N 851-79-01

高レベル廃液固化プロセスの気体廃棄物処理法についての評価

（文献翻訳）

1979年3月

動力炉・核燃料開発事業団

東 海 事 業 所

PN 851-79-01
1979 年 3 月

高レベル廃液固化プロセスの気体廃棄物処理法についての評価（文献翻訳）

技術部廃棄物処理開発室
実施責任者　角 田 直 己
訳　　　者　佐々木 憲 明
大 場 正 昭
財 津 知 久

期　間　1978年12月 ～ 1979年3月

要　旨

これは，高レベル廃液を固化するプロセスから発生するオフガスの処理について，J．D．Christian と D．T． Pence がまとめた文献“Critical Assessment of Methods for Treating Airborne Effluents from High－Level Waste Solidification Processes”，PNL－2486 (1977) の全訳である。各国で開発されつつある固化プロセスが紹介され，それらで用いられているオフガス機器とその除染係数について実績と問題点が網羅されており，実際に固化プロセスのオフガス処理技術開発を担当する者にとってはもちろん，それ以外の関係者にも非常に有用であると考えられたのでここに訳出した次第である。

目　　次

FIGURES

TABLES

摘　要

核燃料再処理プラントから発生する高レベル放射性廃液の固化処理に対して開発されつつある高温プロセスのオフガス処理システムを調査した。各プロセスを簡単に説明し，各システムからの気体廃棄物の放出速度の予想値について詳細に解析した。いろいろのプロセスについて評価した放出速度は，現在のおよび予想される規制値と比較した。固化プロセスからのある種の気体廃棄物をよりよく理解し制御するためにさらに行うべき開発研究について多くの勧告を行った。

要　約

核燃料再処理プラントから発生する高レベル放射性廃液（ HLLW ）の固化に対して開発されつつある高温プロセスのオフガス処理システムを調査した。各プロセスの簡単な説明とそのオフガスシステムの詳細は第2章に示した。プロセスから発生する放射性気体廃棄物の除去に対する各システムの予想効率の詳細な解析は第3章に示した。すべてのプロセスに対し，見積りしたフィード対スタックDFの要約を3.12節に示した。

設計燃料燃焼度，炉から取り出し後 $1\,^{1}/_{2}$ 年冷却燃料，$6\,^{2}/_{3}$ MTHM／day の処理量，スタックからサイトの境界までの拡散係数X／Qが $1\times10^{-7}sec\,m^{-3}$ というような予想処理条件を使って，10CFR 20に表示されているような，非制御地域に対する大気中の各同位元素の最大許容濃度（MPCs）を，最近確立されたEPAスタンダード（40CFR 190）と比較した。

解析結果は，α崩壊する超ウラン元素のEPA放出制限により，Cm－244 の放出速度が 10CFR 20MPCsで許容される値より3000倍きびしい値に制限されることになることを示している。新しいEPA規制によると,Cm－244は，廃液固化処理プロセスの中でもっとも厳重に制御する必要がある放射性核種となる。α崩壊超ウラン元素に対する最大許容燃料サイクル放出制限値の10% が，廃液固化施設のスタックガスのエアーボーンになることが許されるとすると，粒子状のCm－244に対するフィード対スタックDFは 3×10^{9} 必要であろう。

揮発性および半揮発性同位元素の中で，Ru－106は最も厳しく制御されねばならない。揮発したルテニウムについてDF 7×10^{4} という評価値によると，代表的なサイトの境界において，空気中のRu－106濃度は10CFR 20 に示されているMPCの1／10 に限定されるであろう。ALARA の条文によればおそらくさらに厳密な制御が必要となろう。EPA にはRu－106に対する特別な放出制限値が制定されていない。

I－129に対するEPA 放出制限値は，10CFR 20 MPCに比べておよそ 2×10^{4} 倍厳しくなっている。全I－129の 0.1%がHLLW中に存在するならば，廃液固化処理装置からのヨウ素の全放出量は，全燃料サイクル中のI－129に対する全放出制限値の約 1／4 に達するであろう。

HLLW 固化装置からNOxの全量か $52\,m^{3}$／secの代表的なガス流量をもつ再処理施設のスタックに放出されると，サイトの境界での空気中のNOx濃度は約 0.5ppb になると評価されるが，この値は大気の性質に対するEPA基準より2桁低い。NOx の制御が必要かどうかはおそらく地域の規制に依存するであろう。

検討した各プロセスに対する全プロセスDFの評価値をTable 19にまとめて示した。1例を除いてすべて，DFはCm－244とRu－106 に対して必要と思われる値以上あり，フルスケールのHLLW 固化処理施設に対し十分な気体廃棄物の制御がおそらく可能であることを示している。処理システムの型および望ましい余剰設備は，必要な処理量,燃料のタイプや予想冷却年数，施設の位置，適用可能な流出物の規制などの多くの実際的な考察に依存する。この報告に入れた情報

は，いろいろの処理システムの設計における不確実さや限界を含め，ある特別な用途のための適当な処理システムを設計する上で役に立つだろう。

多くの結論や研究への勧告が調査から明らかになった。重要なものは次のとおりである。

HLLWを濃縮する際に使用される蒸発器は，蒸発器のオフガスが固化装置のオフガス処理システムのどこに入るかによってシステムの全DFに影響を及ぼす。蒸発器からのエアロゾルはおよそ0.005%，ルテニウムの揮発率は0.001～0.01%であろう。

最初の焼結金属フィルターに必要なブローバック周期は，フィルターエレメントの回りにおおいを置くことによって減少するだろう。最終的なろ過に用いられるHEPAフィルターは，事故条件下では微粉を放出する可能性がある。代用あるいはバックアップろ過用として，小孔径のSMFの適用性を決めるため研究することを推奨する。

Ru－106はそのアクティビティが高く，固化処理中にHLLWからの放出を制御することが困難なため，シリカゲルあるいは酸化鉄系物質のルテニウム吸着剤を，どのようなプロセスのオフガスシステムでも，ルテニウムの制御のために使用することを推奨する。触媒層を持つNOx変換器も，他の潜在的な揮発性物質や，揮発したルテニウムの除去に対して効果的な装置であろう。ただし，この装置の効率を確かめるための研究が必要である。

最大のDFを得ることができるように，ルテニウム吸着剤に対して，温度，空塔速度，滞留時間の最適操作条件に関する深い研究が必要である。シリカゲルは室温付近で使用するならば普通以上のDFを持つかもしれない。低温乾燥気流中での使用を研究すべきである。

固化処理中のルテニウムの揮発は一般的には供給廃液の脱硝により抑制できる。高温のセラミックメルターについてその効果を測定する必要がある。ワイプトフィルム蒸発器でのルテニウムの挙動は，その操作条件によりルテニウムの揮発が高まるかもしれないので，測定しなければならない。もし問題があれば，ギ酸を用いた脱硝によるルテニウムの抑制を研究すべきである。

プロセスにおけるルテニウムの揮発が高い場合には，オフガス配管を閉塞させる可能性がある。問題の場所へのルテニウムの沈着は，壁温度を250～350℃に維持し，負の温度勾配を避け，不活性ガスでオフガス中の酸素を希釈することによって最小になるであろう。

特定のプロセスにおけるルテニウムの経路を測定する一般的な必要性に加えて，他の長寿命で，揮発する可能性がある同位体の挙動も測定する必要がある。重要なものには，Se－79，Te－127m，Sbの同位体，および特にTc－99がある。

オフガス流出物処理システムの予想効率を改善するためには，システム内のほとんどのダウンストリーム位置，そこではある装置が用いられるであろうが，そこで予想される濃度や粒径の関数として，微粉や揮発した同位体の除去用の構成機器の効率を測定するために，一般的により広範な研究が必要である。流出物処理装置の組み合わせを含む，選択した総合システムについての測定も提案する。

全システムの性能試験に伴なう問題は，浄化したオフガス中に含まれる微量の物質をサンプリ

ングし測定する難かしさである。すすんだ方法や技術を開発するために基礎研究および開発研究が必要である。

要するに，十分な気体廃棄物処理設計により，いつでも微粉の完全な封じ込めと半揮発性核分裂生成物の合理的な制御とを確保しなければならない。そのようなシステムは操作の全範囲にわたって，および仮想事故条件下で満足に機能しなければならない。これらの必要事項を満足する設計は現在の技術で可能であると思われるが，性能の証明が，特に大きなパイロット規模で，明らかに必要である。

1. 緒　　言

実証段階に来ているかあるいは実証までに短期間（5年以内）の開発を要するLWR高レベル廃液（HLLW）固化の主なプロセスは，乾燥，仮焼およびガラス化から成り立っている。[1] 多くの場合，ガラス化は乾燥一仮焼施設に連結される。プロセスをTable 1に示す。

大抵の基本プロセスは複数の国あるいは研究室で開発されつつある。一般に，あるプロセスのために開発された方法や方式はサイトにより異なる。それらの大抵のものはTechnical Alternatives Document（TAD）[1] に記述されている。多くのプロセスに対し，オフガスシステムのルテニウム除去という観点からの調査は，Christian[2] が行っている。これらのプロセスでは，オフガスから微粉や揮発した核分裂生成物を除去するためのオフガス処理システムの開発や試験がいろいろな段階にある。それらの開発の程度はこの報告書で検討する。詳細設計の前に5年以上の開発を要する，たとえばメタルマトリックスプロセス，結晶化ガラスプロセス，焼結プロセス，および被覆ペレットプロセスのようなより進んだ技術のオフガス処理システムはここでは考察しない。これらのプロセスは，ほとんどの部分で，オフガスの清浄化に必要なものが言えるような所まで進歩していない。

調査したシステムは第2章に述べる。またプロセスのエアーボーン流出物を除去するためのオフガスシステムの予想性能を第3章に示す。調査から示唆された一般的な結論といくつかの推奨すべき開発研究を第4章と第5章で論じる。

TABLE 1

MAJOR SOLIDIFICATION PROCESSES

Process	Developing Countries and/or Laboratories[a]
Fluidized-Bed Calcination	USA: ICPP, PNL Eurochemic (LOTES Process)
Spray Calcination	USA: PNL Germany (VERA Process)
Pot Calcination or Vitrification	USA: PNL England (FINGAL/HARVEST Process) France (PIVER Process) Italy India
Phosphate Glass Formation	USA: PNL
Rotary Kiln Vitrification	France (AVM Process)
Drum Drier-Pot Vitrification	Germany (FIPS Process)
Continuous Ceramic Melter	USA: PNL Denmark France
Wiped Film Evaporator[b]	USA: PNL

[a]ICPP = Idaho Chemical Processing Plant

PNL = Battelle Pacific Northwest Laboratories

[b]Coupled with vitrifier or pot calciner

2. 高レベル放射性廃液固化プロセスにおける オフガス処理技術の調査

この章では．主なプロセスに使用されてきた総合オフガス処理システムの調査と簡単な説明を行う。さらに，広く試験されてきた各構成機器について，特に揮発したルテニウムの除去に使われる物質について述べる。

主なプロセスについては一つ一つ考察する。複数の国あるいは複数の研究室が特定のプロセスを開発している場合には，それらのすべてについてオフガスシステムをまとめて述べる。

どのプロセスでも，供給された廃液が加熱，乾燥，仮焼あるいはガラス化されるので，水蒸気とNOx が発生し，これらはどのオフガス処理システムにも負荷となる。ガス流中の他の主成分は微粉，エアロゾル，空気，酸素，揮発ルテニウム，揮発セシウムであり，場合によってはケロシン燃焼生成物を含む。他の半揮発性物質，例えばテクネチウムのようなものがどの程度生成されるのかはわかっていない。廃液中の残留ヨウ素は蒸発するであろう。

2.1 流動床仮焼

このプロセスは，400～800 ℃ の温度範囲で行なわれており，オフガスに同伴するかなり多量の微粉とある程度の揮発ルテニウムを生じる。またこのプロセスは，必要量の流動化空気，噴霧空気，燃焼生成物などにより，オフガス量が大きくなることが特徴である。従って，オフガス処理システムは，大ガス流量を処理することができ，効果的に多量の微粉や揮発ルテニウムを除去できなければならない。

微粉や揮発性ルテニウムの発生量は，操作条件に依存する。また，ある程度は供給廃液の組成や濃度に依存する。このプロセスは Idaho Chemical Processing Plant （ICPP）とBattelle Pacific Northwest Laboratories (PNL) とで全く異なる方向で開発された。ユーロケミックは流動床を機械的に攪拌するようなプロセスを開発中である。このようにすると流動化ガスの必要量が少なくなる。

2.1.1 ICPPの流動床プロセス

このプロセスは最初はArgonne National Laboratory (ANL)[3] と ICPP で開発され，さらに ICPP でプラント規模で試験された。[4] プラント (Waste Calcining Facility , WCF) が，放射性の軍事廃液を固化するために，1963年以来使用され，施設の使用経験が報告されてきた。[5-9] 現在，より大きな処理能力を持ち，今処理しつつあるフッ化物系廃液に耐蝕性を持つ材料で作られる New Waste Calcining Facility (NWCF) が建設中である。

ANL の実験施設で使用された仮焼炉およびオフガス処理システムを Figure 1に示す。最初の

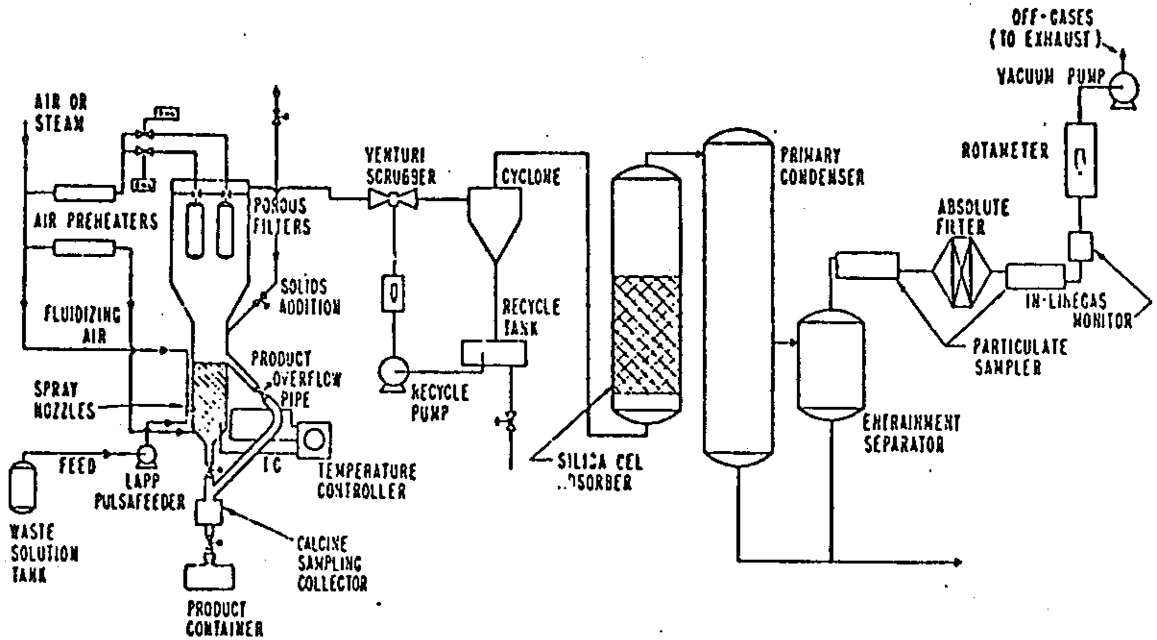


Figure 1. ANL Experimental Fluidized-Bed Calcining Facility.

微粉除去は仮焼炉上部の分離部にある焼結金属フィルターで行われた。それ以上の微粉除去とある程度の揮発ルテニウムの除去はオフガスラインで焼結金属フィルターの後に置かれたベンチュリースクラバーで行われた。ベンチュリースクラバーの後にはサイクロンが置かれ，水分，エアロゾルが除去された。それからガスはシリカゲルの層を通過し，揮発ルテニウムが吸着された。シリカゲル層の後，ガスはコンデンサーを通過した。非凝縮性のガスは同伴物を除くためのスレンレススチールトラップ，水分を除去するための遠心分離装置，そして最後にHEPAフィルターを通過した。

WCFオフガス処理システムは，乾式－湿式システムが組み合わさったもので，だんだんとより小さくなる粒子用に設計された一連の単位操作より構成されている。Figure2 に示す。仮焼容器の最上部には，粒子を逸らすためのバッフルがある。飛び出した微粉は仮焼炉出口にあるサイクロン微粉分離器によって一部除去される。それから，オフガスはスプレー急冷塔で冷却され，ベンチュリースクラバーを通過する。ベンチュリースクラバーでは揮発ルテニウムの一部とともに，残りの粒子の大部分が除去される。洗浄液は HNO_3 4 M に維持され，捕集した固体をほとんど溶解し，全廃液供給速度の平均15％の割合でリサイクルされる。リサイクルに使用される洗浄液の水の大部分は，凝縮速度とリサイクル速度がおよそ等しいように洗浄液の温度を制御することによって，オフガス中から凝縮される。

スクラビングシステムの最後には，オフガスから洗浄水を分離するためのスクラバー分離容器があり，その後にミストとエアロゾルを除去するためのサイクロンが設置されている。このあとオフガスは，高さ 1.2m の並列に置かれたシリカゲル層を0.12 m/sec の速度で通過する。オフガスは揮発ルテニウムを効率よく除去するように，デミスターサイクロンとシリカゲル層の間で露点よりも5～10℃高い温度に加熱される。シリカゲル吸着層の後には，シリカゲル層から入り込む水分や微粉を除去するためにサイクロンが置かれている。最後に，ガスは水分の凝縮を防ぐために加熱された後，並列に置かれた粗フィルターと HEPA フィルターを通過する。

NWCF のオフガス処理システムは，事実上，WCF で使用されたものと同じであろうが，個々の装置で精巧になったり改良されたものがある。WCFと同様に，ケロシン内部燃焼加熱，空気による流動化が用いられるであろう。主な変更点は次のとおりである。飛び出しを最小限にするため，直径1.5 m（5 ft）の流動部の上に，セルのディメンジョン（約2～3 m）から許される限りの高さを持つ直径2.1 m（7 ft）の拡大した分離部が設けられるであろう。分離部の最上部には，2重のすだれ状のバッフルが置かれるであろう。ベンチュリースクラバーのあと，オフガスは遠心分離装置とその後に置かれるコンデンサーを通過するだろう。コンデンサーでは，若干のミクロン以下の微粒子とともに，揮発性ルテニウム化合物が一部除去されるであろう。コンデンサーからのオフガスは，2段の金属線メッシュフィルター上にミストを捕集するミスト除去装置を通過するだろう。

WCFとNWCF では，NOx あるいはヨウ素除去に対する設備はないが，これは施設での

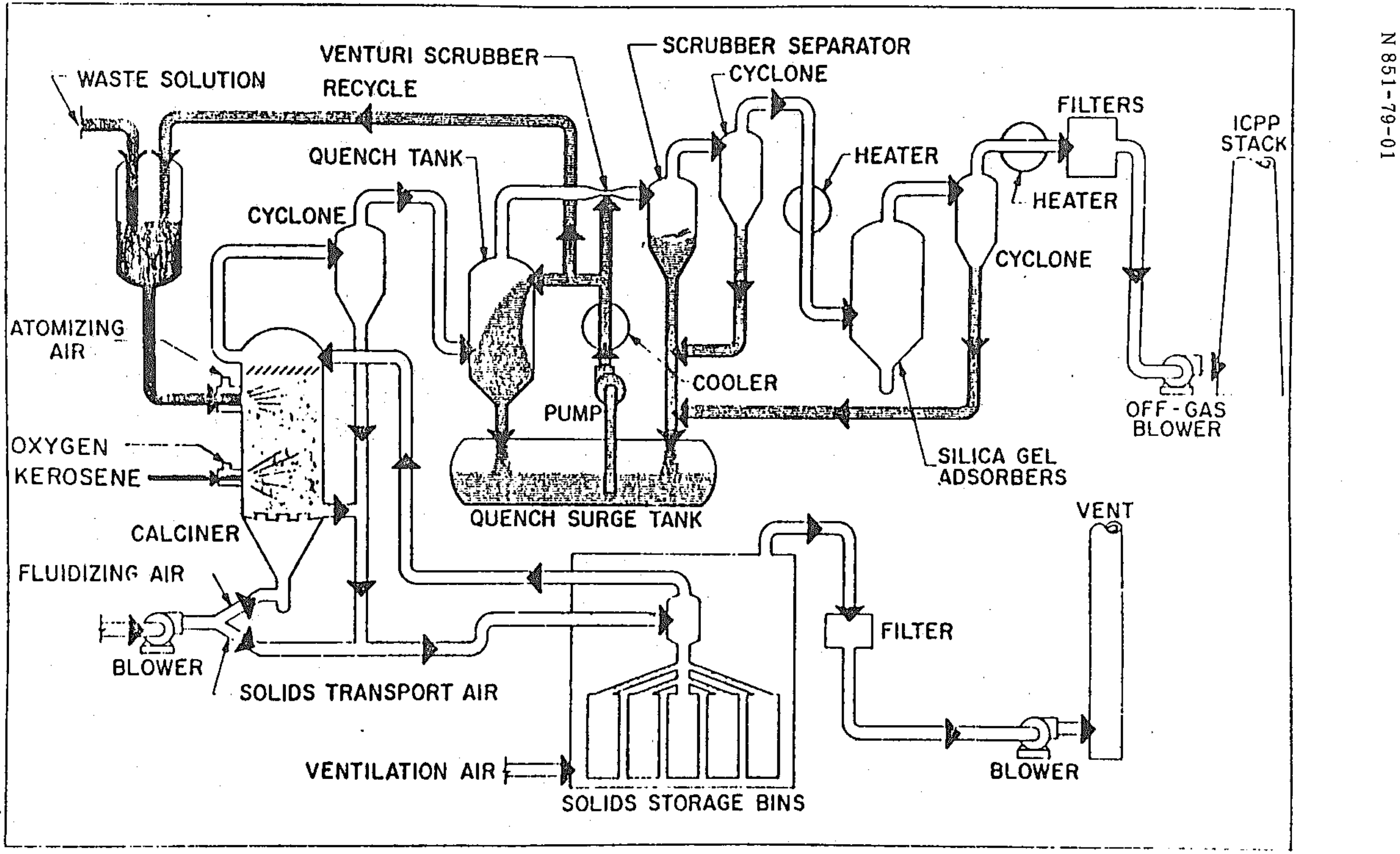


Figure 2. Flowsheet of the ICPP Waste Calcining Facility Using In-bed Combustion for Heating.

NOx 除去の必要性がないことと，固化される軍事廃液中のI^{129}のレベルが低いからである。

2.1.2 PNLの流動床プロセス

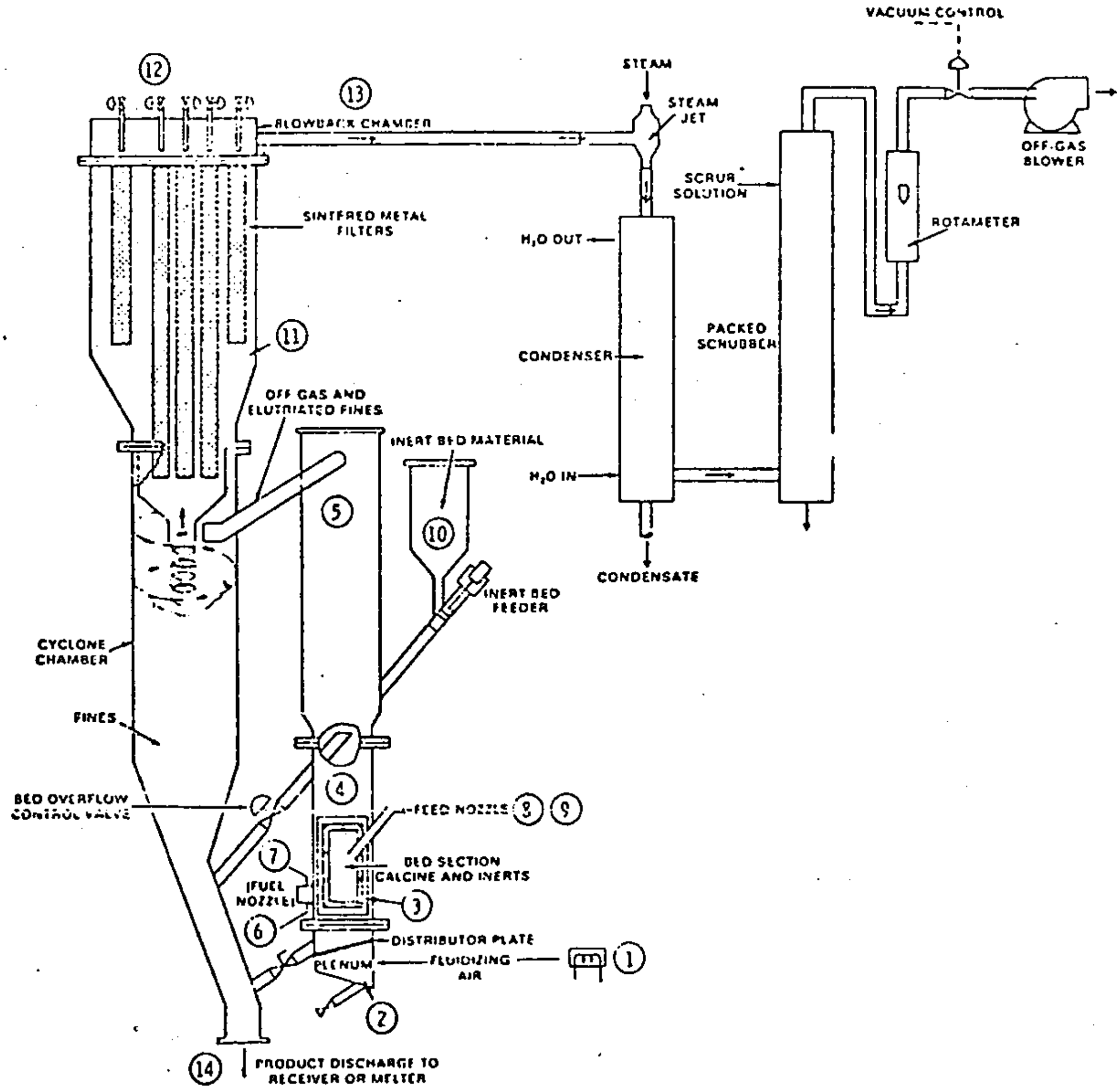
この流動床仮焼炉はPNLによって設置され，Waste Fixation Program（WFP）の一部として，1974年の後半に運転が開始された。模擬HLLWの仮焼を研究するために使用されている。[12,13] そのプロセスは，通常の流動床仮焼法が大巾に修正されたものである。仮焼炉の略図をFigure 3に示す。このプロセスは，Continuous Inert − bed Process（CIB）と呼ばれており，不活性物質（SiO_2）が初期媒体として使用され，生成物がシリカの一部と一緒に抜き出されるとともに連続的に加えられる。操作条件は，仮焼体の大部分が微粉として生成し，流動床から飛び出すということである。これにより，流動床内の核分裂生成物の滞留量が低く維持される。仮焼炉から取り出された仮焼体とシリカは下のメルターの中でガラスになる。ICPPの仮焼炉と同じように，流動床はケロシンの炉内燃焼により加熱される。

PNL流動床仮焼炉はガラスフリットとの溶融を容易にするため，多量の微粉を作り出すように設計されている。これが望ましい生成物の形態なので，微粉はオフガスラインの中では湿式スクラビング−溶解システムを使用するよりもむしろフィルターを使って抑えられる。オフガス処理システムは，仮焼炉からガスが出た後，サイクロン分離器で始まる。これで微粉の一部が除去され受器に入る。サイクロン出口の上には，公称径65μmの焼結金属フィルター（SMF）がある。最初に微粉でコーティングされた後，実効孔径は約3 μmにまで減少する。

ガラスを製造するためメルターを運転する間，かなりの（＞1％）ルテニウムが揮発するであろう。実験室での研究を行ってこの問題の大きさを決める必要がある。メルターからのオフガスは仮焼炉のオフガスと一緒に出る。実験研究用として，SMFより後のオフガス処理システムはコンデンサー，充てん塔スクラバーより構成されている。ブロワーの後で，ガスは建屋の換気用空気と混合され，ろ過される。実プロセスの施設ではスクラバーの後にHEPAフィルターが組み込まれることが考えられるだろう。実験で，SMFとコンデンサーの間にHEPAフィルターが置かれたこともあったが，これは分析用試料の採集のためだけであり，プロセス上の目的ではなかった。

2.1.3 ユーロケミックのLOTESプロセス

ベルギー当局は，ユーロケミック（European Company for the Chemical Processing of Irradiated Fuels）に対して，ベルギーにおけるユーロケミックの実証プラントで，HLLWを貯蔵のための安全な形にするよう要請した。しかし，ベルギー当局は最終貯蔵の受入れ基準をまだ決めていない。したがって，ユーロケミックは，将来，最終貯蔵に対して設定されるであろう受入れ基準で指定されたならば形態の変更ができるように，固化廃棄物として粒状仮焼体あるいはガラスの形態を選択した。ユーロケミックは，廃液を固化するのに流動床プロセスを選択し



Fluidized-Bed Calciner Material Balance

	① FLUIDIZING AIR	② PLENUM	③ LOWER BED	④ UPPER BED	⑤ DISENGAGING SPACE	⑥ FUEL	⑦ FUEL ATOMIZING GASES	⑧ FEED	⑨ ATOMIZING AIR	⑩ INERT BED MATERIAL	⑪ FILTER VESSEL	⑫ BLOW BACK AIR	⑬ FILTERED OFF-GAS	⑭ CALCINE PRODUCED
TEMPERATURE °C	20	300	550	550	425	24	73	25	20		300	100	350	
PRESSURE psig	50	0.2	-0.2	-0.3	-0.4	50	80	5	40		-0.43	80	-0.9	
LIQUID RATE ℓ/hr						4.5		25						
GAS RATE scfm	6.0		6.0				4.4		4.5				37	
GAS RATE acfm	1.46						0.74		0.65				91	—
VELOCITY ft/sec			1.0	6.0	3.0									
SOLIDS RATE kg/hr										1.11				4.41

Figure 3. PNL Fluidized-Bed Calciner and Off-Gas System

た。[14]微粉が飛び出すのを最小限にするため，流動床は機械的に撹拌される。このような方法により，流動化ガスの流量は撹拌がない場合に比べて1/10以下に減少でき，その結果微粉の飛び出し量も 1/2 以下になる。同時に大きな仮焼体が生成される。

撹拌流動床のもう一つの用途は，廃液をアルミノーリン酸塩ガラスの粒状マトリックスに450℃で製造することである。このプロセスはLOTES （for Low Temperature Solidification）と呼ばれており，Figure 4 に示した。オフガス処理システムの主要な部分はICPP システムと同様である。相違点は，サイクロンで捕集された微粉が仮焼体生成物と混合されないで，ベンチュリースクラバーで洗い落されたものと一緒に溶解され，仮焼炉にリサイクルされることである。ガスはスクラビング以前には冷却されない。

ベンチュリースクラバーのサイクロンデミスターの後で，水がオフガスから凝縮され，その後オフガスはもう1つのデミスターを通過する。特別なルテニウム吸着剤はオフガスの流れには置かれていない。オフガスの最終処理はHEPA フィルターによって行われる。

2.2 スプレー仮焼

スプレー仮焼は元来，硝酸ウラニルをUO_3に分解するためにオークリッジで開発された。[15]その仕事を基にして，PNLは，Waste Solidification Engineering Prototype（WSEP）プログラムの中でこのプロセスをHLLWの仮焼に適用し，現在WFP の中でさらにこのプロセスを開発している。ドイツもLWRのHLLWの固化にスプレー仮焼炉を開発している （VERAプロセス）。

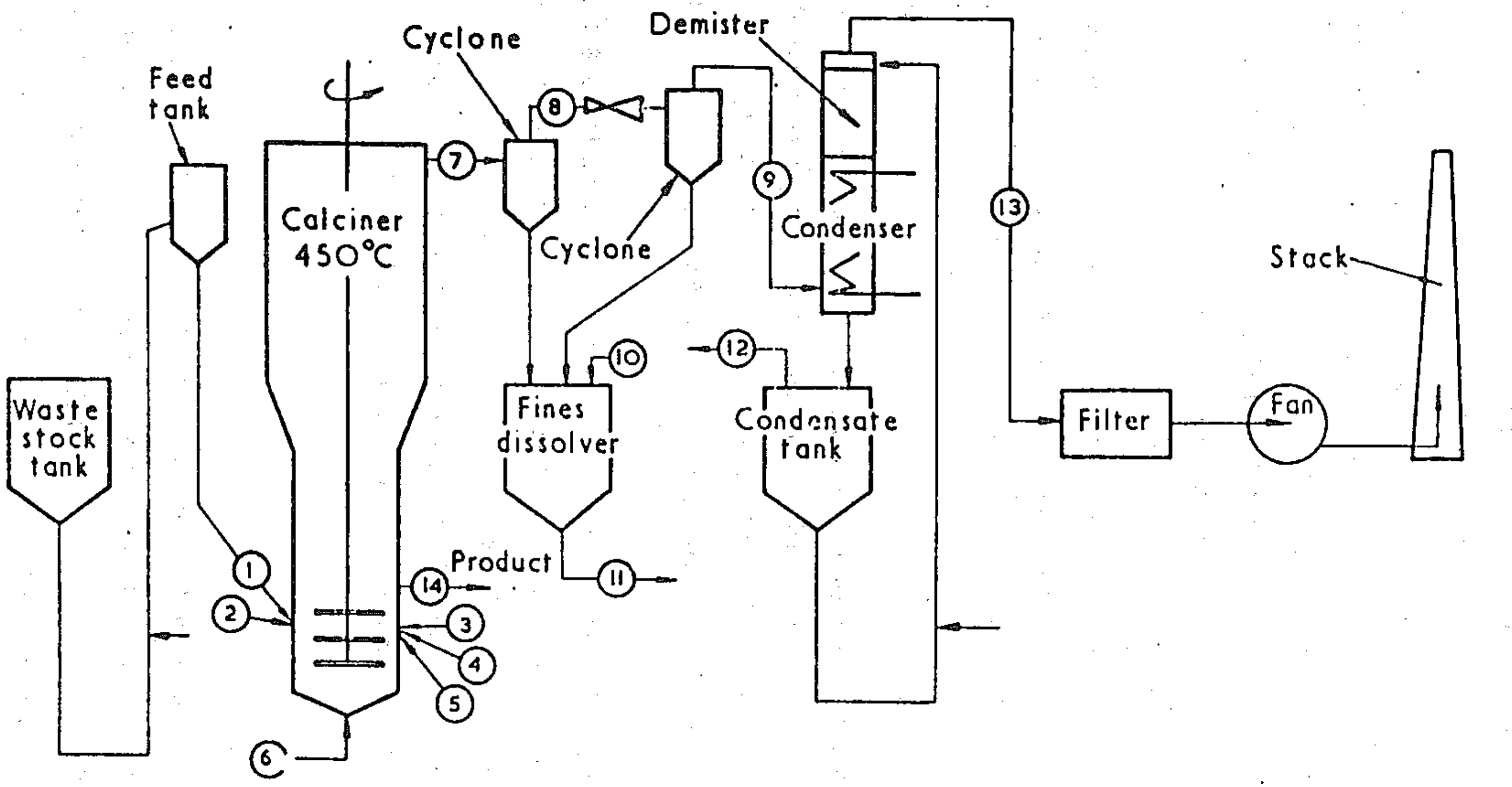
スプレー仮焼炉の生成物は粉末である。どのプロセスでも，ガラスフリットが供給廃液または生成物に加えられ，仮焼炉の下の連続メルターあるいはポケット内でガラスが形成される。ガラス溶融プロセスから発生するオフガスは仮焼炉のオフガスと一緒になる。

全オフガス流量は流動床プロセスにより少ないが，噴霧空気がかなりの量になる。流動床仮焼炉と同時に，ルテニウムの揮発率は運転モードに依存し，0.01％以下から 75％ まで変動し得る。

2.2.1 PNLのスプレー仮焼プロセス

PNLでの商用硝酸塩廃液の廃液固化実証計画では，2つのプロセスがスプレー仮焼方法に対して開発された。[16,17] 標準のプロセスでは，正リン酸が供給廃液に添加され（1.3～1.8<u>M</u>），スプレー仮焼生成物は仮焼炉の下にあるメルターでリン酸塩と一緒に連続的に溶融された。仮焼炉の壁温は外部抵抗加熱炉で700～720℃に維持され，一方メルター加熱炉は1050～1100℃に保持された。ピューレックス廃液に添加物が加えられ，実際のLWRとLMFBR再処理廃液に模擬された。このプロセスでは，ルテニウムの揮発率は非常に高く，35－75％であった。

もう一つの運転モードは，ポット内溶融法と呼ばれ，最終的には推奨プロセスとして採用され



For materials, compositions and flows see attached table.

Figure 4. The LOTES Process.

The LOTES process (see Figure 4) materials, compositions and flows for cold testing at pilot scale

Stream No	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
Stream	Feed	Feed atom. air	Kerosene	Keros. atom. air	Shroud air	Fluidiz. air	Calciner off-gas	Cyclone off-gas	Venturi scrub off-gas	Fines diss. make-up	Fines re-cycle	Condensate	Condenser off-gas	Product
Flow rate[a]	5	0·04	0·5	0·015	0·08	0·05	0·27	0·29	0·29	0·5	0·5	3·75	0·21	1·15 kg/h
Temp. °C	25	25	25	25	25	350	350	150	120	25	50	40	40	400
HNO_3 M	1·7									12	8			
H_3BO_4 M	2·1													
Al	1·4M						<60 g/h fines	<5 g/h fines			~0·7M			1·15 kg/h prod.
Sr mg/l	20													
Cs mg/l	33													
Ru mg/l	31													
Mg mg/l	341													
N_2 % vol							52						71	
O_2 % vol							12·5						17	
CO_2 % vol							3·5						4·8	
H_2O							32						7·2	

[a] Liquid streams are in l/h; gaseous streams in standard cubic meters/minute.

