研究論文

ウラン廃棄物のフッ素化除染技術開発

藤原 健一^{1,†}, 佐々木 朋三¹, 亀井 篤志^{2,*}

Development of a Fluorination Decontamination Technique for Uranium Bearing Waste

Kenichi FUJIWARA^{1,†}, Tomozou SASAKI¹ and Atushi KAMEI^{2,*}

¹Radioactive Waste Management Funding and Research Center, 4th floor, Mori Building, No. 15, 2-8-10, Toranomon, Minato-ku, Tokyo 105-0001, Japan

²Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd., 1, Shin-Nakahara-cho, Isogo-ku, Yokohama 235-8501, Japan

(Received May 24, 2005 and accepted in revised form October 25, 2005)

In this study, fluorination decontamination was investigated from the viewpoint of treating uranium bearing waste which is in a condition that is difficult to decontaminate like sludge. Since the clearance level of uranium bearing waste has not been defined yet in Japan, a radiation level of 0.3 Bq/g which is recommended by IAEA TECDOC855 was chosen and a decontamination technique was developed to achieve this level. The principle of the fluorination decontamination technique is to fluorinate uranium to get gaseous UF_6 and thus remove uranium from the uranium bearing waste. ClF_3 was chosen as a fluorination decontamination gas because ClF_3 can convert uranium of various chemical forms into UF_6 and its fluorination reactivity is higher than other interhalogen compounds.

In experiments, 1 g of uranium bearing sludge was put in a rotary kiln filled with ClF_3 . The experimental variables were decontamination temperature, duration of ClF_3 treatment, revolution speed of the kiln, pretreatment grinding period of sludge, and weight of sludge in the kiln. The results showed the sludge could be decontaminated below the clearance level when treated at 550°C for 2 h. The residue of uranium increased proportionally to the weight of sludge. An empirical formula was derived to predict decontamination performance which includes experimental variables.

KEYWORDS: uranium, waste, clearance level, decontamination, fluorination, ClF_3 , UF_6 , radioactive sludge, nuclear

I. 緒 言

タイトルのウラン廃棄物とは、軽水炉用のウラン燃料加工施設から発生するウランによって汚染されたスラッジ、焼却灰、フィルタ等の放射性廃棄物を意味する。

日本でのウラン廃棄物の処理処分の基本的考え方は、除染処理を行うことにより、放射性核種濃度を低減し、クリアランスレベル以下になるものについては、放射性廃棄物として扱う必要のないものとして処分、または再利用する方針である¹⁾。日本では、ウラン廃棄物のクリアランスレベルはこれから審議されることになっている。そのため IAEA の TECDOC855²⁾で提案されている 0.3 Bq/g, 4.5% 濃縮ウラン換算で 3.3 ppm をクリアランスレベル想定値として、これを満足する除染技術を開発することを本研究の目的としている。

本研究では、2 次廃棄物の低減の観点から ClF_3 による乾式除染法に着目し、除染技術の開発を行っている。原理はウラン廃棄物に除染ガスである ClF_3 を接触させることにより、ウラン廃棄物中の種々の化学形を持つウランを

UF_6 に転換して、ウラン廃棄物からウランを揮発除去するものである。

試験はロータリーキルン式の反応容器に約 1 g の試料を入れ、 ClF_3 を通気する方法で行った。試料にはウラン廃棄物の中でも除染が難しく、かつ比較的発生量の多い、廃液処理工程などで発生するスラッジを用いた。主な試験パラメータとして、除染時間と温度条件を変えてデータ採取を行った。また、除染性能を変動させる可能性のあるパラメータとして、ロータリーキルンの回転数、1 バッチ当たりの処理量、試料の粉碎時間を変えてデータ採取を行った。

試験の結果、除染温度 550°C、除染時間約 2 時間でクリアランスレベルを達成できることがわかった。クリアランスレベルを満足する除染温度、除染時間の条件では、ロータリーキルンの回転数、試料の粉碎時間は除染性能にはほとんど影響を与えず、1 バッチ当たりの処理量が増えるに従い除染性能が低下することがわかった。また、上記試験パラメータと除染性能の関係を除染性能評価式としてまとめた。

II. 原理と特徴

フッ素化除染技術とはウラン廃棄物をフッ素化力を持つ ClF_3 と接触させることにより、廃棄物中の種々の化学形を持つウランを六フッ化ウラン (UF_6) に転換して、廃棄物

¹ 原子力環境整備促進・資金管理センター

² 石川島播磨重工業株

* Corresponding author, E-mail: atsushi_kamei@ihi.co.jp

[†] 現在、日立製作所 (Hitachi, Ltd.)

