1 解説

放射性廃棄物処理における化学

(日本原子力研究所) 立川圓造, ✓
小林義威, 室村忠純, 荒殿保幸 ✓

種々の原子力施設で発生する放射性廃棄物は、形態別に気体、液体、固体に分類することが可能であり、それらの処理技術には多くの化学的方法が利用されている。本稿では、主に原子炉、再処理工場などの廃棄物を対象に現在採用または考慮されている処理法を各形態ごとに化学的側面から紹介するとともに、問題点にも触れた。

I. はじめに

わが国における軽水炉の安全性研究は、原子力開発長期計画のもとに、発電所のみならず、原研、動燃を初めとする種々の研究機関で鋭意進められている。このなかで、原子力施設からの廃棄物の処理処分についての研究開発はまだまだ十分とはいえず、現にこれまでに発生した放射性廃棄物のかなりの量が未処理のまま保管されており、いうまでもなく、早急に解決されなければならない問題のひとつである。

廃棄物処理の多くは化学的問題であり、今後この方面での化学者の役割がより重要となる。

II. 廃棄物の分類

放射性物質の主要な発生源は原子炉である。核分裂生成物(F.P.)の一部は被覆管を通して冷却水に入り、そのうち揮発成分はオフガス系に入る。他のF.P.および誘導放射性物質は冷却水中に留まり⁽¹⁾浄化装置に捕集され、一部は配管、燃料棒などに付着している。これらは、原子炉の保守点検などで低・中レベル廃棄物源となる。しかし、F.P.のほとんどは再処理工場へ運ばれることになり、再処理工場は低レベルから高レベル放射性廃棄物の主要な発生源となる。低レベル廃棄物は効率よく減容すること、高レベル廃棄物は安全に処理されることが重要な課題である。

放射性廃棄物について論じる場合、これらを①物理、化学的形態(発生時における気体、液体、固体)、②発生源(原子炉、再処理工場、放射性核種取扱研究機関)、③放射能の種類とその強度(α, β, γ , 半減期、または高・中・低レベル)等により分類することができるであろう。

本稿では、化学に関する解説という立場から、一応①に従って分類し、必要に応じその中で②または③による分類を併用し、放射性物質の捕集、固定、貯蔵等に

ついて、各形態ごとに概説することにする。

III. 気体廃棄物

種々の原子力施設から放出される放射性核種のうち、放出量と生物環境への影響等の面から特に問題となるのは、ヨウ素、トリチウム、希ガス、 ^{14}C である。これらは、固有の化学的、物理的性質を有しており、捕集、回収、固定、貯蔵法もそれらの性質に基づくものである。

1. ヨウ素(I)

Iは種々の化学形をとりうるため、絶えず放出時の化学形が問題となる。例えば、BWR 建屋から放出されるIの4~5%は I_2 、20~25%はHOI、70~77%は有機ヨウ素等であるといわれている⁽²⁾。また、浮遊ヨウ素の90%以上は有機ヨウ素とHOIである⁽³⁾。

(1) 捕集、回収法

これまで開発されたIの捕集回収法は液体洗浄法と吸着法に大別できる⁽⁴⁾。

(1) 液体洗浄法⁽⁵⁾: I捕集法の古典的手法ともいえるアルカリ洗浄法は再処理工場 で用いられ、その方法自体は十分開発されたものであるが、有機ヨウ素に対する捕集効率が低いこと、さらには、大量に発生する廃液の処理に問題がある。有機ヨウ素対策のひとつとして前処理によりこれを分解し、全ヨウ素に対する捕集効率を高めることが考えられる。分解方法としては、 Al_2O_3 , Pt などの触媒による熱分解、放電などが考慮されている⁽⁶⁾。

捕集Iの分離が可能な方法としては、オフガスを濃 HNO_3 と接触させる IODOX 法や $\text{HNO}_3\text{-Hg}(\text{NO}_3)_2$ 系を用いたものがある。前者では、Iに対する除染係数

Chemistry of Radioactive Waste Treatment,
Enzo TACHIKAWA, Yoshii KOBAYASHI, Tadasumi
MUROMURA, Yasuyuki ARATONO.

(1981年 2月5日 受理)

(D.F.)も約 10^4 と高く、廃液の濃縮により $\text{I}_2\text{O}_5 \cdot \frac{1}{2}\text{H}_2\text{O}$ として分離できるが、濃 HNO_3 による容器の腐食に問題がある。後者の方法ではIは $\text{Hg}(\text{IO}_3)_2$ として捕集され最終的に NaIO_3 として固定されるが、有機ヨウ素に対する捕集効率、 HNO_3 および $\text{Hg}(\text{NO}_3)_2$ の濃度が低下すると不十分となる。

(2) 吸着法: 種々の吸着剤のなかで活性炭は、 $1,800 \text{ m}^2/\text{g}$ にも達する表面積をもち、Iに対する捕集効率も高く、最も広く用いられている吸着剤であり、捕集に関する理論的考察も多くなされている。一般に捕集効率は、相対湿度が高くなると減少するため相対湿度 $<70\%$ 、捕集効率 $>90\%$ で使用する。しかし、有機ヨウ素に対する捕集効率は余り期待できず、この目的のために、有機ヨウ素と反応または交換反応し易い物質を添着した活性炭が用いられる⁽⁷⁾。添着物としては、KI、トリエチレンジアミンのほかに SnI_4 、 KSCN 等が有効である⁽⁸⁾。

活性炭および添着活性炭の使用は、操作が簡単であるとともに安価であるという利点をもつが、最大の問題点は、可燃性かつ発火温度が $250\sim 500^\circ\text{C}$ と低い上に酸化雰囲気下では爆発の可能性があることである。

上記の問題点から種々のAg添着無機物の使用が検討され、捕集効率の観点からAgゼオライト(AgX)が最もよいとされている⁽⁹⁾。捕集効率はベットの厚、流量等にもよるが、例えば10 cm厚で広範囲にわたる湿度、 NO_x 濃度、等の変化に対して通常99%以上の高い値が得られている。非結晶状シリカゲルに AgNO_3 を添着したAC 610では⁽¹⁰⁾、添着Ag当りのIの捕集量は AgX の2倍にもなり、Karlsruheの再処理工場からのオフガスについての実験では、 10^4 というD.F.を得ている。しかしAg添着無機物の欠点はAgの価格にあり、種々の再生法の検討もなされている⁽¹¹⁾。例えば乾燥法では、使用済み AgX を 550°C に加熱して H_2 を流す。この場合、Iは AgX から HI として放出され、これを安価な PbX_2 で捕集した後そのまま固体廃棄物とする。またAgに代わる金属イオンとして遷移金属であるPd、Cd等が試験されている。この種の金属を用いた場合、一般には価格の点から使用後の再生はあまり必要とされないが、有機ヨウ素に対する吸着容量が小さい上に、捕集効率も低いという欠点がある。

2. トリチウム(T)

Tは、 ^{235}U の三重核分裂(収率約1原子/ 10^4 fission)のほかに原子炉冷却水中での ^6Li 、D等の中性子捕獲反応によっても生成する。後者の反応では生成時、Tの

約10%はホット反応によりHTとなるが、その大部分は炉内放射線によりHTOに変換されるため⁽¹²⁾、軽水炉のオフガス中のTの化学形は大部分HTOであるといわれている。一方燃料中のTの大部分は、燃料溶解時溶解液に残るが、一部はHTとしてオフガス中に移行する⁽¹³⁾。

