilities, AI-ERDA-13156, June 30, 1975.
21. E. L. Christensen, R. Garde and A. M. Valentine, "Demolition of Building 12, An Old Plutonium Filter Facility," CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
22. M. N. Raile, P-11 Cleanup Summary Report, ARH-ST-106, UC-2, December 1974.
23. J. M. Garner and W. P. Davis, "A Summary Review of Mound Laboratory's Experience in D&D of Radioactive Facilities," 1949-1973, CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
24. R. D. Caldwell and R. M. Harper, "Dismantling an Alpha-Contaminated Facility," CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
25. C. E. Jenkins, Editor, Decontamination Study, Prototype Mixed Oxide Fuel Fabrication Facility, BNWL-1974 (Draft), Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, October 1975.
26. C. Grant, J. Hite and H. G. Shealy, Economic Analysis of Funding Arrangements for Maintenance, Surveillance, and Contingency Costs Associated with Burial of Low-Level Radioactive Waste in South Carolina, South Carolina Agricultural Experiment Station, Clemson University, Clemson, SC, December 1974.
27. Task Force Report on Bonding and Perpetual Care of Nuclear Licensed Activities, Conference on Radiation Control Program Directors, January 1975.
28. J. R. Bainbridge, P. A. Bonhote, G. H. Daly, E. Detilleux and H. Krause, Decommissioning of Nuclear Facilities: A Review of Status, Atomic Energy Review, vol. 10, no. 1, pp. 146-160, 1974.
29. Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Sponsored by the U.S. Energy Research and Development Administration and Aerojet Nuclear Company, held at Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.
30. Decommissioning of Nuclear Facilities--A Bibliography, TID-3344, April 1974.
31. W. E. Sande, H. D. Freeman, M. S. Hanson and R. L. McKeever, Decontamination and Decommissioning of Nuclear Facilities--A Literature Search, BNWL-1917, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, May 1975.
32. J. A. Ayres, Editor, Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment, The Ronald Press Company, NY, 1970.
33. Environmental Protection Agency, Proceedings of Public Hearings: Plutonium and Other Transuranic Elements, vol. I, December 10-11, 1974.
34. R. L. Kathren, Toward Acceptable Surface Contamination Levels for Environmental Plutonium Oxide, BNWL-SA-1510, Battelle, Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, March 14, 1968.
35. J. W. Healy, A Proposed Interim Standard for Plutonium in Soils, LA-5483-MS, January 1975.
36. D. A. Waite and C. E. Jenkins, "Development of Disposition Criteria Derivation Methodology for Commercial Fuel Cycle Facilities," CONF-750827, Proceedings of the Conference on Decontamination and Decommissioning (D&D) of ERDA Facilities, Idaho Falls, ID, August 19-21, 1975.

1 6.0 特定の再処理廃棄物の分離と利用

本章では、高放射性廃棄物処理の方法として、次の事項について述べる。

- 特定の廃棄物成分の有効利用の可能性
- 廃棄物中の特定のFP及びアクチニドの分別回収に関する技術的考察
- 大量の固体廃棄物を利用したエネルギーの回収
- アクチニドを除去して長期間にわたるリスクを軽減するために行う廃棄物の分離

一般に、分別 (fractionation) と分離 (partitioning) とは、フィード流から元素または元素群を精製した小部分として分離回収することの同義語であるが、本章では次のような使い分けをする。すなわち、分別は有効利用のための廃棄物成分の回収及び精製を指す。また、分離は、環境から高放射性廃棄物を隔離する場合の長期間にわたるリスクを軽減するため、最終除去手段として行うアクチニドの回収及び精製を指すものとする。これら両者の一般的特徴については1 6.1節から1 6.3節にわたって述べ、1 6.4節では分離について詳述する。

1 6.1 高放射廃棄物の有効利用の可能性

使用済軽水炉燃料中の多くのFP及び質量の大きい元素のアイソトープには、様々な利用法がある。⁽¹⁾大容量固化処理廃棄物の熱源および線源としての利用をはじめとして、様々なFPの利用法が提案されている。例えば、⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、²⁴⁴Cm および ¹⁴⁷Pmなどは熱源として利用される。⁽²⁾⁹⁹Tcは防食剤、合金材料あるいは半導体として利用される。¹⁰⁶Ruは熱源として利用される。PdおよびRhには別な工業的利用法もあるが、これらは触媒としても有用である。^(3, 4) γ 線源としての¹³⁷Csは食品あるいは排水の殺菌に利用される。

Pu線源は、SNAP計画で火星、木星、さらに遠方の惑星探査の宇宙ロケットに、信頼度の高いエネルギー源として利用された。使用済み燃料の中のFPおよびアクチニドには、さらに多くの有効利用法がある。

これら様々な利用に供される量は、成長を続ける原子力経済のもとで年々発生する廃棄物のほんのわずかな量でしかなく、大部分は廃棄物として残るので、利用方法としてはいずれの方法も注目に値するものではない。これら有用成分について考えられる全ての需要を考慮しても1つのキャンペーン単位で応ずることができ、この需要のために原子力産業界や再処理業者に大きな影響を与えることにはならない。

その他の将来可能性のある利用法では、毎年発生する廃棄物成分のほとんどすべてが必要

と考えられ、これらを大規模に回収するということは、原子力産業、廃棄物管理などにとどまらずおそらく国家の経済にまで大きい影響を及ぼすものと考えられる。結局、大規模な回収の実施に当っては、人の放射線被ばくのリスクを考慮したリスク—コスト—利益の関係を十分に検討して意志決定しなければならない。これは、再処理および廃棄物管理に付加されるコストのみならず、廃棄物成分の特殊な有効利用の経済的価値を比較することである。こうしたバランスのとれた研究は、いまだ行われていない。

