

令和4年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金 (固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発) (分冊③)

3. 保管・管理

2025年2月

日本原子力研究開発機構

本成果報告は7分冊で構成し、本資料は分冊③である。

分冊	タイトル
①	1. 全体概要
②	2. 性状把握
③	3. 保管・管理
④	4. 処理・処分 4.1 処理技術
⑤	4.2 処分概念の提示及び安全評価手法の開発 4.2.1 処分概念提示に必要な情報・知識の調査 4.2.2 安全評価手法開発の試行 4.2.2.1 ストーリーボードのプロトタイプ検討
⑥	4.2.2.2 重要シナリオ・モデル・パラメータ検討
⑦	4.2.2.3 1F事故廃棄物の特徴を考慮した品質管理下安全評価検討

	頁
3. 保管・管理	
3.1 減容・再利用技術に関する技術開発	
3.1.1 金属廃棄物のインベントリ推算に関わる検討	4
3.1.2 溶融処理時の核種移行挙動の調査	12
3.1.3 溶融試験による核種移行挙動の検討	16
3.1.4 溶融後金属再利用における評価対象核種候補の抽出と戦略立案	25
まとめ	38
参考資料	39

3. 保管・管理

3.1 減容・再利用技術に関する技術開発

・ 目標・実施内容

■ 目標

- 溶融対象金属のインベントリ推算手法と溶融時の核種移行挙動を整備し、検認手法具現化に向けた合理的な対応方を定める。

実施項目	実施概要
金属廃棄物のインベントリ推算に関わる検討	・処分安全評価のための廃棄物インベントリを対象に2021年度まで開発してきた解析的インベントリの汚染推算モデル※を参照して、クリアランス化を目指す溶融金属を対象に、汚染推算モデルを構築する。 ・発生系統や当該系統における処理実績、線量率データ、分析データなどの東京電力ホールディングス（株）福島第一原子力発電所における金属廃棄物に係る情報を参考として、想定される溶融前金属の汚染パターンごとの核種組成比をその不確実性ととも試算する。 ・これら検討結果から、インベントリ推算の精度向上等に向けた技術的課題を抽出・整理する。
溶融処理時の核種移行挙動の調査	・既存溶融炉（国内外/他産業）における元素の移行挙動（影響する因子条件含む）及びクリアランスに関する情報を調査・整理する。 ・収集した情報を基に、溶融時における対象元素ごとの各層への核種移行率を不確実性及び論拠とともに整理する。データが存在しない元素は、化学・物理的類似性などを考慮し設定する。
溶融試験による核種移行挙動の検討	・複数の溶融炉を模擬した装置を用いて、複数の代表的な金属ースラグの組み合わせ条件下での溶融試験を実施し、代表的な元素の移行挙動に係るデータを試験条件と、元素の分布状況と合わせて取得・整理する。結果は既往知見や熱力学計算により検証し、溶融時の核種移行挙動を不確実性ととも推定する。
溶融後金属再利用における評価対象核種候補の抽出と戦略立案	・上記の結果を踏まえて、溶融除染後金属の核種組成比を推定し、クリアランス検認における評価対象核種候補を抽出する。併せて、検討の不確実性等の観点から優先的に対策すべき核種に対する対応戦略を立案する。



目標達成を判断する指標

金属廃棄物インベントリ推算手法を構築する。また、クリアランス検認における評価対象核種候補を提示するとともに、優先的に対策すべき核種とその対応戦略を提示する。

3.1 減容・再利用技術に関する技術開発 ・研究開発の全体像・展開

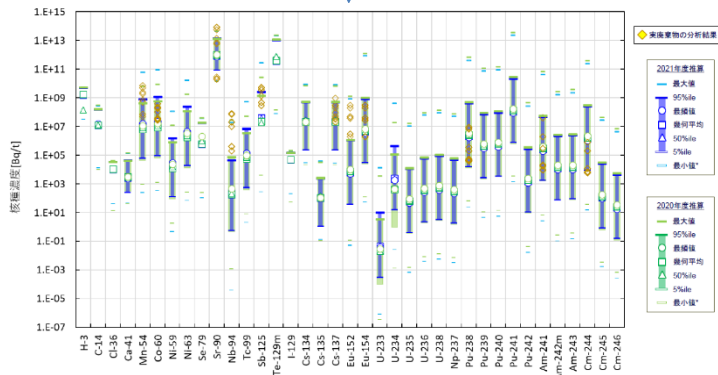
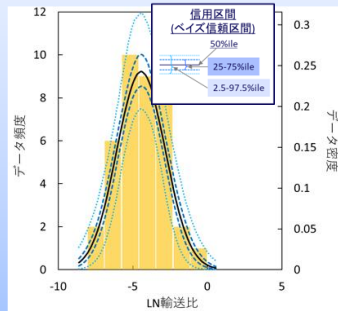
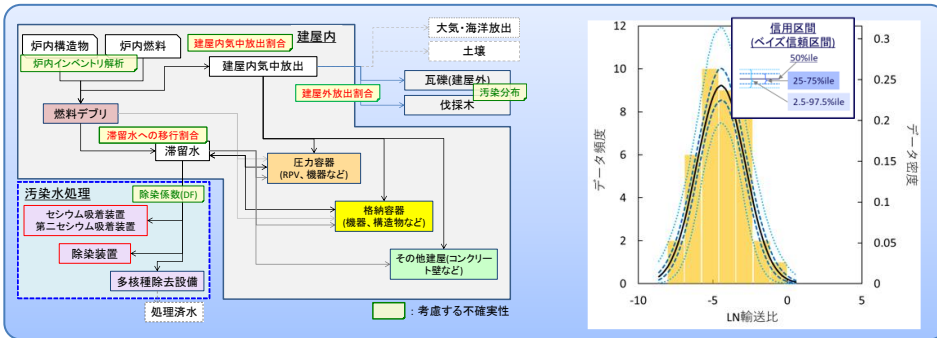
3.1.1 金属廃棄物のインベントリ推算に関わる検討

溶融対象金属の汚染状況等
に係る情報

クリアランス等に係る
情報

インベントリ推算対象
核種の選定

金属の汚染推算モデル構築



溶融除染前金属のインベントリ推算

3.1.2 溶融処理時の核種移行挙動の調査

推算した金属廃棄物
の核種組成比

既存設備等における
核種移行挙動調査結果

核種移行率

3.1.3 溶融試験による
核種移行挙動の検討

溶融試験における
核種移行挙動推定結果

3.1.4 溶融後金属再利用における評価対象核種候補の抽出と戦略立案

溶融除染後金属のインベ
ントリ推算(不確実性含む)

基準値

評価対象核種候補

- ✓ 優先的に対策すべき核種を抽出する
- ・ 金属廃棄物の分析: 対象試料、分析点数、適用可能な分析手法など
- ・ 核種移行率: 対象核種、試験条件(組成/炉型/温度等)など

3.1.1 金属廃棄物のインベントリ推算に関わる検討

3.1.1.1 検討の概要

参照情報

【クリアランス等情報】

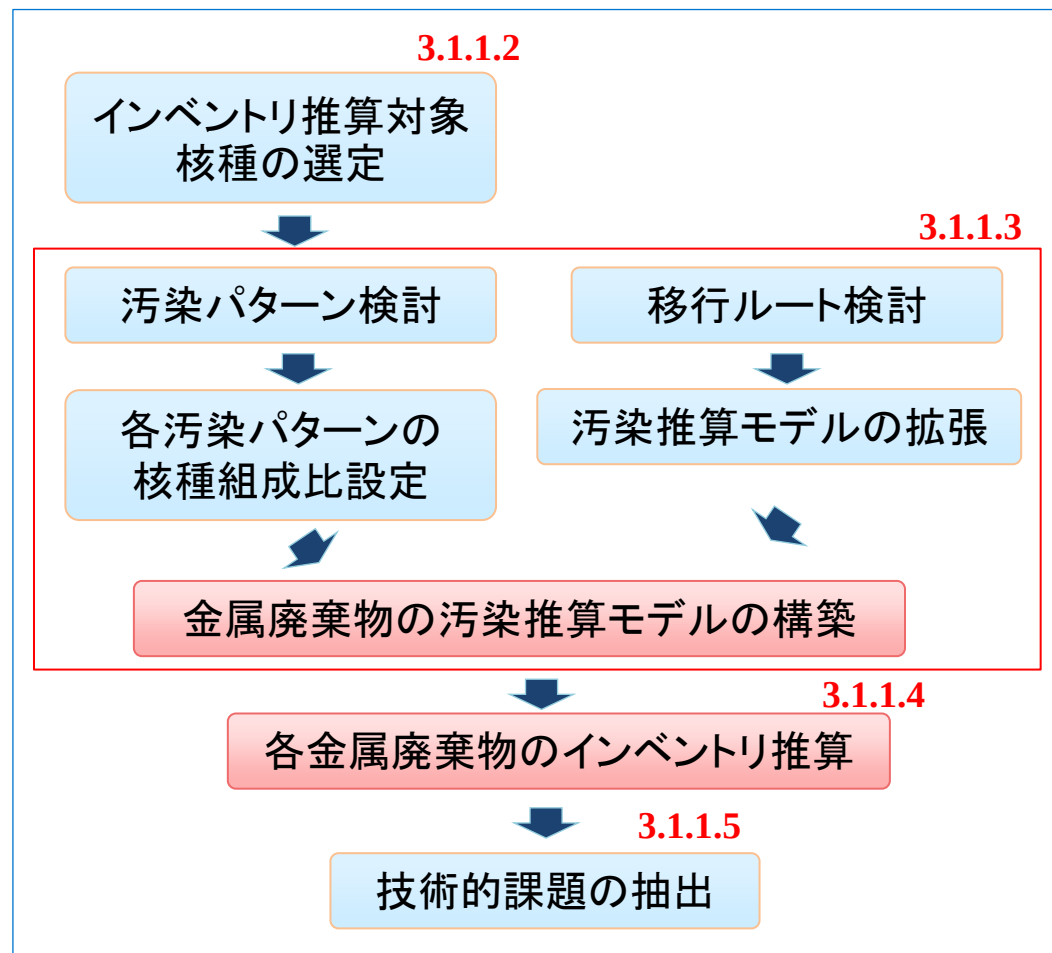
- ・クリアランス規則内規 等

【溶融対象金属情報】

- ・発生状況
- ・水処理装置の除染係数
- ・幾何条件(寸法等)
- ・重量
- ・事故廃棄物放射化インベントリ
- ・汚染水等分析値
- ・表面線量 等

【文献情報】

- ・処分安全評価インベントリ推算方法
- ・元素移行
- ・化学的特徴 等

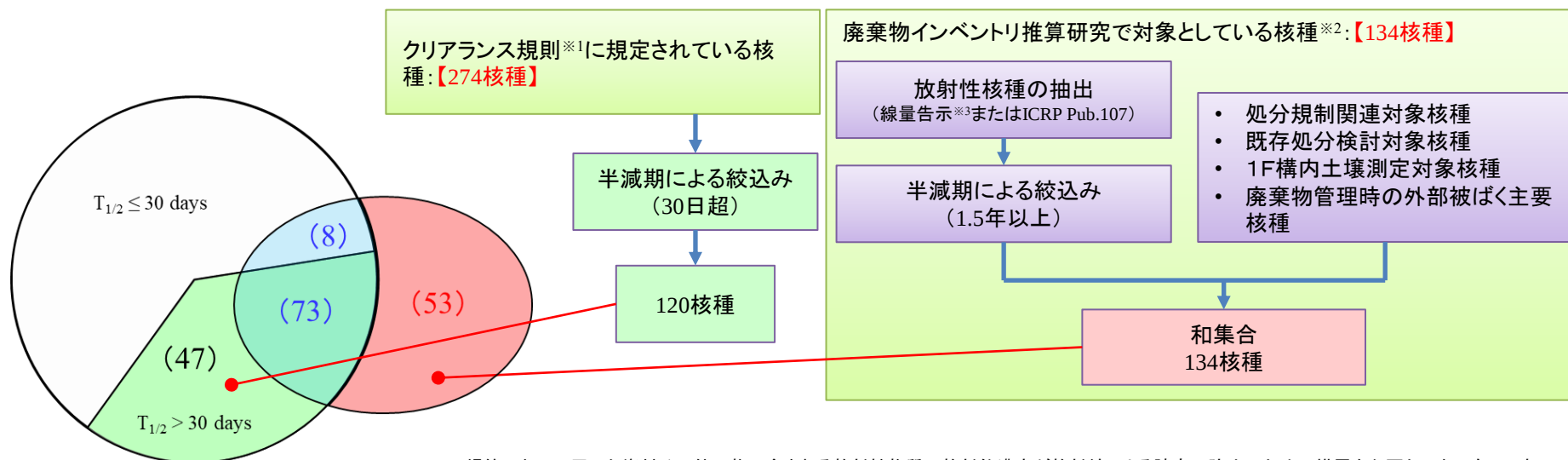


■ 対象とする金属廃棄物

- 福島第一原子力発電所(以下、「1F」という)で発生する低線量の廃棄物
 - ✓ 金属瓦礫類(瓦礫類を収納した容器の外側で測定した表面線量率が 0.1 mSv/h 以下)
 - ✓ 廃車両
 - ✓ 構内保管品(震災前から固体庫に保管されていた給水加熱器、屋外保管されていたタービン車室等)
 - ✓ タンク類(ノッチタンク、ブルータンク、フランジタンク)及び溶接タンク

■ インベントリ推算対象核種

- インベントリ推算対象核種として、クリアランス規則※¹に規定されている274核種のうち半減期が30日を超える120核種と、補助事業の埋設処分を想定した廃棄物インベントリ推算研究※²で対象としている134核種の和集合である181核種を選定



※¹ 工場等において用いた資材その他の物に含まれる放射性物質の放射能濃度が放射線による障害の防止のための措置を必要としないものであることの確認等に関する規則(令和二年原子力規制委員会規則第十六号, 2020年8月13日公布・施行)

※² 令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)

※³ 核原料物質又は核燃料物質の製錬の事業に関する規則等の規定に基づく線量限度等を定める告示(平成二十七年八月三十一日原子力規制委員会告示第八号, 最終改正令和二年三月十八日原子力規制委員会告示第七号)

■ 各汚染パターンの核種組成比の設定

対象とする金属廃棄物の管理履歴から想定される以下の汚染パターンを抽出した。

○ 震災前汚染パターン(2種類)

✓ 炉水による二次的な汚染

東京電力ホールディングス(株)(以下「東京電力HD」という)から提供された制御棒に付着した錆の分析結果を参照して、代表核種のCo-60に対する核種組成比を設定

✓ 中性子による放射化

東京電力HDから提供された1F-1号機、5号機、6号機の原子炉建屋内の放射化計算結果、及び低レベル放射性固体廃棄物の埋設処分に係る放射能濃度上限値の検討の際に電気事業連合会等が示した典型的な発電所廃棄物(余裕深度処分対象)を参照して、核種組成を設定

○ 震災後汚染パターン(5種類)

核種組成比は、2021年度までに実施された「解析的インベントリ推算手法の検討」において構築した汚染推算モデル^{※1}を使用

✓ フォールアウト由来の汚染

建屋内: 原子炉建屋内で採取された金属瓦礫等の分析データに基づき算出した建屋内気中放出割合を参照して、核種組成比を設定

建屋外: 建屋外瓦礫の分析データに基づき算出した建屋外放出割合を参照して核種組成比を設定

✓ 滞留水由来の汚染

原子炉建屋やタービン建屋内の滞留水及び汚染水処理装置の入口水に相当する滞留水(集中廃棄物処理建屋(プロセス主建屋、高温焼却炉建屋))の分析データに基づき算出した滞留水移行割合等を参照して、核種組成比を設定

✓ 処理水(Cs低減)由来の汚染

KURION・SARRY吸着塔^{※2}、除染装置(AREVA)の除染係数を考慮して、核種組成比を設定

✓ 処理水(Cs, Sr低減)由来の汚染

KURION・SARRY吸着塔^{※3}、除染装置(AREVA)の除染係数を考慮して、核種組成比を設定

✓ ALPS処理水由来の汚染

各吸着材の除染係数を設定して核種組成比を設定

※1 令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分にに関する研究開発)

※2 Alkaline Earth Metalsの除染係数: 100 もしくは 1.01

※3 Alkaline Earth Metalsの除染係数: 10,000

■ 金属廃棄物の汚染推算モデルの構築

- 金属廃棄物の管理状況を調査し、可能性のある汚染パターン(汚染の重畳含む)を抽出した。
- 現存する管理記録などから、各金属廃棄物における各汚染パターンの汚染レベルに相当する表面線量率や表面汚染密度などの参照値を設定した。
- 管理記録がないものについては、汚染パターンの重畳などによる組成への影響を確認するため汚染レベルに相当する値をパラメータとして設定した。
- 24個の汚染パターンを想定した汚染推算モデルを構築した(右表)。

汚染パターンを想定した汚染推算モデル

対象物	震災前汚染パターン※1	震災後汚染パターン※2	汚染推算モデル
金属瓦礫類 ($< 0.1 \text{ mSv/h}$)	A+B	①in+②	a
		①in	b
		②	c
	A	①in+②	d
		①in	e
		②	f
	B	①in+②	g
		①in	h
		②	i
	C	①in+②	j
		①in	k
		②	l
		③	m
		④	n
廃車両	C	⑤	o
構内保管品	A	①out	p
		—	q
タンク類 (ノッチタンク、ブルータンク、フランジタンク)	C	③	s-1 ^{※3}
			s-2 ^{※4}
溶接タンク (告示濃度10倍超え)	C	④	t-1 ^{※3}
			t-2 ^{※4}
溶接タンク (告示濃度10倍未満) フランジタンク(一部)	C	⑤	u-1 ^{※3}
			u-2 ^{※4}

※1 A: 炉水による二次的な汚染
B: 中性子による放射化
C: なし

※2 ①in: 屋内フォールアウト汚染
①out: 屋外フォールアウト汚染
②: 滞留水由来の汚染
③: 処理水(Cs低減)由来の汚染
④: 処理水(Cs、Sr低減)由来の汚染
⑤: ALPS処理水由来の汚染

※3 フランジタンク片のSr-90表面汚染密度測定結果の分布を参照したモデル
※4 処理水がタンク片表面において蒸発乾固を想定したモデル

■ インベントリ推算の実施

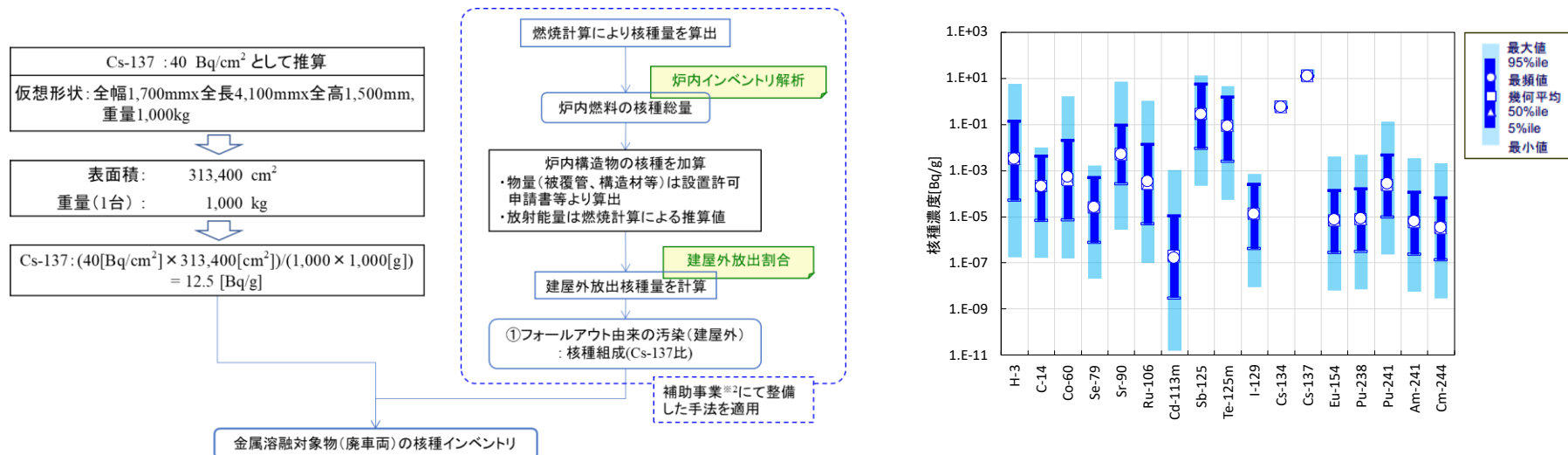
- 構築・設定した汚染推算モデル・パラメータを使用して、3,000回のランダムサンプリング計算を実施し、核種インベントリの統計分布を導出した。(汚染を表現するパラメータの不確実性を考慮した171ケースについて実施)
- 金属廃棄物を溶融除染をせずにクリアランスする可能性を考慮し、評価対象核種※¹候補の選定を実施した。
- 評価対象核種候補の選定にあたっては以下に示すクリアランス判断式に基づいた。

$$\sum_i^n \frac{D_i}{C_i} \leq 1$$

D_i : 物質中の i 番目の人工起源の放射性核種の放射能濃度[Bq/g]

C_i : その物質中の放射性核種 i に対する放射能濃度値(10 μ Sv/y 相当、我が国の現行のクリアランス規則に示されたクリアランスレベル)

n : 存在する放射性核種の数



インベントリ推算例 廃車両(汚染推算モデルp, Cs-137 40Bq/cm²)

※¹ 「評価対象核種」は、「放射能濃度についての確認を受けようとする物に含まれる放射性物質の放射能濃度の測定及び評価の方法に係る審査基準」(原子力規制委員会, 令和元年9月11日)にて定義されている

※² 令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)

3.1.1.4 各金属廃棄物のインベントリ推算

- インベントリ推算した171ケースについて、D/C※1評価を実施した。

溶融前の金属廃棄物のインベントリ推算結果によるD/C評価の一例（171ケースのうち10ケース）

対象物	震災前の汚染	震災後の汚染	パラメータ			D/C※1評価（最頻値・幾何平均値の大きい方の値を使用）				
	A:炉水由来の二次的な汚染 B:中性子による放射化 C:なし	①:フォールアウトによる汚染 ②:滞留水由来の汚染 ③:処理水(Cs低減)由来の汚染 ④:処理水(Cs,Sr低減)由来の汚染 ⑤:ALPS処理水由来の汚染	表面線量率 表面汚染密度	震災前の汚染	震災後の汚染	$\Sigma D_i/C_i$ ※1	主要核種	主要核種のD/C※1に対する比が、 >1/10である核種	主要核種のD/C※1に対する比が、 >1/100である核種	主要核種のD/C※1に対する比が、 >1/1,000である核種
金属瓦礫類 (<0.1 mSv/h)	A + B	①in+②	0.1 mSv/h	A: 4 Bq/cm ² , B: $\Sigma D_i/C_i=0.95$	①フォールアウト: ②汚染水 = 8:2	9.4E+03	Cs-137	-	Cs-134, Sr-90	Co-60, Sb-125
		①in+②	0.1 mSv/h	A: 4 Bq/cm ² , B: $\Sigma D_i/C_i=0.95$	①フォールアウト: ②汚染水 = 5:5	9.8E+03	Cs-137	-	Sr-90, Cs-134	Co-60, Sb-125
		①in+②	0.1 mSv/h	A: 4 Bq/cm ² , B: $\Sigma D_i/C_i=0.95$	①フォールアウト: ②汚染水 = 2:8	1.0E+04	Cs-137	Sr-90	Cs-134	Co-60, Sb-125
		①in	0.1 mSv/h	A: 4 Bq/cm ² , B: $\Sigma D_i/C_i=0.95$	—	9.1E+03	Cs-137	-	Cs-134	Co-60, Sb-125
		②	0.1 mSv/h	A: 4 Bq/cm ² , B: $\Sigma D_i/C_i=0.95$	—	1.1E+04	Cs-137	Sr-90	Cs-134	Co-60
廃車両	C	①out	40 Bq/cm ²	—	—	1.3E+02	Cs-137	-	Cs-134, Sb-125	-
構内保管品	A	①out	40 Bq/cm ²	—	—	4.2E+01	Cs-137	-	Co-60, Sb-125, Cs-134	-
タンク類 (ノッチタンク、ブルータンク、フランジタンク)	C	③	—	—	フランジタンク片の Sr-90表面汚染密度測定結果の分布を参照	7.4E+00	Sr-90	-	Cs-137, H-3	Co-60, Sb-125, Ru-106, I-129, Cd-113m, Cs-134, Se-79, Pu-238, Eu-154
溶接タンク (告示濃度10倍超え)	C	④	—	—	フランジタンク片の Sr-90表面汚染密度測定結果の分布を参照	6.6E-01	Cs-137	Sr-90, H-3, Co-60	Ru-106, Sb-125, I-129, Cs-134, Se-79	Pu-238, C-14, Eu-154, Am-241, Te-125m, Pu-241, Cd-113m, Pu-240, Pu-239
溶接タンク (告示濃度10倍未満) フランジタンク(一部)	C	⑤	—	—	フランジタンク片の Sr-90表面汚染密度測定結果の分布を参照	8.4E-02	H-3	-	-	Se-79

※1 D : 廃棄物に含まれる核種の放射能濃度(Bq/kg)

C : 核種のクリアランスレベル(Bq/kg)

■ インベントリ推算の実施（結果のまとめ）

対象物	インベントリ推算の実施結果（代表例）
金属瓦礫類・廃車両・構内保管品	● クリアランス基準の概ね数倍～10,000倍の核種濃度の結果を得た。
タンク類・溶接タンク	● クリアランス基準の概ね1/100 倍～数倍の核種濃度であり、除染なしで再利用可能である場合も推察された。

- 溶融処理前の金属廃棄物については、重要度の高い核種はCs-137。その他の主な核種としては、Sr-90、Cs-134、Sb-125、Co-60 などが挙げられる。
- 震災後の滞留水由来の汚染割合が高くなるとSr-90の寄与が大きくなる。
- 震災前の炉水由来の汚染が大きいとCo-60の寄与が大きくなる。
- 震災前の放射化によるCo-60はCs-137の1/1000程度の影響を示すにとどまったが、溶融処理でCs-137などが除染されると相対的に寄与が大きくなる可能性がある。
- 処理水の付着を想定した金属廃棄物では、H-3、I-129、Pu-238 等の α 核種の影響にも注意すべきである。

項目	技術的課題
ソースターム情報の更新、適正化	● ALPS処理水評価書※1の炉内インベントリ情報の適用 ✓ 溶融処理前の金属廃棄物のインベントリ推算では、炉内インベントリ情報として、燃焼解析事例2例を用いて実施した。 ✓ 2023年2月に、ALPS処理水評価書において、1F-1～3号機の炉内インベントリ情報が示された。 ✓ このため、ALPS処理水評価書の炉内インベントリ情報を適用し、より正確な燃焼・放射化計算及び冷却水系統の腐食生成物の取り入れ、ソースターム情報の精度、トレーサビリティを向上させる必要がある。 ● 震災前の汚染・放射化データの精査、入手 ✓ 溶融処理前の金属廃棄物のインベントリ推算では、クリアランス検討で重要となる核種の殆どが震災後の汚染によるものであった。 ✓ 一方、溶融処理によって、Cs-137、Sr-90などの核種がメタル層から移行することにより、溶融処理後の金属廃棄物の核種組成比は大きく変化して、震災前の放射化により生成されたCo-60などが重要な核種となる可能性が考えられる。 ✓ このため、震災前の汚染・放射化データの情報の充実と精度を向上させる必要がある。
実廃棄物等の分析データをより明示的に組み込んだインベントリ推算方法の構築	● 水処理装置除染係数の統計論的な設定 ✓ タンク類及び溶接タンクのインベントリ推算では、処理水の核種組成比の推算精度が重要である。 ✓ このため、FRAnDLi掲載の汚染水分析データや水処理工程運用データを活用し、処理水核種組成比の推算精度を向上させる必要がある。 ● 処理水濃度の経時変化を考慮した推算 ✓ タンク類及び溶接タンクの汚染推算モデルにおける滞留水の核種濃度は、震災後の全期間の平均値とした。 ✓ このため、震災後の初期の核種濃度が比較的高かった時期の処理水の再現により、タンク類及び溶接タンクのインベントリ推算精度を向上させる必要がある。

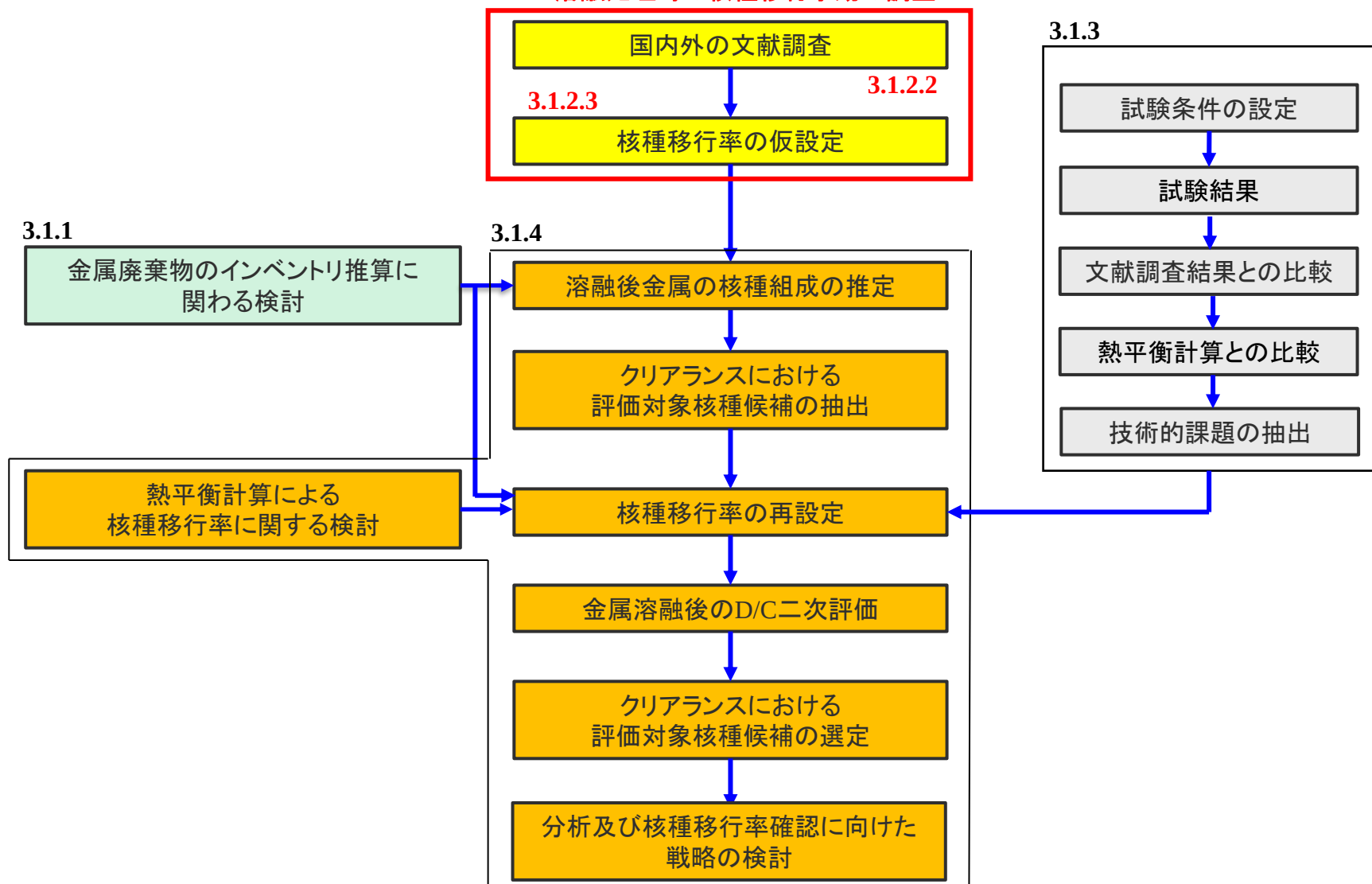
※1 福島第一原子力発電所 特定原子力施設に係る実施計画 参考資料「東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所における多核種除去設備等処理水の処分に係る基本方針」を踏まえた対応について 添付資料-2 多核種除去設備等処理水(ALPS 処理水)の海洋放出に係る放射線環境影響評価報告書(建設段階・改訂版)、東京電力ホールディングス(株)、2023年2月