(1) 捕集、回収法

軽水炉使用済み燃料中のTの溶解液中への移行は、廃液管理上好ましくないため、溶解前に回収する方法が研究されてきている。ボロオキシデーション法は、 UO_2 の U_3O_8 への酸化に伴い揮発性の放射性ガスが放出される現象を利用する方法である⁽¹⁴⁾。酸化は、 $450\sim 500^\circ\text{C}$ 、空気存在下で行う。Tの回収率は99.8%以上と良好であるが、 ^{85}Kr 、 ^{129}I 、 ^{14}C の回収率が悪い⁽¹⁵⁾。放出化学形はほとんどがトリチウム水であり、モレキュラーシープ(MS)で捕集する⁽¹⁵⁾。Purex法再処理に比べ、トリチウム水廃液の量は $1/10^3\sim 1/10^4$ に減少する。Zr微粉末の酸化、I、希ガス、 ^{14}C の回収率、Ruなど揮発性F.P.の挙動の解明などの化学的問題のほかに、微粉末 U_3O_8 の取扱い、臨界管理などボロオキシダイザー開発上種々の化学工学的問題が残されている。また高温化学的方法も検討されている⁽¹⁶⁾。

原子炉、再処理工場、T取扱施設からの廃ガス中のTは、U、Th、R.E.(希土類元素)、Ta、Ti、Zrなどの金属ゲッターへ水素化合物として⁽¹⁷⁾、あるいはカオリン、アルミナ、ゼオライト等に添着したPd、Pt触媒で酸化したのち⁽¹⁸⁾、トリチウム水として捕集する。捕集剤として、シリカゲル、モレキュラーシープ、アルミナ等について吸着挙動が調べられてきた。これらの捕集剤には、化学吸着、物理吸着のほかに、同位体交換による機構がある⁽¹⁹⁾。

(2) トリチウム水廃液の処理

再処理工場からのトリチウム水廃液の制御法として、前述のボロオキシデーション法、高温化学的方法のような溶解前回収法のほかに、廃液のリサイクル法、廃液中のTの同位体分離法も検討されている。前者の場合、Tの蓄積量、漏洩量、処理廃液量等を考慮して一部の工程での採用が考えられている⁽²⁰⁾。リサイクルによりTの濃縮された廃液の取扱いや、水素同位体分離技術の開発等いくつかの問題が残っている。タンク内貯蔵、あるいは濃度に応じて固化体とする方法もある⁽²¹⁾。

同位体分離法には、多くの方式が提案されている⁽²²⁾。基本的には、重水濃縮技術の応用が可能であるが、T濃度がD濃度に比べ極めて低く、また再処理

廃液という特殊性もあり容易ではない。現在、疎水性担体に添着した Pt 系触媒を用いる水素-水(液体)交換反応が研究され、実用化が進められている⁽²²⁾。レーザによる分離法も最近、脚光を浴びつつある⁽²³⁾。

(3) トリチウム固体廃棄物の処理

使用済みの T 捕集剤等は、SS シリンダーなどの適当なコンテナに封入して貯蔵する⁽²¹⁾。固化体からの放射線分解によるガス生成の G 値も調べられている。例えばコンクリート固化体の場合、H₂ 生成の G 値は初期には 0.1~0.3 と報告されている⁽²⁴⁾。第 1 表に代表的なトリチウム水の捕集、貯蔵法を示す。

3. 希 ガ ス

再処理工場からのオフガス中の Kr, Xe の量はおのおの約 60 および 600 ppm であり、とりわけ ⁸⁵Kr はオフガス中の放射能の大部分を占める⁽²⁵⁾。原子炉では⁽²⁶⁾ほかに空気成分の放射化による短寿命核種が生成するが、通常これらは希ガスホールドアップ装置内で壊変してしまう。

(1) 捕集、分離法^{(25) (27) (28)}

(1) 液化蒸留法: オフガス成分の沸点の差を利用して最終的には Kr, Xe を分離する。空気分離プラントおよび原子炉オフガス中の希ガス回収技術を応用できる点で、比較的運転経験も豊富な方法である。操作

第 1 表 トリチウム水の捕集、貯蔵法(文献(21), p. 54)

	水含量 (%)	T 漏洩率	備 考	利用可能性	耐放射線性 (G 値)
1. 水化物					
a) 乾燥剤				HTO 蒸気の除去	
硫酸カルシウム	6.2		安 価		
シリカゲル	40	$10^{-3} \sim 10^{-4}/d$		コンクリート, ポリマー封入	
活性アルミナ	20			ポリマー法は要開 発	
モレキュラーシーブ	10~20	$10^{-3} \sim 10^{-4}/d$ (ポリエチレン封入)	熱, 水, 化学薬品 には安定		
b) セメント					
ポルトランド セメント	25	$10^{-2}/d$ (最初の 1 ヶ月) $2.5 \times 10^{-3}/d$ (アスファルト コーティング) $3 \times 10^{-4}/d$ (¹ / ₂ アスファルト) で包む $10^{-4}/d$ (ポリマー, 5~15%)		可, コーティング も可 ポリマー法は要開 発	
2. 有機化合物					
ポリアセチレン	水 0.68 g 相 当の H/g	4 % (初期)	325°C まで安定, 溶媒に不溶	可	0.15
ペークライト類似 ポリマー		2 % (洗浄時)	230°C まで安定, 溶媒に不溶		0.08
ポリアクリロニトリル	水 0.18 g 相 当の H/g	5 % (初期洗浄時)	200°C 以上で熱縮 合, アルカリで分解	可, 要精製, 高価	0.39 (全ガス) 0.1 (H ₂)
ポリエチレン	0.5 g H ₂ O/ g	検出限界以下	分解 (280°C 以上)	可, T コントロー ルに問題	0.03~0.02
3. 水素化物					
ジルコニウム, ZrH _{1.4}	1.5% H	$5 \times 10^{-4}/yr$ (NaOH 中) $4 \times 10^{-3}/yr$ (蒸留水) $2 \times 10^{-4}/yr$ (HCl 中)	300°C 以下安定	可	
チタン			同 上		

温度が低温であるために、装置配管の閉塞防止上、水分は凝縮分離後活性アルミナで、 CO_2 , Xeはおののモレキュラーシーブ、シリカゲルで吸着除去する⁽²⁵⁾。 O_2 は放射線分解により O_3 を発生するため、 H_2 添加後、Pd-Pt 触媒層を通し水として分離する。また NO_x はRh 触媒により N_2 , O_2 に分解除去する。

(2) 溶媒吸収法: 各種溶媒への希ガスの選択的溶解性を利用する分離法である。フロン-12が最も有望視されており、 10^3 以上のD.F.が可能である。効率もよく、不純物に比較的影響されにくく、爆発の危険性が少ないなどの長所をもつ反面、溶媒の放射線損傷、廃溶媒の処理などに問題がある。ほかに、液体炭酸ガスを用いる方法が、ORNLでKALC-プロセスとして研究されてHTGR使用済み燃料再処理への応用が進められている。

(3) 吸着法: 吸着剤には、モレキュラーシーブ、活性炭が用いられる。前者では、ポア構造の変化などにより、吸着性能の向上をはかる試みがなされているが、まだ開発的要素が強い。活性炭はKrに対してきわめて効率的であり、室温吸着法、低温吸着法が検討されている。前者では、吸着容量が小さいため有用性は少ない。一方後者の場合、吸着容量も大きく比較的事実されたプロセスである。しかし、管内閉塞防止のための前処理の複雑さ、 NO_x や O_2 とCとの反応による爆発の危険性、製品純度、処理能力などに改良の余地がある。

(4) 隔膜法⁽²⁹⁾⁽³⁰⁾: シリコンゴム、ポリエチレン、酢酸セルロース、ポリエステルなどの高分子膜は、希ガスに対し選択的な透過性を示す。シリコンゴム-酢酸セルロース膜など種類の異なる隔膜の組合せによるKrとXeの分離法や多段分離法等が検討されている。膜の強度、耐放射線性、不純物効果等の検討、改良が進められている。