高放射性廃棄物に含まれる成分のうち、大規模な回収の第1候補と次の元素があげられる。

○ 鉱物資源としてのPd, Rh, Ru および Tc。

1992年に原子力産業で生産される年間のPd量は、1972年の米国産業界に対する販売量の約 $\frac{1}{2}$ となり、また1986年のRhの年間生産量は1972年の米国産業界に対する販売量を越える見込みである。さらに、原子力発電の副産物として毎年生産されるRuおよびTcも米国の需要量を大きく上まわることが予想される。これらの製品は放射性であるから、時間を置いて減衰させてから販売するか、それが困難な場合には、きびしい計量管理が行なえる工業利用に限定しなければならない。

○ Cs, Sr, Ce, Pm, Cm および Am

これらの元素は、特殊な方法あるいは遠隔区域で熱源または線源として有用であろう。生成するCsはすべてスラッジの照射および殺菌に利用できよう。その他の元素の需要はほとんど軍用であるが、その需要は多分キャンベーンベースで満たすことができる。これらの元素は放射能を有し、さらに毒性を有するものもあるので、その利用は十分な管理が必要である。

FPが貴重なエネルギー源であることが示唆されている。⁽²⁾ 参考文献5-7の情報を用いて行なった単純な計算結果をFig.16.1-1に示す。これによると、回収成分を単にその発熱量と普通の条件のもとで使用するとすれば、上記の仮定が正しくないことがわかる。Hanfordでの実際の運転経験によると、Sr及びCs熱源から理論的に直接回収できる熱量1Jに対して、化学処理で実際に費される熱量は約17Jとなる。Fig.16.1-1に示すように、その他のFPの回収についても正味エネルギーのロスとなる。ただ、大量の固化廃棄物(the bulk solidified waste, BSW)を利用すれば正味エネルギーの増となる。UおよびPuの回収では大きいエネルギー増となる。⁽⁶⁾

しかしながら一般的ではない方法であるいは遠隔区域で熱源としてFPを使用する場合には、Fig.16.1-1はFPの代表的なエネルギーバランスを表わすものではない。特に、Cs線源がスラッジの殺菌および回収に使用される場合スラッジの発熱量を考慮すると、実際にはスラッジの回収と利用におけるエネルギーバランスはプラスとなる。

同様にSr線源が遠隔地で利用され、熱源としての世話がかけられない(たとえば北極地方

での使用) 場合には, 通常のエネルギー源に必要なメンテナンスや定期的な燃料補給のための燃料が節約されて Sr のエネルギーバランスが有利となろう。特定の FP の回収でえられるこれらの 2 次的なエネルギーの利益については, Fig 16.1-1 で考慮されていない。これらを考慮すると, いくつかの FP の回収で正味のエネルギーの回収がありうるが, その回収量はしよせんわずかな量にすぎないであろう。FP は, どんな条件であっても, 一般に U や Pu に匹敵するエネルギー資源としては扱われない。

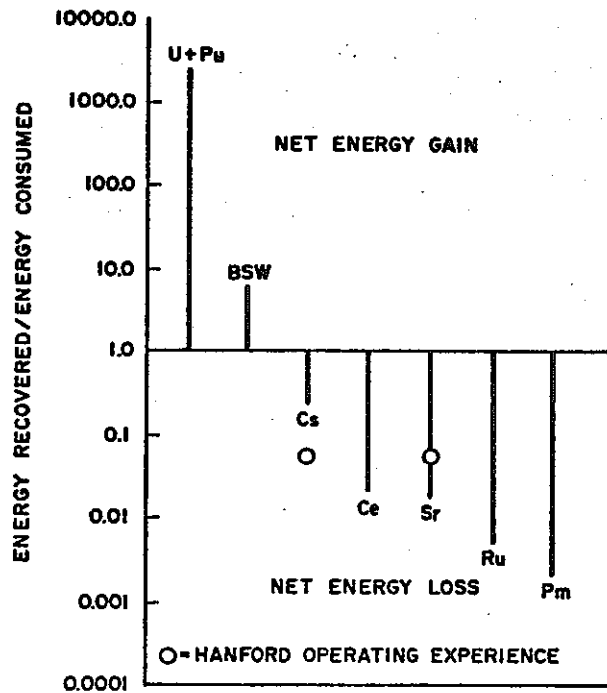


FIGURE 16.1-1. Estimated Energy Recoveries for Selected Fission Products

高放射性廃棄物には 40 以上の元素が含まれている。これらの元素を各種の組合せで大規模に回収する場合には, さまざまな処理方法および管理条件の別個な技術的な方法が必要であり, その有効利用の方法も異なったものとなろう。成長を続ける原子力経済のもとでは毎年大量の新しい廃棄物が発生すると思われるので, 現存する廃棄物を全て固化処理し最終貯蔵したとしても, 将来の廃棄物成分の需要に対する再処理業者の供給能力が大きく減退することはない。しかしながら, 特定の廃棄物成分に対して現在多くの用途が競合しており, その例として, アクチニドの有効利用と分離を目的としたこれら元素の即時除去との競合がある。

