

JAERI-M
90-161

異常過渡特性実験のための小型パルスカラム
抽出装置の製作と運転方法

1990年9月

若松 幸雄・佐藤 真人・久保 伸夫
桜井 聡・阿見 則男

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し込みください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1990

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 ニッセイエプロ株式会社

異常過渡特性実験のための小型パルスカラム抽出装置の製作と運転方法

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

若松 幸雄・佐藤 真人・久保 伸夫

、 桜井 聡・阿見 則男

(1990年8月27日受理)

再処理抽出工程における共除染工程の異常過渡特性を研究するため、抽出及び洗浄塔から成る小型パルスカラム抽出装置(有効抽出部: $25\phi \times 2260\text{mm}^{\text{H}} \times 2$ 塔)を製作した。また付帯設備として、抽出実験の後で発生する低濃度のウラン水溶液を再使用するためにウラン水溶液濃縮装置も製作した。

ここでは、各々の装置製作に当たっての設計上の留意事項、設計製作仕様を述べると共に、異常過渡特性実験を行うに必要な装置の運転方法について述べる。

特に、運転操作方法については、ウラン抽出実験はもとより、実験に用いる給液調製、実験後の溶液の処理(逆抽出、季積剤洗浄、アルカリ洗浄、ウラン水溶液濃縮)について述べた。

Description of Design and Operating Procedures of Small
Scale Pulsed Columns for Experimental Study on
Extraction Process under Abnormal Conditions

Sachio WAKAMATSU, Makoto SATO, Nobuo KUBO
Satoshi SAKURAI and Norio AMI

Division of Fuel Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun Ibaraki-ken

(Received August 27, 1990)

To study transient phenomena in a pulsed column co-decontamination process under abnormal conditions, a pair of small scale pulsed columns (effective extraction section; I.D: 25 mm, H.: 2260 mm) for extraction and scrub were installed in the laboratory.

An evaporator of aqueous uranium solution was also equipped to reuse concentrated solution as the feed.

This report describes several items to have been carefully treated in design, specification and operating procedure of the apparatuses for the experiments.

Also described are the procedures for preparation of the feed solutions and treatments of the solutions after the experiments; back-extraction of uranium, diluent washing, alkaline washing and concentration of uranium solution.

Keywords: Co-decontamination Process, Pulsed Column, Extraction, Scrub, Evaporator, Back-extraction, Diluent Washing, Alkaline Washing, Specification

目 次

1. はじめに	1
2. 装置の仕様	1
2.1 パルスカラム抽出装置	1
2.1.1 カラム・セトラ	2
2.1.2 パルス発生ポンプ・インバータ	3
2.1.3 サンプリング機構・温度計・サイトグラス	4
2.1.4 ポンプ・配管・エアチャンバ・検量器・槽	5
2.2 ウラン水溶液濃縮装置	7
2.2.1 再沸器・凝縮器	7
2.2.2 恒温槽・熱媒体	8
2.2.3 ポンプ・配管・槽	9
3. 運転方法	11
3.1 給液調製	11
3.2 ウラン抽出実験	11
3.3 後液処理	14
3.3.1 逆抽出	14
3.3.2 希釈剤洗浄	15
3.3.3 アルカリ洗浄	16
3.4 ウラン水溶液濃縮	18
4. あとがき	20
謝辞	20
参考文献	20
付録	37

Contents

1. Preface	1
2. Specifications of the equipment	1
2.1 The pulsed columns	1
2.1.1 The columns and the settlers	2
2.1.2 The pulsers and the inverters	3
2.1.3 The sampling devices, the thermo-meters and the sight-glasses	4
2.1.4 The pumps, the pipes, the air-chambers, the guager and the vessels	5
2.2 The evaporation of aqueous uranium solution	7
2.2.1 The reboilers and the condensers	7
2.2.2 The thermostatic oil bath and the heating medium	8
2.2.3 The pumps, the pipes and the vessels	9
3. Operating procedures	11
3.1 Preparation of feed solutions	11
3.2 Experiments for uranium extraction	11
3.3 Treatments of solution after experiments	14
3.3.1 Back-extraction	14
3.3.2 Diluent washing	15
3.3.3 Alkaline washing	16
3.4 Evaporation of aqueous uranium solution	18
4. Afterword	20
Acknowledgment	20
References	20
Appendix	37

1. はじめに

再処理抽出工程において、誤操作によって有機溶媒の流量減少、ウラン供給液の流量増加、洗浄液の酸濃度低下といった異常が起きた場合、抽出器内でプルトニウムのリサイクル蓄積が生じ、臨界安全上重要な現象を生じる可能性がある。本研究室ではミキサセトラ抽出装置を用いて、プルトニウムをウラン(IV)で模擬することにより、この蓄積現象の実験的研究を行い、一連の知見を得た⁽¹⁾。一方パルスカラムは、ミキサセトラより装置内容量が小さい割合には大量の核燃料物質を処理できる利点を持ち、再処理工程の主要な抽出装置として採用されている。このため、パルスカラム抽出装置（以後パルスカラムと略す）を用いて実験を行う予定である。この実験を行うため小型パルスカラム装置（有効抽出部：25^φ × 2260^{mm} × 2塔）と、抽出実験の後で生じる低濃度ウラン水溶液を再使用するためウラン水溶液濃縮装置を製作した。

本報では、各々の装置の製作にあたって設計上の留意点、及び設計仕様並びにその運転方法について述べる。

2. 装置の仕様

2.1 パルスカラム抽出装置

パルスカラムは有機相と水相を効率よく接触させ、両相間で物質移動を行った後に有機相と水相を分離して別々に抜出す装置である。主な機器として抽出・洗浄のための2本のカラム、カラム内の流体に脈動を与える2台のパルス発生ポンプ、溶液移送用の6台のポンプから構成される。その構成を図1に示す。

装置の設計製作にあたっては、抽出溶媒として30%リン酸トリブチル(TBP)/ノルマルドデカン(n-DD)を用い、ウラン取扱量3kg、ウラン原液調製濃度250g/l、運転時間10時間として、カラム内径、目皿間隙、ポンプ容量、パルス発生ポンプの仕様を決定した。カラム高さは実験棟の天井の高さから制限された。カラム内溶液のウラン濃度、酸濃度プロファイルを測定するためサンプル取り出し口を設けた。抽出反応によるカラム内溶液の温度変化を測定するために自動記録温度計を設置した。材質選定にあたっては、耐食性と視認性を考慮した。カラム本体の支持方法は、42.8^{mm}の鉄製パイプを使用して4本の支柱を立て、軸方向5ヶ所で井型に横棒を継ぎ架台を組立てた。架台の上下2ヶ所で本体の加重を支え、支柱より張り出した5本のサポートによりカラム継手部を固定して、カラム本体の曲り、歪み、転倒等を防いだ(写真1参照)。またカラム本体の下方の床には容量約20lのSUS製バットを置き溶液漏洩に備えた。各構成機器の個別仕様は以下の通りである。

1. はじめに

再処理抽出工程において、誤操作によって有機溶媒の流量減少、ウラン供給液の流量増加、洗浄液の酸濃度低下といった異常が起きた場合、抽出器内でプルトニウムのリサイクル蓄積が生じ、臨界安全上重要な現象を生じる可能性がある。本研究室ではミキサセトラ抽出装置を用いて、プルトニウムをウラン(IV)で模擬することにより、この蓄積現象の実験的研究を行い、一連の知見を得た⁽¹⁾。一方パルスカラムは、ミキサセトラより装置内容量が小さい割合には大量の核燃料物質を処理できる利点を持ち、再処理工程の主要な抽出装置として採用されている。このため、パルスカラム抽出装置（以後パルスカラムと略す）を用いて実験を行う予定である。この実験を行うため小型パルスカラム装置（有効抽出部：25 ϕ × 2260^{mm} × 2塔）と、抽出実験の後で生じる低濃度ウラン水溶液を再使用するためウラン水溶液濃縮装置を製作した。

本報では、各々の装置の製作にあたって設計上の留意点、及び設計仕様並びにその運転方法について述べる。

2. 装置の仕様

2.1 パルスカラム抽出装置

パルスカラムは有機相と水相を効率よく接触させ、両相間で物質移動を行った後に有機相と水相を分離して別々に抜出す装置である。主な機器として抽出・洗浄のための2本のカラム、カラム内の流体に脈動を与える2台のパルス発生ポンプ、溶液移送用の6台のポンプから構成される。その構成を図1に示す。

装置の設計製作にあたっては、抽出溶媒として30%リン酸トリブチル(TBP)/ノルマルドデカン(n-DD)を用い、ウラン取扱量3kg、ウラン原液調製濃度250g/ℓ、運転時間10時間として、カラム内径、目皿間隙、ポンプ容量、パルス発生ポンプの仕様を決定した。カラム高さは実験棟の天井の高さから制限された。カラム内溶液のウラン濃度、酸濃度プロファイルを測定するためサンプル取り出し口を設けた。抽出反応によるカラム内溶液の温度変化を測定するために自動記録温度計を設置した。材質選定にあたっては、耐食性と視認性を考慮した。カラム本体の支持方法は、42.8^{mm} ϕ の鉄製パイプを使用して4本の支柱を立て、軸方向5ヶ所で井型に横棒を継ぎ架台を組立てた。架台の上下2ヶ所で本体の加重を支え、支柱より張り出した5本のサポートによりカラム継手部を固定して、カラム本体の曲り、歪み、転倒等を防いだ(写真1参照)。またカラム本体の下方の床には容量約20ℓのSUS製バットを置き溶液漏洩に備えた。各構成機器の個別仕様は以下の通りである。

2.1.1 カラム・セトラ

(1) カラム

カラムは、有機相と水相を接触させ物質移動を行うために使用する。接触効率を上げるために目皿板を入れている。また目皿板の間隔はシャフトとカラーで一定に保たれている。カラムの内径および目皿の間隔の決定にあたっては西独K F K研究所で製作された小型パルスカラム“MINKA”⁽²⁾の仕様を参考にした。また一般の大型パルスカラムでは目皿の孔径3 mm、開口率23%が標準的であるが⁽³⁾、本カラムにおいては加工上の制約から表1の仕様とせざるをえなかった。このため、本カラムで得られるデータを、他のデータと比較する際には、カラムの基本特性を考慮する必要がある。実験原案の計画時には、抽出カラムは有機相連続、洗浄カラムは水相連続で実験する予定であったため、2塔それぞれのカラム内容物（目皿板、サポート、シャフト、カラー等）の材質を変えて、中の流体がスムーズに流れる様に考えた。

カラムの主な仕様を表1、カラム・セトラの全体図を図2、またカラムの詳細図を図3に示す。

表1 カラムの仕様

機 番	C-1	C-2
機器名称	抽出カラム	洗浄カラム
本 体	25 ^{mm} I.D × 34 ^{mm} O.D × 420 ^{mm} L × 5本 (有効容積 1006 ml)	
材 質	西独SCHOTT社製ガラス	西独SCHOTT社製ガラス
目 皿		
板	24.5 ^{mm} O.D × 1.0 ^{mm} T × 70枚	24.5 ^{mm} O.D × 1.0 ^{mm} T × 70枚
孔	2 ^{mm} φ × 5 ^{mm} PITCH△ × 18個	2 ^{mm} φ × 5 ^{mm} PITCH△ × 18個
断面積比	開口比率 12%	開口比率 12%
段間隔	30 mm	30 mm
材 質	テフロン	SUS304
サポート	44.0 ^{mm} O.D × 3.0 ^{mm} T × 5枚	44.0 ^{mm} O.D × 2.0 ^{mm} T × 5枚
材 質	テフロン (PTFE)	SUS304
シャフト	5 ^{mm} φ × 446 ^{mm} L × 5本	4 ^{mm} φ × 446 ^{mm} L × 5本
材 質	テフロン (PTFE)	SUS304
カラー	5 ^{mm} I.D × 7 ^{mm} O.D × 29 ^{mm} L × 75個	4.35 ^{mm} I.D × 6.35 ^{mm} O.D × 29 ^{mm} L × 75個
材 質	テフロン (PTFE)	SUS304
カップリングアダプタ	25 ^{mm} I.D × 54 ^{mm} O.D × 40 ^{mm} H	25 ^{mm} I.D × 54 ^{mm} O.D × 40 ^{mm} H
材 質	テフロン (PTFE)	テフロン (PTFE)

(2) セトラ

セトラは、有機相と水相の混合溶液を有機相と水相に相分離するために使用する。容量が大きい、すなわち液滞留時間が長いならば分離効果が良いが、定常到達時間が長くなる傾向にあると言われる。セトラの大きさの違いが定常到達時間に与える影響を確認するため3種類のセトラ(S, L, M)を製作した。

セトラの主な仕様を表2、また上部及び下部セトラの構造をそれぞれ図4及び5に示す。

表2 セトラの仕様

	(S)	(M)	(L)
上部	45 ^{mm} I.D×260 ^{mm} H(345 ml)	78 ^{mm} I.D×290 ^{mm} H(910 ml)	78 ^{mm} I.D×400 ^{mm} H(1410 ml)
下部	45 ^{mm} I.D×260 ^{mm} H(345 ml)	78 ^{mm} I.D×290 ^{mm} H(910 ml)	78 ^{mm} I.D×400 ^{mm} H(1410 ml)
材質	西独SCHOTT社製ガラス	西独SCHOTT社製ガラス	西独SCHOTT社製ガラス

2.1.2 パルス発生ポンプ・インバータ

(1) パルス発生ポンプ

パルス発生ポンプは、カラム内の流体に脈動を与え、有機相または水相の分散を促進して両相の接触効率を高めるとともに、液の流動をスムーズに行わせるために使用する。運転当初のパルス発生ポンプは、日本フィード工業(株)製 SXW1-23型ダイヤフラムポンプを使用していた。このポンプはスプリングバック方式であるため、振幅を小さくすると運転中に急にカラム内の液流速が早くなったり、分散相の液滴が細くなる等の現象が生じ、運転状態が不安定になった。ポンプの改良だけで上記の現象を防ぐことができなかったため、現仕様のポンプと取替えた。

パルス発生ポンプの主な仕様を表3に示す。

表3 パルス発生ポンプの仕様

機番	PR-1	PR-2
機器名称	抽出パルス発生ポンプ	洗浄パルス発生ポンプ
型式	SLクランク方式ダイヤフラム定量ポンプ	
ストローク長	25 mm (可変)	25 mm (可変)
ストローク数	96 cpm (最大)	96 cpm (最大)
材質	SUS 316 (接液部)	SUS 316 (接液部)
電力	0.2 KW AC. 200 V 3 相	0.2 KW AC. AC. 200 V 3 相
メーカー名	イキ	イキ
型番	CXAH-DL22S6-02S	CXAH-DL22S6-02S

(2) インバータ

インバータは、パルス発生ポンプのストローク数を可変とするために使用する。主な仕様を表4に示す。

表4 インバータの仕様

機 番	IB-1	IB-2
機器名称	抽出パルス発生ポンプ用 インバータ	洗浄パルス発生ポンプ用 インバータ
制御方式	正弦波PWM変調	正弦波PWM変調
容 量	1.2 KVA	1.2 KVA
適用モートル	0.4 KW	0.4 KW
定格電流	3 A	3 A
メカ 名	富士電気	富士電気
型 番	FVR004G2-5	FVR004G2-5

