

技術報告



低レベル放射性試料の焼却実験システムの設置と燃焼実験

湯本泰弘, 花房直志, 永松知洋, 岡田 茂

岡山大学アイソトープ総合センター
700 岡山市鹿田町 2-5-1

1997年1月24日 受理

Key Words: low level radioactive sample (LLRS), experimental incineration system for LLRS

1. 目 的

岡山大学におけるすべての放射性廃棄物 (RW) について, その発生量を調べると 50% 近くは医学領域で発生する RW である。このうちの低レベル放射性廃棄物 (LLRW) は, ^3H と ^{14}C を除き, 短半減期の RW であるのみでなく, 大部分は比較的危険の少ない核種を使用する場合に発生する RW である。増大する処理経費は, 使用者負担の増大となって研究費を圧迫し, 放射性安全管理費用の大半を占めるようになった。そこで岡山大学アイソトープ総合センターに LLRW の施設内での処理方法を検討することを目的として, 低レベル放射性試料の焼却実験システムを設置した。

基礎的な燃焼実験として非放射性試料に一核種の一定量を添加した可燃性低レベル放射性試料 (LLRS) をそれぞれの核種ごとに焼却して, 燃焼実験炉内外における RI 動態の解析を行うことを目的とした。

2. 焼却実験システムの設置

慶応大学の放射性廃棄物焼却炉の RI 測定システムを改良し, 新しく共同開発した焼却実験システムは, ① 中和機工製の焼却実験炉 AP-150R およびサイクロン集塵機, ② 煙道ガス中の放射性物質の捕集と測定のために, 当センターと中和機工および応用光研で改良して開発した煙

道ガス吸引器とこれに連結したサンプリングフィルタ交換装置を内蔵した放射性物質測定装置, および ③ 地下貯蔵室より構成されている。新たに焼却実験棟周辺に管理区域を設定した。

2.1 焼却研究棟

焼却研究棟は, 焼却実験作業室 (17.98 m²) および焼却実験室 (7.64 m²) とから構成され, 鉄骨構造で延面積 30.25 m² である。また本焼却研究棟に単独の放射線管理区域を設定したため, 出入口に汚染検査室 (4.63 m²) を設けた。焼却実験作業室に焼却実験炉 AP-150R の本体を設置した。焼却実験室では燃焼実験の排気ガス中の放射性物質の分析, 測定等を行う。なお, 焼却実験用の LLRS は使用中 RI として一時保管する。そのためアイソトープ総合センターの地下に地下貯蔵室を設けた。なお焼却実験後の焼却炉残渣は既設岡山大学アイソトープ総合センターの保管廃棄室に入れる。