た。このプロセスでは，仮焼物は直接，受け入れポット内でガラスに溶融された。供給廃液にはリン酸塩は添加されず，ガラス形成剤としてフリット（ホウケイ酸塩あるいはNa_3PO_3）が仮焼体と一緒に溶融ポット内に直接加えられた。ポットが950℃ で操作された場合，スプレー仮焼および溶融中に揮発したルテニウムの全量は0.5～2％であった。

セシウムとテルルがスプレー仮焼炉から注目されたその他の唯一の揮発性核分裂生成物であり，それぞれ0.002～0.3％，1％の揮発率であった。

2つのプロセスの変更点を描いた仮焼炉の図がFigure 5 に示されている。オフガスが仮焼炉から出るので，ほとんどの微粉を閉じ込めるために焼結金属フィルターが使われた。

焼結金属フィルターの下流には，WSEP計画のために開発された3つのプロセス（スプレー仮焼，ポット仮焼，リン酸塩ガラス）ともすべて補助プロセスシステム（APS）と呼ばれる同じオフガス処理システムが利用された。固化装置に接続されたシステムの略図をFigure 6 に示す。このシステムでは硝酸は回収され，廃棄物はガスがスタックから放出される前に除去された。

WSEP 補助システムでは，固化処理システムから発生した蒸気は，オフガスの最初の除染のために凝縮され，生じた凝縮水は蒸発器で再蒸発された（ある場合には固化装置への供給廃液を濃縮する一方で）。蒸発器から発生した水蒸気は，蒸発器コンデンサーに排気されるまえに，衝突板，バブルキャップ，ミスト除去器により，蒸発塔の中でエアロゾルが除かれて除染される。蒸発器の凝縮水は酸分留器に導かれ，そこで硝酸が回収された。分留器から発生した水蒸気は再び凝縮され，分留器の蒸留液の80％が脱硝酸水として蒸発器にリサイクルされた。残りの20％は中レベル廃液として捕集された。非凝縮ガスは高効率のろ過，アルカリスクラビング，大気へ放出する前の再度のろ過により処理された。Figure 6 に示されているように，HEPA フィルターが後半の数ランとポット内仮焼ランで，固化装置のコンデンサーの後に使用された（2.3.1項参照）。

固化装置のコンデンサーの代わりにクエンチスクラバーが用いられること以外は，同じようなオフガス処理システムがWFP スプレー仮焼炉（ポット内ガラス溶融を利用）のホットでの実証に使われるであろう。

2.2.2 ドイツのVERA プロセス

このプロセスは模擬LWR HLLWを使って開発されてきた。[18,19] スプレー仮焼炉は，仮焼炉内に650℃ の過熱水蒸気を導入することによって420℃ に加熱される。水蒸気は供給廃液を噴霧するためにも使用されている。HLLWは，仮焼／ガラス化の間にルテニウムの揮発を抑制するため，ギ酸との反応により脱硝される。開発研究の初期には，脱硝は仮焼炉に廃液が供給される前にバッチ式で行なわれた。HLLWが還流下のギ酸に添加される場合，主な窒素含有気体生成物はN_2O であった。水蒸気を除いて，これとCO_2がVERA プロセスから発生するオフガスの約95％を占めた。バッチ式の脱硝では，アルカリやアルカリ土類金属の硝酸塩が分解さ

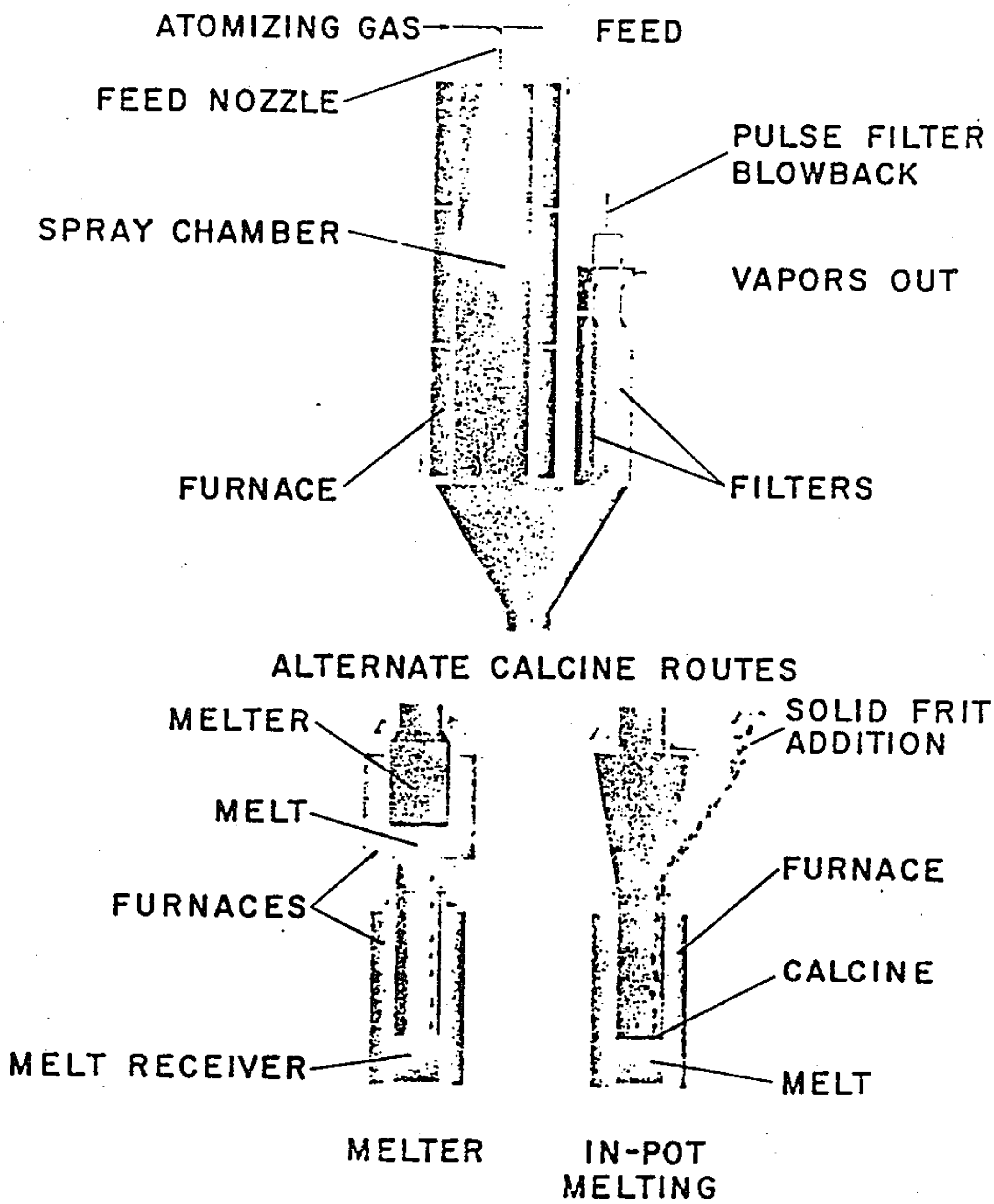


Figure 5. PNL WSEP Spray Solidification Processes.

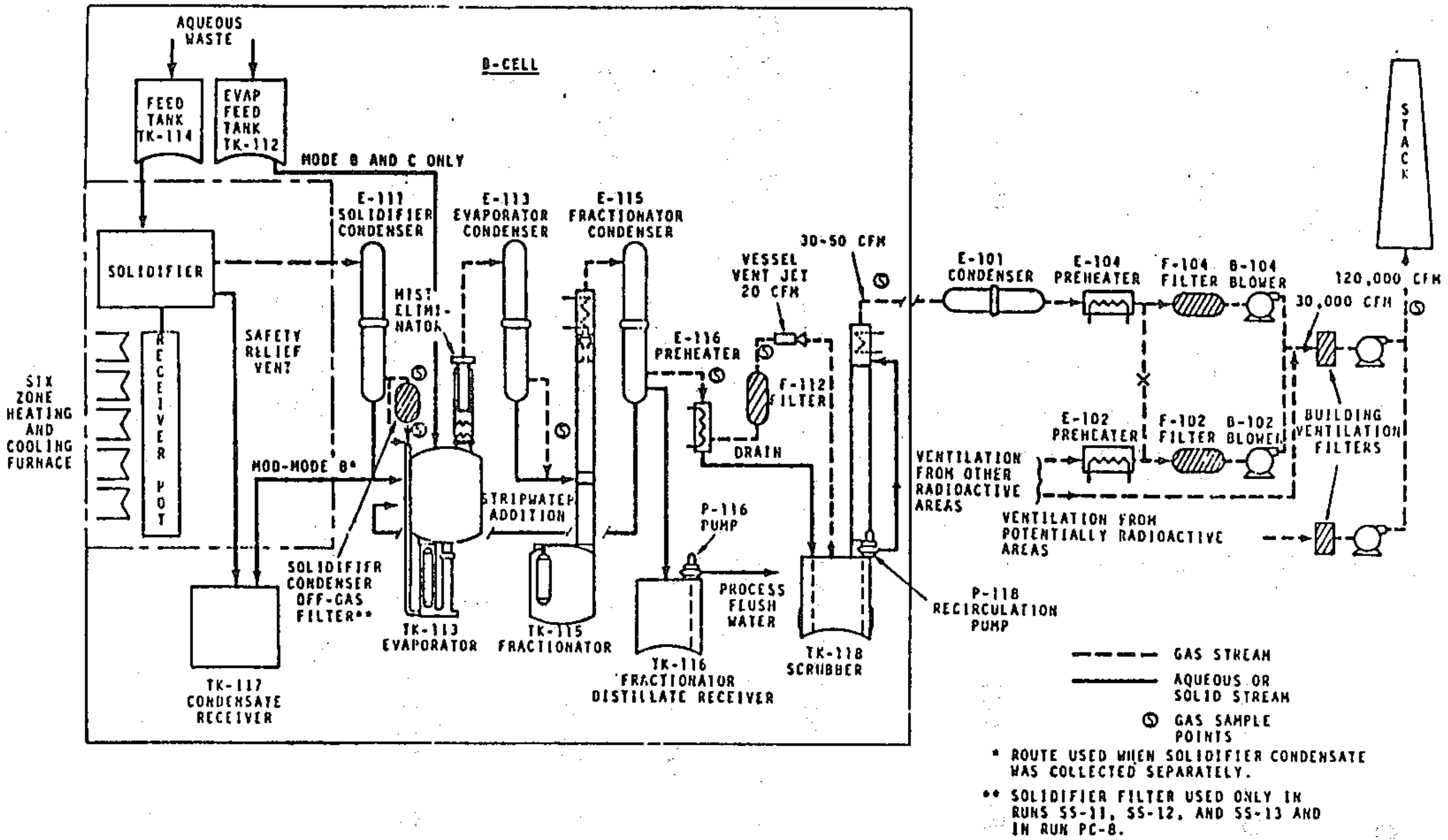


Figure 6. WSEP Auxiliary Process System.

れなかった。最近の開発研究では，HLLWとギ酸をフィードノズル内で混合して，脱硝を仮焼炉内で行っている。420 ℃ の仮焼炉温度では，主な生成ガスは CO_2 と N_2 である。さらに，アルカリおよびアルカリ土類金属の硝酸塩がより完全に分解し，高温解離による NO_2 の生成が少なくなっている。

最初のオフガス浄化装置は，仮焼体を止めるための公称孔径 35 μm の焼結ステンレススチールフィルターである。最初これは，仮焼炉と分離された，メルターや受器の上に置かれた容器内に設けられた。最近開発されたより進んだ方法では，金属フィルターは仮焼炉内に組み込まれている。改良VERA プロセスには次のような改善点がある；つまり，仮焼炉内でのギ酸による脱硝，組み込みフィルターシステム，過熱器と仮焼炉への凝縮した水蒸気のリサイクルである。オフガス処理システムも含めたフローシートを Figure 7 に示す。

そのプロセスは半連続メルターを使用しており，その中に仮焼体とガラスフリットが受け入れられる。"Celite" と呼ばれる主に SiO_2 から成るフリットの1部が，仮焼体の粘着性を少なくするためにHLLWに加えられる。溶融ガラスを受け入れ容器に入れるためフリーズバルブが開かれ，その中でガラスが徐冷密封される。

焼結金属フィルターを出た後，水蒸気は凝縮によりオフガスから除去される。残ったオフガスは主に N_2 と CO_2 で，これはベッセルオフガスと混合されてから換気システムに排気する前にコンデンサー．スクラバー，最終コンデンサーを通される。汚染したオフガスから分離された凝縮水蒸気は蒸発，650 ℃ への再加熱を経て仮焼炉にリサイクルされる。プロセス水蒸気を完全に凝縮・リサイクルすると，リサイクルされた水蒸気の放射能レベルが数桁減少し，新しいプロセス水蒸気によるトリチウムの希釈がさけられるという利点がある。これは，トリチウムを貯蔵することが決定されれば有利になるであろう。

硝酸塩は仮焼温度でルテニウムの揮発を高めることが知られている。[2] VERA プロセスでは，供給廃液は脱硝されるので，ルテニウムの揮発は 0.01％以下である。オフガスから揮発ルテニウムを除去するための特別な装置は組み込まれていない。

2.3 ポット仮焼

ポット仮焼プロセスは，元来オークリッヂ国立研究所において非放射性模擬廃液を使って開発されたが，[20〜23] バッテルノースウエストでは放射性廃液を使って試験が行われた。[24, 25] それは，廃液を単に蒸発して固体を過度に沈殿させないでできるだけ減容したあと，別のポット内で約 900 ℃ で完全に乾燥と仮焼を行うことから成り立っている。950 ℃ で同じ容器内で行なわれる，ライジイングレベルガラスプロセスと呼ばれる別法では，ガラス形成剤を含有した濃縮廃液が連続的にポットに加えられ，液体が最上部で蒸発する。仮焼は中間部で起り，上昇するガラスのたまりが底から形成される。これは，現在は Harvest [14, 30] と呼ばれている，イギリスの Fingal プロセス[26-29] と同じものである。Harvest では環状の容器を使用している。

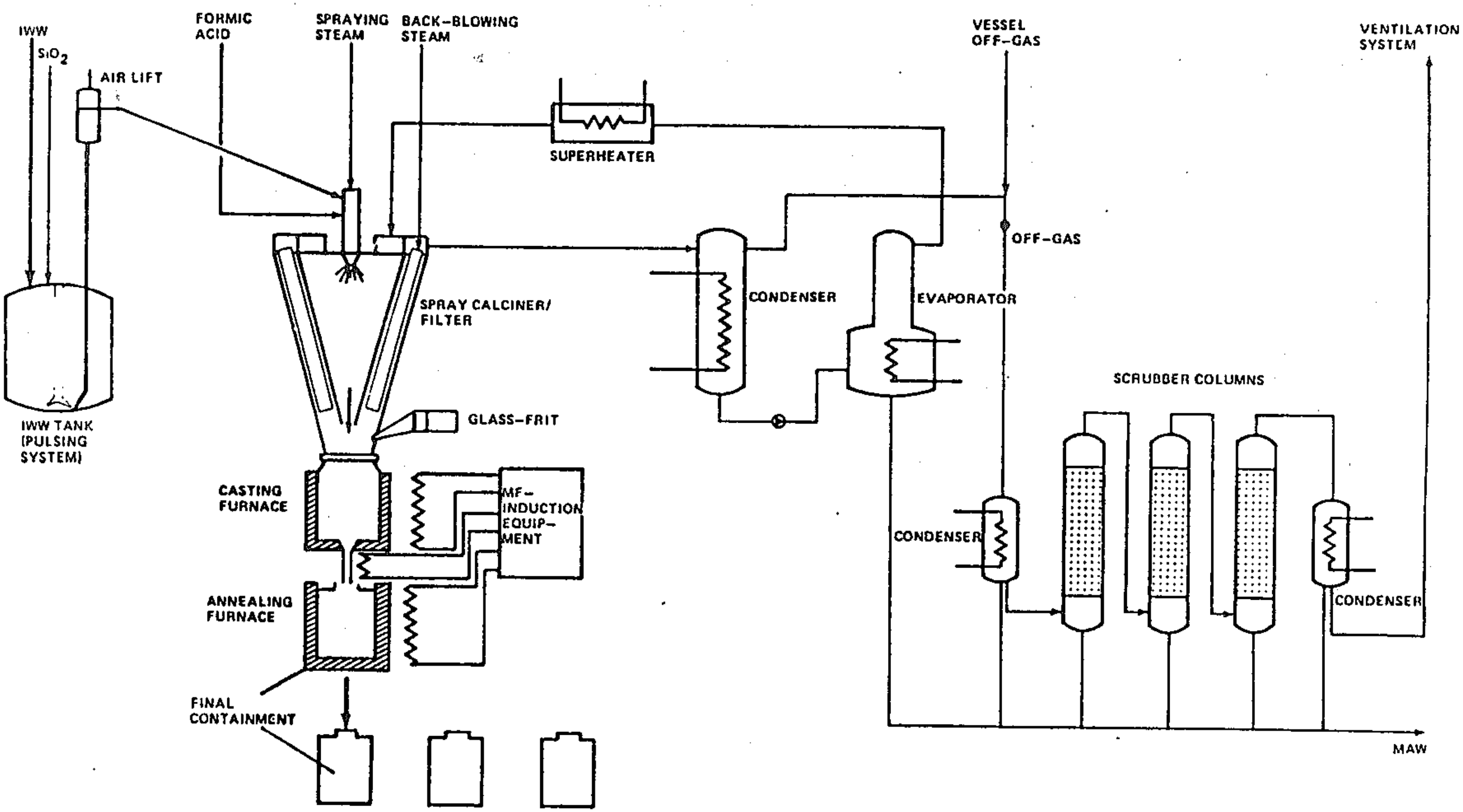


Figure 7. Simplified Flowsheet of the VERA Mock Up.

N 851-79-01

イタリアでもポット仮焼／ガラス溶融プロセスを開発しており，[31, 32] またフランスのＰＩＶＥＲガラス化プロセス[33, 34]ではポット仮焼炉／ガラス溶融炉を使用している。

ポットプロセスには，一般的に，オフガス中に飛び出す固体の量が少なく（＜1％），ポットからのルテニウムの揮発率が高い（＞10％）という特徴がある。噴霧空気あるいは流動化ガスが不必要なので，全オフガス流量は比較的少ない。

2.3.1　ＰＮＬのポット仮焼プロセス

このプロセス[24, 25]は，WSEPプログラムの一部として開発されたが，オークリッヂにおける初期の研究に基づいていた。仮焼中には，全ルテニウムの約10％が揮発し，一般に非揮発性固体の1％以下がオフガス中に飛び出した。セシウムは揮発するようには見えなかった。低硫酸塩廃液では揮発するルテニウムの量が少なくなることが観察された。

また，（全供給量の約25％が供給される以前に)ポット壁に初期にスケーリングが起るとルテニウムの発生量は少なかった。

ライジングレベルガラス化中には，ルテニウムの揮発率は15％で，セシウムは0.6％程度揮発した。（オフガス中に同伴した全Cs は微粉も含めて1％であった）。ポット凝縮水中の ^{144}CePr[a]を基にすると，飛び出した量は0.38％であったが，その他の観察が示すところでは（ポットのスロートの部分的閉塞や固化装置のコンデンサーの後方にあるアブソリュートフィルターの初期の閉塞を含め），さらに高い飛び出し量であった。

仮焼炉から出たオフガスは，ＷＳＥＰ　ＡＰＳの前段で，仮焼炉の後のコンデンサー中に酸の蒸気を凝縮させ，また窒素酸化物を吸収させてまず除染された（Figure 6 と 2.2.1 項参照）。固体の含有量が低いので，第1段の処理に焼結金属フィルターは使用されなかった。しかしこのため，ＷＳＥＰ 補助オフガス処理システムに入るオフガスの固体の負荷が若干大きくなり，固化装置のコンデンサーの後にＨＥＰＡフィルターが用いられた。

仮焼炉コンデンサーの凝縮水には揮発したルテニウムの99％以上が含まれ，蒸発器にもどされた。

特別な自己浄化オフガスラインがポット仮焼プロセスで使用された。ポットから沸騰した液体の約10～20％が絶えず垂直オフガスラインに還流され，飛び出した仮焼体を洗い落とした（詳細は Figure 8 参照）。還流液はポットにもどらないで蒸発器に入れられ，そこでプロセスコンデンサーからのポット凝縮液の残りと一緒になり，酸分留器で蒸留された。

ポットプロセスは実証され商業利用に応じられるところまで開発されているが，処理量に限界があるため，現在アメリカでは魅力的なプロセスとは考えられていない。

---

a)　^{144}CePr は ^{144}Ce とその短寿命娘核種である ^{144}Pr との平衡を表わす。

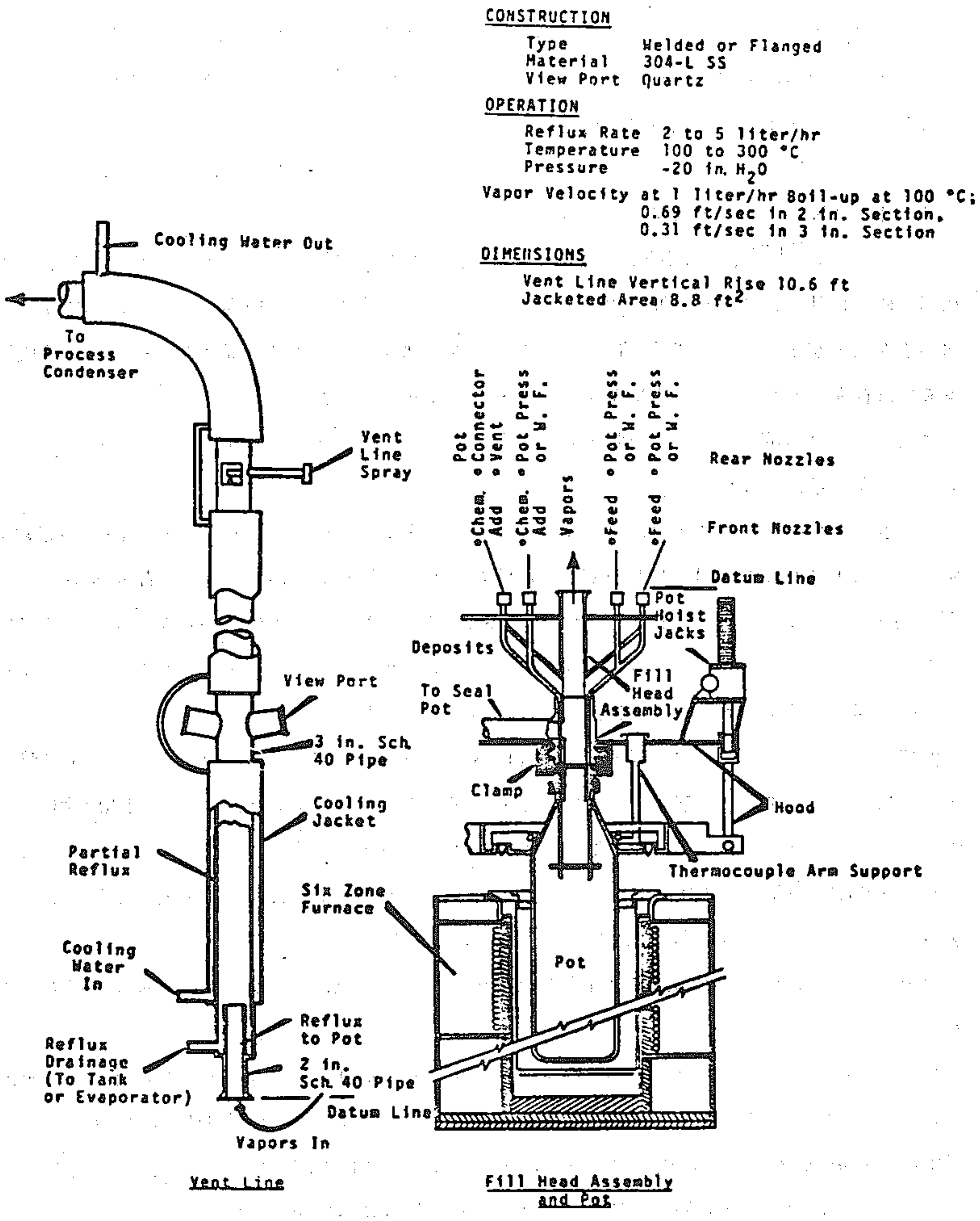


Figure 8. Pot Solidifier Self-Cleaning Vent Line and Fill Head.

ＰＮＬで開発されたポットプロセスとそれに付随したオフガス処理システムはインドに設置されている[35]。

2.3.2　イギリスのFINGAL／HARVESTプロセス

FINGALライジングレベルガラスプロセスは，Harwellにおいて1959年から1969年にかけ，非放射性廃液で十分に開発され，放射性廃液で実験された[26〜29]。そのプロセスに関する実験を基にして，設計および運転の考え方について幾つかの変更点が1972年に提案され,HARVESTと呼ばれる改良プロセスが設計されて，非放射性実験用のパイロット規模の施設がHarwellに建設された。[14,30] 放射性パイロットプラントは現在，Windscaleに建設中である。[14,36]計画された廃液を収容するために，いくつかの容器がプラントに提案されている。このプロセスは1050℃でホウケイ酸ガラス生成物を作る。しかし，900℃程度の低い温度で溶融し，耐浸出性の良い新しい混合アルカリホウケイ酸ガラス組成の研究も行なわれている。[14]

この報告の時点（1976年）では，コールド施設は稼動中ではあるものの，HARVESTプロセスの試験については全く記述されていない。2つのプロセス（FINGALとHARVEST）の主な相異点は1972年に次のように報告されている。[30]

	HARVEST Process	FINGAL Process
type of container	annular vessel	cylinder
inactive feed (glass frit additives)	slurry or dry feed	slurry
off-gas treatment	liquid scrubbing	filtration with iron oxide adsorption carried out in heated furnace (two per line of plant)
	water cooled in pond	air cooled in tunnel

しかし最近の報告[14]では，ルテニウム吸着剤が再びHARVESTオフガスシステムの中に取り入れられている。これは以下に詳細に論じる。

FINGALプロセスの基本フローシートをFigure 9に示す。仮焼炉は1050℃に制御される（ＰＮＬポットライジングレベルガラスプロセスの950℃と比較せよ）。オフガスは直列に置かれた小さな第一フィルターと大きな第二フィルターによりろ過される。フィルターに使われる物質はシリカ上に析出させた酸化鉄の粒子である。[27]フィルターは乾燥状態に保つため250℃に維持される。この温度ではフィルターは，空塔速度が0.15 m/sec以下のとき，揮発ルテニウ

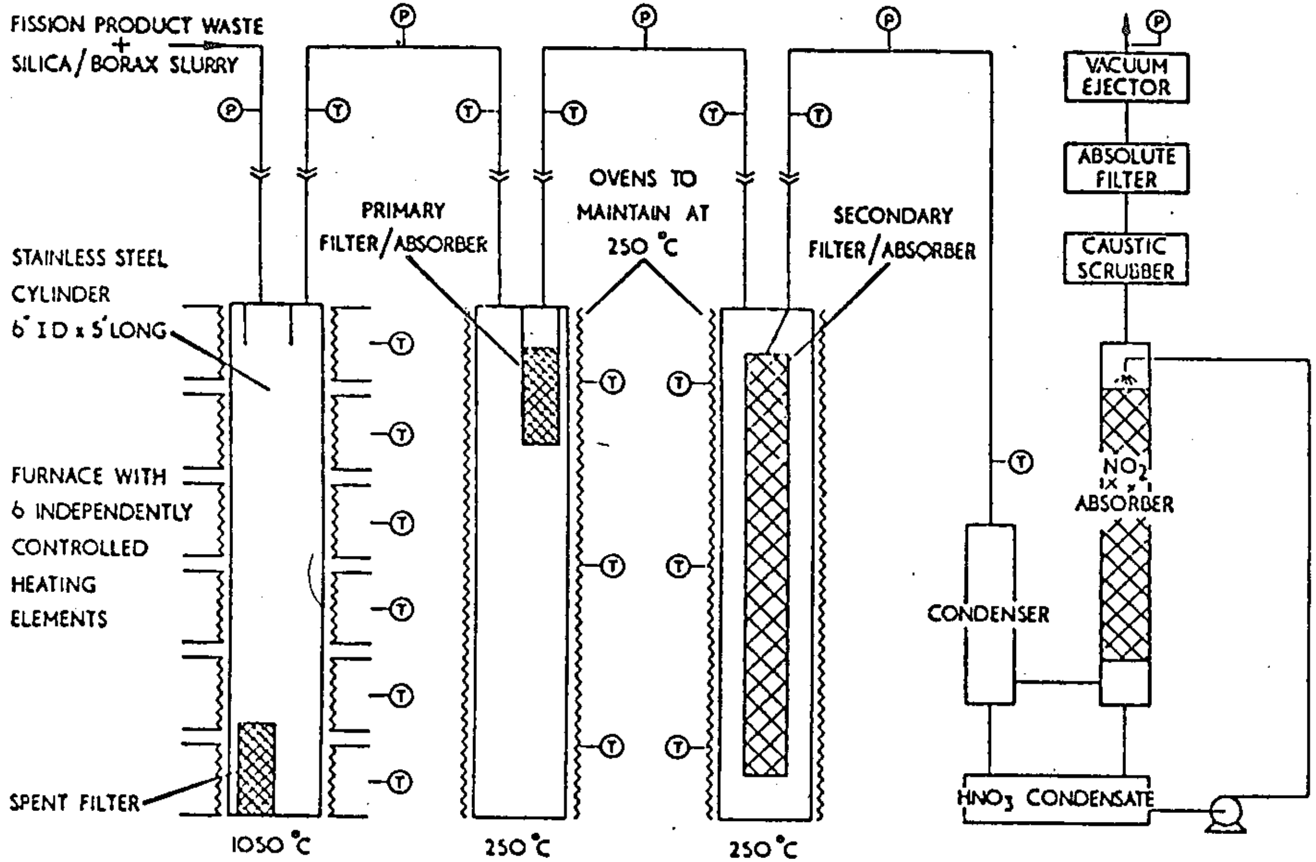


Figure 9. Simplified Flowsheet of FINGAL Process.

ムも吸着する。第一フィルターの使用済みフィルター材は，各バッチ毎に取りはずされ，次の仮焼容器内で核分裂生成物の廃液とともに溶融される。第二フィルターのダストの量は少ない。これは長期間使用に耐え，ガラス形成には使われない。

ルテニウムフィルターのデザイン[27]をFigure 10に示す。最近の設計変更で，[28]ダストがフィルター容器のふたに接近したり沈着したりしないようにフィルターが変えられた。変更点はフィルターを通る流れを逆にすることである，すなわち，ガスが容器から出たときには浄化されているようにダストを含んだガスがフィルターの内部に供給され，吸着剤とアブソリュートフィルターペーパーを通過して外側に流れるように変えられた。

第二フィルター／吸着剤を通過したガスは，直接コンデンサーに入り，窒素酸化物が充てん塔内で硝酸凝縮水により吸収される。アルカリスクラバーでは，微量の酸ヒュームが除去され，その後ガスは最後のアブソリュートフィルターを通過する。

プロセスで揮発したルテニウムは全供給量の約30％である。初期には，気相に移行した多量のルテニウムが仮焼炉出口のスロート部にRuO_2の沈着を生じ，閉塞を起した。これはこの部分の温度を250～400℃に下げることにより防止された。この温度は，プロセス加熱炉の上の仮焼炉の長さを15cmから30cmにし，最上部を空気により冷却することで達せられた。また上部発熱体は，生成物がそのゾーンの2～3 cm以内に達してはじめて1050℃まで加熱された。

HARVESTプロセスの元のフローシートをFigure 11に示す。ここでは，フィルター／吸着剤がスプレーコンデンサー／吸収塔で置き換えられている。FINGALプロセスでは，夫々のポットにフィルター／吸着剤の一組が取りつけられた。HARVESTプロセスでは，プラント内にあるすべてのポットに対して1つの液体スクラビングシステムが使われる。

FINGALプロセスと同様に，固化ユニットからのオフガスは，揮発ルテニウムの沈着を避けるため，容器とコンデンサー／吸収塔との間250～400℃の温度に維持される。コンデンサー（スプレータイプ）はガス洗浄，冷却，水蒸気と他の揮発物質の凝縮のために使用され，また窒素酸化物の多くを除去する。

プラントのこの部分には，スプレー溶液を再循環させるためのポンプとオフガスから吸収した熱を除去するためのクーラーが据え付けられている。その後オフガスは残った微量の窒素酸化物を除くためアルカリスクラバーを通過する。[a] それからオフガスは低温除湿，加熱，ろ過された後大気に放出される。

HARVESTの最近の記述では，ヒーターとルテニウム吸着塔がスプレーコンデンサーとスクラバーの後に設置されている。ケミカルフローシートの概要とプロセスのフローダイヤグラムをFigure 12，13に示す。

---

a　特にこの目的のために使われているのではないが，アルカリスクラビングは低濃度の揮発ルテニウムを除去するのにも効果的である。

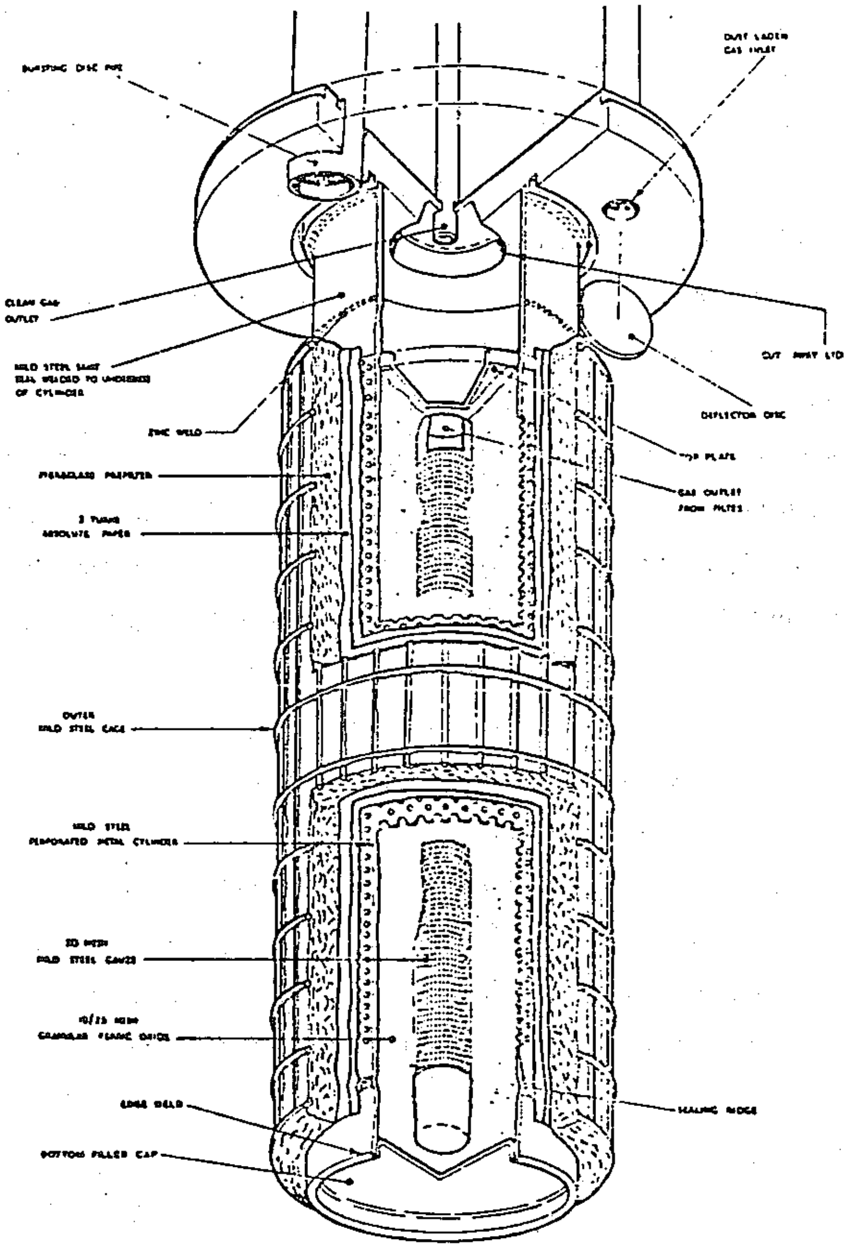


Figure 10. Ruthenium Filter for FINGAL Process.

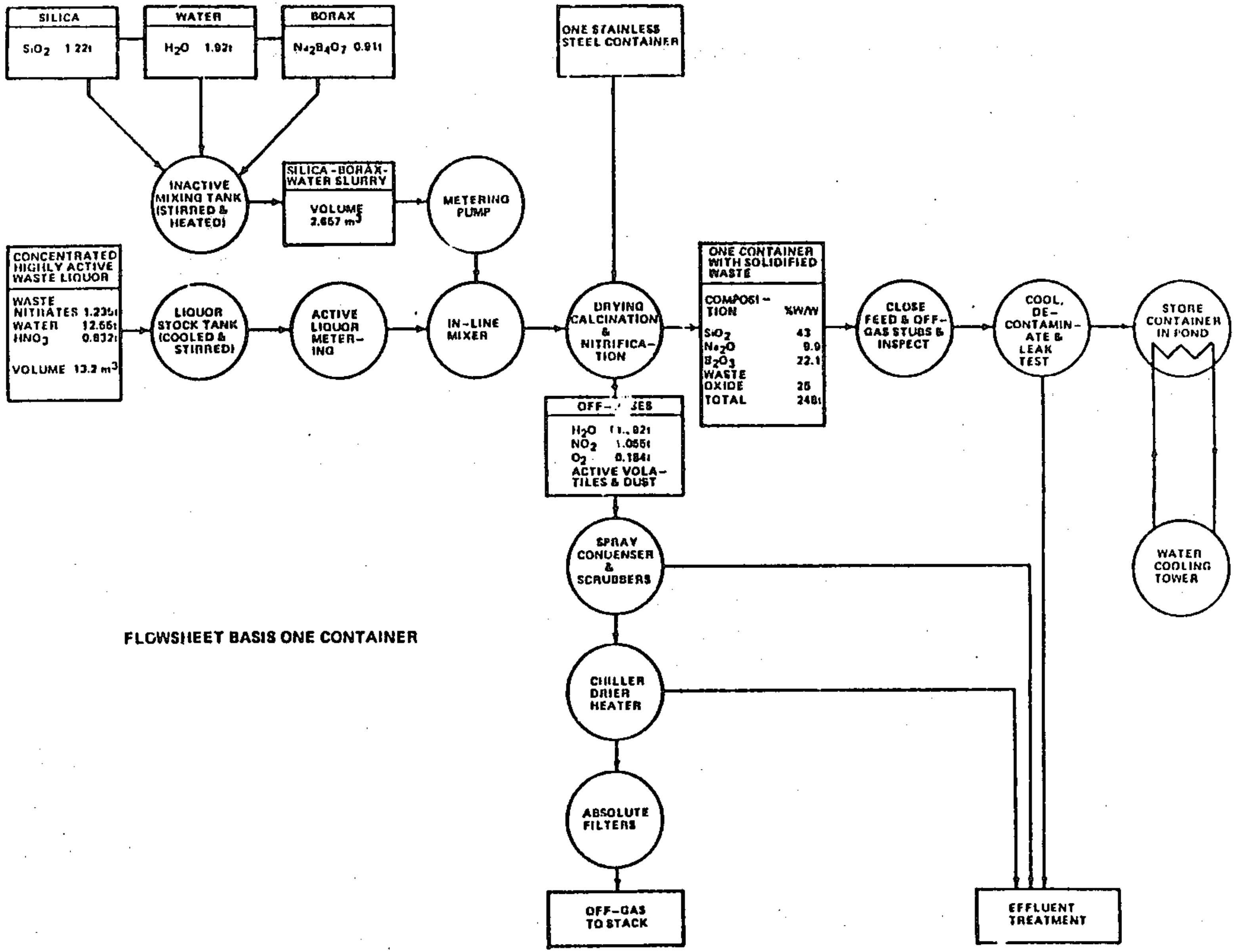


Figure 11. Flowsheet for HARVEST Highly Active Waste Solidification Process.