調整時のインバータ目盛とストローク数の関係を表5に示す。

表5 インバータの目盛とストローク数の関係

ストローク数(cpm)	24.0	36.0	48.0	60.0	72.0	84.0	96.0	108.0
PR-1 目盛	12.00	18.00	24.10	30.15	36.25	42.35	48.50	54.40
PR-2 目盛	13.00	18.85	24.80	30.55	36.55	42.35	48.20	54.10

2.1.3 サンプリング機構・温度計・サイトグラス

(1) サンプリング機構

カラム中の溶液の酸濃度、ウラン濃度等を測定するため、サンプル取り出し口をカラム本体軸方向に4ヶ所、その他に、有機相プロダクト配管、水相抜き配管に各1ヶ所設けた。

カラム本体サンプル取り出し口は有機相用と水相用を別々に設け、その材質は有機相用にはテフロン(PTFE)、水相用にはSUS316を使用し、液抜きの容易さに考慮を払った。サンプル取り出し口よりサンプル受け口までの容量(デットボリューム)を小さくするため細い管(1^{mm}I.D. × 3^{mm}O.D. テフロン)を使用した。また抜き量を一定にするため調節弁を配管中に入れた。図6にサンプリング及び温度計部の平面図を示す。

(2) 温度計

カラム中の溶液の温度を測定するため、測温抵抗体を取付けた。その位置はサンプル取り出し口と同じ位置に4ヶ所設置した。測定された温度は自動的に記録できるようにした。

温度計の仕様は下記の通りである。

種類	Pt 100Ω	測温抵抗体
型式	シース型	
寸法	6.4 ^φ × 100 ^{mm} L	

(3) サイトグラス

写真撮影により平均液滴径を測定するために、カラム本体の軸方向2ヶ所にサイトグラスを取付けた。その大きさは 80^{mm}W × 30^{mm}D × 80^{mm}H である。これは、カラム曲面の屈折による粒径の歪みを防ぐもので、使用時にはその中に水を注入する。

2.1.4 ポンプ・配管・エアチャンバ・検量器・槽

(1) ポンプ

抽出実験に使用する溶液フィード用、拔出し移送用ポンプ構成を図1に示す。ポンプの選定に当たって、特に小容量ポンプ (P-1, P-3, P-6) の精度は実験に与える影響が大きいのので、脈動が少なく、流量精度が良く、空気が混入した場合でもある程度の流量を確保できるプランジャ (ピストン) ポンプを用いた。またストローク数を変動可能とするため、別にユニットとして、コントローラ (モータスピード可変) を備えた。上記ポンプ3台は同じ仕様なので1台にまとめて、経費の節減と設置場所の縮小を計った。

またカラムの基本特性 (フラッディング) 実験の際、200 ml/min 程度の容量のポンプが必要となる。ポンプの主な仕様を表6に示す。

表6 ポンプの仕様

機番	P-1	P-2	P-3
機器名称	カラム原液フィードポンプ	溶媒フィードポンプ	洗浄液フィードポンプ
型式	定量ポンプ	電磁定量ポンプ	定量ポンプ
容量	30 ml/min	100 ml/min	30 ml/min
吐出圧力	5 kg/cm ²	4 kg/cm ²	5 kg/cm ²
ストローク長	0~10 mm (可変)	0~1.25 mm (可変)	0~10 mm (可変)
ストローク数	96 cpm (最大)	12~120 cpm	96 cpm (最大)
材質	セラミック (プランジャ)	SUS 316 (ポンプヘッド) Hastelloy C 276 (ボールバルブ)	セラミック (プランジャ)
電力	25 W AC, 100 V	20 W AC, 100 V	(25 W AC, 100 V)
メーカー名	日興エンジニアリング	イキ	日興エンジニアリング
型番	MGM-7-3BS	EX-B30SH-100S	MGM-7-3BS

表6 ポンプの仕様(つづき)

機番	P-4	P-5	P-6
機器名称	抽出有機 [°] の外 フィード [°] ポンプ [°]	抽出廃液 [°] 抽出 [°] ポンプ [°]	洗浄廃液 [°] ポンプ [°]
型式	電磁定量ポンプ	電磁定量ポンプ	定量ポンプ
容量	100 ml/min	100 ml/min	30 ml/min
吐出圧力	4 kg/cm ²	4 kg/cm ²	5 kg/cm ²
ストローク長	0~1.25 mm (可変)	0~1.25 mm (可変)	0~10 mm (可変)
ストローク数	12~120 cpm	12~120 cpm	96 cpm (最大)
材質	SUS 316 (ポンプヘッド) Hastelloy C 276 (ボールバルブ)	SUS 316 (ポンプヘッド) Hastelloy C 276 (ボールバルブ)	セラミック (フラジヤ)
電力	20 W AC. 100 V	20 W AC. 100 V	(25 W AC. 100 V)
メーカー名	イキ	イキ	日興エンジニアリング
型番	EX-B30SH-100S	EX-B30SH-100S	MGM-7-3BS

(2) 配管

配管、弁等の設計に当たっては次の点を考慮した。カラムからの液逆流防止のために、フィード配管に逆止弁を設置し、またパルス配管には空気が入りパルス強度が不安定になることを防止するため空気抜き弁を設置した。上部セトラよりオーバフローした溶液を流れ易くするためフィード配管(4^{mm}I.D)に比べてプロダクト配管には、太いテフロン配管(12^{mm}I.D)を使用した。

配管サイズは図1に示す。また、主な仕様を表7に示す。

表7 配管・弁・継手部の仕様

	材質	型式	メーカー名
配管	テフロン (PTFE)	—	—
弁 3/8" ~ 1/4"	SUS 316	ボール	KITZ (UTKM)
1/8"	SUS 316	ボール	WHITEY
1/4"	SUS 316	ニードル	WHITEY (SS21-RF2)
継手部	SUS 316	スイングロック	SWAGELOCK

(3) エアチャンバ

ポンプの脈動を吸収し流量を一定に保つために、エアチャンバを P-2、P-4 ポンプの出口配管に取り付た。主な仕様を表8に示す。

表8 エアチャンバの仕様

機番	サイズ	容積	材質
AC-1	60 ^{mm} φ・D × 110 ^{mm} H	約 310 ml	テフロン
AC-2	60 ^{mm} φ・D × 110 ^{mm} H	約 310 ml	テフロン

(4) 検量器

抽出実験中に流量を測定するために、検量器を受槽 V-4、V-5、V-6 の上流に設置した。その大きさは 500 ml (54^{mm}φ・D × 330^{mm}H) で、ガラス製メスシリンダを改造して使用した。

(5) 槽

槽 V-1、V-2、V-3、V-4 はフィード流量を測定するために、1000 ml (70^{mm}φ・D × 425^{mm}H) のガラス製メスシリンダを使用した。その他の槽 V-5、V-6 は、20ℓ のポリエチレン製タンク (290^{mm}φ・D × 430^{mm}H) を使用した。

2.2 ウラン水溶液濃縮装置

本装置は低濃度ウラン水溶液を加熱、蒸発させて高濃度ウラン水溶液を作るために使用する。構成機器は、水溶液を蒸発させ、その蒸気を凝縮させるための2台の熱交換器と、熱源となる恒温槽、液移送用の2台のポンプである。その構成を図7に示す。

装置の設計製作にあたって、バルスカラム抽出実験の後液処理で発生する低濃度ウラン水溶液のウラン濃度を 50 g/ℓ、その量を 100 ℓ/バッチ程度、濃縮後のウラン濃度を 300~400 g/ℓ、設置場所をフード内、稼働日数を10日(80時間)と想定し、蒸発能力を 1.3 ℓ/h と決めた。突沸防止のための N₂ガスパージ配管と N₂ガスポンプ、再沸器内のウラン水溶液の温度を測定するための温度計(TG-1)を設置した。材質選定にあたっては耐食性と視認性を考慮した。再沸器・凝縮器等の支持方法は、27.2^{mm}φ の SUS パイプを使用して4本の支柱を立て、軸方向3ヶ所で井型に横棒を継ぎ、組立てた架台で支持した。架台の上下2ヶ所で本体の加重を支え、支柱より張り出した3本のサポートにより再沸器・凝縮器等を固定して、曲り、歪み、転倒等を防いだ。また再沸器・凝縮器等の下方の床には容量約 4 ℓ の SUS 製バットを置き溶液漏洩に備えた(写真2参照)。各構成機器の個別仕様は以下の通りである。

2.2.1 再沸器・凝縮器

(1) 再沸器

再沸器は、恒温槽で加熱された熱媒体をコイルの内側に流し、コイルの外側のウラン水溶液を加熱・蒸発させるために使用する。再沸器と気液分離器は上下2ヶ所で連なっており気液分離器にフィードされたウラン水溶液は自然循環方式で再沸器に供給される。

(2) 凝縮器

凝縮器は、コイルの内側を流れる冷却水により、再沸器で蒸発された水蒸気(酸分含む)

をコイル外側で凝縮回収するために使用する。再沸器・凝縮器の主な仕様を表9に示す。

表9 再沸器・凝縮器の仕様

機 番	E-1	E-2
機器名称	再沸器	凝縮器
型 式	コイル型	コイル型
溶液処理量	1.3 ℓ/h (熱媒体の温度 130℃の時)	1.3 ℓ/h 以上
伝熱面積	0.29 m ²	0.3 m ²
管 フロー	3 1/8"	1 1/8"
寸法	1~10 ^{mm} I.D×12 ^{mm} O.D×3770 ^{mm} L 1~6 ^{mm} I.D×8 ^{mm} O.D×3930 ^{mm} L 1~5 ^{mm} I.D×7 ^{mm} O.D×2130 ^{mm} L	1~10 ^{mm} I.D×12 ^{mm} O.D×7960 ^{mm} L
材 質	西独SCHOTT社製ガラス	西独SCHOTT社製ガラス
外形寸法	100 ^{mm} O.D×610 ^{mm} L	100 ^{mm} O.D×650 ^{mm} L

2.2.2 恒温槽・熱媒体

(1) 恒温槽

恒温槽は熱媒体を電熱ヒータで加熱するために使用する。恒温槽の選定にあたって考慮した点は、再沸器中の滞留量を加味した容量、熱損失を含むヒータ出力、過昇防止のための安全装置等である。恒温槽の主な仕様を表10に示す。

表10 恒温槽の仕様

器 番	H-1
外型寸法	650 ^{mm} W×380 ^{mm} D×490 ^{mm} H
容 量	40 ℓ
温度調節	デジタル式温度指示調節器 時間比例制御方式
最高使用温度	200
ヒータ出力	2 KW シースワイヤ式
攪拌器	縦型攪拌器 22 W
安全装置	過昇防止器、電源ブレーカー
材 質	SUS-304 (接液部)
電 源	AC 100V×20A×50Hz
メーカー名	トーマス
型 番	T-205

(2) 熱媒体

熱媒体は恒温槽に張込む液で、高温で安定した性状のものが望ましい。運転当初選定した熱媒体 (TSF458-50) は熱安定性に優れていたが、粘度が非常に高く比熱が小さかった。そのため、伝熱係数が悪く、恒温槽から供給された熱を有効に再沸器に与えることができなかった。そこで伝熱係数に大きな影響を及ぼす粘度の小さい熱媒体 (TSF451-10) に変更した。仕様を表 1 1 に示す。

表11 熱媒体の仕様

メーカー名	東芝シリコーン
型番	TSF451-10
揮発分 (150°C, 24h)	25 % (開放)
密度 (25°C)	935 kg/m ³
比熱 (25°C)	0.42 kcal/kg·°C
熱伝導率 (25°C)	0.112 kcal/m·h·°C
粘度 (25°C)	10 cSt

2.2.3 ポンプ・配管・槽

(1) ポンプ

使用したポンプは原液を供給するもの (P-11) と熱媒体を循環させるもの (P-12) であり、その主な仕様を表 1 2 に示す。

表12 ポンプの仕様 (濃縮装置)

機番	P-11	P-12
機器名称	原液フィードポンプ	熱媒体循環ポンプ
型式	電磁定量ポンプ	渦巻きポンプ
容量	18 ml/min	MAX. 8 l/min (MAX. 15 l/min *)
吐出圧力	10 kg/cm ²	0.45 kg/cm ²
ストローク長	0~1.25 mm (可変)	—
ストローク数	12~120 cpm	—
材質	SUS 316 (ポンプヘッド) Hastelloy C 276 (ポンプバルブ)	SUS (接液部) —
電力	10 W AC. 100 V	60 W AC. 100 V
メーカー名	イキ	トマ
型番	EX-A10SH-100S	CP-802

* 熱媒体の循環配管に付いていた調節弁を仕切弁に変更し、圧損を減らすことにより、容量を増大させた。

(2) 配管

配管のサイズ及び材質は図 7 に示す通りである。

(3) 槽

原液槽 (V-11)、濃縮液槽 (V-12)、及び凝縮液槽 (V-13) は 20 ℓ のポリエチレン製タンクを使用する。気液分離器 (V-14) 及び凝縮液中間槽 (V-15) は共に 2 ℓ のガラス製球形ポットを使用する。

3. 運転方法

パルスカラムを用いた異常過渡特性実験では、ウラン（劣化ウラン）を 3 kg（元素重量）とし、実験毎にリサイクルして使用する。ウラン抽出実験及びこれにともなった単位操作のフローを図 8 に示す。ウラン原液、有機溶媒、洗浄液の給液調製後、パルスカラムを用いてウラン抽出実験を行う。抽出されたウランを含む有機溶媒は、次の実験に備えるため、逆抽出を行い、ウランを有機溶媒より水相に回収する。ウランを除去した有機溶媒は、アルカリ洗浄により劣化物を取り除き再使用する。一方ウラン水溶液は、溶液中のリン酸トリブチルを取り除くため、ノルマルドデカンによる希釈剤洗浄を行い、濃縮装置を用いて、次の実験に必要な濃度まで濃縮を行う。以下に単位操作ごとの手順を記す。

3.1 給液調製

抽出実験に必要な、ウラン原液、有機溶媒、洗浄液の給液調製を行う。給液調製は、溶液の濃度維持及び溶媒の劣化を考慮して、実験の直前に行う。

(1) ウラン原液

最初に用いる硝酸ウラニル溶液は硝酸ウラニル（劣化ウラン）結晶を硝酸に溶解して調製する。また U(IV) 溶液は U(VI) 溶液を電解還元して調製し、それに安定剤として必要量のヒドラジンを加える。これを硝酸ウラニル水溶液と混合し、ウラン及び酸を所定の濃度に調製する。2 回目の実験からは濃縮装置で高濃度に濃縮された U(VI) 溶液 (300 g/ℓ) を使用する。

(2) 洗浄液

3 mol/ℓ 硝酸-0.2 mol/ℓ ヒドラジン水溶液を約 20 ℓ 調製する。

(3) 有機溶媒

30 % TBP/n-DD を 60 ℓ 調製する。この液を 3 mol/ℓ 硝酸と混合し、その酸濃度を約 0.6 mol/ℓ に調製する。

酸濃度を調製するのに槽内で混合する場合とパルスカラムを使用する場合がある。後者の運転操作方法は、フィード配管を加熱しない以外は 3.3.1 と同じである。

3.2 ウラン抽出実験

この実験は、抽出カラム及び洗浄カラムを有機相連続、水相分散状態として水溶液中のウランを有機溶媒に抽出する 2 塔連動の運転で行う。各カラムの液の流れの概略を図 9 を用いて説明する。

抽出カラムでは、カラム上部より水相としてウラン原液を、カラム下部より有機相として有機溶媒を供給する。抽出後ウランを含む有機溶媒は、重力流配管を通して抽出有機プロダクト槽に一時入る。また抽出廃液は、カラム下部より拔出されて抽出廃液槽へ入る。