1.6.1.1 種々の処理方法の特徴

すべての処理方法を単に列挙するのではなく、以下の4つの方針についてそれぞれの管理と利用の特徴を定性的に概説する。

結果の項では、廃棄物の管理および有効利用あるいは廃棄物の除去にからむ広範な動向を明確にする。

1. 方針1：現存するもの、および将来発生する高放射性廃棄物のすべてを固化処理し、可能な限り速やかに最終貯蔵し、有効利用や核変換による消滅処理などは行なわない。

結果：再取出し可能な貯蔵量廃棄物の分散と移動性輸送に対する要求度および短期間の安全に対するリスクは最小となる。廃棄物管理は簡単になるが、廃棄物の成分は利用できない。長期間にわたる高放射性廃棄物の放射線的有害性は減少しない。

2. 方針2：アクチニドを分離し、中性子照射などにより核変換を行なう。現存ならびに将来生ずる高放射性廃棄物中のアクチニド以外の残留成分はすべて固化処理し、最終貯蔵する。

結果：液体廃棄物の在庫量と長期間にわたる高放射性廃棄物の放射線的有害性は最小となる。再取出し可能な貯蔵量、廃棄物の分散性、輸送に対する要求度および短期間の安全に対するリスクは増す。廃棄物管理は複雑となるが、アクチニドの有効利用はできる。

3. 方針3：現存する高放射性廃棄物の一部について、その組成と最も合理的な有効利用との観点から固化処理する。一部は最終貯蔵、一部は有効利用へと分ける。市場での需要を確認しながら、キャンペーン単位で特定元素の一定量ずつ回収する。

結果：再取出し可能な貯蔵量、廃棄物の分散と移動性輸送に対する要求度ならびに短期間の安全性に対するリスクは増す。廃棄物管理を複雑にする。廃棄物中の成分は利用できる。

4. 方針4：高放射性廃棄物を固化もせず、最終貯蔵も行なわない。需要の有無にかかわらず有効利用を前提として、すべての廃棄物中の成分の回収を行なう。再取出し可能な貯蔵状態を保ち、環境から過剰のアクチニドを分離、排除する。

結果：再取出し可能な貯蔵量、廃棄物の分散と移動性、輸送に対する要求度および短期間の安全性に対するリスクが非常に大きくなる。廃棄物管理は非常に複雑になる。多くの廃棄物中の有効成分が利用可能になる。長期間にわたる高放射性廃棄物の放射線的有害性は最小になる。

1 6. 2 廃棄物分別の技術的考察

上述の各種の方法によつて高放射性廃棄物中の元素又は元素グループが回収、精製される。精製し、気密容器 (encapsulation) に入れた製品は、有効利用されるか、核反応による消滅処理または、例えば、大気圏外への放出処分のような他の方法によつて除去される。回収および精製施設は、UやPuの経済的回収を目的とした再処理工場の付属施設として将来設置することが考えられる。回収と精製は大別して少なくともつぎの4つの段階からなる。

1. 粗精プロダクトの回収
2. 1次プロダクトの精製
3. 2次のプロダクトの精製
4. プロダクトの気密容器への封入と検査

分別 (Fractionation) および分離 (Partitioning) の両者とも、廃棄物を一ヶ所に封じ込めて置く場合にくらべ、短期間の管理上の問題を厄介にする。廃棄物から Cs や Sr などの特定成分を回収しても残った高放射性廃棄物の管理コストは余り減少しない⁽⁸⁾。さらに、利用方法の如何にかゝらず、廃棄物の地球上での有効利用は一種の暫定的な再取出し可能な貯蔵にすぎず、これによつて環境から廃棄物を排除することも、また、廃棄物管理上の問題を解決することもできない。利用に供する廃棄物成分はすべてその在庫量を把握し、最終的には、すべての廃棄物は担当機関に戻して最終貯蔵または排除処分しなければならない。

廃棄物中の1部分またはすべての成分を大規模に分別または分離する場合、特に注意すべきこととして次のものがあげられる。

- 2次廃棄物発生量の増大。すなわち廃棄物から種々の元素を回収するプロセス化学は、大きく異なるが、回収操作で発生する2次廃棄物は高い相関性を持つている⁽⁹⁾。Table 16.2-1のHanfordの実績は、代表的な2次廃棄物の発生推定量を表わしている。

TABLE 16.2-1. Volume of Wastes Generated by Recovering 95% of the Cesium and 70% of the Strontium from 1 Liter of High-Level Waste

<u>Type of Waste Generated</u>	<u>Volume, Liters</u>
Secondary high-level aqueous waste, 8% solids	2.76
Low-level aqueous waste	0.10
Solid high-level waste (failed equipment)	0.04
Solid low-level waste (paper, misc. items)	<u>0.04</u>
Total waste	2.94

これらの2次廃棄物は再循環するか、別の方法で管理しなければならない。ある種の元素の回収は高放射性廃棄物の体積を減少させることができるかも知れないが、他の多くの元素の場合は回収操作で塩析剤や不揮発性試薬などを添加するのでこの廃棄物の量は増加しよう。さらに回収で用いる多くの化学薬品は、次の固化処理の段階で何らかの支障を来すと考えられる。

- 輸送に対する要求の増大。再処理で回収封入された元素は有効利用されるサイトまで輸送し、最後には返還しなければならない。多くの回収元素は、嚴重なしゃへいを行なうことによってはじめて安全に輸送できる。アクチニドを分離して核変換する場合は、これらが最終的にFPに変換されるまでは、アクチニドを再処理工場と核変換用原子炉の間を多数回リサイクルする必要がある。
- 残留廃棄物の移動性の増大。この問題に対する完全な技術的解析は行なわれていないが、さまざまな化学添加物によって次の段階で作られるガラス固化物の浸出性 (leachability)が増し、それによって最終貯蔵でのリスクが増大する。
- 計量管理に対する要求の増大。

