

JAERI-Tech  
96-009



群分離法の開発：NUCEF内群分離試験装置による  
コールド試験（I）

1996年3月

山口五十夫・森田泰治・近藤康雄・山岸 功・藤原 武  
渡邊雅之・溝口研一・龍ヶ江良三\*・青山三郎・久保田益充

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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。  
入手の問合せは、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、お申し越しください。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)で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.  
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division,  
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1996  
編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 (株)高野高速印刷

群分離法の開発：N U C E F 内群分離試験装置によるコールド試験（I）

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部

山口五十夫・森田 泰治・近藤 康雄・山岸 功  
藤原 武・渡邊 雅之・溝口 研一・龍ヶ江良三 \*  
青山 三郎 +・久保田益充

(1996年1月31日受理)

群分離法の開発研究を行うため、年間 $1.85 \times 10^{14}$  Bq の高レベル廃液を取り扱うことのできる試験装置を燃料サイクル安全工学研究施設（以下 N U C E F と記す）に1994年完成した。この群分離試験装置の設計条件、機器の構成と配置、機能及び検収検査、また、群分離試験を支援するための施設の概要については J A E R I - T e c h 94-030 で報告した。

本報は、群分離試験装置を用いて、脱硝沈殿法、シュウ酸塩沈殿法、溶媒抽出法及び無機イオン交換体分離法を組み合わせた群分離法について、運転の習熟も兼ねて、水による液移送試験及び硝酸を用いての全工程の装置性能試験を実施した結果についてまとめたものである。

これらの試験中に発生した不具合は、主に装置に起因するものはその都度、できる限り手直しを行い改善を図った。また、無機イオン交換体カラムの目詰り等プロセス上に起因するものは実験室規模でその解決策を見い出し、群分離試験装置の運転に反映させた。本報にはその経緯と改良点等も併記した。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

+ N U C E F 試験室

\* 石川島播磨重工業株式会社

Development of Partitioning Method:  
Cold Experiment with Partitioning Test Facility in NUCEF( I )

Isoo YAMAGUCHI, Yasuji MORITA, Yasuo KONDO, Isao YAMAGISHI  
Takeshi FUJIWARA, Masayuki WATANABE, Kenichi MIZOGUCHI  
Ryozo TATSUGAE\*, Saburo AOYAMA + and Masumitsu KUBOTA

Department of Chemistry and Fuel Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 31, 1996)

A test facility in which about  $1.85 \times 10^{14}$  Bq of high-level liquid waste can be treated has been completed in 1994 at Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility (NUCEF) for research and development of Partitioning Method. The outline of the partitioning test facility and support equipments for it which were design terms, constructions, arrangements, functions and inspections were given in JAERI-Tech 94-030.

The present report describes the results of the water transfer test and partitioning tests, which are methods of precipitation by denitration, oxalate precipitation, solvent extraction, and adsorption with inorganic ion exchanger, using nitric acid to master operation method of the test facility.

As often as issues related to equipments occurred during the tests, they were improved. As to issues related to processes such as being stopped up of columns, their measures of solution were found by testing in laboratories. They were reflected in operation of the Partitioning Test Facility. Their particulars and improving points were described in this report.

Keywords : High-level Liquid Waste, Partitioning, Cell, Equipment, Extraction, Filtration, Ion Exchange

---

\* Department of NUCEF Project

+ Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.

# 目 次

1. 序 論 .....	1
2. 水を用いた試験 .....	2
2.1 液移送試験 .....	2
2.1.1 高レベル廃液の受け入れ .....	2
2.1.2 群分離試験後廃液のセル外払い出し .....	3
2.1.3 受入貯留槽から脱硝・濃縮沈殿槽へ液移送 .....	4
2.1.4 脱硝・濃縮沈殿槽で発生する沈殿のろ過操作 .....	4
2.1.5 沈殿ろ過溶解槽で発生する沈殿のろ過操作 .....	5
2.1.6 試薬供給ラインの通液試験 .....	5
2.1.7 セル内液送ポンプによる通液試験 .....	7
2.1.8 セル内ロートから各貯槽への通液試験 .....	8
2.1.9 群分離試験施設－廃液貯槽室（VI）間の液移送試験 .....	8
2.2 昇温試験 .....	9
2.2.1 脱硝・濃縮沈殿槽及び沈殿ろ過溶解槽の昇温試験 .....	9
2.2.2 乾燥器の昇温試験 .....	10
3. 硝酸を用いた試験 .....	25
3.1 濃縮及び脱硝試験 .....	25
3.1.1 濃縮試験 .....	25
3.1.2 脱硝試験 .....	25
3.1.3 脱硝における脱硝・濃縮沈殿槽接液部の溶出量測定 .....	26
3.2 抽出及び逆抽出試験 .....	27
3.3 無機イオン交換体カラム装置の試験 .....	28
3.3.1 前処理試験（中和ろ過） .....	28
3.3.2 カラムの通水試験 .....	28
3.3.3 カラムの乾燥試験 .....	29
3.3.4 交換体の仮焼試験 .....	30
4. 付加機器の取り付けと改善・調整 .....	34
4.1 付加機器の取り付け .....	34
4.1.1 群分離試験試料のセル外搬出法の検討 .....	34
4.1.2 その他の機器 .....	34
4.2 試験中に見い出された不具合とその改善 .....	34
5. 結 言 .....	41
謝 辞 .....	41
引用文献 .....	42
付 錄 .....	43