洗浄カラムでは、抽出有機プロダクト槽に一時的にたまったウランを含む有機溶媒をカラム下部より、3 mol/l 硝酸をスクラブ液としてカラム上部より供給する。洗浄されたウランを含む有機溶媒は、カラム上部よりオーバーフローして有機プロダクト槽へ入る。また、洗浄に用いたスクラブ液は、カラム下部より拔出され、ポンプにより抽出カラムのウラン原液供給配管に合流する。以下にその操作手順を記す。

(1) 始動時の操作手順

1) 液張り

抽出・洗浄両カラム上部より洗浄液を P-1、P-3 フィードポンプを作動させ供給する。液が下部セトラの所定の位置に達したら P-1、P-3 ポンプを停止する。次に P-2、P-4 ポンプを作動させ、両カラム下部より有機溶媒を供給する。液面がカラム内を上昇し、上部セトラ下部近辺に達したら、P-2、P-4 ポンプを一時停止する。

2) パルス発生ポンプの振動数、振幅設定

有機相の液面を目皿と目皿の間に調製後、パルス発生ポンプを作動して振幅 1 cm、振動数 84 cpmに設定する。設定後パルス発生ポンプを止め、P-2、P-4 ポンプを作動させ有機溶媒を再度供給し、カラム上部よりオーバーフローする直前で P-2、P-4 ポンプを停止する。

3) フィードポンプの流量設定

P-1、P-3 ポンプは吸入側の V-1、V-3 槽（メスシリンダー）を使用して、所定の流量に設定する。P-2、P-4 ポンプは吐出側の M-1、M-2 検量器を使用して、所定の流量に設定する（図 1 参照）。

4) 運転開始（ポンプ類作動開始）

配管途中の弁の開閉を確認した後、各パルス発生ポンプ（PR-1、PR-2）、各ポンプ（P-1～P-6）を作動させる。ここで P-5、P-6 ポンプは前もって設定していた値で作動させる。

(2) 定常時の操作手順

1) 界面の調整

約 1 カラム体積分（セトラ部含む）有機溶媒を流した後、下部セトラの所定の位置に界面を調整する。最初は洗浄カラムより P-6 ポンプを使用して行う。界面が上昇した時はポンプ流量を増加させ、下降した時はポンプ流量を減少させる。洗浄カラムの界面が安定した後、抽出カラムの界面も P-5 ポンプを使用して洗浄カラムと同様の方法で行う。

ここで、約 1 カラム体積分有機溶媒を流した後、界面調整を行うのは、次の理由による。運転開始直後はカラム内の有機相、水相の分布状態が一定でなく、各フィードポンプもそれに伴って流量が安定しない、従って界面も安定せず、その時点で界面調整を行うとこえって運転に外乱を与えことになる。

2) 分散相（水相）の分散状態の調整

分散相の分散状態が一様でない場合にはパルス発生ポンプの振幅、振動数を微調整して適切な分散状態とする。

3) フィードポンプの流量測定

一定時間毎に先に述べた槽（V-1、V-2）、検量器（M-1、M-2）を用いて流量を測定する。

検量した結果、所定の値と大幅に異なる場合はポンプの再調整を行う。

- 4) サンプリング

一定時間毎にサンプル採取を行う。
 - 5) 温度測定

一定時間毎にカラム内液温度、フィード槽内温度、外気温度等測定する。
 - 6) 槽内の液量確認

フィード槽内の液量が不足した場合は溶液を供給する。
受槽の液量が一杯になったら、空の槽と交換する。
- (3) 終了時の操作手順
- 1) ホールドアップ量の測定

ウラン抽出実験を終了した後、直ちに各カラムの分散相ホールドアップを以下の手順で測定する。

 - ① 各ポンプ (P-1~P-6) 及びパルス発生ポンプ (PR-1, PR-2) を停止し、直ちに各下部セトラの界面の位置を記録し、その後各カラム下部からの抜き出し配管の弁を閉じる。
 - ② 各パルス発生ポンプを作動させ、各カラム内に滞留している分散相を下部セトラに移動させる。
 - ③ 下部セトラのドレン弁を開き界面上昇分を抜き出し、メスシリンダー等でその量を測定し、その値とカラム有効容積の関係からカラム内平均のホールドアップを算出する。
 - ④ 各パルス発生ポンプを一時停止する。
 - 2) カラム内の液抜き

パルスカラム内のウランを含む有機相と水相を有機溶媒と純水を使用して、パルスカラム内から以下の手順で液抜きする。

 - ① P-4 ポンプを作動させ、抽出有機プロダクト槽の有機相を洗浄カラムにフィードし、槽が空になったらP-4 ポンプを停止する。
 - ② 抽出カラムの下部セトラから水相を抜き、その液を抽出廃液とする。
 - ③ 洗浄カラムの下部セトラから水相を抜き、その液を洗浄廃液とする。
 - ④ P-2、P-4 ポンプを作動させ有機溶媒をフィードし、カラム内のウランを含む有機相を抜出す。抜き出し後、P-2、P-4 ポンプを停止する。
 - ⑤ 各パルス発生ポンプを作動させる。
 - ⑥ P-1 ポンプを作動させ純水をフィードし、抽出カラムから有機溶媒をオーバーフローさせる。同時にP-4 ポンプを作動させ、抽出カラムからオーバーフローした有機相を洗浄カラムにフィードし、同様に洗浄カラムの有機相も液抜きする。抽出カラムから水がオーバーフローしてもP-4 ポンプの作動を続け、洗浄カラムの有機相を抜き出した後、各ポンプを停止する。
 - ⑦ P-5 ポンプ、P-6 ポンプを作動させ、各カラムより水を抜き、一次洗浄液とする。
 - ⑧ 各フィードポンプより純水をフィードし配管を洗浄する。洗浄液は一次洗浄液とする。
 - ⑨ 各パルス発生ポンプ配管より液を抜き、配管を洗浄し、洗浄液はパルス配管洗浄液とする。
 - ⑩ 各カラムの水相を抜き出し後、各ポンプを停止する。
 - ⑪ 最後にもう一度各カラム内を純水で洗浄し洗浄液は一次洗浄液とする。

3) 運転停止 (ポンプ作動停止)

パルス発生ポンプ (PR-1, PR-2) 及びポンプ (P-1~P-6) の作動状態を確認し、すべてのポンプの作動を停止する。

4) 実験後の液処理

- ① 実験において生じたウランを含む有機溶媒、洗浄に使用した有機溶媒の処理方法は 3.3.1 逆抽出に記す。
- ② 抽出廃液は、ウラン濃度をアルセナゾIII吸光光度法で分析した後、その中のヒドラジンを亜硝酸ナトリウムで分解し、水酸化ナトリウムで中和して廃棄する。亜硝酸ナトリウムを入れる時、窒素酸化物が発生するのでフード内で作業を行う。
- ③ 一次洗浄液はウラン水溶液濃縮で処理する。
- ④ ウラン原液 (フィード液) の残液、洗浄廃液及びパルス配管洗浄液等、ウラン水溶液でヒドラジンの入っている可能性のある液は、ヒドラジンに対し等量よりやや多めの亜硝酸ナトリウムを入れ、ヒドラジンを分解した後、抽出、逆抽出操作によりウランの精製を行う。ここでヒドラジンを予め分解するのは、U(IV) を U(VI) に酸化しやすくし、逆抽出操作でより効率を上げるためである。

3.3 後液処理

3.3.1 逆抽出

ウラン使用量 (3 kg) の制限より、本実験ではウランをリサイクルして使用する。このためウラン抽出実験後のウランを含む有機相から水相に逆抽出した。逆抽出する装置として、処理量、設備上の点からウラン抽出実験で用いるパルスカラムを使用した。パルスカラムを用いた逆抽出は、水相連続で、加温 (約 60°C) 下で行うことが望ましいが、本操作では、パルスカラム内の目皿の濡れ性の保持の点から有機相連続で行った。加温は各フィード配管のカラムへの入口手前を恒温槽によって行った。フローシートを図 10 に示し、その操作手順を以下に記す。

(1) 始動時の操作手順

1) フィード配管の加温

フィード配管を恒温槽で温める。通常の配管はテフロンチューブを使用するが、熱伝導率を高めるため、恒温槽に浸ける部分は SUS 316 とする。

2) 液張り

水相として、各カラム下部セトラ所定の位置まで純水を張込む。有機相として、抽出カラムには有機相プロダクトを、洗浄カラムには 30 % TBP/n-DD 溶液をそれぞれ各カラムの上部セトラ直前まで張込む。

3) 運転開始 (ポンプ作動)

- ① 恒温槽が所定の温度 (約 90°C) に達したら、各パルス発生ポンプを所定の値で作動させる。
- ② P-3、P-11 (SAF) ポンプ、P-1、P-6 (SAR) ポンプ、P-5 (EAR) ポンプの順に所定の流量

で作動させる。ここで P-11 はウラン濃縮装置のポンプを示す。

- ③ 抽出カラム内の有機相のウランが逆抽出されるのを観察できたら、P-2 (EOFポンプ) を所定の流量で作動させる。
- ④ 中間槽内の液量が所定の液位に達したら P-4 (SOF) ポンプを所定の流量で作動させる。

(2) 定常時の操作手順

1) 留意事項

一定時間毎に恒温槽の温度、槽内の液量、分散相の分散状態、界面の位置、逆抽出の様子等を把握する。恒温槽の温度が設定値と異なる場合はヒータ出力を調整する。逆抽出の様子は、逆抽出濃度変化に応じて色が変わることにより判断し、黄色(ウラン)の部分がカラム下部の方にあるようにする。黄色の部分がカラム上部に来るようならば、抽出カラムの有機プロダクトフィード量を少なくする。その他の項目について対処が必要な場合 3.2 と同じ操作を行う。

(3) 終了時の操作手順

1) 液抜き

逆抽出する有機プロダクトがなくなったら、P-2 ポンプを停止する。パルスカラム内のウランを含む有機相と水相を純水を使用して、パルスカラム内から以下の手順で液抜きする。

- ① カラム内のウランが十分逆抽出されたのが観察できたら、P-5 ポンプを停止し、抽出カラム内の有機相を液抜きする。追出し後 P-5 ポンプを作動し、抽出カラム内の水相を抜く。
- ② 中間槽内の有機相がなくなったら、P-4 ポンプ、P-6、P-1 ポンプを停止する。洗浄カラム内の有機相をカラム上部より抜出す。液抜き後、P-6、P-1 ポンプ、P-5 ポンプを作動させ、カラム内の水相を抜出す。
- ③ カラム内を純水で洗浄する。

2) 運転停止(ポンプ作動停止)

パルス発生ポンプ (PR-1, PR-2) 及びポンプ (P-1~P-6, P-11, 7台) の作動状態を確認し、すべてのポンプの作動を停止する。

3) 逆抽出済有機溶媒の確認

アルセナゾⅢ吸光光度法により逆抽出されたあとの有機溶媒中のウラン濃度を分析し、その濃度が 0.1 g/l 以上あった場合は再度逆抽出を行い、それ以下であった場合は次の工程アルカリ洗浄を行う。

3.3.2 希釈剤洗浄

逆抽出により回収したウラン水溶液は、溶解度分として溶けている TBP あるいは相分離した状態で存在する有機相を少量含んでいる。この水溶液をウラン水溶液濃縮装置により濃縮することはレッドオイルを生成する可能性があり好ましくない。そこでウラン水溶液から TBP を除去するために希釈剤洗浄を行う。希釈剤洗浄の操作についても、3.3.1 逆抽出の場合と同様に、パルスカラムを使用し、以下の手順で行った。但し TBP を除去することが目的であるため、カラム、配管及び槽内の残量有機相を取り除くことに注意する。希釈剤洗浄のフローシートを図 1 1

に示す。

(1) 始動時の操作手順

1) 接液部分の洗浄

各カラム、配管等接液部分を水で良く洗浄し、残量有機相を取り除く。

2) 液張り

希釈剤 (n-DD) を、各カラム上部セトラ直前まで、中間槽の所定の位置まで張込む。

3) 運転開始 (ポンプ作動)

各パルス発生ポンプ (PR-1, PR-2)、各フィードポンプ P-6 (EOF)、P-3 (SOF)、P-4 (SAF) を所定の流量で作動させる。各カラムの水相が所定の界面に達したら、拔出しポンプ P-5 (EAR)、P-2 (SAR) 作動させる。

(2) 定常時の操作手順

1) 留意事項

一定時間毎に槽内の液量、分散相の分散状態、界面の位置等を把握し、対処が必要な場合 3.2 と同じ操作を行う。

(3) 終了時の操作手順

1) 液抜き

希釈剤洗浄するウラン水溶液がなくなったら、P-4 ポンプを止め、パルスカラム内の水相を抜き、純水を使用してパルスカラム内から以下の手順で希釈剤を拔出す。

① 洗浄カラム下部セトラの水相がなくなったら、P-2 ポンプを停止する。

② 抽出カラム下部セトラの水相がなくなったら、P-5 ポンプを停止し、各希釈剤フィードポンプを停止する。

③ 各フィードポンプから純水をフィードし、希釈剤を拔出す。各カラム内に残った水相は一次洗浄水としてウラン水溶液濃縮操作に回す。

2) 運転停止 (ポンプ作動停止)

パルス発生ポンプ (PR-1, PR-2) 及びポンプ (P-2~P-6, 5台) の作動状態を確認し、すべてのポンプの作動を停止する。

3) 希釈剤洗浄後のウラン水溶液の分析

赤外吸収スペクトルにより、ウラン水溶液中の TBP 濃度を測定し、その濃度が 0.1 g/l 以上残っていた場合は再度希釈剤洗浄を行い、それ以下であった場合にはウラン水溶液濃縮操作を行う。

3.3.3 アルカリ洗浄

逆抽出操作により発生した使用済み溶媒をリサイクル使用するには、使用済み溶媒中の劣化物を取り除くことが重要である。劣化物の除去にはアルカリ洗浄が効果的であり、文献⁽⁶⁾を参考にして行った。洗浄方法として最初に炭酸ナトリウム、次に水で洗浄する方法を採用した。

炭酸ナトリウムと有機相を攪拌混合する操作はポリタンクを用いてバッチにより手動で行った。

一方水洗浄する操作はパルスカラムにより行った。パルスカラムでの操作フローシートを図12に示し、操作手順を以下に記す。

A. アルカリ洗浄

(1) 準備した溶液と容量

有機相：逆抽出済有機溶媒	60 ℓ
水相：5%炭酸ナトリウム溶液	30 ℓ

(2) 操作手順

- ① タンクに逆抽出プロダクトと5%炭酸ナトリウム水溶液を2:1の割合で入れ、充分攪拌する。
- ② 清澄後、分離する。
- ③ 使用した炭酸ナトリウム液は希硝酸で中和して廃棄する。中和する際炭酸ナトリウムは発泡し、タンクから溢れる場合があるので注意する。

B. 水洗浄

(1) 始動時の操作手順

1) 液張り

水相として、各カラム下部セトラ所定の位置まで純水を張込む。有機相として、アルカリ洗浄後の逆抽出済有機溶媒を各カラムの上部セトラ直前まで張込む。

2) 運転開始(ポンプ作動)

各パルス発生ポンプ(PR-1, PR-2)、各フィードポンプP-2(EOF)、P-4(SOF)、P-3(SAF)を所定の流量で作動させる。各カラムの水相が所定の界面に達したら、拔出しポンプP-5(EAR)、P-6(SAR)作動させる。