からウラン(U)を揮発除去する技術である。反応はガスを用いた気固反応で進行することから、湿式法と比較して廃棄物内部まで拡散することができ、高度に除染することができる。また、 UF_6 は低温で揮発性が高いことから、ウラン廃棄物をフッ化ガスと接触させつつ所定の温度に維持することにより、Uを選択的に除去することが可能である。

1. ClF_3 を用いたフッ素化除染

Uのフッ化ガスには通常、 F_2 が用いられるが、その他に IF_7 や ClF_3 などのフッ化ガスも知られている。これらのフッ化ガスのうち、本調査では ClF_3 を採用している。以下にその特徴を記す。

(1) ハロゲン間化合物の中で反応性が高い

ハロゲン間化合物の中で ClF_3 は酸化力が強く、最も反応性が高いものの一つであり、相手の元素の最高原子価までフッ素化することが可能である³⁾。また、沸点は 11.75°C と比較的低いため、除染部位への残留の可能性は低い。

(2) 工業的に製造可能であり、一般産業界での使用実績がある

ClF_3 は、ほとんどの半導体工場では SiO_2 の除去処理に使われており、その豊富な取扱い実績から、その反応挙動や腐食挙動が明らかになっているだけでなく、製法、取扱い技術、副次生成物を含めた排ガス除害技術ならびに漏洩検知などの安全対策技術が長年の使用実績により確立されている。

(3) F_2 と比べて低温での反応性が高い

Uの転換によく用いられている F_2 と比較して、 ClF_3 は、室温程度の温度域においてもウラン化合物との反応速度が大きく⁴⁾、より低温での除染が可能である。

(4) ウランの化学形に制約を受けず、 UF_6 に転換可能である

フッ化ガスに ClF_3 を用いた場合、以下に示すように、様々な化学形のウラン化合物を UF_6 に転換することができる。また、この反応の副生成物である ClF や ClO_2F は、以下に示すように ClF_3 に再生でき、フッ化ガスとして再利用することができる。

〈 UF_6 への転換反応〉

- $\text{UF}_4 + \text{ClF}_3 \longrightarrow \text{UF}_6 + \text{ClF}$
- $\text{U}_3\text{O}_8 + 9\text{ClF}_3 \longrightarrow 3\text{UF}_6 + 4\text{ClO}_2\text{F} + 5\text{ClF}$
- $\text{UO}_2 + 3\text{ClF}_3 \longrightarrow \text{UF}_6 + \text{ClO}_2\text{F} + 2\text{ClF}$
- $\text{UO}_2\text{F}_2 + 2\text{ClF}_3 \longrightarrow \text{UF}_6 + \text{ClO}_2\text{F} + \text{ClF}$

〈 ClF_3 の再生反応〉

- $\text{ClO}_2\text{F} \longrightarrow \text{ClF} + \text{O}_2$
- $\text{ClF} + \text{F}_2 \longrightarrow \text{ClF}_3$

(5) ウランの回収が容易

UF_6 とフッ化ガスである ClF_3 および副次生成物が含まれる除染後のガスを NaF トラップまたはコールドトラップに通じることにより、 UF_6 を回収することができる。未反応の ClF_3 は再利用が可能である。

(6) 海外における適用実績

ClF_3 を用いた濃縮プラントの解体前除染は、海外のガス拡散濃縮プラントにおいて使用実績ならびに計画があり、除染性能の評価ならびに安全性の検討が行われている。例えば、英国 Capenhurst において ClF_3 を用いた解体前除染が行われたほか⁵⁾、米国 Paducah, Portsmouth の閉鎖時には ClF_3 処理とホスプレー洗浄によるウラン付着物の除去が計画されている⁵⁾。また、米国 Oak Ridge においては ClF_3 処理の適用性の確認試験が実施されてい