(5) その他の方法: 温度勾配下での希ガスの拡散定数の差を利用する熱拡散法や、 O_2SbF_6 と希ガスとの反応によりフッ化物として捕集する方法⁽³¹⁾等もあるが基礎研究の段階である。

(2) 固定、貯蔵法⁽²⁵⁾⁽²⁸⁾

(1) 高圧シリンダー法: 現在の技術で最も実用化の可能性が高い方法である。しかしながら、シリンダーの破壊が生じた場合には漏洩時の対策が難しく、中期、長期的貯蔵のためには、以下の方法が検討されている。

(2) 活性炭吸着法: シリンダー内の活性炭を -196°C に冷却してKrを低温吸着させる。等温吸着曲線な

どが報告されている。シリンダー破壊時の漏洩速度も比較的緩慢であり、高圧シリンダー法に次いで有望な方法である。貯蔵時の安全性を考慮した2重シリンダー内吸着貯蔵法の検討が進められている。

(3) 拡散封入法: ゼオライト、金属などに高温高圧下で熱拡散により封入固定する。金属では、粉末、薄片など種々の形態のものが調べられており、飽和量以下では、吸着量は拡散時間の平方根、圧力に比例する。再放出温度が高く、封入物質の破壊があっても部分的という利点はあるが、吸着容量、漏洩量等の評価のほか封入時の取扱技術が難しい。そのほかに、 $(\text{Fe}, \text{Mn})_2\text{O}_3$, 熔融 NaNO_3 , BN, ポリメチルメタクリレートのような材料⁽³²⁾も研究されている。

(4) イオンインプランテーション/スパッタリング法⁽³²⁾⁽³³⁾: Kr⁺をNi, Al, Fe, Ti, 非晶質合金(Fe主成分)のターゲットに打ち込んだあと、対極金属のスパッタリングによりその表面をコーティングし封入する。熱伝導性、再放出温度が高いなど貯蔵性はきわめてよいが、供給ガス中の不純物による効率低下や装置に技術的に未解決の点があり基礎研究の段階である。本法に対し、 -196°C に冷却した金属に、原子状あるいはイオン状のKrをNiなどの蒸着金属で封入する低温金属蒸着法も検討されている⁽³⁴⁾。

(5) 化合物法: 化合物としては、 β -キノールとKrとのクラスレート $(3\text{C}_6\text{H}_4(\text{OH})_2 \cdot n\text{Kr})$ ⁽³⁵⁾, プルシャンブルー型化合物⁽³⁶⁾, KrF_2 と SbF_5 の複塩等が調べられている。

4. ^{14}C

^{14}C は主として UO_2 中に25~30 ppm含まれるチッ素の (n, p) 反応により生じる。HTGRではさらに $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$ 反応が重要となる⁽³⁷⁾⁽³⁸⁾。放出時の化学形は、BWRでは $^{14}\text{CO}_2$, PWRでは炭化水素が主成分であるといわれている⁽³⁷⁾。

(1) 捕集、分離法⁽¹⁸⁾⁽³⁷⁾⁽³⁹⁾

炭化水素はPt, Pdのような貴金属系触媒により CO_2 に酸化後、 CaCO_3 として金属コンテナあるいはコンクリートなどに封入する方法が一般的である。

(1) 二重アルカリ洗浄法: CO_2 を NaOH 水溶液に通じて Na_2CO_3 とし、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ を添加後 CaCO_3 として沈殿させる。生成した CaCO_3 は、汙過後乾燥して廃棄する。再処理オフガスでは NO_x の妨害を避けるため回収工程を設ける。技術的には確立され、効率もよいが、液体廃棄物を生じる欠点がある。

(2) 直接アルカリ洗浄法: $\text{Ca}(\text{OH})_2$ あるいは $\text{Ba}(\text{OH})_2$ に直接 CO_2 を反応させ、 CaCO_3 あるいは

BaCO₃ として回収する。固定床、流動床法が検討されている。(1)と同様な特長をもつ。

(3) 溶媒吸収法: フレオン-12のようなフルオロカーボンに CO₂ は容易に溶ける。再処理オフガスからの ⁸⁵Kr の回収と同様なプロセスである。CO₂ 濃度によらず効率は高いが、溶媒蒸気の扱いや分離された CO₂ をさらに固化する必要があるなどの問題がある。そのほかエタノールアミンを用いる方法もあるが、溶媒が不安定であり、放射性オフガス処理には適当でない。

(4) 吸着法: CO₂ の選択的吸着性を利用したプロセスであり、再処理オフガスに利用する際には NO_x は触媒で分解する。M.S. 3A で乾燥後、M.S. 5A, 13Xなどに CO₂ を吸着して N₂ で溶離する。操作は簡単に回収率もよいが、最終的には CaCO₃ への転化が必要である。

(5) 液化蒸留法: Kr, Xe の分離のために開発された方法であり、沸点の差を利用する。技術的には確立されている。低温、高压での操作のため運転コストは高いが、希ガス分離系に併設できる特長がある。

IV. 液体廃棄物

液体廃棄物の種類は、再処理施設(F.P., An*), 燃料加工施設(U, Pu), 原子炉冷却水浄化装置(⁶⁰Co, ⁵⁴Mn)などの廃液のように、放射性物質ならびにその化学的組成が比較的一定している廃液や、各種原子炉施設・研究施設の実験室などからの雑廃液のように組成のあまり一定していないもの、TBP-ケロシンのような有機廃液など、広範囲にわたっている。これらの廃液は、必要に応じて一時的に貯蔵し短寿命核種の壊変後処理されている。

1. 低・中レベル廃液

一般的には放射性物質の凝集処理を行い、凝集物は傾斜、遠心分離、汙過(加圧、減圧、電磁汙過)などの方法で分離され固化される。除染された廃液は、必要に応じ基準値以下に希釈して環境に放出される。これらの D.F. は 10~200 程度であるが、さらに高い D.F. を必要とする時は蒸留法、イオン交換法などが併用される。

前処理として、廃液中のバクテリアや藻を分解するため Cl₂, ClO₂, O₃ などが用いられる。この処理は、無機イオンの酸化を助長して凝集効率を上げる効果もある。O₃ は EDTA のような錯化剤の分解⁽⁴⁰⁾にも利用される。

(1) 凝集法⁽⁴¹⁾

(1) 炭酸塩・水酸化物: 炭酸塩法では、廃液に Na₂CO₃ を加えアルカリ金属以外の陽イオンを CaCO₃ や水酸化物に共沈させる。Sr の 80-90% が分離される。水酸化物法では、明ばん(M⁺ Al(SO₄)₂·12H₂O)や緑ばん(FeSO₄·7H₂O)などを加え、Na₂CO₃ や NaOH で pH を調整し Al(OH)₃, Fe(OH)₃ に多価陽イオン(Y, Ce, Pm, Ru)などを共沈させる。Fe(OH)₃ は、多少洗剤を含む廃液でも Ln, Zr, Nb, Ru の 90% を除去できる。微量の Pu, Am の捕集・回収⁽⁴²⁾にも Fe(OH)₃ は利用される。

(2) リン酸塩: CaCl₂ を加えて NaOH で pH ≈ 9.5 にし、Na₂PO₄ を加えて Ca₃(PO₄)₂ や 3Ca₃(PO₄)₂·Ca(OH)₂ の沈殿を作り Sr, Pu などを除去する。Pu が 99% 以上除かれる。