(2) 定常時の操作手順

1) 留意事項

一定時間毎に槽内の液量、分散相の分散状態、界面の位置等を把握し、対処が必要な場合3.2と同じ操作を行う。

(3) 終了時の操作手順

1) 液抜き

P-2ポンプとP-5ポンプを停止し、抽出カラムの上部から有機相を抜き。有機相を抜出した後P-5ポンプを作動させ抽出カラムから水相を抜出す。

中間槽の有機相がなくなったら、P-4ポンプとP-6ポンプを停止し、洗浄カラムの上部から有機相を抜き。有機相抜き後、P-3ポンプを停止する。各パルス発生ポンプを停止し、洗浄カラムの水相を抜出す。

2) 運転停止(ポンプ作動停止)

パルス発生ポンプ (PR-1, PR-2) 及びポンプ (P-2~P-6, 5台) の作動状態を確認し、すべてのポンプの作動を停止する。

3.4 ウラン水溶液濃縮

逆抽出・希釈剤洗浄操作を経たウラン水溶液のウラン濃度は 50~100 g/l 程度である。これをウラン抽出実験で再使用する 300 g/l 程度まで蒸発により濃度を高めるための操作である。

(1) 始動時の操作手順

- 1) 気液分離器と再沸器に原液フィードポンプ (P-11) を使用して原液の液張込みを行う。液面が上部連通管まで達したらポンプを一時止める。
- 2) N₂ ボンベの弁 (G-2) を開き再沸器の下部より突沸防止のため N₂ を吹込む、その時の N₂ は圧力 0.6 kg/cm²、流量は約 0.5 l/min に調整する。
- 3) 水道水を凝縮器の管内側に流す、その時の水の量は、約 100 l/h に調整する。
- 4) 恒温槽の電源を入れレットオイル生成防止の観点から調整温度を 130°C にセットする。
次に熱媒体循環ポンプを作動し、弁 (G-1) を開き、恒温槽内の熱媒体を再沸器へ循環させる。
- 5) 再沸器が沸騰を開始して、凝縮器に蒸気が流入して凝縮が始まり、気液分離器内の液面が下がり始めたら、液面を一定に保持するためにフィードポンプを作動させる。

(2) 定常時の操作手順

- 1) 気液分離器の液面を一定に保つために、以下の操作を行い、液面調整をする。
液面上昇の場合 ……P-11 フィードポンプの流量を減少させる。
液面下降の場合 ……P-11 フィードポンプの流量を増加させる。
- 2) 再沸器の沸騰状態を安定させるために、以下の操作をする。
不安定沸騰 ……N₂ 吹込み量を増加させる。
沸点降下 ……N₂ 吹込み量を減少させる。

(3) 終了時の操作手順

- 1) P-11 原液フィードポンプの作動を停止する。
- 2) G-1 バルブ閉じ、循環ポンプの作動を停止する。
恒温槽の加熱調整温度を 30°C に下げ、電源を切る。
- 3) N₂ 吹込みを停止する。
- 4) 冷却水の通水を停止する。
- 5) 濃縮液の液抜き。

終了時に再沸器内の沸点が約 103°C 以下の場合 …… 液抜きせず。
約 104°C 以上の場合 …… 液抜きする。

気液分離器から液抜きする場合、液抜き量は約 1l とする。液抜き後原液をフィードして始動時の操作手順 1) の液面に保っておく。次回からは始動時の操作手順 2) より操作開始する。

ただし、原液槽が空になった場合には、沸点に無関係に気液分離器内の溶液を全部抜出す。

ここで液抜き温度を 104°C 近辺に設定したのは放冷時に結晶化して配管等を詰らさないためである。

(4) 運転後の液処理

- 1) 凝縮液は水酸化ナトリウムで中和して廃棄する。
- 2) 抜き濃縮液は濃縮槽 (V-12) に貯えておき原液を全部処理した後、V-12 中の液のウラン濃度を測定し所定値 (約 300 g/l) 以下の場合には再度濃縮する。

(5) 運転時の注意事項

- 1) N₂ 吹込み配管のつまり。
- 2) 濃縮液抜出配管のつまり。
- 3) フランジ継手部のリーク。
- 4) 配管継手部のリーク。
- 5) 恒温槽熱媒体油の蒸発による損失に注意する。

上記 1)、2) のつまりは、いずれも V-14 中のウラン水溶液濃度が高く液温が下がった時にウラン水溶液が結晶化して生じ、その時期は、装置が冷えている運転の始動時によく見受られた。その場合、以下の対策をする。

- 1) 再沸器を作動し (加熱源温度 100°C 以下)、詰っている配管外部よりリボンヒータ、温水等で加熱しながら流体 (N₂、濃縮液) を流す。
- 2) 上記の方法で詰りが解消されない場合は、詰っている配管を機器より取外し、ビーカー等に温水 (50~70°C) を入れ、そのなかに配管を入れると結晶が融け出し通管する、このとき片側より N₂ 等で加圧すると通りが容易となる。

4. あとがき

再処理抽出工程における共除染工程の異常過渡特性を研究するため、抽出及び洗浄塔から成る小型パルスカラムを製作した。また付帯設備として、抽出実験の後で発生する低濃度のウラン水溶液を再使用するためにウラン水溶液濃縮装置も製作した。これらの製作にあたって特に注意した点は ① カラム本体・濃縮装置（共にガラス製）の転倒防止対策、② TBP、強酸（ HNO_3 ）使用のため、装置・配管・パッキン等の材質の考慮、③ 汚染拡散防止対策、④ ウラン水溶液濃縮装置は、高温流体（ 130°C ～）を取扱うため、火傷防止等の安全対策と熱損失対策等である。

本パルスカラムを用いて試運転を行い、以下の点を改良した。パルスカラムの運転状態の安定化を計るため、パルス発生ポンプは SL クランク方式のダイヤフラムポンプを採用した。またウラン水溶液濃縮装置は、恒温槽のヒータ容量、熱媒体の種類、熱媒体循環ポンプの容量、再沸器の伝熱面積、熱損失を少なくするための保温等に十分な考慮を払い、仕様通りの性能が得られた。

なお、本パルスカラムを用いた試験の成果は別の機会に報告する予定である。

謝辞

本装置の設計、製作に関しては館盛勝一臨界安全研究室長から御指導をいただいた。さらに本報告書を纏めるにあたっては臼田重和副主任研究員から貴重な助言をいただいた。ここに謝意を表する。

参考文献

- (1) Tachimori S. et al. : "ISEC '88", Proc. of International Solv. Extraction Conf., July 18-24, 1988, Moscow, USSR, vol4, p.183 (1988).
- (2) Schön H. et al. : "ISEC '88", Proc. of International Solv. Extraction Conf., July 18-24, 1988, Moscow, USSR, vol4, p.201 (1988).
- (3) Richardson G.L. et al. : in "Progress in Nuclear Energy, Series IV, Technology, Engineering and Safety" vol 4, p.286, Pergamon Press (1961).
- (4) Baumgärtner F. : "Chemistry of Nuclear Fuel Reprocessing and Radioactive Waste Disposal Part III", Verlag Karl Thiemeig, München, p.137~157 (1980).

4. あとがき

再処理抽出工程における共除染工程の異常過渡特性を研究するため、抽出及び洗浄塔から成る小型パルスカラムを製作した。また付帯設備として、抽出実験の後で発生する低濃度のウラン水溶液を再使用するためにウラン水溶液濃縮装置も製作した。これらの製作にあたって特に注意した点は ① カラム本体・濃縮装置（共にガラス製）の転倒防止対策、② TBP、強酸（ HNO_3 ）使用のため、装置・配管・パッキン等の材質の考慮、③ 汚染拡散防止対策、④ ウラン水溶液濃縮装置は、高温流体（ 130°C ～）を取扱うため、火傷防止等の安全対策と熱損失対策等である。

本パルスカラムを用いて試運転を行い、以下の点を改良した。パルスカラムの運転状態の安定化を計るため、パルス発生ポンプは SL クランク方式のダイヤフラムポンプを採用した。またウラン水溶液濃縮装置は、恒温槽のヒータ容量、熱媒体の種類、熱媒体循環ポンプの容量、再沸器の伝熱面積、熱損失を少なくするための保温等に十分な考慮を払い、仕様通りの性能が得られた。

なお、本パルスカラムを用いた試験の成果は別の機会に報告する予定である。

謝辞

本装置の設計、製作に関しては館盛勝一臨界安全研究室長から御指導をいただいた。さらに本報告書を纏めるにあたっては臼田重和副主任研究員から貴重な助言をいただいた。ここに謝意を表す。

参考文献

- (1) Tachimori S. et al. : "ISEC '88", Proc. of International Solv. Extraction Conf., July 18-24, 1988, Moscow, USSR, vol4, p.183 (1988).
- (2) Schön H. et al. : "ISEC '88", Proc. of International Solv. Extraction Conf., July 18-24, 1988, Moscow, USSR, vol4, p.201 (1988).
- (3) Richardson G.L. et al. : in "Progress in Nuclear Energy, Series IV, Technology, Engineering and Safety" vol 4, p.286, Pergamon Press (1961).
- (4) Baumgärtner F. : "Chemistry of Nuclear Fuel Reprocessing and Radioactive Waste Disposal Part III", Verlag Karl Thiemeig, München, p.137~157 (1980).

4. あとがき

再処理抽出工程における共除染工程の異常過渡特性を研究するため、抽出及び洗浄塔から成る小型パルスカラムを製作した。また付帯設備として、抽出実験の後で発生する低濃度のウラン水溶液を再使用するためにウラン水溶液濃縮装置も製作した。これらの製作にあたって特に注意した点は ① カラム本体・濃縮装置（共にガラス製）の転倒防止対策、② TBP、強酸（ HNO_3 ）使用のため、装置・配管・パッキン等の材質の考慮、③ 汚染拡散防止対策、④ ウラン水溶液濃縮装置は、高温流体（ 130°C ～）を取扱うため、火傷防止等の安全対策と熱損失対策等である。

本パルスカラムを用いて試運転を行い、以下の点を改良した。パルスカラムの運転状態の安定化を計るため、パルス発生ポンプは SL クランク方式のダイヤフラムポンプを採用した。またウラン水溶液濃縮装置は、恒温槽のヒータ容量、熱媒体の種類、熱媒体循環ポンプの容量、再沸器の伝熱面積、熱損失を少なくするための保温等に十分な考慮を払い、仕様通りの性能が得られた。

なお、本パルスカラムを用いた試験の成果は別の機会に報告する予定である。

謝辞

本装置の設計、製作に関しては館盛勝一臨界安全研究室長から御指導をいただいた。さらに本報告書を纏めるにあたっては臼田重和副主任研究員から貴重な助言をいただいた。ここに謝意を表する。

参考文献

- (1) Tachimori S. et al. : "ISEC '88", Proc. of International Solv. Extraction Conf., July 18-24, 1988, Moscow, USSR, vol4, p.183 (1988).
- (2) Schön H. et al. : "ISEC '88", Proc. of International Solv. Extraction Conf., July 18-24, 1988, Moscow, USSR, vol4, p.201 (1988).
- (3) Richardson G.L. et al. : in "Progress in Nuclear Energy, Series IV, Technology, Engineering and Safety" vol 4, p.286, Pergamon Press (1961).
- (4) Baumgärtner F. : "Chemistry of Nuclear Fuel Reprocessing and Radioactive Waste Disposal Part III", Verlag Karl Thiemeig, München, p.137~157 (1980).