## Contents

1.	Introduction .....	1
2.	Test with Water .....	2
2.1	Water Transfer Test .....	2
2.1.1	Reception of High-level Liquid Waste .....	2
2.1.2	Discharge of Liquid Waste from the Cell after Partitioning Test .....	3
2.1.3	Water Transfer from Reception and Storage Vessel to Denitration and Concentration Vessel .....	4
2.1.4	Filtration of Precipitate produced in Denitration and Concentration Vessel .....	4
2.1.5	Filtration of Pracipitate produced in Vessel for Oxalate Precipitation, Filtration and Dissolution .....	5
2.1.6	Water Passing Test through the Reagent Providing Line .....	5
2.1.7	Water Passing Test with Transfer Pumps in the Cell .....	7
2.1.8	Water Passing Test through a Funnel to Each Vessel in the Cell .....	8
2.1.9	Water Transfer Test between Partitioning Test Facility and Liquid Waste Vessel Room (VI) .....	8
2.2	Temperature Raising Test .....	9
2.2.1	Temperature Raising Test of Denitration and Concentration Vessel and Vessel for Oxalate Precipitation, Filtration and Dissolution .....	9
2.2.2	Temperature Raising Test of Dryer .....	10
3.	Test with Nitric Acid .....	25
3.1	Tests of Concentration and Denitration .....	25
3.1.1	Test of Concentration .....	25
3.1.2	Test of Denitration .....	25
3.1.3	Measurement of Corrosion Rate of Denitration and Concentration Vessel during Denitration .....	26
3.2	Test of Extraction and Back-extraction .....	27
3.3	Test of Inorganic Ion Exchanger Columns .....	28
3.3.1	Test of Feed Preparation (Neutralization and Filtration) .....	28
3.3.2	Solution Passing Test through the Columns .....	28
3.3.3	Test of the Columns Drying .....	29
3.3.4	Test of Calcination of Inorganic Ion Exchanger .....	30
4.	Improvement and Adjustment of the Equipment, and Installation of Additional Equipments .....	34

4.1 Installation of Additional Equipments .....	34
4.1.1 Consideration on Method of Carrying out Samples from the Cell .....	34
4.1.2 Other Equipments .....	34
4.2 Improvement of Poor Condition of the Equipment Found during the Test .....	34
5. Conclusion .....	41
Acknowledgement .....	41
References .....	42
Appendix .....	43

## 1. 序論

使用済み核燃料の再処理により発生する高レベル廃液中に含まれる放射性核種を、半減期や放射能毒性に応じて分離し、より合理的な形で処分する、さらには資源として貴重な元素を有効に利用することを目的に群分離法を開発している。

1973年頃から 1984年までは高レベル廃液中の元素を超ウラン元素群、Sr-Cs群及びその他の元素群の3群に分離するプロセス<sup>1)</sup>を開発し、実廃液試験<sup>2, 3, 4)</sup>によりその有効性を実証した。その後は、ネプツニウム及びテクネチウムの分離を重点とした4群群分離プロセス（3群+Tc-白金族元素群）の開発を進めている<sup>5)</sup>。

4群群分離プロセスの開発研究では、これまでに、模擬高レベル廃液或いはNp-237やTc-99等の放射性核種を加えた廃液を用いて基礎的な試験研究を行い、個々の分離工程の開発を進めてきた。これらの成果をもとに、NUCEF内のセルに設置する群分離試験装置の設計を1986年に開始し、1994年には装置の設置を完了した。本装置の目的は、開発した4群群分離プロセスの個々の工程を総合して、その有効性を実際の高レベル廃液を用いて確認することであり、また、プロセスの最適化を化学的及び工学的面から検討することである。

本報は1994年7月以降に実施した本装置の性能試験の結果をまとめたものであり、機器製作者及び日本原子力研究所検査担当者による検収検査を完了後、引き続き運転の習熟も兼ねて、群分離試験の全工程を水及び硝酸を用いて運転した結果を記載した。

本試験中に発生した不具合は、主に装置に起因するものはその都度、できる限り手直しを行い改善を図り、また、無機イオン交換体カラムの目詰り等プロセス上に起因するものは実験室規模でその解決策を見い出し、群分離試験装置の運転に反映させた。本報にはその経緯と改良点等も併記した。

なお、NUCEF内のセルに設置した群分離試験装置の概要については JAERI-Tech 94-030にまとめているので、本報では装置の詳細な説明については割愛する。