(3) その他の方法

Ru: 溶液中種々の化学形として存在する Ru は、その除去が困難な元素の 1 つである。酸性で CuS, アルカリ性で Fe₂S₃ に共沈させる方法が効果的であり、コロイド状の Ru も除去される。

Cs: Fe(CN)₆⁴⁻ の金属塩に共沈する。金属イオンとしては Fe³⁺, Cu²⁺, Co³⁺, Ni²⁺ などが用いられる。K₄[Fe(CN)₆] と Cu²⁺ を、さらに pH=8 に調整し Fe³⁺ を加えると >98% の Cs が共沈する。

Sr: 大部分は炭酸塩処理で除去される。この際担体として Sr を添加すると D.F. は 100 ぐらいになる。リン酸塩、硫酸塩にも共沈する。

Ra, Co, Cr, I: Ra は BaSO₄ に共沈する。Co, Cr は水酸化物へ共沈する。Co はオキシソ添着炭⁽⁴³⁾なども使える。I は陰イオンとなっており Ag 塩、活性炭で除かれる。

(2) イオン交換・吸着法

主に Cs, Sr の捕集に用いられる。Duolite ARC 359 陽イオン交換樹脂(Diamond Shamrock Co. 製)は、1~3 M の Na の共存下で 100% Cs を吸着できる。Cs にはゼオライト、Sr にはチタン酸塩のような無機吸着剤も用いられる。原子炉冷却水中の誘導放射性物質などの捕集にもイオン交換樹脂が用いられている。Pu などの吸着剤として、チタン酸塩、リン酸塩、骨炭などが研究されている。

(3) 逆浸透膜法

逆浸透膜(酢酸セルロース半透膜)を用いて廃液を減容(〜1/10)する方法⁽⁴⁴⁾である。透過液は必要に応じ希釈して放出、濃縮液は最終的に蒸留処理される。電

* アクチノイドの略で Ac~Lr の総称。再処理関係での An は第 2 表参照。

気透折も同様の目的に利用される。

(4) 蒸留濃縮法

一般には廃液を中和し、水を蒸留分離して残留物を固化処理するために用いる。揮発性の T, I, Ru などを含まなければ D.F. は $10^4 \sim 10^6$ 期待できる。

また再処理中レベル廃液のような HNO_3 溶液では、蒸留はその減容とともに HNO_3 や水の回収のため行われる。

2. 高レベル廃液

高レベル廃液(HLLW)とは、一般には Purex 法による再処理 1 次 HNO_3 廃液をさす。この HNO_3 廃液には、不揮発性 F.P. の 99.9%、U および Pu の 0.1~0.5% と全超プルトニウム元素(Am, Cm など)、さらに酸化剤や還元剤の分解物、各種の腐食生成物などが含まれている。その組成は、燃焼率、再処理方法の相違により若干異なるが、その 1 例を第 2 表⁽⁴⁵⁾に示す。主要な放射性 F.P. は、使用済み燃料の冷却時間によって変るが、1 年程度では ^{90}Sr , ^{90}Y , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{106}Ru , ^{106}Rh , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{144}Pr , ^{147}Pm などである。

第 2 表 再処理高レベル廃液組成(g 酸化物/l)

非放射性添加物	Fe	Cr	Ni	Na	
腐食生成物	3.19	0.56	0.38	30.37	
アクチノイド	U	Np	Pu	Am	Cm
	2.29	1.80	0.15	0.32	0.07
	Rb	Sr	Y	Zr	Mo
	0.62	1.67	0.99	8.40	8.74
	Tc	Ru	Rh	Pd	Cs
	2.17	4.83	0.76	2.93	4.87
核分裂生成物	Ba	Ag, Cd, In, Sn, Sb			
	3.38	0.34			
	Te	La	Ce	Pr	Nd
	1.23	2.61	4.96	2.31	8.11
	Pm	Sm	Eu	Gd	
	0.05	1.74	0.39	0.22	

燃焼度 28,000 MWd/t, 500 l 溶液/t 燃料, 100.57 g 酸化物/l

HLLW の処理に際し、危険度が高く長寿命の An を分離するか否かは、現在のところその評価は分かっている。しかし、HLLW から An の分離一群分離に関する研究は、An の消滅処理とも関連して多くの研究⁽⁴⁶⁾⁽⁴⁷⁾がなされている。また HLLW に含まれる ^{137}Cs , ^{90}Sr を 1 つのエネルギー源として、また白金族元素である Pd などを貴重な資源⁽⁴⁸⁾として、この HLLW を注目する見方もある。

(1) 蒸 留

現在のところ世界的にみて、HLLW のほとんどは 1/10 程度に減容されてタンク内に貯蔵されている。減容は蒸留で行われるが、その際に発生する RuO_4 を抑制するため糖類を添加⁽⁴⁹⁾している。濃縮液は、濃くなった HNO_3 濃度を析出物の発生を防ぐため 4~5 M HNO_3 になるよう水で希釈される。留出した HNO_3 は再利用できる。

HLLW の模擬廃液(Pu は含まない)による実験⁽⁵⁰⁾から、蒸留濃縮中の析出物には、主成分として Zr, Mo, P, Fe, 微量成分として Ba, Cs, 微量成分以下として R.E., Pd, U などが含まれていることが明らかになっている。最も多い不溶物は $\text{ZrMo}_2\text{O}_7(\text{OH})_2(\text{H}_2\text{O})_2$ と同定されている。このほか同定はできなかったが、 $\text{Zr}_2\text{Mo}_2\text{O}_8$ の水和物、Zr-Mo-P からなる化合物、U-P を含む化合物などの共存が予想されている。Ba や Cs は硝酸塩で存在している。これらの析出物は水で洗うと主に Zr と Mo だけになってしまう。

HLLW を固化するには、そのまま蒸留を続ける方法と、ギ酸やホルムアルデヒドなどを添加して脱硝しながら蒸留を行う方法とがある。後者では最後に NO_3^- の濃度は 0.5 mol/l 以下にすることができる。この脱硝反応が進むと、Ru, Rh, Pd などの白金族元素の析出が起こり、同時に Pd が触媒となって溶液中に NH_4^+ , オフガス中に H_2 の生成が見られる⁽⁵¹⁾。電解による脱硝⁽⁵²⁾もある。

(2) アクチノイドの分離

HLLW は HNO_3 溶液であるため、 HNO_3 系のみで An の分離を行える方法が効果的である。新たな添加剤や腐食性塩を用いた方法は、分離法として優れていても結果的には塩廃棄物を増やすことになるので、廃液の処理方法としてはその使用は避けるべきであろう。

(1) 溶媒抽出法: これまでに報告されている多くの方法の中で、5~6 M HNO_3 溶液から、(A) TBP と DHDECMP⁽⁵³⁾ および (B) TBP と HDEHP⁽⁵⁴⁾ を用いた 2 つの方法が優れていると考えられる。(A)の方法は、改良 Purex 法⁽⁵⁵⁾で U(VI), Np(VI), Pu(IV) を TBP で抽出したのち、Am-Cm と Ln⁽⁵⁶⁾ を DHDECMP で抽出

* dihexyl-N, N-diethylcarbamylmethylene phosphonate 希釈剤には四塩化炭素, di-isopropylbenzene が使われる。

** di-2-ethylhexylphosphoric acid (DEHPA) 希釈剤には n-heptane など。

** Np(V) を Np(VI) に酸化。

** ランタノイドの略で La~Lu までの総称。F.P. としての Ln は第 2 表参照。

する。DHDECMP は、市販品では純度が悪く(～50%)多くの不純物の影響で An の逆抽出に難点があるが、精製(イオン交換法⁽⁵³⁾または蒸留(～86%)⁽⁵³⁾)により優れた抽出剤として評価されている。第1図からわかるように、DHDECMP は An(III)のみならず An(IV)、An(VI)も HNO₃ 溶液から抽出できる⁽⁵⁵⁾。