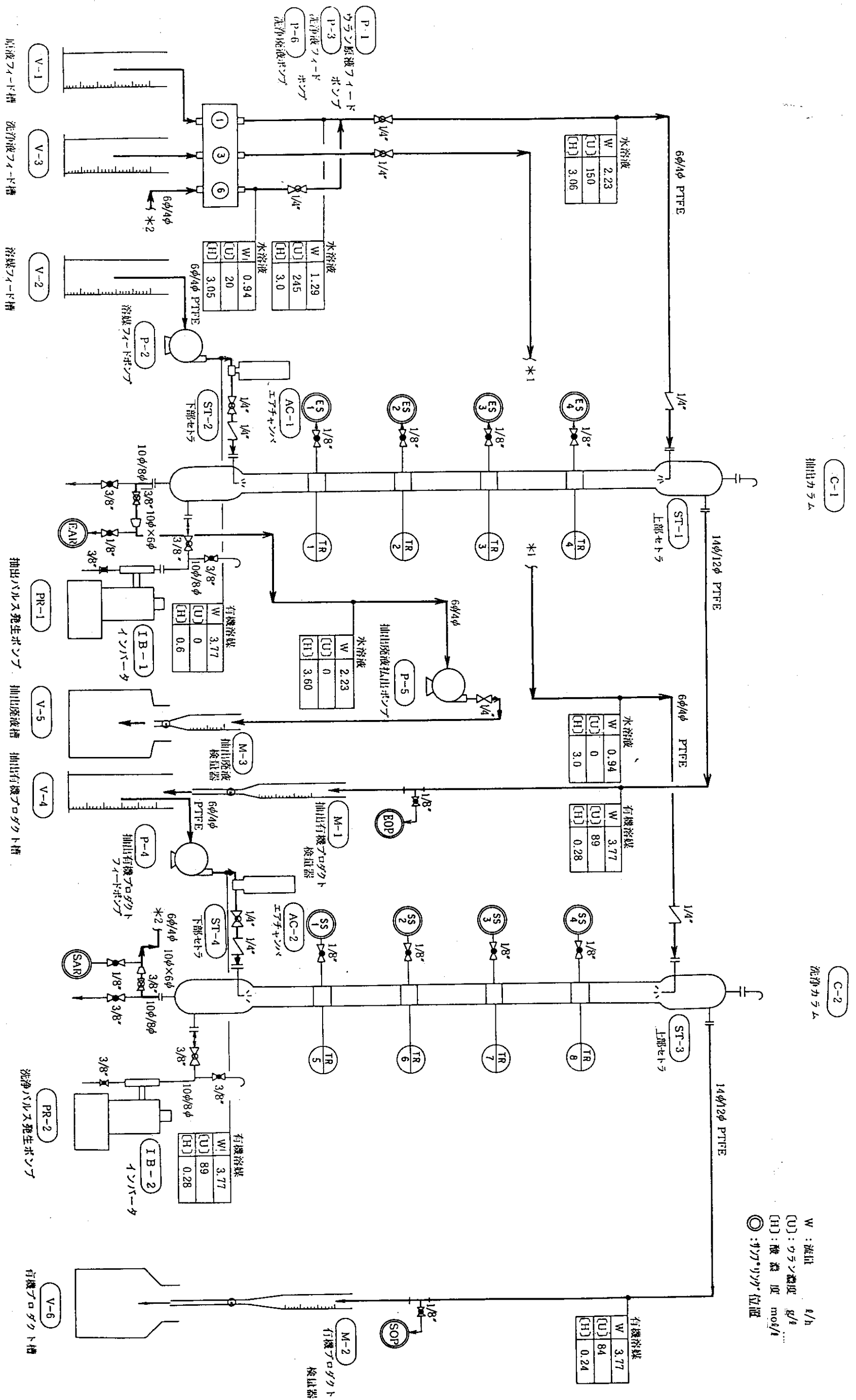


図1 バルスカラム抽出装置の構成

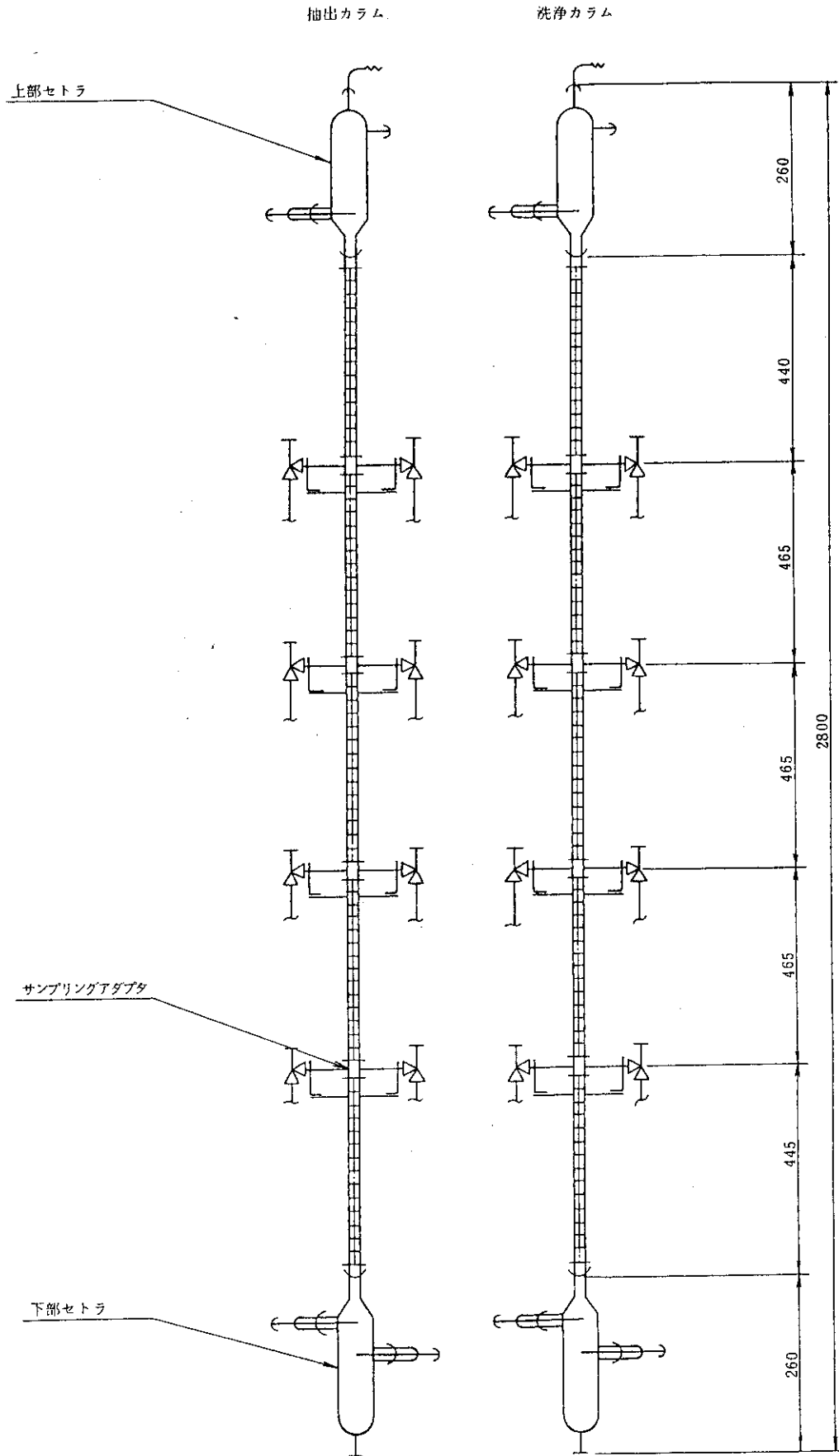


図2 カラム・セトラ全体図

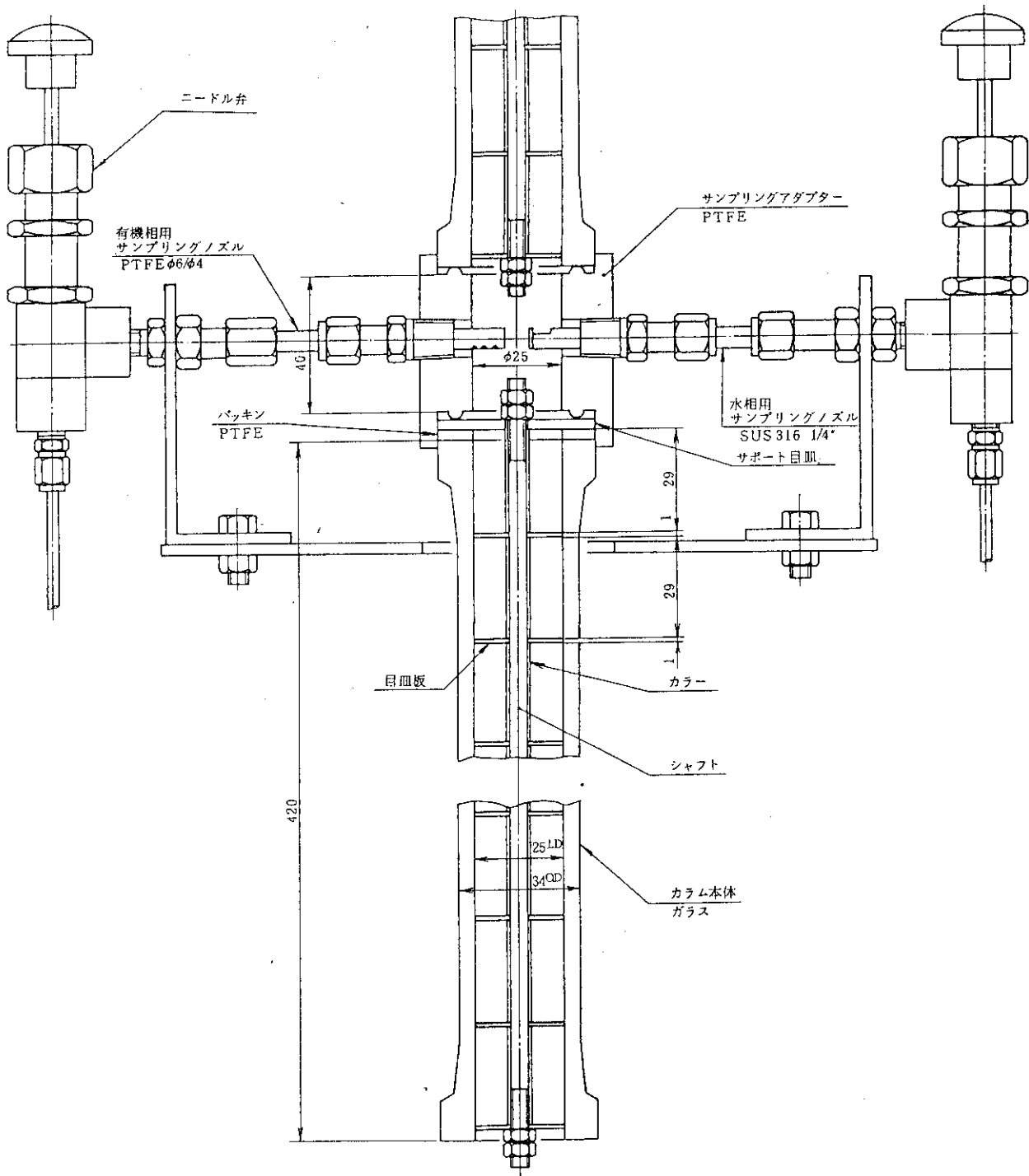
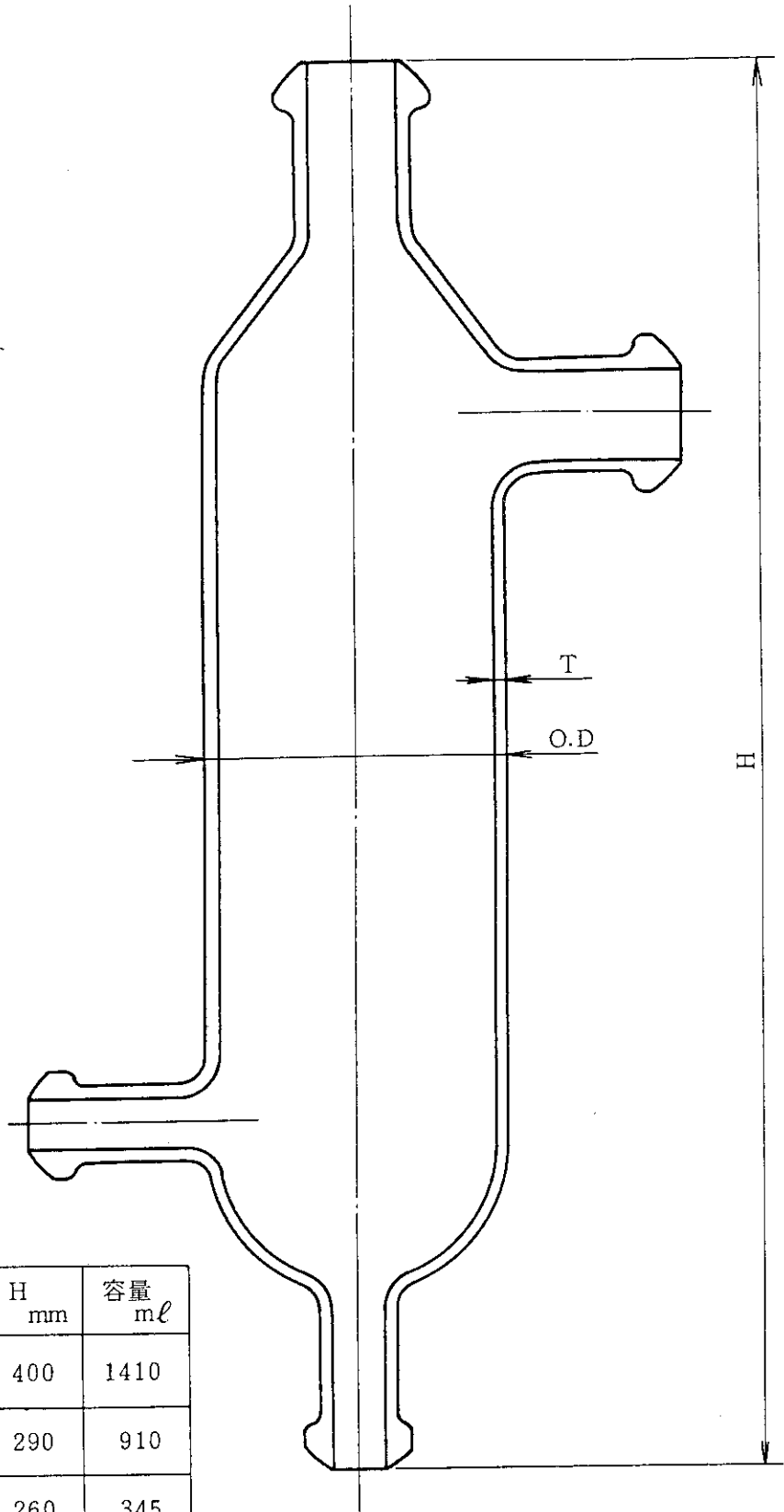