## 2. 水を用いた試験

水を用いた試験は 1994年 7月から 1995年 2月にかけて装置の運転に習熟することを主な目的として実施した。

試験項目は、ポンプ、配管、貯槽類を用いた液移送試験と加熱機器の昇温試験である。抽出器及び無機イオン交換カラムの運転は、硝酸を用いた試験以降に実施するので、ここでは割愛した。

### 2. 1 液移送試験

JAERI-Tech 94-030 に記載した群分離フローシート及び群分離試験装置系統図<sup>6)</sup>に従い、配管及びポンプ類を用いて各試験機器及び 10基の貯槽類に水を移送した。液移送の方法は、重力落下、減圧吸引、液送ポンプ或いは定量液送ポンプの運転の 3種類である。これらの液移送装置は群分離試験装置を設置したセルの内外に準備しているが、その時々の液移送の目的に適った方法を選定して行った。

#### 2. 1. 1 高レベル廃液の受け入れ

高レベル廃液の受け入れについては、同じセル内に設置された再処理プロセス試験設備において発生する高レベル廃液及びNUCEF外の再処理試験施設で発生する高レベル廃液を輸送容器をとおして受け入れができるよう設計されているので、その両方の液移送試験を実施した。

##### (1) 再処理プロセス試験設備から $\beta$ $\gamma$ 廃液槽への液移送

###### ・試験方法

高レベル濃縮液受槽（再処理プロセス試験設備）に水を 1.5L入れ、遠隔着脱コネクターを用いて高レベル濃縮液受槽 → 無機用液送ポンプ →  $\beta$   $\gamma$  廃液槽と配管した。その後、無機用液送ポンプを運転し、高レベル濃縮液受槽から群分離試験施設の  $\beta$   $\gamma$  廃液槽に液移送した。

###### ・試験結果

高レベル濃縮液受槽の液位変化から流速は概ね 13L/hであり、吸引の初期において液送ポンプ内に空気が入っていても液移送できることができた。高レベル濃縮液受槽の液位が 0.51Lとなったところで液送ポンプを停止すると、配管内の液が貯槽に戻り、高レベル濃縮液受槽の液位は 0.94Lとなった。すなわち、高レベル濃縮液受槽から群分離試験施設に液移送する場合、希望する一定量を液移送することは難しく、また、配管内の液だまり等を洗浄する必要性から高レベル濃縮液受槽内の全量を液移送した後、高レベル濃縮液受槽内に洗浄液を添加し、再度液移送する必要がある。なお、これらの操作は群分離試験施設の試薬供給を除く全ての液移送操作に必要と考えられる。

##### (2) 再処理プロセス試験設備からエアチャンバへの液移送

###### ・試験方法

$\beta$   $\gamma$  廃液槽への液移送後、高レベル濃縮液受槽の液位が 0.94Lであることを確認し、

遠隔着脱コネクターを用いて高レベル濃縮液受槽→エアチャンバと配管した。その後、真空ポンプ(G-EP-23101)を運転し、エアチャンバを減圧として高レベル濃縮液受槽から群分離試験施設のエアチャンバに液移送した。

#### ・試験結果

高レベル濃縮液受槽の液位が 0Lとなるまで液移送したがエアチャンバの減圧を解放すると配管内の液が戻り、高レベル濃縮液受槽の液位は 0.08Lとなった。ここでも配管内の液だまり等を洗浄する必要性があるが、減圧吸引によるエアチャンバへの液移送は可能である。

### (3) 高レベル廃液輸送容器（サンドリヨン）から受入貯留槽へ液移送

#### ・試験方法

高レベル廃液輸送容器内部はすでに放射能で汚染しているため、10Lポリエチレン製タンクで高レベル廃液輸送容器を模擬して実施した。また、高レベル廃液輸送容器とセル付属の廃液取り出しー注入口の遮蔽付き配管（ブリッジ）はポリエチレン製チューブで模擬して実施した。ポリエチレン製タンクに 10Lの水を入れ、その後、真空ポンプを運転し、受入貯留槽を減圧として 10Lポリエチレン製タンクから受入貯留槽に液移送した。