第1図 HNO₃ 溶液から30% DHDECMP (DIPB)による An の抽出

(B)の方法は5つの工程から成り立っている。①前処理として褐色の析出物を含む HLLW(60 g metals/l 2M HNO₃)溶液を希釈(10 g metals/l)し、NO₂ ガスを吹き込み 6 M HNO₃ 溶液とする。この処理で析出物は溶ける。② 6 M HNO₃ 溶液から HDEHP で U, Np, Pu および Zr, Nb, Mo, Fe などを抽出し、Am・Cm と Ln を水相に残す。③ HNO₃ 濃度を下げるため TBP で HNO₃ を抽出する。この際 Pd(98%), Tc(67%), Ru(74%)も抽出される。HNO₃ 濃度は 0.1 M 程度になる。④ 0.1 M HNO₃ 溶液から再び HDEHP で Am・Cm と Ln を抽出する。Am・Cm と Ln の分離は DTPA* と乳酸溶液で行う。⑤最後に残っているものは主に Cs と Sr で、これらはイオン交換樹脂、ゼオライト、チタン酸塩に吸着させて処理される。

(A), (B)のいずれの方法でも、U 99.99%, Pu 99.98～99.99%, Am 99.8～99.91% 除去される。これらの値

は、α放射体の危険度を評価して要求される HLLW からの An の回収率⁽⁵⁶⁾にはほぼ等しいか、それ以上の値である。

(2) その他の方法: HLLW を直接イオン交換樹脂を用いて An を除去する方法は、樹脂の放射線分解、廃液の増加などの点からあまり検討されていない。カラム抽出クロマトグラフ法が、Purex 法の部分的代替法⁽⁵⁷⁾, HLLW 中の An の回収法⁽⁵⁸⁾として検討されている。シュウ酸塩として An(III)を分離回収する方法⁽⁵⁹⁾⁽⁶⁰⁾もいろいろあるが、回収率は低く(≤94%), イオン交換法などの併用が必要となる。なお、Pu 精製廃液や有機廃液からの An の分離については文献⁽⁶¹⁾を参照されたい。

(3) 問題点

An の分離を前提とした HLLW の処理において、最終的に固化された廃棄物の管理・貯蔵または処分点から、α廃棄物と β-γ 廃棄物を区別することが要求される。この区別の基準は、米国などでは 10 nCi/g となっており、この値以上を α 廃棄物としている。HLLW の処理においてこの値を実現するには、まず再処理廃液に混入してくる U, Pu をできるだけ少なくしなければならず、そのため解決しなければならない問題がいくつかある。

その第1は、溶媒抽出における水相と有機相の分離と、抽出剤の放射線分解との問題⁽⁵⁴⁾である。Purex 法で U・Pu の TBP への抽出は、計算上はほぼ完璧であることが期待される。しかし実際には、ミキサーセトラなど1段当りの分離度は95%以下といわれている。その原因は、混合した水相と有機相を完全に分離するのに時間がかかり、その時間が長ければそれだけ有機相の放射線分解**が進行するため、適当な短い時間で2相を分離していることにある。この問題を克服するために遠心分離抽出機が開発されている。0.1～20s の任意の時間で攪拌と分離が行え、2相の分離は100%(相互に含まれる割合は0.01%以下)という優れた装置⁽⁵⁴⁾⁽⁶¹⁾が作られている。このような装置の採用により、第1の問題点は、現状より大いに改善されるであろう。

第2は、燃料溶解時の不溶性物質(Mo, Zr, Nb, Ru, Rh, Pdなどを含むもの、および被覆管に付着しているクラッド)への An の吸着、および HNO₃ 希釈時に生成する Pu の水酸化物(コロイドやポリマー状)の問題⁽⁶²⁾

* diethylenetriaminepentaacetic acid

** TBP の放射線分解生成物は、H₂MBP や HDBP でいずれも U, Pu, Zr, Pu などと反応し錯体や沈殿を作る。U, Pu などの抽出、逆抽出の妨げとなる。

である。これらは少量の F^- イオンを添加することによりかなり溶解することが知られている。例えば、実際の HLLW を用いた実験で F^- イオンを添加し DHD-ECMP で An の抽出を行い、それをガラス固化した廃棄物は、 $<10 \text{ nCi/g}$ の値を示したという報告⁽⁵⁵⁾もある。この種の不溶物に吸着している Pu は全量の 0.05%⁽⁶²⁾程度といわれ、再処理溶液および HLLW に何らかの対策を講じなければ、溶媒抽出法だけで $<10 \text{ nCi/g}$ の値に達するのは困難であろう。

次は、以上の問題と異質であるが、再処理に用いられる酸化剤・還元剤の問題である。現在一般に用いられている NaNO_2 や $\text{Fe}(\text{NH}_2\text{SO}_2)_2$ などは最終的に塩廃棄物となる。さらに悪いことには、分解生成する SO_4^{2-} は、Pu(IV) と錯体を作りその回収を妨げ、さらに装置の腐食にも関係してくる。このような酸化剤・還元剤に代わり塩廃棄物をもたささないものとして電解⁽⁵²⁾ および光化学反応⁽⁶³⁾ などを用いた方法が検討されている。

3. 有機廃液

放射性物質を除染した TBP-ケロソンのような有機抽出剤と溶媒は、 Na_2CO_3 の流動床⁽⁶⁴⁾ や熔融塩 (700~800°C) を用いて燃焼させ、同時に発生する P_2O_5 を Na_3PO_4 として回収する方法、焼却炉で直接燃やし、発生する P_2O_5 (P_4O_{10}) を含むオフガスを Na_2CO_3 溶液のシャワー中を通して回収する方法⁽⁶⁶⁾ などがある。また、濃リン酸と TBP が不溶性の付加化合物を作る性質を利用してケロソンと分離する方法もある。ケロソンは再利用か焼却する。付加化合物は 300°C で炭化水素とリン酸に分解され、リン酸は不溶性の塩として処理される。

V. 固体廃棄物

固体廃棄物を低レベルと高レベル(HLLW の固化体、ハルなど)に分類し、以下におのおのの前処理、固化および固化体の安定性などに関して述べる。

1. 低レベル固体廃棄物

(1) 前処理

(1) 不燃物の除染

溶液化学的方法：酸化剤や錯化剤を用いる方法や、電解研磨を用いる方法などがある。

高温化学的方法⁽⁶⁶⁾：金属材料の熔融塩による除染およびスメルティング*では、D.F. はおのおの 10^6 および 10^8 が得られている。

(2) 可燃物の酸化・焼却

溶液化学的方法：主に Pu を含む可燃物の減容とその回収のため、酸で分解する方法が開発されてい

る。230~260°C の H_2SO_4 中に酸化剤の HNO_3 ⁽⁶⁷⁾ または H_2O_2 ⁽⁶⁸⁾ を加え、有機物を CO_2 と H_2O に分解する。Pu は H_2SO_4 中に濃縮され、その回収は焼却灰から比べて容易である。

高温化学的方法⁽⁶⁹⁾：可燃物を直接大気中で焼却すると燃焼温度が高くなり Cs, Ru が蒸発し易い。また焼却の際に発生する HCl , NO_x , SO_x などが焼却炉を腐食する。このため低い酸素圧および低い焼却温度などの条件を取り入れた焼却炉と、様々な廃ガス捕集装置が開発されている。そのほか約 900°C の Na_2CO_3 , Na_2SO_4 などの混合熔融塩中で可燃物を酸化する方法、1,600°C で可燃物と不燃物を一緒に熔融する方法、なども検討されている。