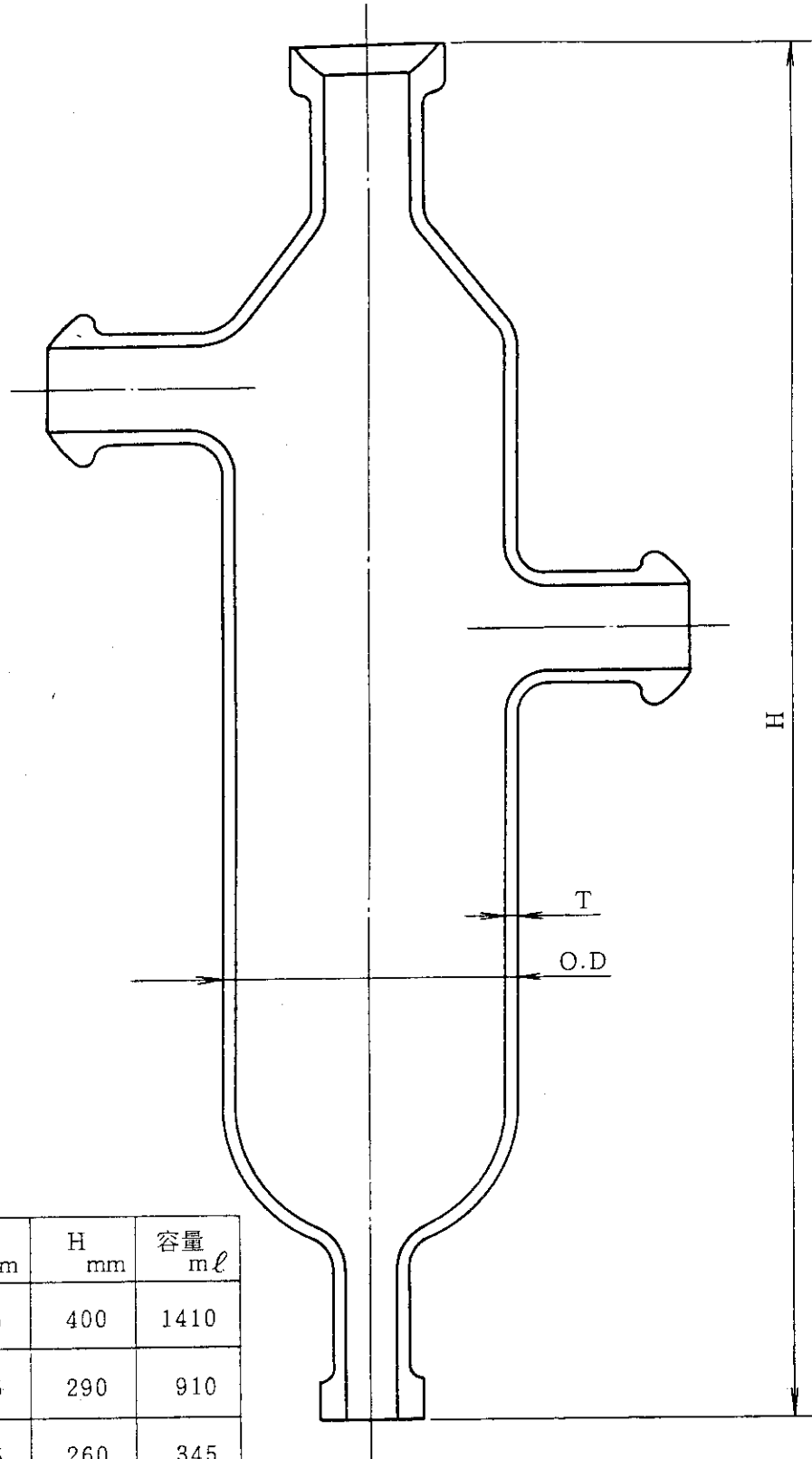
図3 カラムの詳細図



寸法表

SIZE	O.D mm	T mm	H mm	容量 ml
L	85	3.5	400	1410
M	85	3.5	290	910
S	50	2.5	260	345

図4 上部セトラ



寸法表

SIZE	O.D mm	T mm	H mm	容量 mℓ
L	85	3.5	400	1410
M	85	3.5	290	910
S	50	2.5	260	345

図5 下部セトラ

測温抵抗体

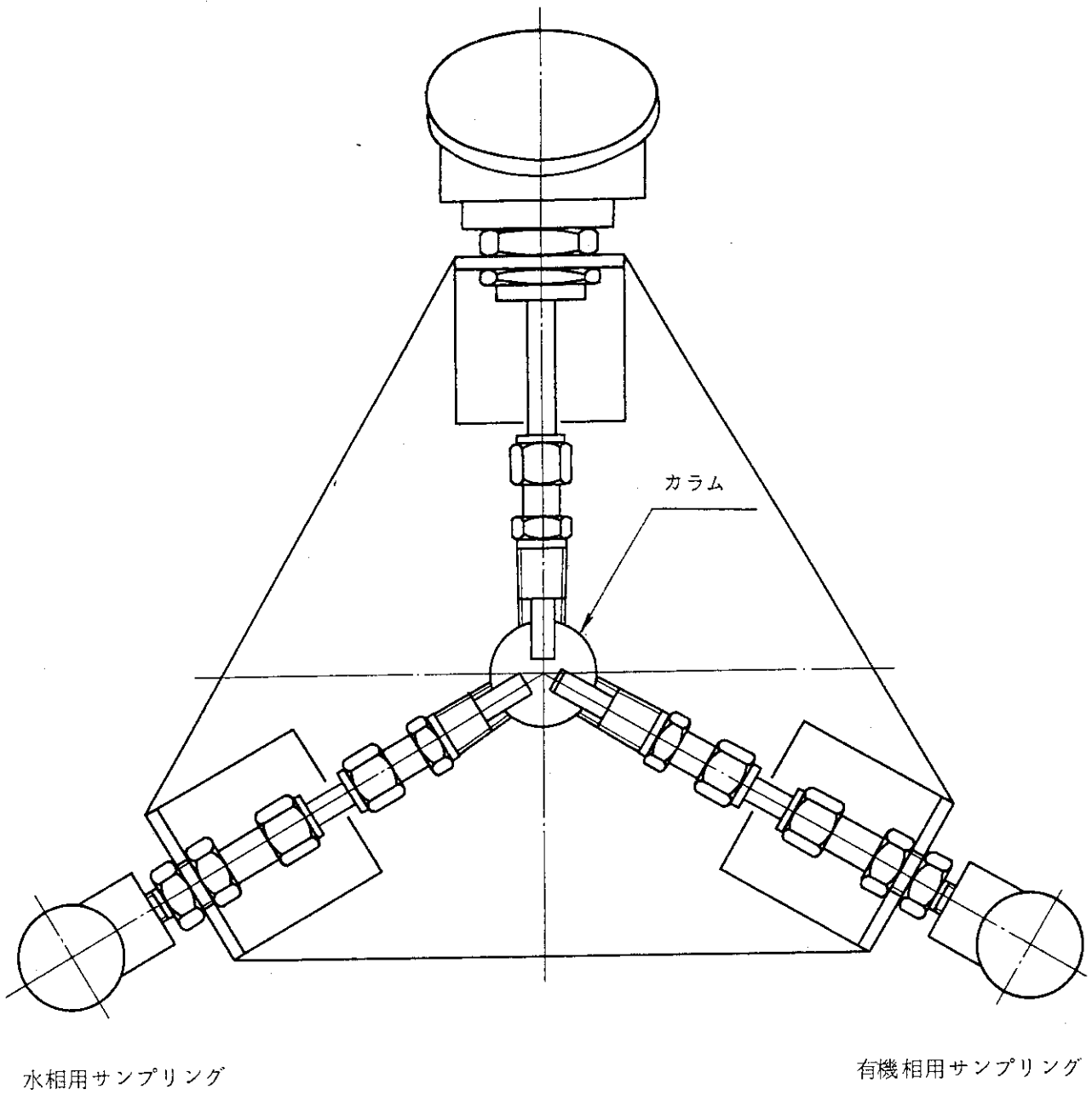


図6 サンプリング及び温度計の平面図

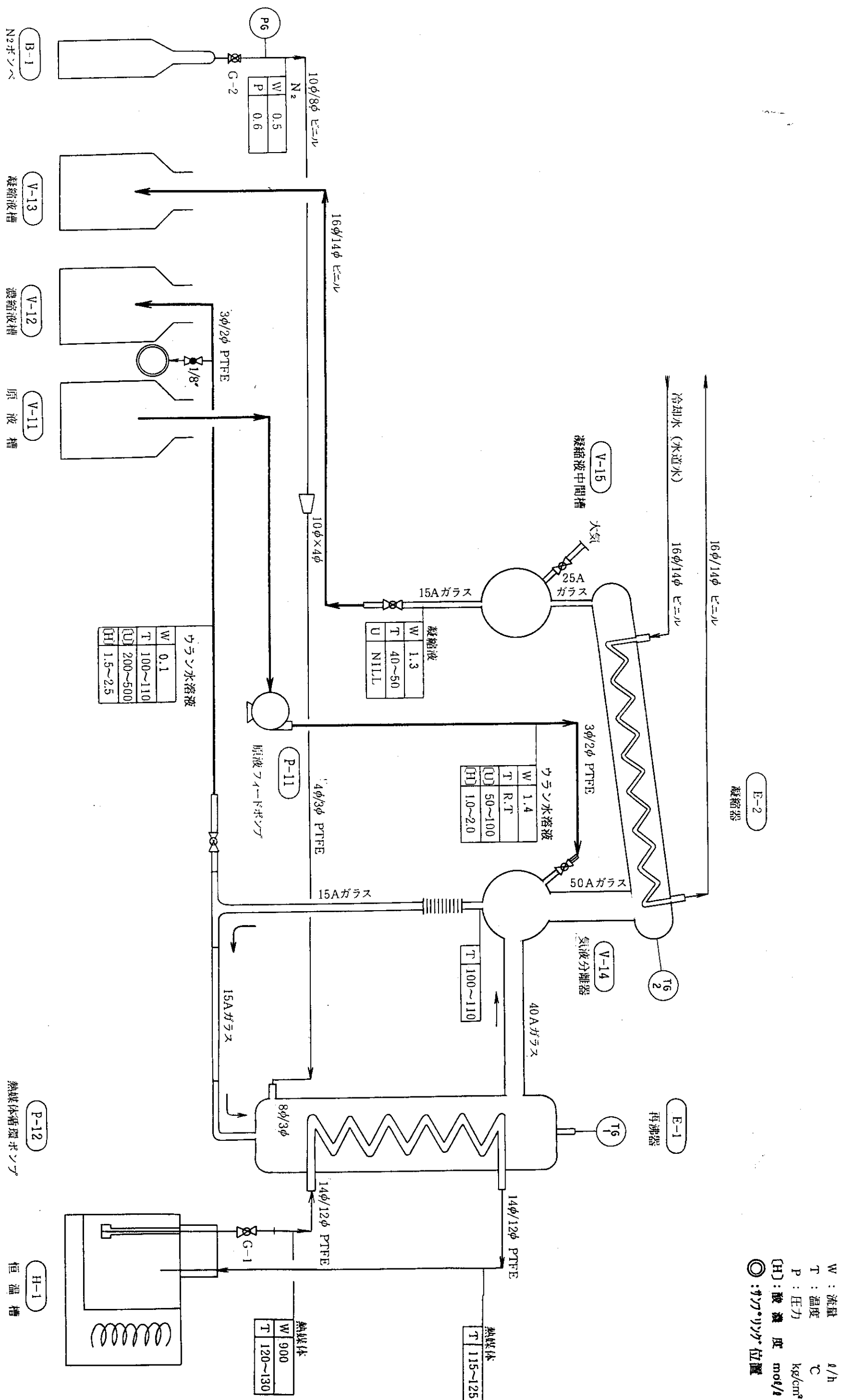


図7 ウラン水溶液濃縮装置の構成

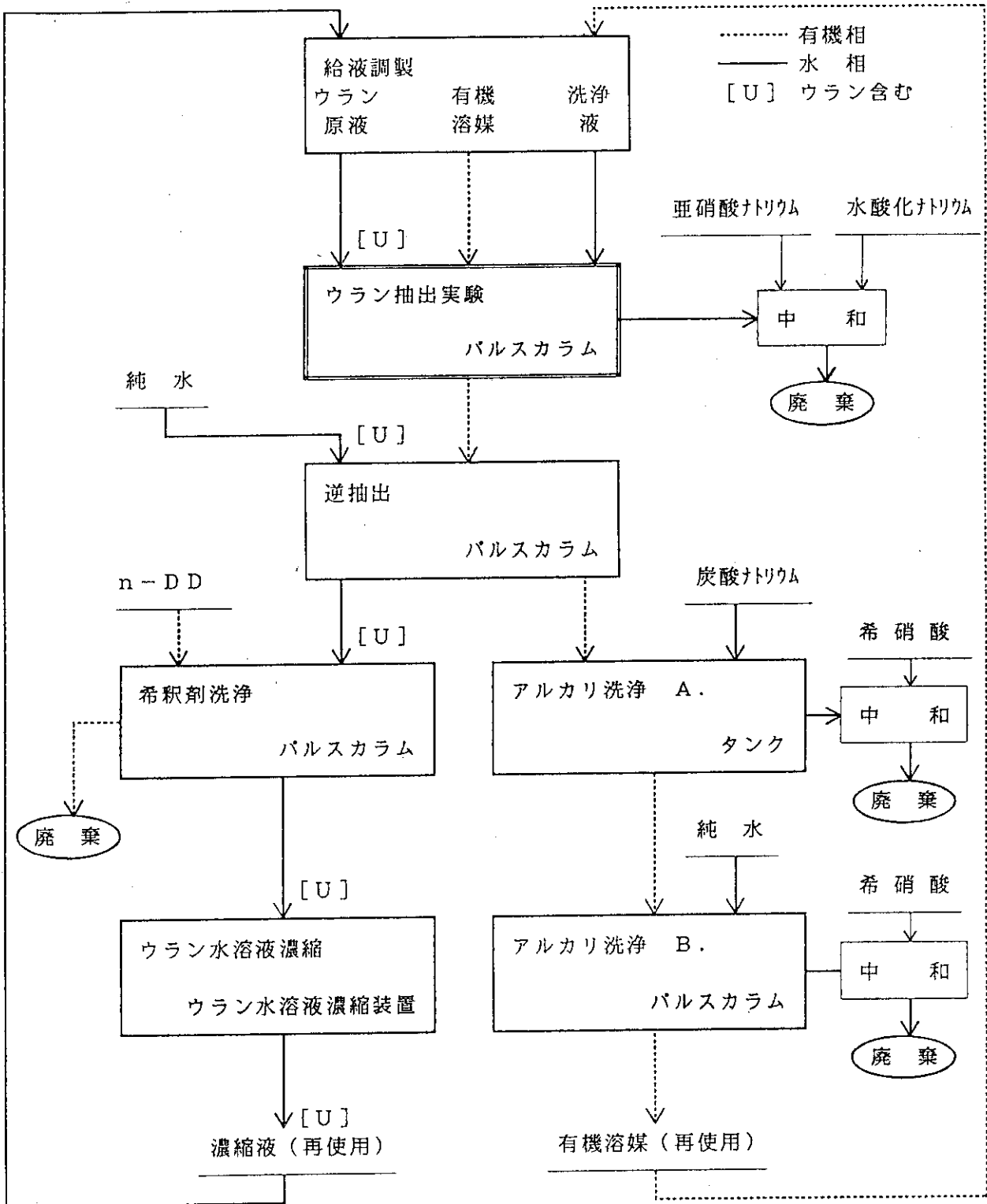


図8 単位操作のフローシート

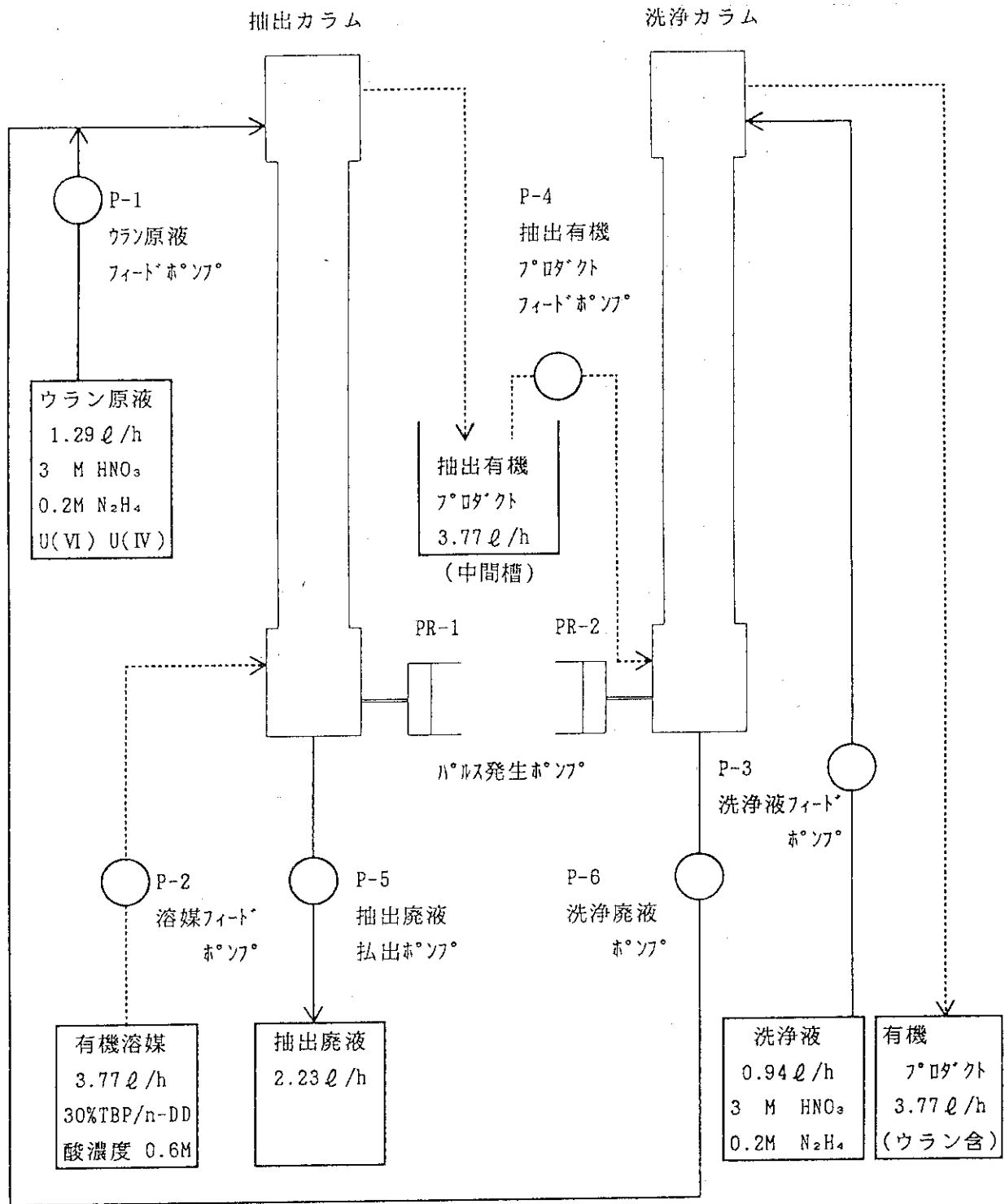
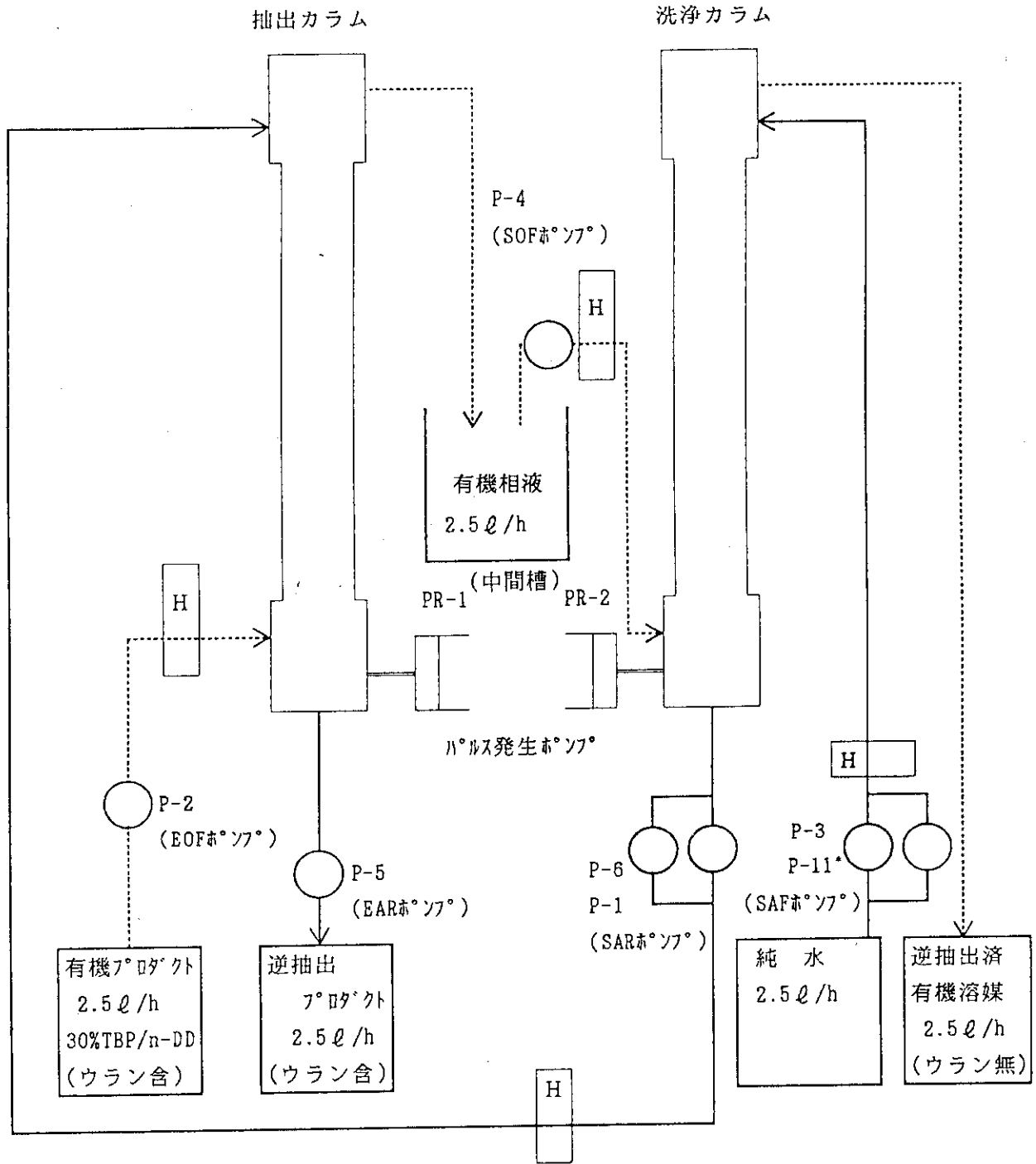
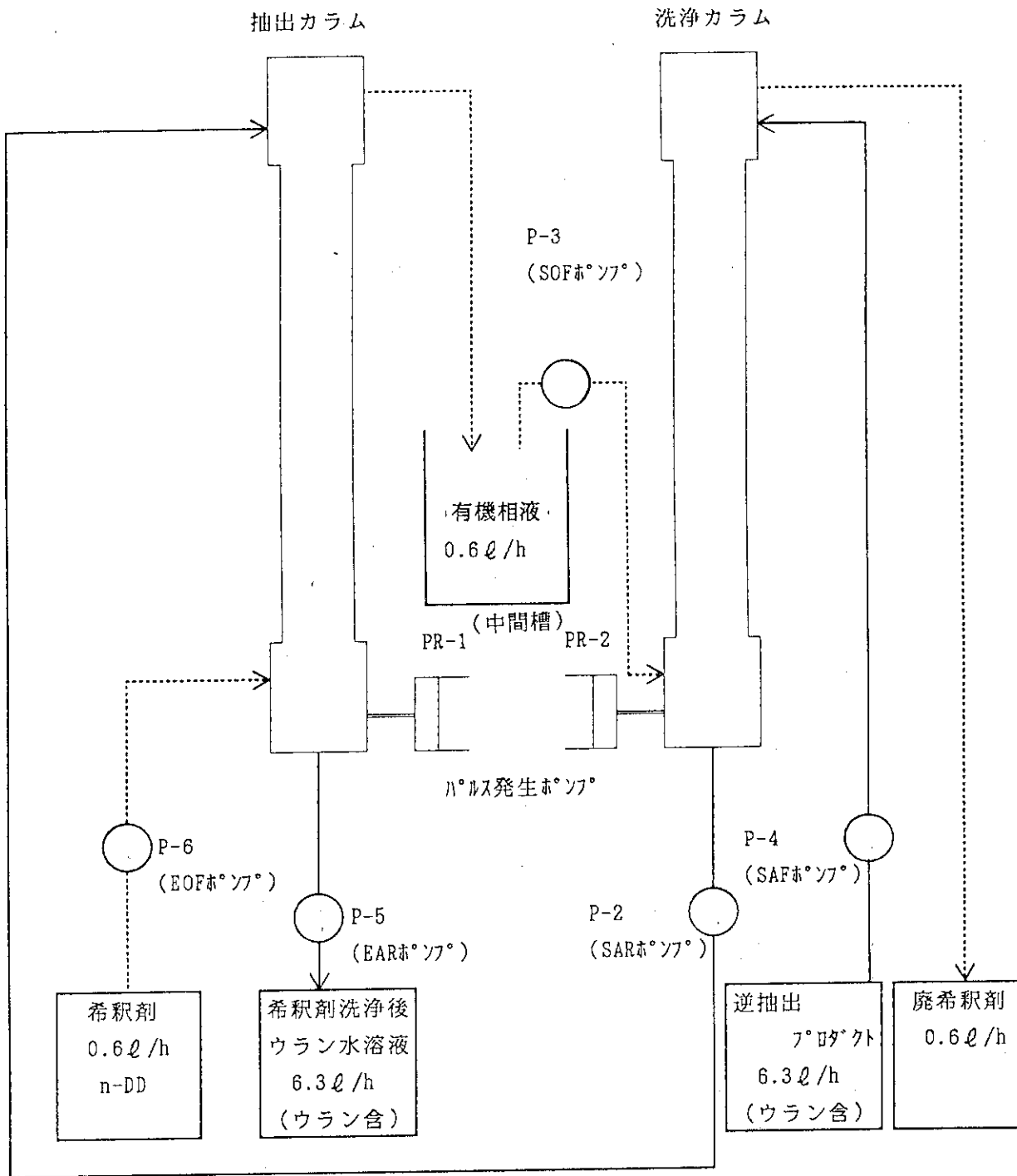


図9 ウラン抽出実験フローシート



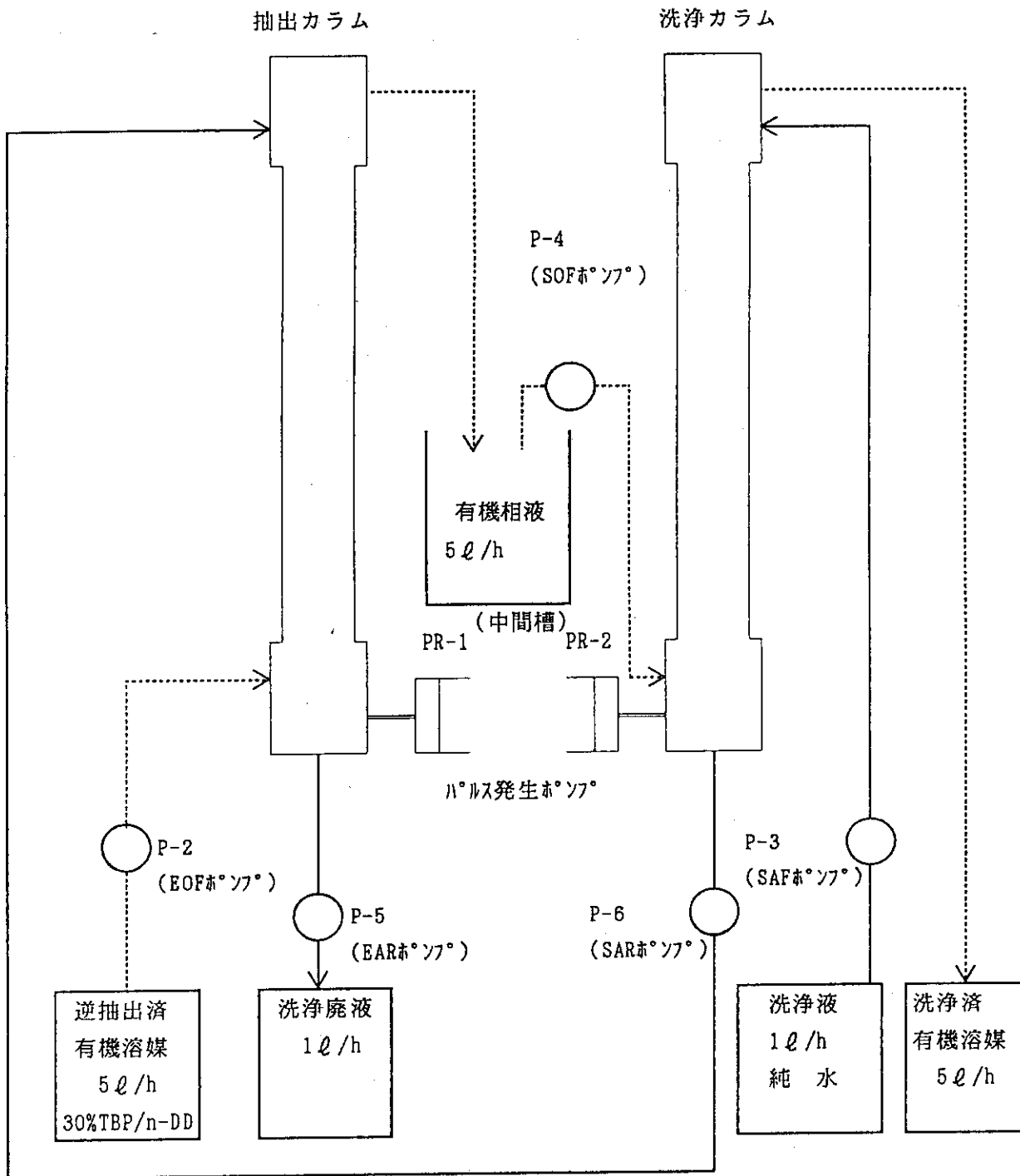
EOF...抽出カラム有機相供給 SAF...洗浄カラム水相供給 EAR...抽出カラム水相拔出し