3.1.2 溶融処理時の核種移行挙動の調査

3.1.2.1 検討の概要

【本節】

3.1.2 溶融処理時の核種移行挙動の調査



■ 国内の文献調査

○ 調査対象文献

国内における金属溶融の試験及びクリアランスに関する文献、かつ、試験条件に係る項目が記載されている文献を調査した。

- 文献ごとに、放射性核種の各層（メタル層、スラグ層及びガス）への核種移行率と、核種移行率に影響を及ぼすと考えられる以下の試験条件を整理した。

炉型・溶融方式	溶融対象物の化学成分	溶融温度	処理量
処理時間	炉内雰囲気	塩基度 (CaO/SiO ₂)	模擬核種の化学組成

- 試験条件ごとに、核種移行率に係る傾向分析を実施した。

■ 国外の文献調査

○ 調査対象文献

製鋼時及び再利用・再使用時の元素ごとの移行挙動がまとめられている以下の報告書における根拠文献を調査した。

・NRC, NUREG^{※1}-1640(RADIOLOGICAL ASSESSMENTS FOR CLEARANCE OF MATERIALS FROM NUCLEAR FACILITIES), 2003年6月

・文部科学省科学技術・学術政策局 放射線安全規制検討会, 放射線障害防止法に規定するクリアランスレベルについて, 平成22年11月(平成24年3月 一部訂正)

- 溶融試験・結果及び試験条件（炉型・溶融方式、溶融温度、処理時間など）の記載がある文献に着目し、重要な元素ごとにその結果を整理した。
- 3.1.3節の試験条件の参考とすべく、国内実績が乏しい原子力発電所から発生した廃棄物（処理量が多い）を溶融した試験についても試験条件を整理した。

※1 NUREG: US Nuclear Regulatory Commission Regulation

■ 文献調査のまとめ

	国内の文献調査	海外の文献調査
概要	● 模擬廃棄物を使用した溶融試験事例のみであり、かつ、処理量が小さい(1-10kg)が、試験結果が明確である ● RIを使用したトレーサ試験が実施された事例は見当たらない	● 原子力発電所等から発生した実廃棄物を溶融処理した事例が豊富であり、かつ、処理量が多い(数百kg～数千ton)。但し、試験結果に不明瞭な点がある ● RIを使用したトレーサ試験が実施されている。(例: Cs-134/137, Mn-54, Co-60, Ni-63, Sr-85, Zn-65, Am-241) ● 高周波誘導炉と電気炉で CsCl、CsOH 及び Cs₂SO₄ を添加した溶融試験が実施されており、スラグ層への核種移行率の差異が確認されている
Cs, Sr	● メタル層に残留することなく、スラグ層及びガスに移行	
Co, Ni	● ほとんどがメタル層に残留し、スラグ層及びガスへの移行量は少量(数%以下)または無視	
Mn	● 溶融温度及びその他の試験条件の変化に関わらず、多くがメタル層に残存し、一部がスラグ層に移行	● 文献により、メタル層では検出されない事例とほとんどがメタル層に移行する事例が混在
Ce	● メタル層に残留することなく、スラグ層のみに存在	
U	● 溶融温度及びその他試験条件の変化に関わらず、ほとんど全てスラグ層に移行	● 文献により、メタル層では検出されない事例とメタル層に移行する事例が混在
Pu	● 関連情報なし	● 小規模試験に基づき、メタル層に残留することなく、ほとんどがスラグ層に存在すると予想されている
Am	● 関連情報なし	● RIトレーサとして Am-241 を使用した試験において、メタル層に1%、スラグ層に110%、オフガスフィルタに0.05%存在することが確認されている

3.1.2.3 核種移行率の仮設定

- NUREG-1640(2003)は、幅をもたせた核種移行率を設定しており、金属溶融後の評価対象核種候補が幅広く抽出可能である。
- メタル層への核種移行率は、NUREG-1640(2003)に基づき仮設定した。
- 元素のグループ分類は、周期表の族及びNUREG-1640(2003)におけるメタル層への核種移行率を参考に仮設定した。

仮設定したメタル層への核種移行率

グループ分類	No	元素	核種移行率(%)		仮設定の考え方
			文献※1	仮設定	
Volatile Elements	1	H S	5～15 6～25	5～15	・文献を参考にした
Volatile Elements	2	C Cl, I	27～100 0	0.001～1	・文献のCの核種移行率が過度に保守的な値と判断した ・感度解析のため、0.001～1%の範囲とした
Volatile Elements	3	Te, Se	2.5～7.5	2.5～7.5	・文献を参考にした
Alkali Metals	4	Na, K, Cs, Rb※2	0	0.001～1	・感度解析のため、0.001～1%の範囲とした
Alkali Earth Metals	5	Be※2, Ca, Sr, Ba, Ra	0	0.001～1	・感度解析のため、0.001～1%の範囲とした
Transition Metals	6	Nb※2, Zr, Cd, In※2	0	0.001～1	・感度解析のため、0.001～1%の範囲とした
Transition Metals	7	Mn Zn, Si※2	2～24 0～20	2～24	・文献を参考にした
Transition Metals	8	Cr	40～99	40～99	・文献を参考にした
Transition Metals	9	Ag, Sb	75～99	75～99	・文献を参考にした
Transition Metals	10	Fe Co, Ni, Mo, Tc, Ru, Rh※2, Pd※2, Nb※2, Pt※2, Sn, W, Ir	95.5～98.5 98.5～99.5	99～100	・文献を参考にした
Transition Metals	11	Ta※2, Re※2, Os, Tl, Hf※2, Pb, Bi, Po	2.5～7.5	2.5～7.5	・文献を参考にした
Lanthanides	12	La※2, Ce, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Ho, Tm, Yb※2, Lu	0	0.001～1	・感度解析のため、0.001～1%の範囲とした
Actinides	13	Ac, Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm, Cf	0	0.001～1	・感度解析のため、0.001～1%の範囲とした

※1 NUREG-1640(2003) : Radiological Assessments for Clearance of Materials from Nuclear Facilities

※2 NUREG-1640(2003)には核種移行率が記載されていないため、仮設定した元素であり、グループ分類上適切でない可能性あり

■ 試験条件

○ 模擬核種

Co、Sr、Sb、Cs、Eu、Mn、C

■ 溶融試験条件パラメータ

○ 金属種類

- 炭素鋼(SS400) : フランジタンクの母材
- ステンレス鋼(SUS340) : 廃車両の排気系部品など

○ 初期スラグ

- スラグ① : 製鋼スラグの文献値の組成範囲(塩基度及び Al_2O_3 濃度)で融点が最小の組成を設定
 $\text{SiO}_2:\text{CaO}:\text{Al}_2\text{O}_3 = 36:48:16(\text{wt}\%)$
- スラグ② : 東京電力HD提供スラグ※1の組成分析結果に基づき設定

$\text{SiO}_2:\text{CaO}:\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mn} = 16:31:46:7(\text{wt}\%)$

○ 初期スラグ重量比

- 基本ケース : (SS400 : スラグ①) = 10:1)
- 変動ケース① : (SUS304 : スラグ①) = 10:1)
- 変動ケース② : (SS400 : スラグ②) = 10:1)
- 変動ケース③ : (SS400 : スラグ①) = 10:0.5)

■ 運転条件パラメータ

○ 溶融時間 : 核種移行挙動の経時変化を観測

- 小型プラズマ炉 : ~18分
- 中型アーク炉 : ~溶融完了後14分温度保持
- 外部加熱炉 : 0.5~4時間

○ 溶融温度 : 温度制御可能な外部加熱炉にて設定・実施 1,500°C、1,550°C、1,600°C

○ 雰囲気 : Ar、低酸素濃度、乾燥空気、大気

■ 溶融炉条件パラメータ

○ 炉型

- 小型プラズマ炉(タングステン電極を使用)
溶融時間、核種の設置位置、模擬核種の化学形態、炉内雰囲気酸素濃度を変えた試験を実施

- 中型アーク炉(黒鉛電極を使用)
初期スラグ試料の種類、金属試料と初期スラグ試料の重量比、溶融時間を変えた試験を実施

- 中型プラズマ炉(タングステン電極を使用)
初期スラグ試料の種類、金属試料と初期スラグ試料の重量比を変えた試験を実施

- 外部加熱炉
金属試料の種類、溶融温度、溶融時間を変えた試験を実施
ガスへの核種移行率についても本試験にて取得

- 誘導加熱炉
異なる溶融雰囲気下での核種移行率の違いを評価
(他の試験炉と溶融雰囲気が異なり、不活性ガスのArであるため、得られた核種移行率は参考として扱う)

○ 炉の大きさ

- 小型炉(数百g)
- 中型炉(10kg)

※1 東京電力HDから提供された、スクラップ溶解を行っている実アーク炉から採取したスラグ

3.1.3.3 試験結果

■ 全溶融試験での核種移行率の比較(まとめ)

■ 溶融試料条件

初期スラグ重量比	元素の種類※1		メタル層への核種移行率依存性	備考
基本ケース　：（SS400　　： スラグ① = 10:1）	(A)	Co	90～100%	※2 Sbやこの酸化物の沸点が処理温度と同等もしくは低いため、直接、アーク放電に曝され、揮発する場合などに伴う変動の可能性あり ※3 雰囲気酸素濃度の設定の相違により、核種移行率の幅が生じたと推定
		Sb	ほぼ100%と推定するが変動が大きい※2	
	(B)	Cs	0.1%未満	
		Sr		
		Eu		
	(C)	C	10%弱～数十%※3	
		Mn		
変動ケース①：（SUS304　： スラグ① = 10:1） 変動ケース②：（SS400　　： スラグ② = 10:1） 変動ケース③：（SS400　　： スラグ① = 10:0.5）	(A)	Co	基本ケースと同じ（90～100%）	※4 外部加熱炉の場合、処理温度1,600℃の試験結果を採用 ※5 理由の解明は今後の課題
		Sb		
	(B)	Cs	基本ケースと同じ（0.1%未満）※4	
		Sr		
		Eu		
	(C)	C	基本ケースと同じ（10%弱～数十%） 但し、金属試料をSUS304とした場合は、SS400と比較してメタル層への核種移行率が75%と高い※5	
		Mn		

※1 酸化物の生成自由エネルギーの観点での元素分類

(A)スラグ層中の試料を構成している元素及び鉄より酸化し難い元素 : Co, Sb

(B)スラグ層中の試料を構成している元素より酸化し易い元素 : Sr, Eu, (Cs)

(C)スラグ層中の試料を構成している元素より酸化し難いが、鉄より酸化し易い元素 : C, Mn

3.1.3.3 試験結果

・ 全溶融試験での核種移行率の比較(まとめ)

■ 運転条件

パラメータ		元素の種類 ※1		メタル層への核種移行率依存性	備考
溶融時間	• 小型プラズマ炉：～18分 • 中型アーク炉　：～溶融完了後14分温度保持 • 外部加熱炉　　：0.5～4時間	(A)	Co	依存性は観測されなかったが、酸化が顕著な試験条件の場合は、溶融時間に伴い低下※2	※2 小型プラズマ炉や外部加熱炉における大気雰囲気の例などを指す ※3 外部加熱炉の試験では、マスバランスが得られていない場合があった
			Sb		
		(B)	Cs	依存性は観測されず※3	
			Sr		
			Eu		
		(C)	C	雰囲気中の酸素に起因して酸化されて、メタル層以外へ移行するため、時間と共に低下	
			Mn		
溶融温度	• 1,500℃ • 1,550℃ • 1,600℃	(A)	Co	依存性は観測されず(ほぼ100%)	※4 熱力学的には温度に依存するが、核種移行率の温度依存性は非常に小さく、その依存性が観測されなかった場合を含む ※5 マスバランスが十分に得られなかった ※6 より高温で酸化反応が促進すると推定
			Sb		
		(B)	Cs	1,550℃以下では、0.1%以上の場合もあるが、処理温度と共に微減し、1,600℃では0.1%未満になり、主にスラグ層とガスへ移行※4	
			Sr	1,550℃以下では0.1%以上の場合もあるが、1,600℃では0.1%未満になり、主にスラグ層へ移行※5	
			Eu	1,550℃以下では0.1%以上の場合もあるが、1,600℃では0.1%未満※4、※5	
		(C)	C	未測定	
			Mn	処理温度の上昇と共に40%から10%に低下※6	

※1 酸化物の生成自由エネルギーの観点での元素分類

(A) スラグ層中の試料を構成している元素及び鉄より酸化し難い元素 : Co, Sb

(B) スラグ層中の試料を構成している元素より酸化し易い元素 : Sr, Eu, (Cs)

(C) スラグ層中の試料を構成している元素より酸化し難いが、鉄より酸化し易い元素 : C, Mn

3.1.3.3 試験結果

・ 全溶融試験での核種移行率の比較(まとめ)

■ 溶融炉条件

パラメータ		元素の種類 ※1		メタル層への核種移行率依存性	備考
炉の大きさ※2	・ 小型プラズマ炉 ・ 中型プラズマ炉	(A)	Co	依存性は観測されず(ほぼ100%)	※2 両者は相似形ではなく、スケール以外の相違点あり ※3 詳細不明
			Sb	小型プラズマ炉の場合、より低い※3	
		(B)	Cs	いずれも0.1%未満	
			Sr		
			Eu		
		(C)	C	依存性は観測されず(10%オーダー)	
			Mn	小型プラズマ炉の場合、より低い※3	
炉型※4	・ 小型プラズマ炉 ・ 中型アーク炉 ・ 外部加熱炉 ※5	(A)	Co	依存性は観測されず(ほぼ100%) ※5	※4 誘導加熱炉に関しては、炉内雰囲気 がArと顕著に試験条件が異なるため、除外 ※5 外部加熱炉は処理温度1,600℃の試験結果を採用
			Sb		
		(B)	Cs	依存性は観測されず(0.1%未満) ※5	
			Sr		
			Eu		
		(C)	C	いずれも10%オーダーであるが、多少の相違あり	
			Mn	炉型よりも炉内雰囲気 の酸素の酸化力の相違に 起因すると推定	

※1 酸化物の生成自由エネルギーの観点での元素分類

(A)スラグ層中の試料を構成している元素及び鉄より酸化し難い元素 : Co, Sb

(B)スラグ層中の試料を構成している元素より酸化し易い元素 : Sr, Eu, (Cs)

(C)スラグ層中の試料を構成している元素より酸化し難いが、鉄より酸化し易い元素 : C, Mn

3.1.3.4 文献調査結果との比較

■ 文献値との比較により、試験結果の妥当性を評価した(メタル層への核種移行率で評価)。

■ メタル層への核種移行率の定量化方法

○ 対象試験条件

試験設備 : 中型アーク炉と中型プラズマ炉

溶融試料条件 : 炭素鋼(SS400)

○ 対象とする試験結果の平均値及び標準偏差を算出し、平均値 $\pm 2\sigma$ (σ :標準偏差)として核種移行率の範囲を決定した。

■ 比較結果

○ Co、Sr、Sb、Cs、Euの試験結果は、文献値と良く一致した。

○ C、Mnは、核種移行率の変動幅が大きい傾向は文献値と同様であるが、核種移行率の上限値は文献値に比較して、低い傾向を示した。(不活性雰囲気など炉内雰囲気にOがなく、C、Mnが酸化せずにメタル層に移行し易い条件下では、メタル層への核種移行率が100%となる場合がある)

核種	試験結果(%)	文献(a)	文献(b)		
			Gas	Slag	Ingot
	メタル層への核種移行率(%)	メタル層への核種移行率(%)	核種移行比(-)	核種移行比(-)	核種移行比(-)
Co	90 ~ 100	98.5 ~ 99.5	0.005	0.01	1
Sr	~0.1	0.0	0.1	1	0.1
Sb	65 ~ 100	75.0 ~ 99.0	—	—	—
Cs	~0.1	0.0	1	1	0.001
Eu	~0.1	0.0	0.005	1	0.001
C	7 ~ 30	27.0 ~ 100	—	—	—
Mn	0.2 ~ 40	2.0 ~ 24.0	0.05	0.1	1

文献(a) : NUREG-1640(2003): Radiological Assessments for Clearance of Materials from Nuclear Facilities

文献(b) : IAEA Safety Series No.111-P-1.1(1992):Application of Exemption Principles to the Recycle and Reuse of Materials from Nuclear

メタル層への核種移行率: (溶融後のメタル層の核種の重量) / (溶融前のメタル層の核種の重量) $\times 100$ (%), 核種移行比: 溶融により各層(Gas, Slag, Ingot)へ移行する核種の割合

—: 文献(a),(b)には記載が無い

- 熱平衡計算結果(メタル層への核種移行率及び分配比※¹)との比較による溶融試験結果の妥当性を評価した。
 - 溶融試験結果より得たメタル層への核種移行率及び分配比について、3.1.4節にて算出した熱平衡計算結果と比較した。
- メタル層への核種移行率の定量化方法
 - 対象試験条件
 - 試験設備 : 中型アーク炉と中型プラズマ炉
 - 初期スラグ重量比 : SS400 : スラグ② = 10kg : 1kg
 - 試験時の溶湯温度 : 1,600～1,700℃
 - 23頁の溶融試験結果は、溶融試験 3点の最小値から最大値の範囲を示す。
- 熱平衡計算条件
 - 溶融試料 : SS400 : スラグ② = 10kg : 1kg
 - 温度 : 1,600℃
 - メタル層への核種移行率※²は、分配比より算出した。

※¹ 分配比(－) = (スラグ中の元素の重量濃度) / (メタル中の元素の重量濃度)

※² 核種移行率(%) = $1 / (\text{分配比} \times 0.1^{\text{※}^3} + 1) \times 100$

※³ 「0.1」は、メタルに対するスラグの重量比

3.1.3.5 熱平衡計算との比較

■ メタル層への核種移行率 (%)

—:実施していない、もしくは実施できなかった

※1 熱平衡計算の計算条件に適合する試験条件のみを選定

核種	溶融試験結果※1	熱平衡計算結果	溶融試験結果と熱平衡計算結果の比較	備考
Co	90 ~ 100	—	—	
Sr	~0.1※2	2.58E-03※3	試験結果は、計算結果と顕著な相違はない	※2 メタル層のS濃度は、溶融試験 No2705Cの場合 0.024wt% ※3 Fe中のS濃度0.03wt%の場合
Sb	80 ~ 100	—	—	
Cs	~0.1	5.04E-04	試験結果は、計算結果と顕著な相違はない	
Eu	~0.1※2	1.18E-02※3	試験結果は、計算結果と顕著な相違はない	※2 メタル層のS濃度は、溶融試験 No2705Cの場合 0.024wt% ※3 Fe中のS濃度0.03wt%の場合
C	10 ~ 20	17※4	試験結果は、計算結果と顕著な相違はない	※4 Fe中のCの飽和濃度0.024wt%(炉内雰囲気CO 分圧 0.1atm)と試験で供試した金属試料に含有のCの濃度の比として算出
Mn	5 ~ 30	29.5	試験結果は、計算結果と顕著な相違はない	

■ 分配比

※5 スラグ層中の元素濃度の分析において、スラグ試料の溶液化が十分ではない場合もあった

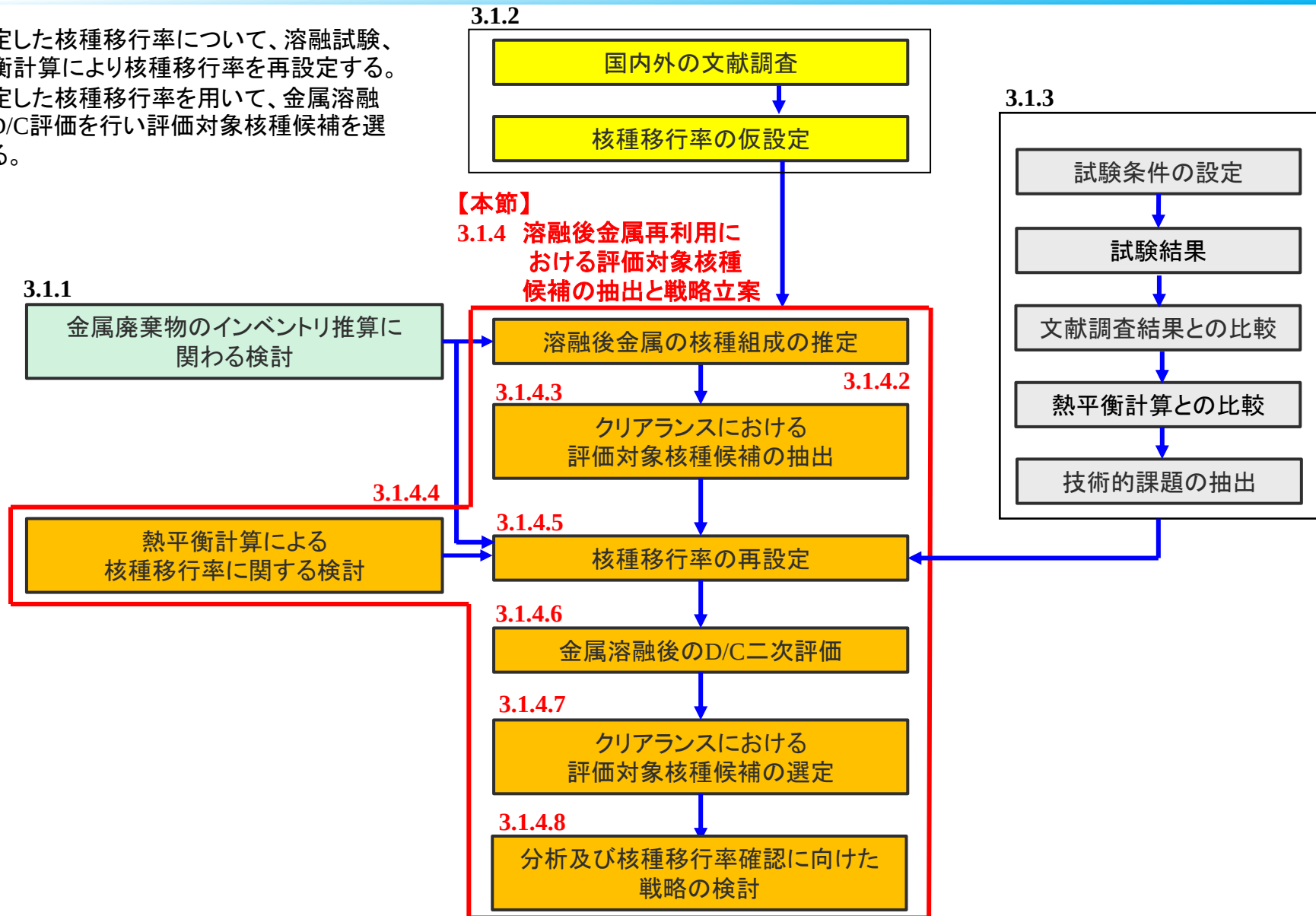
核種	溶融試験結果※1, ※5	熱平衡計算結果	溶融試験結果と熱平衡計算結果の比較	備考
Co	2E-02 ~ 5E-01	—	—	
Sr	7E+03 ~(3E+05)※2, ※6	3.88E+05※3	試験結果における分配比の上限は、メタル層中のSr濃度が定量下限値未満であることから3E+05より大きい可能性があり、試験結果の幅を計算結果が超えることに矛盾はない	※2 メタル層のS濃度は、溶融試験 No2705Cの場合 0.024wt% ※3 Fe中のS濃度0.03wt%の場合 ※6 ()内の数値は定量下限値
Sb	2E-02 ~ 7E-02	—	—	
Cs	7E+02 ~ (3E+03)※6	1.98E+06	試験結果における分配比の上限は、メタル層中のCs濃度が定量下限値未満であることから3E+03より大きい可能性があり、試験結果の幅を計算結果が超えることに矛盾はない	※6 ()内の数値は定量下限値
Eu	8E+03 ~ 1E+06※2	8.47E+04※3	試験結果は、計算結果と顕著な相違はない	※2 メタル層のS濃度は、溶融試験 No2705Cの場合 0.024wt% ※3 Fe中のS濃度0.03wt%の場合
C	—※7	—	—	※7 スラグ層中のCの濃度評価は実施していない
Mn	2E+01 ~ 1E+02	23. 9	試験結果は、計算結果と顕著な相違はない	

- スラグ層の厚さが、炉内雰囲気中の酸素(O)と溶湯(メタル、スラグ)との反応様相に影響していると推定されるため、炭素(C)、マンガン(Mn)の酸化速度に及ぼす影響とメタル層への核種移行率に及ぼすスラグ層の厚さの影響の解明が必要である。
- 試験設備と実機のスケールの相違に対する核種移行率の等価性評価が必要である。
- 金属試料をステンレス鋼(SUS304)とした場合のメタル層への炭素(C)の核種移行率の解明が必要である(メタル層への核種移行率が炭素鋼(SS400)に比べてSUSが高い結果)。
- 上記以外として、本事業にて対象としなかったルテニウム(Ru)などの元素に対する移行挙動解明、及び初期スラグ組成を拡張した場合における移行挙動解明も課題であると考えられる。

3.1.4 溶融後金属再利用における評価対象核種候補の抽出と戦略立案

3.1.4.1 検討の概要

- 仮設定した核種移行率について、溶融試験、熱平衡計算により核種移行率を再設定する。再設定した核種移行率を用いて、金属溶融後のD/C評価を行い評価対象核種候補を選定する。



■ 対象廃棄物の選定

- 想定される汚染パターンとその重畳の傾向を網羅的に把握できるように、汚染推算モデル d, l, p, s-1 を対象とした。

■ 金属廃棄物のインベントリ推算の対象核種

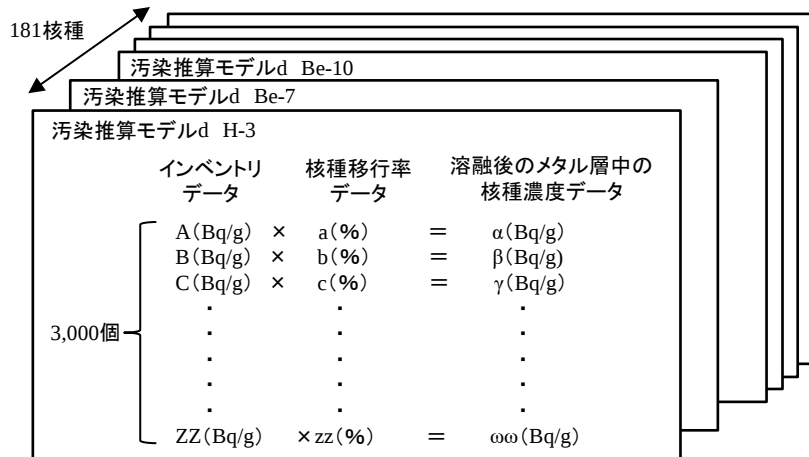
- 181核種

■ 核種移行率の設定範囲と分布

- メタル層への核種移行率は、仮設定したメタル層への核種移行率の最小値と最大値の範囲とした。
- 核種移行率の分布は対数一様と仮定した。
- 3,000回のランダムサンプリング計算を実施し、核種ごとに3,000個の核種移行率データを作成した。

■ 溶融後のメタル層中の核種濃度の算出

- 3.1.1.4節にて作成した汚染推算モデル d, l, p, s-1 のインベントリデータ(3,000個)と核種移行率データ(3,000個)を組み合わせることで、核種ごとに3,000個のメタル層中の核種濃度を算出し、D/C評価を実施した。



対象廃棄物（表中の黄色の着色部分）

対象物	震災前汚染パターン※1	震災後汚染パターン※2	汚染推算モデル
金属瓦礫類 ($< 0.1 \text{ mSv/h}$)	A+B	①in+②	a
		①in	b
		②	c
	A	①in+②	d
		①in	e
		②	f
	B	①in+②	g
		①in	h
		②	i
	C	①in+②	j
		①in	k
		②	l
		③	m
		④	n
		⑤	o
廃車両	C	①out	p
構内保管品	A	①out	q
		—	r
タンク類 (ノッチタンク、ブルータンク、フランジタンク)	C	③	s-1※3
			s-2※4
溶接タンク (告示濃度10倍超え)	C	④	t-1※3
			t-2※4
溶接タンク (告示濃度10倍未満) フランジタンク(一部)	C	⑤	u-1※3
			u-2※4