#### ・試験結果

受入貯留槽の液容量(L)表示は 11.1L、密度(g/cm<sup>3</sup>)表示は 0.900g/cm<sup>3</sup>（黄色：測定不可）を示した。本試験では受入貯留槽に 10Lの水が移送されたはずである。受入貯留槽の液密度測定用空気バージ管の位置関係から密度計作動点は 15.6L以上であり、貯槽の液量が 15.6L以下の場合、本貯槽の液密度は計測できない。群分離試験装置監視制御システム（D D C S）による液容量(L)表示の方法は液中に差し込んだ空気バージ管の圧力(g/cm<sup>2</sup>)を液密度(g/cm<sup>3</sup>)で除し、液位(cm)を算出し、その後、貯槽特有の液位(cm)と液容量(L)の関係<sup>6)</sup>から求める。本試験のごとく貯槽容量に対して液量が少なく、液密度測定が不可の場合は、初期密度値 0.900g/cm<sup>3</sup>で計算した液容量(L)を表示することとなっている。従って、密度を 1g/cm<sup>3</sup>に補正して計算すれば液容量は 10Lとなり、正確に液移送できたことが確認された。液密度測定用空気バージ管を備えた槽はこの他に脱硝・濃縮沈殿槽及び沈殿ろ過溶解槽があり、各貯槽の密度計作動点等貯槽の形態、すなわち、縦方向断面及び配管等の位置図を第 2-1-A, B 図にまた、これらの位置図から計算によって求めた操作及び計測可能液量等を第 2-1 表に示す。

## 2. 1. 2 群分離試験後廃液のセル外払い出し

群分離試験後廃液を高レベル廃液輸送容器（サンドリヨン）を用いてセル外へ払い出す場合には受入貯留槽を経由しなければならない。すなわち、セル内で発生する群分離試験後の廃液等をいったん受入貯留槽に液移送した後、セル裏面アイソレーションルーム（I）に置いた高レベル廃液輸送容器に液移送することとなる。ここで、受入貯留槽には設計上廃液注入用の遠隔着脱コネクターの取り付け口が無いため、液サンプリング口より注入することとした。なお、前記のごとく高レベル廃液輸送容器はすでに放射能で汚染している

ので、受入貯留槽から高レベル廃液輸送容器への液移送試験は実施しなかった。

#### ・試験方法

遠隔操作により受入貯留槽のサンプリング口からジグを用いてサンプリング用針を引き抜いた。 $\beta\gamma$ 廃液槽に水を5.0L入れ、遠隔着脱コネクターを用いて $\beta\gamma$ 廃液槽→無機用液送ポンプ→受入貯留槽サンプリング口と配管した。その後、無機用液送ポンプを運転し $\beta\gamma$ 廃液槽から受入貯留槽に液移送した。

#### ・試験結果

遠隔操作による針固定用ボルトのジグによる取り付け及び取り外しは、ボルトとジグの組合せが悪く、改良する必要がある。次いで、サンプリング用針の引き抜き操作は受入貯留槽がセル内最後部に配置されているため、マスタースレーブマニプレータとインセルクレーンを併用して実施する必要がある。これらの理由で操作性にかなりの困難はあるものの、実施可能である。

液移送試験では、 $\beta\gamma$ 廃液槽及び受入貯留槽の液位変化から流速は概ね13L/hであり、受入貯留槽に廃液を移送できることが確認できた。

### 2. 1. 3 受入貯留槽から脱硝・濃縮沈殿槽へ液移送

#### ・試験方法

受入貯留槽に10Lの水を入れ、エアチャンバに減圧吸引法で2L液移送後、重力落下で脱硝・濃縮沈殿槽へ液移送した。この際、本試験では前記のように受入貯留槽において密度が測定できなかったため、水の密度 $1\text{g/cm}^3$ を用いて移送量を計算した。また、エアチャンバー受入貯留槽間のパイプ内容積を0.2Lと考え、受入貯留槽液量が2.2L減少するまで液移送した。

#### ・試験結果

受入貯留槽—エアチャンバー脱硝・濃縮沈殿槽間の配管模式図を第2-2図に示す。

エアチャンバを減圧にして液移送開始後、受入貯留槽の液位から移送量を監視した。遠隔操作によって受入貯留槽—エアチャンバ間の弁105を閉じることにより、実液送2.22Lで止めることができた。エアチャンバから脱硝・濃縮沈殿槽に液移送すると脱硝・濃縮沈殿槽の液量は2.02L、密度は1.0を表示した。遠隔による弁操作等にやや困難はあるものの、密度補正を加えることにより正確に液移送できることが確認できた。貯槽及び配管類の洗浄は遠隔着脱コネクターの取り付け口(A)及び試薬供給室よりエアチャンバに水を液移送すれば弁105とエアチャンバ間の配管及び脱硝・濃縮沈殿槽までの配管が洗浄できる。但し、受入貯留槽に廃液が残る場合には、受入貯留槽と弁105間の配管は洗浄できない。

### 2. 1. 4 脱硝・濃縮沈殿槽で発生する沈殿のろ過操作

#### ・試験方法

脱硝・濃縮沈殿槽に1.7Lの水を入れ、フィルタを経由してろ液受槽(1)へ液移送した。この場合の液移送方法は沈殿を含むスラリー等を移送するため、真空ポンプを運転し、ろ

液受槽（1）を減圧にして行った。その後、機器・配管類に残留する高レベル廃液を押し出すこととフィルタに集められたケーク等を洗浄するため、脱硝・濃縮沈殿槽に 2.0Lの水を入れ、同様の液移送方法でろ液受槽（1）へ液移送した。なお、ろ液受槽（2）もフィルタを介して沈殿物を吸引ろ過できる構造となっているので同様の試験を実施した。