1 6.3 大容量の廃棄物 (BSW) からのエネルギー回収

固化処理した高放射性廃棄物を収納した容器の発生熱は、 177°C の飽和蒸気を発生させ得ると言われている。⁽¹⁰⁾この火力発電所は (steam plant) 例えば軍用基地のような比較的安全な場所に設置されよう。4年冷却した廃棄物を固化した加熱エレメント (temperature-safe element) を使用する場合にこのプラントのコストを最小限におさえることができよう。収納容器は火力発電所で10年間使用され、その後、永久貯蔵所へ送られよう。

この方法では、10年間は固化廃棄物の再取出し可能な貯蔵と同等であり、その後、収納容器の最終貯蔵がおこなわれる。たゞ、次の3つの問題が生ずる。

1. 容器輸送に対する要求が増大する。
2. 火力発電所の環境での容器破損の可能性の増大。
3. 計量管理に対する要求の増大。

1 6.4 高放射性廃液からのアクチニドの分離

現在の核燃料再処理技術では使用済燃料中のUおよびPuの約99.5%が回収され、未回収のUおよびPuの大部分とその他の超U元素のほとんど全てが高放射性廃棄物に含まれる。

これらのアクチニドは2～3のFPを除きたいづれよりも半減期が長く、800～1,000年の崩壊後には廃液の放射能の90%以上をアクチニドが占めることになる。廃液中のアクチニドの量を減少させることによって将来長期にわたる潜在的なリスクを減らす目的で、高放射性廃棄物を処理してアクチニド元素を除去しようとする廃棄物管理の方法があり、この概念は α 分類 (Partitioning) と呼ばれる。

本節では高放射性廃棄物の α 分離技術のいくつかについて述べる。長期にわたるリスクを効果的に軽減するためには、アクチニドが折角分離されているのであるから、回収したアクチニドを地球上より消滅させる操作あるいは他の処理法より優れた利用可能な処理法が α 分離と併用されなければならない。消滅および処分法については第4巻に記述する。

現在の軽水炉燃料再処理より発生する高放射性廃棄物からアクチニドを分離することについてのフィージビリティスタディは、米国ではBNLおよびORNL^(11~16)、ヨーロッパではEURATOM-Ispra⁽¹⁷⁾で行なわれている。合衆国政府所有の再処理施設で発生する高放射性廃棄物の α 分離についても研究されている^(18~20)。しかしながら、 α 分離に関するプロセスの研究開発はコスト-利益の相関を決めることができるまでには至っていない。合成廃液を用いた実験室規模での研究および概念的な物質収支フローシートによるとアクチニドの分離 (Puを除いて) に必要な化学は理論的に可能である。しかし、化学処理工程の最適組合せを選定し、総合的な高放射線レベル下でのパイロットプラントで可能性を実証するためにはさらに多くの研究開発が必要である。

フィージビリティスタディ^(13~22)によると、アクチニド分離法として有望な方法は、溶媒抽出法、イオン交換法および凝集沈殿法 (あるいはこれらの方法の組合せ) である。しかし、これらの分離法に基づいたプロセスが開発されるにはさらに多くの困難な問題を解決する必要がある。それらのうち重要と考えられるものは以下の事項である。

- Pu回収率の向上
- AmおよびCmを除去するすぐれたプロセスの開発
- 燃料溶解工程から発生する不溶性残渣および以降の工程で発生する固体へのアクチニドの損失防止法の工夫
- α 分離で発生する廃液の適当なリサイクル

これらの問題は非常に密接な関係にあり、問題の重要度は要求されるアクチニドの除去率に左右される。換言すれば、これは分離法を選定する上での重要なファクターである。廃棄物管理上有利となるアクチニドの除去率およびアクチニドプロダクトの純度を決定するにはさらに研究が必要である。

アクチニドの分離で最もやっかいな化学的問題は、Pu、Am、およびCmの除去に関するものである。Puが一番難しいのは、非常に低濃度のPuを抽出されやすい化学形に保持す

ることである。他方、Am-Cmを除去する上で一番難しいのは、多量の試薬を含んだ放射線廃液を発生させずにAm-Cmの除去を行なうことである。Puが廃液から抽出されにくいという問題の他に、使用済燃料再処理で発生する固体のPu含有量や性質に関する情報が十分に得られていないという問題もある。固体廃棄物についての問題の範囲を明確にし、固体廃棄物へのPuロスを防ぐ方法を開発するには多くの研究開発が必要である。物質収支フローシートの検討によると、アクチニドの分離には広汎なリサイクルが必要であろう。このリサイクルができることを実証するには、プロセスの欠陥となるような不純物の蓄積が生ずる工程がどこにもないことを明確に証明する必要がある。廃液を広汎にリサイクルする放射化学プラントの操業経験は非常に限られたものしかない。