Fig. 1 Outline of the fluorination decontamination process

る⁶⁻⁸⁾。ただし、これらはクリアランス化を目的としたものではなく、ウランの荒取りを目的としたものである。

2. フッ素化除染システムの概念

ClF_3 を用いたフッ素化除染システムの概念図を Fig. 1 に示す。本システムでは、フッ素化除染装置にウラン廃棄物を投入後、所定の温度に保持しつつ ClF_3 ガスを通気することにより廃棄物中の U を UF_6 に転換、揮発させる。揮発した UF_6 は分離回収装置 (NaF トラップもしくはコールドトラップ) により回収される。分離回収装置を通過した未反応の ClF_3 ガスは、再びフッ素化ガスとして利用される。

III. 実 験

1. 試 料

Table 1 に本試験で使用了試料の外観と構成元素比を示す。試料にはウラン廃棄物の中でも除染が難しく、比較的量の多いスラッジを用いた。スラッジには数種類あるが最も発生量の多い鉄澱物を試料とした。鉄澱物の構成元素は ICP-AES (Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry) で分析した。Fe と Na が主な構成元素であり、U 濃度は約 120 ppm であった。また、鉄澱物は、U を含んだ廃液に塩化鉄、および水酸化ナトリウムを添加して水酸化鉄に U を共沈させてできたものであるため、その他の構成元素は O, H, Cl などが主であると考え

られる。

2. 試験装置

試験装置の概略フローを Fig. 2 に示す。反応容器は内径 60 mm, 加熱部分の長さ 170 mm のロータリーキルンタイプであり、ヒータにて所定の除染温度に設定することができる。反応容器は Ni 製であり、反応容器のガスケットには Al またはフッ素系ゴムを使用している。ロータリーキルンの回転数はインバータによって制御されており、所定の回転数に設定して試験を行うことが可能である。除染用の ClF_3 ガス量は、マスフローコントローラを用いて制御する。また、試験にて発生した UF_6 , 余剰 ClF_3 などの排ガスは、後段の水, アルカリの 2 段のスクラバにて捕集される。

3. 試験条件

各試験の共通条件として、 ClF_3 濃度は 100%, ClF_3 流量は 10 ml/min, 昇温速度は 5°C/min で除染試験を行った。

始めに、除染性能を左右する主な因子として除染温度、および除染時間をパラメータとした除染試験を実施した。除染時間は反応がほぼ飽和する 360 min までの範囲で 6 点とし、除染温度は反応容器の高温機械強度を考慮して最高温度を 550°C とし、そこから 100°C おきに、450, 350, 250°C の 4 点とした。このとき試料の量は 1 g, ロータリーキルンの回転数は 10 rpm とし、試料は遊星ボールミルで 30 min 粉碎した条件で行った。

次に、除染性能を変動させる因子として考えられる 1 バッチ当たりの処理量、ロータリーキルンの回転数、遊星ボールミルでの試料の粉碎時間をパラメータとした除染試験を実施した。処理量は 1 g, 10 g の 2 点、回転数は 10, 20 rpm の 2 点、粉碎時間は 30, 300 min の 2 点とした。このとき、除染温度は 550°C, 除染時間は 180 min の条件で行った。

4. 試験手順

除染試験は以下の手順にて実施した。

- (1) 試料を遊星ボールミルで粉碎する。
- (2) 試験装置内を十分に乾燥する。
- (3) 反応容器内に試料を設置した後、装置内を数 Torr 未満まで減圧する。
- (4) ロータリーキルンを起動し、所定の回転数に設定する。
- (5) 反応容器を所定の温度に設定し、 UF_6 付着防止のため配管を 100°C まで昇温する。
- (6) ClF_3 の通気を開始する。流量は徐々に増加させ、所定の流量で反応容器に通気するように調整する。
- (7) ClF_3 の導入開始から所定時間経過後、 ClF_3 の供給を停止し、窒素ガスで所定時間装置内をパージする。

Table 1 Characteristics of test sample

Sample name		Ferric Sludge
Type of Uranium		Depleted Uranium
Sample picture
Percentage of main element [wt%]	Si	0.1
	Ca	0.1
	Na	12.0
	Al	—
	Fe	46.7
	U (ppm)	0.01 (120ppm)