#### ・試験結果

ろ液受槽（1）を常圧に戻した後、ろ液受槽（1）の液容量(L)を計測したところ表示は 1.43Lを示した。マスバランスから 270mLの液が不明となったが、これは脱硝・濃縮沈殿槽の吸い上げ残量 6mL（第 2-1 表参照）、フィルタ内残量 50mL（後述）及び配管内残量（計測不可）に分布していることによるものと考えられる。洗浄操作後のろ液受槽（1）の液容量(L)は 3.49Lを示した。

フィルタを取り外し内部観察したところ約 50mLの水が残留していた。フィルタケース及び金属フィルタの構造図を第 2-3 図に示す。スラリーは円筒型金属フィルタ上部より添加し、ろ液を下部から減圧吸引する方法である。今回の被ろ過物は沈殿等を含まない水があるので、ろ過の最終段階で円筒型金属フィルタの上部から空気がバイパスし背圧がかからなかつたと考えられる。沈殿等を含む溶液のろ過の場合はフィルタ全面に沈殿物が付着しケークを形成するので、未ろ過の溶液がフィルタ内に残留することはないか、残留するとしても少量であると考えられる。

#### 2. 1. 5 沈殿ろ過溶解槽で発生する沈殿のろ過操作

沈殿ろ過溶解槽は、シュウ酸を用いて超ウラン元素（T R U）及び希土類元素をシュウ酸塩沈殿として高レベル廃液から一括分離し、その後、沈殿を硝酸で再溶解して、再度ろ過操作を行う試験装置である。そのため、ろ過のためのフィルタは沈殿ろ過溶解槽内に上下機構と共にセットされており、ろ過時にフィルタを液中に下げ、スラリーをろ過する構造（第 2-1-B 図参照）となっている。前記の脱硝・濃縮沈殿槽で発生する沈殿のろ過と沈殿ろ過溶解槽で発生する沈殿のろ過はフィルタ部が貯槽外部にあるか貯槽内部にセットされているかの違いがあるものの減圧吸引で行う方法は同じである。吸引する側の貯槽はろ液受槽（1）と沈殿溶解液受槽である。前記と同様の試験を実施し、所定どおり液移送できることを確認した。

#### 2. 1. 6 試薬供給ラインの通液試験

試薬供給ラインとは、試薬供給室（B）及び操作室よりセル内の各機器及び貯槽に試験試薬を注入するラインである。試薬供給室（B）のセル内に試薬等を供給するための設備の構成を第 2-2 表に示す。試薬等の供給源は乾燥空気送気（主に吸着カラムの水抜き乾燥に用いる）のための圧空源及び液状試薬を送液するための試薬ホルダー 10基である。汎用試薬ホルダー内の液は重力落下により（流速コントロール不要の試薬供給に用いる）セル内に液移送する。0.8M シュウ酸とギ酸は弁を切り替えることにより、共通の定量ポンプ(G-P-17301)でセル内（主に脱硝・濃縮沈殿槽及び沈殿溶解液受槽）に液移送する。8M 硝酸、9M 硝酸及び 4M 水酸化ナトリウム溶液は同じく弁操作により試薬ホルダーを選び、共

通の定量ポンプ(G-P-17302)でセル内(主に吸着カラムの水洗、溶離等に用いる)に液移送する。なお、乾燥空気、汎用試薬ホルダー、定量ポンプ(G-P-17301)及び(G-P-17302)の4個の出口はコネクターによる流路選択により8基のセル内機器及び貯槽に繋ぐことができる。

D I D P A、0.5M硝酸 4.0M硝酸及び0.8Mシュウ酸試薬ホルダーは抽出器(1)、(2)の専用であり、各ホルダー内の液は専用の定量ポンプ(G-P-17303からG-P-17306)及び専用配管でセル内に液移送する。

操作室のセル内に試薬等を供給するための設備の構成を第2-3表に示す。汎用試薬ホルダー内の液は圧空により専用配管を用いてセル内のポリエチレン製タンク等に圧送する。

無機及び有機用の2つの分注希釈装置は、セル内で採取した高放射能溶液試料の一定量を分取し、一定量の無機あるいは有機溶液で希釈する装置である。それぞれ無機、有機溶液用に専用配管があり、希釈液を操作室から注入できる。

#### ・試験方法

##### (1) 汎用試薬ホルダーから各機器貯槽への通水試験

汎用試薬ホルダーよりエアチャンバを経て脱硝・濃縮沈殿槽、ろ液受槽(1)、ろ液受槽(2)、流出液調整槽、pH測定装置に重力落下で液移送した。

##### (2) 定量ポンプによる脱硝・濃縮及び沈殿溶解液受槽への試薬注入試験

それぞれの試薬ホルダーより脱硝・濃縮沈殿槽、沈殿溶解液受槽へ各々定量ポンプで液移送した。

##### (3) 定量ポンプによる無機イオン交換体洗浄・溶離のための試薬注入試験

それぞれの試薬ホルダーより無機イオン交換体カラム装置に定量ポンプで液移送した。本試験では無機イオン交換体カラム装置にカラムは取り付けず、カラム入りロノズルにメスシリンダーをセットし流量を測定した。なお、無機イオン交換体カラム装置に付属する弁の作動試験も実施した。