N 851-79-01

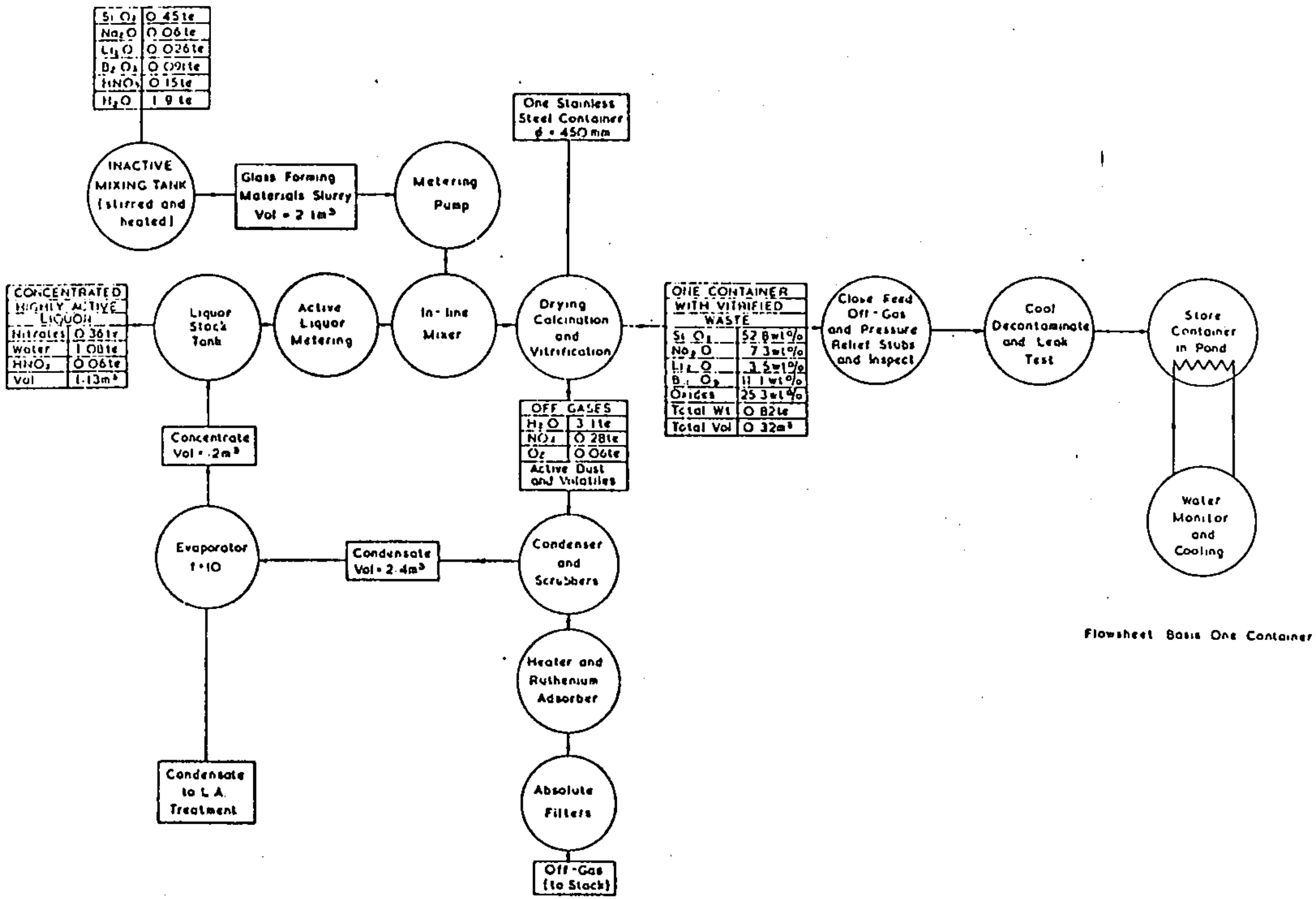


Figure 12. Block Chemical Flowsheet of HARVEST Process

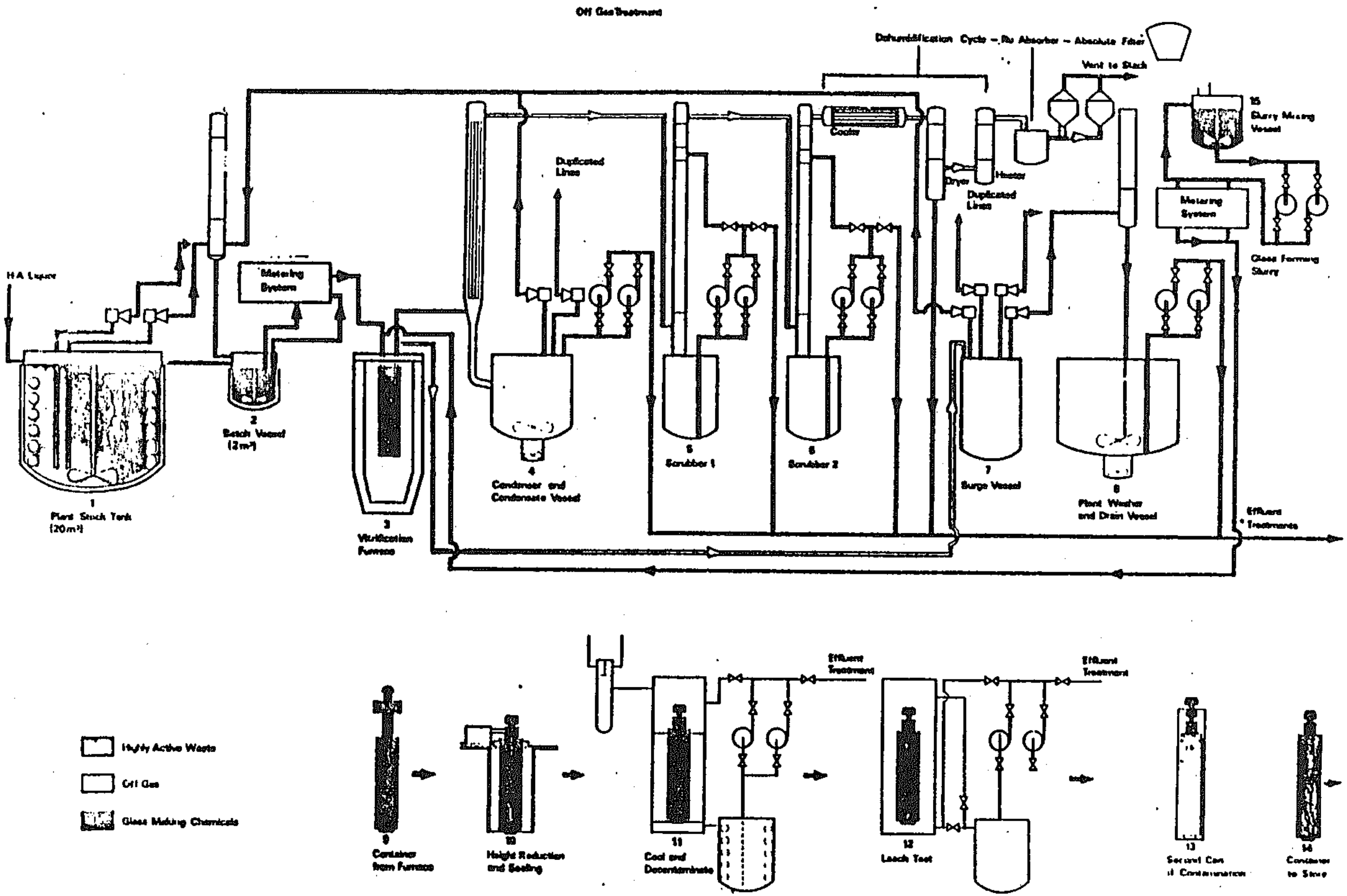


Figure 13. The HARVEST Process.

2.3.3 フランスの PIVERプロセス

このプロセスは工業パイロットプラントで高レベル放射性廃液を使って実証されたものであるが，ホウケイ酸ガラスを生産する。他のポット仮焼ーガラス溶融プロセスと異なって，蒸発，仮焼およびガラス溶融が固定された耐熱合金のポットの中で行なわれ，その後生成物は底のフリーズバルブから貯蔵容器に流し出される。このプロセスは，ガラス化物質（初めに供給廃液に加えられる）が溶融する前に蒸発が完了するという点でPNLポット仮焼プロセスと同じものである。ホウケイ酸ガラスは1100°～1150℃で作られる。

そのプロセスを[33, 34] Figure 14と15に示す。プラントに必要な溶融ポットの数を最小限にするため，貯蔵タンクからのHLLWは仮焼炉へ供給する前に蒸発により2倍濃縮され，400ℓ／MTHMとされる。[33] また硝酸は一部，ポットからのルテニウムの揮発を少なくするため，仮焼前にホルムアルデヒドとの反応により2$\underline{M}$ H^+まで分解される。このような処理をしても，15%程度のルテニウムが若干量のセシウムと一緒に揮発する。

オフガス中の水分は仮焼炉から出たときコンデンサーにより除去される。その後，オフガスは充填塔で洗浄され，直列に置かれた2つのルテニウムフィルターを通過する。ルテニウムフィルターはガラスビーズ上に酸化鉄をコーティングしたもので，500°～600℃に保たれる。

凝縮液にはポットから出たルテニウムの約90％が含まれる。凝縮液は蒸発器（ルテニウム回収ユニット）で濃縮され，硝酸濃度はホルムアルデヒドにより2$\underline{M}$に減らされる。ルテニウムを含んだ濃縮液は中和され．特別なあるいは定期的な操作の間にガラス化ユニットに送り戻される。

多量のガスが，HLLWの中間濃縮中（硝酸がホルムアルデヒドで分解される），仮焼中（硝酸が分解される），および凝縮廃液の濃縮・脱硝中に生成される。窒素酸化物のガスはすべて吸収塔（硝酸回収ユニット）に送られる。得られた硝酸廃液は蒸発される。濃縮液は，ごく少量であり，これは供給廃液の蒸発器にリサイクルされる。蒸留液は硝酸の精溜のため普通の型のユニットで処理され，11$\underline{N}$ の低放射性の酸が作られる。これは再利用するために照射燃料再処理プラントに送り戻される。

各プロセスユニットから発生する気体廃棄物の最終処理は，エアリフトおよび貯蔵タンクを一掃するための空気やすべての放射能を有する装置からのオフガスを含めて，次のようになされている。オフガスは第1塔で酸で，第2塔でカセイソーダにより洗浄される。最終的にはHEPAフィルターを通され，建屋の換気空気と混合され放出される。

2.3.4 イタリアのポットガラス化プロセス

イタリアでは固化すべき廃棄物の量は比較的少なく，従ってポットガラス化プロセスが実用的であると考えられている。実験室でリン酸ガラスとホウケイ酸ガラスに対する開発が行われてきており，模擬廃液を用いてベンチスケールの試験が行われた。[31] このプロセスは，Figure 16に略図を示すが，ホルムアルデヒドによる部分的脱硝と同時に廃液の濃縮を行い，ガラス形成剤を

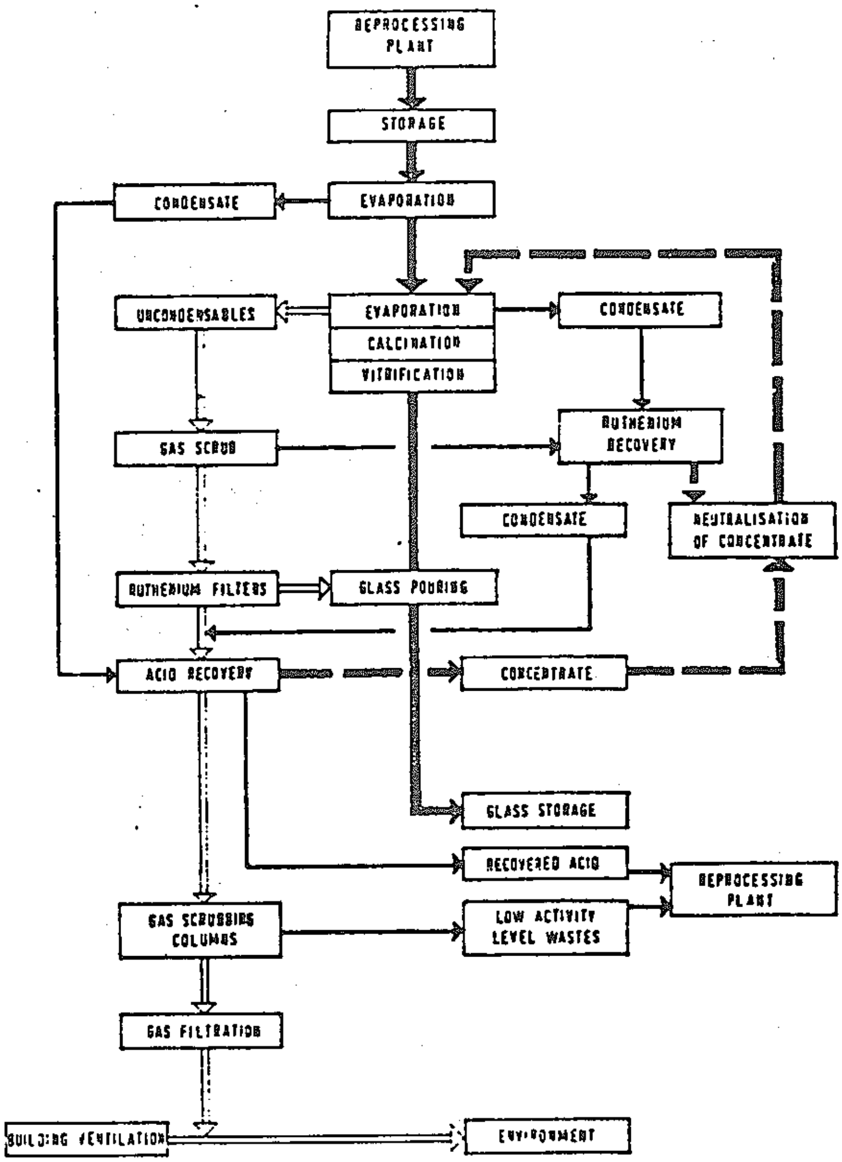


Figure 14. Block Flow Diagram of PIVER Process.

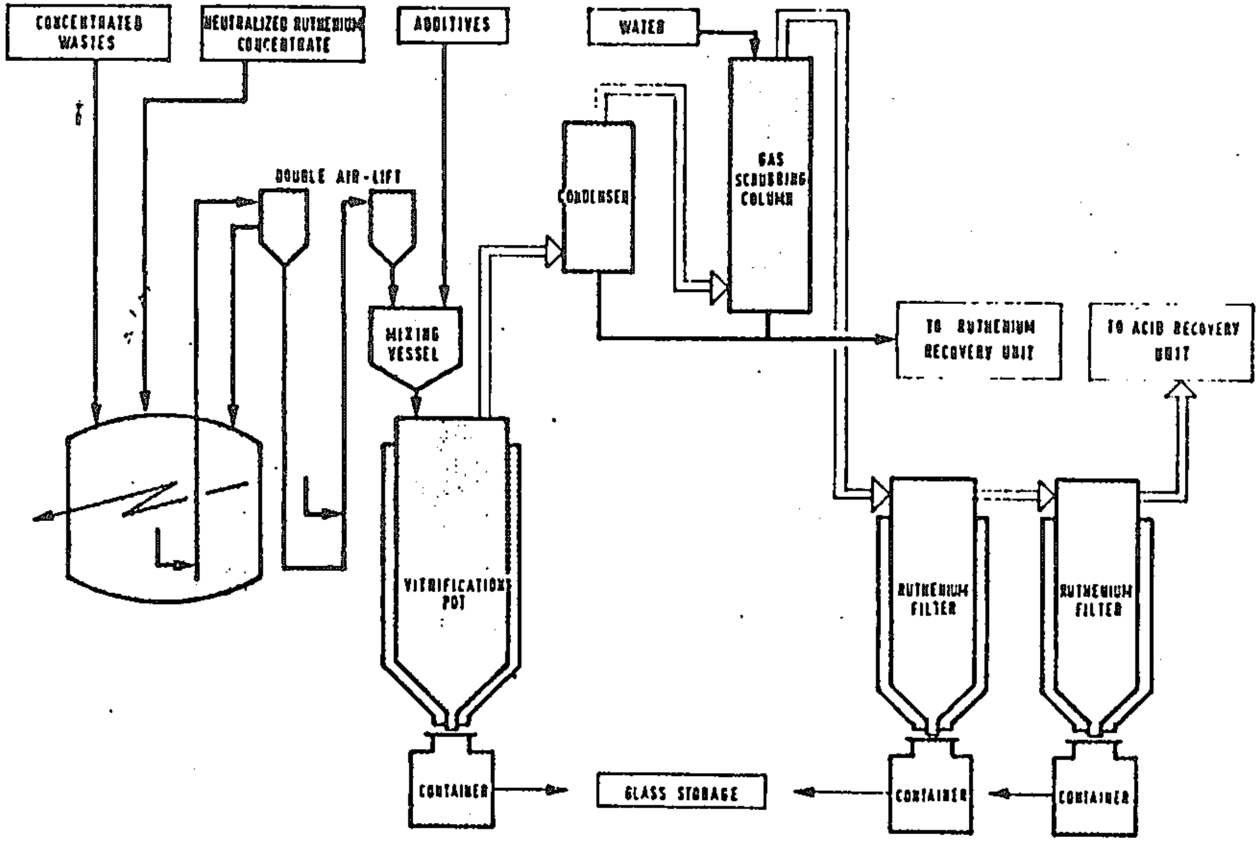


Figure 15. PIVER Vitrification Unit.

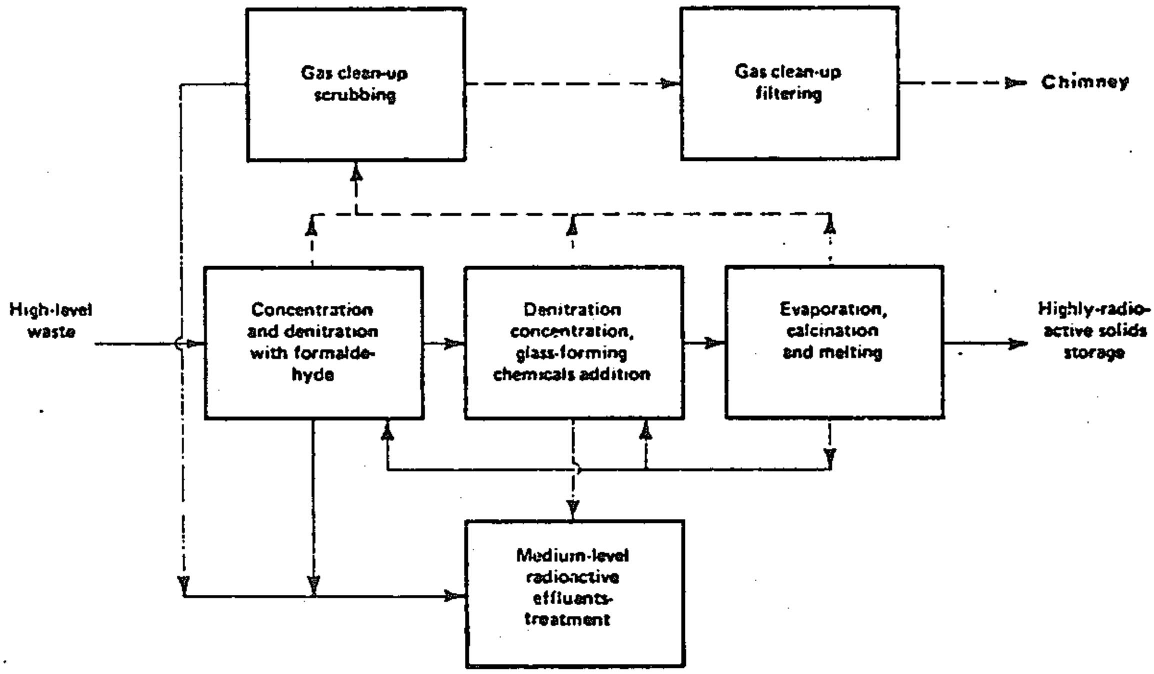


Figure 16. Schematic Diagram of Italian Pot Solidification Process.

加えてさらに脱硝および／あるいは濃縮する工程より成っている。用意された廃液は約130 ℓ/MTの濃度であり，ポンプでポット内へ輸送され，そこで乾燥され，600～800℃で仮焼され，そしてガラスの組成に応じた温度で溶融される。プロセスの開発のために使われた実験室装置のブロックダイヤグラムをFigure 17に示す。

仮焼炉ポットから発生したオフガスは水を除去するためにコンデンサーに入る前に300 ℃に加熱された酸化鉄ーシリカフィルター／ルテニウム吸着塔を通過する（実験室での実験では，酸化鉄ーシリカフィルターはホウケイ酸ガラスの実験にのみ使用された）。水分を凝縮除去した後，ガスは蒸発／脱硝容器から発生したオフガスと混合され，2 M NaOHを含む直列に置かれた2つのスクラバーを通過する。ここではコンデンサーで除去されなかったNOx がいくらか除去される。アルカリ溶液はまた揮発したルテニウムもいくらか除去する。

リン酸ガラスが作られたとき，硝酸を分解し，その結果仮焼中にルテニウムの揮発を減少させるために廃液に赤リンが添加された。ガラスの形成に必要なH_3PO_4 が反応で生じた。気体の反応生成物は，39％ N_2，29％ NO_2，32％ NO，微量のN_2Oである。

赤リン添加物は~~，~~ベンチテストにおいて，ルテニウムの損失を不揮発性物質の飛出し量と比較できるレベルまで抑制した（0.02～1％）。別の測定では，P/HNO_3= 1.1のときルテニウムの揮発は0.75％であった。リンの還元剤が使用されないときは，リン酸塩ガラス化における揮発ルテニウムの損失が80％という結果であった。

ホウケイ酸ガラスが作られた場合には，ルテニウムの揮発は約13％で，ルテニウムフィルターがその捕集のために使われた。放射性廃液を使う試験のためにベンチスケールのプラントが建設されている。そのフローダイヤグラム（Figure 18）は実験室装置と同じようなもので，放出前にHEPAフィルターが据えつけられてある。

2.4 リン酸ガラス

リン酸ガラスプロセスは最初にBrookhaven 国立研究所で模擬廃液を使って開発され，[38-40]その後 Battelle's Pacific Northwest 研究所がWSEPプログラムにおいて，そのプロセスのホットパイロットプラントの研究開発を行った。[17, 41, 42] イタリアのポット仮焼・ガラス化プロセスもリン酸ガラスを開発している（2.3.4項参照）。

2.4.1 PNLのリン酸ガラスプロセス

このプロセス[17, 41, 42] では，融液を作るリン酸塩添加物の全部を含んだ廃液が2～10倍濃縮され，120°～140℃で一部脱硝されて（硝酸根の60～90％を除去），濃いシロップ状の水溶性リン酸塩スラリーが作られる。スラリーは別の連続メルターに供給され，水，硝酸根およびその他の揮発性成分が最終的に蒸発する。そして，溶融ガラスを生成するため1000°～1200℃に加熱される。溶融ガラスはオーバーフローのせきあるいはフリーズバルブを通して下に

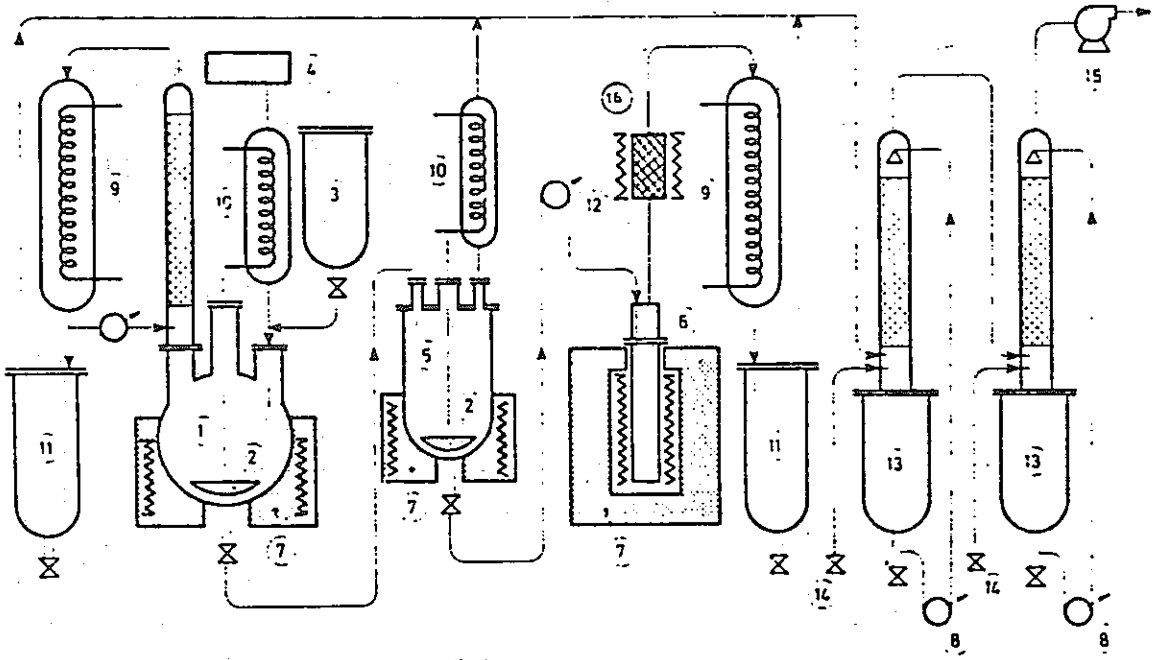


Figure 17. Schematic Flow Diagram of the Italian Bench-Scale Laboratory Vitrification Plant.

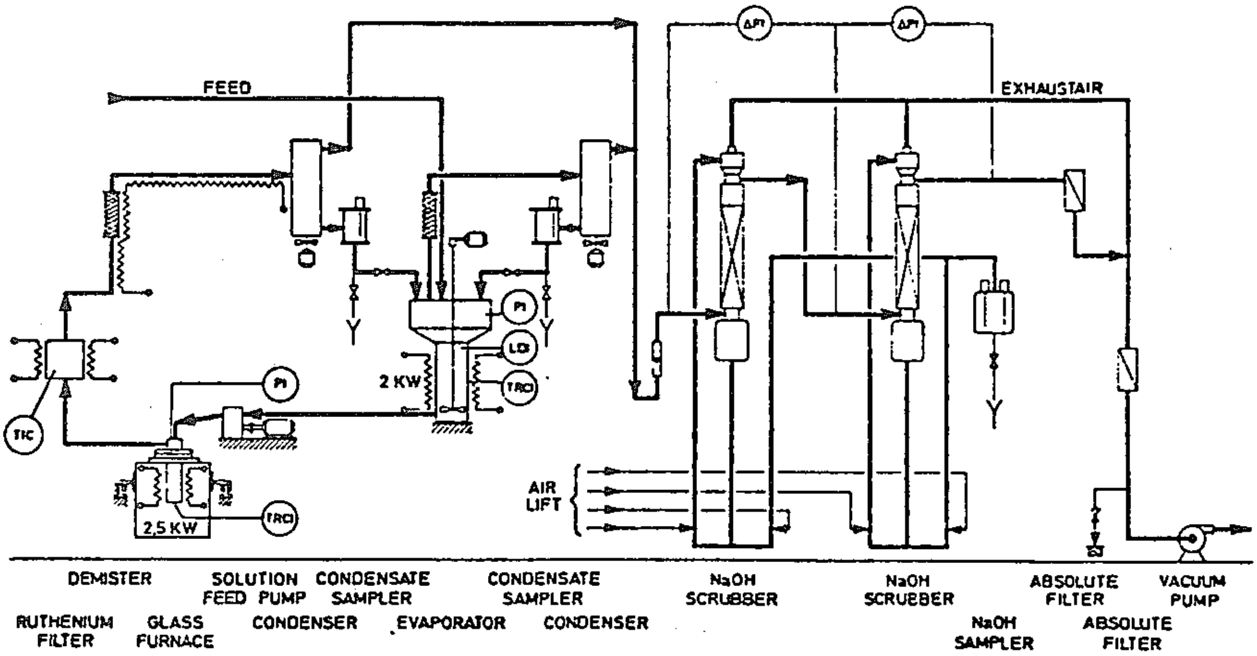


Figure 18. Schematic Flow Diagram of the Italian Bench-Scale Plant for the Radioactive Vitrification Tests.

ある受器兼貯蔵ポットに流れる。ポットが一杯になった後，冷却，密封され貯蔵のために運ばれる。Figure 19 にプロセスの概要を示す。

固化装置に供給された全ルテニウムの2～10％が試験中に揮発および／あるいは飛び出した。最初のシリーズの試験[41]では不揮発性物質の飛び出しは0.2～0.3％であったが，最終シリーズ[42]ではわずか0.04～0.07％にすぎなかった。脱硝器／蒸発器からのルテニウムの揮発および飛び出し量は0.5～0.9％の範囲であり，一方不揮発性物質の飛び出し量は0.001～0.06％であった。

メルターからのセシウムの発生量は微粉の飛び出し量から計算される量よりわずかに高かった。セシウムの揮発は0.05～0.1%の範囲であった。供給液中に存在するテルルの約3%が揮発した。Brookhaven で行われた非放射性廃液を用いての実験が示すところでは，50～100%のセレンが揮発すると思われるが，しかしセレンの量が少ないのでこれが問題になることは考えられない。

メルター中でのガラス形成段階で発生する主なオフガスは，水，窒素酸化物，硫黄酸化物（廃液中に含まれている場合）および少量のリン酸塩である。このオフガスは白金－5%イリジウム配管を通ってメルターのコンデンサーに導かれる。この配管を通過するガスの温度は，凝縮を防止して配管の腐食を最少限にするために，400°～475℃に維持される。

脱硝器／蒸発器およびメルター（硫酸塩を除去するために使用されるときはメルターのコンデンサー）のオフガスは，洗浄のためAPS（2.2.1項参照）に送られる。

2.5 ロータリーキルンガラス化

フランスは廃液からホウケイ酸ガラスを生成するため，PIVERポットプロセス（2.3.3項）に続くものとして，このプロセスを開発している。これはAVMプロセスと呼ばれる連続プロセスで，ガラスの製造能力が大きくなっている。工業プラント（およそ2 ton／day の処理能力）がマルクールに建設されており，1977年の7月初めに放射性廃液を処理する計画である。

このプロセスの概略図をFigure 20に示す。HLLW は処理量を増すため前もって濃縮される。仮焼添加物には，“ポップコーン”作用で仮焼体を破砕するのを助けるアゾジカルボンアミドと脱硝を助けてルテニウムの揮発を減少させる Ferupore と呼ばれる有機コンパクトが含まれる。用意された廃液は，水平から3°傾斜し 30rpm で回転する加熱したチューブ内に供給される。チューブの壁は分割されて電気的に加熱される。温度は，供給部の225℃から最高600℃まで変化している。供給廃液はこの装置内で仮焼され，仮焼生成物は溶融ポットに落下し，そこでガラスフリットと混合される。全残留硝酸根の分解がポット内で起り，ガラスは1150℃で形成される。ポットが満たされたとき，ガラスは熱バルブを通して最終の受器兼貯蔵容器に抜き出される。メルターからのオフガスは仮焼炉を通ってオフガス処理システムへ入る。

マルクールプラントでガラス化される最初の廃液は黒鉛ガス炉の天然ウラン燃料の再処理からのものであろう。したがって，フッ化物を含んでいるだろう。溶融炉および仮焼炉からのオフガ

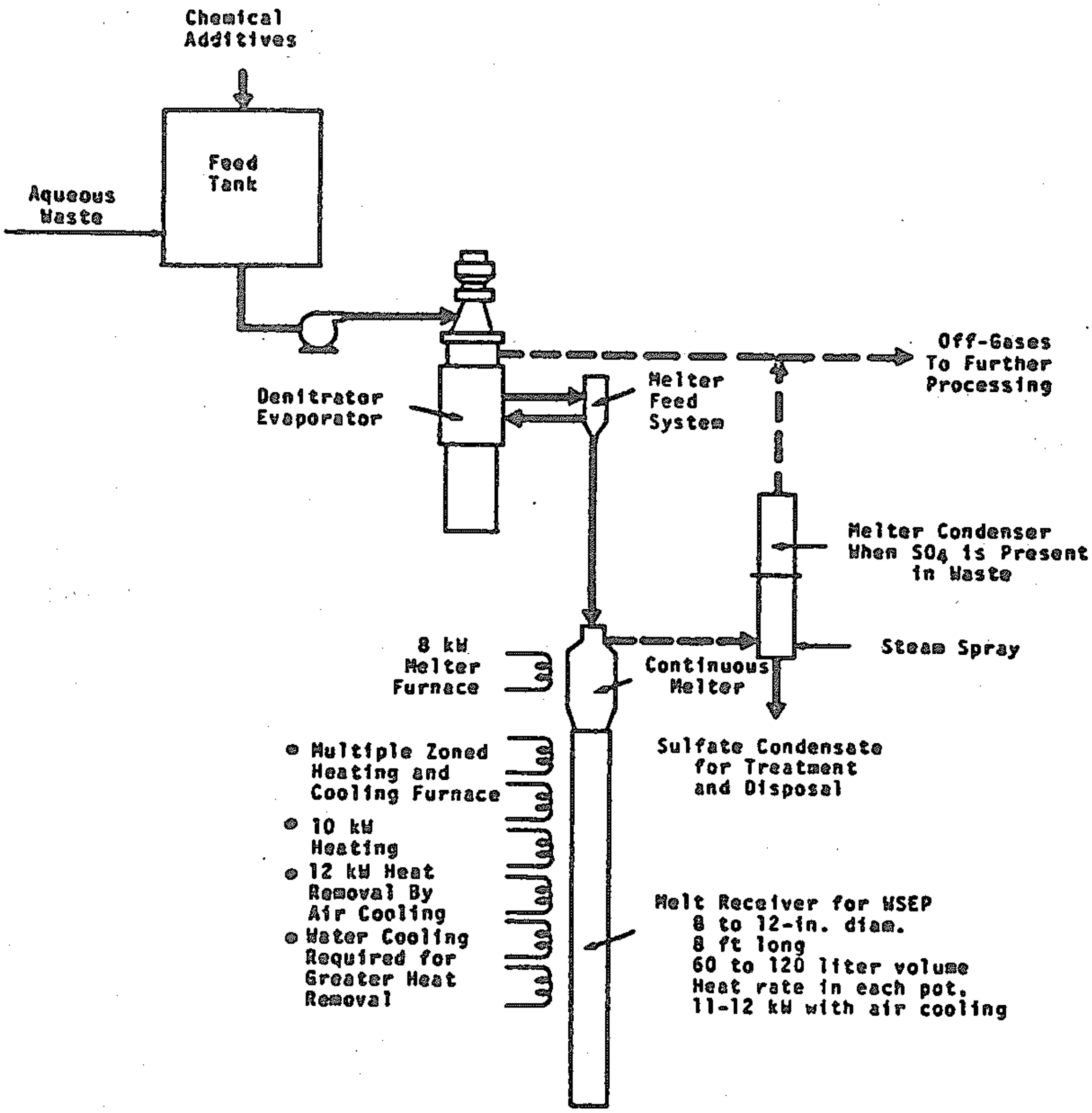


Figure 19. Phosphate Glass Solidification Process.