2.2 LLRS 燃焼実験炉

焼却実験炉ならびに焼却実験装置の処理系統図を Fig. 1 に示した。

燃焼実験炉: 中和機工製 AP-150R,

燃焼実験温度: 200 - 1 000 °C,

燃焼方法: 水冷強制押込通風方式,

焼却能力: 120 - 150 kg/h。

設計の留意点として, RI 焼却実験炉内の緊

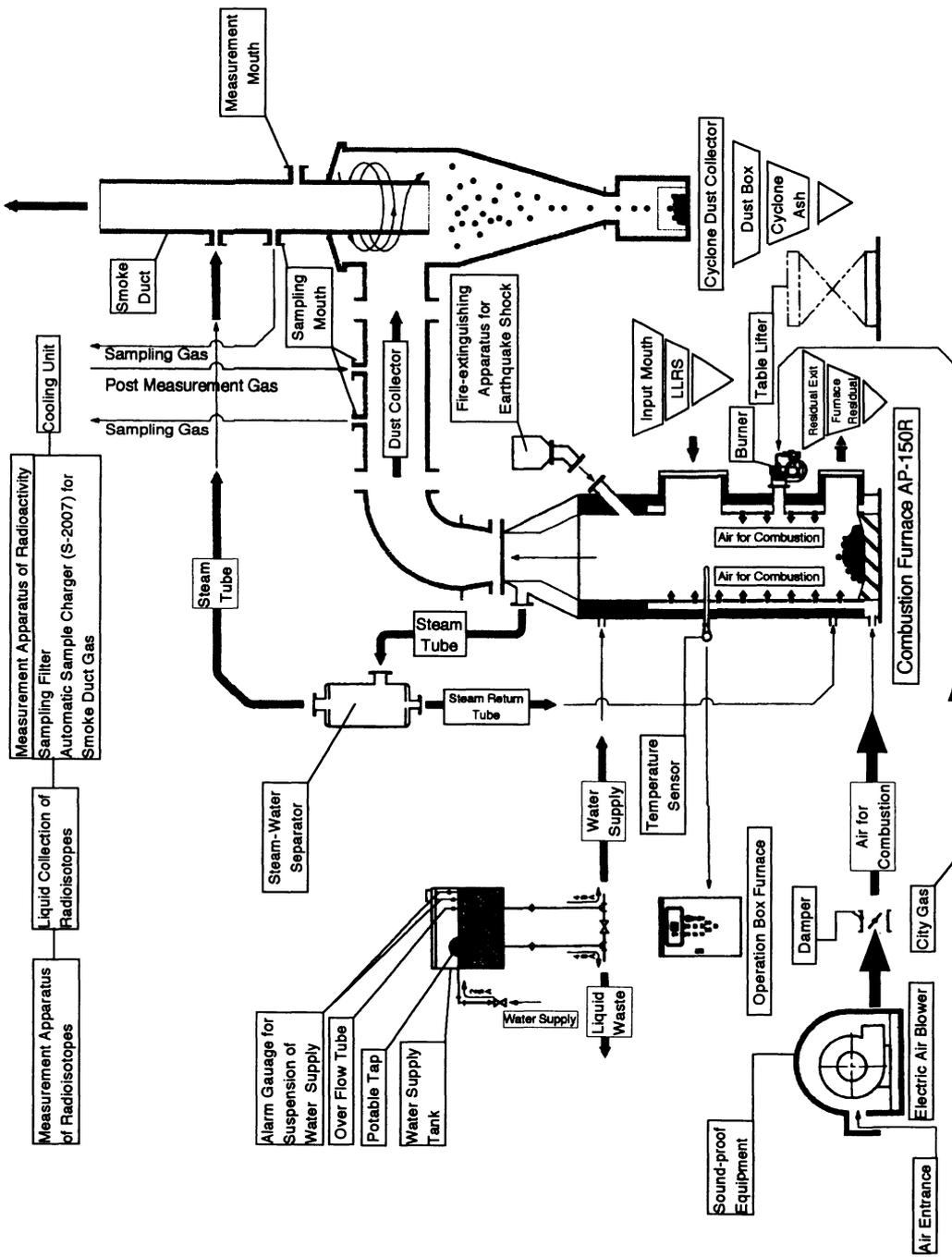


Fig. 1 Experimental incineration system.

急時の消火装置としては, 消火後の RI 汚染の除去を考えて回収可能な砂を用いた砂消火装置とした。

2.3 サイクロン集塵機 接線流入方式。

2.4 焼却実験炉煙道排気ガス放射性物質 測定装置

LLRS 焼却実験炉用の放射性物質測定装置は, 焼却実験炉排気ガスおよびダスト中に含まれる放射性物質およびその化合物を自動的に計測, 評価できる機器類, の構成とした。詳細は 3.1 に記した。

3. 焼却実験方法および焼却対象

3.1 焼却実験中の排気ガス中の RI 濃度 の測定

LLRS の焼却実験に際して, 焼却炉排気ガス中の放射性物質の測定器は, 焼却実験炉からサイクロンを経由して大気中へ放出される排気の一部をサンプリングして排気中の RI 濃度を直接自動測定するものである。排気口の排気ガスを焼却実験炉の煙道に設けた吸込み口よりポンプで吸引して, パイプによって引き込み, 空気冷却器を通して 40℃ 以下に冷却する。小型焼却炉用放射線モニタのサンプリングフィルタ自動交換装置 (応用工研 S-2007) の捕集部に装着された活性炭フィルタ上 (CP-20 3枚, GB-100 フィルタ 2枚も併用可能) に排気ガス中の RI を一定時間捕集する。捕集部はフィルタを収めたステンレスの円筒を最大 7 個まで搭載でき, パソコン操作で自動的に交換できる機構となっている。