Fig. 2 Schematic of the decontamination test equipment

- (8) 反応容器内から試料を取り出し残渣中ウラン濃度などの分析を行う。

IV. 結 果

1. 除染時間、除染温度の影響

除染温度ごとに除染時間と残渣中 U 濃度をプロットしたグラフを Fig. 3 に示す。-100 min から 0 min までは昇温中であることを意味している。昇温完了後は残渣中 U 濃度の時間変化が大きく、その値は時間とともに急激に減少しているが、時間が経つにつれて、変化が小さくなっている。これは、廃棄物と ClF_3 の反応における律速反応が切り替ったためであり、残渣中 U 濃度の時間変化が大きい部分は、反応温度への依存も大きいため、 ClF_3 に接触し易い部分にある U と ClF_3 の反応を表しており、U と ClF_3 の反応が律速であると考えられる。また、残渣中 U 濃度の時間変化の小さい部分は、 ClF_3 に接触しづらい部分にある U と ClF_3 の反応を表しており、廃棄物内の ClF_3 の拡散のような現象が律速になっていると考えられる。また、除染温度 550°C 、除染時間 120 min 以上の条件で処理することにより、クリアランスレベル相当の除染性能を得ることができた。

除染試験後の残渣の写真を Fig. 4 に示す。除染温度 550°C および 450°C の長時間側では除染後残渣の色が白緑色を呈しているが、これは鉄燐物の主要構成元素である Fe のフッ化物 FeF_3 等であると考えられる。また、除染温度

250°C の条件では除染時間 360 min においても外観に変化は見られず、反応は進んでいないと考えられる。

2. 除染性能変動パラメータの影響

除染性能に影響を与える主なパラメータとして、除染時間と除染温度の影響を前述のように調査したが、次に除染性能を変動させる可能性のあるパラメータとして、1 バッチ当たりの処理量、ロータリーキルンの回転数、遊星ボールミルによる試料の粉碎時間の影響について調査を行った。このとき、除染温度と除染時間は、 550°C 、180 min の同一条件で行った。Table 2 に除染性能変動パラメータの影響確認試験結果を示す。

(1) 1 バッチ当たりの処理量

処理量を 1 g からその 10 倍の 10 g とすることによって除染性能は約 3 倍悪化した。これは、処理量を 10 倍にすることによって ClF_3 と U の接触効率が下がったこと、および ClF_3 と U の量論比が 1/10 に下がったためであると考えられる。本試験の条件で、量論比(通気した ClF_3 のモル数/廃棄物中の U モル数)は、試料 1 g の場合で 10^5 オーダ、試料 10 g の場合で 10^4 オーダと非常に大きいものの、試料の充填率は非常に小さい(断面積で数%)ため、大半の ClF_3 は廃棄物と反応せずにロータリーキルンを通過している。したがって、本試験のような ClF_3 が大過剰の条件においても量論比が除染性能に効いている可能性がある。

Fig. 3 Relationship between concentration of uranium and decontamination period each temperature

Table 2 The influence of sample weight, revolution speed and grinding period

Experimental variables		Test No.	Concentration of uranium after decontamination [ppm]
Weight of sample each batch [g]	1	FEG-31	0.76
		FEG-32	0.68
	10	FEG-28	2.15
Revolution speed of rotary kiln [rpm]	10	FEG-31	0.76
		FEG-32	0.68
	20	FEG-29	0.71
Grinding period of sample [min]	30	FEG-31	0.76
		FEG-32	0.68
	300	FEG-30	0.73

また、ロータリーキルン式の本試験装置では、鉄澱物について処理量 10 g 程度でもクリアランスレベル相当の除染性能を確保可能であることがわかった。

(2) ロータリーキルンの回転数

ロータリーキルンの回転数を共通の試験条件である 10 rpm の 2 倍の 20 rpm にて試験を実施した結果、除染性能に変化はみられなかった。これは、本試験条件では残渣中

U 濃度が十分低いレベルに達しており、これ以上除染性能が向上しないためであると考えられる。除染性能が悪い条件であれば、ロータリーキルンの回転数を上げることで除染性能が向上する可能性がある。

(3) 試料の粉碎時間

遊星ボールミルによる粉碎時間を共通の試験条件である 30 min の 10 倍の 300 min に変えたが除染性能に変化は見られなかった。また、30 min 粉碎、300 min 粉碎の各条件での粒度分布測定を行った結果を Fig. 5 に示す。分布の形状に若干の違いがみられるが、除染性能に変化がみられないことから、鉄澱物の場合、粉碎時間は 30 min 程度で十分であると考えられる。