※1 A: 炉水による二次的な汚染
B: 中性子による放射化
C: なし

※2 ①in: 屋内フォールアウト汚染
①out: 屋外フォールアウト汚染
②: 滞留水由来の汚染
③: 処理水(Cs低減)由来の汚染
④: 処理水(Cs, Sr低減)由来の汚染
⑤: ALPS処理水由来の汚染

※3 フランジタンク片のSr-90表面汚染密度測定結果の分布を使用したモデル
※4 処理水がタンク片表面において蒸発乾固した想定モデル

- 各廃棄物のクリアランス評価対象核種候補を予備的に評価した(下表)。
- 評価対象核種候補として、 $\Sigma D/C$ の主要核種、主要核種のD/Cに対する比が10%以上、1%以上となる核種を整理した※1。

金属溶融後の評価対象核種候補

廃棄物 (汚染推算モデル)	金属溶融後		
	主要核種	主要核種のD/Cに対する比 が10%以上の核種	主要核種のD/Cに対する比 が1%以上の核種
金属瓦礫類 (d)	Co-60	Sb-125	Ru-106, Cs-137
金属瓦礫類 (l)	Co-60, Sr-90, Cs-137, Eu-154, Pu-238	H-3, Ru-106, Sb-125, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Am-241	Cs-134, Eu-155, Cm-244
廃車両 (p)	Co-60, Sb-125, Cs-137	Ru-106	H-3, Cs-134
タンク類 (s-1)	H-3, Co-60, Sr-90, Sb-125, Cs-137, Eu-154	Ru-106, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Am-241	C-14, Te-125m, I-129, Cs-134, Eu-155, Cm-244

金属溶融後の評価対象核種候補：H-3, C-14, Co-60, Sr-90, Ru-106, Sb-125, Te-125m, I-129, Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Am-241, Cm-244

※1 31頁の「インベントリ推算結果を用いたD/C評価の検討フロー」により選定した。

- 3.1.4.3節の検討結果、原子力安全・保安院クリアランス内規※1、廃棄物埋設事業許可申請書※2等を参考として、評価対象核種候補の可能性のある14元素(Sr, Tc, Sb, Cs, Eu, U, Pu, Am, Ru, Mn, C, Cl, I, H)のメタル層、スラグ層、ガスへの核種移行率について、熱平衡計算を用いて評価した。

■ 計算に用いるデータの整理

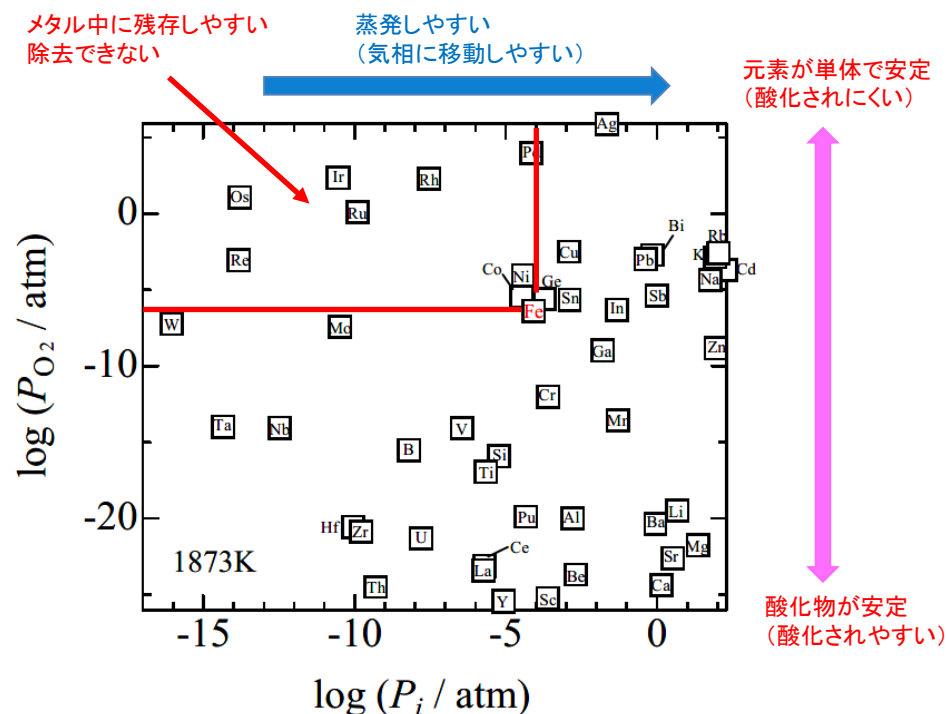
- 溶鉄-ガスの平衡計算に用いる、蒸気圧を算出
- 溶鉄-スラグの平衡計算に用いる、酸化物生成ギブス自由エネルギーを算出

■ 核種の分配比の計算方法の検討

- 酸化除去によるメタル層・スラグ層への核種移行率の試算 (Sr, Tc, Sb, Cs, Eu, U, Pu, Am, Ru, Mn)
- 還元除去によるメタル層・スラグ層への核種移行率の試算 (Sb)
- 脱炭反応によるメタル層への核種移行率の試算 (C)
- ガスへの塩化物形態でのハロゲンガス分圧の検討 (Cl, I)
- ガスへの蒸発除去による平衡濃度の検討 (Cs, Sb, Sr)
- メタル層への溶解反応による溶鉄中の平衡水素濃度の検討 (H)



14元素の核種移行率を試算・検討



元素ごとの単体の蒸気圧及び単体と酸化物が共存する臨界酸素分圧

『三木 貴博, 溶鉄中不純物元素の除去可能性についての熱力学的解析, 実験力学 Vol.10, No.3 pp.284-289 (2010年9月)』のFig.2に追記

※1 放射能濃度の測定及び評価の方法の認可について(内規)(平成17・11・30 原院第6号 平成18年1月30日)

※2 六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センター 廃棄物埋設事業許可申請書(日本原燃産業株式会社、平成2年9月)

3.1.4.4 熱平衡計算による核種移行率に関する検討

■ 核種の分配比の計算方法の検討(前頁)に基づき実施した熱平衡計算結果及びまとめを以下に示す。

1,873K(1,600°C)におけるスラグ／メタル分配比※1及びメタル層への核種移行率※2

元素	分配比	核種移行率(%)
U	2.60E+08	3.84E-06
Pu	7.96E+06	1.26E-04
Am	1.97E+02	4.82
Eu	8.47E+04	1.18E-02
Sr	3.88E+04	2.58E-03
Mn	23.9	29.5
Cs	1.98E+06	5.04E-04
Ru	1.13E-11	100
Tc	1.07E-08	100
Sb	1.69E-01	98.3

※1 分配比(L)=(スラグ中の元素の重量濃度)／(メタル中の元素の重量濃度)

※2 核種移行率(%)=1／(L×0.1※3+1)×100

※3「0.1」は、メタルに対するスラグの重量比

1,873K(1,600°C)における溶鉄中水素濃度※4

元素	平衡濃度(mass%)
H	7.84E-04

※4 水素分圧が0.1atmの時

1,873K(1,600°C)における溶鉄中炭素濃度※5

元素	平衡濃度(mass%)
C	2.40E-02

※5 水素分圧が0.1atmの時

1,873K(1,600°C)におけるメタル中各元素の濃度※6

元素	平衡濃度(mass%)
Cs	1.11E-04
Sb	4.99
Sr	2.06E-03

※6 蒸気圧が0.1atmの時

1,873K(1,600°C)における塩素及びヨウ素分圧※7

元素	化合物形態	ハロゲンガス分圧(atm)
Cl	FeCl ₂	1.10E-07
Cl	FeCl ₃	2.69E-05
I	FeI ₂	8.94E-04

※7 鉄塩化物及びヨウ化鉄のガス分圧が0.1atmの時

まとめ

元素	移行傾向
U、Pu、Eu	スラグ層にほぼ全て移行する
C、Am	若干メタル層に残存する可能性がある
Sr、Cs	スラグ層・ガスにほぼ全て移行する
Mn	メタル層にかなり残存する
Ru、Tc、Sb	スラグ層・ガスへの移行は見込めない
H、Cl、I	ガスへほぼ移行する

■ 今後の課題

○ 計算の精度を上げるため、以下のデータの取得が必要である。

✓ Amの酸化物生成自由エネルギー(ΔG)

✓ Mn以外の活量係数、相互作用係数(本補助事業では同族元素や周期表の近傍元素で対応した)

✓ 特にSrについては、Caの活量係数や相互作用係数を使用して計算したが、CaはSに対する相互作用係数が大きく、核種移行率が溶鉄中のS濃度の影響を受けるため、Srのスラグ層及びメタル層中での活量係数と相互作用係数を把握する必要がある。

3.1.4.5 核種移行率の再設定

・ メタル層への核種移行率の再設定

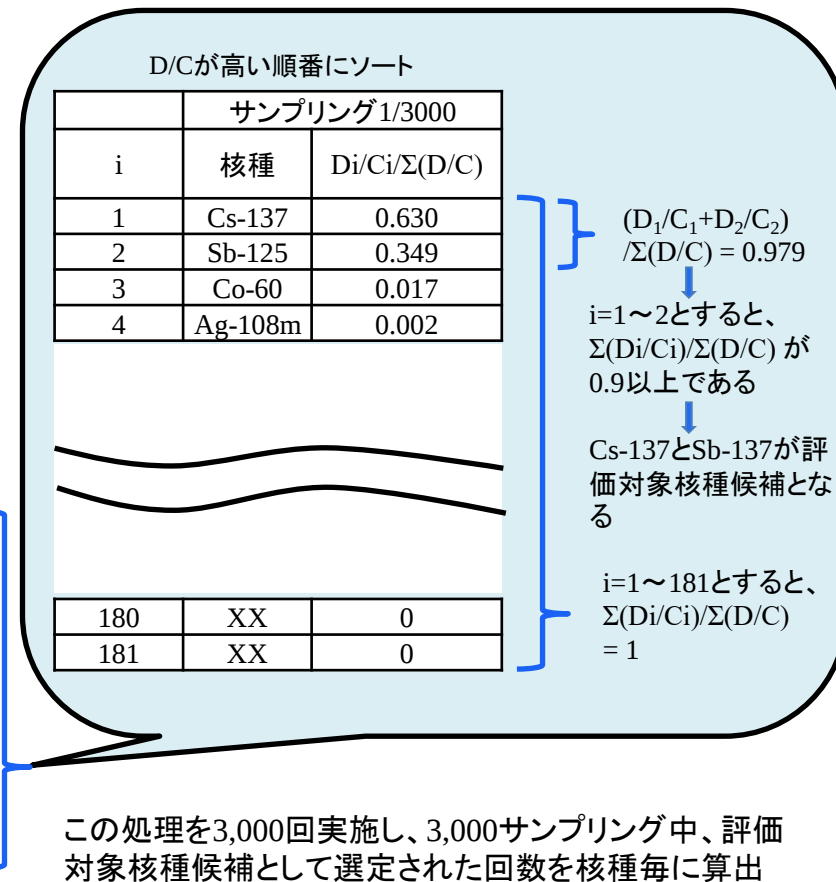
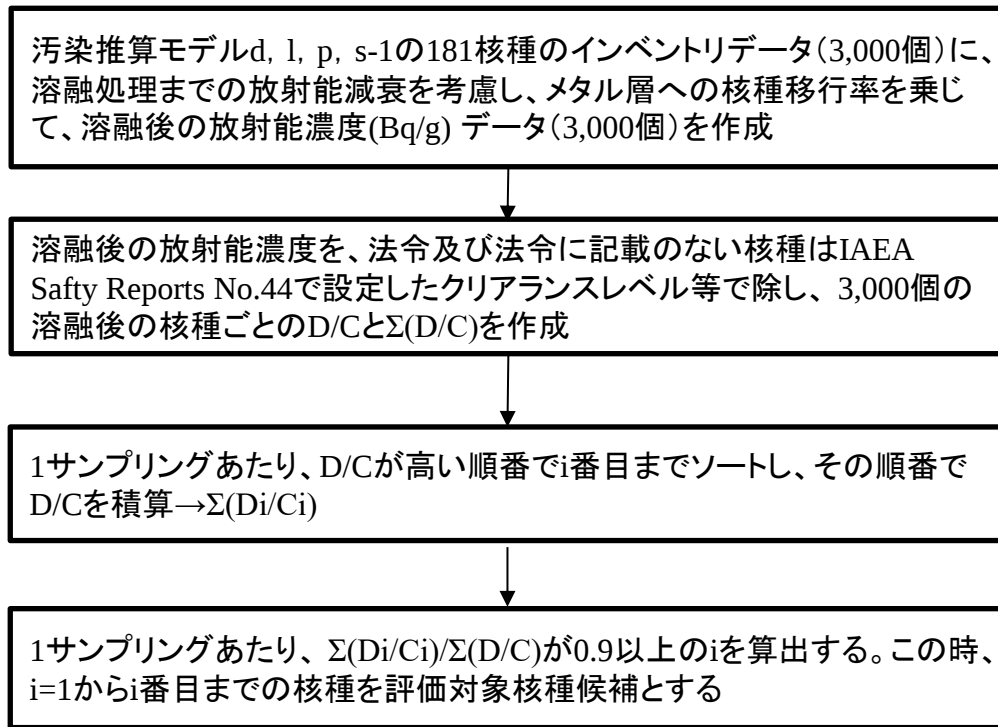
- 溶融後のメタル層への元素グループごとの核種移行率設定について、令和4年度に仮設定した核種移行率範囲を、3.1.3節及び3.1.4.4節の検討結果に基づき、再設定した。

グループ分類	No	令和4年度検討結果		再検討結果		備 考
		元素	メタル層への核種移行率(%)	元素	メタル層への核種移行率(%)	
Volatile Elements	1	H	5～15	H	0.001～0.1	3.1.4.4節の検討結果より
		S	5～15	S	5～15	
Volatile Elements	2	C	0.001～1	C	10～20	3.1.3節の検討結果より
Volatile Elements	2	Cl I	0.001～1	Cl I	0.001～1	
Volatile Elements	3	Te Se	2.5～7.5	Te Se	2.5～7.5	
Alkali Metals	4	Na K Rb Cs	0.001～1	Na K Rb Cs	0.001～0.1	3.1.3節の検討結果より
Alkali Earth Metals	5	Be Ca Sr Ba Ra	0.001～1	Be Ca Sr Ba Ra	0.001～0.1	3.1.3節の検討結果より
Transition Metals	6	Nb Zr Cd In	0.001～1	Nb Zr Cd In	0.001～1	
Transition Metals	7	Mn Zn Si	2～24	Mn Zn Si	2～40	3.1.3節の検討結果より
Transition Metals	8	Cr	40～99	Cr	40～99	
Transition Metals	9	Ag Sb	75～99	Ag Sb	70～100	3.1.3節の検討結果より
Transition Metals	10	Fe Co Ni Mo Tc Ru Rh Pd Ir Nd Pt W Sn	99～100	Fe Co Ni Mo Tc Ru Rh Pd Ir Nd Pt W Sn	99～100	
Transition Metals	11	Ta Re Os Tl Po Hf Pb Bi	2.5～7.5	Ta Re Os Tl Po Hf Pb Bi	2.5～7.5	
Lanthanides	12	La Ce Pm Sm Eu Gd Tb Ho Tm Yb Lu	0.001～1	La Ce Pm Sm Eu Gd Tb Ho Tm Yb Lu	0.0001～0.1	3.1.3節及び3.1.4.4節の検討結果より
Actinides	13	Ac Th Pa U Np Pu Am Cm Cf	0.001～1	Ac Th Pa U Np Pu Am Cm Cf	0.0001～0.1	3.1.4.4節の検討結果より

■ 対象廃棄物

- 想定される汚染パターンとその重畳の傾向を網羅的に把握できるように、汚染推算モデル d, l, p, s-1を対象とした。
- インベントリ推算の各対象廃棄物の汚染パターンを基に、溶融処理を行うまでの時間減衰を考慮した際に、選定される評価対象核種候補の違いを捉える。
- 評価する減衰時間は、2021年 ($T=0$ 年) から10～30年後とした。

■ インベントリ推算結果を用いたD/C評価の検討フロー



3.1.4.6 金属溶融後のD/C二次評価

・ D/C二次評価の一例（タンク類(モデル:s-1)）

■ 出現回数に基づき、評価対象核種候補を選定した※1。

- T0=0年では、Ru-106やSb-125など上位を占めている短半減期核種が30年経過すると減衰し、その代わりに、Tc-99などの中長半減期核種が出現した。
- このため、溶融除染時期を考慮し、選定する評価対象核種候補の更なる検討が必要である。

評価対象核種候補として選定される割合

核種	半減期(y)	評価対象核種候補として選定される割合(%)			
		t=0年※2 (2021年時点)	t=10年	t=20年	t=30年
H-3	12.32	36.73	62.23	77.43	80.93
C-14	5,700	—	—	—	0.07
Co-60	5.2713	97.43	92.37	84.97	74.23
Ni-63	100.1	—	—	—	0.33
Se-79	295,000	2.50	11.47	31.07	47.77
Sr-90	28.79	27.17	46.40	63.60	72.53
Tc-99	211,100	—	—	1.83	39.33
Ru-106	1.02286	93.67	—	—	—
Cd-113m	14.1	0.77	1.50	2.70	3.90
Sn-121m	43.9	—	—	—	8.80
Sn-126	230,000	—	—	—	8.50
Sb-125	2.75856	82.27	62.33	30.27	—
Te-125m	0.157156	0.17	—	—	—
I-129	15,700,000	0.10	0.53	2.63	7.07
Cs-137	30.1671	3.17	7.37	14.87	20.23
Eu-154	8.593	0.93	1.53	1.60	1.40
Pu-238	87.7	1.57	2.63	4.67	6.73
Pu-239	24,110	0.07	0.27	0.97	1.33
Pu-240	6564	0.23	1.13	1.80	2.70
Pu-241	14.35	0.43	0.63	0.20	—
Am-241	432.2	1.17	3.57	6.90	10.30

※1 核種移行率については、令和5年9月末時点の検討結果を使用した。

※2 本補助事業の開始年度が2022年度であるため、『t=0年(2021年)』とした。

3.1.4.7 クリアランスにおける評価対象核種候補の選定

■ 各廃棄物のクリアランスにおける評価対象核種候補を再抽出した※1。

- 評価対象核種候補の選定において、溶融処理を行う時期までの減衰(30年まで)を考慮すると、以下の核種が評価対象候補として選定される可能性がある。

廃棄物	減衰期間	評価対象核種候補として選定される割合		
		10%以上	1%以上	1%未満
金属瓦礫類 (モデル:d)	0年	Co-60	Sb-125	—
	10年	Co-60	—	Sb-125
	20年	Co-60	—	—
	30年	Co-60	—	—
金属瓦礫類 (モデル:l)	0年	Co-60, Sr-90, Ru-106, Sb-125 Cs-137	Cd-113m, Cs-134	Eu-154, Pu-238, Pu-240 Pu-241, Am-241
	10年	Co-60, Sr-90, Sb-125, Cs-137	Cd-113m, Am-241	Eu-154, Pu-238, Pu-239 Pu-240, Pu-241
	20年	Co-60, Sr-90, Cs-137	Cd-113m, Sb-125, Pu-238 Am-241	Tc-99, Eu-154, Pu-239, Pu-240
	30年	Co-60, Sr-90, Tc-99, Cs-137	Cd-113m, Sn-121m, Pu-238 Am-241	C-14, Sn-126, Eu-154, Pu-239 Pu-240
廃車両 (モデル:p)	0年	Co-60, Sb-125, Cs-137	Ru-106	—
	10年	Co-60, Sb-125, Cs-137	—	—
	20年	Co-60, Sb-125, Cs-137	—	Sr-90, Tc-99
	30年	Co-60, Sb-125, Cs-137	Tc-99, Ag-108m	Sr-90, Sn-121m, Sn-126
タンク類 (モデル:s-1)	0年	C-14, Co-60, Sr-90, Ru-106 Sb-125	Se-79, Cd-113m	Te-125m, I-129, Cs-137 Eu-154, Eu-155, Pu-238 Pu-239, Pu-240, Pu-241 Am-241
	10年	C-14, Co-60, Se-79, Sr-90, Sb-125	Cd-113m, I-129, Cs-137 Am-241	H-3, Eu-154, Pu-238, Pu-239 Pu-240, Pu-241
	20年	C-14, Co-60, Se-79, Sr-90, Sb-125	Tc-99, Cd-113m, I-129, Cs-137 Pu-238, Am-241	H-3, Eu-154, Pu-239, Pu-240 Pu-241
	30年	C-14, Co-60, Se-79, Sr-90, Tc-99 Sn-121m, Sn-126, I-129	Cd-113m, Cs-137, Pu-238 Pu-240, Am-241	H-3, Ni-63, Eu-154, Pu-239

※1 核種移行率については、令和5年9月末時点の検討結果を使用した。

3.1.4.8 分析及び核種移行率確認に向けた戦略の検討

・ 溶融後のクリアランス評価対象核種候補に対する分析方法の整理

■ 溶融後の評価対象核種候補に対する分析方法を整理した。

対象核種※1	半減期(年)	対象廃棄物				クリアランスレベル(Bq/g)	目標分析下限値※2(Bq/g)	分析手法	検出下限(実績値)※3(Bq/g)	検出下限(実績値)※4(Bq/g)
		廃車両	タンク類	金属瓦礫類(d)	金属瓦礫類(l)					
H-3	12.32	—	○	—	—	100	1	燃焼法+LSC測定	0.03	0.007
C-14	5.70E+03	—	○	—	○	1	0.01	燃焼法+LSC測定	0.02	0.02
Co-60	5.27	○	○	○	○	0.1	0.001	化学分離+γ線スペクトロメトリ	0.1	0.004
Sr-90	28.79	○	○	—	○	1	0.01	化学分離+LSC測定	0.002	0.02
Tc-99	2.11 E+05	○	○	—	○	1	0.01	化学分離+LSC測定	0.003	—
Ru-106	1.02	○	○	—	○	0.1	0.001	化学分離+γ線スペクトロメトリ	4	—
Ag-108m	418	○	—	—	—	0.1	0.001	化学分離+γ線スペクトロメトリ	—	0.005
Sb-125	2.76	○	○	○	○	0.1	0.001	化学分離+γ線スペクトロメトリ	0.1	—
I-129	1.57E+07	—	○	—	—	0.01	0.0001	燃焼法+ICP-MSまたはGLP測定	0.02	—
Cs-134	2.06	—	—	—	○	0.1	0.001	化学分離+γ線スペクトロメトリ	1.0	—
Cs-137	30.17	○	○	—	○	0.1	0.001	γ線スペクトロメトリ	0.1	0.007
Eu-154	8.59	—	○	—	○	0.1	0.001	化学分離+γ線スペクトロメトリ	0.05	0.02
Pu-238	87.70	—	○	—	○	0.1	0.001	化学分離+Si半導体検出器測定	0.002	0.0006
Pu-239	2.41E+04	—	○	—	○	0.1	0.001	化学分離+Si半導体検出器測定	0.002	0.005
Pu-240	6.56E+03	—	○	—	○	0.1	0.001	化学分離+Si半導体検出器測定	0.002	0.0005
Am-241	432.20	—	○	—	○	0.1	0.001	化学分離+Si半導体検出器測定	0.002	0.0004

LSC:液体シンチレーションカウンタ, GLP:低エネルギーγ線測定用半導体検出器

※1 27頁、32頁及び33頁に示したクリアランス評価対象核種候補の全てではない

※2 「目標分析下限値」は、複数核種の重量を考慮し、クリアランスレベルの1/100と設定した

※3 FRAnDLi中の「瓦礫」に分類されている分析データに基づく、実測値の下限値

※4 「JPDR から発生した放射性廃棄物に対する放射化学分析」(JAEA-Data/Code 2021-013)に記載されている検出限界

■ 分析方法及び計測方法に関する課題は以下の通り。

分析方法及び計測方法に関する課題の分類	該当核種※5
現状の分析方法で問題ない核種	H-3, Sr-90, Tc-99, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Am-241
検出限界値を向上させることが望ましい核種	C-14, Co-60, Ag-108m, Cs-137
検出限界値が「目標分析下限値」以下となるように分析方法または計測方法の改善が必要な核種	Ru-106, Sb-125, I-129, Cs-134, Eu-154

※5 27頁、32頁及び33頁にて示したクリアランス評価対象核種候補の全てではない

3.1.4.8 分析及び核種移行率確認に向けた戦略の検討

・ 優先的に対策すべき核種の抽出

- 28頁に示した14 元素について熱力学データを調査し、メタル層への核種移行率を評価した。
- 今後は、対象元素を拡張するとともに、熱力学データに関する詳細な調査を実施し、メタル層への核種移行率に関する評価精度の向上を図るとともに、グループ分類を検討することが合理的であると考えられる。
- これまでの核種移行率に係る検討を踏まえ、評価対象元素に関する検討優先順位を下表に示す。

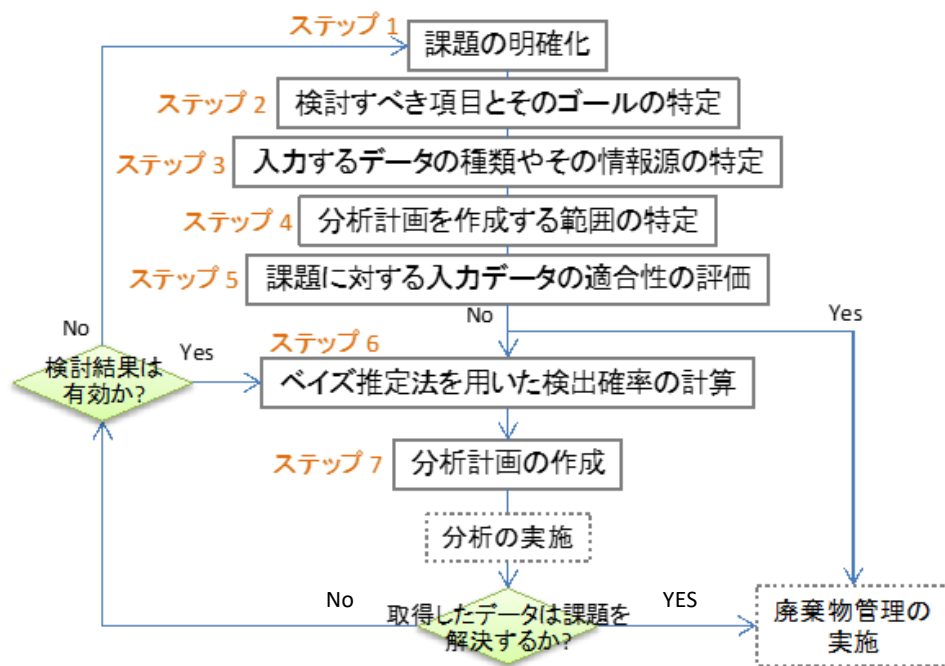
評価対象元素に関する検討優先順位(案)

優先順位		対象元素
Aグレード	評価上重要となり得る核種	Sr, Cs
Bグレード	難測定核種	Cl, I
Cグレード	熱力学データがほとんどない核種	U, Pu, Am, Cm
Dグレード	揮発性核種	H
Eグレード	短半減期核種又は少量の核種	Sb
Fグレード	その他の核種	ランタノイド

3.1.4.8 分析及び核種移行率確認に向けた戦略の検討

- ・ DQOプロセスを用いた金属廃棄物の分析点数の算出

- DQO(Data Quality Objectives)プロセスを用いて、金属廃棄物の分析点数の算出を試行した。



廃棄物を対象としたDQOプロセス

ステップ	検討結果
1	クリアランスの認可申請にあたっての課題を抽出するとともに、認可申請のためのデータ取得に係わる時間的な制約を考慮し、課題を以下の通り定義した。 「溶融処理対象廃棄物のクリアランス認可申請の準備として、核種の選定を目的とする」
2	インベントリ推算の妥当性を確認するために分析が必要であることから、ゴールを以下の通り特定した。 「既存のインベントリ推算結果を分析対象核種の選定に用いることの妥当性を評価するための分析を計画する。分析対象核種の選定に既存のインベントリ推算結果が適応し得ない場合は、代替の選定の考え方を検討する」
3	インベントリ推算結果を分析対象核種の選定に用いることの妥当性を示すため、分析の計画の検討に必要な情報として、以下を挙げた。 ✓対象とする廃棄物と核種、既存分析データ(値) ✓インベントリ推算結果 ✓対象廃棄物の物量 ✓汚染履歴、タンクの仕様 ✓ブラスト除染の作業報告 ✓線量率の測定結果 ✓クリアランス認可申請における評価対象核種の考え方 ✓分析手法の確立の有無、検出下限値 ✓類似の金属廃棄物のクリアランス認可情報

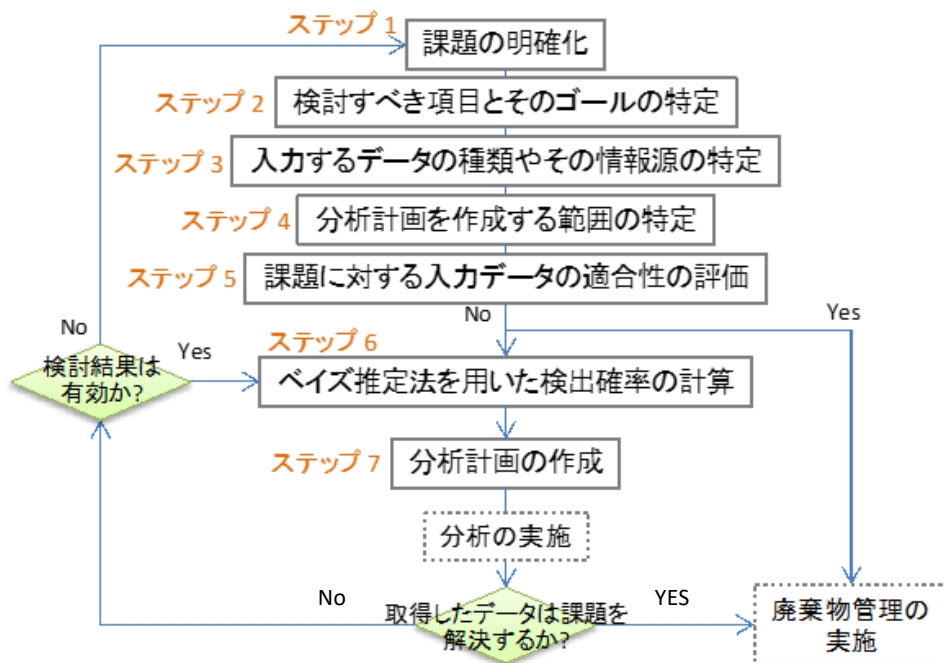
3.1.4.8 分析及び核種移行率確認に向けた戦略の検討

- DQOプロセスを用いた金属廃棄物の分析点数の算出



(続き)