##### (4) 定量ポンプによる抽出・逆抽出のための試薬注入試験

それぞれの試薬ホルダーよりセル内抽出器へ定量ポンプで液移送した。本試験では抽出器を運転せず、抽出器入りロノズルにメスシリンダーをセットし流量を測定した。

##### (5) 操作室汎用試薬ホルダーからの試薬注入試験

汎用試薬ホルダーに2Lの水を入れ、試薬ホルダーを加圧してセル内のポリエチレン製タンクに水を圧送した。

##### (6) 操作室分注希釈装置の運転

分注希釈装置を用い、セル内の試料瓶から一定量の試料を分取し、次いで希釈液を操作室の希釈装置から別の試料瓶に圧送した。

#### ・試験結果

試薬供給室(B)の汎用試薬ホルダーからの試薬注入試験では供給液量の全量が完全に液移送でき、これらの試験で配管等からの液漏れはなかった。定量ポンプの特性(コントローラ目盛v.s.流速)を第2-4-Aから2-4-C図に示す。本定量ポンプは、ポンプ本体(吐出量/ストローク)目盛及びコントローラ(ストローク/時)目盛で液流速が

可変であり、ポンプ本体で個々の最適流速範囲を選定後固定し、コントローラ目盛で流速を調整するようにした。なお、無機及び有機溶液用分注希釀装置の運転試験及びその精度等を検討した結果については付録に示した。

## 2. 1. 7 セル内液送ポンプによる通液試験

セル内において高レベル廃液等を貯槽間・群分離試験機器間に液移送する方法としては、減圧吸引を用いる方法と液送ポンプを用いる方法がある。また、各貯槽には遠隔着脱コネクターの取り付け口が受入貯留槽を除いて全て付加されており、両端に遠隔着脱コネクターを取り付けたフレキシブルチューブを各貯槽の遠隔着脱コネクターの取り付け口に差し込むことにより、相互の貯槽は配管的に結合することができる。この状態で一方の貯槽を減圧吸引する、または、相互の貯槽間に本液送ポンプを挿み込むことによって液移送ができる構成となっている。

### ・試験方法

#### (1) 無機用定量ポンプを用いた液移送試験

ろ液受槽（1）に水を入れ、遠隔着脱コネクターを用いて、ろ液受槽（1）から無機用定量ポンプ、抽出器（1）または無機イオン交換体カラム装置へと配管し、定量ポンプを運転した。本試験では抽出器及び無機イオン交換体カラム装置は運転せず、それぞれの機器に入る前にメスシリンダーを置き流速を測定した。

#### (2) 有機用定量ポンプを用いた液移送試験

DIDPAフракション一時貯槽に水を入れ、遠隔着脱コネクターを用いて、DIDPAフракション一時貯槽から有機用定量ポンプ、抽出器（2）へと配管し、定量ポンプを運転した。流速の測定は前項と同じである。

#### (3) 無機用液送ポンプを用いた液移送試験

任意の貯槽（A）に水を入れ、遠隔着脱コネクターを用いて無機用液送ポンプ、任意の貯槽（B）へと配管し、液送ポンプを運転した。流速は、貯槽（A）、（B）の液位変化を観測することによって測定した。

#### (4) 有機用液送ポンプを用いた液移送試験

無機用液送ポンプを用いた液移送試験と同等の試験を実施した。

#### (5) 酸濃度調整槽（流出液調整槽）循環ポンプ試験

流出液調整槽に液張り後、循環ポンプを運転した。pH測定装置内の液流速及び滞留液量等はpH電極を取り外して目視により観察した。

### ・試験結果

セル内定量ポンプの特性（コントローラ目盛v.s. 流速）を第2-5図に示す。本無機、有機定量ポンプは2. 1. 6章で述べた定量ポンプと同種のものであり、同じくポンプの本体目盛を固定し、コントローラ目盛で液流速を調整する。なお、液移送時の配管等からの液漏れはなかった。