(2) 固化体

(1) 無機物固化体

セメント⁽⁷⁰⁾：ポルトランドセメント、高炉セメントなどの水和セメントは溶液から固体まで固化できる利点がある。固化の機構は①密な固化体内部への封じ込め、②安定な化合物化、③添加剤との反応・吸着に大別できる。①の利用例には、 Na_2SO_4 廃液をケイ酸分の高い高炉セメントへの固化、および H_3BO_3 廃液に NaOH を加えポルトランドセメントへの固化がある。②には Co の水酸化物化、③には Cs を吸着するゼオライトの添加がある。

セメント固化体ではアルカリ金属元素が著しい浸出**を示し、水中に CO_3^{2-} , HCO_3^- があるとアルカリ土類元素の浸出は増大する。Cs, Sr の浸出量は時間の $1/2$ 乗に比例する ($t^{1/2}$ 則)。An の浸出量は Cs, Sr より 3~4 桁低く $t^{1/2}$ 則に従う。 10^{10} rad の照射では固化体に大きな物理・化学的变化はみられない。

セラミック⁽⁷¹⁾：カオリンと濃縮廃液を反応させてセラミック化する方法、および焼却灰や不溶解物などを粘土と反応させてセラミック化する方法も検討されている。An を含む廃棄物(液)の固化に適している。

(2) 有機物固化体

ビチューメン⁽⁷²⁾⁽⁷³⁾：石油精製の副産物であるビチューメンは、濃縮廃液、イオン交換樹脂、スラッジを固化するのに用いられる。固化に化学反応は伴わない。ビチューメンは 200°C 以上で硝酸塩と反応し易く、1% 以上の水分が含まれると膨潤し易い。また 10^8 rad の照射量では、固化体に大きな物理・化学的变化はないが、

* 金属材料をフラックスとともに熔融し、汚染をスラッジに分離する(製錬法)。

** 浸出試験には通常は蒸留水またはイオン交換水が用いられる。

H₂ および炭化水素を生成し固体の膨脹と、貯蔵条件によっては爆発の危険性がある。さらにラジカルと廃棄物との反応の可能性もある。浸出は $t^{1/2}$ 則に従う。

プラスチック: プラスチックも化学反応を伴わずに濃縮廃液、イオン交換樹脂などを固化できる。熱硬化性樹脂では、水分を乳濁状態で固化できるユリアホルムアルデヒド、脱水して固化するポリスチロールおよびポリエステル・エポキシなどの研究がある。熱可塑性樹脂のポリエチレンは、180°C 以上で廃棄物の混合に適する軟かさになるが 400°C 以上では硝酸塩と反応し易くなる⁽⁷⁴⁾。

2. 高レベル固体廃棄物

HLLW の固化の研究はガラス固化体と結晶固化体とに大別できる。ガラス固化体は、ホウケイ酸ガラス系とリン酸ガラス系とに分けられる。結晶固化体の研究は多い⁽⁷⁵⁾。ここではガラス固化体の主流になりつつあるホウケイ酸ガラス、新たに開発されつつあるシンロックおよびハルの固化に関して述べる。

(1) ホウケイ酸ガラス

(1) 固化: ガラスの構成物は、網目構造を形成する SiO₂ や B₂O₃(網目形成酸化物)、融点を上げて化学的耐性を増す ZrO₂ や TiO₂(中間酸化物)、およびこれと逆の性質のアルカリ金属およびアルカリ土類金属酸化物(網目修飾酸化物)に分類される。第2表に示すように HLLW の仮焼物(カルサイン)⁽⁷⁶⁾の約40%が網目修飾酸化物である。したがって、カルサインの混合比を上げるとガラス固化体の化学的性質は低下する。カルサインとフリットは約1,300°Cで熔融し固化する。詳細は文献⁽⁷⁵⁾にゆずる。

(2) 安定性: 固化体は均一で内部応力が残留しないことが望ましい。ホウケイ酸ソーダガラスには3つの分相領域があるうえ、カルサインの混合割合が高いため(第3表)、不十分な混和や不飽和による結晶相の析出が懸念される。Mo のガラスへの溶解量には限界があり、熔融時に耐水性に劣る Na₂MoO₄ が晶出し易い⁽⁷⁷⁾。また高温(600~800°C)で多くのアルカリ金属と R.E. のモリブデン酸塩が析出する⁽⁷⁸⁾。

ホウケイ酸亜鉛ガラスでも 700°C で Zn₂SiO₄, (Ca, Sr, Ba)MoO₄ などが析出し易い。また300~900°C で5年間に RuO₂, (Ce, Zr)O₂ などの析出と重力偏析がみられた⁽⁷⁹⁾。

これらの析出相とガラスの膨脹率の差から、固化体にミクロクラックが生じ易く、それにより Cs, Sr の浸出量が1桁以上高くなることがある。

(3) 耐水性: ガラスと水の反応は、ガラスの組成・

第3表 固化体の原料比の例(%)

ホウケイ酸ソーダガラス+カルサイン	
カルサイン	25~30
SiO ₂	45~55
B ₂ O ₃	10~15
Al ₂ O ₃	4~6
アルカリ金属	
+アルカリ土類金属酸化物	3~8
シンロック-B+カルサイン	
カルサイン	5~10
TiO ₂	54~60
ZrO ₂	8~11
Al ₂ O ₃	5~11
BaO+CaO	18~25

状態と水の流速・温度・pH、さらに時間が関与して複雑である。水へのガラスの溶解度に関し、pH やイオン濃度などの影響が熱力学的に検討されている⁽⁸⁰⁾。

浸出機構に関して多くの反応モデルがある。初期には Na などの選択的な浸出により網目組織が拡散層となり $t^{1/2}$ 則が一般に成立する。その後、拡散層の溶出速度と Na などの拡散速度が一致し、見掛け上完全溶解の t^1 則が成立する⁽⁸¹⁾。浸出速度と温度は約 350°C までアーレニウスの式を満足するが、それ以上ではガラスの崩れにより急速に式からはずれる⁽⁷⁹⁾。Cs, Sr の浸出速度は An の約100倍である。

照射により、ガラス中で欠陥生成、表面積の増大、拡散促進が起きて浸出量は増大する。 β 線と γ 線の影響は比較的小さく 10¹⁰ rad の照射で浸出量は約10倍になる。 α 線の影響は大きく、²⁴⁴Cm を1%固溶した促進実験では、Cs, Sr の浸出量は約100倍になっている⁽⁷⁹⁾。黒曜石(天然ガラス)の地質学的時間での風化の観察から、ガラス固化体が長期にわたり健全性を保つことは困難であろうと推定されている⁽⁸²⁾。固化体の放射性元素の壊変が、固化体の安定性に与える影響は明らかでない。

(2) シンロック(SYNROC)*

天然鉱物の中には地質学的年代にわたって安定に放射性核種を固化している物がある。このような鉱物の性質を利用して、合成鉱物に高レベル廃棄物を固化する研究が行われている。ここではシンロックに関する研究の概略を述べる。

(1) シンロック-A⁽⁸³⁾: カルサインと SiO₂, TiO₂, ZrO₂, Al₂O₃, CaO および BaO などの混合物を 1,300°C で反応させる。反応機構および速度は明らかでない

* Ringwood の提案した合成鉱物固化体の名称。

が、多相から成る固化体が得られる。

Sr は灰チタン石(CaTiO_3)に、Cs は白リウ石(KAlSi_4O_8)およびカルシライト(KAlSi_3O_8)などに、U および R.E. は螢石相および灰チタン石に固溶している。