ステップ	検討結果
4	母集団及び汚染由来の明確さの観点から、分析計画を作成する優先順位をフォールアウト、RO濃縮水の順番とすることが合理的との判断により、作成する範囲を以下の通り特定した。 「特定すべき範囲は廃車両 約1,000台(約2.7万m ³)、評価対象核種はフォールアウト由来の核種とする」
5	ステップ4で得られた情報がこれまでの議論に適しているか、課題の解決に繋がるか、ベイズ推定計算を行った上で議論することとした。
6	ベイズ推定計算の結果、30台分の廃車両に対して線量率を測定すればほぼ母集団の線量率の平均値を知ることができると評価された。
7	ステップ6の結果を踏まえ、分析点数、分析すべき核種、サンプリング方法など明確にした分析計画(案)を作成する。



廃棄物を対象としたDQOプロセス

進捗状況と今後の課題

■ 金属廃棄物のインベントリ推算に関わる検討

- 2021年度まで開発してきた解析的インベントリの汚染推算モデル※1を参照して、クリアランス化を目指す溶融金属を対象に、対象廃棄物の汚染推算モデルを構築した。
- 処理実績、線量率データ、分析データなどの1Fにおける金属廃棄物に係る情報を参考として、想定される溶融前金属の汚染パターンごとの核種組成比をその不確実性ととも試算した。
- 今後は、ソースターム情報の更新、適正化、実廃棄物等の分析データをより明示的に組み込んだインベントリ推算方法の構築が課題である。

■ 溶融処理時の核種移行挙動の調査

- 既存溶融炉(国内外/他産業)における元素の移行挙動(影響する因子条件含む)及びクリアランスに関する情報を調査・整理した。
- 溶融時における対象元素ごとの各層への核種移行率を不確実性及び論拠とともに整理した。データが存在しない元素は、化学・物理的類似性などを考慮し設定した。
- 溶融試験データの拡充と各因子の影響評価、溶融試験により得た核種移行率と、実機における核種移行率の等価性評価が課題である。

■ 溶融試験による核種移行挙動の検討

- 複数の溶融炉を模擬した装置を用いて、複数の代表的な金属スラグの組み合わせ条件下での溶融試験を実施し、代表的な元素の移行挙動に係るデータを試験条件と、元素の分布状況と合わせて取得・整理した。
- 核種移行率設定の際の元素グルーピングの適正化と、核種移行率設定への溶融試験、熱平衡計算結果の反映が課題である。

■ 溶融後金属再利用における評価対象核種候補の抽出と戦略立案

- 溶融除染後金属の核種組成比を推定し、クリアランス検認における評価対象核種候補を抽出した。併せて、不確実性等の観点から優先的に対策すべき核種に対する対応戦略を検討した。

目標達成を判断する指標に対する達成状況

- 金属廃棄物インベントリ推算手法の構築と、分析方法、核種移行率等の観点からクリアランス検認における重要及び優先的に対応すべき核種候補を提示した。

※1 令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)

参 考 資 料

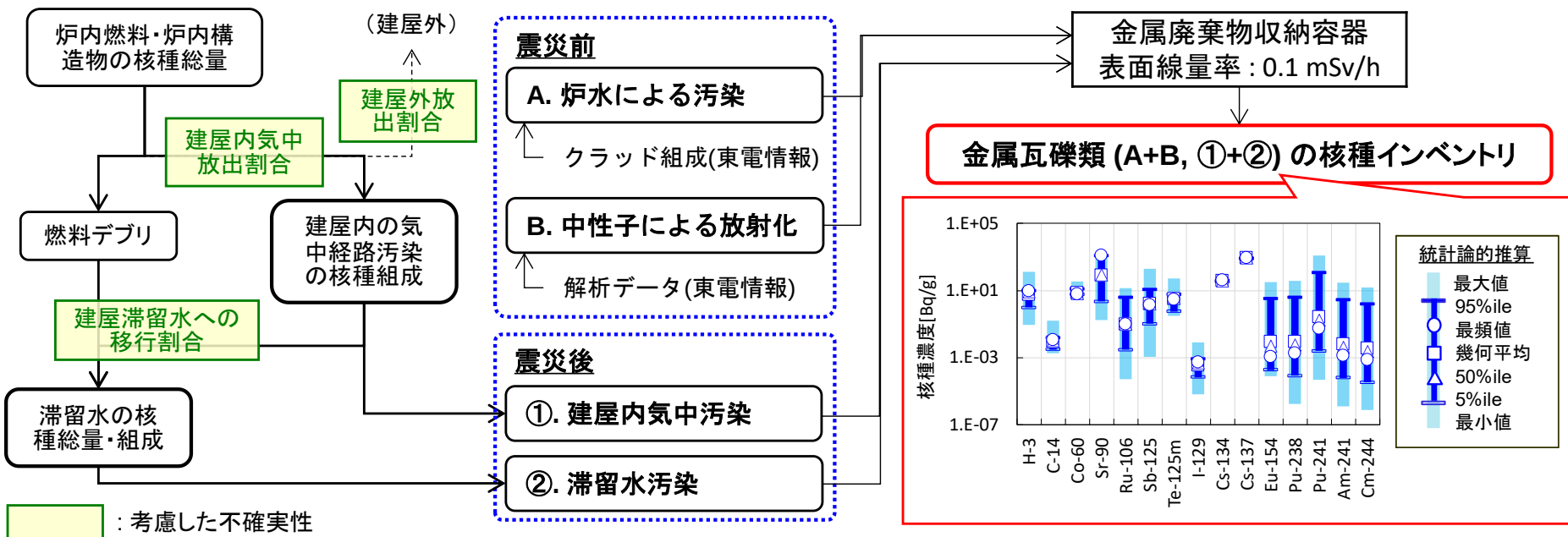
■ インベントリ推算対象核種

- ✓ インベントリ推算対象とする核種として、クリアランス規則※¹に規定されている274核種のうち半減期が30日を超える120核種と、補助事業の埋設処分を想定した廃棄物インベントリ推算研究※²で対象としている134核種の和集合である181核種を選定

インベントリ推算対象とする核種

クリアランス($T_{1/2} > 30$ 日)核種※ ³ とインベントリ推算核種※ ⁴ のいずれにも対象である核種:81核種	クリアランス($T_{1/2} > 30$ 日)核種※ ³ のみが対象である核種:47核種	インベントリ推算核種※ ⁴ のみが対象である核種:53核種
H-3, Be-7, C-14, Na-22, Cl-36, Ca-41, Mn-54, Fe-55, Fe-59, Co-58, Co-60, Ni-59, Ni-63, Sr-89, Sr-90, Zr-93, Nb-93m, Nb-94, Nb-95, Mo-93, Mo-99, Tc-97, Tc-99, Tc-99m, Ru-103, Ru-106, Ag-108m, Ag-110m, Sb-125, Te-125m, Te-129m, Te-132, I-129, I-131, Cs-134, Cs-135, Cs-136, Cs-137, Ba-133, Ba-140, La-140, Ce-139, Ce-141, Ce-144, Pm-147, Sm-151, Eu-152, Eu-154, Eu-155, Tm-171, Tl-204, Th-229, Pa-233, U-232, U-233, U-234, U-235, U-236, U-238, Np-237, Pu-236, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Pu-242, Pu-244, Am-241, Am-242m, Am-243, Cm-242, Cm-243, Cm-244, Cm-245, Cm-246, Cm-247, Cm-248, Cf-249, Cf-250, Cf-251, Cf-252	S-35, Ca-45, Sc-46, Ti-44, V-49, Mn-53, Co-56, Co-57, Zn-65, Ge-68, As-73, Se-75, Sr-85, Y-91, Zr-95, Tc-97m, Ag-105, Cd-109, Cd-115m, In-114m, Sn-113, Sn-119m, Sn-123, Sb-124, Te-123m, Te-127m, I-125, Pm-148m, Gd-153, Tb-160, Tm-170, Yb-169, Hf-181, Ta-182, W-181, W-185, W-188, Os-185, Ir-192, Au-195, Hg-203, Bi-207, Pu-237, Bk-249, Cf-248, Cf-254, Es-254	Be-10, Si-32, K-40, Se-79, Rb-87, Nb-91, Nb-92, Tc-98, Rh-101, Rh-102, Rh-102m, Pd-107, Cd-113, Cd-113m, In-115, Sn-121m, Sn-126, Te-123, La-137, La-138, Nd-144, Pm-145, Pm-146, Sm-146, Sm-147, Sm-148, Eu-150, Gd-152, Tb-157, Ho-163, Ho-166m, Lu-176, Hf-182, Ta-180m, Re-187, Os-194, Ir-192m, Pt-190, Pt-193, Pb-205, Pb-210, Bi-208, Bi-210m, Po-210, Ra-226, Ra-228, Ac-227, Th-228, Th-230, Th-232, Pa-231, Np-236, Cm-250

※¹ 工場等において用いた資材その他の物に含まれる放射性物質の放射能濃度が放射線による障害の防止のための措置を必要としないものであることの確認等に関する規則(令和二年原子力規制委員会規則第十六号, 2020年8月13日公布・施行)
 ※² 令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分にに関する研究開発)
 ※³ クリアランス規則※¹に規定されている274核種のうち半減期が30日を超える核種
 ※⁴ 補助事業の埋設処分を想定した廃棄物インベントリ推算研究※²で対象としている核種



汚染推算モデル及び算出結果の一例（金属瓦礫類）

【参考】「3.1.2.2 国内外の文献調査」の補足

・ 国内の文献調査

■ 国内文献調査により集積したデータ

核種	分析に使用した文献数※1			分析可能なデータ点数※2			試験条件							
	熔融温度	塩基度	炉内雰囲気	熔融温度	塩基度	炉内雰囲気	炉型 熔融方式	供試材の種類	熔融温度(℃)	処理量 (kg)	処理時間 (min)	炉内雰囲気	塩基度	模擬核種 化学形態
Cs	4	4	2	9	4	4	プラズマ熔融炉 高周波誘導炉	・ 鉄, フライアッシュ (一部条件で木片) ・ 炭素鋼, ステンレス ・ フェライト系ステンレス	1,527～1,640	約10	75～130	酸化雰囲気(空気) 不活性雰囲気(窒素, Ar) 還元雰囲気(CO/空気)	0.3～3.0	CsNO ₃ 以外の化学形態は記載なし
Mn	2	2	-	4	3	-	高周波誘導炉	・ 炭素鋼, ステンレス ・ フェライト系ステンレス	1,620～1,640	(記載なし)	120	(記載なし)	0.3～3.0	(記載なし)
Co	4	4	-	9	4	-	プラズマ熔融炉 高周波誘導炉	・ 鉄, フライアッシュ ・ 炭素鋼, ステンレス ・ フェライト系ステンレス	1,527～1,640	約10	70～130	酸化雰囲気(空気) 不活性雰囲気(窒素, Ar) 還元雰囲気(CO/空気)	0.3～3.0	(記載なし)
Ni	2	3	3	5	2	4	プラズマ熔融炉	・ 鉄, フライアッシュ (一部条件で木片) ・ 炭素鋼, ステンレス ・ フェライト系ステンレス	1,527～1,640	約10	75～130	酸化雰囲気(空気) 不活性雰囲気(窒素, Ar) 還元雰囲気(CO/空気)	0.3～0.6	(記載なし)
Sr	3	2	-	8	4	-	プラズマ熔融炉 高周波誘導炉	・ 鉄, フライアッシュ ・ フェライト系ステンレス	1,527～1,640	約10	70～130	酸化雰囲気(空気) 不活性雰囲気(窒素, Ar) 還元雰囲気(CO/空気)	0.3～3.0	(記載なし)
U	1	1	-	3	7	-	高周波誘導炉	・ 金属, スラグ剤	1,500～1,600	約1	630～650	不活性雰囲気(Ar)	0.5～2.3	U ₃ O ₈ UO ₂ (NO ₃) ₂
Nb	2	3	3	5	2	4	プラズマ熔融炉	・ 鉄, フライアッシュ (一部条件で木片) ・ 炭素鋼, ステンレス	1,527～1,640	約10	70～130	酸化雰囲気(空気) 不活性雰囲気(窒素, Ar) 還元雰囲気(CO/空気)	0.3～0.6	Nb(酸化物)以外の化学形態は記載なし
Ce	2	3	3	5	2	2	プラズマ熔融炉	・ 鉄, フライアッシュ (一部条件で木片) ・ 炭素鋼, ステンレス	1,527～1,640	約10	70～130	酸化雰囲気(空気) 不活性雰囲気(窒素, Ar) 還元雰囲気(CO/空気)	0.3～0.6	(記載なし)

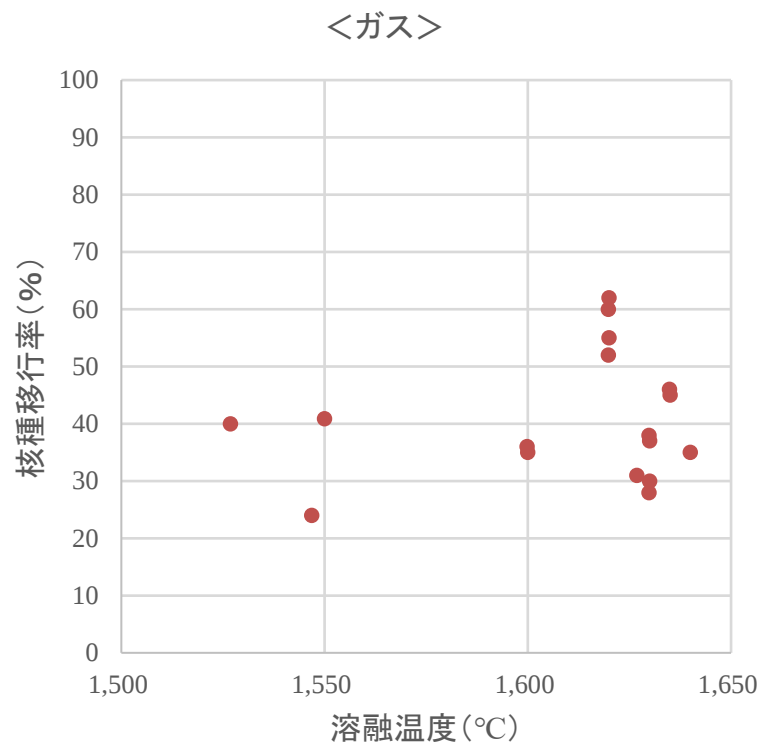
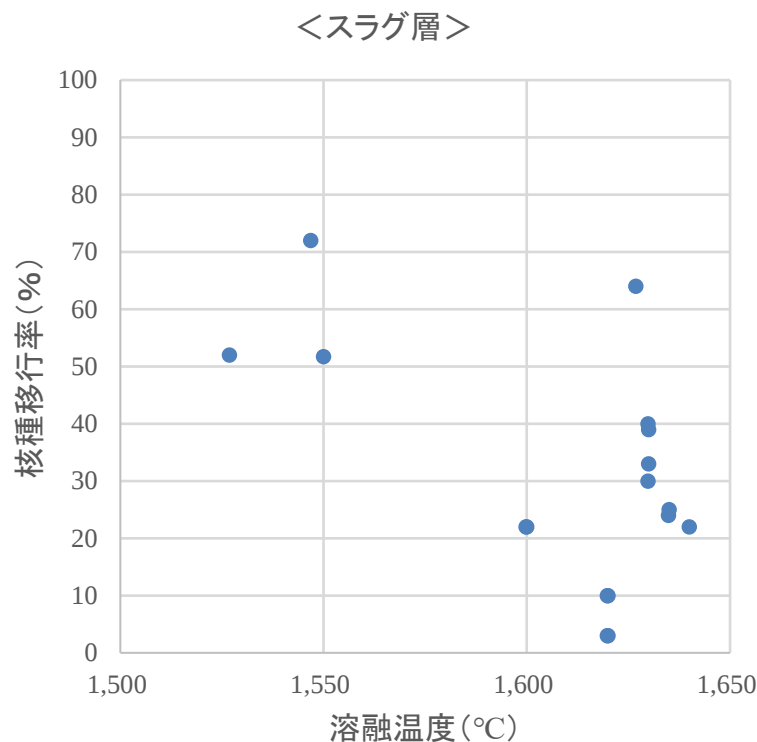
※1 調査対象とした文献のうち、熔融温度、塩基度及び炉内雰囲気に関するデータが掲載されていた文献数

※2 分析に使用した文献のうち、熔融温度、塩基度及び炉内雰囲気に関して使用したデータ数

・ 国内の文献調査

■ 試験条件ごとの核種移行率に係る傾向分析

- ✓ 国内文献調査により集積したデータを用いて、各種運転条件と核種ごとの核種移行率の関係性について整理した
- ✓ 一例として、溶融温度、塩基度、炉内雰囲気に対するCsの核種移行率との関係を43頁～45頁に示す
- ✓ 溶融温度に対するCsの核種移行率との関係性
 - 溶融温度によるCsの核種移行率には幅が見られた1,500～1,650℃の範囲において、Csのスラグ層への核種移行率は3～72%、ガスへの核種移行率は24～62%であった

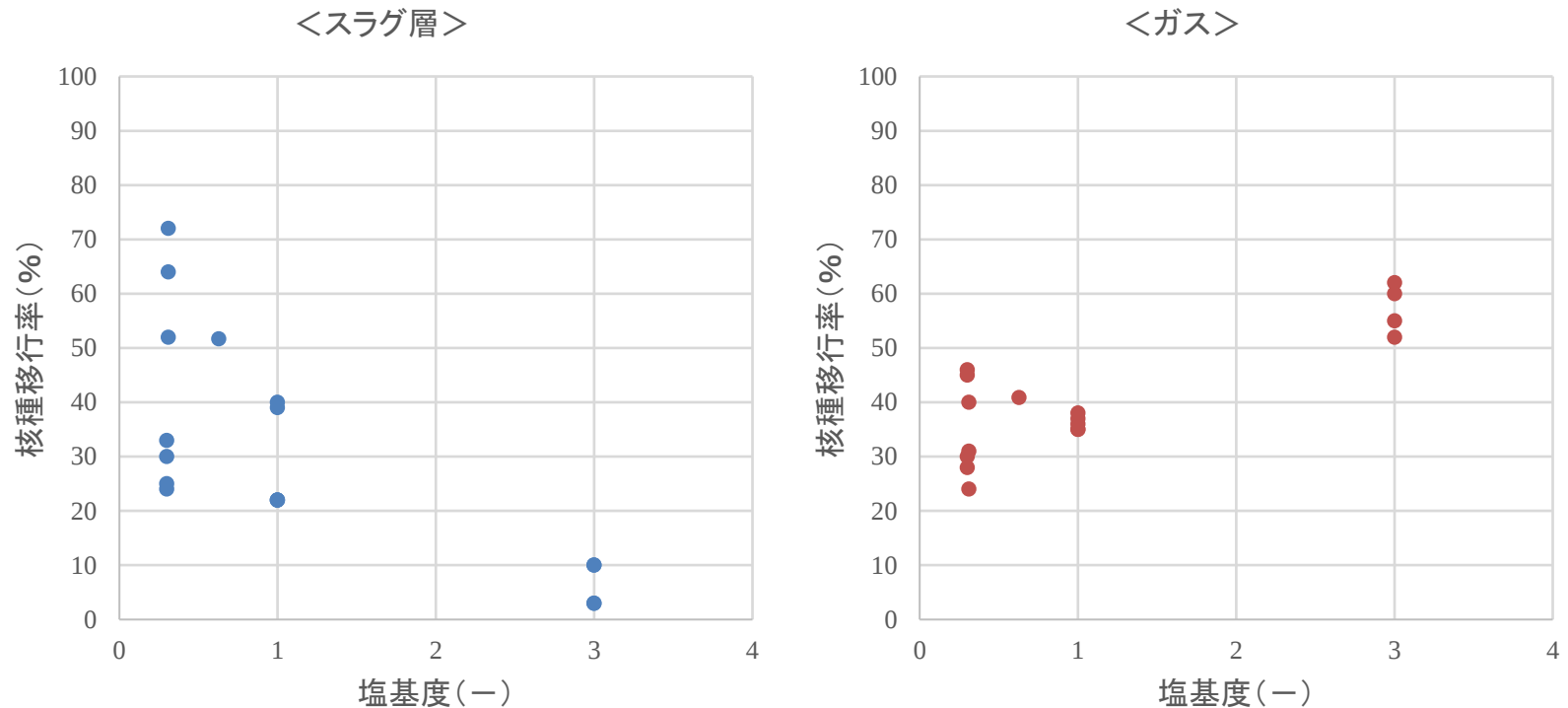


溶融温度に対するCsの核種移行率との関係性

【参考】「3.1.2.2 国内外の文献調査」の補足

・ 国内の文献調査

- ✓ 塩基度に対するCsの核種移行率との関係性
 - 塩基度が高くなると、Csが揮発し、ガスへ移行する割合が高い



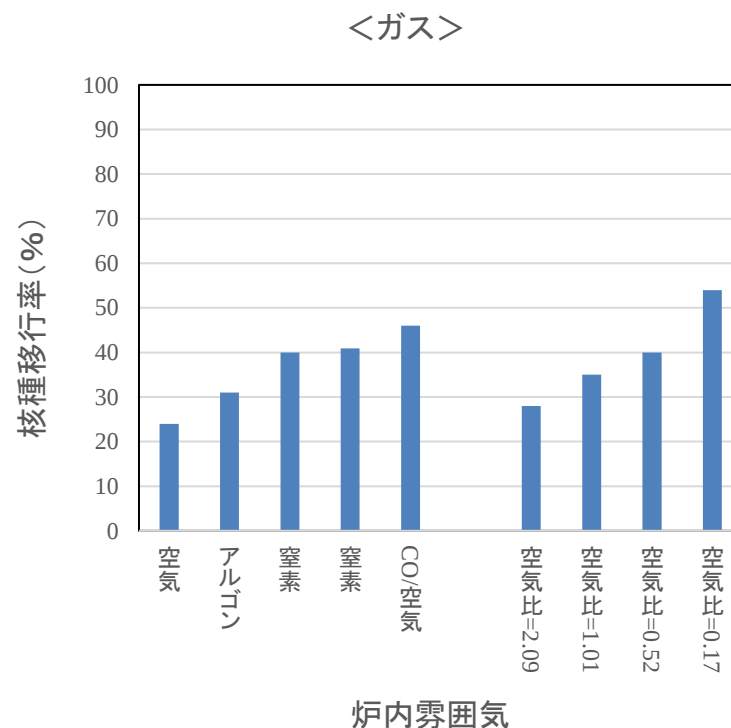
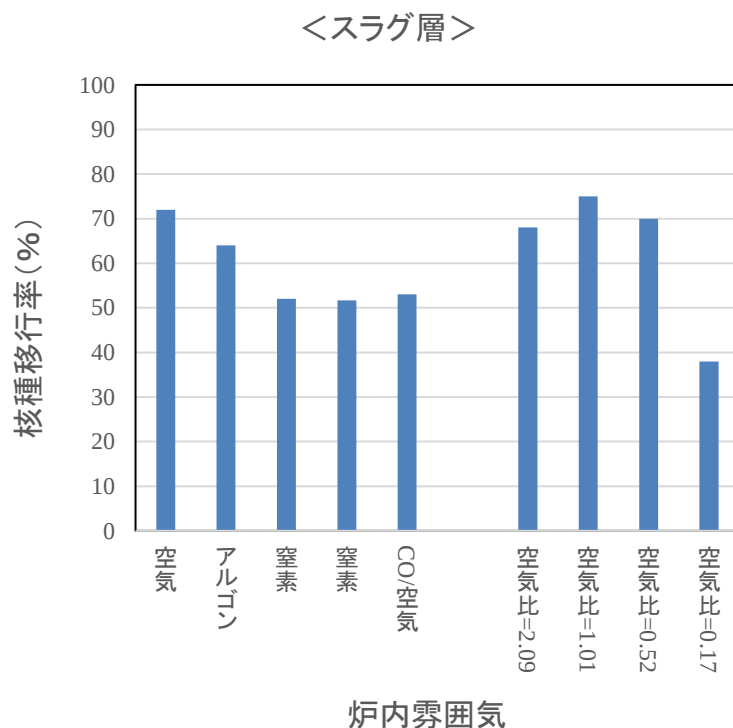
塩基度に対するCsの核種移行率との関係性

【参考】「3.1.2.2 国内外の文献調査」の補足

・ 国内の文献調査

✓ 炉内雰囲気に対するCsの核種移行率との関係性

- 酸化雰囲気の場合は、Csのスラグ層への核種移行率が高い(約70%)傾向にある
- 空気比※1を低く設定するほど、Csのスラグ層への核種移行率が低下し、ガスへの核種移行率が増加した



炉内雰囲気に対するCsの核種移行率との関係性

※1 理論空気量に対する炉内への注入空気量の比

【参考】「3.1.2.2 国内外の文献調査」の補足

・ 国内の文献調査

■ 国内の文献調査結果のまとめ (1/2)

核種	試験条件	試験条件ごとの核種移行率に係る傾向分析結果	文献に記載された核種移行に関する情報
Cs	<溶融温度> 1,527～1,640℃	● 各層への核種移行率は、他の試験条件の影響を受けた ガス : 3～75% スラグ層 : 24～93% ● メタル層への移行量は確認されていない	● 温度高: スラグ層への核種移行率低、ガスへの核種移行率高 ● 鉄より酸化物の生成自由エネルギーが高い ● 沸点が低い(671℃)
	<塩基度> 0.3～3.0	● 塩基度高: スラグ層への核種移行率低、ガスへの核種移行率高 ● 塩基度低: スラグ層への核種移行率高、ガスへの核種移行率低 ● メタル層への核種移行量は確認されていない	● 塩基度高: スラグ層への核種移行率低、ガスへの移行率高 ● 塩基度低: スラグ層への核種移行率高 ● スラグ層中のSiO₂が少ない場合はケイ酸ネットワークの形成が弱くガスに移行する
	<炉内雰囲気> 酸化雰囲気 不活性雰囲気 還元雰囲気	● 酸化雰囲気: スラグ層への核種移行率高(約70%) ● 還元雰囲気: ガスへの核種移行率高(30～50%) ● メタル層への核種移行量は確認されていない	● 酸化雰囲気: スラグ層への核種移行率高 ● 還元雰囲気: ガスへの核種移行率高、スラグ層への核種移行率低

【参考】「3.1.2.2 国内外の文献調査」の補足

・ 国内の文献調査

■ 国内の文献調査結果のまとめ (2/2)

核種	試験条件	試験条件ごとの核種移行率に係る傾向分析結果	文献に記載された核種移行に関する情報
Mn	＜熔融温度＞ ＜塩基度＞	● 多くがメタル層、一部スラグ層へ移行 メタル層 : 51～91% スラグ層 : 8～37%	● 大部分がメタル層、一部がスラグ層へ移行 酸化還元反応による移行が支配的
Co	＜熔融温度＞ ＜塩基度＞ ＜炉内雰囲気＞	● ほとんど全てメタル層へ移行 メタル層 : 72～100%	● 試験条件(温度、炉内雰囲気、塩基度等)の影響なく、メタル層に残留する ● 沸点が高い(1,495℃) ● 酸化物生成エネルギー高
Ni	＜熔融温度＞ ＜塩基度＞ ＜炉内雰囲気＞	● ほとんど全てメタル層へ移行 メタル層 : 89～103%	● 試験条件(温度、炉内雰囲気、塩基度等)の影響なく、メタル層に残留する ● 沸点が高い(1,453℃) ● 鉄より酸化物生成エネルギー高
Sr	＜熔融温度＞ ＜塩基度＞ ＜炉内雰囲気＞	● ほとんど全てスラグ層へ移行 スラグ層 : 54～95% メタル層への移行量は確認されていない	● 試験条件(温度、炉内雰囲気、塩基度等)の影響なく、スラグ層へ移行する ● SrOの沸点が高い(2,430℃) ● 鉄より酸化物生成エネルギー低
U	＜熔融温度＞ ＜塩基度＞	● ほとんど全てスラグ層へ移行 スラグ層 : 99～100% メタル層への移行量は確認されていない	● 他金属元素に比べ酸化物生成エネルギー低 ● ほとんど全てスラグ層へ移行する
Nb	＜熔融温度＞ ＜塩基度＞ ＜炉内雰囲気＞	● ほとんど全てスラグ層へ移行 スラグ層 : 67～87% メタル層へ移行したデータは検出下限値以下	● 試験条件(温度、炉内雰囲気、塩基度等)の影響なく、スラグ層へ移行する ● 鉄より酸化物生成エネルギー低
Ce	＜熔融温度＞ ＜塩基度＞ ＜炉内雰囲気＞	● ほとんど全てスラグ層へ移行 スラグ層 : 70～88% メタル層へ移行したデータは検出下限値以下	● 鉄より酸化物生成エネルギー低 ● 試験条件(温度、炉内雰囲気、塩基度等)の影響なく、スラグ層へ移行する

【参考】「3.1.2.2 国内外の文献調査」の補足

・ 海外の文献調査

■ 海外の文献調査結果の一例 (1/2)

核種	試験条件	試験結果
Cs	● コアレス誘導炉(るつぼ形誘導炉)の試験設備で、原子力発電所で発生した低レベル 汚染スクラップの約 2,000t を溶融	● Cs-134/137 はスラグ層やバグフィルタには存在したが、金属溶融物中に残留なし
	● 高周波誘導炉でステンレス鋼を溶融時に RI(Mn-54, Co-60, Sr-85, Zn-65, Cs-137) を添加したトレーサ試験を実施	● Cs-137 はメタル層に残留することなく、スラグ層(約 40%)やガス(約 37%)中に移行
	● 米国の試験炉(SPERT III 原子炉)の配管(合計 56,000 ポンド)を 123 回に分けてコアレス誘導炉で溶融	● スラグ層とバグハウスタストでCs-137 を検出
	● 試験室から工業規模に至るまで、汚染された原子炉機器に由来する鉄スクラップを使用して、高周波誘導炉と電気炉で CsCl、CsOH、Cs₂SO₄ を添加した溶融試験を実施	● Cs をCsCl として添加した溶融試験では、スチールの溶融温度以下で揮発する塩化物はスラグ層に回収されず ● CsOH を用いた電気炉の試験では、スラグが十分に酸性でなかったため、セシウムシリケートの形成が進まず、スラグ層に保持された ● Cs₂SO₄ を添加した電気炉の試験では、相当量がスラグ層に取り込まれた
	● 誘導炉とアーク炉において、Cs を塗布した鋼板(250kg)を使用した溶融試験を実施	● 酸性スラグがスラグ中のCs の保持に有利 ● 誘導炉の溶融物からは、低温でもスラグ中のCs の保持に有利 ● Cs はスラグ層とガスの間で分配
	● スウェーデンの Studsvik 社の誘導炉において、原子力発電所などで発生した低レベル 金属(炭素鋼(約 32ton)とステンレス鋼(5,409kg))を溶融	● メタル層とスラグ層には測定可能なレベルのCs-137 は存在せず、換気フィルタに存在 ● ステンレス鋼の溶融では、スラグ層とガスからCs-134 とCs-137 が検出