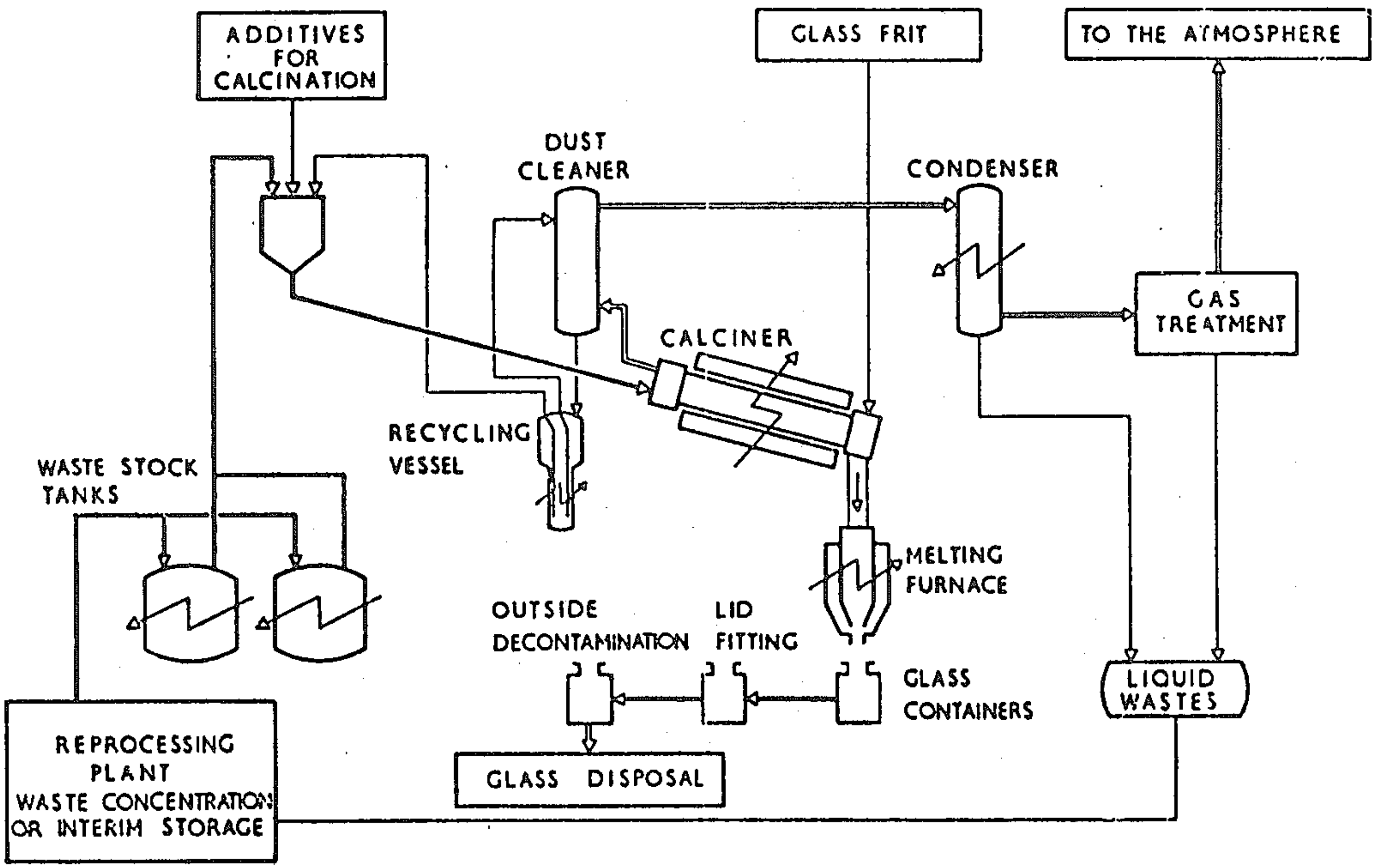


Figure 20. The Continuous Rotary Kiln Process Used at the Marcoule Vitrification Plant (AVM).

スには，水蒸気，窒素酸化物の他に幾分かの揮発性生成物（ホウ素，セシウム，ルテニウム，フッ素化合物）とダストが含まれる。ダストは酸でガス流を噴霧する湿式スクラバー（Figure 20にはダストクリーナーと書かれている）で捕集され，酸は供給系を経由して仮焼炉に絶えずもどされる。その後水蒸気は，濃縮および仮焼炉につながる廃液供給系へのリサイクルのために凝縮される。スクラバーおよびコンデンサーでは，揮発したルテニウムがいくらか除去されるであろう。仮焼炉およびメルターからオフガスに入るルテニウムの量は，報告されていないが，全供給量の2～3%であろう。コンデンサーの後の他のオフガス処理装置は，吸収塔，洗浄塔とアブソリュートフィルターである。[14, 45]吸収塔[48]はルテニウムを除去するためのもので，シリカ上にコーティングされた酸化鉄が加熱されている（PIVERプロセス，2.3.3項参照）。イギリスのHARVEST プロセス（2.3.2項）と同様に，使用済みのルテニウム吸着剤はメルター内でガラス化される。

2.6 ドラムドライヤー－ポットガラス化

このいわゆるFIPS（Fission Product Solidification）プロセスは，THOREX 試薬を用いたHTR黒鉛燃料の再処理廃液用にドイツで開発されている。[14, 49] FIPSプロセスの設計は，オフガスの非常に効果的な浄化が必要とされるために，他の考察以外に，処理を要するオフガス量を最小限にするという要求に一部基づいて行なわれた。またトリチウムの効果的な封じ込めが必要なので，核分裂生成物溶液の希釈を含むようなプロセスは除外されている。

FIPSプロセスをFigure 21に示す。核分裂生成物溶液は，硝酸濃度がおよそ5<u>M</u>になるまで約2倍濃縮されてほかの容器に移され，そこで，乾燥およびガラス化中に揮発するルテニウムを制御する目的でオルムアルデヒドで部分的に脱硝される。脱硝中に溶液はさらに3倍濃縮される。脱硝で生ずるオフガスはNOx を含んでおり，硝酸再生ユニットに送られる。処理された核分裂生成物溶液はホウケイ酸ガラス生成添加剤と混合され，生じたスラリーは130 ℃のドラムドライヤーで乾燥される。ドラムはスラリーの中に浸り，2rpmで回転する。薄膜が約130℃の温度に維持されているドラム表面に付着する。乾燥時間はおよそ20秒である。ドラムの乾燥物はセラミックでライニングされた黒鉛－粘土ルツボ内に掻き取られ，その中で誘導加熱により1100°～1200℃で溶融され，ライジングレベルインポット法によりガラスが作られる。硝酸はオフガス処理システムで回収される。

プロセスは非放射性模擬廃液を使って開発され，小さいホットセル装置が作られてLWR放射性廃液で試験された。溶融中に1%以内のルテニウムが揮発した。脱硝器からは若干のエアロゾルの飛び出しも生じた。

濃縮ユニットおよび脱硝器から発生するオフガスは混合され，コンデンサーを通過し，ここでHNO_3が回収される。その後メルターオフガスと混合され，連続した2つの硝酸回収ユニットを通過するが，ここの各段で酸素が添加され，洗浄塔内でNOx がHNO_3に変換される。最後に，

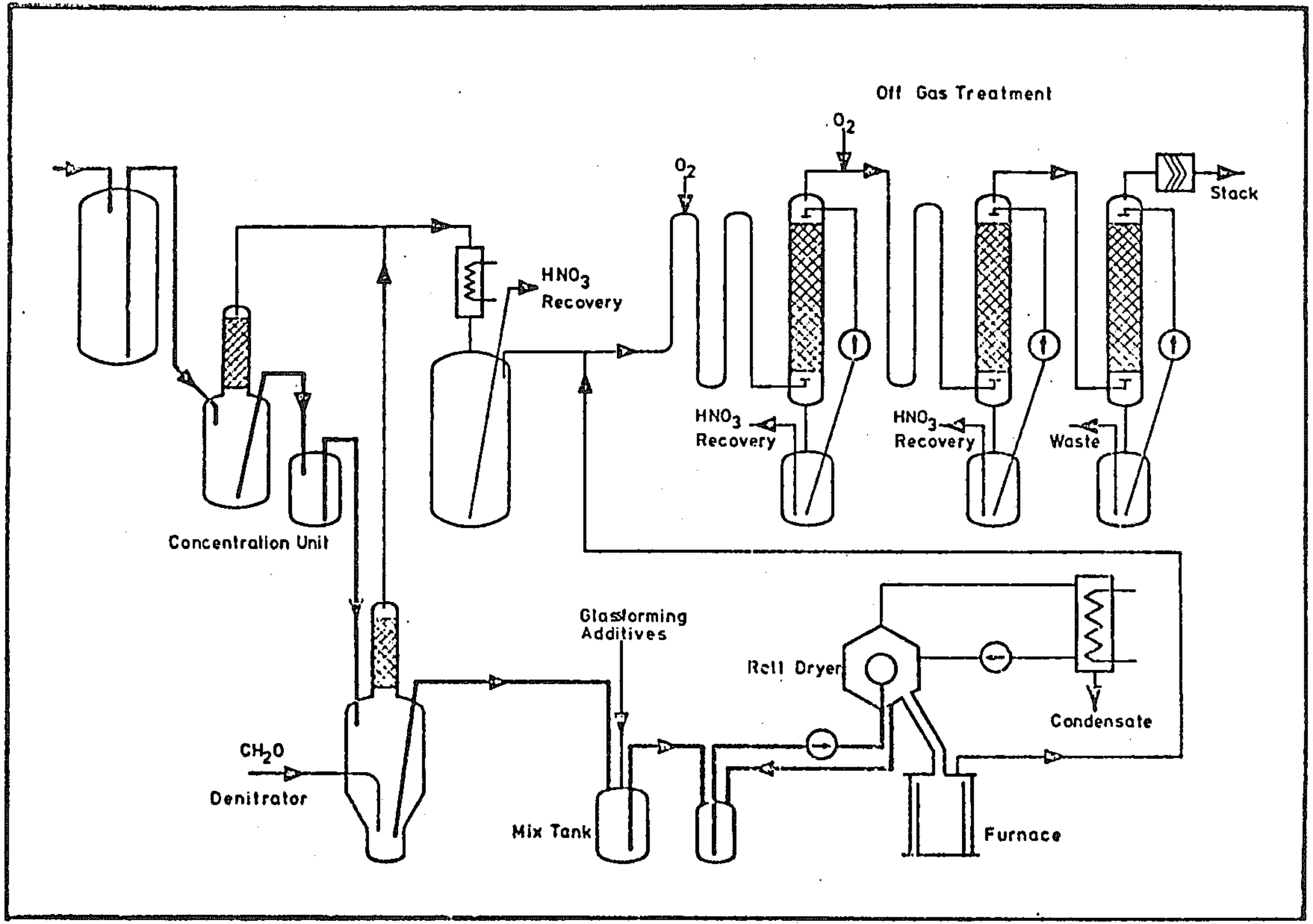


Figure 21. The FIPS Process.

ガスはアルカリ（1 MNaOH）洗浄され，アブソリュートフィルターを通過して放出される。

溶融中に小量の窒素ガスが炉を通って流され，供給配管とルツボの間の小さいギャップを通ってメルターオフガスと共に排気される。このガスの流れは，容器材の酸化とルツボの外側にある炉の中に細かなダストが分散するのを防止する（これはおそらく酸化によるRuO_4の生成で起るメルターからのルテニウムの揮発を最小限にするのにも役立っている）。

ドラムドライヤーからのガスは，水を除去するためコンデンサーを通過した後，ドライヤーにリサイクルされる。最終的には残留ガスはメルターを通ってスクラバーに入る。

2.7 連続セラミックメルター

ジュール加熱セラミックライニングメルターはガラス工業界で広く使われ出している。オフガス量が少なく，炉の寿命も長く，また良質のガラスが生産できる。HLLW の固化にこの型のプロセスを適用することがデンマークで最初に研究され，[50]その後開発が発展し，米国のPNLで開発が続けられている。[1, 13] ジュール加熱セラミックメルターは，他のメルターに比べてより高温をつくりだせ，低シリカ組成のガラスよりも一般的に化学的安定性の優れた高シリカ組成のガラスを作ることができる。

最近フランスが，必要な溶融エネルギーを供給するのに，ガラスに誘導カップリングを使用したジュール加熱セラミックメルターの研究を始めた。[1] このプロセスの開発の進行に関するレポートは入手できず，ここでは述べないこととする。

ドイツは，ガラスビーズを作り金属マトリックスにそれを鋳込むPAMERAプロセスに対して，連続ジュール加熱セラミックメルターを使用している。

連続セラミックメルター内では，スラリーを作るために添加されたガラスフリットとHLLW溶液が蒸発，仮焼され，メルター内で直接ガラス化される。所望ならば，ワイプトフィルム蒸発器（2.8節参照）で廃液からいく分かの水を前もって蒸発させることにより，処理量を増加させることが可能である。あるいは，たとえばスプレー仮焼炉から生成された仮焼体を連続セラミックメルター内でホウケイ酸ガラス化することが可能である。

ジュール加熱連続セラミックメルターの概念をFigure 22 に示す。[1] ガラスのジュール（イオン）加熱は溶融したガラス中に浸漬された電極間を電流が流れることにより生ずる。交流がイオン（主にNa^+）の動きによる内部摩擦熱を作り出す。スタートアップは消耗加熱エレメントを用いて，イオン伝導が十分で熱を発生させることができるところまでガラスの温度を上昇させて終了する。

水冷板で囲まれたセラミックライナー内に溶融ガラスが保持される。生成したガラスは，オーバーフローラインを通って，貯蔵キャニスターに抜き出される。

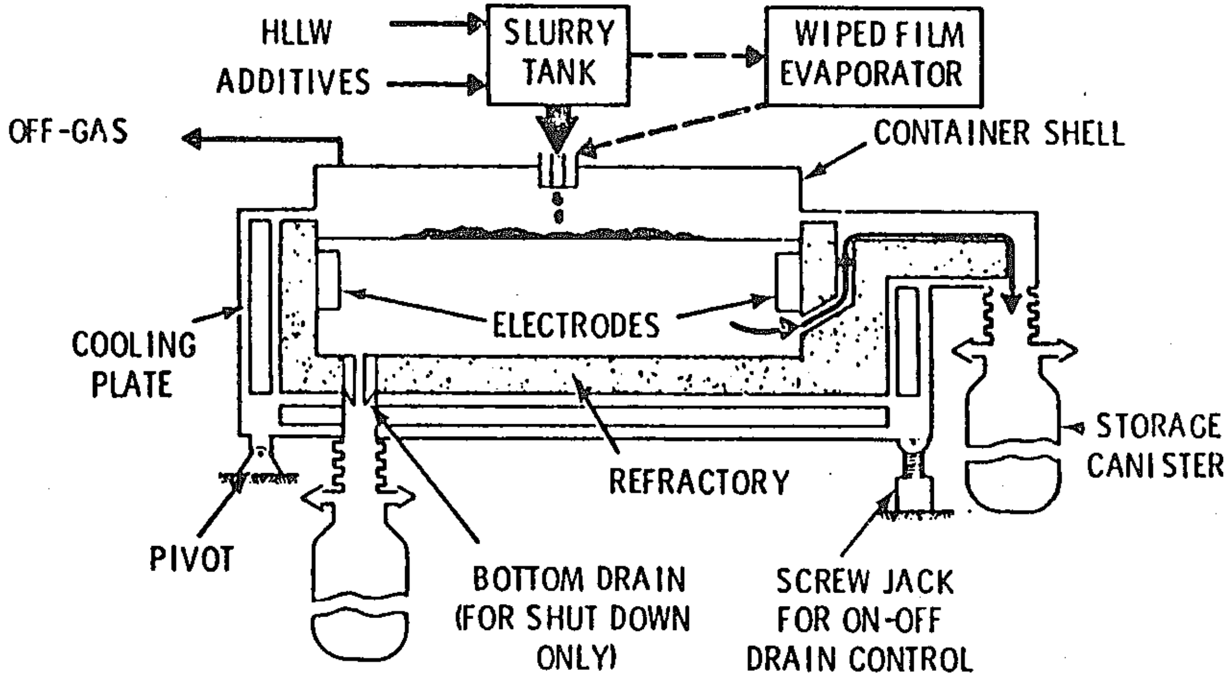


Figure 22. Continuous Ceramic Melter.

2.7.1　デンマークの連続セラミックメルター

デンマークのプログラムで使用されたジュール加熱メルター[50]をFigure 23 に示す。合成廃液を直接メルターに供給して試験が行なわれ，ホウケイ酸ガラスが1100～1200℃で作られた。使用された溶液は核分裂生成物硝酸塩溶液を模擬したものではなく，ステンレススチール硫酸塩とカセイソーダに溶解したアルミニウムを含むものであった。

オフガスシステムの設計にはほとんど注意が払われなかった。最初はコンデンサーのみが水蒸気除去のために使用された。しかし，コンデンサーへ導かれるオフガスパイプがしばしば閉塞した。それゆえFigure 24 に示すプレフィルターが試験された。オフガスは，ガラスフリットが供給廃液に加えられるときそれを通るようにされた。その設計は，スクレーパーを使って，メルターの中に使用済みのフリットプレフィルターを押し出すようになっているが，完全に満足できるものではなかった。スクレーパーの最も深いところの下にあるフィルター剤の層が，ダストによりゆっくりとふさがれ，一週間以内に許容できない圧力損失になった。フィルターは，コンデンサーへ行くオフガスをきれいに保っておくには効果的であった。

2.7.2　PNLの連続セラミックメルター

このプロセスの開発計画は1973年に始められ，[51] 4つの研究室規模のメルターが設計され試験された。[52～55] これらの研究を基にしてFigure 25 に示すような工学規模のメルターが設計され建設された。[56] これは模擬廃液仮焼体とガラスフリットおよびガラスフリットを添加した模擬HLLW溶液とを使って試験され，1150℃で3.6 kgのガラスを生成した。[57～59]

現在までオフガス処理システムの開発に対しては特別な注意は払われていない。本来，このプロセスは，全ガス流量が少なく，従って浄化装置は比較的小さく安価でありうる。工学規模の試験が示すところでは，直接供給方式において，溶融槽が廃液でおおわれたとき（2.4 cmの厚さ），廃棄物の0.5％以下がオフガスに飛び出した。このプロセスでのルテニウムの挙動についての測定は報告されていない。

2.7.3　ドイツのPAMELA プロセス

ユーロケミックとの共同研究でゲルゼンベルグ社が開発しているこのプロセスは，[14] LWRとHTR燃料の再処理から発生するHLLWを固化するために使用されるだろう。オフガス処理システムを含めてこのプロセスをFigure 26 に示す。廃液はホルムアルデヒドで脱硝され，同一容器内で5倍濃縮される。ガラス形成剤が添加され，セラミックメルターに輸送される。現在まではリン酸ガラスが作られており，したがってH_3PO_4が添加剤であるが，ホウケイ酸ガラスを作ることも含めるため研究を拡大する計画である。セラミックメルターのガラス化の後に，融液を回転円盤の上に小滴としてノズルから落として，ガラスビーズが作られる。ガラスビーズは，不活性ガスで溶融金属中に吹き込むことによって，金属マトリックス内に封蔵される。最終生成物

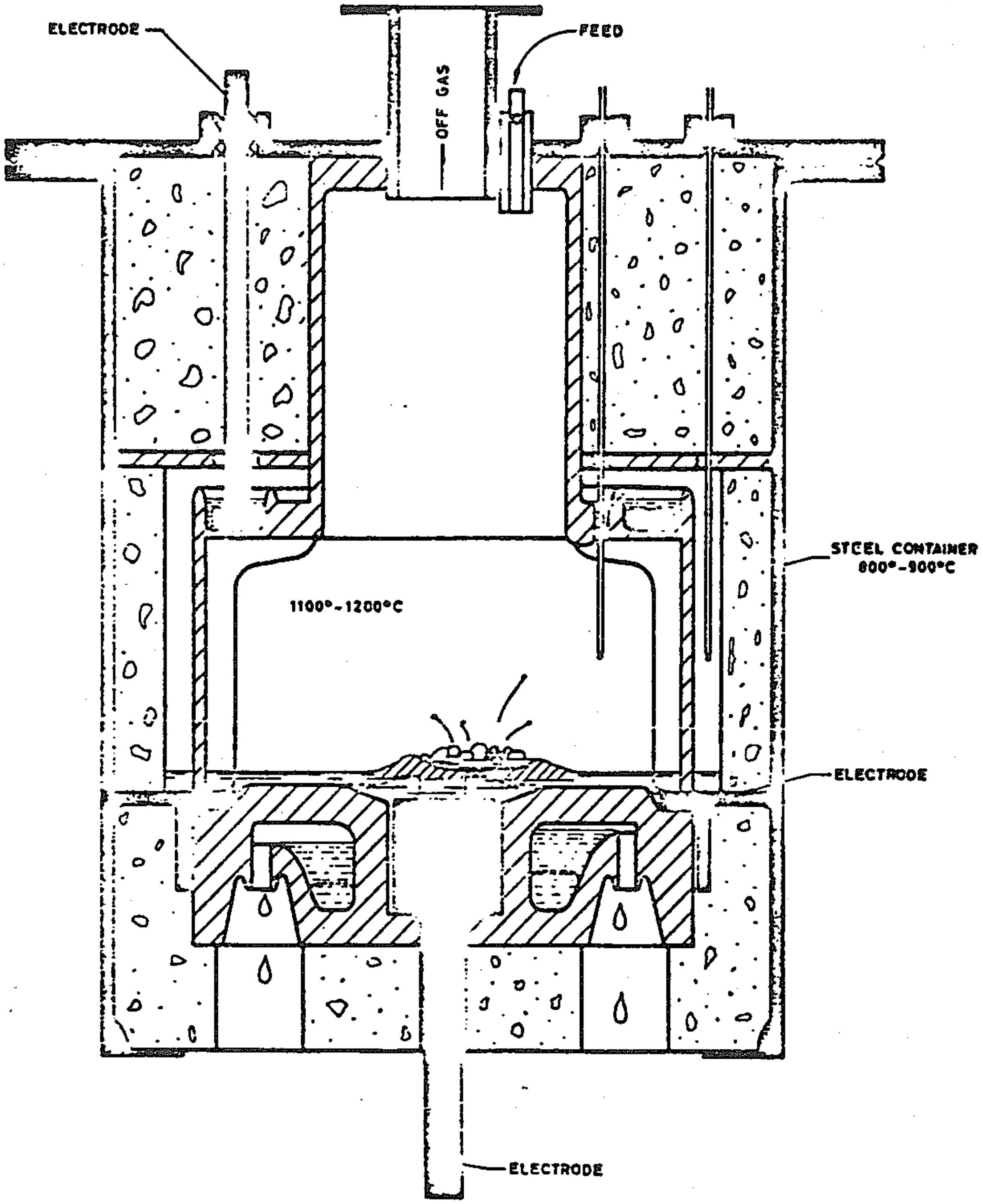


Figure 23. Danish Ceramic Melter.

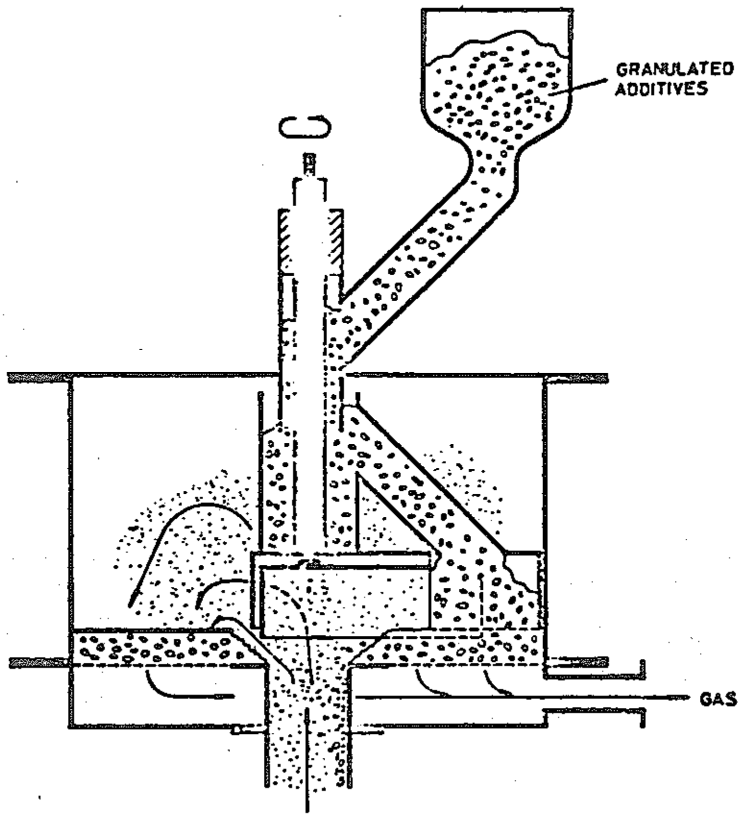
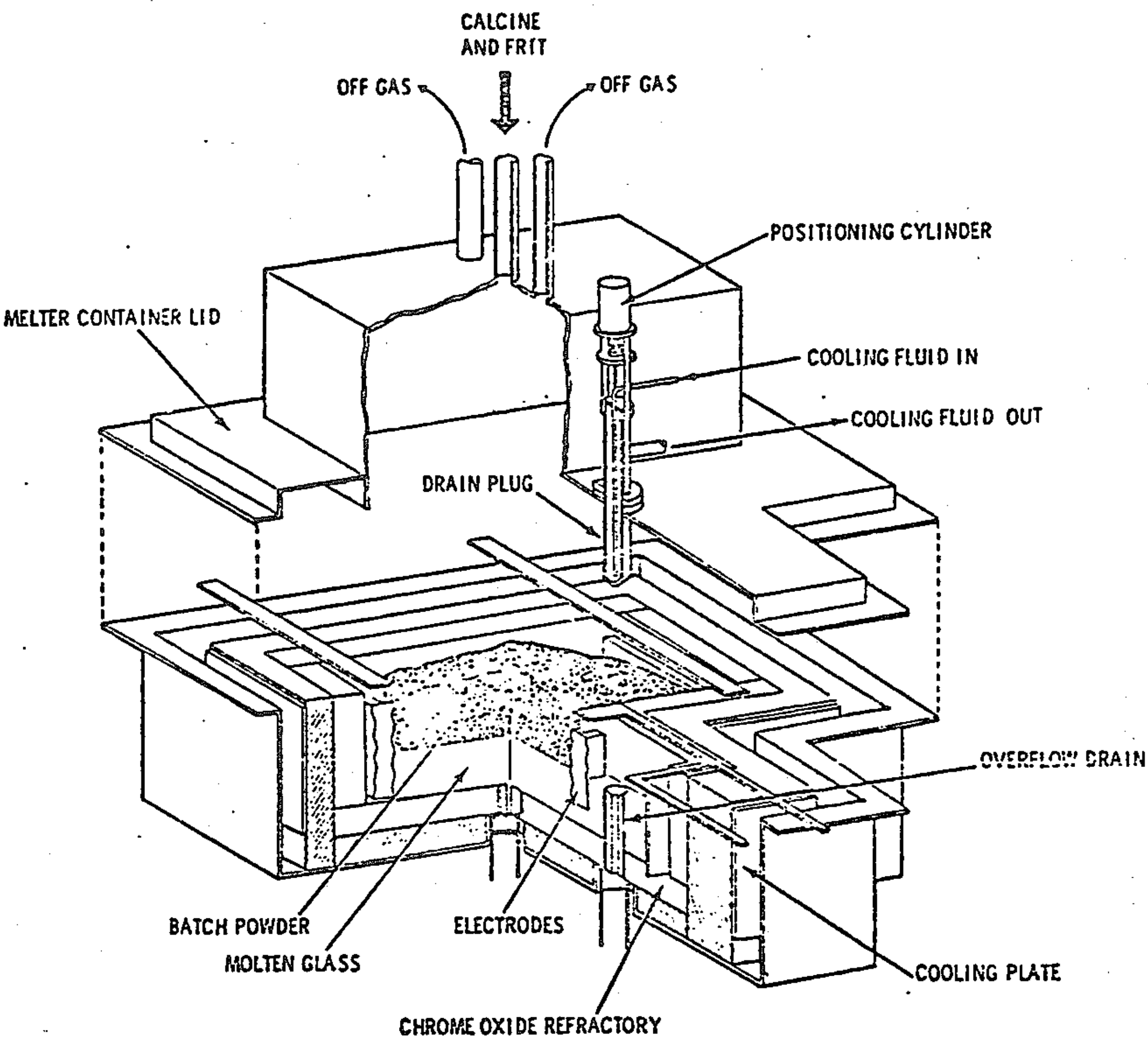


Figure 24. Continuous Prefilter for Danish Ceramic Melter.



Melting Cavity Dimensions	0.36m wide, 0.76m long, 0.30m deep
Outside Dimensions	1.28m wide, 1.36m long, 0.89m high

Figure 25. PNL Engineering Scale Ceramic Melter.

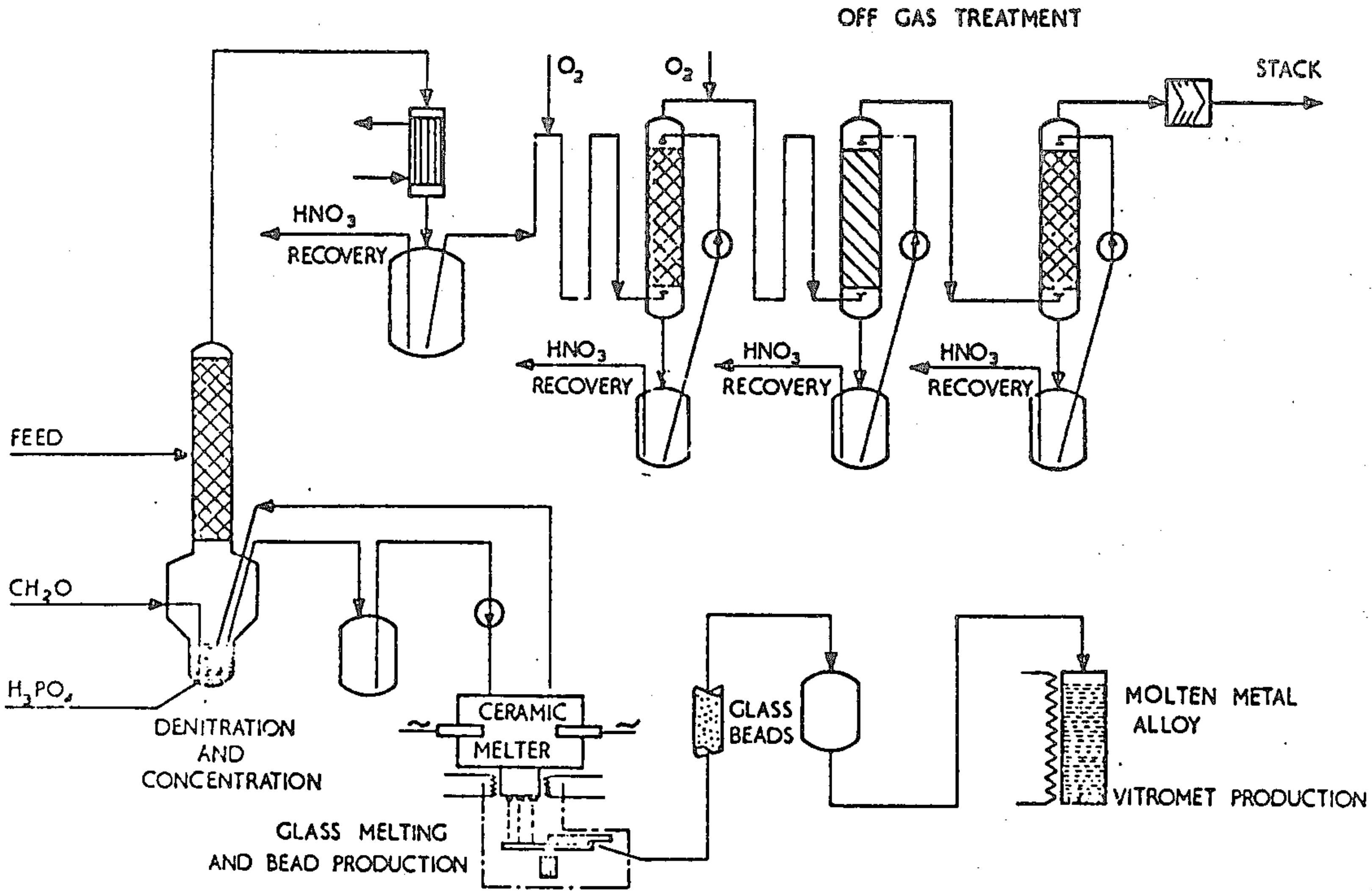


Figure 26. The PAMELA Process.

はＶＩＴＲＯＭＥＴ　と呼ばれる。

このプロセスからはダストは生成されない。メルターからのオフガスは脱硝／濃縮器のオフガスと混合され，その後の処理は，最終アルカリスクラバーがNHO_3回収ユニットで置き変えられた点を除けば，FIPSプロセス（2.6節）と同じである。それ以後のオフガス処理は，水の凝縮による硝酸の回収と最終ろ過である。最初の凝縮のあと，2つの硝酸回収ユニットの入口に酸素がNOx の酸化のために添加される。

ベンチスケールのユニットが1974年の終り以来運転中である。ユーロケミックから得られたピューレックス高レベル廃液150 ℓ を処理するために使われ，10 kgのリン酸ガラスビーズが作られている。また2個のホットＶＩＴＲＯＭＥＴ　が作られている。パイロットプラント施設の建設が1977年に始まるであろう。

2.8　ワイプトフィルム蒸発器

ワイプトフィルム蒸発器は，熱の影響を受けやすい材料を工業的に処理するために開発されてきたものである。これは供給物の滞留時間が短かいという特徴を有している。アメリカのＰＮＬでは，LWRのＨＬＬＷのワイプトフィルム蒸発法がセラミックメルターあるいはメタリックメルターに供給してガラス化が可能な濃縮スラリー[60～62]あるいは乾燥粉末[63]を生成するのに適用できるかどうかを決めるため，研究を行っている。[1] 現在まではオフガス処理開発にはほとんど注意が払われていない。オフガスがどのような性質のものであるかということを示すため，このプロセスをここで調べてみる。

ワイプトフィルム蒸発器の概念をFigure 27 に示す。供給液には，最終生成物の性質を制御するため添加剤が加えられてもよい。ワイパーは壁から0.7 mm のクリアランスがあり，およそ160 rpm で回転する。壁はゲージ圧が 8.2 気圧の水蒸気で加熱（170 ℃)されるか，あるいは循環オイルで加熱されてもよい。Figure 27 には濃縮スラリーとして示されている生成物は，流動性の乾燥粉末としてもよい。生成物の出口は，廃液の最終処理としてのメルターあるいはポット仮焼炉の入口に接続される。

このプロセスは模擬ＨＬＬＷ を用いて，50％ スラリー生成および流動性固体を作る蒸発に関して実証された。濃縮スラリーをホウケイ酸ガラスに直接変換することは，メタリックメルター，インキャンメルター，セラミックメルターを用いて実証されている。

オフガスには，凝縮可能な水と硝酸，非凝縮性ガス，揮発物質あるいは飛び出した固体が含まれる。

蒸発器の濃縮液がメルターに滴下するとき，メルターからの輻射熱によりスラリーが乾燥して供給管に固体が付着し，その結果管の閉塞が生じた。またメルターからオフガスシステムに固体が入り込んだが，これは蒸発器生成物に含まれる水分が多いと明らかに一層ひどくなった。メルターオフガスおよび飛び出した固体を蒸発器にリサイクルする試みが，オフガスを蒸発器濃縮液

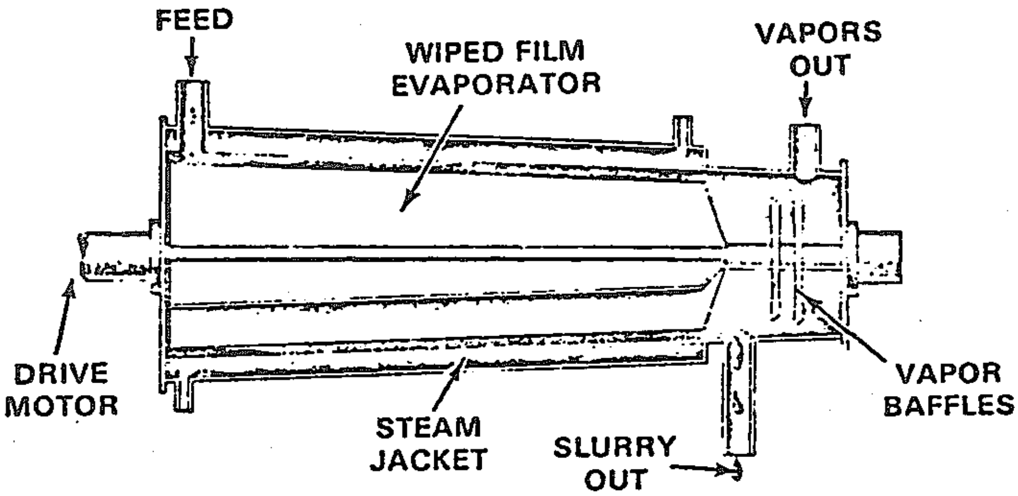


Figure 27. Wiped Film Evaporator.