シンロック-A は 100 MPa, 600°C の純水中で安定であるが、食塩水中では白リウ石、カルシライトなどのケイ酸塩の分解がみられる。

(2) シンロック-B⁽⁸⁴⁾: 水に比較的不安定なケイ酸塩を含まない固化体である。カルサインと TiO_2 , ZrO_2 , Al_2O_3 , CaO および BaO を低酸素圧下で反応させると、灰チタン石、ホランダイト($\text{BaAl}_2\text{Ti}_6\text{O}_{18}$)およびジルコノライト($\text{CaZrTi}_2\text{O}_7$)から成る固化体が得られる。未反応の TiO_2 や Al_2O_3 , および未確認相が析出することがある。混合比の例を第3表に示す。

灰チタン石は斜方晶系に属する。Ca の位置には Sr, Ba, R.E., Cm, Pu などが、Ti の位置には Zr, U, Pu などが固溶できる。ホランダイトは正方晶系に属し c 軸に平行に大きなトンネルがある特徴的構造をしている。トンネルは MO_6 の八面体のブロックで構成される。このトンネルの中に Cs, Sr などが取り込まれ、また八面体の陽イオン(M)に Ru, Mo, Co などが置換できる。ジルコノライトは複雑な単斜晶系の単位格子を持っており、Ca と Zr の位置には U, R.E. が、Ti の位置には Pu, Fe などが置換できる。

灰チタン石の生成反応は 800°C から(1)式に従って進む。

ジルコノライトは(1), (2)の反応を経て生成する。ホランダイトは(3)~(5)の反応を経て生成する⁽⁸⁵⁾。シンロック固化の反応速度はガラス固化のそれより遅い。

放射性壊変による元素の変換は、シンロック-B の安定性に大きな影響を与えないと推定される。例えば、ホランダイトの Ba に置換した ^{137}Cs は、放射性壊変で Ba になるので影響は小さいであろう。また灰チタン石の ^{90}Sr は壊変で Y を経て Zr になり CaZrO_3 が出来るが、この相もまた灰チタン石型構造である。

天然鉱物の研究⁽⁸⁴⁾ および高速中性子(> 1 MeV)を用いた照射研究⁽⁸⁶⁾ から、シンロック-B は 10^6 年以上 An を安定に固化し、メタミクト化*しないと推定されている。

シンロック-B は浸出および熱水反応ではガラス固化体より安定である^{(84) (87)}。

(3) ハル

誘導放射能が高くかつ Pu の約 0.1% が内表面に残っているため、減容・固化の前に除染する。

(1) 除染

溶液化学的方法: 溶液での An の除染の前に、600°C の HF で表面をフッ化処理、または O_2 で酸化処理を施すことは D.F. を上げるのに有効である⁽⁸⁸⁾。除染液には、 HNO_3 , HF, H_2O_2 , シュウ酸, シュウ酸アンモニウムおよびクエン酸アンモニウムなどが単独もしくは混合して用いられる⁽⁸⁹⁾。

高温化学的方法: 熔融塩による除染およびスメルティングなどがある。ステンレス鋼を 800°C の NaNO_3 や酸化物系熔融塩で除染すると、 10^6 の D.F. が得られる。ジルカロイでは 700°C のフッ化物系の熔融塩で除染する方法が検討されている。また金属材料をケイ酸塩スラッグ中でスメルティングして U, Pu, Am の D.F. $\geq 10^6$ が得られている。この方法は除染と減容を同時にできる特徴がある⁽⁹⁰⁾。ほかにジルカロイを 400°C の HCl で処理して ZrCl_4 を回収することも検討されている。

(2) 固化⁽⁸⁹⁾: 不活性雰囲気または CaF_2 をフラックスに用いてハルを熔融・減容する。融点を下げるためステンレス鋼、ジルカロイ、インコネルなどを一緒に熔融する方法もある。インゴットは Pb, Zn, セメントの中に固化する。またジルカロイを T の捕集剤に再利用することも検討されており、有効利用の点から興味深い。

Ⅶ. おわりに

以上放射性廃棄物の処理について、化学的手法がどのように用いられ、どのような化学的問題があるかを中心に解説を行なった。その内容は誌面の都合上除外したもの、また十分意を尽せなかったものもあり、専門の方々のご意見・ご批判を頂ければ幸いである。

放射性廃棄物の処理の問題は、近い将来ほぼ満足できる水準に到達するであろう。そして種々ある処理法

* 結晶質のものが非晶質化したもの。α壊変の反跳核と α 線によって原子の変位が生じて非晶質化が進む。

の中から処分法を含めて総合の評価を行い、最も適切な方法が選択されるべきである。処分ということの性質上、その評価とは、地球化学、地球物理、地質学、海洋学、気象学など関連分野の参加のもとに、専門的な立場で議論された結論であることはいうまでもない。

日本には処分に適する場所があるか否かの調査検討は、今後とも続けるべきであるが、最近 Ringwood 教授の“オーストラリア国内の安定な場所にオーストラリアの輸出したUに関する外国の放射性廃棄物の処分も受け入れる”という提案は(原子力工業, 2[2], 8(1981))一考に値するものであろう。