各々のアクチニドの分離についての最適なプロセス手順は確立されていないが、最近の1つの研究では再処理工場の改良Purex法と高放射性廃液の2次処理との組み合わせにより α 分離を行なうことが望ましいとしている (Fig.16.4-1, 2)⁽¹⁴⁾。この考え方によると、U、Npおよび大部分のPuはPurex法に抽出サイクルを附加することにより分離できる。高放射性廃液は、以降の処理で用いられるプロセス試薬、溶媒およびイオン交換樹脂への放射線損傷を減少させるために数年間貯蔵され、次のステップでは、残存する抽出されないPuおよびCmの崩壊による娘核性のPuが除去されよう。Puの最終除去に引き続き、Am、Cmおよび残りの超ウラン元素が分離されよう。燃料溶解工程で発生する不溶性残渣およびその他の処理工程で発生する固体は、給液清澄工程で分離され、必要に応じて有用なアクチニドが処理されることとなる。

本節で論議する分離法は硝酸および金属の硝酸塩を含む水溶液からの分離法に限定する。塩化物系のような他の系での分離ははげしい腐食の問題があるほかに、現在用いられている硝酸系に比べてはつきりした長所が見当たらない。

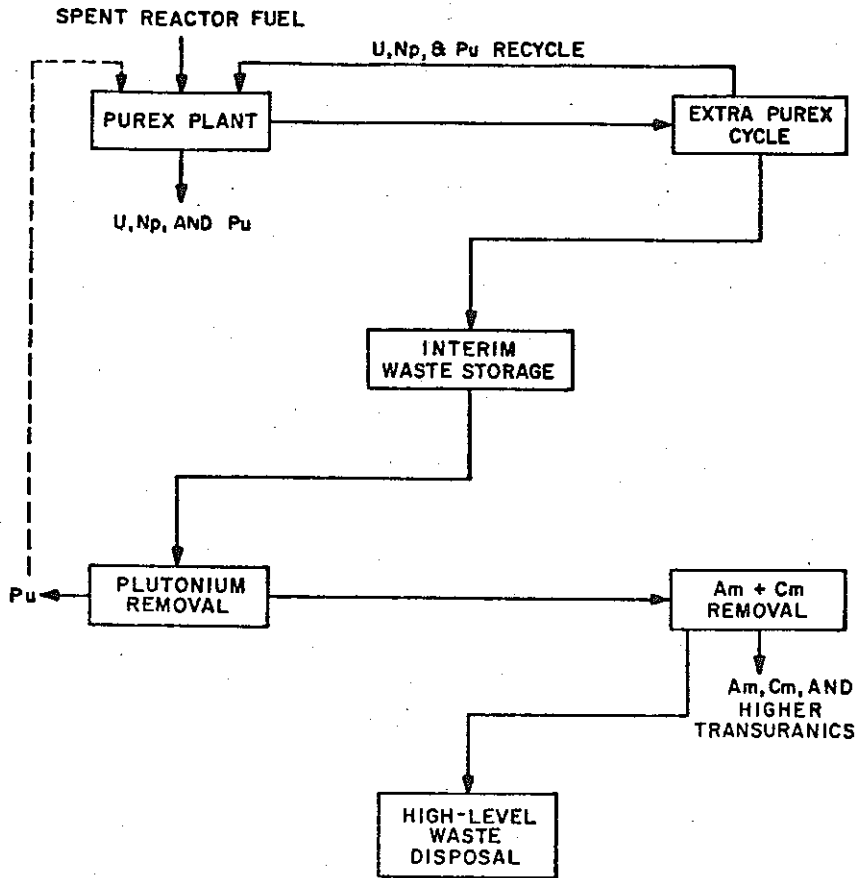


FIGURE 16.4-1. Conceptual Processing Sequence for the Removal of Actinides

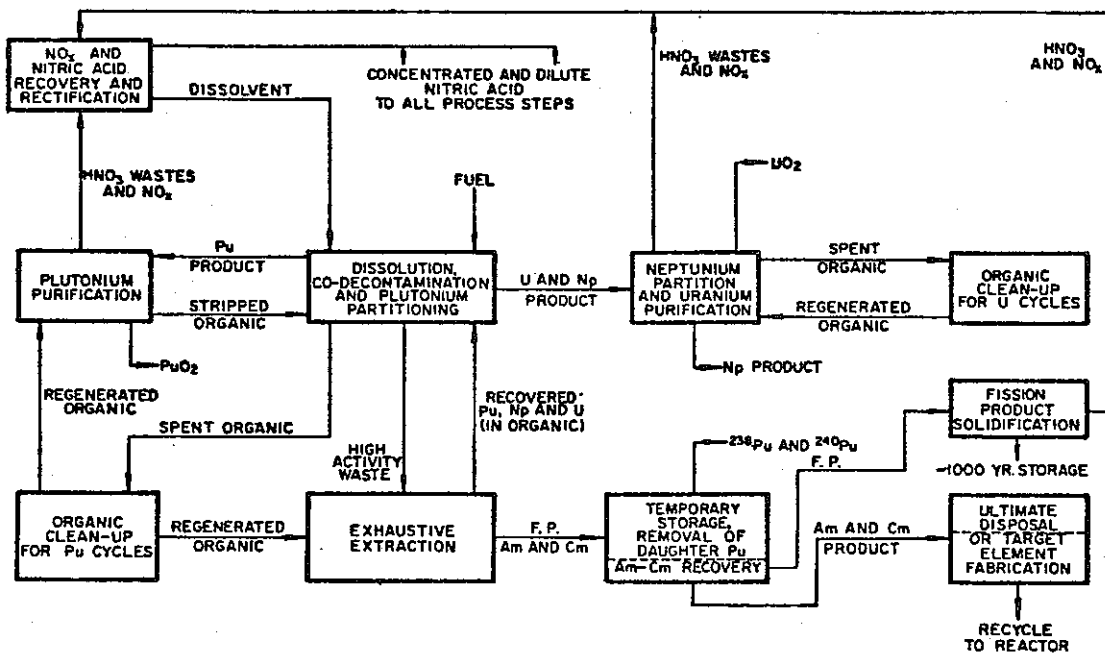


FIGURE 16.4-2. Conceptual Flowsheet for Solvent Extraction Processing of Irradiated LWR Fuel, with Waste Fractionation and Recycle of Heavy Metal and Nitric Acid Values