無機、有機用液送ポンプ及び循環ポンプの流速は概ね、13L/hであり、吸引の初期において液送ポンプ内に空気が入っていても液移送できることが確認できた。

## 2. 1. 8 セル内ロートから各貯槽への通液試験

抽出器及び無機イオン交換体カラムからの流出液はロート及び弁を介してそれぞれ定められた貯槽に重力により液移送される構造である。構成を第2-4表に示す。

### ・試験方法

第2-4表の構成に従い、それぞれのロートから2Lの水を注ぎ、貯槽の液量を計測した。なお、この時に弁の開閉操作も合わせて行い操作性を確認した。

### ・試験結果

セル内ロートからの通液試験では供給液量の全量が完全に液移送できた。また、これらの試験で配管等からの液漏れ等はなかった。

## 2. 1. 9 群分離試験施設-廃液貯槽室（VI）間の液移送試験

群分離試験後の無機及び有機廃液はセル下部に設置された廃液貯槽室（VI）の高レベル廃液貯槽A 容量：1000L（無機廃液貯蔵用）及び有機廃液貯槽（II）容量：1000Lに液移送し、一時的に貯蔵することとなっている。（このほかに予備用として高レベル廃液貯槽B 容量：1000L（無機廃液貯蔵用）及び有機廃液貯槽（I）B 容量：1000Lの貯槽がある。）また、これら廃液貯槽からのサンプリングが必要になったときには、廃液の一部をいったん群分離試験施設へ汲み上げることとなっている。以上のことから、廃液貯槽の代表として高レベル廃液貯槽Aを選び、群分離試験施設との間の相互の液移送試験を実施した。有機廃液貯槽（II）や予備として設置した高レベル廃液貯槽B及び有機廃液貯槽（I）Bへの液移送試験は遠隔着脱コネクター及び弁の切り替え操作で今回の試験と同等となるので実施しなかった。なお、有機廃液貯槽（II）からの群分離試験施設への汲み上げ試験も必要である（移送方法及び群分離試験施設側の受け入れ貯槽が無機廃液の場合と異なる）が、有機の廃液が試験に有為な量に満たないため未実施である。

### ・試験方法

#### （1）セル内群分離試験施設から高レベル廃液貯槽Aへの液移送試験

$\beta\gamma$ 廃液槽に水を15L入れ、遠隔着脱コネクターを用いて $\beta\gamma$ 廃液槽→無機用液送ポンプ→切り替え弁→廃液貯槽室（VI）の高レベル廃液貯槽Aと配管した。その後、無機用液送ポンプを運転し $\beta\gamma$ 廃液槽から高レベル廃液貯槽Aに液移送した。流速は $\beta\gamma$ 廃液槽及び高レベル廃液貯槽Aの液位変化から測定した。

#### （2）高レベル廃液貯槽Aからセル内群分離試験施設への液移送試験

高レベル廃液貯槽Aからセル内の群分離試験施設（エアチャンバ）に廃液を汲み上げるため、遠隔着脱コネクター及び弁操作により、高レベル廃液貯槽A→透明ガラス製貯槽（エアチャンバはステンレス鋼製で液流の観察ができないため、エアチャンバの模擬とした）と配管した。真空ポンプを運転し、透明ガラス製貯槽を-400mmHgの減圧とした。次いで、廃液貯槽室（VI）に設置したエアーリフトに空気を供給し、高レベル廃液貯槽Aから透明ガラス製貯槽（セル内エアチャンバと同じ高さにセット）に液移送した。各貯槽の配置を第2-6図に示す。

### ・試験結果

セル内群分離試験施設から高レベル廃液貯槽Aへの液移送試験で、無機用液送ポンプの流速は概ね、13L/hである。

高レベル廃液貯槽Aからセル内群分離試験施設への液移送試験の結果を第2-7図に示す。減圧度 -400mmHgでエアーリフトを併用すると流速はエアーリフトに供給する空気の量を増加するに従い上昇し、空気量 80NL/hで 11.7±2.2L/hとなった。なお、エアーリフトのみの運転では地下室の高レベル廃液貯槽Aからセル内の群分離試験施設（エアチャンバ）に廃液を押し上げることはできなかった。

## 2. 2 昇温試験

セル内の群分離試験装置の内、加熱を必要とする装置は脱硝・濃縮沈殿槽、沈殿ろ過溶解槽及び乾燥器である。脱硝・濃縮沈殿槽及び沈殿ろ過溶解槽の加熱は、アイソレーションルーム（I）に設置した熱媒加熱循環装置で加熱したオイルをそれぞれの貯槽に取り付けたジャケット部に循環することで行う。熱媒加熱循環装置は1基であり、加熱する槽の選択はアイソレーションルーム（I）の弁を切り替えることで行う。乾燥器の加熱は乾燥器本体に取り付けた電気ヒーターで行う。加熱装置の温度制御運転モードを第2-5表に示す。熱媒加熱循環装置には4基の温度検出端があり、脱硝・濃縮沈殿槽及び沈殿ろ過溶解槽には液中温度を計測するため、各1基の温度検出端を設けている。温度制御の方法はこれら各機器に取り付けた温度計の出力を、DDCSに取り込み、MANUAL, AUTO 及び CASCADE の3種類のモードで行う。