等速吸引を行う目的でサイクロン通過前後に煙道ガス吸引口と平行して煙道ガスの風速と温度を測定するために, 風速計ピトー管 (岡野製作所) と温度計 (熱線風速計 V-02-ADP700 型) を設置した。煙道ガスの風速と温度を測定して記録した。これらの測定値に基づいて焼却

実験室の放射性物質測定装置の吸引ガスの流量を下記の式によって算定した。この流量に基づいて捕集部分の吸引ガス流量を設定した。

$$Y = \frac{\pi (r/2)^2 A (273 + t_1)}{273 + t_2}$$

ただし,

Y: 吸引ガスの流量 (l/min),

A: 煙道ガスの風速 (m/s),

t₁: 煙道ガス温度 (℃),

t₂: RI 測定装置の吸引ガス温度 (℃),

r: 吸引管の直径 (cm)。

フィルタ上に捕集された煙道ガス中の RI は, γ線およびβ線放出核種に対応して NaI またはプラスチックシンチレーション検出器によって測定する。γ放出核種のエネルギーに適応して 0.2 cm と 2 cm 厚の NaI 検出器が交換できる。Be 窓を持った NaI(Tl) シンチレーション検出器で検出するので ¹²⁵I のような低エネルギーγ線およびβ線の制動放射に対しても高感度の測定が可能となっている。シンチレーション検出器からの信号は計測部でデジタルで表示され, パーソナルコンピュータで所定の処理を行った後, 表示部に測定時刻とともに処理結果を Bq/cm³ の形で表示する。また, 処理結果をプリンタに打ち出すと同時にフロッピーディスクにも記録する。

サイクロン通過前後より吸引した煙道ガス中の放射能測定値とサイクロン灰の放射能測定値によって, サイクロンによる RI の捕集効率を求めた。

3.2 最終排気口排気ガス流量の測定

煙道の最終排気口に排出ガスを定量する目的で, アニューバ流量検出器 (Annubar Industrial Products) を設置して流速を測定して, 最終排気口流量を求めた。

3.3 排気ガス中の RI 量の測定

フィルタ通過後の塵埃に付着した RI が除去された排気ガスを 0.5 N HCl, 0.5 M H₂O₂ お

および5%チオ硫酸ナトリウムなどの捕集液体中にバブリングさせてRIの捕集を行い、 γ 線スペクトロメータにて測定した。

3・4 焼却実験後における炉の残渣およびサイクロン灰のRI測定

(1) 焼却実験炉の残渣およびサイクロン灰の回収を容易にするために、ステンレス製の受皿を作製して焼却炉床面とサイクロン灰貯留部に置いた。またサイクロン集塵機は屋外に設置されるため、サイクロン灰の飛散防止対策として、下部にダストボックスおよびダストボックス部カバーを設置した。

焼却炉残渣をBe窓(厚さ200 μ m)低エネルギー用薄厚(2mm)NaIシンチレーションサーベイメータおよびガスフローサーベイメータの検出器(ALOKA, FC-280)で測定した。また少量をカウンタチューブにとり、低バックシンチレーションカウンタ(応用光研製)で測定した。またGe半導体検出器によって核種と数

量进行评估した。

(2) 焼却炉の内壁の数点において内壁の灰様の付着物を集めてRIをイメージングアナライザおよびNaIシンチレーションカウンタにて測定した。また掃除機によって、内壁の灰様の付着物を一定の面積について集塵し、各燃焼核種ごとのRI量を算定し、内壁の総面積を掛けて、焼却炉の内壁付着総RI量としたが、誤差が大きい。焼却実験時の煙道ガス中RI濃度、残渣、およびサイクロン灰の測定方法はTable 1に示した。