1 6. 4. 1 溶 媒 抽 出

技術的なフィージビリティスタディによると、全部のアクチニドを分離する簡単な溶媒抽出のフローシートは開発できない。今日までの調査では、2つ以上の溶媒を用いた多段溶媒抽出法が最も良い結果をもたらすようである。また、溶媒抽出法は、イオン交換法のような他の方法と組み合わせた場合に種々の α 分離法を生む可能性もある。溶媒抽出プロセスは次のような廃液の α 分離に適用できる。

- U, Np および Pu の除去
- 他のFPからのAm, Cm, それ以上の超ウラン元素およびランタニド元素の分離
- 化学的に類似なランタニド系FPからAm, Cm およびそれ以上の超ウラン元素の分離

1 6. 4. 1. 1 U, Np および Pu の分離

Purex 法で用いられるTBPは他のFPからU, Np, および Pu を分離するのにプラント規模で実証されており、抽出剤としてTBPと用いたプロセスでU, Np および Pu についてそれぞれ99.9, 90~95, 99.8%までの回収率が証明されている。他の多くの溶媒も同様な性能をもつ可能性はあるが、どの溶媒もまだ高放射線量下での大規模な使用でTBPに代わるにまでは至っていない^(11, 14, 23)。したがって、廃液からU, Np, および Pu を分離するにはTBPが最有力候補の溶媒である。

全てのFPからAm-Cmおよびそれ以上の超ウラン元素を分離するようにPurexプロセスを改良できるとは思われないが、Am-Cm分離プロセスの1つの工程として利用できるよう改良することは可能であろう。Savannah River Laboratoryでの研究によると、金属硝酸塩濃度が高く酸濃度の低い溶液にTBP抽出法を用いて、3価のアクチニド元素およびランタニド元素を軽ランタニド元素および他のFP元素から分離することができる⁽²⁴⁾。このプロセスでAm-Cmの95~99%が回収される。廃液の α 分離の1工程としてのプロセスを適用するためには、大部分の金属硝酸塩をリサイクルする方法を開発しなければならない。

ランタニド系FPと一緒にU, Np, Pu およびAm-Cmを抽出できる溶媒はTBP以外にいくつか報告されている。しかしながら選択的に逆抽出してアクチニド同士およびランタニド系FPからアクチニドを分離するような満足な方法はまだ開発されていない。この点で最も有望な溶媒はbidentate organophosphorous compounds および DEHPA^(18, 20) ^(11, 14) である。

1 6. 4. 1. 2 Am-Cm の分離

Am と Cm の分離に最も有望な溶媒は、TBP, DEHPA, bidentate organophosphorous compounds⁽²⁴⁾ および dibutylbutyl phosphonate⁽²⁴⁾ ⁽¹⁸⁻²⁰⁾ ⁽²⁹⁾ である。これらの溶媒を用いて廃液のAm-Cmを満足に分離できるようなプロセスを開発するにはさらにR&Dが必要で

ある。3価のアクチニド元素とランタニド元素は化学的性質が非常に類似しているため、溶媒抽出による分離は3価の元素を一緒に抽出した後のアクチニド元素の選択的な逆抽出に依存する。逆抽出には有機酸化剤（水酸化ナトリウムあるいは水酸化アンモニウムで一部中和したもの）の弱酸性水溶液が用いられる。

選択的逆抽出法は、まず Zr や貴金属元素のようなやっかいな FP からの3価の元素類分離に依存する。DEHPA を用いる Talspeak 法がこの選択的逆抽出法（あるいは選択的抽出法）⁽²⁵⁻²⁷⁾を用いるプロセスの中で最も広く研究されているが、DEHPAが逆抽出段階へのアクチニド-ランタニドフィード溶液をうるのに適した溶媒であるかどうか明らかではない。最近の研究では bidentate organophosphorous compounds が3価のアクチニド混合フィード溶液を調製するのに適した最有力候補の溶媒であろうとされている。^(18~20) bidentate organophosphorous compounds を用いれば試薬を添加したり酸性度を下げたりせずに分離を行なうことができる。

1 6. 4. 2 イオン交換法

陽イオン交換法は、プロセス廃液のリサイクルおよび廃樹脂の満足な処分に関する問題が解決されれば、高放射性廃液から Am-Cm を分離する方法として将来性がある。^(11, 14, 16, 28)イオン交換についての文献調査によると、陰イオン交換樹脂を用いて Pu と Np を分離する有望な方法がある。⁽¹¹⁾しかし、これらの陰イオン交換法は高放射性廃液の α 分離には適用されていない。

1 6. 4. 2. 1 Pu および Np の除去

陰イオン交換法は、高放射性廃液の2次処理における Pu と Np の TBP 溶媒抽出法に代わりうる方法である。TBP抽出法はプロセス廃液のリサイクルが容易という点で多分優れているが、イオン交換分離法では Pu の抽出されにくさがあまり問題とならない。文献に報告されている分離結果や吸収係数のデータによると、硝酸溶液から Pu を高い回収率で回収することができる。高放射性廃液の α 分離法としての陰イオン交換法の長所、短所を明確にするためにはさらに R & D が必要である。