【参考】「3.1.2.2 国内外の文献調査」の補足

・ 海外の文献調査

■ 海外の文献調査結果の一例 (2/2)

核種	試験条件	試験結果
Sr	● 電気高温炉を使用し、不活性ガス下で 3～5kg のスチールを溶融し、RIトレーサとして Sr-85 を添加した試験を実施	● Sr-85のメタル層への取り込みは非常に低く、約 1/1,000 が測定され、エアロゾルフィルタへの移行も非常に少なかった
	● 高周波誘導炉を使用し、ステンレス鋼を溶融した時に RI (Mn-54、Co-60、Sr-85、Zn-65、Cs-137)を添加したトレーサ試験を実施	● Sr-85はメタル層に残留することなく、スラグ層 (72.7%)のみから検出
Pu	● 酸化プルトニウムと軟鋼を使用した小規模 (10～200g) 試験を電気抵抗炉とアーク炉 で実施	● Puはスラグ層に広範囲に分布され、ほとんどがスラグ中に含まれることが予想できる
Am	● 電気高温炉を使用し、3.1kg のスチールを溶融し、RIトレーサとして Am-241 を添加した試験を実施	● Am-241の分布は、メタル層に 1%、スラグ層に 110%、エアロゾルオフガス フィルタに 0.05%
	● Am の酸化物と軟鋼を使用した小規模 (10～200g) 試験を電気抵抗炉とアーク炉で実施	● Amはスラグ層に広範囲に存在

【参考】「3.1.2.3 核種移行率の仮設定」の補足

・ 核種移行率の仮設定の検討

- 国内外の文献調査結果より、以下の文献が製鋼時及び再利用・再使用時の元素ごとの移行挙動について体系的に整理されていることが分かったため、深掘りした調査を実施
 - ✓ 文部科学省科学技術・学術政策局 放射線安全規制検討会, 放射線障害防止法に規定するクリアランスレベルについて, 平成22年11月(平成24年3月 一部訂正) (以下、「障防法CL報告書」という)
- 「障防法CL報告書」で設定されているメタル層への核種移行率を再整理した結果を下表に示す

「障防法CL報告書」で設定されているメタル層への核種移行率を再整理した結果

元素	メタル層への核種移行率	設定方法	元素	メタル層への核種移行率	設定方法
H	0.0	Chapuisの文献 ^{※1}	Rb	0.001	化学的性質の類似性からCsと同一
Be, Ca, Ba	0.1	化学的性質の類似性からSrと同一	Sr, Tc	0.1	IAEA S.S.No.111-P-1.1
C	1.0	保守的に選定	Y, Cd, Ce, Pm	0.01	NUREG-1640
F, Cl, I	0.0	化学的性質の類似性からHと同一	Ag, Sb	1.0	Chapuisの文献 ^{※1}
Na, P	0.1	NUREG-1640	Te	0.01	※2
S	0.2	NUREG-1640	Cs	0.001	IAEA S.S.No.111-P-1.1
Sc, In, Sn, Gd, Tb, Yb, Ta	1.0	※2	Eu	0.05	IAEA TECDOC807
Ti	0.01	化学的性質の類似性からZrと同一	W	1.0	Radiation protection 117
V	1.0	化学的性質の類似性からNbと同一	Ir	1.0	NUREG-1640
Cr, Re	0.99	NUREG-1640	Au	1.0	化学的性質の類似性からAgと同一
Mn, Fe, Co, Ni, Zn, Nb, Mo	1.0	IAEA S.S.No.111-P-1.1	Hg	0.01	化学的性質の類似性からCdと同一
Ga	1.0	化学的性質の類似性からInと同一	Tl	0.1	Radiation protection 117
Ge	1.0	化学的性質の類似性からSnと同一	Am	0.1	IAEA S.S.No.111-P-1.1
Se	0.8	NUREG-1640	Cm	0.1	Chapuisの文献 ^{※1}

※1 Chapuis, A. M., Guetat, P., Garbay, H., EXEMPTION LIMITS FOR THE RECYCLING OF MATERIALS FROM THE DISMANTLING OF NUCLEAR INSTALLATIONS, 1987 INTERNATIONAL DECOMMISSIONING SYMPOSIUM, pp II-116

※2 文献を元に選定することが不可能であるため、元素の沸点と電気炉での鉄の平均的な溶融温度(1,823～1,923K)との比較及び酸化物の標準生成エネルギーを基に、類似性を判断して選定

【参考】「3.1.3.2 試験条件の設定」の補足

・ 模擬試料(金属・スラグ試料)

■ 金属試料

金属試料	廃棄物の例
炭素鋼(SS400)	フランジタンクの母材
ステンレス鋼(SUS304)	廃車両の排気系部品など

■ 初期スラグ

初期スラグ	供試組成(wt%)				設定根拠
	SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃	MnO	
スラグ①	36	48	16	-	製鋼スラグの文献値の組成範囲(塩基度及びAl ₂ O ₃ 濃度)で融点が最小の組成を設定
スラグ②※	16	31	46	7	東京電力HD提供試料の分析結果に基づき設定 ※ 熔融時のMgOるつぼの溶け出し、酸化鉄の生成を考慮し、MgO及び酸化鉄を除いた組成として供試(元の組成:SiO ₂ :CaO:Al ₂ O ₃ :MgO:MnO:Fe ₂ O ₃ =13:26:40:4:6:11 wt%)

■ 金属試料:初期スラグ重量比

投入ケース	金属		初期スラグ		評価因子	設定根拠
	SS400	SUS304	スラグ①	スラグ②		
基本ケース	10		1		-	東京電力HD想定 of 運転条件
変動ケース①		10	1		金属種類による依存性	-
変動ケース②	10			1	初期スラグ組成による依存性	
変動ケース③	10		0.5		金属試料:初期スラグ重量比による依存性	

【参考】「3.1.3.2 試験条件の設定」の補足

・ 模擬核種・運転条件

■ 模擬核種

対象評価核種※1	化学形態※2, ※3	添加割合(金属試料重量に対する元素換算濃度) (wt%)※4	炭素鋼中濃度 (wt%)	模擬核種の形態	設定根拠
Co	Co	0.025	7.9E-03	粉末 金属試料中に含有	※1 過去の補助事業※5における推算値、原子力安全・保安院クリアランス内規※6に記載のある核種等を踏まえ設定 ※2 化学形態不明のため、原則として金属に移行し易い金属形態を選択 ※3 CsOHは、シビアアクシデント時の揮発Csの化学形態の一つ ※4 添加量は化学分析の定量下限値を考慮し、決定 ※5 令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金（固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発） ※6 放射能濃度の測定及び評価の方法の認可について(内規)(平成17・11・30 原院第6号 平成18年1月30日)
Sr	SrCO ₃	0.125	N.D. (5.9E-07)	粉末	
Sb	Sb	0.025	2.3E-03	粉末 金属試料中に含有	
Cs	CsOH・H ₂ O*3	0.125	N.D. (5.7E-06)	粉末	
Eu	Eu ₂ O ₃	0.025	N.D. (6.8E-07)	粉末	
Mn	Mn	未添加	0.57	金属試料中に含有	
C	C	未添加	0.14	金属試料中に含有	

■ 運転条件

運転条件	試験炉					設定根拠
	中型アーク炉	中型プラズマ炉	小型プラズマ炉	外部加熱炉	誘導加熱炉	
溶融時間	0～20分	0～20分	7～18分	1h、2h、4h	1h	移行挙動の経時変化を観測
溶融温度	※1	※1	※1	1500℃、1550℃、1600℃	1500℃	温度制御可能な外部加熱炉・誘導加熱炉にて実施 ※1 アーク炉、プラズマ炉では温度制御不可
雰囲気	低酸素濃度※2 (数%未満)	低酸素濃度※2 (数%未満)	乾燥空気	大気	Ar	※2 酸素濃度値は生成されるスラグ層中の酸化鉄の濃度が約10 wt%となる酸素濃度を設定

【参考】「3.1.3.2 試験条件の設定」の補足

・ 小型プラズマ炉

■ 溶融時間、核種の設置位置、模擬核種の化学形態、炉内雰囲気酸素濃度を変えた試験を実施

✓ タングステン電極を使用

No	金属 試料	初期スラグ	初期スラグ重量比(g)	模擬核種 添加方法	溶融時間	炉内雰囲気 酸素濃度
2216w 2214w 2220w 2213w 2217w	SS400	スラグ①	基本ケース 200:20	スラグ上: Co、Sb、CsOH・H ₂ O、SrCO ₃ 、Eu	100A×5分 +250A×7、10、12、 15、18分 ※1	乾燥空気
2218w				金属試料内: Co、Sb、CsOH・H ₂ O、SrCO ₃ 、Eu	100A×5分 +250A×15分	乾燥空気
2225w				スラグ上: Co ₃ O ₄ 、Sb ₂ O ₃ 、CsOH・H ₂ O、SrCO ₃ 、Eu ₂ O ₃	100A×5分 +250A×15分	乾燥空気
2228w				スラグ上: Co、Sb、CsOH・H ₂ O、SrCO ₃ 、Eu ₂ O ₃	100A×5分 +250A×15分	低酸素酸化雰 囲気 (O ₂ 0.5vol%)

※1 7～12分: 試料の溶け残りあり
15分: 試料の完全溶解を確認
18分: 完全溶解後も引き続き加熱

【参考】「3.1.3.2 試験条件の設定」の補足

・ 中型アーク炉

■ 金属試料及び初期スラグ試料の種類、これらの重量比を変えた試験、溶融時間を変えた試験を実施

✓ 黒鉛電極を使用

No	初期スラグ重量比	金属試料	初期スラグ	溶融後 メタル層：スラグ層 の重量比(kg)	加熱シーケンス (分) ^{※1}	溶融時間 (分)	雰囲気 (vol%) ^{※2}
2707C	基本ケース	SS400	スラグ①	9.5:2 ^{※4}	26	溶融完了時まで	2.9
2703C	基本ケース	SS400	スラグ①	10:0.4 ^{※3}	26	溶融完了時まで	0.3
2709C	変動ケース①	SUS304	スラグ①	10:1	32	溶融完了時まで	1.8
2705C	変動ケース②	SS400	スラグ②	10.1:1.5 ^{※4}	26	溶融完了時まで	2.5
2706C	基本ケース	SS400	スラグ①	9.9:1.0 ^{※3}	27	溶融完了時まで	2.0
2708C	基本ケース	SS400	スラグ①	10:1.5 ^{※4}	22	溶融完了後 14分温度保持	2.0

※1 200A×10分+300A×30分後、500Aを維持した時間

※2 オフガス酸素濃度平均値：溶融試料への影響が顕著となるアーク電流500Aの時のオフガスの酸素濃度平均値。雰囲気の酸素濃度とほぼ同じと推定される。O₂以外は、N₂とプラズマガスのAr

※3 出湯後鋳型内で溶湯が突沸し、スラグ層の重量評価できず

※4 出湯後鋳型内で溶湯が突沸し、スラグ層の重量評価できないケースがあったため、るつぼ内で固化することとした。一方で、るつぼ表面付着分の重量が評価できないため、総重量評価は低精度

【参考】「3.1.3.2 試験条件の設定」の補足

・ 中型プラズマ炉

■ 初期スラグ試料の種類、金属試料と初期スラグ試料の重量比を変えた試験を実施

✓ タングステン電極を使用

No	初期スラグ重量比	金属試料	初期スラグ	溶融後 メタル層：スラグ層 の重量比(kg)	加熱シーケンス (分) ^{※1}	溶融時間 (分)	雰囲気 (vol%) ^{※2}
2603W	基本ケース	SS400	スラグ①	9.8:0.7	23	溶融完了時まで	0.5
2602W	変動ケース②	SS400	スラグ②	9.0:0.9	26	溶融完了時まで	0.7
2702W	変動ケース②	SS400	スラグ②	10.:0.6	17	溶融完了時まで	1
2701W	基本ケース	SS400	スラグ①	9.9:不明 ^{※3} (金属試料:初期ス ラグ比 10.5:0.5)	10	溶融完了時まで	0.6

※1 200A×10分+300A×30分後、500Aを維持した時間

※2 オフガス酸素濃度平均値:溶融試料への影響が顕著となるアーク電流500Aの時のオフガスの酸素濃度平均値。雰囲気酸素濃度とほぼ同じと推定される。O₂以外はN₂とプラズマガスのAr

※3 出湯後鋳型内で溶湯が突沸し、スラグ層の重量評価できず

【参考】「3.1.3.2 試験条件の設定」の補足

・ 外部加熱炉

■ 金属試料の種類、溶融温度、溶融時間を変えた試験を実施

✓ ガスへの核種移行率についても本試験にて取得

No	溶融試料				模擬核種		運転条件				
	初期スラグ重量比	金属試料	初期スラグ	金属試料 / 初期スラグ重量比 (g)	添加量 (g)		添加方法	溶融温度(℃)	昇温速度	溶融時間 (時間)	雰囲気
RUN1	変動ケース①	SUS304	スラグ①	71.4517 / 7.1345	CsOH H ₂ O: 0.129 Co : 0.0256 Eu : 0.0255	SrCO ₃ : 0.1516 Sb : 0.0376	スラグ下	1,500	室温から1,500℃まで2.5時間	1	空気(揮発成分分析のため、るつぼ内雰囲気をポンプで吸引(0.3L/min))
RUN2				71.4637 / 7.1028	CsOH H ₂ O: 0.167 Co : 0.0275 Eu : 0.0240	SrCO ₃ : 0.1530 Sb : 0.0301				2	
RUN3				71.4434 / 7.0953	CsOH H ₂ O: 0.158 Co : 0.0279 Eu : 0.0286	SrCO ₃ : 0.1524 Sb : 0.0297				4	
RUN4				71.4554 / 7.1038	CsOH H ₂ O: 0.149 Co : 0.0252 Eu : 0.0252	SrCO ₃ : 0.1565 Sb : 0.0262		1,600	室温から1,600℃まで2.5時間	1	
RUN5				71.6277 / 7.1223	CsOH H ₂ O: 0.175 Co : 0.0286 Eu : 0.0258	SrCO ₃ : 0.1632 Sb : 0.0274		1,550	室温から1,550℃まで2.5時間		
RUN6				67.7892 / 6.7479	CsOH H ₂ O: 0.161 Co : 0.0277 Eu : 0.0305	SrCO ₃ : 0.1656 Sb : 0.0275		1,500	室温から1,500℃まで2.5時間		
RUN7	基本ケース	SS400	スラグ①	70.3824 / 7.0272	CsOH H ₂ O: 0.164 Co : 0.0243 Eu : 0.0206	SrCO ₃ : 0.1631 Sb : 0.0241	1,600	室温から1,600℃まで2.5時間	1		
RUN8				70.3742 / 7.0692	CsOH H ₂ O: 0.164 Co : 0.0264 Eu : 0.0195	SrCO ₃ : 0.1640 Sb : 0.0256			2		
RUN9				70.5898 / 7.0312	CsOH H ₂ O: 0.162 Co : 0.0264 Eu : 0.0261	SrCO ₃ : 0.1695 Sb : 0.0263			0.5		
RUN10	変動ケース①	SUS304		70.7298 / 7.1063	CsOH H ₂ O: 0.167 Co : 0.0275 Eu : 0.0245	SrCO ₃ : 0.1647 Sb : 0.0252			2		

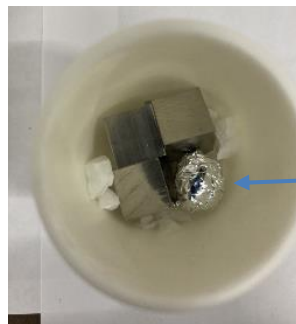
【参考】「3.1.3.2 試験条件の設定」の補足

・ 誘導加熱炉

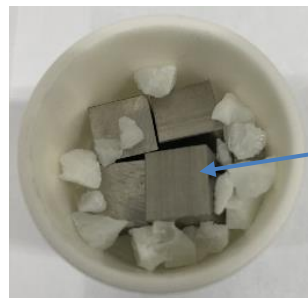
■ 異なる溶融雰囲気下での核種移行率の違いを評価

（他の試験炉と溶融雰囲気が異なり、不活性ガスのArであるため、得られた核種移行率は参考として扱う）

No	初期スラグ重量比	金属試料	初期スラグ	溶融後 メタル層:スラグ層の重量比(g)	加熱 シーケンス	雰囲気
IH2303	変動ケース①	SUS304	スラグ①	69.7:7.5 (金属試料:初期スラグ比 70:7)	10°C/分昇温 1,500°C×1 h保持	Ar



Al箔内包
模擬核種



更に金属試料を
積み上げ、
初期スラグを装荷

スラグの漏れ
防止用のるつぼ
(大、小 1個ずつ)
黒鉛るつぼ
及び間隙剤



黒鉛るつぼ内の設置状況

【参考】「3.1.3.2 試験条件の設定」の補足

・ 初期スラグ組成の設定

■ スラグ①

- ✓ 鉄鋼スラグの主要成分であるSiO₂, CaO, Al₂O₃ について、鉄鋼スラグの文献を参考に、スラグ②の塩基度が大きく異なり、融点が最小の組成とする

(1) 右下表の製鋼スラグ3種(A, B, C)とスラグ②の組成を基に検討する

(2) 製鋼スラグA～Cとスラグ②の塩基度(B2)※3範囲：1.32～1.94

(3) 製鋼スラグA～Cとスラグ②のAl₂O₃範囲：16～50wt%

(4) 上記の範囲内で、スラグ②と顕著に組成が異なり、また、融点が低い組成とする ⇒ B2=CaO/SiO₂(wt%)=1.32, Al₂O₃=16wt%

(5) MgO, MnOは除外する

(6) Al₂O₃=16wt%よりCaO+SiO₂=84wt%となる。CaO/SiO₂=1.32より、スラグ①の組成はSiO₂:CaO:Al₂O₃=36:48:16(wt%)となる

■ スラグ②

- ✓ スクラップ溶解を行っている実アーク炉から採取した東京電力HDの提供試料の組成分析結果に基づき設定する

SiO₂:CaO:Al₂O₃:Mn = 16:31:46:7(wt%)

■ 塩基度

- ✓ 初期スラグの組成の代表的指標である2種類の塩基度(B2, Ki')の値は、以下の通り

塩基度	B2	Ki'
スラグ①	1.32	0.77
スラグ②	1.94	0.37

	A		B		C		スラグ②	
	鉄鋼スラグ協会HP	3成分で規格化した値	リサイクルスラグ Web情報	3成分で規格化した値	論文	3成分で規格化した値	スラグ②	3成分で規格化した値
	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%
SiO ₂	12.10	29.02	13.30	28.60	18.00	32.14	12.13	17.01
CaO	22.80	54.68	17.50	37.63	26.00	46.43	23.52	32.98
Al ₂ O ₃	6.80	16.31	15.70	33.76	12.00	21.43	35.67	50.02
(T-Fe)※1	29.50		16.60		21.00		7.05	
MgO	4.30		3.80		5.00		4.03	
S	0.20				0.00		0.19	
MnO	7.90		7.60		8.00		5.41	
P ₂ O ₅	0.30						0.02	
Sr							0.05	
(Fe ₂ O ₃)※2	42.18		23.73		30.02		10.08	
合計(Fe ₂ O ₃ 含む)	96.58		81.63		99.02		91.10	
B2	1.88	1.88	1.32	1.32	1.44	1.44	1.94	1.94

※1 総Fe濃度

※2 T-FeからFe₂O₃の化学形態を仮定し、Fe₂O₃としての酸化物濃度に換算

A : <https://www.slg.jp/slag/character.html>, 永井, 産業公害, Vol.29, No.2, Page.181～187 (1993)

B : <https://www.takunansteel.co.jp/wp/wp-content/themes/takunan/pdf/slug.pdf>

C : 藤原他, ふえらむ, Vol.8, No.12, Page.883-889 (2003.12.01)

※3 塩基度の定義

$$B2 = CaO / SiO_2 \text{ (wt\%)}$$

$$Ki' = \frac{(X_{CaO} + \frac{i_{MgO}}{i_{CaO}} X_{MgO} + \frac{i_{FeO}}{i_{CaO}} X_{FeO})}{(X_{SiO_2} + 2 \cdot \frac{i_{SiO_2}}{i_{Al_2O_3}} X_{Al_2O_3} + 2 \cdot \frac{i_{SiO_2}}{i_{Fe_2O_3}} X_{Fe_2O_3})}$$

$$= (X_{CaO} + \frac{75}{78} X_{MgO} + \frac{65}{78} X_{FeO}) / (X_{SiO_2} + 2 \cdot \frac{51}{63} X_{Al_2O_3} + 2 \cdot \frac{51}{57} X_{Fe_2O_3})$$

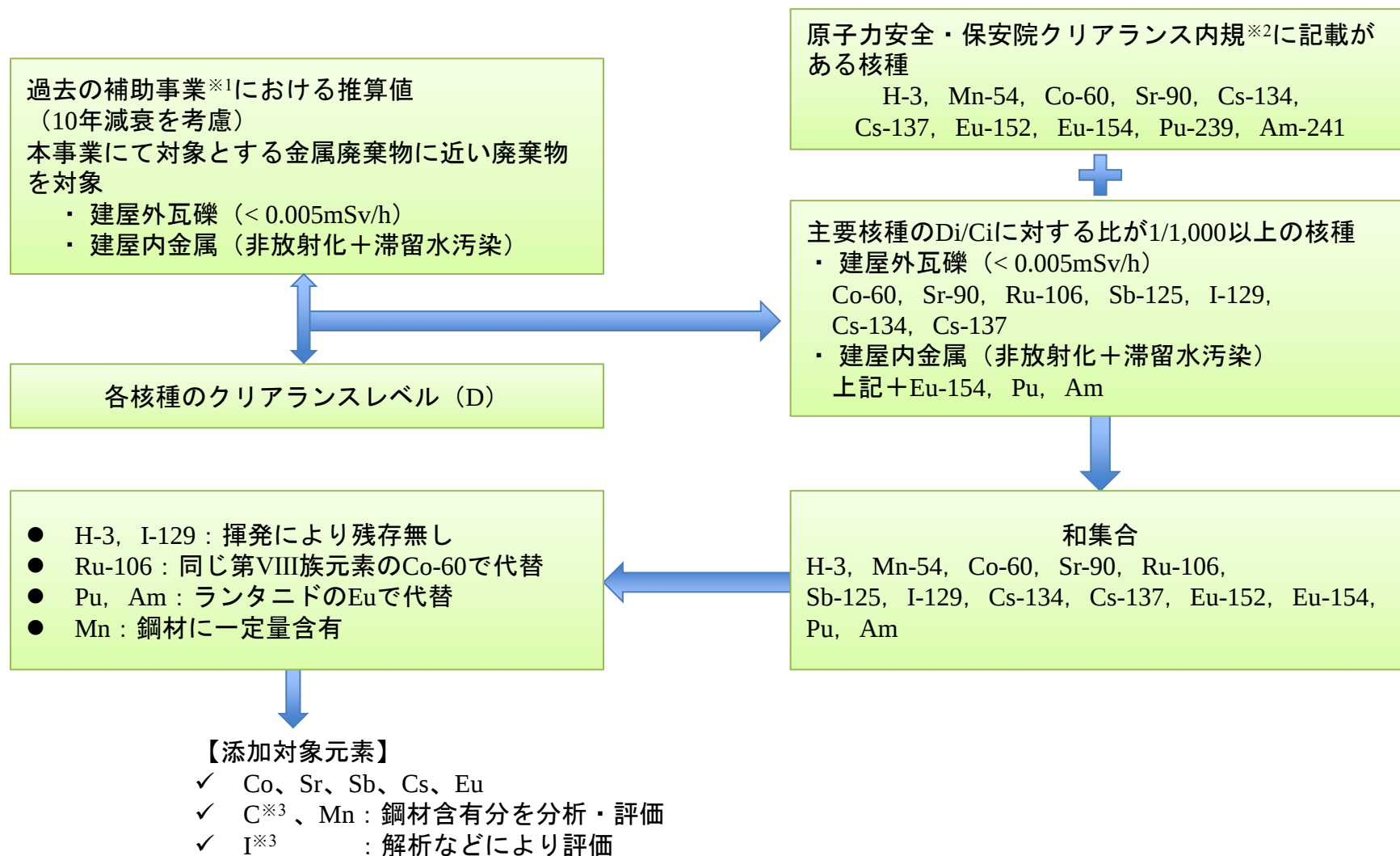
X : モル分率

i : イオン度

iMnO=iCaOと仮定

【参考】「3.1.3.2 試験条件の設定」の補足

・ 模擬核種の選定根拠



※1 令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金（固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発）

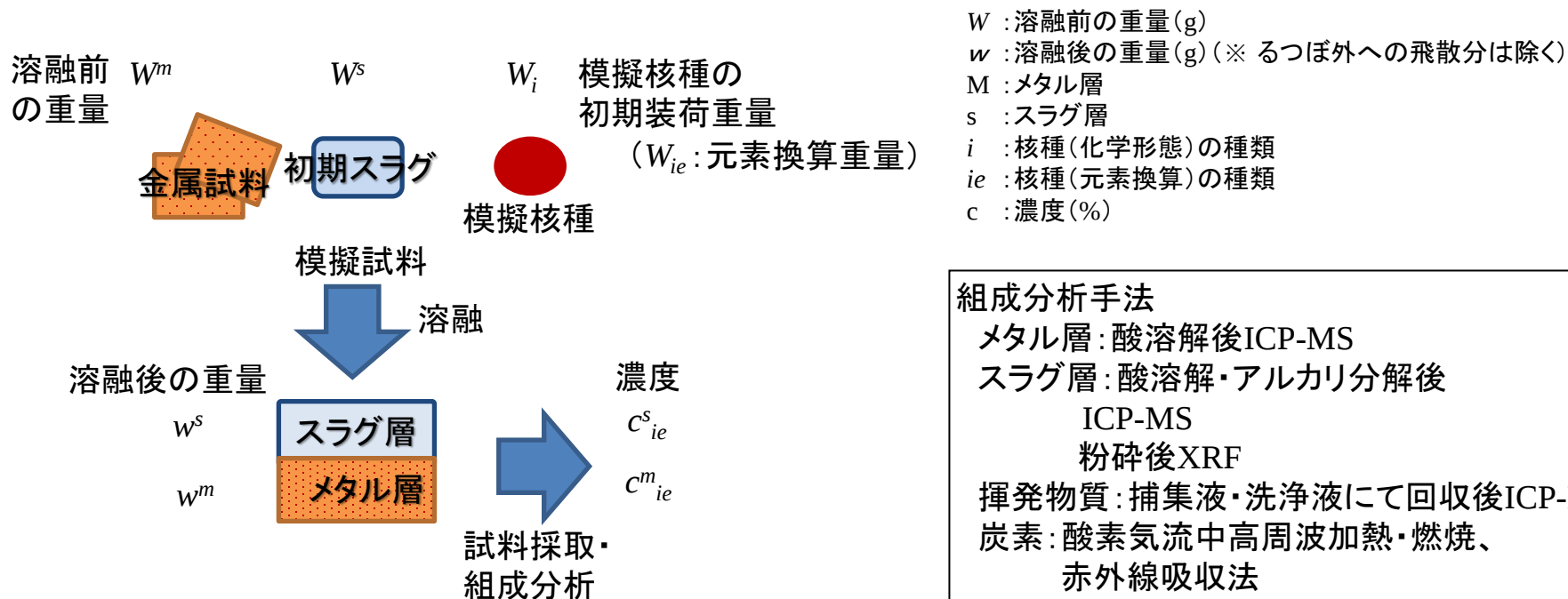
※2 放射能濃度の測定及び評価の方法の認可について（内規）（平成17・11・30 原院第6号 平成18年1月30日）

※3 揮発挙動等の確認のために分析・評価

【参考】「3.1.3.2 試験条件の設定」の補足

・核種移行率・除染係数の定義

■ 本試験で用いた核種移行率及び除染係数は以下の式により導出



メタル層への核種移行率: $C^m_{ie} \times W^m / W_{ie}$

スラグ層への核種移行率: $C^s_{ie} \times W^s / W_{ie}$

ガスへの核種移行率 : W_{ie} / W_{ie}

メタル層の除染係数: $(W_{ie} / (W^m + \sum_i W_i)) / (C^m_{ie} / 100)$

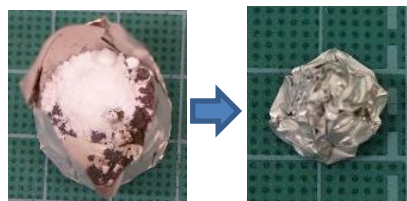
【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 模擬核種の添加方法依存性(小型プラズマ炉)

■ 模擬核種の添加方法を「スラグ上」または「金属試料内」とし、核種移行率への影響を評価

- ✓ 「金属試料内の」方がメタル層への模擬核種の移行率が高くなると予想したが、逆に低くなったため、模擬核種の添加方法によるメタル層への核種移行率に有意な変化はなしと判断
- ✓ Al箔の有無によるメタル層への核種移行率の影響は観測されなかった
- ✓ 小型プラズマ炉以外の試験では、模擬核種の添加方法は「スラグ上」とした

<スラグ上>



<金属試料内>



蓋

SS400試料に穴を開けて
試料を入れた

- ・ 約50mm角のAl箔(0.1~0.2g)に内包
- ・ Alの純度は約98%(Sr、Cs、Eu濃度は定量下限値未満)