 SOF...洗浄カラム有機相供給 SAR...洗浄カラム水相拔出し H...恒温槽
 *ウラン水溶液濃縮装置 P-11 ポンプを使用する。

図10 逆抽出フローシート



EOF・・・抽出カラム有機相供給 SAF・・・洗浄カラム水相供給 EAR・・・抽出カラム水相拔出し
 SOF・・・洗浄カラム有機相供給 SAR・・・洗浄カラム水相拔出し

図11 希釈剤洗浄フローシート



EOF・・・抽出カラム有機相供給
SOF・・・洗浄カラム有機相供給

SAF・・・洗浄カラム水相供給
SAR・・・洗浄カラム水相拔出し

EAR・・・抽出カラム水相拔出し

図12 水洗浄フローシート

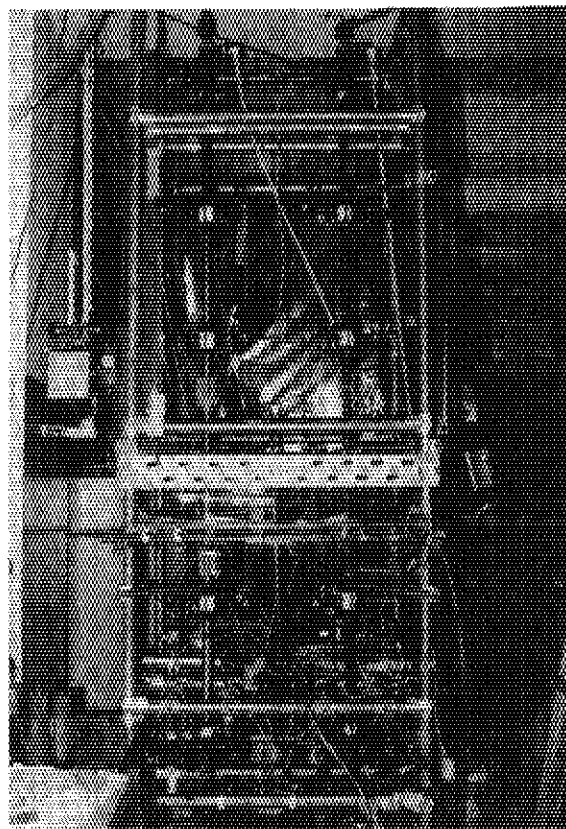


写真1 パルスカラム抽出装置

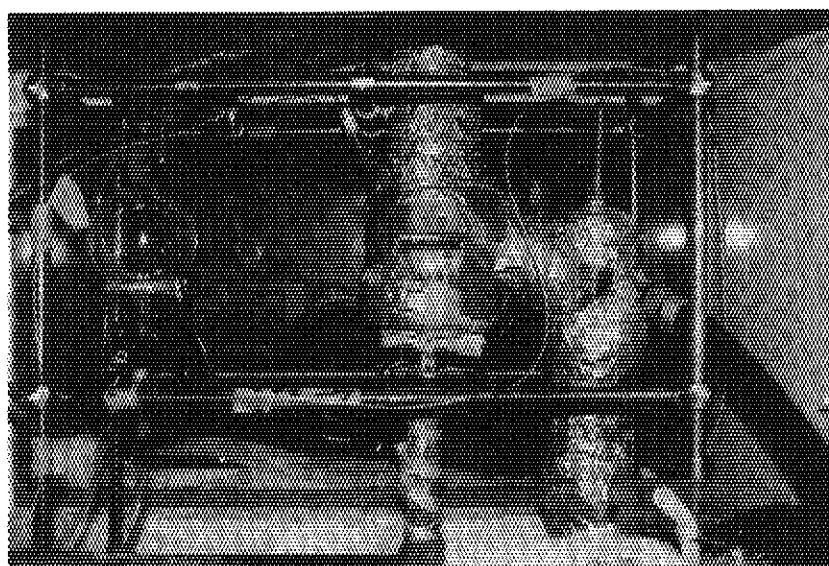


写真2 ウラン水溶液濃縮装置

付 録

A. サンプルング時の予備排出液量の検討

抽出実験においては、カラム内溶液のウラン及び酸の濃度プロフィールを知るため、運転中にカラム各部からサンプルを採取する。サンプル採取時には、カラム内サンプル取り出し口よりカラム外サンプル受け口を結ぶ細管等の内容量（以後デッドボリュームと略す）相当の残留液を排出した後分析用サンプルを採取する計画である。しかし、上記デッドボリューム流路にはニードルバルブ等複雑な構造を有することからデッドボリューム相当分の溶液を予め排出するだけで真のデータが得られないと考え、サンプルング時の最適な予備排出液量を調べた。