3・5 ^{131}I 添加固体試料の焼却実験

炉の温度が190 $^{\circ}\text{C}$ に上昇したとき、灯油を加えた可燃物7.5kgを投入して燃焼し、炉内温度は224 $^{\circ}\text{C}$ に上昇した。そのとき煙突出口($r=58$ cm)の風速1.75m/s、温度は118 $^{\circ}\text{C}$ で、最終排気口の風量は20757l/min(20 $^{\circ}\text{C}$)を示した。 ^{131}I Naの23.25kBqを可燃物試料1kgに添加して投入して焼却した。GB100の2

Table 1 Radioactivity evaluation apparatus for Low level radioactive samples (LLRS)

Incineration		off gas		Cyclon		off gas			
Furnace	AP-150R	furnace residue	Wall ash	ash	disposal				
	(Chuwakikou)								
sample	radionuclide (LLRS)	(kBq)	filter collection		evaluation apparatus of filter radioisotopes				
			CP-20	GB-100R	scintillation counter			gas flow	
exhaust gas	1. $^{99m}\text{TcO}_4$	500	2	2	NaI	plastic	liquid	NaI well type	gas flow
	2. ^{131}I Na	23.25		3	2	Y	N	N	Y
sample	radionuclide (LLRS)	(kBq)	liquid collection		evaluation apparatus of filter RI scintillation counter				
					NaI		liquid		
exhaust gas*	1. $^{99m}\text{TcO}_4$	500	0.5MH ₂ O ₂		Y		N		
	2. ^{131}I Na	23.25	5%Na ₂ S ₂ O ₃		Y		N		
sample	radionuclide (LLRS)	(kBq)	evaluation apparatus of radioisotopes in the filter						
			NaI counter	Ge detector	IA	gas flow	CM		
furnace residue	1. $^{99m}\text{TcO}_4$	500	Y	Y	N	N	N		
furnace wall ash	2. ^{131}I Na	23.25	Y	Y	N	N	N	N	
Cyclone ash									

* Exhaust gas after passing through collection filter for radioisotopes, abbreviation Y: yes, N: no use, IA: imaging analyzer (Fuji Bas 2000-II) LLRS: low level radioactive samples

Table 2 Estimation of radioactivities in exhaust gas, furnace residue and cyclone ash during LLRS incineration by combustion furnace AP-150R

RN	LLRS	Burned total activity (kBq)	Furnace residue (kBq)	Furnace wall ash (kBq)	Cyclone ash (kBq)	Estimated off gas concentration (Bq/cm ³)	Total exhaust gas radioactivities		Burning time (h)	Recovery (%)
							(kBq)	DF		
^{99m} TcO ₄	Combustible mat.	500	868 86.8 %	15.8 1.58%	46 4.60%	7.64E-07	4.76	105	5h	93.8
	Semi-combustible	500				5.73E-07	3.57	140	5h	
	Total	1000				(limit 1.0E-02)	8.33	120		
¹³¹ I-Na	Combustible mat.	23.25	3.79 8.15 %	0.1 0.22%	0.054 0.12%	2.05E-06	20.4	1.14	8h	100.5
	Semi-combustible	23.25				2.25E-06	22.4	1.04	8h	
	Total	46.5				(limit 1.0E-05)	42.8	1.09		

abbreviation

RN: radionuclide, LLRS: low level radioactive samples

DF: decontamination factor (burned total radioactivities / total exhaust gas radioactivities)

枚, CP-20 3枚を用いて, 34.5 l/min (20 °C) にて吸引してフィルタで捕集した。フィルタを通過した煙道ガスをさらに5%チオ硫酸ナトリウム溶液中にバブリングさせることによって¹³¹Iの液体捕集を行った。8時間で燃焼を終了した。次いで難燃物17kgを投入して, 炉の温度が208 °Cに上昇した時点で, 23.25 kBqの¹³¹I-Naを添加した難燃物1kgを投入した。炉の焼却温度が229 °Cに上昇した。燃焼時間は8時間であった。翌日, 焼却残渣, サイクロン灰および内壁, 焼却炉内壁の¹³¹Iを測定した。焼却による減重量率は可燃物で100分の1以下, プラスチック等の難燃物では500分の1以下であった。