の出口ノズルを通して戻すということも含めて行われた。しかしこれは，乾燥した濃縮物による管の閉塞がひどくなるだけであった。スチームエジェクターを用いて，メルターオフガスをラシヒリング充填塔を通してコンデンサーに輸送する方法は成功した。それから凝縮水およびメルターオフガスは，上昇ガスを洗浄しながら下降した。固体を含んだ還流凝縮液はスクラバーユニットから排出され，蒸発器の供給入口ノズルに送られた。

もう1つの変更点はスラリーを長さ3m，直径20cm（メルターの直径と同じ）の配管を通してメルターキャニスター内に滴下させることであった。この方式では，ガラスフリットはスラリーと一緒にメルターに添加された。メルターオフガスは，上述のようなスクラバー／セパレーターを通して蒸発器に送られた。HLLW 26.5 ℓ/hr の処理速度に対して，50g/hr の固体のオフガスへの同伴が観察された。

2.9 その他のオフガス処理システムとルテニウム吸着剤

いままで論じてきたプロセスは，実験室規模，パイロットプラント規模あるいはプラント規模で，総合オフガス処理システムで開発および試験がなされてきた。この節では揮発性ルテニウムの除去に対して開発あるいは試験された2～3の個々の装置（吸着剤）を論ずる。ルテニウム－106 はHLLW の中で最も支配的な放射性同位元素（ ci ／ℓ で）の1つである。したがって，廃液固化処理施設のオフガスから揮発ルテニウムを除去することには，特別の注意を要する。これは，一般的に言って，揮発したルテニウムは，微粉に比べてオフガスから定量的に除去しにくいという事実からも強調される。

Hanson と Kaser[44] は，廃液固化処理施設に対するオフガス処理の必要項目を最近考察し，システム設計を提出しているが，この節でもそれを調査する。

2.9.1 PNLが提案したオフガス浄化システム

Battelle PNL の Hanson と Kaser は，廃液固化処理プロセスのオフガスに含まれる微粉，NOx，ヨウ素，ルテニウムに対する個々の制御方式を調査し，どの廃液固化処理プロセスにも適用できる一般的なオフガス処理システムの設計を提案した。[54] 提案されたシステムをFigure 28 に示す。彼らの設計上の基本的な考え方には，オフガス中の固体含有量が高いかあるいは高い可能性があるという仮定，水分の除去（少くとも一部の硝酸の除去を伴なう），オフガスからのヨウ素の除去およびNOx の除去が含まれる。NOx を硝酸として回収するか触媒層でアンモニアによりNOx を N_2 に還元するかどうかという選択は残されている。

オフガス処理の第一段階はベンチュリースクラバーによる微粉除去である。スプレー仮焼あるいはContinuous inert － bed 流動床仮焼のような粉末を生成する固化プロセスが選択されるなら，Figure 28 に示すような焼結金属フィルター（SMF）がスクラバーシステムの前のラインに置かれる。その時ベンチュリースクラバーは，SMF の補助装置と考えられる。普通の流動

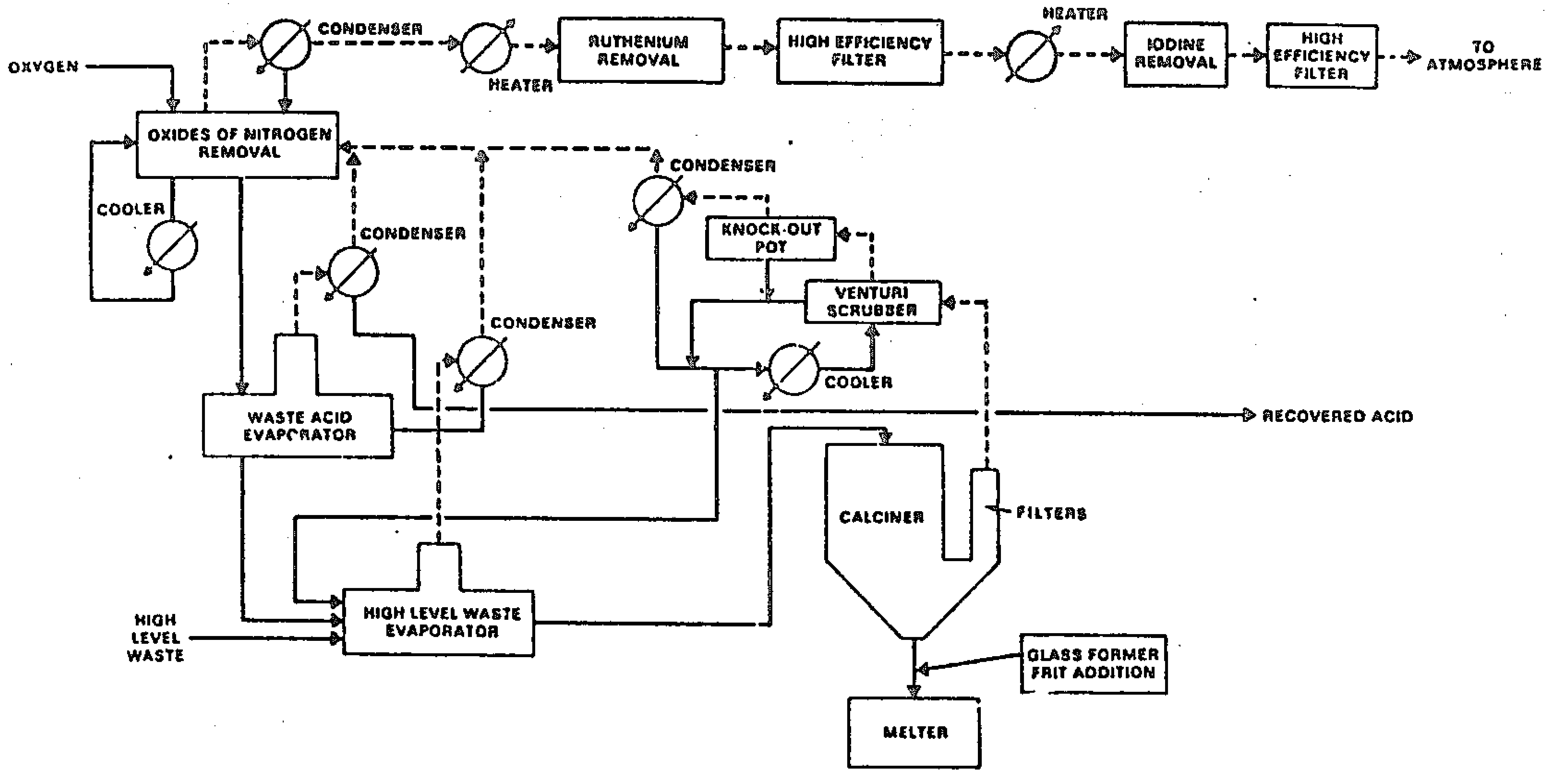


Figure 28. PNL Proposed Waste Solidifier Off-Gas Treatment System.

床プロセスに見られるように，サイクロンが最初の固体除去装置として使用される場合には，ベンチュリースクラバーは微粉の2番目の除去装置として必要である。

ベンチュリースクラバーは，冷却器を通して洗浄液を再循環して運転される。酸性洗浄液中に溶解および懸濁した固体は，定期的に，仮焼炉の蒸発器－供給システムにもどされる。スクラバーを出るオフガスラインにあるノックアウトポットでエアロゾルが除去される。必要ならば，ファイバー型ミスト除去装置がノックアウトポットの後に置かれる。

一部の水分はベンチュリースクラバーで除去される。残った凝縮性成分は，ノックアウトポット／ミスト除去装置の後に置かれたコンデンサーで除去される。チューブ側にプロセス流体が流れるシングルパス下向シェルアンドチューブ型のコンデンサーが，メインテナンスが容易である程度の固体を含有するガスが扱えるので提案されている。下向きの流れはエアロゾルを効率よく除去できしかも自己洗浄できる。

ノックアウトポットおよびコンデンサーの凝縮水のうち，ベンチュリースクラバーを働かせるのに必要以上の凝縮水は，HLLW 蒸発器を通って処理され，仮焼炉に再循環される。

次に窒素酸化物は，Figure 28 に示すように，酸化してHNO_3としての洗いおとしかまたは触媒層でアンモニアによりN_2へ還元してオフガスから除去される。もしHNO_3が洗い落されるなら，飛び出した水を除去してスクラバーに戻すために，続いてコンデンサーが必要である。

最終のオフガス浄化には，今まで述べてきた装置を通過した少量の揮発ルテニウムと微粉，そしてヨウ素の除去が含まれる。ヨウ素の除去方法はいくらかのルテニウムも除去する傾向があり（それゆえヨウ素吸着剤を害する），ルテニウム除去方法はほとんどヨウ素を捕集しないので，ルテニウムが最初に捕集される。シリカゲルあるいは加熱された酸化鉄が，ルテニウム吸着剤としての使用に提案されている。前者は露点よりもわずかに高い温度にオフガスを前もって加熱する必要がある。吸着剤から入り込むダストを除去するため，吸着剤の後にフィルターが使用され，その後ガスは加熱したヨウ素吸着剤を通過する。適用が示唆された利用可能なヨウ素吸着剤には，金属交換ゼオライト，銀浸漬不定型珪酸，酸化アルミニウムおよび酸化銀，銀および他の金属カチオン浸漬アルミナがある。

HEPA フィルターを用いた最終の微粉除去には，粒子あるいは飛び出した液滴がシステムから出ることを防ぐことが含まれている。

HLLW 蒸発器からのオフガスはコンデンサーを通過し，ここで水（および若干のHNO_3）が除去されて酸廃液の蒸発器に送られ，それからNO_x除去の前に仮焼炉オフガスと混合される。同様に，酸廃液の蒸発器のオフガスは，コンデンサーで処理されてHNO_3が回収され，最終のNO_x除去のため仮焼炉オフガスと混合される。

2.9.2 ルテニウム吸着剤

硝酸廃液の蒸発および高温固化処理で揮発するルテニウムを，オフガス中から除去するために

研究された吸着剤が，最近 Christian により調査された。[2] それ以前に相当十分な文献調査が Courtois によって行われたが，[65] 彼はフッ化物揮発プロセスにおけるルテニウムの除去に特に注意を置いた。

2つのタイプの吸着剤が揮発したルテニウムを吸着するのに主に使用されている。シリカゲルと酸化鉄をベースにしたものである。これらは2つとも，固化処理プロセスに関するさまざまな部分で述べられてきた。Hanson ら[66] と Rhodes[67, 68]は，シリカゲル上へのルテニウムの吸着について若干の初期研究を行った。除染係数1000の値が得られた。ルテニウムの破過がなくて，2000 gRu/m^3 シリカゲルという全吸着容量が得られた。空塔速度は，0.2〜0.5 m/sec の範囲内ではルテニウムの吸着に影響を及ぼさない。吸着したルテニウムの約90％が温水で洗い落される。

1000のDFが70〜100℃付近で得られる。この程度の温度は通常，流動床仮焼炉からのオフガスを露点以上にとどめておくために必要である。Alleman と Barton[69]は温度25℃，線速度0.03〜0.2 cm/sec ，ベッド高さ6.4 cmの条件で100,000 のDFを得た。

Edwards[70] もルテニウムの吸着剤としてシリカゲルを研究した。Newby と Barnes[71] は最近，流動床仮焼炉システムに対して多数の可能性のあるルテニウム吸着剤を評価した。研究された多数の吸着剤の中でも，Davison Chemical の Grade 40 シリカゲル，水和酸化ジルコニウムおよび酸化鉄（加熱）が1000あるいはそれ以上のDFを有することがわかった。シリカゲルは，再生可能（温水で洗う）で操作温度が低温であるので，施設でのその使用が推薦された。

水和酸化ジルコニウムは，再生できるが，不注意に露点以下の湿気にさらされると固まる傾向があるので，推薦されていない。研究された中で適用が受け入れられなかったものは，フェノール系イオン交換樹脂，スチレン－ジビニル－ベンゼンイオン交換樹脂，耐酸性モレキュラーシーブ，多孔性ガラス，浸漬アルミナ，亜硫酸銅イオン交換材，および酸化ジルコニウム水和物－ジチオネートイオン交換材であった。これらはルテニウムの除染係数が満足いかなかったり（DF＜1000），あるいは仮焼炉の模擬オフガスに対して化学的に抵抗性がなかった。

Rastogi らは，[72] 酸化鉄でコーティングされた珪酸吸着材への揮発ルテニウムの保持について研究した。線速度0.046 m/sec，塔温度350℃の条件で，99.9%の効率（DF＝1000）が得られた。

シリカゲルに関する彼らの十分な研究の他に，Hanson らも[66]他のいくつかの可能性のある吸着剤について実験室規模の研究を行ったが，その中には焙焼アルミナ，活性アルミナ，ポリエチレン，モレキュラーシーブ，ステンレススチールがある。層高66 cm の活性アルミナとLinde Type の4Aおよび5Aモレキュラーシーブが115℃でかなり良好なDFを示したが，これらの吸着剤は仮焼炉オフガスで化学的に腐食した。焙焼アルミナは，同様な条件で，110 のDFしか示さなかった。Marlex（Phillip's family のポリオレフィンの商品名）は100℃において，カラム高さ58 cmで200〜426のDFを示し，仮焼炉模擬オフガス中で安定であった。14 g

Ru／m^3 の負荷でルテニウムの破過は観察されなかった。吸着剤は再生できない。 301ステンレススチールでは，115 ℃ でガス流中からルテニウムを除去できなかった。Carpenter － 20 Yorkmesh は80 ℃において，層高34cmの条件で130～225 のDFを示した。

Ortins de Betteneourt とJouan[73, 74]は，揮発性ルテニウムの捕集に対して，酸化鉄でコーティングされたガラス粒子を450～500℃で使用することを推薦している。これは，フランスのPIVER （2.3.3項）とロータリー•キルン（2.5節）プロセスの中に組み込まれたものである。

Courtois[65] は，乾燥ガス中からRuF_5 (g) を除去するのに効果的な吸着剤について文献データを調査した。RuF_5 と複合体を作る無機フッ化物を含むグループはここでは論じない。調査された他のものは，RuO_4(g) の吸着のために研究された物質であった。その中には本書の他のところで論じているものがあり，その結果はここでは繰り返さない。Courtoisにより調査された残りの物質の中でも多くは，第1に揮発したルテニウムに対して得られたDFが小さいので（実質的に1000 以下），実用的でない。調査された特別な物質は，スチール，アルミナ，ナトリウムおよびカルシウムの結晶性アルミノシリケート，活性炭，酸化鉄，シリカでサポートされた酸化鉄，（他の）金属酸化物，ポリエチレンおよびシリカゲルである。ルテニウムに対して高いDF （1000に達する）を有し，本書の他のところで論じていない物質の研究結果をここで論じてみる。

結晶性のナトリウムアルミノシリケートは，115℃で715のDFを有しているが，その容量はわずか7gRu／m^3 しかない。結晶性のカルシウムアルミノシリケートは，115℃で800のDFを有し，その容量は3.9 gRu／m^3である。これらの物質は浸出によるルテニウムの回収には適していないが，ルテニウム化合物以外の他の化合物を吸着する様である。

活性炭は飽和に達する前に，活性炭1g あたり0.2g のRuO_4を捕集する。[75]しかし，数分後に活性炭は炎とともに爆発する。DFは得られなかった。

Rastogi とSehgal[76]は，酸化鉄は300℃ において，揮発したRuO_4の保持に効果がないと報告している。しかし，この章の初めに述べたように，Newby とBarnes[71]は，硝酸溶液から400 ℃ で揮発したルテニウムが400℃ で効率よく保持される結果を得た。

Rastogi と Sehgal[76]は，酸化鉄がシリカでサポートされた時良好な保持を得た。揮発したルテニウムは表面でRuO_2に還元され，そこで固定される。固定されたRuO_2はガス種の分解に対して触媒として働く。効率が99％以上であるためには温度は200℃ 以上でなければならない。[77, 78] フィルター効率は温度の上昇とともに増加する。Bancroft ら[76]は，300～800℃の温度範囲で，ガス線速度が20倍増加しても（0.009～0.18m／sec），RuO_4の固定には影響がないことを見い出した。しかし，これらはかなり低い線速度であり，この結果は，酸化鉄の0.21m／sec での効率が0.12m／sec の効率より著しく低いという結果[71] と一致するものである。イギリス[80] では，150 ℃と250℃の間では温度の影響がないことが見い出された。

200 ℃ では，吸着層の最初の 2 cm のところで RuO_4 の 73 % が分解する。[78] 320 ℃では，容量はろ過物質の単位m^3 あたり 57,000 g RuO_4（あるいは 29,000 g Ru/m^3）以上である。[76]

3. 高レベル廃液の固化プロセスにおける オフガス処理システムの評価

この章では，第2章で述べたオフガス処理システムを，プロセス気体廃棄物の除去に関する測定又は予想性能の面から批評的に検討する。

問題とする放出物には，放射性の微粉子やエアロゾル，揮発したルテニウムやセシウム，蒸発した放射性ヨウ素及びNOxが含まれている。いくつかの高温固化プロセスのオフガス中には，蒸気種としてセレンやテルルも観察されている。高温プロセスでは，テクネチウムやアンチモンも潜在的揮発性核種である。しかしこれらの挙動の研究結果ないしはオフガス流からの除去結果については，報告されていない。オフガス処理システムの設計や仕様に影響を与えるオフガス主成分は水蒸気である。

浄化系の評価をするための基準を評価した後，粒子や揮発性核種のオフガスからの除去性能について測定値や予想値から各プロセスを検討する。この評価では，固化ユニットから放出される流出物量やオフガス成分の除去効率を考慮に入れ，そして見積ったスタックからの放出量を許容放出速度と比較する。

オフガス処理システムの多くについては，様々の流出物の除去効率は測定されていない。系全体の性能評価をするため，問題とする種々の核種に対する個々の代表的機器の特有の除染係数(DF)[a]を調査する。

総合のオフガス処理系を考える際，必要があれば，各機器の概略のDFを使用する。

3.1 気体廃棄物の除去必要量

総合のオフガス浄化システムの適正さを評価するためには，様々のオフガス成分について要求されるDFの見積りが必要である。このことは，いい換えれば，各成分の処理速度及び最大許容放出速度が既知である事が必要である。処理速度はかなり信頼性よく評価されうるが，許容放出速度は充分明確でない。

ここでは，様々のオフガス処理システムの仕様を評価する際の助けとなるように簡単な論究をする。この論究は米国における条件と，現在及び予想される要求に基づくものである。

3.1.1 処理速度

ERDAのために用意され，Battelle PNLが整合したCommercial Waste Management Statement（CWMS）に述べられている標準廃液固化施設のフローシートは，燃料と廃棄物の処理速度が1日当り，ウランないし，これと等価な重金属$6\frac{2}{3}$トン(MTHM)[b]ということに基

a　機器の除染係数 = 入口濃度／出口濃度

b　MTHM = 原子炉に装荷した燃料量の重金属のメートリックトン

づいている。廃液固化施設のオフガス処理システムを評価するため，ここでは，この速度を処理速度として仮定しよう。

CWMS での仮定は，それはここでも用いるのであるが，燃料が炉から取り出されて1・1/2年後にHLLWが固化され，燃料の燃焼度が28,700 MWd[a]／MTHM であるということである。HLLW の仮焼炉への供給濃度は，379ℓ/MTHM（100 gal／MTHM）と仮定されている。これらの状況の下で，廃液固化施設へ供給される潜在的に気体状の放射性流出物と主要な気体廃棄物の相対的な存在量（アクティビティ）を，Tabe 2 にまとめた。

揮発性及び潜在的揮発性核種の質量が与えられているので，浄化装量の容量を必要なところで評価できよう。Rh －103mとRh －106は各々Ru－103とRu －106 の短寿命娘核種であり，それらのアクティビティは，本質的に，Ru の経路によるであろう。

濃縮されたHLLW は，使用済み燃料中の全トリチウムの8％を HTOの型で含有すると仮定している。現在，再処理及び廃液固化施設において，トリチウムの規制について何ら特別な要求はない。それゆえ，現在の設計では全トリチウムが放出可能と考える。しかし，将来のプラントにおいてはトリチウムの回収が必要かもしれない。

HLLW 中に存在すると見なされるKr － 85 は全Kr －85の10^{-6} にすぎず，その全部を放出しても，クリプトンが回収される場合でさえ，再処理からの放出量に比べて無視出来るであろう。

HLLW 中のヨウ素は，使用済み燃料中に存在する量の0.1％ であり，いかなる高温固化プロセスにおいても100 ％ 蒸発するであろう。ルテニウムはCi／MTHM で表わしてHLLW 中に最も多く含まれるが，固化中に0.002%から実質上100 ％ まで揮発する。この揮発は，プロセス，温度条件，加熱方式，雰囲気ガス組成その他に依存する。その高い全放射能のため，揮発のコントロールとオフガスから揮発した量を除去する事がたいへん重要である。実際のプロセスにおいては，揮発は確実に10％ 以下，好ましくは1％以下に低く保たなければならないであろう。

リン酸ガラスプロセスにおいては，供給廃液中のSe やTe の数％が揮発する事が観察されている。非常に高温のプロセス（1000℃付近）においては，少量のCs が揮発するであろう。これもまたHLLW の主放射性成分である。

HLLW の溶解，懸濁成分のほとんど全てが，仮焼／ガラス化中に固体に変換されうるであろう。固体の質量及び放射能に影響を与えうる唯一の潜在的揮発性核種はRu である。もしRu の揮発が妥当な低さ（＜10％）であるならば，固体成分の変化は重要でないであろう。仮焼体の全放射能は1×10^{6} Ci／MTHM であろう。

Table 2 に示した固体及び潜在的揮発性核種は，HLLW 中に存在する放射能のほとんど全てを表わしているが，他の多くの核種も存在する。Cm－244 は全放射能の0.6％ に過ぎないが，

a MWd ＝ メガワット・日

TABLE 2

RADIOACTIVE PRODUCTS INTRODUCED TO WASTE SOLIDIFIER FROM HLLW[a]

Isotope	$t_{\frac{1}{2}}$, yr	Quantity	
		Ci/MTHM	g/MTHM
Volatile:			
H-3	12.33	33	3.5×10^{-3}
Total H	-----	33	3.5×10^{-3}
Kr-85	10.73	8×10^{-3}	2×10^{-5}
Total Kr	-----	8×10^{-3}	3×10^{-4}
I-129	1.59×10^{7}	3×10^{-5}	0.2
Total I	-----	3×10^{-5}	0.3
Potentially Volatile:			
Se-79	6.5×10^{4}	0.34	4.9
Total Se	-----	0.34	44
Tc-99	2.13×10^{5}	13	7.4×10^{2}
Total Tc	-----	13	[illegible]4 x 10^{2}
Ru-103	0.1084	72	2.2×10^{-3}
Ru-106	1.01	1.8×10^{5}	54
Total Ru	-----	1.8×10^{5}	2.0×10^{3}
Rh-103m[b]	56 min	72	
Rh-106[b]	29.9 sec	1.8×10^{5}	
Te 123m	0.3275	1.5×10^{-2}	1.8×10^{-6}
Te 127m	0.298	4.2×10^{2}	4.5×10^{-2}
Total Te	-----	4.2×10^{2}	5.2×10^{2}
Sb-124	0.1648	0.68	3.9×10^{-5}
Sb-125	2.73	5.7×10^{3}	5.5
Sb-126m[b]	19.0 min	0.54	6.8×10^{-9}
Sb-126[b]	12.4 days	0.53	6.4×10^{-6}
Total Sb	-----	5.7×10^{3}	15
Cs-134	2.06	1.2×10^{5}	91
Cs-135	2.3×10^{6}	0.31	2.7×10^{2}
Cs-137	30.1	9.1×10^{4}	1.1×10^{3}
Total Cs	-----	9.3×10^{4}	2.4×10^{3}

TABLE 2 (Continued)

RADIOACTIVE PRODUCTS INTRODUCED TO WASTE SOLIDIFIER FROM HLLW[a]

Isotopes	$t_{\frac{1}{2}}$, yr	Quantity	
		Ci/MTHM	g/MTHM
Potential Solids (Major Activities, Only [c]):			
Ce-144	0.7787	2.4×10^5	
Pr-144[b]	17.28 min	2.4×10^5	
Sr-90	29	6.0×10^4	
Y-90[b]	64.0 hr	6.0×10^4	
Cm-244	17.9	7.0×10^3	
Total Solids		1.1×10^6	6.5×10^4[d]

[a]28,700 MWd/MTHM burnup, 1½ years after discharge from reactor, 379 ℓ/MTHM. Isotope quantities are from the CWMS which is in preparation. They were tabulated by M. J. Steindler, Argonne National Laboratory, using the ORIGEN Code developed at Oak Rige National Laboratory.

[b]These isotopes are supported by longer-lived parents.

[c]In addition to those listed as potentially volatile (RuRh-106 and Cs-137).

[d]In calcined form; if intermediate level liquid waste (ILLW) is blended and calcined with HLLW, 1.0×10^5 g. calcine/MTHM will be formed. ILLW will contribute negligible activity to the calcine.

許容放出速度はたいへん小さいので，放出オフガスの固体浄化の必要度に影響を及ぼす。（3.1.2参照）あとの考察のためにこれをTable 2 に示した。

高温固化プロセスで生じるオフガス中には，硝酸塩の分解に起因するNOx が発生するであろう。HLLW には，硝酸根が約 2×10^3 moles／MTHM含まれるであろう。仮にHLLW に ILLW を混合するならば，供給廃液には約 3×10^3 moles／MTHM の硝酸根が含まれよう。仮焼炉から発生するNOx の量は，代表的なスタックガス流量 52 m^3/sec で 60～100ppm のオーダーであろう。このうちいくらかは，オフガス浄化機器で除去されるであろう。

3.1.2 許容放出速度

原子力規制委員会（NRC）は連邦規制コード 10CFR 20[81]を設定したが，これはNRCにより発せられた許認可の下での放射能から生じる放射線の危険に対する防護の基準を示したものである。環境保護庁（EPA）もウラン燃料サイクル施設の規制に関するNRCのための基準，ある場合には，10 CFR 20 スタンダードよりも厳しいものである，を作りつつある。EPAスタンダード[82]は，部分的には，完全なウラン燃料サイクルからの全放射能放出量の考察に基づくものである。例外もあるが，EPAによって設定される一般的基準は，ウラン燃料サイクル操作からの放出による公衆への年間被曝線量を，人体に対し 25 mrem，甲状線で 7.5mrem，他の器官で 25 mrem と規制するであろう。燃料サイクルで発生する電力のGW・年当り，ウラン燃料サイクルから一般環境へ入り込む同位体の最大量として，Kr－85 で 5×10^4 Ci，I－129 で 5×10^{-3}Ci，Pu－239 と他の半減期が1年以上のα放射超ウラン核種との混合物に対し 5×10^{-4}Ci という特別な制限が設定されている。EPAはまた，C－14 に対する基準を，後日他の長寿命放射性核種に対する提案を考慮してまもなく作ることを予期している。

NRCは，様々の燃料サイクル施設に，EPAで許容される年間被曝線量を配分する方法をまだ設定していない。また，EPAは多くの放射性同位体に対し基準を設定していない。NRCにより発行された 10CFR 20 スタンダードは現在のところ，様々の同位体についての相対的なプロセス浄化の必要度を計算するための唯一の有用な数値であり，ここでは，制御を必要とする同位体をふるい分け，それらの放出速度の上限を設定するために用いる。Kr－85，I－129及び超ウラン元素に対するEPA の特別基準もまた，オフガス浄化の必要度を評価する際，実際的なところで考慮に入れる。

NRC の基準は，個人が絶えず被曝する大気中に蓄積している自然放射線量を越えた年間（最大）で平均した最大許容濃度の形で一部表わされている。各同位体に与えられた最大許容濃度はその同位体がその領域で放出される唯一の核種であるとの仮定に基づいている。2種以上の放射性核種が存在する場合には，規制値は次の関係式より導かれる。

$$\Sigma \frac{Ci}{(MPC)i} \leq 1 \qquad (1)$$

ここで，Ci はi 番目の放射性核種の濃度，（MPC)i は，i 番目の核種単体についてのコードの最大許容濃度である。

10 CFR 20[81] における"可能な限り低く"という条項が放出速度について付加的な規制を設定している。それの要求する所は，もし表に示されたMPCsで許容される値以下に放出量を実質的に減少できる実用的かつ経済的な手段があるのならば，これを用いなければならない事である。

制御されない領域に対する個々の同位体の濃度は，原子力施設のサイトの境界で許容される最大値としてよい。スタックから放出されるガス中の最大許容濃度は，スタックの放出点とサイトの境界との間での希釈係数によって，サイトの境界に対して規定された値と関係づけられる。希釈係数はサイトに特有であり，気象条件，大気の安定性と他の時間に依存するパラメータ，スタックからの半径方向と距離，及びスタックの高さその他に依存する。大気拡散データは通常X／Qの項で報告されている。ここでXは，プラントのスタックでQの放出速度から生じた地上での濃度である。希釈係数はこれらと次の式で関係づけられる，

$$D = 1/(X/Q) \times F$$

ここで，Dは希釈係数，Fはスタックガス流速である。

サイトの境界に対するX／Qの値を用いて，制御されない領域での最大許容濃度から放射性核種の最大許容放出速度を計算することができる。これらの許容値に関して，予想又は測定放出速度をひかえめに比較するために，サイトの境界でのX／Qは最も控え目な高い値を使用すべきである。Russell とGalpin[83]は，NFS（West Valley)，AGNS（Barnwell)，及びGE(Midwest)の再処理施設に対し，最大サイト外年間平均X／Qを表にしている。

最近，Kullenらは，[84]これらのプラントにおけるトリチウムの放出速度の評価を報告し，% MPC に関連づけた。これから，制御されない領域中のトリチウムについての 10CFR 20 の値（2×10^{-7} Ci／m^3）を用いて，X／Qを推測することが出来る。これらの二つの報告から得られた値をTable 3 に要約して示す。

2つの文献の間で大きく異なるのは，NFS プラントだけである。大きい方の値がより新しいデータから得られたものである。廃棄物を考えるとき，例えばCWMS において，Barnwell 施設が，標準ケースとして一般に使用されている。サイトの境界で 1×10^{-7} sec m^{-3} というX／Qの値を，廃液固化施設からの放射性核種の放出速度を評価するために仮定しよう。Barnwell 施設，全スタックガス流速が 52 m^3/secであるが，においては，これは 2×10^5 の希釈係数に相当する。

様々の同位体の可溶物と不溶物，および半球状の無限の雲の中に没する永久ガス成分に対し，10CFR 20 にMPC 値が報告されている。Table 2 に示した同位体の各々に対し，制限MPC すなわち可溶物，不溶物およびガス種の濃度制限値の中の最小値をTable 4 に示す。用心深く考えて，施設における最大放出速度は，最大許容速度の1／10を越えるべきではなく，この最小基

準値をオフガス処理システムを評価するために用いる。スタックからサイトの境界の地面までの X/Q を $1\times10^{-7}\mathrm{sec\,m^{-3}}$ と仮定して，最大許容放出速度の1／10の値を各同位体に対し計算し，その結果をTable 4に示した。それから，廃液固化施設へ入る各同位体の一日当りの量（Table 2からのデータ）を用いて，最小所要フィード対スタックDFの10倍を計算し表に示した。また潜在的揮発性核種の最大許容揮発量の1／10を，揮発した物質が完全にスタックガス中に放出されると仮定して示した。

TABLE 3

DISPERSION DATA FOR U.S. COMMERCIAL REPROCESSING PLANTS

Facility	χ/Q, sec m^{-3} Maximum Offsite Annual Average, Ref. 83	Ref. 84
AGNS (Barnwell)	5.7×10^{-8}	2×10^{-7}
NFS (West Valley)	4.1×10^{-8}	3×10^{-6} inversion 2×10^{-6} average
GE (Midwest)	2.8×10^{-8}	4×10^{-8}

Table 4に示した1より小さい所要DF値及び100以上の最大許容揮発パーセントは，もちろん物理的意味はない。しかし，それらはこれらの同位体に対して存在する安全係数の指標を与えるために入れておいた。

10 CFR 20MPC 値の1／10以下の濃度に維持するという最低の基準に対して，スタックでの最大許容放出速度（MPRR)の1／10が，単一同位体に対して適用されるが，これは他の全て（再処理プラントでの他の放射能からの放出を含めて）がそれぞれの1／10 MPRRより非常に小さい場合である。全体としては，

$$\frac{\sum_i (RR)i}{\sum_i (MPRR)i} \leq 1/10 \quad すなわち \quad \frac{\sum Ci}{\sum_i (MPC)i} \leq 1/10$$

を守らなければならない（RRは放出速度）。再処理操作から放出されるガス状核種（H－3，C－14，Kr－85，I－129)のうち，Kr－85のみが，1／10 MPRRに近づくか越えるであろう。H－3，C－14，及びI－129の全放出は各々，各1／10 MPRRsの14，3×10^{-5}，及び13%という結果になろう。Krの全量放出はMPCの20%又は1／10 MPCの2倍というサイト境界濃度となり，他の核種の放出はそれらの1／10 MPRRよりかなり低いことが

TABLE 4

MAXIMUM PERMISSIBLE RADIOACTIVE RELEASE QUANTITIES FROM WASTE SOLIDIFIER

Isotope	Limiting MPC, μCi/ml[a]	1/10 Maximum Permissible Release Rate at Stack, Ci/day[b]	10x Minimum Required Feed-to-Stack DF[b,c]	1/10 Maximum Allowed Volatility, %, for Complete Release
Volatile:				
H-3	2×10^{-7}	2×10^{4}	1×10^{-2}	8×10^{3}
Kr-85	3×10^{-7}	3×10^{4}	2×10^{-6}	5×10^{7}
I-129	2×10^{-11}	2	1×10^{-4}	8×10^{5}
Potentially Volatile:				
Se-79	1×10^{-10}	9	3×10^{-1}	4×10^{2}
Tc-99	2×10^{-9}	2×10^{2}	5×10^{-1}	2×10^{2}
Ru-103	3×10^{-9}	3×10^{2}	2	6×10^{1}
Ru-106	2×10^{-10}	2×10^{1}	7×10^{4}	1×10^{-3}
Rh-103m	2×10^{-6}	2×10^{5}	3×10^{-3}	4×10^{4}
Rh-106	$>1 \times 10^{-10}$	>9	$<1 \times 10^{5}$	$>7 \times 10^{-4}$
Te-123m	1×10^{-10}	9	1×10^{-2}	8×10^{3}
Te-127m	1×10^{-9}	9×10^{1}	3×10^{1}	3
Sb-124	7×10^{-10}	6×10^{1}	8×10^{-1}	1×10^{2}
Sb-125	9×10^{-10}	8×10^{1}	5×10^{2}	2×10^{-1}
Sb-126m	$>1 \times 10^{-10}$	>9	$<4 \times 10^{-1}$	$>2 \times 10^{2}$
Sb-126	$>1 \times 10^{-10}$	>9	$<4 \times 10^{-1}$	$>2 \times 10^{2}$
Cs-134	4×10^{-10}	3×10^{1}	2×10^{4}	4×10^{-3}
Cs-135	3×10^{-9}	3×10^{2}	8×10^{-3}	1×10^{4}

TABLE 4 (Continued)

MAXIMUM PERMISSIBLE RADIOACTIVE RELEASE QUANTITIES FROM WASTE SOLIDIFER

Isotope	Limiting MPC, µCi/ml[a]	1/10 Maximum Permissible Release Rate at Stack, Ci/day[b]	10x Minimum Required Feed-to-Stack DF[b,c]	1/10 Maximum Allowed Volatility, %, for Complete Release
Cs-137	5×10^{-10}	4×10^{1}	1×10^{4}	7×10^{-3}
Potential Solids (Major Activities in Addition to Those Above):				
Ce-144	2×10^{-10}	2×10^{1}	9×10^{4}	
Pr-144	$>1 \times 10^{-10}$	>9	$<2 \times 10^{5}$	
Sr-90	3×10^{-11}	3	2×10^{5}	
Y-90	3×10^{-9}	3×10^{2}	2×10^{3}	
Cm-244	3×10^{-13}	3×10^{-2}	2×10^{6}	

[a]Limiting MPC = smallest of maximum permissable limits for soluble, insoluble, and gaseous species.

[b]Assumes χ/Q from stack-to-ground at site boundary = 1×10^{-7} sec m^{-3}.

[c]DF = decontamination factor; feed rate: HLLW from 6 2/3 MTU/day of fuel irradiated to 28,700 MWd/MTHM and cooled 1 1/2 years.