- ・ 金属試料内のくぼみにAl箔に包まず設置
- ・ 金属試料で蓋をし、るつぽ内に設置

るつぽに設置

黒鉛るつぽ

模擬核種の設置位置

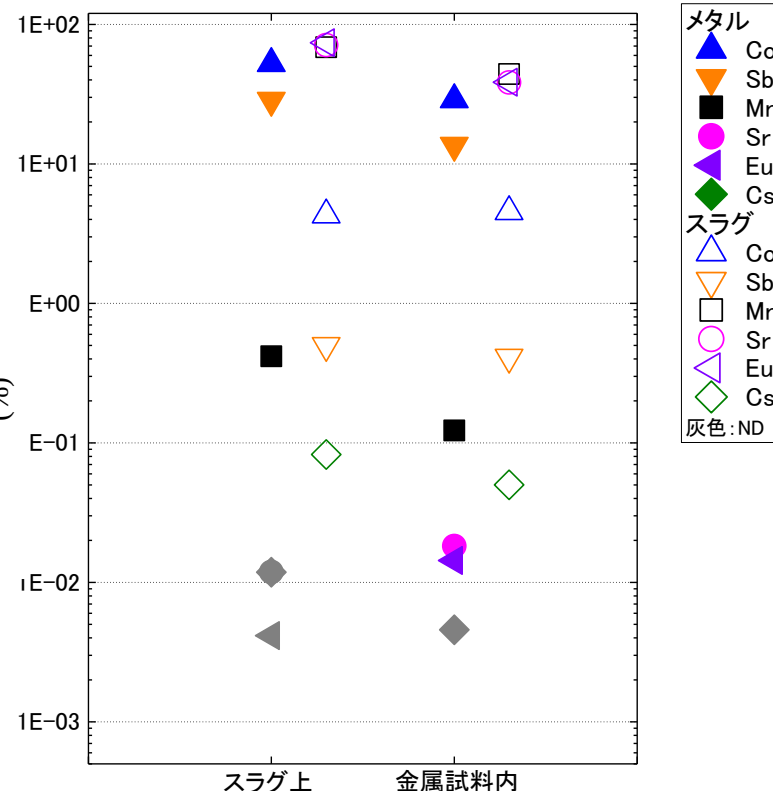
<金属試料内>
金属試料内に設置
SS400 200g

<スラグ上>
模擬核種をAl箔に
包み、供試



スラグ① 20g

メタル層への核種移行率 (%)



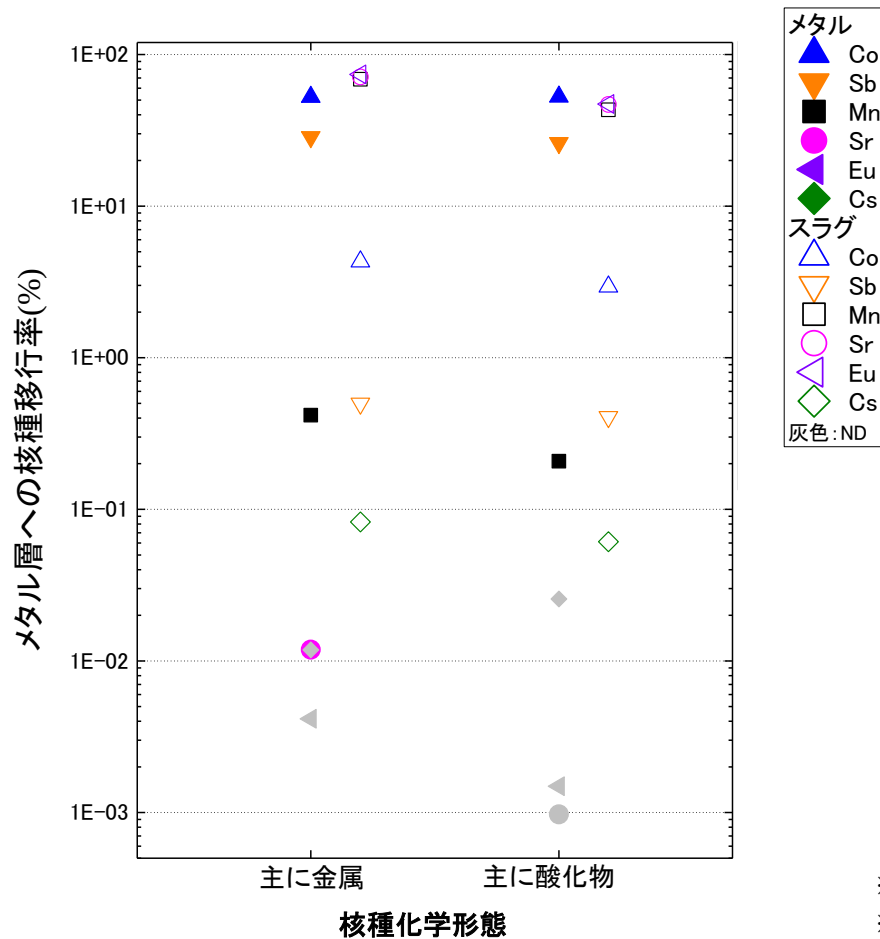
模擬核種添加方法

*灰色のプロット(Sr, Cs, Sb): 定量下限値を用いて評価

【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 模擬核種の化学形態依存性(小型プラズマ炉)

- 添加する模擬核種の化学形態が主に金属※¹または酸化物※²かの違いによる、核種移行率への影響を評価
- ✓ 模擬核種の化学形態の違いによるメタル層への核種移行率に有意な変化は見られなかった



*灰色のプロット(Sr, Cs, Sb): 定量下限値を用いて評価

試験後の固化体の様相



主に金属の化学形態
(No2213w※³)



主に酸化物の化学形態
(No2225w※³)

※¹ 「主に金属」の化学形態: Co、Sb、CsOH・H₂O、SrCO₃、Eu

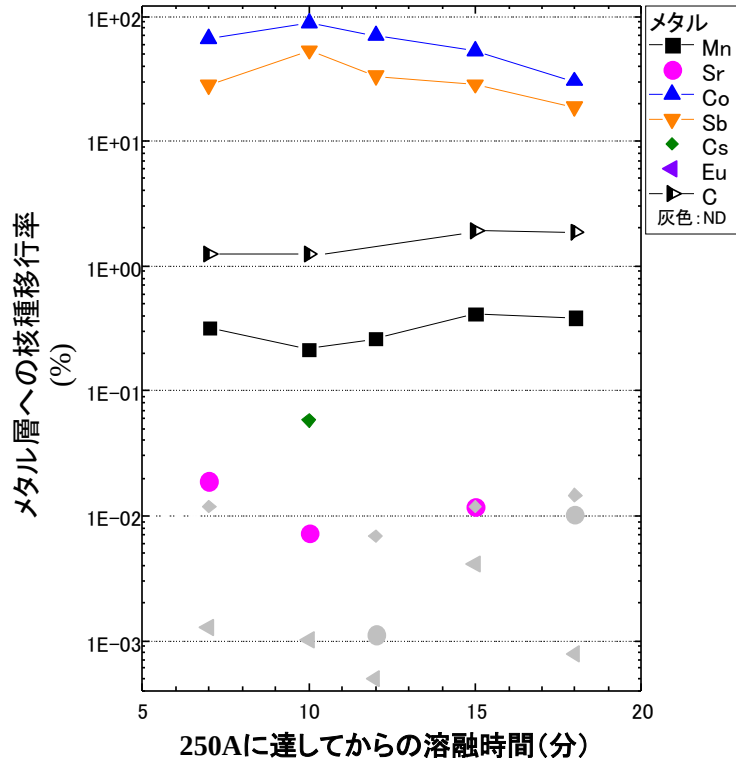
※² 「主に酸化物」の化学形態: Co₃O₄、Sb₂O₃、CsOH・H₂O、SrCO₃、Eu₂O₃

※³ No2213w及びNo2225wは溶融試験番号(53頁参照)

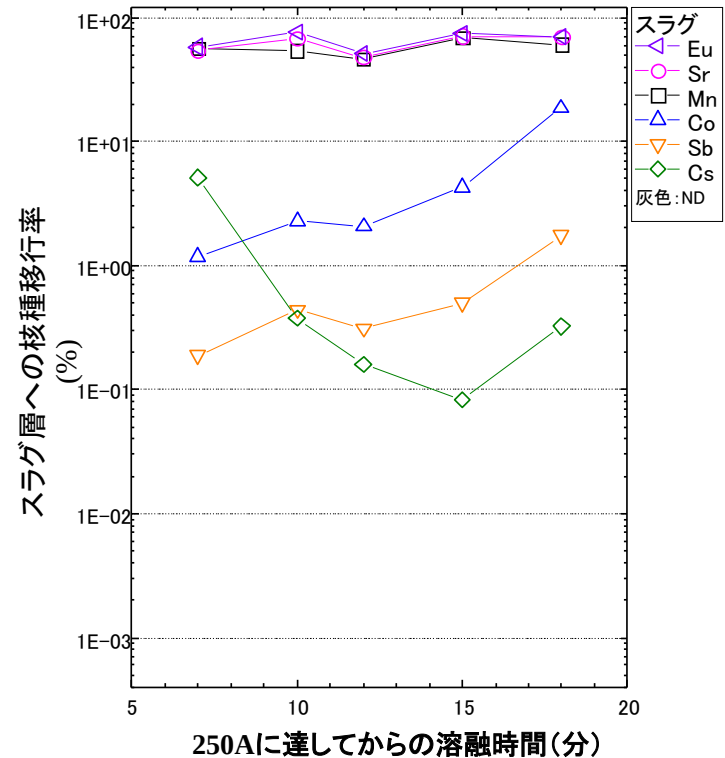
【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

- 溶融時間依存性(小型プラズマ炉)

- 溶融開始から250Aに達してからの溶融時間の長さによる、核種移行率への影響を評価
- 概ね10～15分で溶融が完了し、その後、金属の酸化が少しずつ促進されていると推定



*灰色のプロット(Sr, Cs, Sb): 定量下限値を用いて評価



*灰色のプロット(Sr, Cs, Sb): 定量下限値を用いて評価

- Co、Sb : 主にメタル層へ移行し、溶融時間と共に減少
- Mn、C : メタル層に有意に移行するが、経時変化はなし
- Cs、Sr、Eu: 経時変化はなく、定量下限値未満(0.1%未満の移行率)

- Mn、Sr、Eu: 主にスラグ層へ移行し、経時変化はなし
- Co、Sb : スラグ層へも移行し、溶融時間と共に増加
- Cs : 主にスラグ層へ移行し、溶融時間と共に減少傾向

【補足】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 熔融試料条件依存性・固化体均質性(中型アーク炉、中型プラズマ炉)

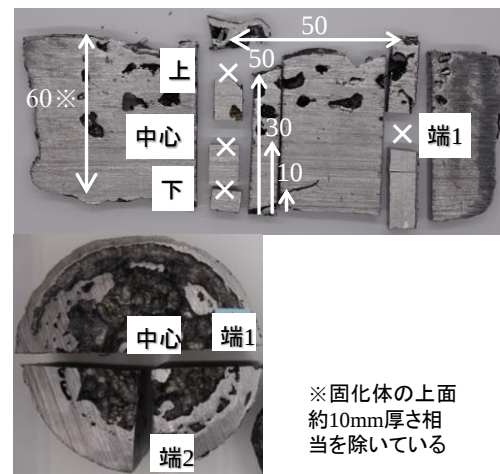
■ メタル層への核種移行率

✓ メタル層の複数箇所より試料を採取し、核種移行率の均質性も確認

メタル層試料の採取箇所

(⑤の採取箇所)

中心と、この鉛直方向上下、径方向外側(端)の各位置から分析試料を採取
単位:mm



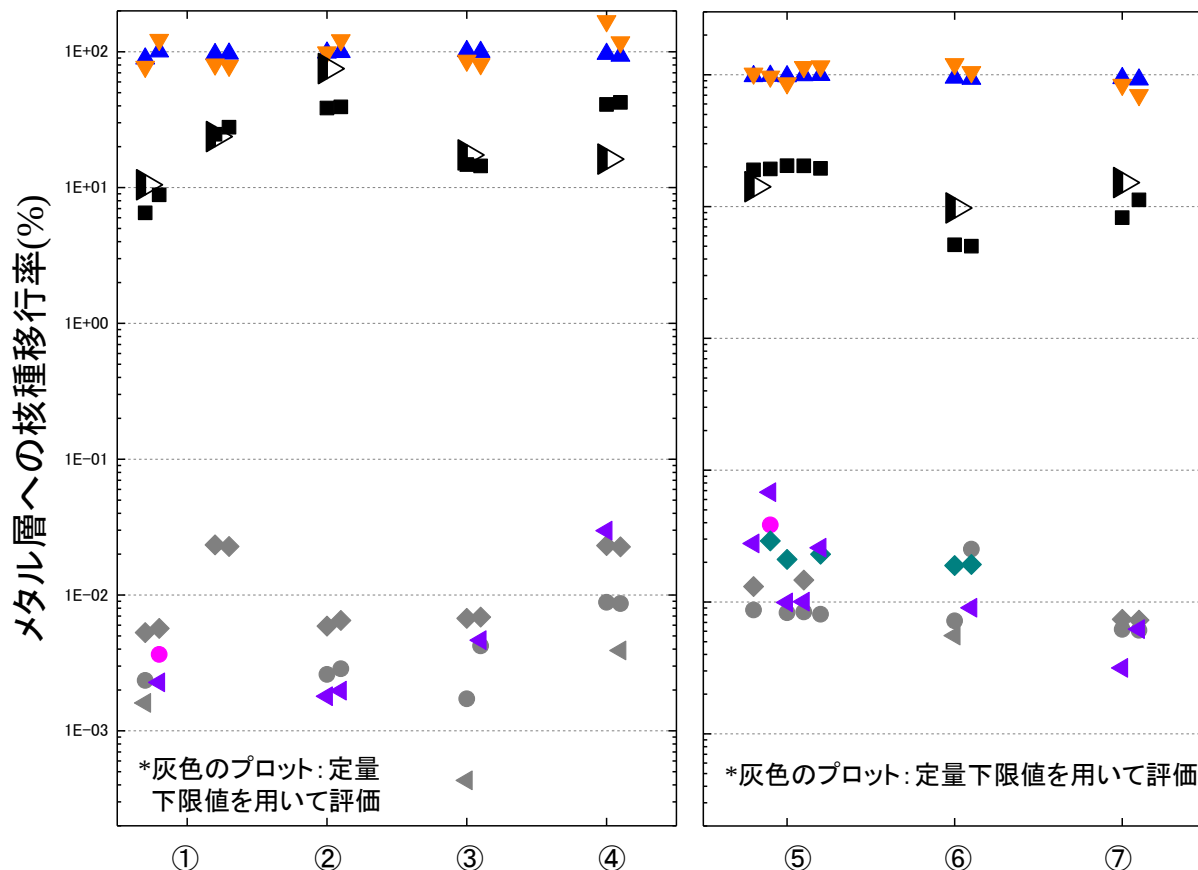
(⑤以外の採取箇所)

メタル層内の中心と径方向外側(端)の2箇所から分析試料を採取

中心: 中心の底から約30mm高さの位置の試料を採取

端: 中心から約50mm径方向外側の位置において、底から約30mm高さの位置における試料を採取

端 中心



*灰色のプロット: 定量下限値を用いて評価

*灰色のプロット: 定量下限値を用いて評価

① ② ③ ④

⑤ ⑥ ⑦

炉スケール・炉型

中型アーク炉

中型プラズマ炉

熔融試験番号

2707C、2703C

2709C

2705C

2603W

2602W

2701W

金属種類・初期重量

SS400 10kg

SUS304 10kg

SS400 10kg

SS400 10kg

スラグ種類
初期重量

スラグ①
1kg

スラグ①
1kg

スラグ②
1kg

スラグ①
1kg

スラグ②
1kg

スラグ①
0.5kg

【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 溶融試料条件依存性・固化体均質性（中型アーク炉、中型プラズマ炉）

■ 溶融試料条件依存性（64頁のまとめ）

- ✓ Co、Sr、Sb、Cs、Eu、Mnは、溶融試料条件に対する依存性は低い
- ✓ Sbは、ほぼ全量がメタル層に移行と推測されるが核種移行率の変動幅が大きい
- ✓ Clは、金属試料をステンレス鋼(SUS304)とした場合、メタル層への核種移行率が75%と高い
- ✓ C、Mn は、核種移行率の変動幅が大きく、炉内雰囲気中のOの酸化力に顕著に依存すると推定

横軸番号	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦
溶融試験番号	2707C、2703C	2709C	2705C	2706C	2603W	2602W、2603W	2701W
試験条件	基本ケース	変動ケース①	変動ケース②	変動ケース③	基本ケース	変動ケース②	変動ケース③
Co	ほぼ全量がメタル層に移行	基本ケースと同様の傾向			ほぼ全量がメタル層に移行	基本ケースと同様の傾向	
Sr	0.1%未満	基本ケースと同様の傾向			0.1%未満	基本ケースと同様の傾向	
Sb	ほぼ全量がメタル層に移行と推測、核種移行率の変動幅大	基本ケースと同様の傾向 核種移行率の変動幅が大きいことに関しても同様の傾向			ほぼ全量がメタル層に移行と推測、核種移行率の変動幅大	基本ケースと同様の傾向。核種移行率の変動幅が大きいことに関しても同様の傾向	
Cs	0.1%未満	基本ケースと同様の傾向			0.1%未満	基本ケースと同様の傾向	
Eu	0.1%未満	基本ケースと同様の傾向			0.1%未満	基本ケースと同様の傾向	
C	10%弱から数10%の幅を持つ	基本ケースに対して核種移行率が75%と高い	基本ケースと同様の傾向		10%のオーダー	基本ケースと同様の傾向	
Mn	10%弱から数10%の幅を持つ	基本ケースと同様の傾向			10%のオーダー	基本ケースと同様の傾向	

■ 固化体均質性

- ✓ Co、Mnの均質性は高い
- ✓ Sb は均質性が比較的に低い
- ✓ Cs、Sr、Euの平均値は、0.1%以下であった
- ✓ Cの均質性評価は行っていない

2603wのメタル層の採取箇所5点の平均値及び標準偏差

	Co(%)	Sb(%)	Cs(%)	Sr(%)	Eu(%)	Mn(%)
平均値	9.8E+01	1.0E+02	2.0E-02	1.4E-02	2.8E-02	2.0E+01
標準偏差(σ)	9.6E-01	1.2E+01	6.5E-03	1.3E-02	2.4E-02	6.5E-01
平均値+3σ	1.01E+02	1.40E+02	3.97E-02	5.48E-02	9.96E-02	2.17E+01

【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 溶融試料条件依存性(中型アーク炉)

■ ガスへの核種移行率

- ダストの分解・溶液化が困難であったため、SEM-EDSにて、その組成を調査

✓ いずれの場合もCs、Mnを観測

✓ 測定箇所によっては微量のSbが観測された場合があった

✓ 金属試料がSUS304の場合は、Crも顕著に観測

✓ Mnは、金属試料中の濃度より顕著に高い濃度のため、金属試料の機械的な飛散ではなく、揮発しフィルタに捕捉された成分もあると推定



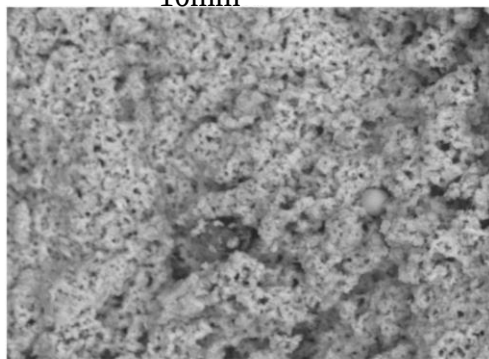
10mm

金属シャーレに入れたダスト

✓ ダスト捕集箇所: オフガスラインに設けた円筒フィルタ

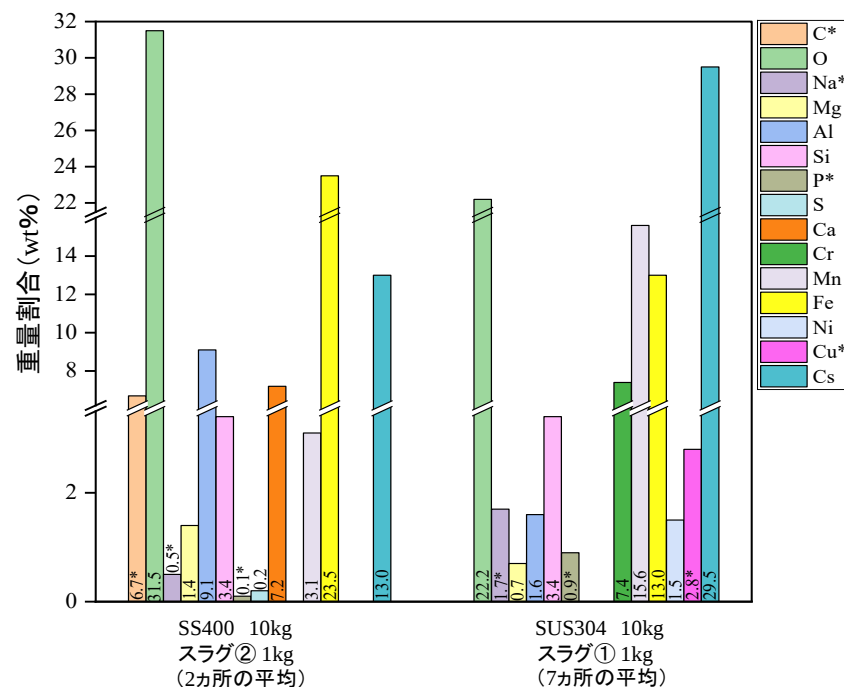
✓ 1回の測定における観測領域は、数10から数100 μ m角の領域

*ダスト形状は、ダスト由来ではなく、回収方法によるもの



25 μ m

ダストのSEM分析画像



ダストの元素分析結果

※ 各々の元素で平均しているため、分析結果の合計値は100%にならない

※ 本データ取得範囲では、Sbは観測されなかった

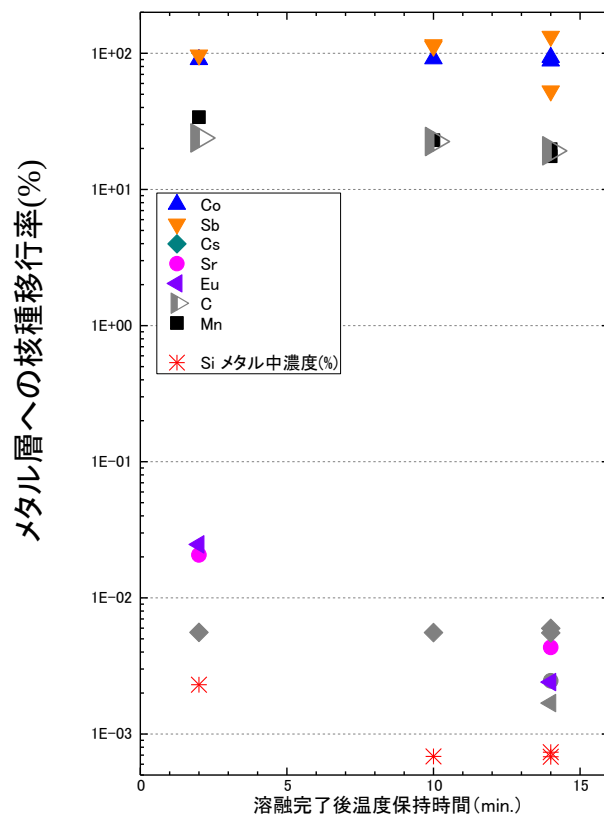
* 溶融試料由来ではない可能性がある

【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 溶融時間依存性(中型アーク炉)

■ 基本ケースに対する溶融時間依存性

- ✓ Co、Sbは、溶融完了時点でほぼ全量がメタル層に移行し、溶融完了後の温度保持時間に対する依存性はなし(Sbはばらつきあり)
- ✓ Sr、Euのメタル層への核種移行率は、溶融完了時点で0.1%未満であり、溶融完了後の温度保持時間と共に減少傾向であったが、核種移行率の絶対値が小さいため詳細は不明
- ✓ Csのメタル層への核種移行率は、溶融完了時点で0.1%(定量下限値)未満であり、溶融完了後の温度保持時間に対する依存性はないと推定
- ✓ C、Mnのメタル層への核種移行率は、溶融完了後の温度保持時間と共に減少傾向を観測。これは炉内雰囲気中のOに起因し、酸化反応が進み、メタル層からガスもしくはスラグ層へ移行したためと推定される(C: 24%→19%、Mn: 34%→20%)



サンプリングしたメタル層試料
(溶融完了後の温度保持時間 2分)
直径約5mm×約60mm長

灰色のプロット: 定量下限値を用いて評価

溶融完了後の温度保持時間14分における分析箇所は中心と端の2箇所
14分 中心: メタル層の中心、底から約30mm高さの位置の試料を採取
14分 端: メタル層の中心から径方向外側50mmの位置の試料を採取

【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

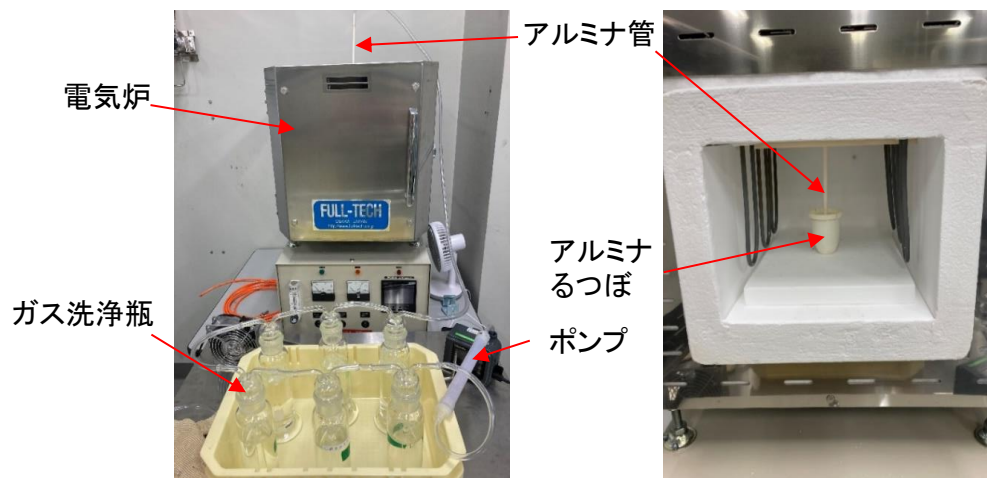
・ 溶融時間依存性(外部加熱炉)

■ 溶融時間依存性

- ✓ ガスへの核種移行率も取得
- ✓ 外部加熱炉でSS400を溶融した場合、アルミナるつぼ内のメタル層とスラグ層が受けるつぼへ流出し、メタル層とスラグ層の分離回収が困難であったため、ガスへの核種移行率のみ評価

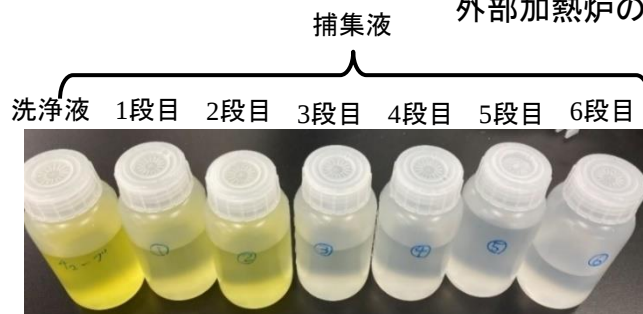


メタル層とスラグ層



受けるつぼにメタル層とスラグ層が流出した様子(SS400)

外部加熱炉の外観(左)、炉内の様子(右)



回収した洗浄液※1と各段の捕集液※2

※1 揮発物を回収するために設置したアルミナ管、及びそのアルミナ管とガス洗浄瓶をつなぐチューブを洗浄した蒸留水

※2 ガス洗浄瓶内の0.1N HNO₃(1~5段目)または蒸留水(6段目)

- ・ ガス洗浄瓶によって回収
- ・ 回収段数は、最終段においてICP-MS分析にて、捕集溶液中のCsの検知量が添加Csの0.1%となる6段とした
- ・ ガス導入用アルミナ、チューブ内付着分も洗浄して測定

【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

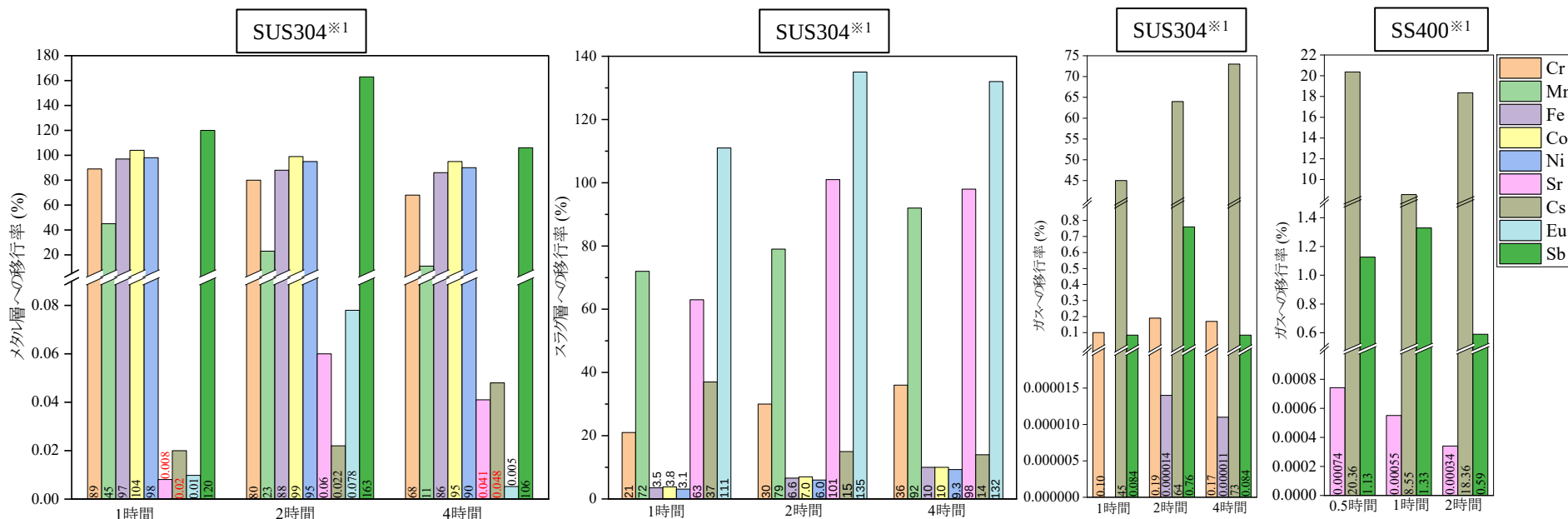
・ 溶融時間依存性・溶融試料条件依存性(外部加熱炉)