V. 考 察

除染装置の設計を行うためには、廃棄物と ClF_3 の反応メカニズム、すなわち除染性能に影響を与える因子と除染性能の関係を明らかにし、これらのパラメータを含んだ除染性能評価式の形で表現をする必要がある。

しかし、廃棄物の化学形・物理形は複雑であり、 ClF_3 による除染の過程においては、様々な反応が同時に起こっていると考えられる。例えば Fig. 3 のグラフは、 ClF_3 との見かけの反応を表しているが、個々の反応を特定することは困難であるものの、反応温度や時間に依存がみられる。そこで、その依存関係を評価するとともに、データの

Fig. 4 Picture of samples after decontamination

Fig. 5 Relationship between grinding period and particle size distribution

取り方から式を導くまでの手法を示すことを目的として、簡単なモデルとして全域反応モデルを仮定し、経験式を算出した。

1. 除染性能の評価式の考え方

除染性能の評価式は、除染性能に与える影響が大きい因子として、除染温度 T 、除染時間 t をパラメータとした $f(t, T)$ と、除染性能を変動させる因子として、1 バッチ当たりの処理量、ロータリーキルン回転数、試料粉碎時間をパラメータとした ΔF の積で表されると仮定すると以下の形で表現される。

$$F = f(t, T) \times \Delta F \quad (1)$$

各記号の意味を以下に示す。

F : 残渣中 U 濃度

t : 除染時間

T : 除染温度

$f(t, T)$: 除染時間、除染温度に依存する項

ΔF : 除染性能を変動させるパラメータ

除染温度および除染時間をパラメータとした除染試験結果から $f(t, T)$ を求め、1 バッチ当たりの処理量、ロータリーキルンの回転数、試料粉碎時間をパラメータとした変動パラメータ算出のための除染試験結果から ΔF を求める。なお、除染性能の評価式には、これらパラメータのほかに ClF_3 濃度の影響も考えられるが、本除染試験においては、 ClF_3 はウランに対して大過剰の条件で実施しているため、除染性能の評価式の中では 1 であると設定する。

2. 除染性能評価式の作成手順

以下の手順で反応モデルを仮定して除染性能の評価式 $f(t, T)$ の形を決定し、試験データと比較することにより式の係数を決定する。

- (1) 反応モデルを仮定し、式の形を決定する。
- (2) 試験データとの比較を行い、式の係数を決定する。
- (3) 反応速度定数-温度のグラフ上に試験データを温度ごとにプロットし、反応速度定数の温度依存式を求める。

3. 式の形の設定

除染性能の評価式の近似曲線の形を決定するために、全域反応モデルを考える。本モデルでは U と ClF_3 の反応は廃棄物粒子内の全域で起こり、所定の除染温度保持開始時の残渣中 U 濃度 C_0 (ppm) から、温度保持中の残渣中 U 濃度 C (ppm) へと除染が進むにつれて、 ClF_3 が U と接触できない部分にある U が残り、残渣中 U 濃度が時間変化しなくなる。この時点での残渣中 U 濃度を C_∞ (ppm) とする。ここでは、本試験での最長の試験条件である 360 min の条件での残渣中 U 濃度を C_∞ (ppm) とする。このように仮定すると U の反応率 X は、以下のように表すことができる。

$$X = 1 - (C - C_\infty) / (C_0 - C_\infty) \quad (2)$$

次に、 U の反応速度は U の未反応率 $(1 - X)$ に比例するため、反応速度定数を kr (min^{-1})、除染時間を t (min) とすると U の未反応率は以下のように表すことができる。

$$\frac{dX}{dt} = kr(1 - X) \Rightarrow (1 - X) = e^{-kr \cdot t} \quad (3)$$

4. 反応速度定数の決定

反応速度定数 kr の値を求めるために、除染試験のデータを用い、各温度における U 未反応率の時間変化に対して、最小 2 乗法により近似式を求めた。その結果を Fig. 6 に示す。なお、除染温度 250°C の条件は残渣中 U 濃度の時間変化が小さく、本解析には適さないと考えられるため