要求されるであろう。もしKr の90% が溶解槽オフガスから分離されるならば，他の核種の放出制限は厳しくないであろう。この事は，廃液固化装置からのオフガス放出を評価する際仮定されるであろう。また，燃料再処理オフガスからスタックに逃げるRu－106は，0.001%以下であることも必須である（0.001%放出は，MPRR の1／10の60% になるであろう）。

Cm－244は，オーダーから言って，10CFR20 濃度規制に適合するために必要な全フィード対スタックDFで示すと，HLLW 中に存在する最悪の同位体である。したがって，もし固化装置のオフガスシステムが，Cm－244 に対して必要なことを満足するため十分微粉が除去できるように設計されるならば，生成される他のすべての固体を除去するには十分であろう。サイトの境界でMPCの1／10 を満足するためには，必要な最小フィード対スタックDFは2×10^6である（Cmは仮焼炉の中で固体として生成し揮発性ではない）。

HLLW 中に存在する揮発性核種は，Table 4の仮定及び基準に従い全て放出されるであろう。潜在的揮発性核種のSe と Tc もまた全て揮発し放出されるかもしれない。その場合，これらの成分全てに対しては，既知の際には，それらの流路を記述する以外は，個々の廃液固化装置のオフガス処理システムについて批評的評価をしないであろう。

Ru－103 及びRu－106 の短寿命娘核種である Rh は，それ自身は揮発性ではないが，揮発したRu によって，Ruの放射能と同じRh娘核種のエアーボーン放射能を生ずるであろう。しかし，Ruに対して必要な除去は同伴するRhに対しても十分であり，Rh に対し何ら特別な考慮をする必要はない。

半揮発性同位体は，廃液固化装置中である程度揮発するけれども，多くはすぐに凝縮し，仮焼炉外の冷却領域内で除去される。実際，それらの揮発性に関する観察は，洗浄溶液及び凝縮液を分析することによってなされた。したがって，たとえあるプロセスにおいて，これらの同位体のあるものが著しく揮発するとしても，これらは，スタックに放出される重要なエアーボーンガス核種にはならず，10CFR20MPCsを満足させるのに特別な考慮をする必要はない。Ruは，1つの例外である。ある条件下で，Ruはオフガス系の冷却領域においても依然として安定なガス形態を維持し，ガスとして放出される可能性がある。このため及び最小所要フィード対スタックDFが大きいため，様々の廃液固化プロセスにおけるRuの流路に特別の注意が払われる。

10CFR20MPCsに基づく上述の評価から，廃液固化プロセスでの放出制御の面で，Ru－106とCm－244 に最も注意を要するという重要な点が明らかになった。Ruに対しては，EPA スタンダード[82]との直接比較はできないが，超ウラン元素に対してはEPAによって明確な規制がなされている。その許容するところは，半減期が1年以上のすべてのα崩壊超ウラン元素の最大混合放出量が全燃料サイクルで0.5 mci／GWeyr[a] ということである。Cm－244は7.0×10^3 Ci／MTHMで，Ci／MTHMで表わすと最も存在量が多い超ウラン同位体であり，1.5年HLLW に存在する他の超ウラン元素の8.4 倍になる。もし超ウラン元素の大部分が固化プロセスにおいて発生し，安全係数を 10とすると，EPAスタンダードにより許容される固化

装置のガス流中のCm－244の最大放出速度は，1.3 μCi／MTHMと計算される。これは，CWMSで用いられた燃料所要量40MTHM／GWeyrに基づくものである。この放出速度は，8.3 μCi／dayに相当し，10CFR20の1／10MPCで許容される値の3.1×10^3倍低い。これは，10CFR20のMPCの1／10で要求される2×10^6と比較して，フィード対スタックDF 6×10^9を要することになる。

Kr－85とI－129について同様の仮定をして計算すると，燃料再処理施設からのこれらの同位体の放出について，EPAスタンダードは10CFR20MPCsよりそれぞれ約40倍，2.4×10^4倍厳しいことがわかる。もちろんこれは，廃液固化装置のオフガスからKr－85を除去することを強いるものではないが，しかしI－129の除去を必要とする境い目にある。I－129に対するEPAスタンダードの1／10では，全燃料サイクルに対して約13 μCiのI－129／MTHMの放出が許されるであろう。HLLW中のヨウ素は，燃料中に生成される全ヨウ素の0.1％であると仮定すると，30 μCi／MTHMの濃度に相当する。これは，I－129に対するEPAの全放出制限値の1／4である。現在開発された廃液固化システムにはヨウ素の除去を入れているものはない。したがって，ヨウ素の制御に関する個々の評価はこの調査では行わない。

上述のCm－244についての比較から，EPAの基準が効力を発起するとき（1979年12.1），廃液固化プロセスにおける粒子の封じ込めに対して非常に厳しい要求がでることがわかる。Kr－85とI－129以外の，ルテニウムやその他の揮発性および潜在的揮発性核種に対するEPAの放出制限は現時点では設定されていないが，それらも10CFR20MPC規制が課す以上に厳しいものになりそうである。しかし，この時点で推測することは出来ないので，この調査では，プロセスガス流出物の特性を評価するのに，将来あまりにもゆるすぎることになるかもしれないことを認めた上で，10CFR20MPCsを用いることにする。もちろん，10CFR20のALARAの条項により，もし実際的かつ経済的手段が放出量をより少なくするために使えるのならば，10CFR20のみならずEPAによる設定基準以下の放出規制が必要である。実際，原子力施設の設計には，10CFR20やEPAスタンダードに加えて，ALARA条項を用いなければならない。

要約すると，異なるプロセスを評価するのに用いられる放射性核種に対する最小所要フィード対スタックDFは，飛び出した微粒子やエアロゾルに対して6×10^9，揮発Ruに対し7×10^4である。これらのDFで，新しいEPAスタンダードによる許容速度の1／10に等しい微粒子の放出速度およびRu－106の10CFR20における最大許容濃度の1／10に相当するサイト境界でのRu濃度になる。

NOx放出制限は，放射性核種に対するものと同様にあいまいなものである。環境保護庁は大気について0.05 vol ppmの値を定めている。[86,87] スタックガス中の濃度が100ppm（3.1.1項

---

a　GWe ＝ ギガワット電力

参照），スタックから地上までの希釈係数が2×10^5（この章のはじめに仮定した）とすると，NOx を全量放出しても空気中濃度は0.5 ppb であり，これは基準より2桁低いものである。NOx の放出には，地域の要請からさらに制限が加わるかもしれない。たとえば San Diego 地方では，スタックガス中の濃度を最大 250 ppm と制限しており，この値は再処理施設スタックガス中の実際の最大可能濃度に近いものである。この濃度は，新しい施設が現在の大気の性質に著しい変化をもたらさないときにのみ，その施設に適用されるであろう。したがって，地域によっては，仮焼炉からのNOx を除去又は分解しなければならないようである。

3.2　オフガスシステム機器の除染係数

オフガス処理装置は，オフガス流から，微粒子，揮発ルテニウム，NOx 及び水蒸気を除去するために用いられる（NOxとH_2Oがスタックへ放出されるシステムもある）。3.1.3 項で論じたように，この目的に必要な装置はまた，セレン，テクネチウム，テルル，アンチモンおよびセシウムのような他の半揮発性同位体を除去するのにも有効である。ただし，その効果の程度は明らかでない。

ガス流からの粒子の分離と除去に第1に用いられる装置には，サイクロン，焼結金属フィルター（SMF），スクラバー特にベンチュリースクラバー及びHEPA フィルターがある。スクラバーではエアロゾルができるが，これはほとんどその後にあるデミスターと除去装置で除去される。Ru の除去は主に，シリカゲル又は酸化鉄吸着剤で行われる。スクラバーとコンデンサーで，揮発ルテニウムの一部が除去されるので，吸着剤は過負荷にはならないだろう。NOx は洗浄で一部除去でき，若干の硝酸が回収できるが，加熱触媒層でNH_3 によりN_2とH_2O に還元することにより，十分な除去が行える。水は，もし回収するならば，コンデンサーで除去できる。スクラバーでは冷却と一部の凝縮もできる。

ある特定の流出物の除去に特別の装置が使われるが，それはまた他の成分を一部除去することもできる。例えば，微粉除去のために用いられるベンチュリースクラバーは，それに入る揮発 Ru の約90% を除去するであろう。コンデンサーは，微粉や揮発Ru を除去するであろう。そして，NOx の触媒還元はおそらく，揮発Ru も還元し除去するであろう。

個々のあるいはグループとしてのオフガス処理装置について，性能特性が全部ではないがいくつかのプロセスシステムに対して測定されている。したがって，試験されていないシステムの効率を評価するためには，構成機器に対して存在するデータを評価することが必要である。ある装置の効率は，システムにおけるその位置あるいは固化プロセスに，すなわちオフガス組成に依存するのは事実である。よってこの評価は近似的なものにすぎない。いろいろなオフガス浄化装置について，揮発Ru，微粒子，NO_2 および NOの代表的なDF をTable 5 に示す。これらは第2章で述べた多くの固化プロセスについての公開データに基づく評価である。揮発Ru に対するDF は，Christian(2) の調査から多くを引用した。Newby，Thomas および Barnes は，ガスにアン

モニアを混合してゼオライト触媒層を通すNOx 変換器での揮発Ruの除去について，予備的な結果を得ており，その結果[88]を用いた。

スクラバー及びコンデンサーのＤＦには，付属のデミスターも含まれる。これらの湿式凝縮装置ではおそらく，直径１μm以上の粒子に対し10^3までのＤＦがあるが，小さな粒子に対しては，除去効率はかなり急激に落ち込む。これらの装置はミクロン以下のエアロゾルを生成する傾向があり，それ以降の微粉の負荷に影響を及ぼす。微粉について表に示した約100という安全側のＤＦは，これらの装置の実経験に近いものである。

焼結金属フィルター（ＳＭＦ）のＤＦはおそらく，５μm以上の直径の粒子に対しては10^3以上，５μm以下の直径の粒子に対しては，約$10 \sim 10^2$である。WSEPプログラム[16]でのスプレー仮焼炉に取りつけられたＳＭＦの全ＤＦは10^3であった。したがって，おそらく粒子の10%程度が，たぶん直径５μm以下であっただろう。Bjorklund[89]もまた，流動床仮焼炉及びスプレー仮焼炉に接続したSMFに対して10^3を越すＤＦを得た。

全ルテニウム（揮発ルテニウムとは相対する）のＤＦが種々の装置について報告されているプロセスもいくつかある。その値は，特定のプロセスの評価には役立つが，他のプロセスにおけるRu放出を評価するのに，Ruの揮発データと結びつけて用いることができない。

NOx 変換器は加熱した触媒層であり，そこをオフガス中のNOxとアンモニアとの混合物が通過する。NO_2とNOに対して100以上のＤＦがある。

3.3 流動床仮焼

3.3.1 ＩＣＰＰの流動床プロセス

Christian と Rhodes[37]はWCF の運転データを解析し，民間のＨＬＬＷが同様の施設で仮焼される際の粒子と揮発ルテニウムについて除染係数を評価した。その結果をTable 6 に要約して示す。第２HEPA フィルターが，Figure 2 に示すオフガス機器に追加されている。

NWCF オフガスシステムにおいても，ミスト除去器を備えたコンデンサーが組み込まれるであろう。こうすることにより，揮発ルテニウムと微粉に対し約100のＤＦが加算されるであろう（Table 5 参照）。

スクラバーとコンデンサーでは，NOxはあまり除去されないであろう。なぜなら，内部燃焼加熱方式では，仮焼炉から発生するNOxの主成分は，湿式系で除去するのが困難なNOであるからである。[8]

Christian と Rhodes[37] が調査した設計のプラントでは，微粉と揮発ルテニウムに対し，最小所要値（3.1.2項）をそれぞれ30倍，7×10^3倍越えるＤＦが得られるであろう。この設計には，NOx除去は考慮されていない。民間施設では，NOx除去がおそらく要求されるであろう。もし除去が，硝酸への転換を意として酸化，洗浄されることによりおこなわれるならば，全ＤＦは，微粉で約100 揮発ルテニウムで10のＤＦが増加することになるであろう。一方，

TABLE 5

TYPICAL DECONTAMINATION FACTORS ACROSS OFF-GAS CLEANUP DEVICES

Component	DF			
	Particulates	Volatilized Ru	NO_2	NO
Cyclone	10[a]	1	1	1
Venturi Scrubber	100-600[a,b]	10[a,b]	2	1
Tube and Shell Condenser	10^2-10^3[b]	2×10^2[a,b,h]	2	1
NO_x Absorber	10	10	5[i]	1
Brink Fiber Mist Eliminator	10^2	1	1	1
Packed Spray Tower	10^3	10^2	4	1
NO_x Converter	2	3.8×10^2[d]	10^2[g]	10^2[g]
Ruthenium Sorber:				
Silica Gel	8[a,c]	10^3[a,e]	1	1
Fe_2O_3 on Glass	2[j]	(1 to 5)$\times10^2$	1	1
Sintered Metal Filter	10^3[f]	1	1	1
HEPA Filter	10^3[a]	1	1	1

a Reference 37
b Reference 64
c Includes cyclone deentrainment device following 1 m deep bed of 6 to 12 mesh silica gel. Median size of influent particles coming from venturi scrubber ranged from 0.3 μm to less than 0.01 μm in diameter and had a mean size of 0.1 μm. Particles collected beyond the silica gel bed ranged from 0.2 μm to 0.02 μm diameter and had a mean size of 0.04 μm[(4)]. No other reports have been made of small particulate removal by beds containing large particles. No removal is assumed for beds other than silica gel, except those specifically designed for filtration. Any differences of operational DFs from these assumed values of 8 for silica gel and 1 for other beds will not significantly affect the overall estimated system performances.
d Reference 88
e Reference 2
f References 16, 89
g References 90, 91, 92
h 100 for fluidized-bed calciner.
i A caustic scrubber has only a minor effect on the NO_x removal efficiency[(64)] and is assumed, also, to provide a DF of 5 for NO_2.
j 10^3 if designed for filtering.

NOx に対してはDF 5であろう。触媒変換器（系の末尾に設置）では，揮発ルテニウムのDFを約380だけ増加させることが可能であろう。NO は酸化して洗浄系で除去することが困難なので，後者が使用されそうである。[8]

システム全体はオフガス浄化に有効である。流動化や噴霧化に多量のガスを必要とするので，要求される装置は大きくなり，したがって資本コストが高くなる。要約すると，Figure 2に最終第2HEPA フィルタとNOx 変換器を装備したシステムでは，微粒子，ルテニウム及びNOx に対し，全フィード対スタック[a] DFが各々約2×10^{11}，2×10^{11}，及び1×10^{2}となるであろう。

シリカゲルは温水洗浄することで再生可能であり，吸着したルテニウムの約90% が洗浄処理によって除去される。洗浄水は蒸発器へリサイクルされ，HLLW と一緒に仮焼される。シリカゲルの吸着容量は決まっていないが，200g／m^3 以上であることは知られている（2.9.2項参照）。商業施設で用いられる1対の並列の吸着塔にはシリカゲルが約3.2 m^3充填されるであろうから，ルテニウムの吸着容量は640 g 以上であろう。正常な運転条件下では，吸着塔へ達するルテニウムの量は0.004g ／MTHM にすぎないだろう。よって，ルテニウムを除去するための再生は必要ないであろう。洗浄は他の目的，例えばオフガス中に存在する未燃焼のハイドロカーボンから蓄積する有機沈着物の除去のために必要となるであろう。

このシステムにおけるシリカゲルの望ましい特徴は，酸化鉄吸着剤と比較して操作温度が低いことである。ガスは吸着塔の後のHEPA フィルターを通過する。このフィルターは，特別の粘着剤を用いなければ約150 ℃ 以上の高温では使用に耐えられない。もしシリカゲルの代りに加熱した酸化鉄が用いられるならば，吸着塔とフィルターとの間でガスを冷却する必要があろう。

3.3.2 PNLの流動床プロセス

焼結金属フィルター以降での固体の同運動サンプリング（isokinetic samplig）により，固体の濃度は3.5×10^{-2}g/m^3 －非凝縮性ガス以下であることが示されている。ベッセル内で発生する微粒子の濃度を非凝縮性オフガスの濃度で除したものに基づくならば，これは，擬似サイクロン－SMF の結合したシステム[13] について10^3～10^5のDFを示す（Figure 3 参照）。よって，オフガス処理システムの残りの機器に要求される微粒子のDFは，6×10^6 であることになる。このプロセスではルテニウムの揮発率は恐らく1%のオーダーになるであろう。従って，オフガスシステムは揮発ルテニウムに対して約700の全DFを持つものでなければならない。

仮焼炉（Figure 3）の実験開発に使用されたオフガスシステムの構成機器のDF，SMF以降，をTable 7で評価している。充填型スクラバーの粒子に対するDFは，デミスターがないので，10^2と安全側に評価されている。2.1.2項で述べたように，最終HEPAフィルターは充填型ス

---

a　ここでフィードとは，仮焼炉供給系へ輸送されるHLLW という。

クラバーの後に置かれるものと仮定している。

通常の濃度の1／10のルテニウムを含む廃液で1回の測定が行われ，フィードから凝縮液で 10^4 のＤＦがあることがわかった。これは，Table 7[12]で仮焼炉とコンデンサーに対して予想された値と一致する。セシウムの移送が測定された。0.05 M のセシウムが供給廃液中に含まれている場合，凝縮液とオフガスサンプルの解析により，Cs は1 ppm以下であることがわかった。仮焼炉，SMF，及びコンデンサー間の Cs のＤＦは 10^4 ～ 10^5 であった。この位置までの微粒子の予想ＤＦは 10^5 である。少量（0.01％のオーダー）の Cs が蒸発し，蒸気としてコンデンサーに達して除去されたのであろう。全揮発率は，コンデンサーの前にいくらかの Cs が薄く付着するので，少しばかり多いであろう。この考えを支持するものとして，HEPA フィルターを SMF とコンデンサーの間に挿入したところ，フィルター上に集められた少量の微粒子には，流動媒体よりも多い含有率で Cs が含まれていた。[93]

ICPP 流動床仮焼炉と同様に，ケシロン燃焼加熱流動床から発生するNOxは多くがNOであり，大抵のオフガスシステムを通過するであろう。NOの半分はおそらく酸化され，洗浄除去されるであろう。

要約すると，実験上のオフガス機器と最終 HEPA フィルターを備えたシステムは，微粒子，ルテニウム及び NOx に対しそれぞれ 10^{10}，10^6，2のフィード対スタックＤＦを持つであろう。

3.3.3　ユーロケミックのLOTESプロセス

ケロシン内部燃焼で加熱される撹拌型流動床では，ＩCPP仮焼炉の1／2量の飛び出し微粉が発生するであろう。供給タンクからスタックまでの各機器での予想されるＤＦを，まとめて Table 8に示す。個々のＤＦは，ＩCPPのプラント規模の WCF で経験されたものと同じであるとしている　（Table 6参照）。

ベンチュリースクラバーのＤＦは，クエンチスプレー塔がスクラバーに先行していないので，安全をみて WCＦの1／2と評価している。仮焼炉からのルテニウムの揮発は，0.01％であると仮定する。

ＩCPP流動床プロセスと同様に，発生する NOx は大部分 NO だろう。少量のみが，50％以下であるが，オフガス流から洗浄除去されるであろう。微粒子のＤＦは，ＥＰＡスタンダードに合わせるには不適当であるが，第2ＨＥＰＡフィルタを追加することにより許容レベルまで改善することができよう。

3.4　スプレー仮焼

3.4.1　ＰＮＬのスプレー仮焼プロセス

WSEP 試験では，仮焼炉／メルターから揮発したルテニウムは，供給液にリン酸塩を使用しないポット溶融において，系に供給された量の約2％であった。試験中，供給液のルテニウム濃度は，商業炉廃液に対して予想される濃度の10％ であった。残りのルテニウムは鉄が代用され

TABLE 6

ESTIMATED DECONTAMINATION FACTORS FOR COMMERCIAL HLLW IN ICPP FLUIDIZED-BED CALCINER[a]

Component	DF		
	Particulates	Volatilized Ru	NO_x
Calciner	4	5×10^4	1
Cyclone	10	1	1
Quench Tank and Venturi Scrubber[b]	600	10	1
Silica Gel Adsorber[c]	8	810	1
HEPA Filter	1000	1	1
HEPA Filter	1000	1	1
Overall Feed-to-Stack	2×10^{11}	5×10^8	1

[a] With second HEPA filter added as recommended in reference 37.
[b] Includes scrubber separator and demister devices following scrubber.
[c] Includes cyclone deentrainment device following adsorber bed.

TABLE 7

ESTIMATED DECONTAMINATION FACTORS FOR COMMERCIAL HLLW IN PNL FLUIDIZED-BED EXPERIMENTAL OFF-GAS SYSTEM

Component	DF	
	Particulates	Volatilized Ru
Calciner-Cyclone SMF	10^3	10^2
Condenser	10^2	10^2
Packed Scrubber	10^2	10^2
HEPA Filter	10^3	1
Overall Feed-to-Stack	10^{10}	10^6

TABLE 8

ESTIMATED DECONTAMINATION FACTORS FOR COMMERCIAL HLLW IN LOTES PROCESS

Component	DF Particulates	DF Volatilized Ru	DF NO_x
Calciner	2	10^4	1
Cyclone	10	1	1
Venturi Scrubber and Deentrainment Cyclone	300	10	1
Condenser and Demister	100	100	1
HEPA Filter	10^3	1	1
Overall Feed-to-Stack DF	6×10^8	1×10^7	1

た。セシウムは0.002～0.3％揮発し，テレレは1％揮発した。[16, 17] SMFを通って系から出た不揮発性微粒子は0.1％ 以下であった（DF＞10^3）。WSEP 付属プロセスシステム(Figure 6）により，オフガスからこれらの成分が適切に除去された。フィード対スタックの全DFは，ルテニウムに対して10^9～10^{10}，不揮発性物に対して10^{11}～10^{13}の範囲であった。最も代表的な値はルテニウムで10^{10}，微粒子で10^{12}であった。

除染係数はAPS[16]の各段を通して求められた。仮焼炉供給廃液から分留塔の回収硝酸までの全DFは（Figure 6 参照），ルテニウムで10^2～10^3，不揮発性粒子を示すセリウムで10^4～10^6が代表的であった。回収水（蓄積した分留器蒸留水）までの同様のDFはルテニウムについて10^5以上，セリウムに対して10^9以上であった。オフガススクラバーまでの全DFはルテニウムについて10^4以上，セリウムについて10^7～10^9の範囲であった。スクラバーを出るオフガスまでの同様のDFは，放射性ルテニウムについて10^7～10^9，放射性セリウムについて10^{10}～10^{11}であった。

このデータでは，蒸気状ルテニウムと固体状ルテニウムとを区別していなかったので，ルテニウムのDFを一方あるいは他方の形態に帰することができない。高能率フィルターを後に備え，蒸気と液体の接触を改良するためのPallリングを含む改良型固化装置コンデンサーを後のランで設置したとき，蒸発器以降へ持ち運ばれるルテニウムの量が減少した。コンデンサーへ水を噴霧しても，未凝縮のルテニウムや窒素酸化物を更に洗浄除去するにはほんの控え目にしか成功しなかった。

固化装置から揮発した窒素酸化物の33～73％は，固化装置コンデンサーで除去されたが一方，残りの67～27％は，これらは恐らくNOであろうが，気相でコンデンサーを通過した。スクラバーへ入り込む窒素酸化物は，かなり一定速度で溶液を中和する。溶液（2 M NaOH）が完全に中和されたときには，窒素（NOx)はそれ以上スクラバー内へ蓄積しないだろう。スクラバーには供給した窒素の8～39％が蓄積し，スタックへ約15％のNOx が失なわれた。

最終の水相流出物（分留塔蒸留液）中の放射性ルテニウムの濃度は，10CFR 20での許容値より4×10^4大きい値であった。結果的には，環境へ放出する前にさらに浄化をすることが必要となるであろう。あるいは，流出物を再処理プラントへリサイクルすることが可能であろう。

オフガス処理のためのAPS システムはまた，WSEP 計画の中で開発されたポット仮焼やリン酸ガラスプロセスにも使用された。そのシステムの仕様は，細かい差異こそあれ，この3つのプロセスで同じあった。3つのプロセスの一般的な操作データの要約はMcElroyら[17]が行っているが，ここでは参考文献として示しておく。

上述のように，固化装置のオフガスより除去された放射能は，3つの水系へ分かれた。その多くは，固化装置供給系へリサイクルできる蒸発器濃縮液に残存した。ルテニウムの約0.1％が分留塔濃縮液（回収HNO_3）に，また分留塔蒸留液中には10^{-4}％以下のルテニウムが観察された。また，セリウムの約10^{-4}％が分留塔濃縮液に，約10^{-7}％が分留塔蒸留液中に見い出された。

分留塔蒸留液中の放射能は，水中濃度に対する10CFR20の値より10^3〜10^5 倍高かった。ガス流出物に対するフィード対スタックの全DFは，3つのプロセスとも放射性ルテニウムで約10^{10} ，放射性セリウムで10^{12} であった。

WSEP での廃液固化から生じる代表的な流出物に関する情報の要約をTable 9に示す。

3.4.2 ドイツのVERAプロセス

スプレー仮焼中にギ酸と反応させることにより供給液を脱硝することは，ルテニウムの揮発を0.01%以下に抑制し，したがって，オフガスからこれを除去するのに特別な配慮をする必要性を最小限におさえることができる。NOx は，大部分N_2 への変換により分解されるであろう。

システム（Figure 7）について評価したDFの要約をTable 10に示す。評価の出発点として，Table 5の個々のDFを用いた。

一連のスクラバーとコンデンサーの仕様を評価することは難かしい。より微細な粒径のものを除去するにはそれだけ難かしさが増加し，次の段階へ通過する物質量も増すようなので，効率が減少すると評価される。同時に，直径1 μm までの飛び出して来たエアロゾルはおそらく効率良くスクラバーで除去される。したがって，ミストの飛び出し防止機器がないということの影響は，その後にスクラバーがあるので大いに克服されるだろう。最終コンデンサーでは換気系まで及ぶエアロゾルミストが生じ，その結果，コンデンサーの正味の効率が低下することになるであろう。

第2コンデンサーは，そこへ達するガス中の水分含有量がかなり低いため，効率が低くなると評価される。したがって，その 洗浄 効果はなくなるであろう。

入る物質濃度が少ない場合の各機器のDF を測定あるいは見積ることは難かしいので，全DFを10^{12} のオーダーと予想するときには，不確実さが大きいと考えなければならない。それにもかかわらず，見積られた全DF が大きいことは，十分なオフガス浄化をさらに超えることを示している。

建屋の換気システムには，Figure 7に示すシステムから生じるものを加えて，微粒子の最終的な除去のためにHEPA フィルターろ過が備えつけられるであろう。ルテニウムの揮発が抑制されるので，揮発ルテニウム量以上のルテニウムが粒子の形態で第1コンデンサーへ入り，除去されるであろう。全固体アクティビティの約0.1%あるいは10^3Ci／MTHMがコンデンサーによって除去され，蒸発器を通って中レベル廃液（MAW）となるであろう。これは最終的には，MAWが蒸発濃縮された後，仮焼炉へ戻される。

改良VERA―プロセス用に開発された焼結金属フィルターは，PNL で試験されたものより小さな孔径のものである（35 μm[18]対65 μm[17]）。フィルターはおおいで囲まれて仮焼炉中に組み込れている（Figure 7 参照）。この配置では，通常のデザイン[16] で必要な1〜5分毎のブローバックと比較して，30分毎[19] のブローバックで使用することができる。あるいは，少ないフィルター数ですませることができる。

TABLE 9

TYPICAL EFFLUENTS RESULTING FROM SOLIDIFICATION OF HIGH-LEVEL RADIOACTIVE WASTE IN WSEP PROCESSES[a,e]

Stream	Major Constituent	Radioruthenium Ci/Ci in Feed[b]			Radiocerium Ci/Ci in Feed[b]			Potential Disposal
		PC	SS	PG	PC	SS	PG	
Solidifier Condensate	1 to 6M HNO_3	$2x10^{-1}$	$6x10^{-1}$ $(1x10^{-2})$[c]	$8x10^{-2}$	$6x10^{-3}$	$7x10^{-4}$	$2x10^{-3}$	Recycle to solidifier feed or to fuel reprocessing plant waste concentrator.
Fractionator Bottoms	7 to 10M HNO_3	$1x10^{-3}$	$4x10^{-3}$	$2x10^{-3}$	$2x10^{-6}$	$5x10^{-6}$	$8x10^{-7}$	Recycle for reuse in fuel reprocessing plant.
Accumulated Fractionator Distillate	0.01 to 0.1M HNO_3	$1x10^{-6}$ $(4x10^{-4})$[d]	$1x10^{-5}$	$4x10^{-6}$	$1x10^{-8}$	$1x10^{-9}$	$1x10^{-8}$	Recycle for reuse in fuel reprocessing plant or provide further decontamination
Scrubber Bottoms.	0 to 2M NaOH	$1x10^{-5}$	$4x10^{-5}$	$3x10^{-6}$	$\sim10^{-8}$	$\sim10^{-8}$	$\sim10^{-8}$	Intermediate level waste treatment or combine with high level aqueous waste.
Final Off-Gas from Scrubber	Air	$\sim10^{-8}$	$\sim10^{-8}$	$\sim10^{-8}$	$\sim10^{-9}$[d]	$\sim10^{-11}$	$\sim10^{-11}$	To building ventilation filters.
Final Off-Gas to Stack	Air	$\sim10^{-10}$	$\sim10^{-10}$	$\sim10^{-10}$	$\sim10^{-12}$	$\sim10^{-12}$	$\sim10^{-12}$	To atmosphere.

[a] Based primarily on average of typical values for all WSEP runs.

[b] Total curies of radionuclide accumulated in auxiliary tank during entire run/total curies of radionuclide in feed to solidifier during entire run.

[c] For in-pot melting runs SS-12 and SS-13.

[d] Average value for last three pot calciner runs.

[e] Reference 17.

PC = pot calcination, SS = spray solidification, PG - phosphate glass solidification

TABLE 10

ESTIMATED DECONTAMINATION FACTORS FOR COMMERCIAL HLLW IN VERA PROCESS

Component	DF		
	Particulates	Volatilized Ru	NO_x
Calciner and SMF	10^3	10^4	20
Condenser	10^2 to 10^3	10^2	1
Condenser	20	20	1
Scrubber	10^2	20	1
Scrubber	50	10	1
Scrubber	10	10	1
Condenser	20	20	1
Feed-to-Stack	10^{12} to 10^{13}	10^{12}	20

3.5 ポット仮焼

3.5.1 PNLのポット仮焼プロセス

Table 9に要約したWSEP のデータに基づき（3.4.1項の考察を参照），そのプロセスに対するフィードからスタックまでの全DFは，ルテニウムと微粒子に対して各々10^{10}と10^{12}であった。このときAPSがオフガス処理に使われた（2.2.1項，Figure 6）。フィードからそれぞれのオフガスユニットまでの累積DFの逆数がまたTable 9に示してある（DF；1／Table 9に示されているDFの逆数）。

仮焼炉コンデンサーでの凝縮液には，揮発したルテニウムの99％が含まれていた（供給された全ルテニウムの約10％）。凝縮液は蒸発器へ戻され，その結果実質的に全量のルテニウムが仮焼炉へリサイクルされた。

ライジングレベル運転方式では，セシウムの0.6％が揮発し，ポット凝縮液で除去された。この方式では固体の飛び出しにより，ポットのスロートの部分的閉塞や固化装置コンデンサーの後のアブソリュートフィルターの早い閉塞が起った。したがって，仮焼炉から飛び出した粒子は，凝縮液の分析より推定された0.6％の量より明らかにずっと多い（Table 9）。

スプレー仮焼と同じオフガス処理システム（APS）がポット仮焼に使用されたけれども，ポットプロセスには噴霧空気が必要ないのでプラントでは（等じ処理速度でも）より小規模なシステムが使えるであろう。

スプレー仮焼と同様，廃液中の窒素の約15％が，主としてNOとして，スタックへ行くと予想される（3.4.1項参照）。

3.5.2 英国のFINGAL／HARVESTプロセス

これらのプロセスでは，ポットからのルテニウム揮発率は，仮焼炉へ供給された量の30％である。[27] FINGAL プロセスのオフガス処理はHARVESTのために開発されたものと異なっているので，ここでは，これらを別々に考える。

FINGAL プロセスのポットから飛び出すダストは3.4 ± 1.1%である。[26] セシウムは微粉として飛び出すだけであり，実質的には揮発しない。ダスト及び揮発したルテニウムの除去は，大部分第1フィルター／吸着塔で達成される（Figure 9と10）。第1フィルターで測定されたDFはRuで500[27]，粒子で3×10^3[27] である。

第1フィルターより大きな表面積を有しガス速度も遅い第2フィルターでは，より大きなDFが得られるはずである。[27] 第1フィルターは，ポット内に置かれて廃棄され，HLLWと共に仮焼されなければならないので小さく作られている。第2フィルターでは，小量のダストやルテニウムが処理されるので寿命は長く，したがってその設計においては，処分を第1に考えられていなかった。第2フィルターは，処分可能な（第1）フィルターが破損した場合でも安全保護の役割を持つであろう。

揮発ルテニウムを吸着するための酸化鉄フィルター材の吸着容量は，2×10^3 g Ru/cm^3 以上である。破過に到るまで試験が行なわれなかったので真の吸着容量はわからない。第1フィルターは，各ポットの充填が終了した時点で交換される。[28]

様々の機器について見積られた除染係数をTable 11に示す。仮焼炉及びフィルター／吸着塔のDFは，上述の測定に基づいている。他の機器のDFは，Table 5に示した見積り値に基づいているがシステム内の位置を考慮して調整している。

パイロット施設で放射性廃液が仮焼された際の凝縮液の分析に基づき，廃液からコンデンサーまでのDFが実際に測定された。[28]微粒子に対するDFは3×10^{10}であり，Table 11のデータと見積り値から計算したものと同じであった。ルテニウムに対するDFは8×10^4～10^8まで変化した。実験の初期には，より高い値が観察された。実験の後半で炉がゆっくりと昇温されているとき，ポット容器内壁上に付着していたルテニウムがいくらか再揮発し，実効DFの低下を引き起した。別の実験では，ルテニウムのDFは1×10^5であった。Table 11から予想されるDFは10^8であるが，この値は実際に期待できる値より明らかに幾分高めである。

全アクティビティに対し，HEPA フィルター以降の流出ガスまでのDFは10^{14}～10^{16}であった。Ru－106は廃液中の全アクティビティの10％のオーダーを占めているので，揮発したルテニウムの全DFは10^{13}～10^{15}のオーダーであったに違いない。この値はTable 11で見積られたものより1～4桁大きい。仮焼炉で第1フィルターがガラスの中に溶融されるとき，それに付着したルテニウムの1％以下のものが揮発する。[28]これは仮焼炉から発生する全ルテニウムの約1／10にすぎない量であり，したがって操作には何の影響もない。

要約するとFINGAL プロセスで期待されるフィード対スタックDFは，微粒子で10^{15}，揮発ルテニウムで10^{13}，NOxで50である。

FINGAL プロセスの代わりであるHARVESTプロセスは，未だ放射性の廃液で試験はおこなわれていない。FINGAL の開発研究でのデータが，HARVESTの運転時の流出物を評価するために使えるだろう。DFの見積り値をTable 12に要約して示す（Figure 12と13参照）。

3.5.3 フランスのPIVERプロセス

このプロセスでのルテニウムの揮発率は，凝縮液に集められたルテニウムで測定され(Figure 14と15参照)，約15％である。[33, 34] この方法で測定された揮発率は実験を重ねていくとわずかに減少する。これは，配管内に沈着したRuO_2の触媒効果により，沈着が助長されるためであると解釈される。[34]沈着物中のアクティビティはRu－106が80％，Cs－137が10％である。飛び出した粒子は0.05％である。セシウムの全飛び出し量は0.1％であり，したがってセシウムの約0.05％が揮発し，コンデンサーで除去された。

凝縮液にはポットから飛び出すルテニウムの90％が含まれている。[33]すなわち，コンデンサーでのDFは10である。ガスがルテニウムフィルターを通過する前のすべてのアクティビティ

TABLE 11

ESTIMATED DECONTAMINATION FACTORS FOR COMMERCIAL HLLW IN FINGAL PROCESS[a]

Components	DF Particulates	DF Volatilized Ru	DF NO_x
Pot Calciner	30	3.3	1
Primary Filter/ Adsorber	2×10^3	5×10^2	1
Secondary Filter/ Adsorber	5×10^3	10^3	1
Condenser	10^2	10^2	2
NO_x Absorber	10	10	5
Caustic Scrubber	10^2	10^2	5
HEPA Filter	10^2	1	1
Overall Feed-to-Stack	3×10^{15}	2×10^{11}	50

[a]See text. Expected overall feed-to-stack DFs are 10^{15} for particulates and 10^{13} for ruthenium.

TABLE 12

ESTIMATED DECONTAMINATION FACTORS FOR COMMERCIAL HLLW IN HARVEST PROCESS

Component	DF Particulates	DF Volatilized Ru	DF NO_x
Pot Calciner	30	3.3	1
Spray Condenser	10^2	50	2
Caustic Scrubber	10^2	10^2	5
Caustic Scrubber	10^2	50	5
Ru Filter/Adsorber	10^3	5×10^2	1
HEPA Filter	10^3	1	1
Overall Feed-to-Stack	10^{13}	$10^8 - 10^9$	50

に対する全DFは，10^8であると言われている。[33]しかし，これは明確でなく，ガスがルテニウムフィルターを通過した後のことを言っているのであろう。おそらく英語で資料が書かれた時の翻訳に誤りがあったのであろう。

Figure 14 と 15 に記載したオフガス処理システムは，工業施設の設計（未試験）である。実験開発は若干異なった組立てでおこなわれ，放射性の廃液が仮焼された間にいくつかのDFが測定された。[34]構成機器の配列は，コンデンサー，ルテニウムフィルター，アルカリベンチュリースクラバー，ウォーターカラムスクラバー，シリカゲル吸着塔およびHEPA フィルターであった。このシステムで測定された全フィード対スタックDFは，ルテニウムとセシウムで各々$5 \times 10^7 \sim 10^8$，10^{10}であった。いくつかの機器のDFが計算できるような測定も行われた。その結果はTable 13 にまとめた。

一群のDFは評価により分離できるだろう。ルテニウムについての妥当な値は，湿式スクラバー，シリカゲル，HEPA フィルターで各々10，$(0.5-1) \times 10^3$，1である。セシウムの微粒子に対しては，それぞれ約10^2，2，5×10^2である。コンデンサーとルテニウムフィルターでのセシウムのDFは各々約10，2であろう。

これらの値と他のプロセスからの経験（Table 5）を用いると，工業設計プラント（Figure 14と15）のDFを見積ることができる。Table 14 にこれを示す。

ルテニウムフィルターは，たとえ表に入れたDFがアクティブな実験システムから推定されるものより大きくても，それよりもさらに有効であろう。吸着塔はガス速度が低いときにのみ，適正に作動すると言われる。[33]ここでは，その設計でこれが考慮され，したがって良い効率が得られるものと仮定している。

英国の FINGAL／HARVESTプロセスと同様に，使用済みルテニウムフィルターはHLLWと共にガラスの中に溶融されるであろう。実験用フィルターにはセラミック粒子34kgが収容されていた。このフィルター物質は，10 mg Ru／g または計340 gRu が吸着すると交換される。これは，1 MTHMのHLLW が2つのポットで仮焼される場合に揮発し吸着される量にほぼ相当する。

コンデンサーの凝縮液は濃縮され，0.5 $\underline{N}$H$^+$ まで中和され，再仮焼される。仮焼時には凝縮液中のルテニウムの約1%がおそらく揮発するであろう。

Figure 14 によると，廃液濃縮器の濃縮液は，ルテニウムフィルターの後にある酸回収ユニットへまわされる。蒸発器から発生したエアロゾルと揮発ルテニウムのため，全フィード対スタックDFはTable 14 に示した計算値よりも若干減少するであろう。ドイツのFIPSプロセス（3.8節参照）の蒸発器／脱硝器での経験が示すところでは，エアロゾルの飛び出しは，約0.005%（$DF = 2 \times 10^4$）であろう。ルテニウムの揮発率は4 $\underline{M}$以下の酸濃度では0.01%（$DF = 10^4$）より少ないはずであり，[2, 94]放射線作用条件下では，0.001%より少ないであろう（第4章参照）。蒸発器のコンデンサーのDFは，微粒子で約$10^2 \sim 10^3$，揮発ルテニウムで2×10^2(Table

TABLE 13

DECONTAMINATION FACTORS IN EXPERIMENTAL PIVER SYSTEM

Component	DF		
	Ruthenium	Cesium	Nonvolatiles
Pot	6.7	10^3	2×10^3
Condenser	10	20	
Ru Filter	30		
Alkaline Venturi Scrubber	5	5	
Aqueous Column Scrubber	5×10^3 to 10^4	10^5	
Silica Gel			
HEPA Filter			
Overall Feed-to-Stack	5×10^7 to 1×10^8	10^{10}	

TABLE 14

ESTIMATED DECONTAMINATION FACTORS FOR INDUSTRIAL PIVER PROCESS

Component	DF		
	Particulates	Volatilized Ru	NO_x
Pot Calciner	2×10^3	6.7	1
Spray Condenser	10 to 10^2	10	2
Packed Scrub Column	10^2 to 10^3	10 to 10^2	4
Ru Filter	2	10^2	1
Ru Filter	2	10^2	1
Acid Recovery	10	10	5
Acidic Scrubber	10^2	10	2
Caustic Scrubber	10^2	10^2	5
HEPA Filter	10^2	1	1
Overall Feed-to-Stack[a]	10^{14} to 10^{16}	10^{11} to 10^{12}	4×10^2

[a]Operation of waste evaporator will reduce particulate DF to 10^{13} to 10^{14} and ruthenium DF to 10^{10} to 10^{11} (see text).