終りに、文献調査に際しご協力頂いた日本原子力研究所技術情報部の志知大策氏に謝意を表する。

—参考文献—

- (1) “軽水炉一次冷却系の放射能蓄積抑制対策と除染”, 42 (1978), ISU報.
- (2) KELLER, J.H., et al.: *Proc. 12th AEC Air Cleaning Conf., Oak Ridge*, (1972).
- (3) KABAT, M.J.: *Proc. 13th AEC Air Cleaning Conf., San Francisco*, (1974).
- (4) TORGERSON, D.F., SMITH, I.M.: *AECL-5979*, (1978).
- (5) PAMELA, M.B., WARNER, B.F.: *STI/DOC-10/148*, 29 (1973).
- (6) DAVIS, R.J., ACKLEY, R.D.: 文献 (2).
- (7) EICHHOLTZ, G.G.: “*Environmental Aspects of Nuclear Power*”, 261 (1976), Ann Arbor Science, Ann Arbor, Mich.
- (8) KITANI, S., et al.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 9[4], 197 (1972).
- (9) PENCE, D.T., et al.: 文献 (2).
- (10) WILHELM, J.G., et al.: *Proc. 14th ERDA Air Cleaning Conf., Sun Valley, Idaho*, (1976).
- (11) MURPHY, L.P., et al.: *ibid.*
- (12) ARATONO, Y., TACHIKAWA, E.: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 39, 1473 (1977).
- (13) KULLEN, B.J., et al.: *ANL-8135*, (1975).
- (14) STANFORD, T.G.: *DOE/ET/00944-1*, (1979).
- (15) STONE, J.A., JOHNSON, J.R.: *DP-MS-78-7*, (1978).
- (16) U.S. ERDA: *ERDA-76-43*, (1976).
- (17) MAIENSCHNEIN, J.L.: *Nucl. Technol.*, 38, 387 (1978).
- (18) SHERWOOD, A.E., et al.: *UCRL-52811*, (1979).
- (19) NAKASHIMA, M., et al.: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, in press.
- (20) 堤 健一, 他: *SN 841-77-03*, (1977).
- (21) ALTOMARE, P.M., et al.: *ORP/CSD-79-2*, (1979).
- (22) 中根良平: *応用物理*, 49, 754 (1980).
- (23) 中根良平, 他: *原子力工業*, 27, 53 (1981).
- (24) BIBLER, N.E., OREBAUGH, E.G.: *DP-1459*, (1977).
- (25) 中島健太郎, 中西芳雄: *原子力誌*, 21[6], 463 (1979).
- (26) IAEA Tech. Rep. Ser. *STI/DOC/10/198*, (1980).
- (27) IAEA: *ibid.*, *STI/DOC/10/199*, (1980).
- (28) 田中孝章, 他: クリプトン研究会資料, (於東大原子力工学研究施設), (1980).
- (29) 吉田 浩, 他: *JAERI-M-8494*, (1979).
- (30) SIRKAR, K.K.: *Sep. Sci. Technol.*, 15, 1091 (1980).
- (31) STEIN, L.: *Nature*, 243, 30 (1973).
- (32) KNECHT, D.A.: *ICP-1125*, (1977).
- (33) TINGEY, G.L., et al.: *PNL-2879*, (1979).
- (34) BODYS, J.W.S., et al.: *J. Chem. Soc., Faraday Trans. I*, 70, 2170 (1974).
- (35) STAPLES, B.A., PENCE, D.T.: *ICP-1045*, (1974).
- (36) KÄMPER, M., et al.: *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.*, 18, 486 (1979).
- (37) PHILLIPS, J.W.: *PB 80-192198*, (1980).
- (38) WICHNER, R.P., DYER F.F.: *ORNL-5597*, (1980).
- (39) CROFF, A.G.: *ORNL-TM-5171*, (1976).
- (40) LUTTON T.W., et al.: *RHO-SA-98*, (1980).
- (41) POTTIER, P.E.: *Tech. Rep.*, Ser. No. 89, (1968), IAEA.
- (42) AKATSU, J.: *Radiochem. Radtoanal. Lett.*, 19, 25, 33 (1974).
- (43) MOTOJIMA, K., et al.: *Nucl. Technol.*, 42, 172 (1979).
- (44) ITO, K., et al.: *ANS Trans.*, 35, 71 (1980).
- (45) IAEA: *STI/DOC/10/176* (1977).
- (46) 館盛勝一: *JAERI-M 7853*, (1978); *JAERI-M 8240*, (1979).
- (47) 中村治人: *原子力誌*, 21[4], 293 (1979).
- (48) JENSEN, G.A., et al.: *ANS Trans.*, 34, 355 (1980).
- (49) WITT, D.C., BRADLY, R.F.: *Nucl. Technol.*, 43, 244 (1979).
- (50) ANDERSON, P.A.: *ibid.*, 47, 173 (1980).
- (51) KELN, M., et al.: *ibid.*, 51, 27 (1980).
- (52) BAUMGRATNER, F., SCHNEIDER, H.: *Radiochim. Acta*, 25, 191 (1978).
- (53) NAVRATIL, J.D., THOMPSON, G.H.: *Nucl. Technol.*, 43, 136 (1979).
- (54) LILJENZIN, J.O., et al.: *Sep. Sci. Technol.*, 15, 799 (1980).
- (55) MCLSAAC, L.D., et al.: “*Actinide Separations*”, (NAVRATIL, D.D., SCHULZ, W.W., ed.), *ACS Symp. Ser.* 117, p. 395 (1980), ACS Washington, D.C.
- (56) 上野 肇: *原子力誌*, 18[12], 754 (1976).
- (57) ESCHRICH, H.: *Sep. Sci. Technol.*, 15, 697 (1980).
- (58) MADIC, C., et al.: *ibid.*, 15, 745 (1980).
- (59) FORSBERG, C.W.: *ORNL-TM 6445*, (1980).
- (60) GRAY, L.W., et al.: *DP-MS-80-35*, (1980).
- (61) ARONSSON, P.O., et al.: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 36, 2397 (1974).
- (62) BOND, W.D., LENZE, R.E.: *ORNL-5012*, (1975).
- (63) BELL, J.T., TOCH, L.M.: *Radiochim. Acta*, 25, 225 (1978).
- (64) ZIEGLER, D.L., et al.: “*Solia Alpha-Bearing and Cladding*”, *Proc. NEA/IAEA Tech. Seminar, Paris*, p. 165 (1977).
- (65) BOND, W.H.: *ibid.*, p. 205.
- (66) FULLAM, H.T.: *BNWL-B-277*, (1973).
- (67) ALLEN, C., et al.: *HEDL TME 78-77 UC-70*, (1978).
- (68) KOBAYASHI, Y., et al.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 17 [11], 865 (1980).
- (69) COOLEY, C.R., CLARK, D.C.: *HEDL-SA-851*, (1976).
- (70) 関 晋, 他: *原子力誌*, 20[12], 887 (1978).
- (71) KUPFER, M.J., et al.: *ARH-SA-239*, (1975).
- (72) IAEA: *STI/DOC/10/116*, (1970).

- ⑦③ 森山 昇: 原子力誌, 18[11], 691 (1976).
 ⑦④ MORIYAMA, N., et al.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 12 [6], 362 (1975).
 ⑦⑤ IAEA: 文献④⑤.
 ⑦⑥ MCCARTHY, G.J., DEVIDSON, M.J.: *Amer. Ceram. Soc. Bull.*, 54, 782 (1975).
 ⑦⑦ 山根正之, 他: 窯協誌, 87[6], 58 (1979).
 ⑦⑧ 寺井良平, 他: 原子力誌, 21[5], 424 (1979).
 ⑦⑨ MENDEL, J.E.: *Nucl. Technol.*, 32, 72 (1977).
 ⑧① PAUL, A.: *J. Mater. Sci.*, 12, 2246 (1977).
 ⑧② HENCH, L.L., et al.: *Nucl. Chem. Waste Management*, 1, 59 (1980).
 ⑧③ EWING, R.C.: "Scientific Basis for Nuclear Waste Management", Vol. I, (MCCARTHY, G.J. ed.), 57 (1979), Plenum Press.
 ⑧④ RINGWOOD, A.E.: "Safe Disposal of High-Level Nuclear Reactor Wastes: A New Strategy", (1978), Aust. Nat. Univ. Press, Camberra.
 ⑧⑤ idem: "Safe Disposal of High-Level Radioactive Wastes", (1980), Aust. Nat. Univ.
 ⑧⑥ BUYKX, W.J., et al.: Calcination studies on perovskite, zirconolite, barium hollandite and SYNROC-B, Paper presented in Aust. Ceram. '80, Sydney, (1980).
 ⑧⑦ REEVE, K.D., et al.: Progress in SYNROC research and development at Lucas Heights, Paper presented in Waste Management '80 Symposium, Tucson, Arizona, USA, (1980).
 ⑧⑧ SOLMAH, A.G., ZUMWALT, L.R.: *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, 35, 191 (1980).
 ⑧⑨ DILLON, R.L., et al.: IAEA-SM-207/69, (1976).
 ⑧⑩ JENKINS, I.L., TAYLER, R.F.: "Treatment, Conditioning and Storage of Solid Alpha-Bearing Waste and Cladding Hulls", 279 (1978), OECD, Paris.
 ⑧⑪ SEITZ, M.G., et al.: ANL-78-13, (1979).

日本人技術者のために作られたQA/QCの指針

ASME**品質保証マニュアル**

● ASME関連業務がスムーズに推進できる解説書

発売中

本書の用途 ▶

- ASME規格に基づく設計、製造、検査の計画
- QA/QC体制の設定・維持
- ASME工事の営業・受注活動
- 他規格適用工事の参考に
- 新入社員および管理者の教育・訓練
- ASMEスタンプ(原子力・非原子力)の取得、維持、更新
- ASME QSCの取得、維持、更新

著者 石川島検査サービス㈱ 熊谷伸一
 体裁 A 4 判 550シート バインダー装丁
 定価 79,000円

■ 詳しい資料をご請求ください。

TEL. 03(365)1660代

〒160 東京都新宿区百人町1-22-27 太陽ビル

アイピーシー