4. 結果

(1) ^{99m}TcO₄ および ¹³¹I-Na の2種を可燃および難燃物に添加して燃焼した。焼却炉および煙道におけるRIの分布の測定結果をTable 2に示した。500 kBqの^{99m}TcO₄を添加した可燃物1.0 kg および難燃物1.5 kgを焼却し, 排気口のRI濃度は可燃物焼却時には 7.64×10^{-7} Bq/cm³, 難燃物燃焼時には 5.73×10^{-7} Bq/cm³で^{99m}TcO₄の濃度限度 1.0×10^{-2} Bq/cm³以下であった。^{99m}TcO₄ および ¹³¹I-Naの焼却実験時の煙道ガスの最終排気口におけるRI濃度が, Table 2の最終排気口におけるRI濃度の下段括弧の中に記した法定濃度限度と比較して桁ちがいに小さい値を示した。またサイクロン灰およびサイクロン壁中に46.0 kBqの^{99m}Tcを検出した。一方, 焼却した各核種の炉内の分布について検討すると, ^{99m}Tcについては焼却炉残渣87%, 炉壁1.58%, サイクロン灰およびサイクロン内壁中で4.6%となった。焼却残渣に大部分が残り, 煙道ガスとして0.83%が飛散し, 焼却実験システムのDFは120.0を示した。回収率は93.8%であった(Table 2)。

(2) ¹³¹I-Naを添加した可燃物と難燃物の焼却実験時に, 煙道ガスを吸引して, チャコールフィルタ3枚, GB-100フィルタ2枚に捕集測

定するとともに、フィルタ通過後の ^{131}I およびその化合物を 5%チオ硫酸ナトリウムによって液体捕集し測定した (Table 1)。 ^{131}I の放射能の経時的変動を示すと、可燃物焼却実験時には 10分でピークに達し、その後漸減して 50分で検出不可能となった。難燃物焼却実験時には 30分でピークを形成して、その後漸減して 100分では検出できなくなった。いずれの最高値も法定濃度以下であった。 ^{131}I Na の 23.25 kBq を添加した可燃物および難燃物の焼却時に、排気口濃度は 8 時間平均濃度はそれぞれ 2.05×10^{-6} および 2.25×10^{-6} kBq を示した。両者とも法定濃度 1.0×10^{-5} Bq/cm³ 以下の値である。またサイクロン灰およびサイクロン壁中に 540 Bq の ^{131}I Na を検出した。 ^{131}I Na は焼却残渣中に 8.15%、炉壁に 0.22%、サイクロン灰およびサイクロン壁中に 0.12%、煙道ガスとして 92.0% が放出され、焼却実験システムの DF は 1.1 を示した。回収率は 100.5% であった (Table 2)。

5. 考 按

5.1 新焼却実験システムの改良点

慶応大学医学部においては中和機工製の焼却炉 AP-150 を使用して、 ^{125}I 含有放射性固体廃棄物を中心として焼却実験が行われた^{2),3)}。焼却炉 AP-150 を改良した焼却実験炉 AP-150R と応用光研のガス捕集装置を含む放射能測定装置に改良を加えて、LLRS を一時的に貯蔵するための地下貯蔵室を設置して焼却実験システムを開発した。その主な追加ならびに改良した 6 点を下記に示す。

(1) 使用中の状態にある LLRS を一時的に貯蔵するためにアイソトープ総合センターの地下に地下貯蔵室を新設した。

(2) 煙道ガス流速と等速で吸引することによって、煙道ガス中に含まれる塵埃に付着した RI とガス状の RI を正確に捕集することが可能となった。

(3) 吸引量を増量するために、煙道ガス中

RI 捕集のためにろ紙の直径を 5 cm に拡大した。また ^{125}I 、 ^{131}I 、および ^{123}I を含む LLRS の燃焼実験を行うときには、CP-20 を 3 枚重ねてもヨウ素ガスが 70% 程度しか捕集できないため、捕集部を改良して活性炭カートリッジを装置可能にした。