5参照）であるから，蒸発器から酸回収ユニットまでの全DFは微粒子に対して2×10^6～2×10^7，ルテニウムに対して2×10^6～2×10^7である。仮焼炉を経て酸回収ユニットまでのDFは，微粒子及びルテニウムに対して各々8×10^6～8×10^8，7×10^6～7×10^7である。よって，蒸発器は全フィード対スタックDFを，微粒子に対しては約10^{13}～10^{14}，ルテニウムに対しては2×10^{10}～2×10^{11}に減少させるであろう。

試験では，揮発したルテニウムがRuO_2に分解して沈着したため，オフガス配管が2回閉塞した。1回はポットの交換を余儀なくされた。もう1回はアルカリ溶液を注入し誘導加熱して除去された。別の実験では，配管に入る放射性ルテニウムの量と配管から出る量とを測定する警報システムにより，管閉塞の兆しが何回か検知された。酸を流し込むと閉塞は解消した。

3.5.4　イタリアのポットガラス化プロセス

このプロセスは，模擬HLLWを使用して，実験室及びパイロット規模の施設で試験されてきた。[31] リン酸塩ガラス固化では赤リン添加により，ルテニウムの揮発率は1％以下であった。一方NOx の39％が分解した。

ホウケイ酸ガラス固化では，ルテニウムの揮発率は13％であった。

プロセス（Figure 18）について評価したDFをTable 15 に示す。ルテニウムフィルターは10^3のDFを持つだろうと言われるが，ベンチスケールプロセスでの使用結果は5.3～260にすぎなかった。ここでは 10^2 の値を見積っている。

仮焼炉から飛び出す微粒子の測定値はベンチスケール試験では約0.1％であった。ルテニウムフィルターでの微粒子のDFは 10^2 と 10^3 の間であった。

蒸発器及びそのコンデンサーから第1アルカリスクラバーまでの流出物はポットコンデンサーからのものより少ないので，システムに組み入れられた蒸発器は全フィード対スタックDFに影響を及ぼさないであろう。

平均的には，ホウケイ酸ガラス固化廃液に存在する硝酸根の93％がプラント内で回収された。DFは15であり，Table 15の見積りより予想されるDFと同じ大きさである。

3.6　リン酸塩ガラスの生成

3.6.1　PNLのリン酸塩ガラスプロセス

Table 9に要約した（3.4.1項考察参照）WSEPデータに基づくと，APS をオフガス処理（2.2.1項，Figure 6）に使用した場合，プロセスの全フィード対スタックDFはルテニウムで10^{10}，微粒子で10^{12}であった。廃液から各オフガスユニットまでの累積DFの逆数もまたTable 9に示されている（DF＝1／Table 9に示されたDFの逆数）。

2.4.1項で議論したように，テルルの約3％が揮発し，オフガスユニットで集められた。またセレンは大部分が揮発すると予想されよう。これらのものは相対的に量もアクティビティも少な

TABLE 15

ESTIMATED DECONTAMINATION FACTORS FOR COMMERCIAL HLLW IN ITALIAN POT PROCESS

	Pot Calciner	Ru Filter	Condenser	Heated Demister	NaOH Scrubber	HaOH Scrubber	HEPA Filter	Overall Feed-to-Stack
Phosphate Glass:								
Particulates	10^3	10^2	$10^2 x 10^3$	2	10^2	10^2	10^3	10^{13} to 10^{14}
Volatilized Ru	10^2	10^2	$2x10^2$	1	10^2	10^2	1	10^{10}
NO_x	2.5	1	2	1	5	5	1	10^2
Borosilicate Glass:								
Particulates	10^3	10^2	10^2 to 10^3	2	10^2	10^2	10^3	10^{13} to 10^{14}
Volatilized Ru	7.8	10^2	$2x10^2$	1	10^2	10^2	1	10^9
NO_x	1	1	2	1	5	5	1	50

いので，運転上あるいは放出管理上の問題はないはずである（3.1節参照）。

廃液は仮焼前に一部脱硝されるが，これはスタックへの放出NOx量に実質的に影響を与えるものではない（仮焼炉から約15％，3.4.1項参照），なぜならNOxは脱硝ユニットから放出されるであろうから。脱硝器のオフガスは仮焼炉のオフガスと混合される。

3.7 ロータリーキルンガラス化

このフランスのプロセス（2.5節，Figure 20）の流出物については，ほとんど測定が行なわれていなくまた報告もない。操作性の予想のほとんどはPIVERプロセス（2.3.3項及び3.5.3項）の経験に基づいている。

仮焼炉からは少量のダストが飛び出すであろう。約0.75％の不溶性物質がベッセルから出るであろう。この大部分はMoO_3とZrO_3であり，約80％を占めている。[48]可溶性のランタンとセリウムの約3.5％がスクラバーまで飛び出し，ここで3.4％が除去される。残りの0.1％は，コンデンサーに入りここで除去される。[48]希土類元素は，仮焼炉／ガラス溶融炉より主に揮発により移動する。全仮焼体の0.1％以下のものがスクラバーを通過しコンデンサーに達する。[14]すなわちスクラバーに入り込む量の13％以下である。したがって，微粒子に対する仮焼炉のDFは約130であり，スクラバーでのDFは8以上である。

コンデンサーは不溶性ダストに対し10^2以上のDFを，可溶性物質に対しては30のDFを有する。[48]

これらのデータやPIVER実験（3.5.3項）で得られたデータおよび他のプロセスから得られたデータ（Table 5）に基づいて，AVMシステムの様々のオフガス機器のDFを見積り，それをTable 16にまとめた。キルンからのルテニウムの揮発は約10％であると仮定した。

3.8 ドラムドライヤーーポットガラス化

小さなホットセル装置での試験が1974年に行なわれた。[14, 49] 試験に使用された廃液は，330Ci／ℓのアクティビティを有していた。脱硝中（Figure 21参照）エアロゾルの飛び出しが幾分か生じ，アクティビティが50～200mCi／ℓの凝縮液が生じた。これは脱硝器のDFが（2～8）×10^3に相当する。凝縮液はルテニウムが多いわけではなく，その揮発がほとんど生じていないことがわかった。脱硝器は充填塔還流凝縮器を備えた蒸留器であった。開発担当者は，大規模な装置を建設するときには，DFを10倍あるいはそれ以上向上させるようなより実現の可能性のある設計が利用できるものと仮定している。[49]コンデンサーは，脱硝器と濃縮器から発生する微粒子とエアロゾルに対して約10^2～10^3のDFを，揮発ルテニウムに対しては10^2のDFを持っている。発生するルテニウムはドライヤーから放出されるものに比べて無視出来るであろう。

乾燥操作で生じる凝縮液は，比放射能が10mCi／ℓであり，これはドライヤーでのDFが

TABLE 16

ESTIMATED DECONTAMINATION FACTORS FOR COMMERCIAL HLLW IN FRENCH ROTARY KILN PROCESS

Component	DF		
	Particulates	Volatilized Ru	NO_x
Calciner	1.3×10^3	10	1
Spray Scrubber	10 to 10^2	10 to 10^2	2
Condenser	10^2	10	2
Ferric Oxide Adsorber	2	10^2	1
Wash Column	10^2	10	2
HEPA Filter	10^3	1	1
Overall Feed-to-Stack	10^{10} to 10^{11}	10^6 to 10^7	8

10^5以上に相当する。一般にダストの生成は少ない。

溶融中には少量の，1％あるいはそれ以下の量，ルテニウムが揮発した。

上述のデータを考慮し，またプラントスケールの脱硝ユニットから飛び出すエアロゾルは，5×10^{-3}％（DF＞2×10^4）以下であるだろうと仮定すると，コンデンサーを通過し第1 HNO_3 回収ユニットに入る廃液中のアクティビティの割合は，微粒子とエアロゾルとして10^{-5}（その点までの全DFは10^5），揮発したルテニウムとして0.01（DF＝10^2）であると計算される。オフガス処理システムの残りの機器については，微粒子とエアロゾルを一緒にしたDFは，二つのNO_x 吸収塔ユニットとアルカリスクラバーとで約10^4，HEPAフィルターで10^2～10^3であるだろう。揮発したルテニウムについての同様のDFは約10^3と1であるだろう。このとき，全フィード対スタックDFは，微粒子に対して約10^{11}～10^{12}，揮発したルテニウムに対して10^5であるだろう。

脱硝器からはNO_x がオフガス流に放出されるが，これはドライヤーとメルターから発生するオフガスと混合される前にコンデンサーを通過する。脱硝器で分解されなかった硝酸塩は，ドライヤーで分解されるであろう。そのオフガスもまたコンデンサーで処理される。少量のNO_x がメルターで発生し，直接NO_x 洗浄塔へ放出されるであろう。したがって，洗浄塔の入口までのNO_2 に対する全DFは，コンデンサーのDFであるが，約2である。3つの洗浄塔を通ると，さらに$10^2\times10^2\times10=10^5$のDFが得られる。最後のスクラバーでは，NOを$NO_2$へ転換するために酸素は供給されず，DFは低下する。このように，NO_x に対するフィード対スタックDFは2×10^5となろう。

このプロセスの概念は，再処理プラントに廃水をリサイクルし，核分裂生成物溶液（HLLW）中にトリチウムを濃縮することである。FIPS プロセスでは，トリチウムを希釈することなく回収が可能である。

3.9 連続セラミックメルター

セラミックメルターの高温（1150℃）でのガラス溶融中のルテニウムの挙動は，まだ解明されていない潜在的問題である。このような温度条件下での空気及び NOx による酸化で，次のような反応によりRuO_4（g）とRuO_3（g）の分圧が著しく高くなる可能性がある；

$$O_2 + RuO_2(s) = RuO_4(g)$$
$$2NO_2 + RuO_2(s) = RuO_4(g) + 2NO$$
$$RuO_4\ (g) = RuO_3(g) + 1/2\,O_2\ 。$$

硝酸根の分解により生成されるNO_2は，この温度では急速に分解するが，分解により酸素が生成される。したがって，空気を完全に排除しても，助けにはなるが，RuO_4とRuO_3の生成を完全には防ぐことはできない。ガスはメルターの高温領域を出るので，平衡は左へシフトし，ガス種は沈着あるいは微粒子としてエアーボーンになるRuO_2（s）に変化する。反応速度を含め，これらのプロセスの相対的な重要性は現在ではわかっていない。もし沈着がオフガス配管中で生じるならば，閉塞が潜在的な問題であろう。

プロセスを評価するため，廃液中のルテニウムの5～10％が，気体状酸化物の形態でメルターから揮発し，その半分が気体状で存在する一方，他の半分はオフガス処理システム中でRuO_2微粒子に解離すると仮定しよう。飛び出した微粒子としてのルテニウムの5％は，全固体のアクティビティの0.8％である。

3.9.1 デンマークの連続セラミックメルター

オフガス処理システム（2.7.1項）はこのメルターの設計には考慮されていない。メルターの実験開発に使用された不完全なオフガスシステムは，連続プレフィルター（Figure 24）とコンデンサーより構成されていた。メルターからフィルターへ多量のダストが発生し，飛び出した微粒子ルテニウムとして表わした0.8％をおそらく著しく超えたであろう。メルターから5％の固体の飛び出しがあり，フィルターのDFが10^2であると仮定すると，実験用システムの微粒子に対する全DFは約10^6である（コンデンサーでの10^2～10^3を含む）。揮発したルテニウムに対しては，DFはメルター，フィルターおよびコンデンサーでそれぞれ約40，1および10^2であり，全DFは4×10^3である。

3.9.2 PNLの連続セラミックメルター

PNLのセラミックメルターに対しては，オフガス処理システムはまだ設計されてなく，メル

ターは模擬廃液を使用してエンジニアリングスケールで試験されただけである。採用された操作方式（2.7.2項）では，オフガスに0.5％以下の廃液が飛び出した（メルターでのDF＝200）。章の初めに論じたように，ルテニウムが供給液中に存在する場合には，さらに飛び出す微粉のアクティビティが増えることになり，アクティビティの実際の飛び出しを倍にするであろう。

3.9.3 ドイツのPAMELA プロセス

このプロセスはベンチスケールで試験されてきた。ピューレックス高レベル廃液は，リン酸塩ガラスビーズに転換された。ガラスビーズの一部はVITROMETS を作るため，鉛マトリックス中に鋳込まれた。このプロセスではダストは生成されなかった。[14]

流出物についての他のデータは報告されていない。オフガス処理システムは，データが報告されているFIPSプロセスと同様である（3.8節参照）。ここでは，これらの研究で得られた情報を，PAMELA プロセス中の流出物を評価するための出発点として使用する。

オフガス機器での揮発ルテニウムの除染係数を，他のプロセスで得られたデータから見積るのは難かしい。なぜなら，高温では主要なルテニウム蒸気種が異なるであろうから。[2] 高温では，空気酸化が著しくなり，また低い温度で生成するガス種を安定化させる NO_2 が分解するために，この相異が生じる。

生成するRuO_4とRuO_3はあまり安定でなく，オフガス系の初めの段階で容易に除去されるであろう。しかし，ガスがシステムを通過するとき，NOがNO_2に酸化される結果，ルテニウムは他のより温度の低い仮焼／ガラス固化プロセスと同様な挙動をするであろう。ガスがHNO_3と接触する脱硝器／濃縮器以降では，揮発ルテニウムのDFは，FIPSや他の低温プロセスと同じであると仮定しよう。

ルテニウムの10％が揮発し，それから一部RuO_2に解離する（3.9節の前おき参照）と仮定する。脱硝器／濃縮器は，メルターからのオフガスがこれを通過するのであるが（Figure 26），RuO_2に対して約10^3のDFを持つだろう。ユニット内が一部還元状態であり，気体状のルテニウム酸化物は冷却されると熱力学的に不安定であるため，ルテニウムを含む蒸気のDFは同じ程度の大きさ，10^3，であるだろう。よって，メルターから脱硝器／濃縮器を通過するルテニウムの量は，微粒子として約0.005%，揮発性ルテニウムとして0.005%であろう。主に低温の仮焼プロセスにおいて生成した形態を持つであろう。

濃縮器／脱硝器では，無視出来る程であるが，ルテニウムが揮発するはずである。微粒子とエアロゾルの飛び出しは，FIPSプロセスと同様に約0.005%であろう。全体としてコンデンサーへ入り込む，メルターと脱硝器／濃縮器からのアクティビティの割合は，微粒子とエアロゾルで約10^{-4}（DF＝10^4），揮発したルテニウムで約5×10^{-5}（DF＝2×10^4）であろう。

システムの残りの機器について見積ったDFをTable 17に示す。

NOx はすべてNOとNO_2の混合物としてコンデンサーへ放出されるであろう。これらの相

TABLE 17

ESTIMATED DECONTAMINATION FACTORS IN PAMELA PROCESS

Component	DF		
	Particulates	Volatilized Ru	NO_x
Melter and Denitrator/ Concentrator	10^4	2×10^4	1
Condenser	10^2 to 10^3	10^2	1 to 2
HNO_3 Absorber	10^2	10	5
HNO_3 Absorber	10^2	10	5
HNO_3 Absorber	10	10	5
HEPA Filter	10^2 to 10^3	1	1
Overall Feed-to-Stack	10^{13} to 10^{14}	10^9	2×10^2

対量が，NOx 混合物を除去するためのコンデンサーの効率を決定するだろう。コンデンサーの後では，NO はNO_2に酸化されたと仮定する。

3.10 ワイプトフィルム蒸発器

蒸発器（2.8節）のところで示したように，模擬HLLWを処理するときにメルターから発生する固体を処理するために必要な技術と装置以外は，オフガス処理の全体システムは開発されていない。

ワイプトフィルム蒸発器での蒸発と乾燥に使用される温度では，非常に高いルテニウムの揮発が生じるであろう。例えば，模擬廃液を375 ℃以下 305℃ までの温度で間接加熱により流動床仮焼すると，実質的にすべてのルテニウムが揮発する。[2,37] ワイプトフィルム蒸発器では，この潜在的に重要な問題を研究すべきである。もしこれが問題になるなら，廃液をあらかじめ脱硝することによってルテニウムの揮発を減らせることができるであろう。

3.11 PNLの提案するオフガス浄化システム

記述されたシステムでは，酸回収を希望するか否かによってNOx の除去に別の処理を認めている（2.9.1項参照）。考察された第1のシステム（Figure 28）は酸回収のためのNOx 吸収を示している。ここでは，最初の解析にこのケースを使用し，それからNOx 変換器を代わりに入れる効果を論ずる。

オフガス処理システムは一般的に設計されている。評価の目的のために，基本固化プロセスとしてポットメルター（Figure 5，2.2.1項）とガス出口に焼結金属フィルターを備えたスプレー

仮焼炉が考えられている。固化装置から揮発するルテニウムは約2％，SMF以降への微粒子／エアロゾルの輸送は0.1％であろう（2.2.1項参照）。

オフガス機器の見積ったDFをTable 18に示す。これはヨウ素の回収が考慮されている唯一の固化プロセスシステムである。これが加えられているのは，この報告書では0.1％と仮定したのと比べてHLLW中には使用済燃料からの全ヨウ素の2％が存在するという仮定[64]に基づいている。

NOx 吸収塔後のコンデンサーの目的は，吸収塔の溶液から飛び出す分を除去することである。大部分の水蒸気は吸収塔の上でガスから除去されるので，吸収塔の後のコンデンサーでの水分除去速度は大きくないであろう。したがって，他の物質のコンデンサーの除去効率は，おそらく第1コンデンサーのものより幾分低下するであろう。

全DF（微粒子に対して10^5～10^{17}，揮発したルテニウムで10^{10})は，仮焼炉を通るフィードからスタックまでの経路についてのものである。考慮しなければならないもう1つの経路は，蒸発器のオフガスラインを通るもので，これはNOx 吸収塔のちょうど上のオフガス処理システムに入る。ドイツのFIPSプロセス（3.8節）のデータが示すところでは，設計の良好な蒸発器から飛び出すエアロゾルは0.005％（DF＝2×10^4）のオーダーであろう。ルテニウムの揮発率

TABLE 18

ESTIMATED DECONTAMINATED FACTORS FOR COMMERCIAL HLLW ACROSS PNL PROPOSED OFF-GAS SYSTEM

Component	DF			
	Particulates	Volatilized Ru	NO_x	Iodine
Calciner and SMF[a]	10^3	50	1	1
Venturi Scrubber and Knock-Out Pot	10^3	10	2	1
Condenser	10^2 to 10^3	$2x10^2$	2	1
NO_x Absorber	10	10	5	1
Condenser	20	20	1.5	1
Ru Adsorber	1	10^3	1	1
HEPA Filter	10^2 to 10^3	1	1	1
Iodine Adsorber	1	1	1	10^3
HEPA Filter	10^2	1	1	1
Overall Feed-to-Stack[a]	10^{14} to 10^{16}[b]	10^{10}	30	10^3

[a] PNL Spray Calciner with in-pot melter
[b] Evaporator reduces this to 10^{12}-10^{14}. See discussion in text.

は，4 M以下の酸濃度では0.01 %以下（D F = 10^4）のはずであり，[2, 94] おそらく 0.001%以下であろう（4.3.1項参照）。HLLW蒸発器のコンデンサーのD F は，微粒子で約 10^2 ～ 10^3，揮発したルテニウムで 2×10^2（Table 5参照）なので，フィードから廃液蒸発器を経由してのNOx 吸収塔までの全D F は，微粒子で 2×10^6 ～ 2×10^7，揮発したルテニウムで 2×10^6 ～ 2×10^7 である。仮焼炉を経由した場合は，微粒子で 10^8 ～ 10^9，揮発ルテニウムで 10^5 である。したがって，蒸発器は揮発ルテニウムに関して，NOx 吸収塔のオフガス流に対しほとんど影響を与えないが，エアロゾルと微粒子の飛び出し量は，仮焼炉経由の場合よりも 50倍以上大きくなるであろう。この影響は，微粒子に対するフィード対スタックD F が 10^{12} ～ 10^{14} に減少することであろう。

もしNOx 変換器が酸回収システムに代って利用されるならば，次のような変化が生じるであろう。NOx 吸収塔とその後のコンデンサーが変換器システムと置き換えられるであろう。吸収塔とコンデンサーのD F は微粒子で 200，揮発したルテニウムで 200である。NOx 変換器では微粒子で 1，揮発したルテニウムで約 380であると予想される（Table 5）。したがって，この置き換えにより，微粒子でD F が200減少し，揮発ルテニウムでD F が 2 増加することになるであろう。その結果，全フィード対スタックD F は微粒子で 10^{10} ～ 10^{12}，ルテニウムで 4×10^{10} であろう。

コンデンサーはガスがルテニウム吸着層に達する以前に使用されるから，シリカゲル層は約35℃で操作可能であろう。この温度での揮発ルテニウムのD F は，70～100℃で得られた値 10^3（2.9.2項参照）より 1 桁大きな値になるであろう。ICPPの WCF では水分が除去されていないのでオフガスを露点以上に保つために，後者の温度範囲が必要なのであり，大抵の試験研究は，この温度範囲でおこなわれている。25℃ でおこなわれた1つの研究では，10^5 のD F が示された。

この提案されたオフガス浄化システムは，第 1 焼結金属フィルターのために考えられたバックアップ装置を備える唯一のものである。

この目的のために，まずベンチュリースクラバーが設計の中に入っていて，もし SMFが破損しても，他のオフガス処理装置に微粉が殺到することはないであろう。微粉の高負荷があるようなシステムには，第 1 フィルターに対するバックアップが得策であろう。

3.12 要　約

考察した様々のプロセスに対して，予想される全フィード対スタック除染係数をTable 19に示す。デンマークとP N L の連続セラミックメルターとP N L のワイプドフィルム蒸発器は，総合システムが開発されていないので除外している（3.9.1，3.9.2，及び 3.10 項参照）。

予想される仕様に関する補足コメントを 4 章に示している。

特記した所以外では，表に示した全D F の中にはHLLWを濃縮するために用いられる蒸発器

の効果は入っていない。蒸発器及び全ＤＦに及ぼす考えられる影響については4.3.1項を参照されたい。

TABLE 19

SUMMARY OF ESTIMATED OVERALL FEED-TO-STACK PROCESS DECONTAMINATION FACTORS

Process	Feed-to-Stack DF		
	Particulates	Volatilized Ru	NO_x
ICPP Fluid-Bed[a]	2×10^{11}	2×10^{11}	1×10^{3}
PNL Fluid-Bed[b]	10^{10}	10^{6}	2
Eurochemic LOTES	6×10^{8}	1×10^{7}	1 to 2
PNL Spray	10^{12}	10^{10}[c]	7
German VERA	10^{12}[d]	10^{13}	20
PNL Pot	10^{12}	10^{10}	7
British FINGAL	10^{15}	10^{13}	50
British HARVEST	10^{13}	10^{8} to 10^{9}	50
French PIVER[e]	10^{13} to 10^{14}	10^{10} to 10^{11}	4×10^{2}
Italian Pot[e] Phosphate Glass	10^{14} to 10^{15}	10^{10}	60
Borosilicate Glass	10^{14} to 10^{15}	10^{9}	25
PNL Phosphate Glass	10^{12}	10^{10}	7
French Rotary Kiln	10^{10} to 10^{11}	10^{6} to 10^{7}	8
German FIPS[e]	10^{11} to 10^{12}	10^{5}	2×10^{5}
German PAMELA[e]	10^{13} to 10^{14}	10^{9}	2×10^{2}
PNL Proposed System[e,f]	10^{12} to 10^{14}	10^{10}	10^{3}

[a]With NO_x converter and second HEPA filter.

[b]Including final HEPA filter.

[c]Data are for total Ru, but since total Ru DF is 0.01 times total Ce DF, one may assume the majority of released Ru is in volatilized form.

[d]If final HEPA filter is included in ventilation system, particulate DF will be increased by a factor of approximately 10^2.

[e]Waste Evaporator (concentrator) included in integrated system.

[f]PNL spray calciner with in-pot melter assumed. DF for iodine = 10^3.

4. 結 論 と 考 察

調査した廃棄物固化システムに関して行った一般的な観察と結論を，ここに要約する。所見は，一般的分野と重要な論題とに分けた。

4.1 気体廃棄物の除去率

4.1.1 放出規制値

制御していない地域に対する10 CFR 20の最大許容濃度，およびある同位体に対して指定されているEPAスタンダードに適合させるために必要となるフィードースタックDFの見積りに関して，詳細な計算を行った。解析には，代表的な$6\,{}^{2}/_{3}$ MTHM／dayの廃液固化施設に対し，種々の同位体の予想される供給速度を計算に入れた。10CFR20 MPC と必要なDFとの関係では，スタックからサイトの境界までの平均のX／Q 値として，1×10^{-7}sec m^{-3}を仮定した；Barnwell 施設で用いられるであろう52 m^3sec^{-1}という代表的なスタックガス流速に対し，この値は2×10^5の希釈係数に相当する。選ばれた同位体（Kr－85，I－129，超ウラン元素）に対するEPA スタンダードは，燃料サイクル全体でGWeyr当りに放出される各々に対し，最大キュリー数の形で表わされている。同位体に対して必要なDFを計算するベースとして，40 MTHM／GWeyr の燃料燃焼度を用いた。燃料サイクルでの超ウラン元素の放出は廃液固化施設においてのみ起り，またヨウ素の放出は燃料再処理および廃液固化施設においてのみ生じると仮定した。

解析の結果が示すところでは，最も厳重な管理を要する放射性核種はCm－244である。揮発性同位体の中では，Ru－106が廃液の固化の間最も厳密に管理されなければならない。ICPPのWCF で軍事廃液（defense waste）が固化されて来た過去において，Ru－106には特別の注意が必要であった。商業炉 HLLWのRu－106 濃度は，ICPP廃液の約2700倍高いので，[2] その揮発を制御したり揮発した分をオフガスから除去することの重要性は，商業施設においては一段と大きくなる。

さらに解析は，最近確立したEPA スタンダードは主に微粉で存在する超ウラン元素の放出に関し，10CFR20 MPC よりも著しく厳しく制限することになることを示している。Cm－244の放出を少ないレベルまで制限するためには，さらに3000倍の減少が見積られる。したがって，微粉のフィード対スタックDFは，廃液固化施設において10^9を越える必要があろう。

I－129に対するEPA スタンダードにより，これは10CFR20MPCよりもさらに約2×10^4倍規制を強めているが，もしI－129が再処理で適切に除去されなければ，廃液固化プロセスの流出物に対しコントロールもまた必要となるかもしれない。

特別のEPAスタンダードは，超ウラン元素，I－129，Kr－85以外の他の放射性核種についてはまだ確立していない。Ru－106について，10CFR20MPCでは，全体で10^4以上のDFが必要である。ただし，これにはさらに厳しい管理を生じさせそうなALARA条項が考えに入っていない。

ウラン燃料サイクルに対し，EPAによって確立された1人当りの年間平均被曝制限25mrの値は，個々の放射性核種についての，また種々の燃料サイクル施設についての規制にまでブレークダウンされていない。これはNRCの仕事であろうし，NRCが評価を終了した時，高温の廃液固化プロセスで揮発する他の同位体の管理が行われなければならないだろうことは全く有り得ることである。この範ちゅうに入るであろう同位体はTc－99，Se－79，Te－127m，H－3である。

4.1.2　種々のプロセスに対する一般的な要求

すべてのプロセスにおいて微粉と揮発性ルテニウムの制御が必要であるが，オフガス処理システムの負荷は固化システムによって変化する。流動床およびスプレー仮焼炉では，ガス流中に多量の微粉が入るので，他のプロセスよりも微粉の除去に関してより多くの注意が必要となる。さらに，これらの2つのプロセスではガス流速が大きいので，サイズしたがって個々の流出物の処理システムの設備費や運転費が，他のプロセスで必要なものより大きくなるであろう。

セラミックメルターおよびポット仮焼炉は元来オフガス流量が少なく，したがって比較的小規模の流出物処理装置で済むであろう。しかし，共にルテニウムを揮発させる高い可能性を持っている。ポットプロセスはルテニウムの高い揮発率を持つことが知られている。連続セラミックメルターにおけるこの問題の程度は，まだ確立していない。ルテニウムに伴なう多量の放射線と低いレベルまでこれを除去する必要性のため，ルテニウムの揮発が高いときには，制御システムはかなり複雑なものが必要となるであろう。

4.2　システムの性能

現在開発の進んだ段階にあるいろいろの廃液固化プロセスから放出される予想気体廃棄物は，そのプロセスや使用されている異なった型のオフガス処理装置の過去の経験に基づいて評価されて来た。一般に解析の結果は，高レベル廃液を固化したとき，微粉状の同位体やルテニウムに対する10CFR 20MPC制限および超ウラン元素に対する最近のEPAスタンダードに十分に合わせることができることを示している。しかし，これは夫々のシステムが規制グループによるALARAの解釈を満足させるに必要な流出物の制御を備えていることを意味するものではない。

1つを除いてTable 19に示したDFはすべて，3.1.2項で仮定した最低所要値DF＞6×10^9を越えている。DFの基準の要約については4.1.1項を参照されたい。繰返すが，これらの値はALARA条項の解釈が行われた時には適当であるかもしれないし適当でないかもしれない。

ユーロケミックのLOTES プロセスは，第2のHEPA フィルターを加えることによって，微粉の除去を許容レベルまで改善できるであろう。このプロセスのルテニウムに対する総括DFは，多くの他のプロセスよりも著しく小さい。繰返すが，これはルテニウム吸着塔を入れることによって実質的に改善できるであろう。

ドイツの FIPS プロセスのルテニウムのDFは，現在の流出物処理スキームのままでは，この国でのそのプロセスの適用は受け入れられない。ルテニウムの吸着塔が必要となるであろう。PNLの流動床仮焼プロセスの開発に使われた実験システムおよびフランスのロータリーキルンプロセスでもまた，ぎりぎりのルテニウムのDFである。前者は産業開発施設としての最終デザインではないし，コールド研究に使われたにすぎないことは認められる。

オフガス処理システムの中には，特に実験的なものにおいて，放射性核種の除去に対して"過剰設備（overkill）"を備えていて，産業用施設としては単純さやコストの点で実用的でないものがある。基本的で単純な処理，たとえばルテニウム吸着塔の欠けているものもある。一般に，ガス清澄化全体，コストおよび実際の操作との間のバランスを取らなければならない。

一般に，推奨されることは，ルテニウムはフィード中の放射能が高くまたオフガスから効果的に除去することが難かしいので，ルテニウムの揮発率が小さい，望ましくは 0.1％以下の結果となるような固化プロセスやその操作条件を選ぶべきだということである。またルテニウムの揮発率が高いと，配管に沈着するために操作上の問題も生じ得る（4.3.5項の考察を参照のこと）。

組み合わせたシステムでの位置を考慮に入れて個々の構成機器のDFを評価するために，合理的な努力が払われたとしても，Table 19 のDFは多くの場合，大きな不確実性を持つと考えなくてはならない。これは特に微粉のDFに関して事実であり，一般に 10^{12} あるいはそれ以上のオーダーの非常に大きい予想値を有している。2桁から3桁誤っているものもあるであろう。これは，微粉の量と粒径が非常に小さくなった場合の個々の構成機器のDFと，総括DFに及ぼす機器の相対的な配置の効果とに関してデータが不足しているためである。しかし，評価したDFが非常に大きいという事実は，かなり大きな不確実性に照らして見たとしても，システムの適切さを示している。

システムに関する過去の試験で使われたサンプリングおよび測定の技術は，大抵の場合完全な評価ができるほど十分に包括的でない。揮発性や蒸気種の安定性に依って，コントロールが必要になるかもしれない Tc および Se のような潜在的に揮発性の純ベータ線放出核種の経路を同定するような仕事が存在する証拠はほとんどない。

予想DFが許容できるぎりぎりのときには，その全体の廃液固化システムを試験して，それが流出物抑制の最低の要求度を満足しているかどうかを明らかにすべきである。個々の構成機器の予想した浄化性能に不確実性があることに加え，ある固化プロセスでは意外な流出物を生じる。たとえば，デンマークの連続セラミックメルターでは，明らかにオフガスに同伴する多量のダストを生じたし，一方PNLの連続セラミックメルターではほんの少量しか生じていない。またド

イツは，PAMELA プロセスの連続セラミックメルターからはダストは生じないと主張している。多くのプロセスにとって，揮発性ルテニウムの発生（および除去）がかなり重大な未知の事柄である。

定常運転に対し大きな総括DF，あるいは大きな個々の構成機器のDFが予想されるときには，全システムの中のある構成機器の事故の可能性とその結果生じる影響を心にとめておかなくてはならない。すなわち定格運転時間（on-stream time）が重要な別のファクターである。たとえば，1年のうちの1日間フィルター（DF＝10^3）が破損またはルテニウム吸着塔（DF＝10^3）の温度が吸着効果のない範囲へずれたならば，年間平均DFは4倍下がるであろう。もっと顕著なことに，24時間放出量は通常の放出量の1000倍に増加するであろう。予想外の個々の故障あるいはプロセスの不調が一時的に許容できるように，十分な総括の安全係数を備えておくことが賢明である。

焼結金属フィルターは，粉末状のプロダクトを生成するすべてのプロセスにおいて，ダストの最初の封じ込めのために使われる。PNLが提案したオフガス浄化システム（2.9.1項）だけがバックアップ用の高負荷微粉除去装置を含んでいる。焼結金属フィルターは耐久性があり全く信頼できるが，フィルターは破損の可能性があり，その結果フィルター以降の機器にダストの負荷が高くなるであろう。高負荷ダスト用に設計されていない機器を保護することと第2シリーズのSMFのようなバックアップ装置の設置により，微粉に対するシステムのDFを確保することが望ましいであろう。

4.3 構成機器とコントロール法

いくつかのオフガス処理装置のプロセスに与える影響と相対的な利点，および流出物のコントロールに使われる方法をここに要約する。微粉用装置についての基本的な設計情報の簡単な考察を最後に含めた。

4.3.1 蒸 発 器

Table 19 に示したように，オフガス処理システムの中に廃液の蒸発器（濃縮器）を組み込むことは本文中に入れてあるし，また2，3のプロセスに対して総括DFを評価している。蒸発器からのエアロゾルの飛出しおよびルテニウムの揮発量は，それぞれ0.005%と0.001～0.01%である。すべてのプロセスには，固化に先立ち廃液の予備濃縮が入っている。しかし，蒸発器オフガスをオフガス処理システムに組み込む位置が，全く無いわけではないが，示されていないプロセスがあり，その場合総括のDFに及ぼす蒸発器の影響は評価できない。イタリアのポットプロセスのように，もし蒸発濃縮器のオフガスが前段に近いシステムに入れば，環境への正味の放出量は蒸発器の運転により増加しないであろう。もし組み込む所が，PIVERプロセスのようにオフガス処理システムのやや下流であれば，総括のフィード対スタックDFは，固化装置を経る経路に対して計算された値より小さくなるであろう。

蒸発器のなかには，それ自体のオフガス処理システムを持つものがあるかもしれない。もし蒸発器から流出する可能性のあるものを適切に考慮しないと，スタックへの放射性核種の正味の放出量が全体的に増加する結果を生じるかもしれない。

蒸発器からのエアロゾルの仮定した飛出し量（0.005%）は，FIPSプロセス（3.8節参照）の経験と評価とに基づいており，おそらく安全側に高いであろう。蒸発の間に揮発するルテニウムの量は，もし酸濃度が4Mを越えなければ，0.01 % よりおそらく少ないであろう。[94]硝酸濃度が高くなるに従って，ルテニウムの揮発率は急激に増加し，8M以上のHNO_3濃度では1%に達する。しかし，NOあるいはHNO_2が存在するとたとえ少量であっても，空気が大幅に除かれたとき，HNO_3濃度が8Mの場合ルテニウムの揮発率を0.003%に抑えることができる。[2] NOの大部分は放射線分解によって生成するようなので，ルテニウムの揮発を自動的に0.01%以下に制御することが可能である。オークリッジ国立研究所で行なわれた最近の測定によると，9〜10 MのHNO_3濃度においても，放射線分解の条件によって，LWR 高レベル廃液の蒸発中にルテニウムの揮発が実際に抑制されることが示された。[97]

4.3.2 焼結金属フィルター

ダストの封じ込めに焼結金属フィルターを応用することについて，2つの方法を述べる。標準的な配列では，フィルターを仮焼炉から離れた容器の中に置き，フィルターは十分にさらされている。この配置では1〜5分毎にブローバックが必要である。新しい方法は，改良VERA プロセスで使われているもので，フィルターはスプレー仮焼炉の壁の回りに配列されているが，個々におおわれている。これはブローバックの必要性を減じ，30分間隔にできるし，あるいはより少ないフィルターで目的を達することも可能であろう。

4.3.3 スクラバーとコンデンサー

HansonとKaser[64]は，微粉の除去に対し異なったタイプのコンデンサーとスクラバーの相対的な利点を論じている。もし仮焼炉が，オフガスに高い固体の負荷を与える可能性があるならばベンチュリーのような開放型のスクラバーが推奨される。負荷の可能性が小さいならば，シェルアンドチューブ型コンデンサーあるいは充填塔型クエンチスクラバーが考えられる。充填塔型クエンチスクラバーでは，その個有の洗浄能力のために高いDFが得られるが，比較的高い圧力損失と閉塞の可能性があるという欠点を有する。ベンチュリースクラバーよりも良い酸吸収性を備えている。

4.3.4 ルテニウム吸着塔

揮発性ルテニウムの除去には，酸化鉄がシリカゲルに代わるものとして広く認められて来つつある。両者とも適当な条件下では，約10^3のDFを有し，また高いキャパシティを持っている。

これらは一般に，大部分のルテニウムがオフガスから洗浄除去された後に，最終除去用に使われるので，再生の可能性は，ふつう選択に当っての重要な考慮点ではない。過去にシリカゲルはWCFで使われて来た。そこでは水蒸気はオフガスから除かれていなくて，吸着塔での露点は60～65℃であり，吸着塔は間接加熱法が用いられたキャンペーン中65～75℃で操作された。シリカゲルへのルテニウムの吸着に関する大抵の実験室規模の研究は，80℃で行われている。水蒸気が凝縮除去されるプロセスでは，シリカゲル吸着塔はより低い温度で操作でき，より高いDFが得られるかもしれない。25℃における1つの実験室規模の研究では，10^5のDFを示している。[69]乾燥ガスに対するこの利点は，ルテニウムの吸着に高温を必要とする酸化鉄では得られないだろう。乾燥系においてより低い温度でシリカゲルを利用するために，一層の研究を行うことは明らかに正当である。