1 6. 4. 2. 2 Am-Cm の除去

模擬廃液を用いた実験室規模での研究によると、2段のイオン交換法の採用により Am-Cm の分離が可能であり、このプロセスによる回収率は 99.9% あるいはそれ以上になると思われる。^(14, 16)第1段では、ランタニド、アクチニドおよびいくつかの他の FP が陽イオン交換樹脂カラムで吸着され、硝酸により選択的に溶離される。アクチニドおよびランタニドは第2段カラムで陽イオン交換クロマトグラフィにより分離される。⁽³⁰⁻³²⁾アクチニド-ランタニドの分離を行なうために、陽イオン交換クロマトグラフィに有機醋塩形成剤の水溶液（水酸化ナトリ

ウムあるいは水酸化アンモニウムで一部中和)を用いる。概念的フローシート研究によると、このイオン交換法については次の項目の開発が必要である。^(14, 16, 28)

- アクチニドを含んだ廃イオン交換樹脂を処分可能な形態に変換するプロセス
- クロマトグラフィ分離により発生する廃液の処理法あるいはリサイクル法。

1 6.4.3 沈殿法

遠隔操作で固体を取扱うことは通常避けねばならないが、沈殿法をイオン交換法あるいは溶媒抽出法との組み合わせで用いると廃液の α 分離に有利となる。修酸塩沈殿法により、高放射性廃液からPu, Am, Cm, およびランタニド系FPを粗濃縮する方法がEURATOM-Ispra⁽¹⁷⁾で研究されている。アクチニドは次のイオン交換あるいは溶媒抽出工程でランタニドから分離されよう。模擬高放射性廃液にトレーサレベルのPu, Am および Cm を用いた実験室規模研究で、Pu, Am および Cm について約 10^3 のDFが得られている。ORNLでは、ランタニドおよび3価のアクチニドの比較的純度の高い濃縮液を得る方法として、イオン交換法と組み合わせた修酸沈殿法の研究を現在行なっている。⁽¹⁶⁾ランタニドおよび3価のアクチニドの約95%が1段の沈殿で除去され、残存する未沈殿量は陽イオン交換カラムで除去される。トレーサレベルでの研究によると99.9%以上のAm-Cmが除去されている。ランタニドのキャリアを用いた多段修酸沈殿法でもほぼ完全なAm-Cmの除去が実証されている。⁽¹⁶⁾修酸沈殿法については、固体取扱いの問題を十分に評価し、これらの沈殿物の安定性に及ぼす放射線の影響を明確にするためにさらに研究開発が必要である。

1 6.4.4 現 状

高放射性廃液からアクチニドを分離することの本当の利益、技術的な可能性およびコストはまだ明らかにされていない。 α 分離が技術的に可能であり、プラスの利益により α 分離が正当化されたと仮定しても、総合的な高放射線レベル下でのパイロットプラントで完全な α 分離プロセスを開発し、実証するためには約15年を要するであろう。

16.4.4 Current Status

The net benefits, technical feasibility, and costs of partitioning actinides from high-level waste are yet to be established. Assuming that partitioning is feasible and that the net benefits justify its use, about 15 years will be required to develop and demonstrate a satisfactory partitioning process in an integrated, high-level radiation pilot plant.

REFERENCES

1. C. A. Rohrmann, "Values in Spent Fuel from Power Reactors, Isotopes and Radiation Technology, vol. 6, p. 19, Fall 1968.
2. G. P. Dix, "The Beneficial Utilization of Nuclear Waste Products," Waste Management 75, pp. 153-175, University of Arizona, July 1975.
3. H. D. Sivinski, "Reactor Waste Utilization in Sewage Sludge Treatment," Waste Management 75, pp. 82-99, University of Arizona, July 1975.
4. M. C. Reynolds, R. L. Hagengruber, and A. C. Zuppero, Thermoradiation Treatment of Sewage Sludge Using Reactor Waste Fission Products, SAND-74-001, Sandia Laboratories, Albuquerque, New Mexico, June 1974.
5. W. D. Bond and R. E. Leuze, Feasibility Studies of the Partitioning of Commercial High-Level Wastes Generated in Spent Nuclear Fuel Reprocessing: Annual Progress Report for FY-1974, ORNL-5012, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, January 1975.
6. Comparative Risk-Cost-Benefit Study of Alternative Sources of Electrical Energy, Appendix A: Energy Expenditures Associated with Electric Power Production by Nuclear and Fossil Fueled Power Plants, WASH-1224-A, December 1974.
7. Siting of Fuel Reprocessing Plants and Waste Management Facilities, ORNL-4451, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, July 1970.
8. J. J. Perona, J. O. Blomeke, R. L. Bradshaw, and J. T. Roberts, Evaluation of Ultimate Disposal Methods for Liquid and Solid Radioactive Wastes. V. Effects of Fission Product Removal on Costs of Waste Management, ORNL-3357, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, June 12, 1963.
9. V. Kourim and O. Vojtech, "Methods of Fission Product Separation from Liquid Radioactive Wastes," At. Energy Rev., vol. 12(2), pp. 215-273, June 1974.
10. G. Safonov, "A Nuclear Waste Steam Plant Concept," Waste Management 75, pp. 100-121, University of Arizona, July 1975.
11. J. W. Bartlett, L. A. Bray, L. L. Burger, R. E. Burns, and J. L. Ryan, Feasibility Evaluation and R&D for Transuranic Partitioning of High-Level Fuel Reprocessing Wastes, BNWL-1776, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, November 1973.
12. R. E. Burns, et al., Technical and Economic Feasibility of Partitioning Hanford Purex Process Acid Waste, BNWL-1907, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, May 1975.