■ 溶融時間依存性(SUS304)

- ✓ Sbは溶融時間に関係なくほぼメタル層へ移行し、その他の核種は保持時間増加と共にスラグ層またはガスへの移行
- ✓ Sr、Euは、保持時間1時間までにほぼスラグ層へ移行
- ✓ Csは、保持時間増加と共にガスへ移行

■ ガスへの溶融時間依存性(SS400)

- ✓ Cs、Sb、Srの明確な溶融時間依存性なし
- ✓ 溶融温度 1,600°Cの条件では、SS400のCsのガスへの核種移行率はSUS304に比べて小さい⇒Csと揮発性の化合物を形成する可能性のあるCrがSUS304には含まれているが、SS400には含まれていないことに起因すると推測
- ✓ Sbは有意な揮発あり(0.59 ~ 1.3 %)
- ✓ Srのガスへの移行率は低い(3.4×10^{-4} ~ 7.4×10^{-4} %)

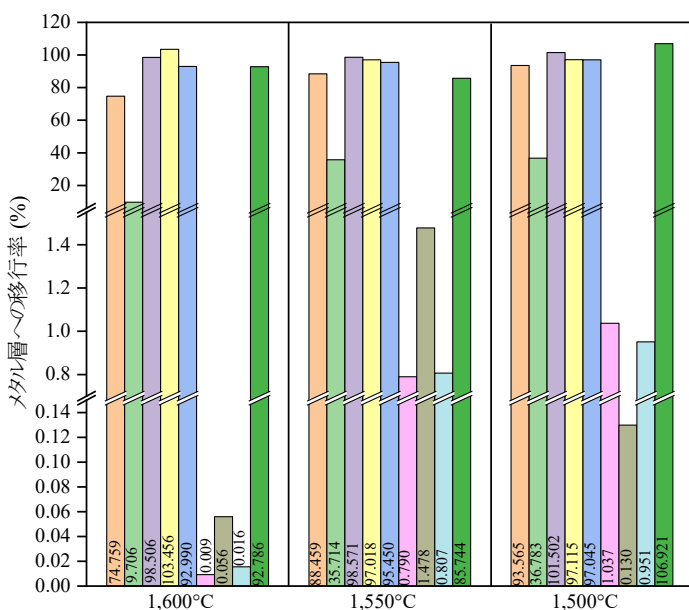


【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

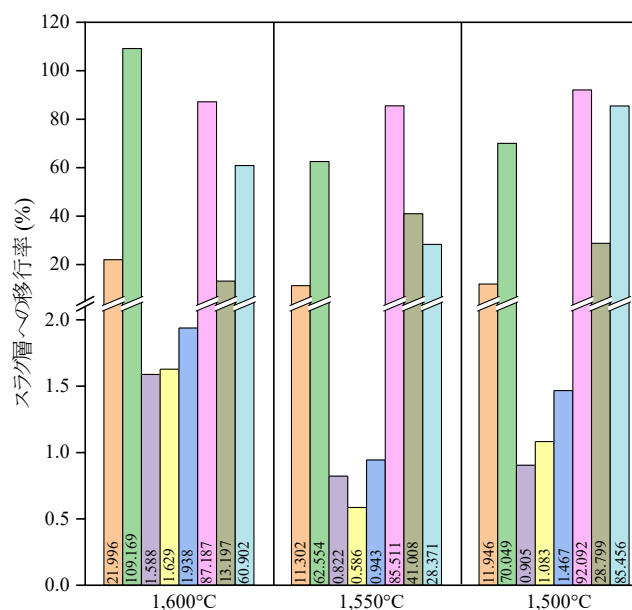
・ 溶融温度依存性(外部加熱炉)

■ 溶融温度依存性(SUS304)

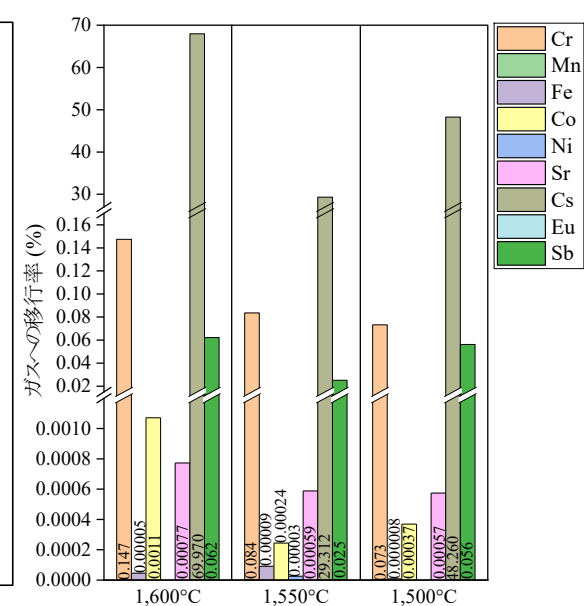
- ✓ Co、Sbは、いずれの温度でもメタル層にほぼ全量が移行
- ✓ Mn、Crは、温度上昇に伴い、メタル層への核種移行率が下がり、スラグ層への核種移行率が増加する傾向
- ✓ Srは、いずれの温度でもスラグ層にほぼ全量が移行し、ガスへの移行率は0.001%未満
- ✓ Csは、温度上昇に伴いスラグ層への核種移行率が減少傾向となり、ガスへの核種移行率が増加する傾向
- ✓ Euは、いずれの温度でもスラグ層中から検出された



*100%を越えている核種は、測定誤差



*Eu: スラグ層内で不均質であった可能性あり



*Cs: 揮発物回収管及びるつぼ蓋への付着などが考えられるため、移行率が低い

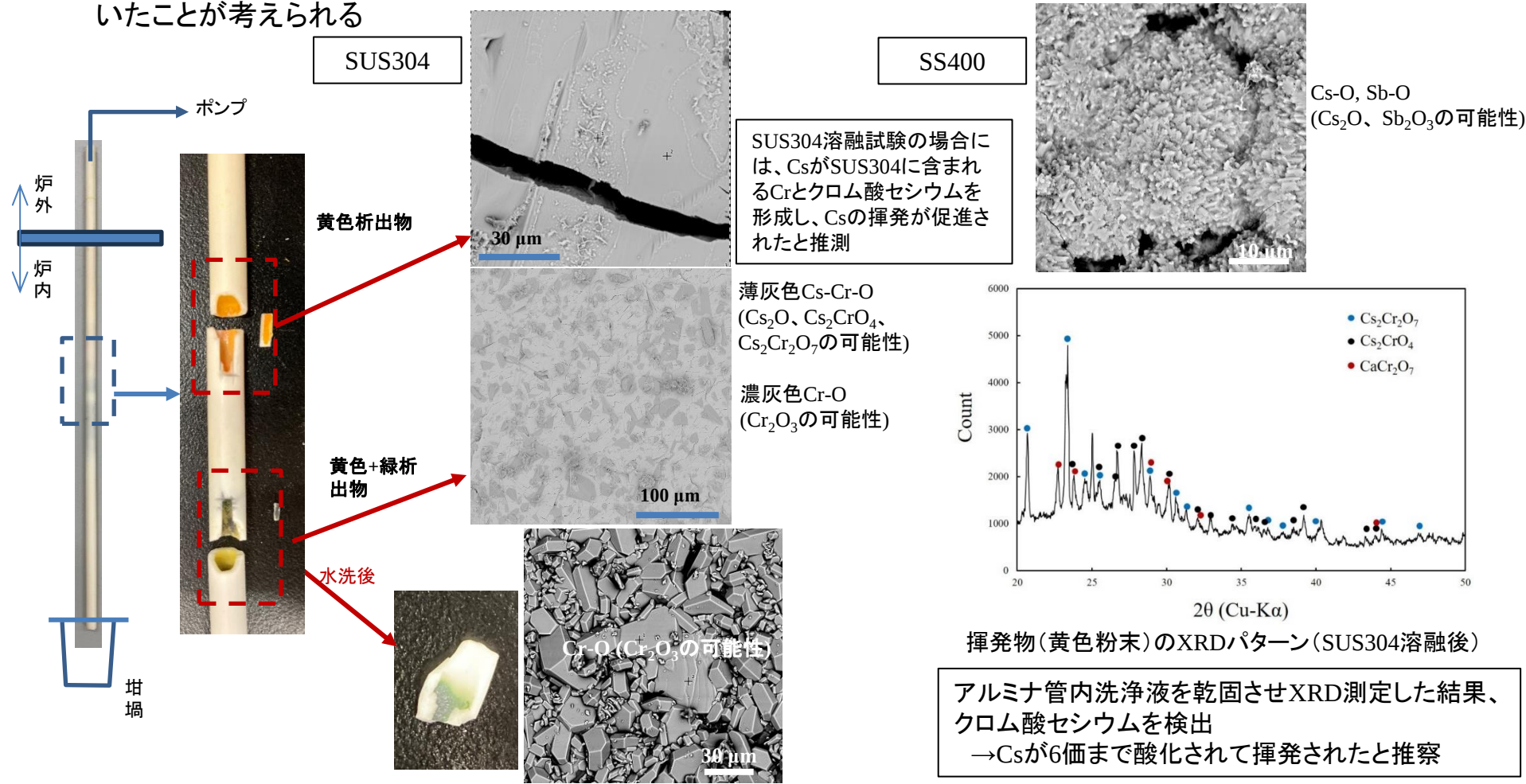
【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 揮発物の様相(外部加熱炉)

■ 溶融処理時の揮発物を調べるため、揮発物回収用アルミナ管の内側の付着物をSEM用いて観察

○ 基本ケース、溶融温度1,600 °C、温度保持時間1時間としたケースの試料を分析

- ✓ Cs-Cr-Oの化合物が回収用配管内部の付着物として考えられる
- ✓ るつぽに近い方では、洗浄後、Cr-Oの化合物(難溶性)が見られたことより、水溶性と難溶性の化合物が付着していたことが考えられる



【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

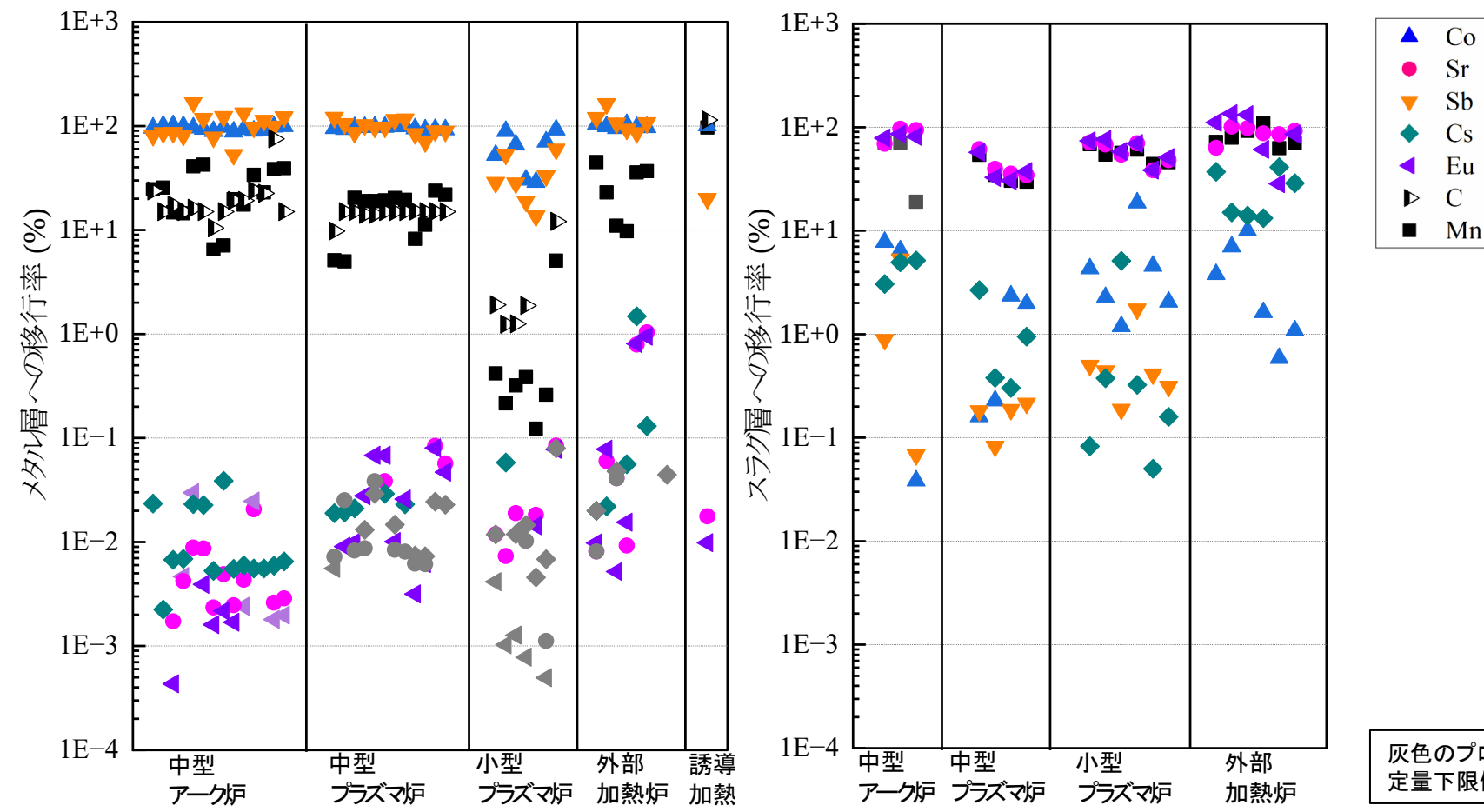
・ 全溶解試験での核種移行率の比較

■ 全溶解試験で得られたメタル層及びスラグ層への各核種の移行率を示す

✓ 炉型に依らず、概ねCoとSbがメタル層へ、Sr、Eu、Mnがスラグ層へ移行する傾向※1, ※2

※1 炉内雰囲気、熔融時間、金属試料、初期スラグなどの試験条件の違いは、加味していない

※2 中型アーキ炉と中型プラズマ炉で得られたスラグ層への核種移行率について、分析時にスラグ層試料の溶液化が不十分であった場合の結果も含むため、参考値扱いとする

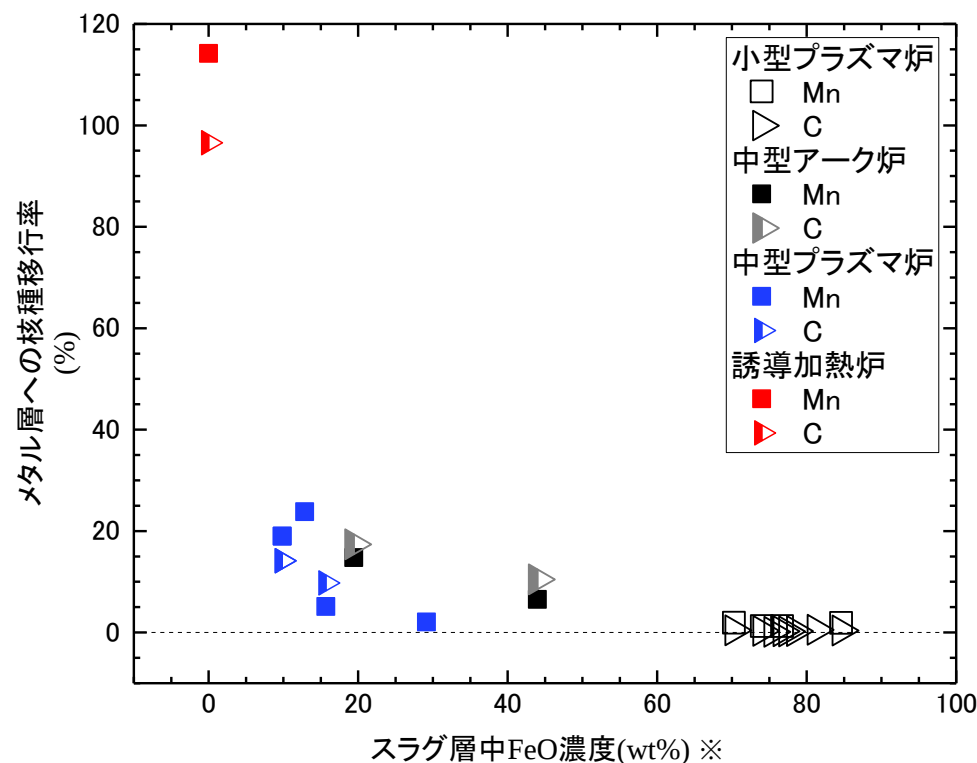


【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 核種移行率のスラグ層中のFeO濃度依存性

■ 核種の酸化され易さの指標をスラグ層中のFeO濃度とし、Mn、Cの核種移行率の依存性を観測

- ✓ Mn、Cの核種挙動は雰囲気中の酸素が関わるため、雰囲気中の酸素濃度やスラグ層の厚さなどの試験条件に核種移行率が依存すると推定



※ スラグ層の分析結果のトータルは100%ではない
(Feを分析し、FeOに換算した)

FeO濃度に対するメタル層への核種移行率

- ✓ FeO濃度 0%(誘導加熱炉)
: ほぼ100%
- ✓ FeO濃度 5~40%(中型アーク炉・プラズマ炉)
: FeO濃度の増加に伴い減少
C 10~20%、Mn 20%強~数%
- ✓ FeO濃度 70~85%(小型プラズマ炉)
: 0%

※ 東電HD提供スラグのFeO濃度は約10%

【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 溶融時の状況(中型アーク炉・プラズマ炉)

■ アーク炉とプラズマ炉の点火前と、溶融完了直前における炉内状況の比較

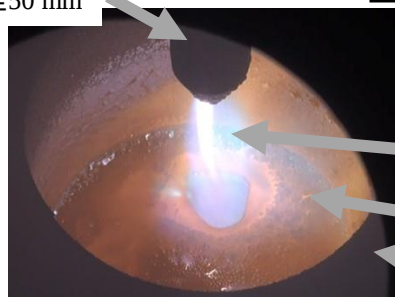
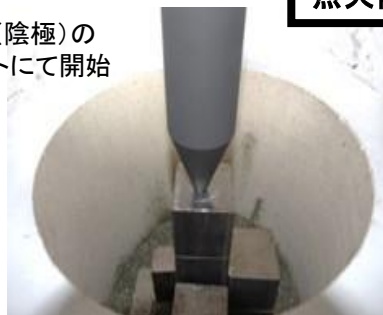
点火前

黒鉛電極:
直径50 mm

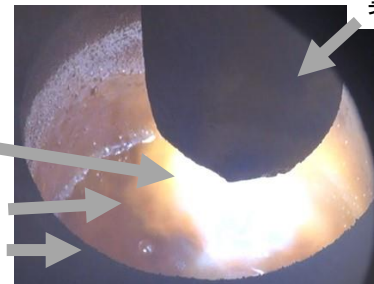
溶融完了直前

プラズマトーチ: 直径105 mm
(保温材を巻いているため、
実際は直径115 mm)

黒鉛電極(陰極)の
接触スタートにて開始



溶融の様相 (アーク炉: No.2705C)

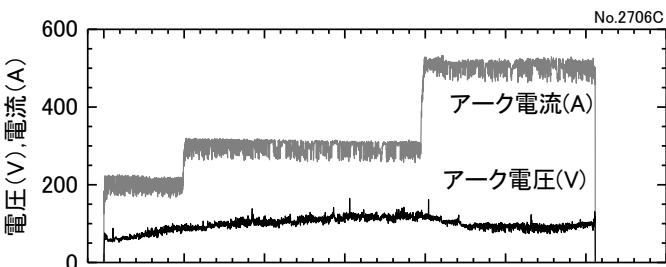


溶融の様相 (プラズマ炉: No.2602W)

溶融試料

炭素鋼	10 kg
スラグ②	1 kg

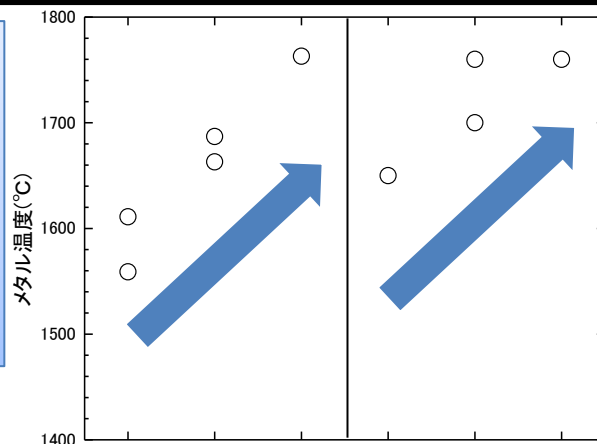
アーク炉の電流・電圧・炉内雰囲気経時変化
(例)



- ・ 電流は段階的に増大させるシーケンスに設定
- ・ 500Aのステップより、雰囲気内のCO濃度上昇

- ・ るつぼ底の温度が十分に高くなったら、消弧し、消耗型熱電対でメタル層の温度を測定
- ・ この温度測定値より、溶融完了を判断
- ・ 鉄の融点1,530 °Cに対して、溶湯(メタル層)温度は1,560~1,760 °C(測定上限: 1,760 °C)
- ・ 初期スラグの重量を減らした場合、メタル層の温度は高くなる傾向を示した

消耗型熱電対によるメタル層の温度測定結果



溶融炉	中型アーク炉			中型プラズマ炉		
溶融試験番号	2703C 2707C	2704C 2705C	2706C	2603W 2702W	2602W	2701W
金属試料	SS400 (10 kg)			SS400 (10 kg)		
初期スラグ	スラグ① (1 kg)	スラグ② (1 kg)	スラグ① (0.5 kg)	スラグ① (1 kg)	スラグ② (1 kg)	スラグ① (0.5 kg)

【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 溶融処理試験の様相(中型アーク炉・プラズマ炉)

■ メタル層の断面 EPMA分析

- ✓ 溶融試験後、鋳型へ出湯せず、るつぼ内で固化した場合、固化体のメタル層と炉底電極が一体となっており(左下図参照)、核種移行率を算出する際には、炉底電極を除いたメタル層試料の重量評価が必要であるため、溶融したメタル層と炉底電極の境界がどこかを調べるために、断面のEPMAマップ及びWDSライン元素分析を実施
- ✓ 併せて、溶融前の試料の情報を取得するために、炉底電極の未溶融箇所及び金属試料(SUS304鋼)も同条件で分析を実施

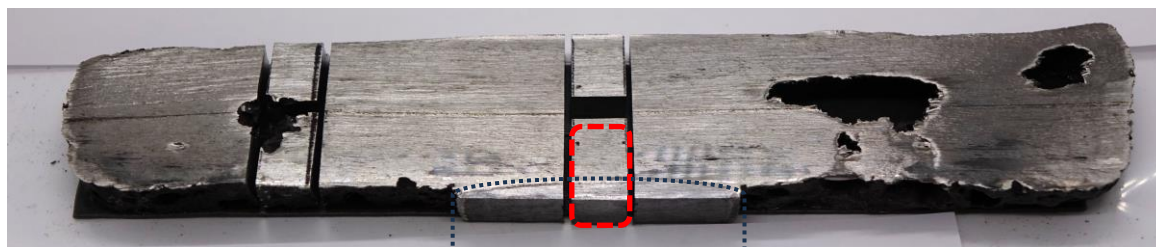
メタル層
SUS304



炉底電極
SS400

メタル層と炉底電極

赤点線内: 分析箇所



炉底電極

炉底電極未溶融箇所
としての分析箇所

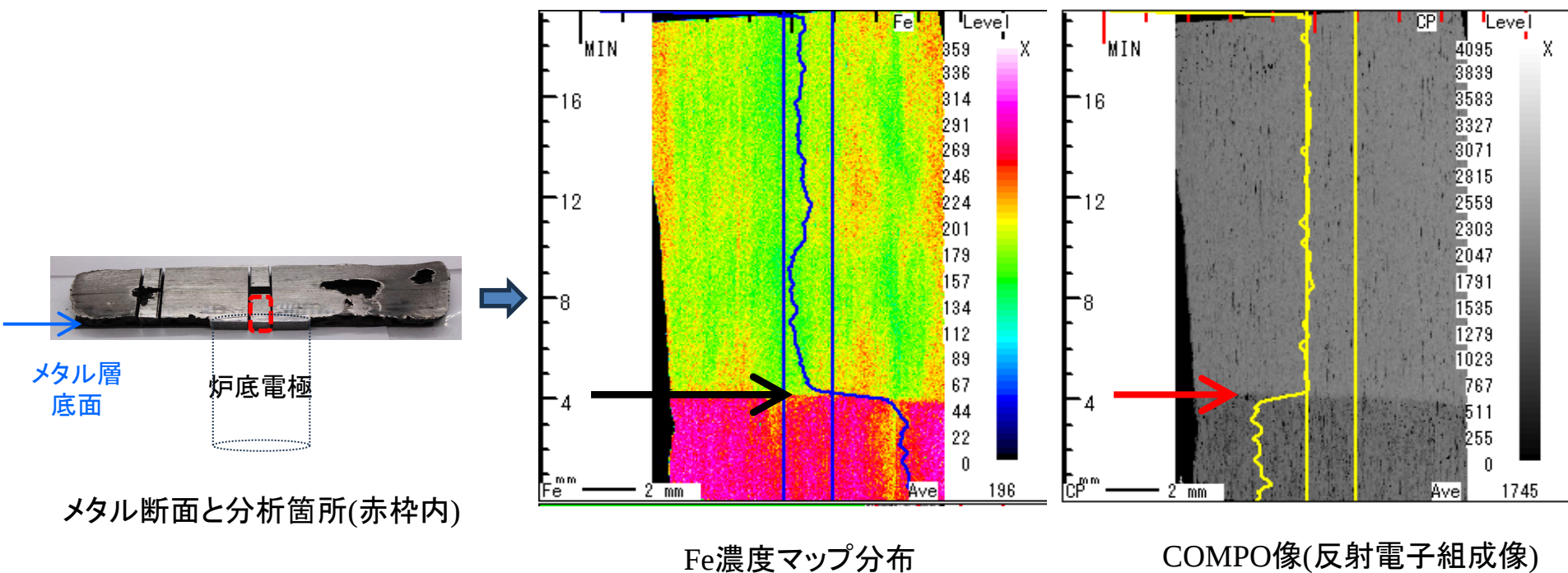
メタル層及び炉底電極 断面

【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 溶融処理試験の様相(中型アーク炉・プラズマ炉)

■ メタル層の断面 EPMA分析

- ✓ Feのマッピング分析結果及びCOMPO像から、メタル層と炉底電極の融合箇所の境界は、およそ固化体のメタル層の底面であることを確認
- ✓ 溶融試験後のメタル重量評価においては、固化体のメタル層の底面を境界として、固化体のメタル層と炉底電極を分離し、重量を評価しているが、問題ないと判断される

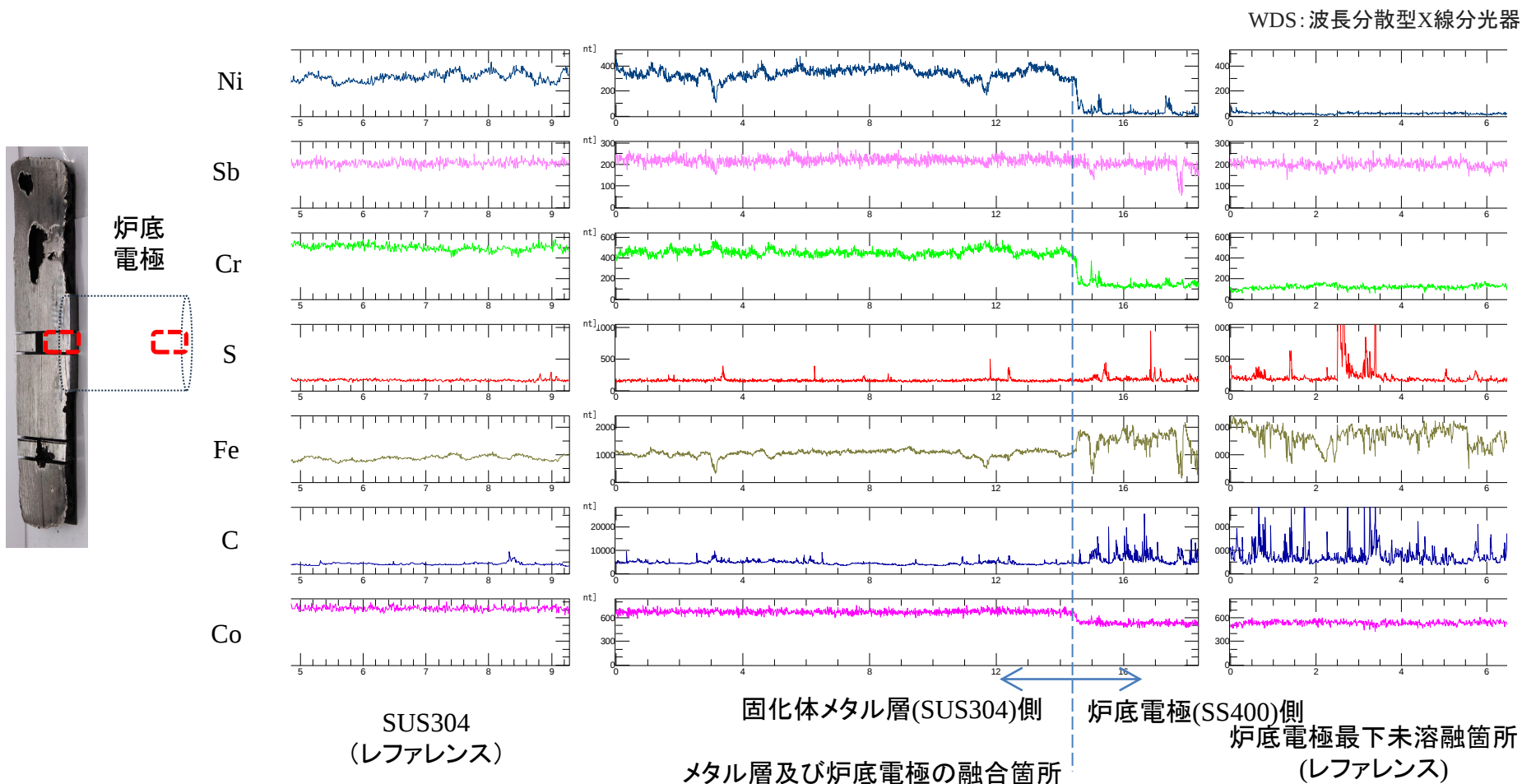


【参考】「3.1.3.3 試験結果」の補足

・ 溶融処理試験の様相(中型アーク炉・プラズマ炉)