Fig. 6 Relationship between unreacted uranium ratio and decontamination period

Fig. 7 Arrhenius plots of the decontamination test result

対象からは除外した。次に Fig. 6 により求めた反応速度定数の値を用いて、反応速度定数と温度の関係式を求める。

反応速度定数は Arrhenius 式

$$kr = Ae^{-(E/RT)} \quad (4)$$

に、従うものとする。 $A(\text{min}^{-1})$ は頻度因子、 $E(\text{J/mol})$ は活性化エネルギー、 $R(\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$ は気体定数、 $T(\text{K})$ 除染温度を意味する。Fig. 6 で求めた kr の値を縦軸に、 $1/T$ を横軸にとることにより、反応速度の温度依存式を得ることができる。プロットした結果を Fig. 7 に示す。これより近似式を求め、以下の Arrhenius 式を得た。

$$kr = 7.50 \times 10^{-1} e^{-2686/T} \quad (5)$$

また、活性化エネルギーの値は、

$$\frac{E}{R} = 2,686$$

$$\therefore E = 2,686 \times 8.314 = 22.3(\text{kJ/mol})$$

となる。活性化エネルギーは、その反応がどの程度、温度に依存するかを表すパラメータであり、その値が大きい程、除染温度を大きくした場合に除染速度が速くなる。

鉄澱物と ClF_3 の活性化エネルギーは文献値がないた

め、参考までに UF_4 と ClF_3 の反応の活性化エネルギーと上記活性化エネルギーを比較してみた。 UF_4 と ClF_3 の反応の活性化エネルギーは $14 \sim 25 \text{ kJ/mol}$ といわれており⁹⁾、ここで求めた活性化エネルギーは、その範囲内にあることがわかった。

5. 除染性能評価式の決定

(1) $f(t, T)$ の決定

(2) 式を (3) 式に代入して、 C について変形すると以下のとおりとなる。

$$1 - X = e^{-kr \cdot t}$$

$$1 - \left(1 - \frac{C - C_\infty}{C_0 - C_\infty}\right) = e^{-kr \cdot t}$$

$$\therefore C = C_\infty + (C_0 - C_\infty)e^{-kr \cdot t} \quad (6)$$

この式と (5) 式とから、 $f(t, T)$ は以下のように表すことができる。

$$f(t, T) = C = C_\infty + (C_0 - C_\infty) \times \exp(-7.50 \times 10^{-1} e^{-2686/T} t) \quad (7)$$

(2) ΔF の決定

(a) ロータリーキルン回転数

変動パラメータの確認試験結果から、除染温度 550°C 、除染時間 180 min の条件においては、回転数 10 rpm 以上では除染性能に変化はないため、回転数に対しては $\Delta F = 1$ となる。

(b) 試料粉碎時間

ロータリーキルン回転数の場合と同様に、変動パラメータの確認試験結果から、除染温度 550°C 、除染時間 180 min の条件においては、遊星ボールミルによる試料の粉碎時間 30 min 以上では除染性能に変化はないため、粉碎時間に対しては $\Delta F = 1$ となる。

今回の試験条件では、回転数および粉碎時間とも反応を進めるのに十分に除染性能に影響を与えていないため、本来(a), (b)の検討は不要である。しかし一般に、ロータリーキルンタイプの反応装置を用いた場合は回転数を大きくすると内容物を攪拌する効果が大きくなり、気-固反応が進みやすくなる。また、粉碎時間は粒度分布と関係があるため、廃棄物中の U と ClF_3 の接触効率に影響があると考えられる。したがって、これらのパラメータと除染性能の依存関係の検討は重要であると考えられる。

(c) 1 バッチ当たりの処理量

変動パラメータの確認試験結果から、処理量 $W_0 = 1 \text{ g}$ のとき $F = 0.81 \text{ ppm}$ 、処理量 $W_0 = 10 \text{ g}$ のとき $F = 2.15 \text{ ppm}$ である。 ΔF の形として、処理量に関する 1 次式、

$$\Delta F = a \cdot W_0 + b \text{ を仮定すると、}$$

$W_0 = 1 \text{ g}$ の場合：

$$F = f(t, T) \times \Delta F = 0.81 \times \Delta F = 0.81 \times (a \times 1 + b) = 0.81$$