13. H. C. Claiborne, Effect of Actinide Removal on the Long-Term Hazard of High-Level Waste, ORNL-TM-4724, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, January 1975.
14. W. D. Bond and R. E. Leuze, Feasibility Studies of the Partitioning of Commercial High-Level Wastes Generated in Spent Nuclear Fuel Reprocessing, ORNL-5012, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, January 1975.
15. Program for Improved Waste Management in Commercial Nuclear Fuel Reprocessing Facilities, (compiled and edited by the Staff of the Chemical Technology Division), ORNL-TM-4783, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, January 1975.
16. D. E. Ferguson, et al., Chemical Technology Division Annual Progress Report for Period Ending March 31, 1975, ORNL-5050, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, pp. 6-11, 30-31, October 1975.
17. Annual Report of Joint Research Center for 1973, EUR-5260-e, EURATOM, Ispra, Italy, 1974.
18. W. W. Schulz, Bidentate Organophosphorous Extraction of Americium and Plutonium from Hanford Reclamation Facility Waste, ARH-SA-203, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, September 1974.
19. W. W. Schulz and L. D. McIsaac, Removal of Actinides from Nuclear Fuel Reprocessing Waste Solutions with Bidentate Organophosphorous Extractants, ARH-SA-217, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, WA, August 1975.
20. L. D. McIsaac, J. D. Baker, and J. W. Tkachyk, Actinide Removal from ICPP Wastes, ICP-1080, Allied Chemical Corporation, Idaho Falls, ID, August 1975.
21. Reprocessing of Yankee Reactor Fuel at Nuclear Fuel Services, Inc., West Valley Facility (prepared by Fuels Reprocessing Branch, USAEC, Savannah River Operations Office), SRO-124, October 21, 1968.
22. W. W. Schulz and G. E. Benedict, Neptunium-237 Production and Recovery, AEC, Critical Review Series, USAEC Office of Information Services, 1972.
23. Aqueous Reprocessing of LMFBR Fuels - Technical Accessment and Experimental Program Definition (compiled and edited by the Staff of the Chemical Technology Division), ORNL-4436, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, June 1970.
24. J. M. McKibben, et al., Partitioning of Light Lanthanides from Actinides by Solvent Extraction with TBP, DP-1361, E. I. duPont deNemours and Company, Aiken, SC, August 1974.
25. B. Weaver and F. A. Kappelmann, "Preferential Extraction of Lanthanides or Trivalent Actinides by Monoacidic Organophosphonates from Carboxylic Acids and from Carboxylic and Aminopolyacetic Acids," J. Inorg. Nucl. Chem., vol. 30, pp. 263-272, 1968.
26. B. Weaver and F. A. Kappelmann, Talspeak: A New Method of Separating Americium and Curium from Lanthanides by Extraction from an Aqueous Solution of Aminopolyacetic Acid Complex with a Monoacidic Phosphate or Phosphonate, ORNL-3559, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, August 1964.

27. Z. Kolarik, G. Koch, H. H. Kuesel, and J. Fritsch, Separation of Americium and Curium from Highly Radioactive Waste Solution, KFK-1533, Karlsruhe, W. Germany, 1972.
28. E. J. Wheelwright, L. A. Bray, H. H. Van Tuyl, and H. T. Fullam, Flowsheet for Recovery of Curium from Power Reactor Fuel Reprocessing Plant Waste, BNWL-1831, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, May 1974.
29. G. L. Richardson, Americium Recovery by DBBP Solvent Extraction, BNWL-CC-1503, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, February 1968.
30. E. J. Wheelwright and F. P. Roberts, The Use of Alternating DTPA and NTA Cation-Exchange Flowsheets for the Simultaneous Recovery of and Purification of Pm, Am, and Cm, BNWL-1072, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, July 1968.
31. S. J. Beard and R. L. Moore, "Large Scale Recovery and Purification of Fission Products," Process Chemistry, vol. 4, C. E. Stevenson, E. A. Mason, and A. T. Gresky, editors, Pergamon, New York, 1969.
32. J. A. Kelley, Ion Exchange Process for Separating Americium and Curium from Irradiated Plutonium, DP-1308, E. I. duPont deNemours and Company, Aiken, SC, November 1972.

監 修 者

市 川 倫 夫	再処理建設所
小 泉 忠 義	(")
山 本 正 男	(")

翻 訳 者

(順 不 同)

岩 田 昇 (再)	武 田 啓 二 (再)
由 川 幸 次 (")	安 隆 己 (")
平 塚 法 男 (")	中 西 耕 之 (")
石 川 博 久 (")	竹 内 仁 (")
富 樫 昭 夫 (")	宮 尾 英 彦 (")
黒 瀬 泰 男 (")	中 田 啓 (安)
清 水 甫 (")	小 部 昭 (再)
清 水 準 (")	山 村 修 (")
加 来 義 行 (")	岩 永 雅 之 (")
小 山 兼 二 (")	
沢 田 稔 (")	
石 橋 祐 三 (")	
小 沢 正 基 (")	(再) : 再処理建設所
川 口 昭 夫 (")	
飯 村 勲 (")	(安) : 安全管理部
倉 田 英 男 (")	
渋 谷 淳 (")	
福 島 操 (")	