実験方法を以下に示す。

- 1) 有機相側サンプルングノズル（サンプルング位置 SS-4）
 - ① 抽出カラム、洗浄カラム共に十分に洗浄し、カラム内の酸分を落とす。
 - ② 洗浄カラムの上部セトラからオーバーフローする直前まで純水を張込む。
 - ③ 抽出実験で使用する有機相、水相両方のサンプルングノズルからカラム内液（純水）を抜く。拔出し液の酸濃度が零になるまで拔出す。
 - ④ 洗浄カラムに張り込んだ純水をカラム下部より拔出す。
 - ⑤ 洗浄カラムの上部セトラからオーバーフローする直前まで 3 mol/l 硝酸水溶液を張込む。
 - ⑥ 洗浄カラム有機相側サンプルングノズルから 1 ml ずつカラム内液（硝酸水溶液）を拔出す。
 - ⑦ 拔出し液を分析し、酸濃度を算出する。
- 2) 水相側サンプルングノズル（サンプルング位置 SS-4）
 - ① 洗浄カラム内の水溶液を下部セトラ所定の界面位置まで抜く。
 - ② 抽出カラムの下部セトラの所定の界面位置まで硝酸水溶液を張込む。
 - ③ 抽出カラム、洗浄カラムに有機相を上部セトラからオーバーフローする直前まで張込む。
 - ④ 中間槽に有機相を張込む。
 - ⑤ 各ポンプ、各パルス発生ポンプを所定の値で作動させる。
・操作手順等はウラン抽出実験と同様に行う。
 - ⑥ カラムが定常状態に達した後（2カラム体積分運転後）水相側サンプルングノズルから 1 ml ずつカラム内液を拔出す。拔出し液中に有機相が混入されるが、サンプル採取は水相だけで 1 ml 抜けるまで行う。
 - ⑦ 拔出し液の分析を行い、酸濃度を算出する。

カラム内液の拔出し量と酸濃度の関係は、図 A. 1（有機相側）、図 A. 2（水相側）に示す。ここで横軸は拔出し量の総量を表す。また、aは有機相、a'は水相のサンプルングノズルのデッドボリュームを、b、b'はカラム内酸濃度の 90% 点をそれぞれ示す。

図A. 1、図A. 2からデッドボリュームを抜出すだけではその時のカラム内酸濃度の約40%の値しか得られないことが判明した。また、カラム内酸濃度に達する予備排出液量は10 ml以上採取しなければならないことが判明した。ウラン抽出実験においてカラム内濃度に達する予備排出液量を抜出した後、サンプルを採取した方が正確なデータが得られるが、しかし、小型パルスカラムにおいて予備排出液量を多くすると、系外に出る液量が多くなり実験が不安定でデータが不正確になる。そこで、予備排出液量として暫定的にカラム内酸濃度の90%点とした。その値は、有機相側は約7.5 ml、水相側は約9.0 ml 必要である。実際のウラン抽出実験では有機相、水相とも同量の9 mlとした。

また、図A. 2でラインからはずれているポイントがあるが、これは初期張込み液(純水)がバルブの内壁等に付着していて、カラム内液との置換がスムーズに行われず、一時的に流れ出し酸濃度が減少したものと考えられる。このことは、ウラン抽出実験中のサンプル採取時にも言えるので、その改良を今後の課題とした。

参考：デッドボリューム

ニードルバルブ	3.3 ml
配管	1.3 ml (1 m)
計	4.6 ml

B. ウラン水溶液の沸点と酸・ウラン濃度の関係

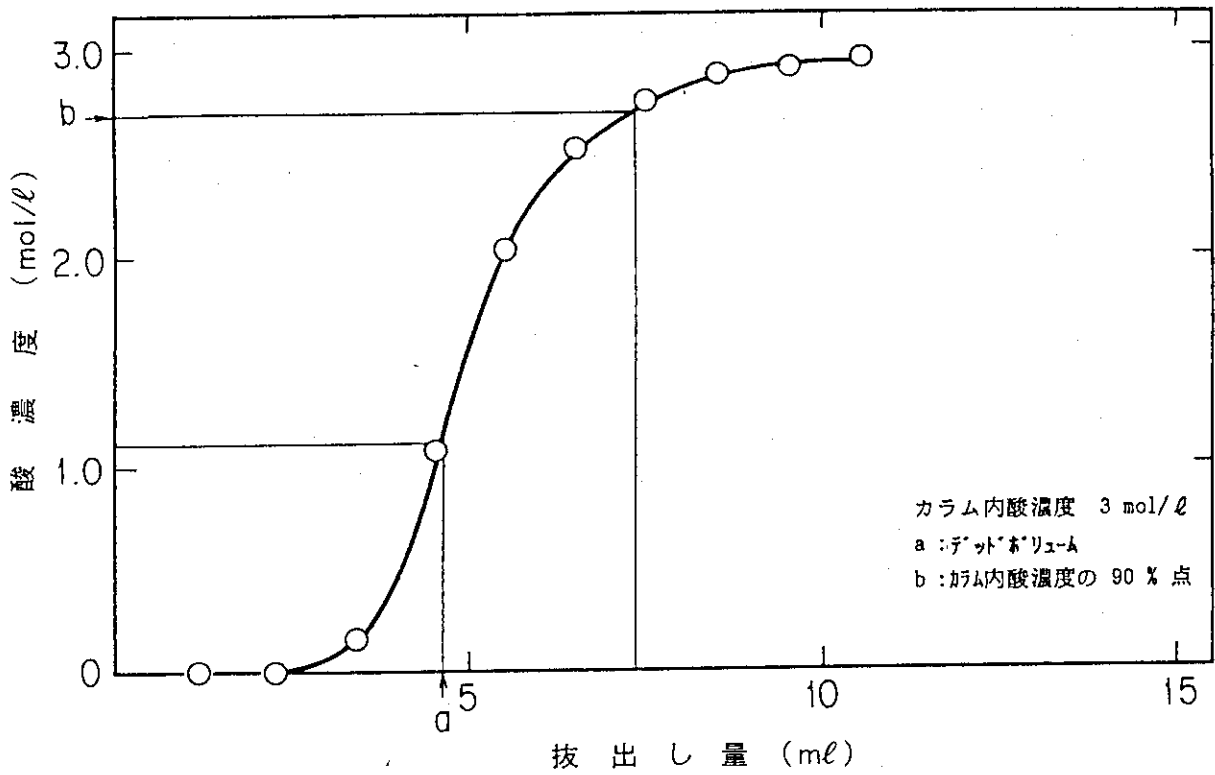
ウラン水溶液の沸点から溶液の組成（酸・ウラン濃度）を推定するため、ウラン水溶液濃縮装置運転時のウラン水溶液の沸点と酸・ウラン濃度関係を調べた。その方法は濃縮器の運転状態が定常に達するのを確認した後（沸騰状態が安定している、温度計 TG-1 の値が変化しない、気液分離器の液面が一定）、一時的に原液フィードポンプを止め、温度計 TG-1 の値を測定する。次にサンプルは濃縮液槽 V-12 に入る手前の配管より取り出す。この時、配管中の液温がほぼ濃縮器内の温度に達するまで十分に予備排出液を拔出し、その後サンプルビンに約 15 ml 採取した。この液を分析し、酸濃度、ウラン濃度を算出した。

その結果を図 B. 1 に示す。沸点の実測値は、文献⁽¹⁾からの推定値より 0.5~1.0°C 低いが、ほぼ文献値と同様の傾向を示している。同図を用いて沸点から溶液の組成（酸・ウラン濃度）を推定することは可能である。

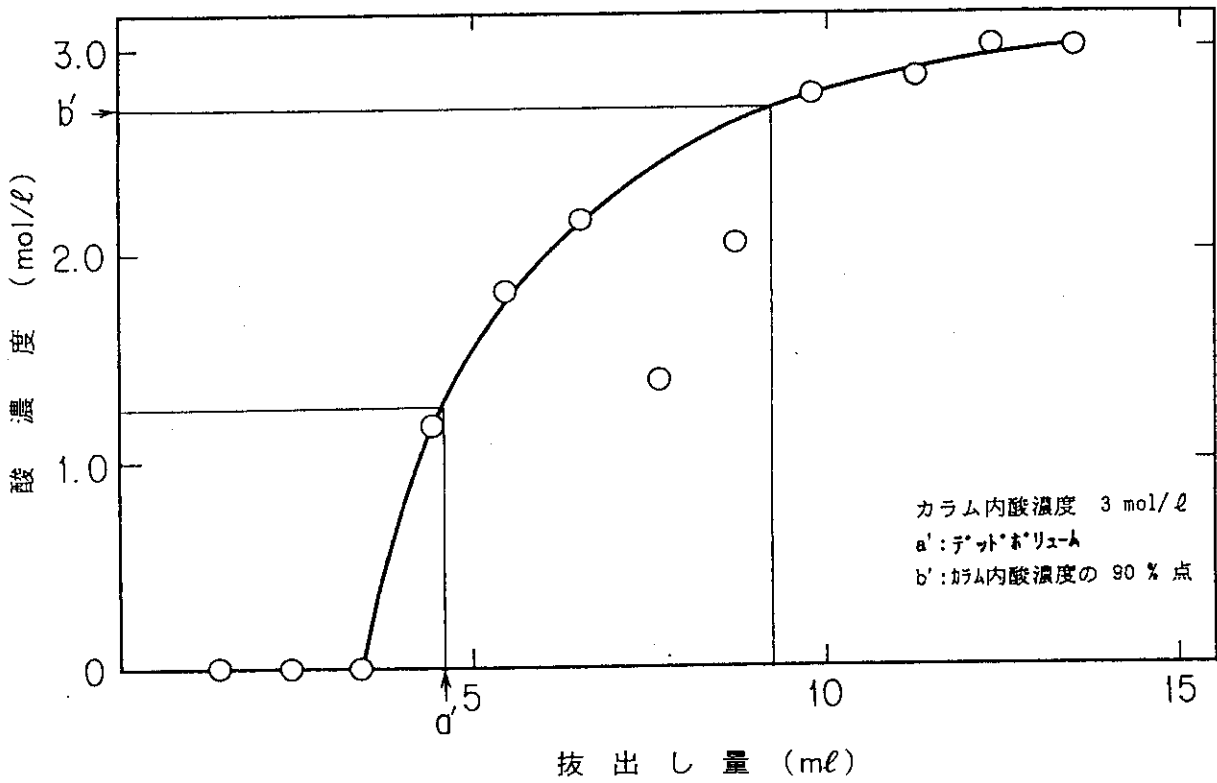
沸点が文献値と異なる理由として、① 温度測定位置の溶液を正確にサンプリングできなかった。② 温度はガラス保護管を通して間接的に測り、直接溶液の中に温度計を入れて測定しなかった等が考えられる。

文献

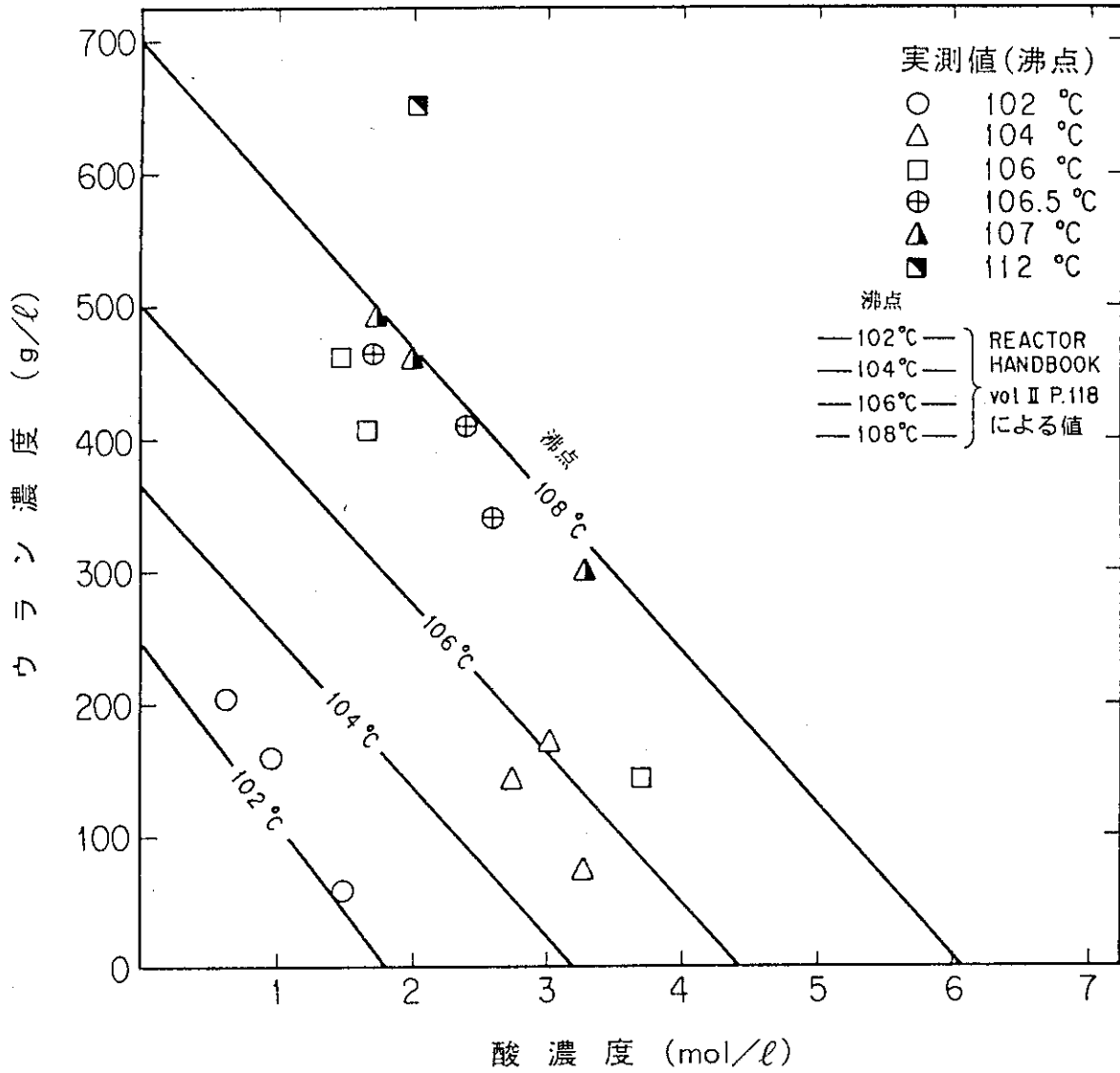
- (1) Stoller S.M. and Richards R.B. (ed.) : "Reactor Handbook Vol. II", Interscience Publishers, Inc., New York, p.118 (1961).



図A.1 有機相側カラム内液の抽出し量と酸濃度の関係



図A.2 水相側カラム内液の抽出し量と酸濃度の関係



図B.1 ウラン水溶液の沸点と酸濃度・ウラン濃度の関係