フランスのPIVERプロセスで使われ，500°～600℃で操作される酸化鉄吸着塔は，ケロシンを燃焼させる流動床プロセスにとって利点を有する。吸着塔の温度が高いので，シリカゲル塔では時々起った未燃焼炭化水素の沈着を防ぐことができるであろう。

4.3.5 ルテニウムの制御

揮発したルテニウムは，洗浄と吸着塔との組み合わせによりガス流から除くことができる。揮発量は操作法によって多少とも制御することができる。ケシロンの内部燃焼法は，流動床仮焼炉におけるルテニウムの揮発を0.01％以下に制御できる。[2, 37]流動床仮焼炉が間接的に加熱されると，ルテニウムの揮発は低温では高いが温度が上るにつれて減少する。[2, 37]

HLLWの脱硝は，仮焼の前にバッチ的に行おうと仮焼中に連続的に行おうと，仮焼炉からのルテニウムの揮発を著しく抑制するであろう。一般に，脱硝したフィードからの揮発率は，流動床仮焼炉およびスプレー仮焼炉において0.01％以下である。連続セラミックメルターにおいては，脱硝のルテニウムに及ぼす効果はわかっていない。

高いルテニウム揮発率を有するプロセスでは，配管内へのルテニウムの沈着により，直接メインテナンスが必要なときに排除の困難な高い放射線場が生じると同様に，閉塞が生じ得る。問題の場所でルテニウムが沈着することを防ぐ技術は Christian[2]により調査されている。手短かに言えば，多少とも効果のある技術は，壁温を250から350℃に保つこと，負の温度勾配を避けることおよびおそらく，高温で沈着を生じさせるオフガス中の酸素を不活性ガス（N_2あるいはNO）で希釈することである。流動化ガスやパージガスに不活性ガスや還元性のガスを使えば，ルテニウムの揮発率を減らすこともできる。

4.3.6 NOx 変換器

NOx 変換器には，スクラバーによるよりもNOx 除去のDFが増加することに加え，揮発したルテニウムやおそらく他の半揮発性分子もオフガスから除去する利点が有るかもしれない。予

備的な情報が示すところでは，ルテニウムのDFは約 380 である。

NOx 除去のDFを改善することと，揮発したルテニウム（およびおそらく他の半揮発件分子についても）の除去を高めることの利点を合わせると，NOx の触媒変換器は，硝酸を洗浄除去することに対する魅力ある別法となる。たとえ HNO_3 を再生利用するとしても，NOx 変換器は，NOx やルテニウムの仕上げの塔として使うことができる。オフガスシステムにおいて早い時期にNOx を除去することは，NOx による下流の腐蝕が避けられることにより運転費を相当に援助する結果にもなりうるだろう。

4.3.7 HEPA フィルター

プロセスの最終ろ過は HEPA フィルターが行う。これは小さい微粉の除去には非常に効果的であるが，ある操作上の欠点が，特に事故時にある。効率は，フィルター媒体を通る低い1次面速度に依存し，0.02 atm 以上の差圧で粒子の貫通が免かれない。不利なあるいは事故の状態での防護のために，バックアップ用のろ過装置あるいはシステムを用意すべきである。バックアップろ過を備えるか HEPA フィルターを焼結金属フィルターで置き換えるかの可能性が考えられよう。5.4.1項の追加の考察を参照のこと。

4.3.8 微粉除去の基本的考察

Theodore と Buonicore[98] は，微粉状大気汚染物質の産業用制御機器について，ある程度詳細に調査している。詳細に論じている機器の一般的な型は，重力集塵器，遠心分離器，静電気集塵器，湿式スクラバーおよび繊維フィルターであり，設計を理論的および実際的見地から考えている。現在使用されているものを含め，原子力産業に適すると思われるいくつかの選び出した機器について，重要な事実と結論とをここに要約する。これ以上の詳細と議論については，興味ある読者は，Theodore と Buonicore[98] の総括的な調査を参照されたい。

通常のサイクロンは，本体の径が入口ダクトの径の3～5倍であり，多量のガス処理能力と中程度の捕集効率を必要とする場合に有効である。高効率サイクロンは本体の径が小さく，代表的なガス量を処理するためには通常いくつかのエレメントを並列に配置しなければならない。2つのサイクロンの異なった大きさの粒子に対する捕集効率を Table 20 に示す。サイクロンの圧損は通常 0.005 atm である。

スプレー塔はすべて湿式スクラバーであるので，粒子の捕集と物質移動（ガス吸収）の両方に適している。多量のガスの処理が可能であり，ガス流の温度を下げるためにプレクーラーとしてしばしば使用される。代表的には 10 μm 以上の粒子は 70％の効率で除去できる。スプレー塔の主な欠点は，0～5 μm の粒子について洗浄効率が比較的低いことである。

充填塔型スクラバー，これは普通は気体状公害物質の除去に用いられるが，微粉の除去についてもまた高い効率がある。3～5 μm のような小さい粒子の捕集には，充填型向流スクラバーが

最も効率が良いことがわかっている。径が0.25 μmのような小さい粒子を除去するためには，高エネルギーの並流を用いなければならない。充填塔型スクラバーでは運転上の圧損は，代表的には高さ1m当り0.008～0.03atmであるが，高い効率のスクラバーでは急激に増加する。向流スクラバーは通常深さは1～3m，並流型ではもっと浅くなる。

TABLE 20

CYCLONE COLLECTION EFFICIENCY

Particle size (μm)	Efficiency (% by wt)	
	Conventional cyclone (%)	High-efficiency cyclone (%)
<5	-----	50-80
5-20	50-80	80-90
15-50	80-95	90-99
>40	95-99	95-99

前述のように，微粉の除去のために充填塔型スクラバーを用いる場合の主な問題点は，充填物の閉塞とその結果生じる保守上の問題である。サム（Thumb）の一般的な役割は，充填塔に入るガスの標準立方メートル当り最大0.5 g のダストでも許容せしめることである。微粉の除去に移動床型スクラバーを適用すると，閉塞の問題が，無くならないまでも最少にすることができる。移動床型スクラバーの圧損は1段当り0.007から0.01 atm が代表的であり，捕集効率は2 μmまでの粒子に対し99％を越えるであろう。

噴霧慣性型スクラバーにはベンチュリー型，衝突板型，微分型のスクラバーがある。これらは一般的に，大きなガス流量で比較的ダストのローディングが高いものを処理できることが特徴である。径が5 μm以上の粒子に対し90～95%の効率が得られる。

ベンチュリーと衝突型のスクラバーを組み合わせたものの効率は，径が0.5 μm のような小さい粒子に対し比較的効率が良い。圧損は通常0.02～0.037 atm である。

ベンチュリースクラバーの捕集効率は圧損に依存している。圧損は0.01から0.2atmである。圧損が0.025 atmのベンチュリーでは，実質上100％の効率で2 μmの粒子を除去することができる，一方0.3～0.4 μm の粒子を除去することがしばしば必要ならば，圧損が0.15 atm のベンチュリーを用いることができる。ICPPの廃棄物仮焼施設で用いられているベンチュリースクラバーの圧損が約0.15 atm であった場合，それを出る粒子は平均粒径が0.1 μmであった。[4]

ベンチュリー自身は，1つのガスコンディショナーにすぎず，水の飛沫を除去するために分離部をその後に設けなければならない。

衝突板型スクラバーでは，0.0025から0.2 atm の圧損で，1 μmの粒子に対し90～98%の捕集効率がある。

衝突板型スクラバーは小さなミクロン以下の粒子の捕集用に設計されており，より大きな粒子を前もって除去することが必要である。インペラーを動かすためにエネルギーが必要となるため運転費が高く，またインペラーのドライブシャフトのシールが必要であるため，原子力施設で用いることには疑問が生じる。

静電気集塵器では低い圧損（＜0.01 atm）でミクロン以下の粒子，0.01 μm程度，に対し高い捕集効率を備えることができる。これは10^3 actual m^3／sec までの多量のガスを処理することができる。欠点は，大きな据えつけスペースが必要なこと，設備費および操業費が高いこと，処分に不適切な廃棄物が発生することである。

4.4 要　約

要約すると，大抵のガラス固化プロセスとそれに付随するオフガス処理システムは，放射性気体廃棄物の制限という点からみて実用的である。プロセスおよびオフガス処理システムの選択は，必要な処理量，単純さ／コスト，流出物の全放出量を含め，多くのファクターに依存する。この報告書で要約した情報は，客観的な設計と評価に使うことができるデータを含んでいる。詳細な考察により，流出物の制御に対しシステムの性能を正確に予想するため，さらに実験データを必要とする多くの分野が明らかになった。第5章ではいくつかの推奨する開発研究について概略を述べる。

5. 推奨する開発研究

プロセスからの気体廃棄物を予測し／あるいは制御するために，また制御の適切さを評価するために更に情報が必要な多くの分野が明らかになった。推奨すべき研究について以下に概略を述べる。

5.1 放出制限

制定された最大許容放出速度に関して，長半減期および中程度の半減期を持つ揮発性および半揮発性放射性同位元素についての望ましい地域的および全世界的な最大放出速度を決めるため，さらに研究を行うべきである。なぜならば，それらは原子力施設が増加するにつれ，全世界的に蓄積しうるからである。何か必要な追加すべき制御が制定できるように制限が必要である。特に重要なのは，I－129（$t_{1/2}=1.59\times10^7$ yr），Tc－99（$t_{1/2}=2.13\times10^5$ yr），Se－79（$t_{1/2}=6.5\times10^4$ yr）であり，また燃料再処理施設に対してはC－14（$t_{1/2}=5730$yr）がある。これは一度放出された生物環境に蓄積する傾向がある。また，H－3（$t_{1/2}=12.33$ yr），Cm－244（$t_{1/2}=18$ yr），これは最も悪い微粉である，および燃料再処理施設についてはKr－85（$t_{1/2}=10.73$ yr)などの蓄積は，数世代の間環境に多量に残留するので避けるべきである。将来の研究には，これらの同位体の生物学的毒性や人間への潜在的な経路に関する詳細な研究を含めるべきである。これらのデータは，それから原子力施設建設の長期計画の評価と結びつけることができ，全世界の施設や個々の設備に対し，累積的に許容できる最大放出速度を合理的に評価できることとなる。

全世界的な蓄積が長半減期同位体とかかわらなくてはならない一方，短半減期同位体の地域的な放出もまた，直接の住民を保護するため適切に制御されなければならない。このカテゴリーに入るのは，ルテニウムのみならずセレン，テルルおよびアンチモンのような他の潜在的に揮発性のものである。これらの健康へ及ぼす影響や環境での移行に関して，より定量的なデータが必要である。

5.2 同位体の挙動

5.1節で考察した大抵の半揮発性のもののプロセス挙動と制御については，一般的にはわかっていない。これらの半揮発性のもの，特にTc－99の揮発性やオフガスシステムにおける除去効率についての研究が，その放出を予想しまた必要ならば制御できるように，必要である。揮発したセシウム（Cs－137で$t_{1/2}=30$yr）のオフガス処理装置の除去効率もまた研究すべきである。なぜならば，あるガラス固化プロセスでは蒸気種としてガス流に入り得るからである。

2.4.1項で述べたように，テルルとセレンの揮発性はリン酸ガラスプロセスでは高いかもしれない。したがって，PAMELA プロセスやイタリアのポットプロセスのようにリン酸ガラスを作るプロセスでは，これらの元素の経路を特に調べるべきである。

ルテニウムはフィード中のアクティビティが高く，また高温ガラス固化プロセスでの挙動に関する広範なデータが欠けているので，選択したプロセスのガラス固化における揮発性を測定すべきである。これは特にセラミックメルタ－プロセスに対し重要である。このプロセスにおいて，揮発したルテニウムが不安定である可能性があるため，オフガス処理系での経路を調べるべきである。非常に高温で運転するセラミックメルター に対しては，他の潜在的に揮発性であるものの挙動を特に測定すべきである。3.10節で示したように，ワイプトフィルム蒸発器の運転条件はおそらく，ルテニウムを揮発性にさせる最適条件である。したがって，ワイプトフィルム蒸発器におけるルテニウムの揮発挙動は，ギ酸あるいはホルムアルデヒドでフィードの脱硝を行っても行わなくても，商用廃液の濃縮にこれを適用する前に調べておかなければならない。

5.3 半揮発性物質の制御技術

一般に，エアーボーンとなるルテニウム以外の半揮発性物質の潜在的問題は，現在のところ十分にわかっているわけではない。したがって，その制御について特別な勧告はこの時点ではできない。ルテニウムの制御についての特別な研究を以下に推奨する。

5.3.1 ルテニウムのプロセス制御

セラミックメルタ－オフガスへのルテニウムの移行が問題となるとわかったならば，バッチ式であれメルター中での連続式であれ，脱硝が高温状態で著しい抑制効果を持つかどうかを見るためにフィードの脱硝効果を調べるべきである。一般の仮焼／ガラス固化プロセスに対しては，通常はルテニウム揮発率は1％のオーダーまたはそれ以上であるが，ギ酸による仮焼炉内脱硝の揮発率におよぼす効果を測定すべきである。もし抑制効果が顕著ならば，オフガス処理システムは簡単になるであろう。また，仮焼炉内脱硝はおそらく，窒素含有ガス種を主に無害で非腐蝕性の N_2 または N_2O に変換するであろう（2.2.2項参照)。

5.3.2 ルテニウム吸着剤

限られた研究が示すところでは，シリカゲルによるルテニウムの吸着は，シリカゲルを25℃近辺に保持することによって，約70℃で得られる通常の値を著しく越えて高くなるかもしれない。雰囲気温度に近い低い温度において，乾燥したオフガスからルテニウムを除去するためにシリカゲルを適用する可能性について調べるべきである。

ルテニウム吸着剤，特にオフガスシステムのヘッドエンド付近，ここは温度が高く比較的ルテニウム濃度が高い部分であるが，において使える可能性のある酸化鉄系吸着剤の吸着容量をさら

に測定すべきである。

酸化鉄系吸着剤については，最適操作条件，特に温度とガス線速度に関してさらに広範な研究が必要である。推奨温度は英国のフィルター／吸着剤の250℃から，フランスの装置の600℃まで広がっている。ルテニウムのDFが10^3と報告[71, 72]されているが，10^2を越える値を得ることは困難である（3.5.2，3.5.3，3.5.4項参照）。したがって，操作パラメーターの許容範囲を確立することが重要である。

揮発したルテニウムをオフガスから除去するために，DF，吸着容量およびNOx還元の触媒能がどのように影響を受けるかということを含め，NOx変換器の効果を決めるためにさらに研究が必要である。

5.4 気体廃棄物の一般的な処理

気体廃棄物の一般的な処理に関していくつかの勧告を以下に論ずる。最初に個々の機器を考察し，それからそれらを組み合わせたオフガスシステムに関しいくつかのコメントを行う。

5.4.1 個々の機器

プロセスシステムの最終ろ過は，HEPAフィルターである。これには，特に事故状態において，いくつかの欠点がある（4.3.7項参照）。負荷容量が限られているので，これは固体廃棄物の容積へ著しく寄与が大きい。これらの問題は，焼結金属フィルターを適当に使用することによりおそらく最少にできるであろうが，しかしまず実験室規模およびパイロット規模で効果があることを証明しなければならない。焼結金属フィルターは，孔径が5 μmのものが入手できるし，0.1 μmの粒子についてもHEPAフィルターに近い効率があると言われている。詳細な研究により，原子力産業特に再処理と高レベル廃液固化処理プロセスに対し有効になると考えられる。

4章ですでにそれとなく言ったように，個々の機器のDFが十分に確立していないので，システムのDFを計画することは困難である。システム内のほとんどのダウンストリーム位置，ここではある機器が用いられるであろうが，そこで予想される濃度や粒径やエアロゾル径の関数として微粉や揮発ルテニウムに対する機器の除去効率を決めるため，研究が必要である。機器のDFを測定するときには，湿式装置からのエアロゾルの再同伴を含めるべきである。効率や除去が可能な粒径についての理論的限界を，種々のタイプの装置について確立すべきである。

5.4.2 組み合わせシステム

個々の機器を十分に研究する以上により広範な研究を行うことにより，2つあるいはそれ以上の構成機器のもっともらしい配置の組合せ効率が決まるであろう。配列は，3つあるいはそれ以上の構成機器に対し非常に多数の組み合せ（n！）があるので，2〜3の合理的なものに限らなければならない。

構成機器あるいはシステムの性能を研究する場合，実験計画において，装置をプラント規模までスケールアップすることのＤＦに及ぼす可能性のある影響について考えなくてはならない。プラントで予想される面速度，滞留時間その他を模擬することはしばしば可能ではあるが，小規模装置では必ずしも大きなシステムと同じ条件あるいは結果が得られるわけではない。可能なところはスケールアップ効果を評価すべきであるし，あるいは少くともそれで影響を受けるデータの限界は認めるべきである。この問題もまた，たとえばオフガス流量の少ないプラント規模のポットプロセスから，スプレー仮焼あるいは流動床仮焼のようなオフガス流量の多いプロセスに対し，オフガス構成機器のデータを外そうすることを難かしくしている。

5.5　サンプリングと測定

全システムの性能試験に伴なう問題は，きれいにしたオフガス中に含まれる微量の物質をサンプリングし測定する難かしさである。微粉のＤＦが 10^{11} ～ 10^{14} の範囲では，プロセスオフガス中の高放射能同位体の濃度は 10^{-8} ～ 10^{-13} μCi／cm^3 のオーダーであろう。揮発したルテニウムのＤＦが 10^{7} ～ 10^{11} では，オフガス中の揮発ルテニウムのアクティビティは 10^{-6} ～ 10^{-10} μCi／cm^3 のオーダーであろう。このような程度の濃度はカウンティング法では測定できない。[99] 濃縮法やより感度のよい検出方法を用いなければならない。最近 Hower らは，再処理施設と廃液固化施設に対しサンプリングや測定の問題点を調査し論じている。[99] 問題点が徹底的に評価された結果，広範で詳細な考察が必要とされている。興味ある読者は詳しい議論のためにこの研究を参照されたい。開発研究への多くの勧告がこのレポートの中に含まれている。

6. 参 考 文 献

1. Alternatives for Managing Wastes from Reactors and Post-Fission Operations in the LWR Fuel Cycle, Volume 2: Alternatives for Waste Treatment, ERDA-76-43 (May 1976), Section 6.0.

2. J. D. Christian, "Process Behavior and Control of Ruthenium and Cerium", in Proceedings of ANS-AIChE Topical Meeting on Controlling Airborne Effluents from Fuel Cycle Plants, Held in Sun Valley, Idaho, August 5-6, 1976. (Published by American Nuclear Society, Hinsdale, Illinois; 1976).

3. J. W. Loeding, E. L. Carls, L. J. Anastasia, and A. A. Jonke, The Fluid-Bed Calcination of Radioactive Wastes, ANL-6322 (May 1961).

4. R. D. Modrow and L. T. Lakey, Removal of Particulates from Waste Calcining Facility Off-Gas, IDO-14607 (June 1964).

5. R. E. Commander, G. E. Lohse, D. E. Black, and E. D. Cooper, Operation of the Waste Calcining Facility with Highly Radioactive Aqueous Waste, Report of the First Processing Campaign, IDO-14662 (June 1966).

6. G. E. Lohse and M. P. Hales, Second Processing Campaign in the Waste Calcining Facility, IN-1344 (March 1970).

7. C. L. Bendixsen, G. E. Lohse, and M. P. Hales, The Third Processing Campaign in the Waste Calcining Facility, IN-1474 (May 1971).

8. J. A. Wielang, G. E. Lohse, and M. P. Hales, The Fourth Processing Campaign in the Waste Calcining Facility, ICP-1004 (March 1972).

9. J. A. Wielang and W. A. Freeby, The Fifth Processing Campaign in the Waste Calcining Facility, ICP-1021 (June 1973).

10. R. R. Smith and J. A. Carter, Editors, Final Design Criteria for New Waste Calcining Facility, ACI-176 (January 1976) (Allied Chemical ICP internal report).

11. F. H. Anderson, G. E. Bingham, J. A. Buckham, B. R. Dickey, C. M. Slansky, and B. R. Wheeler, "Design Criteria for the New Waste Calcining Facility at the Idaho Chemical Processing Plant", in Proceedings of International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, Held in Vienna, March 1976 (1976).

12. W. J. Bjorklund, Fluidized Bed Calcination Experience with Simulated Commercial High-Level Nuclear Waste, BNWL-2138 (November 1968).

13. J. L. McElroy, W. F. Bonner, H. T. Blair, W. J. Bjorklund, C. C. Chapman, R. D. Dierks, and L. S. Romero, "Recent Calcination and Vitrification Process Accomplishments", in Proceedings of International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, Held in Vienna, March 1976 (1976).

14. D. W. Clelland, R. Bonniaud, A. D. W. Corbet, E. Detilleux and H. Krause, "A Review of European High Level Waste Solidification Technology", in Proceedings of International Symposium on the Management of Waste from the LWR Cycle, Denver, Colorado, July 11-16, 1976 (1976).

15. A. L. Allen, H. A. Bernhart, S. Bernstein, R. H. Harrison, and E. W. Powell, Spray Decomposition of Uranyl Nitrate Solutions to Uranium Trioxide, K-444, Carbide and Carbon Chemicals Corporation, Oak Ridge, Tennessee (July 1949).

16. W. R. Bond, J. N. Hartley, J. E. Mendel, J. L. McElroy, and R. J. Thompson, Waste Solidification Program. Volume 8. Spray Solidification Performance During Final Radioactive Tests in Waste Solidification Engineering Prototypes, BNWL-1583 (June 1971).

17. 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 II. Evaluation of WSEP High Level Waste Solidification Process, BNWL-1667 (July 1972).

18. W. Guber, W. Diefenbacker, W. Hild, H. Krause, E. Schneider, and G. Schubert, "Pilot Plant Experience on High-Level Waste Solidification and Design of the Engineering Prototype VERA", in Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Proceedings of OECD-IAEA Symposium, Held in Paris, November 27-December 1, 1972 (March 1973).

19. W. Guber, W. Hild, F. Kaufmann, H. Koschorke, H. Krause, G. Rudolph, J. Saidl, and K. Scheffler, "Lab Scale and Pilot Plant Experiments on the Solidification of High Level Wastes at the Karlsruhe Nuclear Research Center", in Proceedings of International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, Held in Vienna, March 22-26, 1976 (1976).

20. H. W. Godbee and J. T. Roberts, Laboratory Development of a Pot Calcination Process for Converting Liquid Wastes to Solids, ORNL-2986 (August 1961).

21. J. M. Holmes, R. E. Blanco, J. O. Blomeke, W. E. Clark, H. W. Godbee, C. W. Hancher, J. C. Suddath, and M. E. Whatley, "Pot Calcination Process for Converting Highly Radioactive Wastes to Solids", pp. 255-286 in Treatment and Storage of High Level Radioactive Wastes, IAEA, Vienna, Austria (1963).

22. W. E. Clark, H. W. Godbee, and C. L. Fitzgerald, "Laboratory Development of Pot Processes for Solidification of Radioactive Wastes", pp. 95-119 in Proceedings of the Symposium of the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, February 14-18, 1966, Richland, Washington, USAEC Report CONF-660208 (1966).

23. J. C. Suddath, C. W. Hancher, and J. W. Holmes, "Engineering Development of the Pot Processes for Solidification of Radioactive Waste", pp. 301-325 in Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, February 14-18, 1966, Richland, Washington, USAEC Report CONF-660208 (1966).

24. J. L. McElroy, C. R. Cooley, W. V. DeMier, and J. E. Mendel, Pot Calcination Performance During First Radioactive Tests in Waste Solidification Engineering Prototypes: Waste Solidification Program, Volume 4, BNWL-814 (December 1968).

25. 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 Engineering Prototypes, BNWL-1628 (January 1972).

26. M. N. Elliot, R. Gayler, J. R. Grover, and W. H. Hardwick, "Fixation of Radioactive Wastes in Glass. Part I. Pilot Plant Experience at Harwell", in Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes, Proceeding of IAEA Symposium Held in Vienna, October 8-12, 1962, pp. 465-485 (1963).

27. M. N. Elliot, R. Gayler, J. R. Grover, and W. H. Hardwick, "Fixation of Radioactive Waste in Glass. Part III. The Removal of Ruthenium and Dust from Nitric Acid Vapors", in Treatment and Storage of High-Level Radioactive Wastes, Proceedings of IAEA Symposium Held in Vienna, October 8-19, 1962, pp. 489-506 (1963).

28. J. R. Grover, W. H. Hardwick, R. Gayler, and M. H. Delve, "The FINGAL Process", pp. 427-466 in Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, February 14-18, 1966, Richland, Washington, USAEC Report CONF-660208 (1966).

29. J. R. Grover, "Glasses for Fixation of High-Level Radioactive Wastes", in Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Proceedings of OECD-IAEA Symposium Held in Paris, November 27-December 1, 1972 (March 1973).

30. D. W. Clelland, "High Level Radioactive Waste Management in the United Kingdom", in Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Proceedings of OECD-IAEA Symposium Held in Paris, November 27-December 1, 1972 (March 1973).

31. W. Bocola, A. Donato, and G. Sgalambro, "Survey of the Present State of Studies on the Solidification of Fission Product Solutions in Italy", in Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Proceedings of OECD-IAEA Symposium Held in Paris, November 27-December 1, 1972 (March 1973).

32. W. Bocola and A. Donato, "Denitration and Solidification of Fission Products", Ger. Offen. 2,125,915 (February 1972), 17 pp.; Chem. Abstr. 76: 93693k.

33. J. P. Giraud and G. LeBlaye, "Design of an Industrial Facility for the Incorporation into Glass of Fission Products and the Storage of Highly Radioactive Glass", in Management of Radioactive Wastes (from Fuel Reprocessing, Proceedings of OECD-IAEA Symposium Held in Paris, November 27-December 1, 1972 (March 1973).

34. R. Bonniaud, F. Laude, C. Sombret, "Experience Acquired in France in the Treatment by Vitrification of Concentrated Solutions of Fission Products" (in French), in Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Proceedings of OECD-IAEA Symposium Held in Paris, November 27-December 1 1972 (March 1973).

35. N. S. Sunder Rajan, M. S. Kumra and K. T. Thomas, "Waste Immobilization Plant at Tarapur--A Survey of Process and Design Features", in Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Proceedings of OECD-IAEA Symposium Held in Paris, November 27-December 1, 1972 (March 1973).

36. B. F. Warner, M. J. Larkin, R. J. Taylor, L. Lowes, and S. N. Johnson, "Experimental Facilities for the Development of the UK High-Level Liquid Waste Solidification Process", in Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, Proceedings of OECD-IAEA Symposium Held in Vienna, March 22-26, 1976 (1976).

37. J. D. Christian and D. W. Rhodes, Ruthenium Containment During Fluid-Bed Calcination of High-Level Waste from Commercial Nuclear Fuel Reprocessing Plants, ICP-1091 (January 1977).

38. R. F. Drager, L. C. Emma, J. J. Fedelem, L. P. Hatch, G. Strickland, E. J. Tuthill and G. G. Weth, Development of the Phosphate Glass Process for Ultimate Disposal of High-Level Radioactive Wastes, BNL-50130 (January 1968).

39. E. J. Tuthill, G. G. Weth, L. C. Emma, G. Strickland and L. P. Hatch, "Phosphate Glass Process for Disposal of High-Level Radioactive Wastes", Ind. Eng. Chem., Process Design Development, 6, 314-321 (1967).

40. E. J. Tuthill, G. G. Weth, L. C. Emma, G. Strickland and L. P. Hatch, Phosphate Glass Process for Disposal of High-Level Radioactive Wastes, BNL-10313 (June 1966).

41. J. L. McElroy, J. N. Hartley, K. J. Schneider and R. F. Dragen (BNL), Waste Solidification Program, Volume 5, Phosphate Glass Solidification Performance During the First Radioactive Tests in Waste Solidification Engineering Prototypes, BNWL-1185 (January 1970).

42. J. L. McElroy, J. N. Hartley, M. R. Schwab, R. J. Thompson and R. F. Drager, Waste Solidification Program, Volume 7. Phosphate Glass Solidification Performance During Final Radioactive Tests in Waste Solidification Engineering Prototypes, BNWL-1541 (January 1971).

43. R. Bonniaud, "Survey of the Studies Conducted in France on the Solidification of Concentrated Fission Product Solutions," pp. 120-138 in Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, February 14-18, 1966, Richland, Washington, USAEC Report CONF-660208 (1966).

44. R. Bonniaud, F. Laude and C. Sombret, "Experience Acquise en France Dans Le Traitement Par Vitrification Des Solutions Concentrees De Products De Fission", in Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Proceedings of OECD-IAEA Symposium Hold in Paris, November 27-December 1, 1972 (March 1973).

45. R. Bonniaud, C. Sombret and A. Barbe, "French Industrial Plant 'AVM' for Continuous Vitrification of High-Level Radioactive Wastes", Paper presented at the American Institute of Chemical Engineers Meeting, November 18, 1975.

46. R. Bonniaud and C. Sombret, "Statement of Research in the Field of Solidification of High-Level Radioactive Wastes in France", Paper presented at the 77th Annual Meeting of the American Ceramic Society, May 3-8, 1975, Washington, D.C.

47. R. Bonniaud and C. Sombret, "Continuous Vitrification of Radioactive Wastes", Chemical Engineering Progress, March 1976, pp. 45-48.

48. R. Bonniaud, G. Sombret, F. Loude, and A. Jouan, CEA, France, private communication.

49. S. Halaszovich, M. Laser, E. Merz and D. Thiele, "FIPS - A Process for the Solidification of Fission Product Solutions Using a Drum Drier", in Proceedings of International Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, Held in Vienna March 22-26, 1976 (1976).

50. K. Brodersen and I. Larsen, "Inactive Pilot Plant Studies of a Process for Vitrification of Highly Radioactive Waste at the Research Establishment Risö," pp. 197-206 in Proceedings of the Symposium on the Solidification and Long-Term Storage of Highly Radioactive Wastes, February 14-19, 1966, Richland, Washington, CONF-660208 (November 1966).

51. R. B. Daken, "Molybdenum Electrode Glass Melting Furnace", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, July through September 1973, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1788, pp. 28-29, October 1973.

52. R. B. Dakan, C. C. Chapman and A. K. Postma, "Ceramic Electrode Heated Melter," Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, October through December, 1973, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1809, pp. 14-15, January 1974.

53. C. C. Chapman, "Ceramic Electrode Heated Melter", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, January through March 1974, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1826, pp. 11-12, April 1974.

54. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, July through September 1974, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1871, pp. 21-23, July 1974.

55. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, July through September 1974, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1871, pp. 10-13, November 1974.

56. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, October through December 1974, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1893, pp. 11-13, February 1975.

57. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, January through March 1975, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1908, pp. 15-19, June 1975.

58. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, April through June 1975, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1932, pp. 9-12, September 1975.

59. C. C. Chapman, "Joule Heated Ceramic Melter", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, July through September 1975, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1949, pp. 8-12, January 1976.

60. 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, November 16-20, 1975.

61. R. D. Dierks, "Wiped Film Evaporator", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, October through December 1974, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1893 (February 1975).

62. R. D. Dierks, "Wiped Film Evaporator", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, January through March 1975, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1908 (1965).

63. R. D. Dierks, "Wiped Film Evaporator", Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Waste Fixation Program, July through September 1975, J. L. McElroy, Compiler, BNWL-1949 (January 1976).

64. M. S. Hanson and J. D. Kaser, "Design of Off-Gas Cleaning Systems for High Level Waste Vitrification", 14th ERDA Air Cleaning Conference, Sun Valley, Idaho, August 2-4, 1976.

65. C. Courtois, Ruthenium Oxides and Trapping of Volatile Ruthenium Compounds, CEA-B7B-213 (November 1974) (in French); ORNL-tr-2922 (English translation).

66. D. A. Hanson, B. J. Newby and K. L. Rohde, The Adsorption of Ruthenium from Nitric Acid-Air Mixtures, IDO-14458 (1958).

67. D. W. Rhodes, Adsorption of Volatile Ruthenium on Silica Gel, TID-7593, 68-75 (1959).

68. D. W. Rhodes and D. R. Anderson, Capacity Test Data for the Adsorption of Volatile Ruthenium on Silica Gel, IDO-14510 (June 1960).

69. R. T. Alleman and G. B. Barton, "Calcination Studies, Off Gas Treatment", in Quarterly Progress Report, Research and Development Activities, Fixation of Radioactive Residues, April-June 1961, E. R. Irish, Editor, HW-70517 (July 1961).

70. E. F. Edwards "Waste Calciner Off-Gas System", in Sixth Air Cleaning Conference, Proceedings of Meeting Held July 7-9, 1959.

71. B. J. Newby and V. H. Barnes, Volatile Ruthenium Removal From Calciner Off-Gas Using Solid Sorbents, ICP-1078 (July 1975)

72. R. C. Rastogi, J. D. Sehgal and K. T. Thomas, Investigation of Materials and Methods for Fixation of Low and Medium Level Radioactive Waste in Stable Solid Media, Progress Report, AEET-266 (Atomic Energy Establishment Trombay. Bombay, India) 1966.

73. A. Ortins de Bettencourt and A. Jouan, Volatility of Ruthenium During Vitrification of Fission Products. I. Distillation of Nitric Acid Solutions and Calcination of the Concentrates, CEA-R-3663 (I) (January 1969) (in French); Chem. Abstr. 70: 110946r.; INEL-tr-4 (May 1976), Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, Idaho (English translation).

74. A. Ortins de Bettencourt and A. Jouan, Ruthenium Volatility During Vitrification of Fission Products. II. Fixation on a Steel Tube, Peroxide Decomposition, CEA-R-3663 (II) (January 1969) (in French); AEC-tr-7575 (English translation).

75. W. E. Gill and D. E. Wisehart, A Study of Properties of Certain Ruthenium Compounds Found in the Redox Process, HW-32175 (1955).

76. 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, Final Report, BARC-400 (1969), Bhabha Atomic Research Center, Bombay, India.

77. A. Dunato and W. Bocola, "Contribution to Studies on Gaseous RuO_4 Removal by Means of Ferric Oxide-Silica Filters", Energ. Nucl. (Milan), 18, No. 6, 353-9 (1971).

78. G. L. DelBino and G. Pierini, Absorption of Halogens, Interhalogens, and Fluorides of Certain Fission Products on Soda Lime, EUR-4547: (1970) (in Italian), Centre d'Etude l'Energie Nuclear, Brussels, Belgium.

79. A. R. Bancroft, L. C. Watson and C. W. Hoelke, The Volatilization and Collection of Ruthenium and Cesium in a System for Incorporating Fission Products into Glass, AECL-1233 (1961), Atomic Energy of Canada, Ltd. Chalk River, Ontario, Canada.

80. M. N. Elliott, R. Gayler, J. R. Grover and W. H. Hardwick, The Fixation of Radioactive Waste in Glass. Part III. The Removal of Ruthenium and Dust from Nitric Acid Vapors, AERE-R4098 (Part III) (July 1962).

81. Code of Federal Regulations, Title 10: Energy, Part 20: Standards for Protectior [illegible]ainst Radiation (10CRR20) (Revised January 1, 197[illegible] Appendix B, Table II, Column I. ALARA clause, p. 139

82. 40CFR Chapter 1, Subchapter F, Part 190 (see Federal Register, 42 (No. 9), Part vii, pp. 2858-2861 (January 13, 1977)).

83. J. L. Russell and F. L. Galpin, "A Review of Measured and Estimated Offsite Doses at Fuel Reprocessing Plants", in Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, Proceedings of OECD-IAEA Symposium Held in Paris, November 27 - December 1, 1972 (March 1973).

84. B. J. Kullen, L. E. Trevorrow and M. J. Steindler, Tritium and Noble-Gas Fission Products in the Nuclear Fuel Cycle. II. Fuel Reprocessing Plants, ANL-8135 (March 1975).

85. Barnwell Nuclear Fuel Plant Separations Facility Final Safety Analysis Report, Allied-Gulf Nuclear Services, Barnwell, S. C., Table 7.6-1, p. 7-49.

86. "National Air Quality Standards Finalized", Environ. Sci. Technol, 5(6), 503 (1971).

87. Code of Federal Regulations, 40CFR50.5 and 40CFR50.11.

88. B. J. Newby and V. H. Barnes, Idaho Chemical Programs Annual Technical Report, J. R. Bower and R. T. Struhs, Editors, p. 79, ICP-1086 (June 1976).

89. W. J. Bjorklund, Development and Use of Sintered Metal Filters with Fluidized Bed and Spray Calcination of Simulated High-Level Waste, BNWL-2074 (July 1976)

90. D. T. Pence and T. R. Thomas, "NO_x Abatement Using Ammonia with Zeolite Catalysts", Proceedings of the AEC Pollution Control Conference, October 25 - 27, 1972, CONF-721030, p. 115.

91. D. T. Pence and T. R. Thomas, "NO_x Abatement at Nuclear Processing Plants", Proceedings of the Second AEC Pollution Control Conference, Albuquerque, N. M., April 16 - 19, 1974, WASH-1332(74), Vol. I.

92. E. B. Mays and M. R. Schwab, "Elimination of NO_x Fumes", Chemical Engineering, 82(4), 112 (Feb 17, 1975).

93. W. J. Bjorklund, Battelle Pacific Northwest Laboratories, private communication.

94. A. S. Wilson, "Ruthenium Volatilization in the Distillation of Nitric Acid", J. Chem. & Eng. Data, 5, 521-4 (1960).

95. H. Schafer, A. Tebben, and W. L. Gerhardt, "Chemistry of Platinum Metals. V. Equilibria with Ru(s), RuO_2(s), RuO_3(g), and RuO_4(g)", Z. Anorg. Allgem. Chem., 321, 41-55 (1963); AEC-Trans-968 (English translation).

96. W. E. Bell and M. Tagami, "High Temperature Chemistry of the Ruthenium-Oxygen System", J. Phys. Chem., 67, 2432-36 (1963).

97. D. Campbell, Oak Ridge National Laboratory, private communication.

98. L. Theodore and A. J. Buonicore, "Industrial Air Pollution Control Equipment for Particulates", CRC Press, Inc., Cleveland, Ohio (1976).

99. R. B. Hower, B. Hekkala, and D. T. Pence Radioactive Airborne Effluent Measurement and Monitoring Survey of Reprocessing and Waste Treatment Facilities, Science Applications, Inc., San Diego, California 92121, in preparation.