■ メタル層の断面 WDSライン元素分析

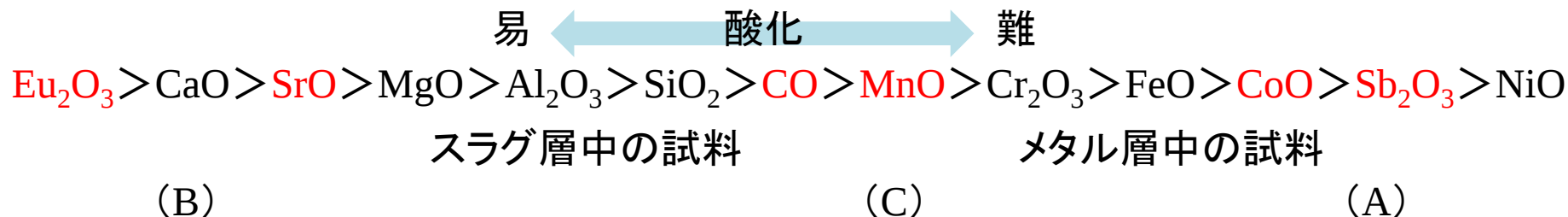
- ✓ ライン分析結果は、SUS304、SS400の組成分析結果と定性的に良く一致している
- ✓ Sbは、SUS304、SS400の組成分析結果と一致せず、この理由は、SUS304、SS400 中のSbの濃度のロット差が大きいことが挙げられ、SUS304、SS400中のSbの濃度がほぼ同じであるという本分析結果が妥当であるかは不明



【参考】「3.1.3.5 熱平衡計算との比較」の補足

・ 核種の熱力学特性

- 核種、SS400鋼もしくはSUS304鋼、スラグ層の酸化物の生成自由エネルギーの絶対値の大小関係(絶対値が大きいほど、酸化物になり易い)



※ Csは、FeOよりも小さい(1,600°C)という計算結果があるが、Csの分解性や揮発性もあるため、計算結果の妥当性に関しては留意が必要であることから除いた

- 酸化物の生成自由エネルギーの観点から、核種を、次の(A)、(B)、(C)3つに大別した

- ✓ (A)スラグ層中の試料を構成している元素及び鉄より酸化し難い核種: Co、Sb
- ✓ (B)スラグ層中の試料を構成している元素より酸化し易い核種: Sr、Eu、(Cs)※¹
- ✓ (C)スラグ層中の試料を構成している元素より酸化し難いが、鉄より酸化し易い核種: C、Mn

- (C)のグループの核種は、その酸化反応において、雰囲気中の酸素の酸化力などが顕著に影響を及ぼすと推定されるため、核種移行率が試験条件に顕著に依存する可能性がある

※¹ Csは化学形態が金属であれば沸点が処理温度よりも低いため、メタル層内に保持され難い ⇒ 試験結果をもとに(B)に入れる

支配核種のD/Cに対する比の分布の一例（廃車両）

溶融前			支配核種のD/Cに対する比率				
核種	半減期(年)	$\Sigma D/C$ の支配核種となるケース数	10%以上	1%以上	0.1%以上	0.01%以上	0.001%以上
H-3	12.32	0	0	0	0	20	2980
C-14	5.70E+03	0	0	0	0	0	3000
Mn-54	0.85	0	0	0	0	2	2998
Fe-55	2.74	0	0	0	0	0	3000
Co-60	5.27	0	4	26	184	681	2105
Ni-63	100.10	0	0	0	0	0	3000
Sr-90	28.79	0	0	6	91	785	2118
Tc-99	2.11E+05	0	0	0	0	10	2990
Ru-106	1.02	0	0	21	138	542	2299
Ag-108m	418.00	0	0	0	0	0	3000
Ag-110m	0.68	0	0	0	0	16	2984
Sb-125	2.76	11	693	1277	808	201	10
Te-125m	0.16	0	0	0	0	0	3000
I-129	1.57E+07	0	0	0	0	405	2595
Cs-134	2.06	0	0	3000	0	0	0
Cs-137	30.17	2989	11	0	0	0	0
Eu-154	8.59	0	0	0	0	9	2991
Eu-155	4.76	0	0	0	0	0	3000
Pu-238	87.70	0	0	0	0	9	2991
Pu-239	2.41E+04	0	0	0	0	0	3000
Pu-240	6.56E+03	0	0	0	0	0	3000
Pu-241	14.35	0	0	0	0	1	2999
Am-241	432.20	0	0	0	0	7	2993
Cm-244	18.10	0	0	0	0	0	3000

溶融後		支配核種のD/Cに対する比率				
核種	$\Sigma D/C$ の支配核種になるケース数	10%以上	1%以上	0.1%以上	0.01%以上	0.001%以上
H-3	0	0	4	33	160	2803
C-14	0	0	0	0	0	3000
Mn-54	0	0	0	0	18	2982
Fe-55	0	0	0	0	0	3000
Co-60	60	190	557	839	809	545
Ni-63	0	0	0	0	202	2798
Sr-90	0	0	0	37	147	2816
Tc-99	0	0	0	93	296	2611
Ru-106	0	187	473	820	837	683
Ag-108m	0	0	0	0	0	3000
Ag-110m	0	0	0	0	1435	1565
Sb-125	2739	230	29	2	0	0
Te-125m	0	0	0	0	0	3000
I-129	0	0	0	0	0	3000
Cs-134	0	0	535	841	870	754
Cs-137	201	585	929	779	430	76
Eu-154	0	0	0	0	2	2998
Eu-155	0	0	0	0	0	3000
Pu-238	0	0	0	0	3	2997
Pu-239	0	0	0	0	1	2999
Pu-240	0	0	0	0	1	2999
Pu-241	0	0	0	0	1	2999
Am-241	0	0	0	0	3	2997
Cm-244	0	0	0	0	0	3000

 : 支配核種のD/Cに対する比率が1%以上となる核種

■ 計算に用いるデータの整理

- ✓ 溶鉄からガスへ直接、核種が移行する場合を検討
- ✓ 鋼材中のある核種が揮発する際の蒸気圧 (p_{gas}) を算出

$$\exp\left[-\frac{\Delta G_M^\circ}{RT}\right] = \frac{a_{gas}}{a_{liquid}} = \frac{p_{gas}}{1} = p_{gas}$$

ΔG_M° = 蒸気圧の酸化物生成ギブス自由エネルギー
 R = 気体定数 (8.314 J/K·mol)
 T = 絶対温度 (K)
 a_{gas} = ガス中のある核種の活量
 a_{liquid} = 溶鉄中のある核種の活量

*溶鉄中にある核種が存在する場合、 $a_{liquid} \cong 1$ と見積もることができる

- ✓ 蒸気圧の酸化物生成ギブス自由エネルギー (ΔG_M°): 参考文献※1 のデータを用い、次式より算出

$$\Delta G_{gas}^\circ = \Delta H_{gas}^\circ - T\Delta S_{gas}^\circ$$

ΔH_{gas}° = エンタルピー変化
 ΔS_{gas}° = エントロピー変化

- ✓ T=1,873Kにおける $p_{a_{gas}}$ を算出

	$p_{a_{gas}}$ [atm]	ΔG [J]	ΔH [cal]	ΔS [cal]
Am	—	—	—	—
C	—	—	—	—
Cl	—	—	—	—
Cs	95.476	-70,991.3	17,140	18.21
Eu	—	—	—	—
I	—	—	—	—
Pu	4.761×10^{-5}	155,261.1	80,000	22.9
Ru	1.929×10^{-10}	348,330.1	144,500	32.7
Sb	1.005	-71.0025	20,380	10.89
Sr	3.403	-19,069.7	33,820	20.49
Tc	—	—	—	—
U	1.604×10^{-8}	279,492.9	114,000	25.2
Mn	5.121×10^{-2}	46,278.64	56,350	24.18

参考文献※1のデータ

<solid>, {liquid}, (gas)					
Reaction*	ΔH° (cal)	ΔS° (cal)	Error ($\pm$ kcal)	Range ^b (°C)	Reference
$\langle \text{Pu} \rangle = \langle \text{Pu} \rangle$	680	0.74	0.2	640m	15
$\langle \text{Pu} \rangle = \langle \text{Pu} \rangle$	80,000	22.9	4	640–3230b	15
$\langle \text{PuBr}_2 \rangle = \langle \text{PuBr}_2 \rangle$	14,000	14.68	—	681m	13
$\langle \text{PuBr}_2 \rangle = \langle \text{Pu} \rangle + \frac{1}{2} \langle \text{Br}_2 \rangle$	192,000	35.2	5	681–1475b	13
$\langle \text{PuCl}_2 \rangle = \langle \text{PuCl}_2 \rangle$	15,200	14.62	—	767m	13
$\langle \text{PuCl}_2 \rangle = \langle \text{Pu} \rangle + \frac{1}{2} \langle \text{Cl}_2 \rangle$	209,000	33.9	5	767–1790b	13
$\langle \text{PuF}_2 \rangle = \langle \text{PuF}_2 \rangle$	13,000	7.65	—	1426m	13
$\langle \text{PuF}_2 \rangle = \langle \text{Pu} \rangle + \frac{1}{2} \langle \text{F}_2 \rangle$	368,000	54.6	5	640–1426m	13
$\langle \text{PuI}_2 \rangle = \langle \text{PuI}_2 \rangle$	12,000	11.43	—	777m	13
$\langle \text{PuI}_2 \rangle = \langle \text{Pu} \rangle + \frac{1}{2} \langle \text{I}_2 \rangle$	161,000	35.2	10	777–1200	13
$\langle \text{PuN} \rangle = \langle \text{Pu} \rangle + \frac{1}{2} \langle \text{N}_2 \rangle$	72,500	20.26	3	640–2000	13
$\langle \text{Pu}_2\text{C}_2 \rangle = 2\langle \text{Pu} \rangle + \frac{1}{2} \langle \text{C}_2 \rangle$	31,600	-3.9	—	610 2000	13
$\langle \text{PuC}_2 \rangle = \langle \text{Pu} \rangle + \frac{1}{2} \langle \text{C}_2 \rangle$	10,600	-5.4	—	640–2252m	13
$\langle \text{PuO}_2 \rangle = \langle \text{Pu} \rangle + \frac{1}{2} \langle \text{O}_2 \rangle$	250,000	42.52	3	640–2390m	13
$\langle \text{PuS} \rangle = \langle \text{Pu} \rangle + \frac{1}{2} \langle \text{S}_2 \rangle$	122,000	24.2	10	640–1500	13
$\langle \text{Pu}_2\text{S}_2 \rangle = 2\langle \text{Pu} \rangle + \frac{1}{2} \langle \text{S}_2 \rangle$	284,000	64.7	10	640–1200	13
$\langle \text{Pu(SO}_4)_2 \rangle = \langle \text{PuO}_2 \rangle + 2\langle \text{SO}_2 \rangle + \langle \text{O}_2 \rangle$	128,000	137.6	10	640–1200	13

※1 E. T. Turkdogan, Physical chemistry of high temperature technology, Academic Press Inc New York, 1980.

- 核種が酸化物形態での溶鉄-スラグ層で移行する場合に用いる、平衡式で用いる酸化物生成ギブス自由エネルギー(ΔG_{MO}°)を算出

(例)スラグ生成反応式: $M(liquid) + \frac{1}{2}O_2(gas) = MO(slag)$

(例)溶鉄-スラグ層の平衡式: $exp\left[-\frac{\Delta G_{MO}^{\circ}}{RT}\right] = \frac{\gamma_{MO} \cdot X_{MO}}{\gamma_M \cdot X_M \cdot p_{O_2}^{1/2}}$

R = 気体定数
 T = 絶対温度
 p_{O_2} = 酸素分圧
 γ_M = Fe中M活量係数(ラウール基準)
 γ_{MO} = スラグ層中MO活量係数(ラウール基準)
 X_{MO} = スラグ層中MOモル分率
 X_M = Fe中Mモル分率

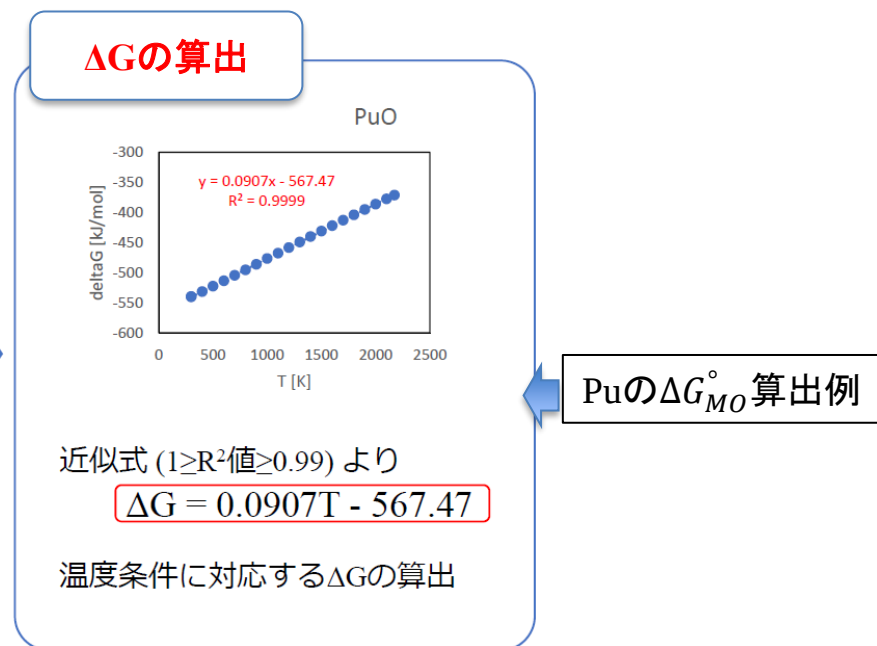
- 酸化物の ΔG_{MO}° について、参考文献※1より算出

データ取得

260.064 PLUTONIUM OXIDE PuO

Phase	T [K]	C_p J / (K mol)	S J / (K mol)	$-(G-H298)/T$ [-]	H kJ / mol	H-H298 kJ / mol	G kJ / mol	ΔH_f° kJ / mol	ΔG_f° kJ / mol	log K_f [-]
SOL	298.15	51.269	70.710	70.710	-564.840	0.000	-585.922	-564.840	-539.996	94.605
	300.00	51.323	71.027	70.711	-564.745	0.095	-586.053	-564.831	-539.842	93.995
	400.00	53.932	86.162	72.757	-559.478	5.362	-593.943	-567.714	-531.539	69.412
	500.00	56.087	98.435	76.703	-553.974	10.866	-603.191	-567.814	-522.528	54.588
	600.00	57.951	108.829	81.212	-548.270	16.570	-613.567	-568.004	-513.496	44.704
	700.00	59.604	117.889	85.818	-542.391	22.449	-624.913	-567.518	-504.449	37.642
	800.00	61.092	125.947	90.340	-536.354	28.486	-637.112	-568.723	-495.359	32.344
	900.00	62.438	133.222	94.707	-530.177	34.663	-650.076	-567.762	-486.245	28.221
	1000.00	63.659	139.864	98.895	-523.871	40.969	-663.735	-570.129	-476.946	24.913
	1100.00	64.767	145.984	102.902	-517.449	47.391	-678.032	-569.646	-467.650	22.207
	1200.00	65.772	151.664	106.731	-510.921	53.919	-692.918	-569.076	-458.402	19.954
	1300.00	66.679	156.965	110.394	-504.298	60.542	-708.352	-568.429	-449.205	18.049
	1400.00	67.497	161.937	113.900	-497.588	67.252	-724.300	-567.710	-440.061	16.419
	1500.00	68.231	166.619	117.260	-490.801	74.039	-740.730	-566.927	-430.970	15.008
	1600.00	68.886	171.044	120.484	-483.945	80.895	-757.815	-566.088	-421.933	13.775
	1700.00	69.468	175.238	123.583	-477.026	87.814	-774.931	-565.200	-412.950	12.688
	1800.00	69.981	179.223	126.564	-470.053	94.787	-792.855	-564.269	-404.021	11.724
	1900.00	70.432	183.019	129.436	-463.032	101.806	-810.769	-563.302	-395.145	10.863
	2000.00	70.824	186.642	132.207	-455.969	108.871	-829.253	-562.304	-386.320	10.050
	2100.00	71.163	190.106	134.882	-448.869	115.971	-848.092	-561.281	-377.546	9.391
	2173.00	71.380	192.542	136.778	-443.666	121.174	-862.059	-560.521	-371.172	8.922

References
Phase H / S C_p Remarks
SOL Pa1 Pa1 Pa1 MPT= 2173.



- C、Cl、Cs、Eu、Pu、Ru、Sb、Sr、Tc、U、Mnの酸化物について、1,600～1,700℃におけるガス及び／又はスラグ層の ΔG° を算出

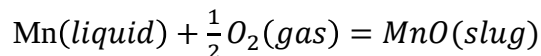
■ 酸化除去によるスラグ層への核種移行率の試算

✓ スラグ層中への不純物核種の酸化除去による分配比の見積：溶鉄-スラグ層の平衡式より、分配比を求める式に変形

$$\text{平衡式: } \exp\left[-\frac{\Delta G_{MO}^{\circ}}{RT}\right] = \frac{\gamma_{MO} \cdot X_{MO}}{\gamma_M \cdot X_M \cdot p_{O_2}^{1/2}}$$

$$\text{分配比: } \frac{X_{MO}}{X_M} = \frac{\gamma_M \cdot p_{O_2}^{1/2}}{\gamma_{MO}} \exp\left[-\frac{\Delta G_{MO}^{\circ}}{RT}\right] = L_M$$

Mnの分配比(1,873Kの場合)：



$$\Delta G_{Mn}^{\circ} = -357,000 + 63.49T(\text{J/mol})$$



共存核種の影響考慮前のMn活量： $\gamma_{Mn}^{\circ} = 1.43$

共存核種の影響考慮後のMn活量： $\gamma_{Mn} = 1.37$

MnO活量(γ_{MnO})=0.928



溶鉄(Fe)活量=1、FeO活量=0.1と仮定すると

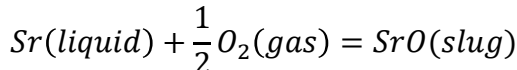
$$p_{O_2} = 1.35 \times 10^{-11} \text{ atm}$$

分配比を求める式に、
上記の値を代入

$$L_M = 24$$

スラグ層への核種移行率は、70.6%
メタル層への核種移行率は、29.4%

Srの分配比(1,873Kの場合)：



$$\Delta G_{Sr}^{\circ} = -645,000 + 133T(\text{J/mol})$$

Sr活量を同族のCaより算出



共存核種の影響考慮前のCa活量： $\gamma_{Ca}^{\circ} = 2,240$



共存核種の影響考慮後のSr活量： $\gamma_{Sr} = 1.20 \times 10^{-1}$

SrO活量(γ_{SrO})=0.126



溶鉄(Fe)活量=1、FeO活量=0.1と仮定すると

$$p_{O_2} = 1.35 \times 10^{-11} \text{ atm}$$

分配比を求める式に、
上記の値を代入

$$L_M = 385,424$$

スラグ層への核種移行率は、99.997%
メタル層への核種移行率は、0.0026%

製鋼反応でのCa-Sの平衡値が低い
ため、同族のSr-Sの平衡値も低くなり、
結果、Sr活量が低くなる
→スラグ層への核種移行率が高くなる

製鋼反応の推奨平衡値※1

*eCa S	=	-140	1873	K
eCa C	=	-0.34	1873	K
eCa Si	=	-0.096	1880	K
eCa Si	=	-0.096	1873	K
eMn P	=	-0.06	1673	K
eMn P	=	-0.054	1873	K
eMn S	=	-0.048	1823	K
eMn S	=	-0.047	1873	K
eMn C	=	-0.0538	1873	K
eMn Si	=	-0.0327	1873	K

*e: 相互作用助係数

炭素鋼(SS400)のP**、S、C、Si濃度と、CaまたはMnの平衡値より算出

(**Pの相互作用助係数は、 γ_{Sr} 算出には適用していない)

SS400の組成

元素	Fe	P	S	C	Si	合計
wt%	バランス	0.05	0.03	0.15	0.2	100

■ Sbのメタル層・スラグ層への移行の試算

- ✓ Sbなどの15族元素は、3価アニオンとしてCaO系スラグ層へ移行すると考えられ、CaO飽和CaO-CaF₂フラックスとFe間のSb分配比と酸素分圧の関係より求められる ※1

15族元素のSbとCaOの反応式： $Sb(l) + \frac{3}{2}CaO(s) = Ca_{1.5}Sb(s) + \frac{3}{4}O_2$

CaO飽和CaO-CaF₂フラックスとFe間のSb分配比と酸素分圧の関係式：

$$\log \frac{(M)}{[M]} = x \log a_{CaO} - \frac{x}{2} \log P_{O_2} + \log \frac{f_{M \text{ in metal}}}{f_{M \text{ in slag}}} + \log K = - (1)$$

$\frac{(M)}{[M]}$ = スラグ層とメタル層中の濃度比、分配時

a_{CaO} = CaOの活量

$\frac{f_{M \text{ in metal}}}{f_{M \text{ in slag}}}$ = メタル層とスラグ層中のMのヘンリー基準の活量係数の比

K = 15族元素とCaOの反応式の平衡定数

1,773Kの時の(1)式の第3項について、溶鉄(Fe)活量 $a_{Fe} = 1$ 、FeO活量 $a_{FeO} = 0.1$ の時、酸素分圧 $p_{O_2} = 1.95 \times 10^{-12}$ atm、Sb分配比 $\log L_{Sb}(\text{CaO satd.}) \cong 1.2$ より、

$$\log \frac{f_{M \text{ in metal}}}{f_{M \text{ in slag}}} = 4.53 \text{ at } 1,773K - (2)$$

(2)について、正則溶液を仮定し、1,873Kの時の値を求める

$$\log \frac{f_{M \text{ in metal}}}{f_{M \text{ in slag}}} = 4.29 \text{ at } 1,873K$$

1,873Kの時、 $\log L_{Sb}(\text{CaO satd.}) = 1.33$

CaOの活量は1,873Kで約0.04なので、(1)式に基づいた式より、

$$\log L_{Sb} = \frac{3}{2} \log a_{CaO} + \log L_{Sb}(\text{CsO satd.})$$

$$\log L_{Sb} = \underline{\underline{-0.771}}$$

スラグ層への核種移行率は、1.7%
メタル層への核種移行率は、98.3%

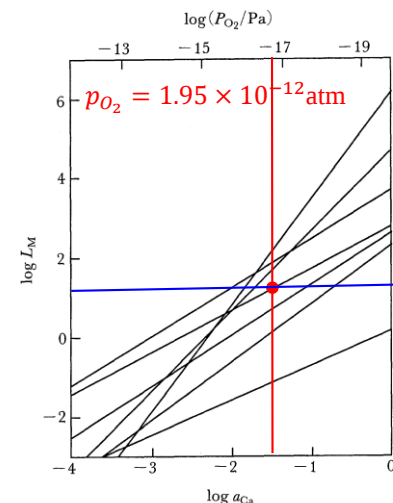
1,873K(1,600°C)におけるスラグ／メタル分配比※2及びメタル層への核種移行率※3

元素	分配比	核種移行率 (%)
U	2.60E+08	3.84E-06
Pu	7.96E+06	1.26E-04
Am	1.97E+02	4.82
Eu	8.47E+04	1.18E-02
Sr	3.88E+04	2.58E-03
Mn	23.9	29.5
Cs	1.98E+06	5.04E-04
Ru	1.13E-11	100
Tc	1.07E-08	100
Sb	1.69E-01	98.3

※2 分配比(L) = (スラグ中の元素の重量濃度) / (メタル中の元素の重量濃度)

※3 核種移行率(%) = $1 / (L \times 0.1^{※4} + 1) \times 100$

※4 「0.1」は、メタルに対するスラグの重量比



1,773KにおけるCaO飽和CaO-CaF₂系スラグとFe間の不純物元素の分配比に及ぼす酸素分圧の影響 ※1

■ 脱炭反応によるメタル層への核種移行率の試算

1,873Kの場合、 $[ppmC] \times [ppmO] = 250,000$ (CO1気圧下)
が成り立つ※1

O_2 の溶鉄中への溶解反応の $\Delta G_{O_2} : \frac{1}{2} O_2(gas) = O(mass\% \text{ in } Fe)$

$$\Delta G_{O_2}^\circ = -117,110 - 3.39T \text{ [J/mol]}$$

$$\Delta G_{O_2}^\circ = -RT \ln K \text{ [J/mol]}$$

$$(\text{平衡定数}: K = \frac{f_0[mass\%O]}{p_{O_2}^{1/2}} = 2.77 \times 10^3)$$

1,873Kにおいて、溶鉄(Fe)活量=1、FeO活量=0.1を仮定すると
酸素分圧(p_{O_2})= 1.35×10^{-11} atm、酸素mass%表示のヘンリー
基準の活量定数(f_O)=1より、

$$[mass\%O] = 0.0102$$

よって、平衡C濃度は $[mass\%C] = 0.24$

$p_{CO} = 0.1$ の場合は、 $[mass\%C] = 0.024$

Cのメタル層への核種移行率を算出

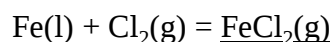
溶融試験に用いた炭素鋼中のCのミルシート値= 0.14 (mass%C)より、

$$p_{CO} = 0.1 \text{ の場合、} \frac{0.024}{0.14} \times 100 = \underline{17\%}$$

メタル層へのCの核種移行率

■ ガスへの塩化物形態でのハロゲンガス分圧の検討

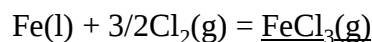
以下の反応の標準ギブスエネルギーより、塩化鉄またはヨウ
化鉄 p_{FeCl_2} 、 p_{FeCl_3} 、 $p_{FeI_2} = 0.1$ atmでのClまたはIの分圧を求め
る



$$FeCl_2(g) \text{ の } \Delta G_{Cl_2}^\circ = -181,000 - 17.5 T \text{ (J/mol)} = -214,000 \text{ (J)}$$

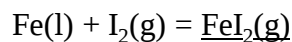
$$p_{Cl_2} = \frac{p_{FeCl_2}}{K} = \underline{0.000000110 \text{ atm}}$$

$FeCl_3$ 、 FeI_2 も次の標準ギブスエネルギーを用い、同様に計算を
行うと



$$FeCl_3(g) \text{ の } \Delta G_{Cl_2}^\circ = -274,000 + 34.1 T \text{ (J/mol)}$$

$$p_{Cl_2} = \underline{0.00000269 \text{ atm}}$$



$$FeI_2(g) \text{ の } \Delta G_{I_2}^\circ = -5,440 - 36.3 T \text{ (J/mol)}$$

$$p_{I_2} = \underline{0.000894 \text{ atm}}$$

1,873K (1,600°C)におけるメタル層への移行の
し易さの評価結果

元素	化合物形態	ハロゲンガス分圧 (atm)	メタル層への移 行のし易さ
Cl	$FeCl_2$	1.10E-07	移行しにくい
Cl	$FeCl_3$	2.69E-05	
I	FeI_2	8.94E-04	

※1 日本学術振興会製鋼第19委員会編、製鋼反応の推奨平衡値(改訂増補)、1984、256-258p.

■ ガスへの蒸発除去による平衡濃度の検討

- ✓ 溶融時に脱ガスが可能な真空度 $P_M = 0.1\text{atm}$ と想定し、ガスと平衡する溶鉄中のCs、Sb、Srの濃度を見積もる

CsとSrは、1,873Kの際の溶鉄中の活量係数 γ_{Ca}° を用いた

$$\gamma_{Ca}^\circ = 2,240$$

Sbについては以下を用いた※1

$$\log \gamma_{Sb}^\circ = -\frac{7030}{T} + 4.38$$



以下の蒸気圧を求める式より、Cs、Sr、Sbの平均モル分率 X_M を求める($P_M^\circ = \text{Cs, Sr, Sbの蒸気圧}$)

$$P_M = P_M^\circ \cdot a_M = P_M^\circ \cdot \gamma_M^\circ \cdot X_M$$

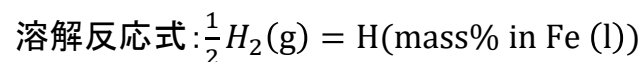
モル分率より、平衡濃度
(mass%)を求める

1,873K(1,600°C)におけるガスへの
核種移行率のし易さの評価結果

元素	平衡濃度 (mass%)	ガスへの移行の し易さ
Cs	1.11E-04	移行しやすい
Sb	4.99	移行しにくい
Sr	2.06E-03	移行しやすい

■ メタル層への溶解反応による溶鉄中の平衡水素濃度の検討

- ✓ Hの溶鉄中への溶解反応の標準ギブスエネルギーを考える※2



溶解反応での標準ギブズエネルギー変化

$$\Delta G_{H_2}^\circ = 36,500 + 30.4T \text{ (J/mol)}$$



平衡定数と溶鉄H度及び蒸気圧の関係式より、Hの蒸気圧 $P_{H_2} = 0.1\text{atm}$ の時の溶鉄中の平衡水素濃度を求める

$$K = \frac{[\text{mass\%H}]}{P_{H_2}^{1/2}} = \underline{\underline{0.000784[\text{mass\%}]}}$$

ガスへ移行しやすい

※1 Fumitaka Tsukihashi, et al., Activity coefficient of antimony and arsenic in molten iron and carbon saturated iron, Steel Research, vol.65, no.2, 1994, pp.53-57.

※2 G. K. Sigworth, et al., The Thermodynamics of Liquid Dilute Iron Alloys, Metal Science, vol.8, no.1, 1974, pp.298-310.