$W_0 = 10 \text{ g}$ の場合：

$$F = f(t, T) \times \Delta F = 0.81 \times \Delta F = 0.81 \times (a \times 10 + b)$$

$$=2.15$$

この2式を連立させて解き、 $a=0.18$, $b=0.82$ を得る。

したがって、 ΔF は、

$$\Delta F=0.18W_0+0.82 \quad (8)$$

となる。このとき、この式が適用できる条件は、1バッチ当たりの処理量1~10 g, ロータリーキルンの回転数10 rpm以上, 試料粉碎時間30 min以上, 除染温度550℃である。

(3) F の決定

(7)と(8)式より、以下の除染性能の評価式を得る。

$$F=f(t, T) \times \Delta F \\ =\{C_{\infty}+(C_0-C_{\infty}) \exp (-7.50 \times 10^{-1} e^{-2.686 / T t})\} \\ \times (0.18 W_0+0.82) \quad (9)$$

本式を用いることで、除染性能を事前に評価することが可能となった。ただし、本式は有次元の式であるため、処理量や装置スケールが大きくなった場合は依存関係が変化する可能性があり、その成立性について再度確認することが必要である。

VI. 結 言

本研究ではスラッジのように除染が困難なウラン廃棄物を対象として、除染技術の開発を行った。2次廃棄物の低減の観点から ClF_3 による乾式除染法に着目し、0.3 Bq/g, 4.5%濃縮ウラン換算で3.3 ppmをクリアランスレベル想定値として、これを満足する除染条件を調査した。さらに、本試験結果を基に、除染性能評価式を導いた。得られた主な知見を以下に示す。

- (1) 除染性能に影響を与える主な試験パラメータとして、除染時間と除染温度を変えて除染性能に与える影響を調査した。試料には除染が困難で、かつ発生量の多い鉄澱物をロータリーキルン式の反応容器に入れて除染試験を行った。その結果、除染温度550℃, 除染時間約2時間でクリアランスレベルを達成することができた。
- (2) 除染性能を変動させる可能性のあるパラメータとして、ロータリーキルンの回転数、1バッチ当たりの処理量、試料の粉碎時間を変えて除染試験を行った。除染温度は550℃, 除染時間は180 minの同一条件で行った。クリアランスレベルを満足する除染温度、除染

時間の条件ではロータリーキルンの回転数、試料の粉碎時間は除染性能にはほとんど影響を与えないことがわかった。1バッチ当たりの処理量は増えるに従い除染性能が低下することがわかった。

- (3) 上記試験パラメータと除染性能の関係を除染性能評価式としてまとめた。これにより、除染試験条件を本式に入力することにより事前に除染性能を評価できるようになった。ただし、本式は有次元の式であるため、処理量や装置スケールが大きくなった場合は依存関係が変化する可能性があり、その成立性について再度確認することが必要である。

本研究は、経済産業省からの委託により実施した「ウラン廃棄物処分技術調査」の研究成果の一部である。

— 参考文献 —

- 1) 原子力バックエンド対策専門部会, ウラン廃棄物処理処分の基本的考え方について 5(1), (2000).
- 2) International Atomic Energy Agency, *Clearance Levels for Radionuclides in Solid Materials Interim Report*, IAEA-TEC-DOC-855, (1996).
- 3) 独立行政法人 日本学術振興会・フッ素化学第155委員会編, フッ素化学入門 先端テクノロジーに果すフッ素化学の役割, 三共出版, 85, (2004).
- 4) G. I. Cathers, M. R. Bennet, R. L. Jolley (ORNL), *Ind. Eng. Chem.* **50**, 1709 (1958).
- 5) National Research Council, *Affordable Cleanup*, National Academy Press, 49-67 (1996).
- 6) E. B. Munday, D. W. Simmons, *Feasibility of Gas-Phase Decontamination of Gaseous Diffusion Equipment*, DE93 009793, (1993).
- 7) Roy D. Bundy, Earl B. Munday, "Investigation of Gas-Phase Decontamination of Internally Radioactivity Contaminated Gaseous Diffusion Process Equipment and Piping," *Proc. 84th Annual Meeting, Air and Waste Management Association*, (1991).
- 8) R. D. Bundy, D. H. Bunch, E. B. Munday, D. W. Simmons, *Off-Gas Recycle for Long-Term Low Temperature Gas Phase Uranium Decontamination*, CONF-940853-1, (1994).
- 9) V. Y. Labaton, J. Inorg., "The fluorides of uranium," *Nucl. Chem.*, **10**, 86-93, (1959).