(4) CP-20 などのろ紙捕集部を通過した煙道ガス中の RI 捕集のために液体捕集を追加した。ポンプにより吸引した煙道の排気ガスはヨウ素捕集の際には 5%チオ硫酸ナトリウム、 ^{35}S 捕集のためには 0.5 M H_2O_2 を、それぞれ $^3\text{H}/^{14}\text{C}$ 捕集装置 (HCM-101B, ALOKA) の液体捕集部分に満たした。この装置にて 1 l/min の流速で吸引できるようにした。同時にダストサンプラ (M and F) で 3 l/min の流速で吸引して、上記のそれぞれの捕集液体の中にバブリングを行った。

5.2 焼却炉残渣、炉壁付着物およびサイクロン灰中 RI の測定

今回残渣中に多く留まる $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、および排気ガス中に飛散する ^{131}I の 2 核種の焼却実験を行った。

可燃物および難燃物焼却時における最終排気口の ^{131}I の濃度は 2.05×10^{-6} および 2.25×10^{-6} Bq/cm³ と法定濃度限度の 1.0×10^{-5} Bq/cm³ 以下の低値を示した。 ^{131}I の法定濃度限度は ^{125}I の 2.0×10^{-5} Bq/cm³ ならびに ^{123}I の 2.3×10^{-3} Bq/cm³ のうちで最低値である。煙道ガス中 RI 濃度の法定濃度に対する割合が 8 時間の焼却実験時間平均濃度で 1/4 ないし 1/100 の低値を示した。今後、焼却実験済みの 2 核種以外で、科学技術庁で承認された使用頻度の多い 13 核種について LLRS の燃焼実験を行う予定である。

焼却実験棟の設計と建設に尽力された岡山大学施設部の関係者と等速吸引に関してご指導をいただいた中和機工(株)燃焼工学研究所、福本勤所長に感謝いたします。

文 献

- 1) “研究分野における放射性廃棄物の取り扱い”, p. 6, 日本アイソトープ協会, 東京 (1995)
- 2) Naba, K., Nakazato, K. and Imao, K. : Incineration System for RIA Tube Garbage, *J. Rad. Res.*, **26**, 87 (1985)
- 3) Vetter, J. : Incineration of biomedical low-level radioactive waste, *Health Phys.*, **62**, (2), 45-51 (1992)

Abstract

Setting up Experimental Incineration System for Low-level Radioactive Samples and Combustion Experiments. Yasuhiro YUMOTO, Tadashi HANAFUSA, Tomohiro NAGAMATSU and Shigeru OKADA : Radioisotope Center, Okayama University, 2-5-1, Shikata-cho, Okayama-shi 700, Japan.

An incineration system was constructed which

were composed of a combustion furnace (AP-150 R), a cyclone dust collector, radioisotope trapping and measurement apparatus and a radioisotope storage room built in the first basement of the Radioisotope Center.

Low level radioactive samples (LLRS) used for the combustion experiment were composed of combustible material or semi-combustible material containing 500 kBq of $^{99m}\text{TcO}_4$ or 23.25 kBq of $^{131}\text{I}Na$. The distribution of radioisotopes both in the inside and outside of combustion furnace were estimated. We measured radioactivity of a smoke duct gas in terminal exit of the exhaust port. In case of combustion of LLRS containing $^{99m}\text{TcO}_4$ or $^{131}\text{I}Na$, concentration of radioisotopes at the exhaust port showed less than legal concentration limit of these radioisotopes. In cases of combustion of LLRS containing $^{99m}\text{TcO}_4$ or $^{131}\text{I}Na$, decontamination factors of the incineration system were 120 and 1.1, respectively.

(Received January 24, 1997)