### 2. 2. 1 脱硝・濃縮沈殿槽及び沈殿ろ過溶解槽の昇温試験

#### ・試験方法

脱硝・濃縮沈殿槽に 2Lの水を入れ、アイソレーションルーム（I）の熱媒循環切り替え弁を脱硝・濃縮沈殿槽側にし、熱媒加熱循環装置を運転した。試験運転のモードは AUTO と CASCADE の2種類である。沈殿ろ過溶解槽の昇温試験では、同じ水 2Lを入れ、熱媒循環切り替え弁を沈殿ろ過溶解槽側にして、同様に実施した。

#### ・試験結果

AUTO MODE 热媒温度設定値 130°Cの試験において、热媒の温度は昇温開始後、約 1時間で設定値に到達した。この時、貯槽液中温度は約 80°Cであり、また、昇温開始後約 2時間で 94°Cとなりその後一定となった。水の沸騰点 100°Cに到達しなかったのは攪拌空気を液中に 0.3Nm<sup>3</sup>/hで通気していたためである。

CASCADE MODE 貯槽液中温度設定値 85°Cの試験において、热媒の温度は昇温開始後、若干の自動修正による温度変化はあるものの約 2時間で 98°Cとなりその後一定となった。この時、貯槽液中温度は約 83°Cであり、設定値の 85°Cに到達しなかった。貯槽液中温度が設定値に到達する時間は昇温開始後約 3時間であり、その後一定となる。なお、本モードで貯槽液中温度設定値を 100°Cとすると、貯槽液中温度が水の沸点近くで気化熱により奪われる熱量が増大するため、それらを補うためにヒーターの出力が上昇し、热媒の温度が

限界温度設定値の 135°C を越え安全装置が作動した。

従って、CASCADE MODE の運転では被加熱液の温度を正確にコントロールできるが、被加熱液の沸点近くを設定値に選ぶことは上記の理由で不都合であることがわかった。これらの結果、脱硝・濃縮等溶液の沸騰を伴う加熱操作は AUTO MODE で実施しなければならない。

## 2. 2. 2 乾燥器の昇温試験

### ・試験方法

乾燥器にダミーの無機イオン交換体カラム 1 本を入れ、乾燥器を昇温した。試験運転のモードは AUTO である。温度設定値は 140 及び 800°Cとした。

### ・試験結果

AUTO MODE 乾燥器温度設定値 140°C の昇温試験において、乾燥器内の温度は昇温開始後、約 15 分で 170°C にオーバーシュートし、その後、18 分で 145°C となり、設定値の 140°C で一定となったのは 1 時間 20 分後であった。

乾燥器温度設定値 800°C の試験において、乾燥器内の温度は昇温開始後、約 1 時間 30 分で 810°C とわずかにオーバーシュートしたものの、その後、約 1 時間で設定値 800°C に到達した。このようなオーバーシュートはヒーターの仕様と制御プログラムに依存するものであり、ある程度はやむをえない。また、温度検出端はヒーターの近傍にセットされているため、加熱されるカラム自体の温度を示しているわけではない。硝酸試験では、このような観点をふまえて再度昇温試験を実施したので次章において詳述する。

第2-1表 各貯槽の操作及び計測可能液量

貯槽名	貯槽容量(L)	吸上げ残量		液位計作動点		作動点以下		密度計作動点		サノガ'リグ'可液量		温度計作動点		搅拌可能液量		
		液位(mm)	液量(L)	液位(mm)	液量(L)	表示液量(L)	液位(mm)	液量(L)	液位(mm)	液量(L)	液位(mm)	液量(L)	液位(mm)	液量(L)	液位(mm)	液量(L)
受入れ貯留槽 (17チャバ)(サントリヨン)	40	5	0.033	30	1.15	0.00	130	15.60	50	3.13	50	3.13	50	3.13	50	3.13
沈殿溶解液受槽	20	5	0.029	30	1.00	0.00	—	—	50	2.71	50	2.71	50	2.71	50	2.71
ろ液受槽(1)	20	5	0.029	30	1.00	1.13	—	—	50	2.71	50	2.71	50	2.71	50	2.71
ろ液受槽(2)	20	5	0.029	30	1.00	1.03	—	—	50	2.71	50	2.71	50	2.71	50	2.71
Tc溶出液槽	20	5	0.029	30	1.00	0.92	—	—	50	2.71	50	2.71	50	2.71	50	2.71
流出液調整槽	20	5	0.029	30	1.00	0.99	—	—	50	2.71	50	2.71	50	2.71	50	2.71
βγ廃液槽	40	5	0.033	30	1.15	1.09	—	—	50	3.13	50	3.13	50	3.13	50	3.13
DIDPAフラクション一時貯槽	20	5	0.029	30	1.00	0.91	—	—	50	2.71	50	2.71	50	2.71	50	2.71
U,PU,Npフラクション一時貯槽	20	5	0.029	30	1.00	1.01	—	—	50	2.71	50	2.71	50	2.71	50	2.71
使用済DIDPA一時貯槽	40	5	0.033	30	1.15	1.29	—	—	50	3.13	50	3.13	50	3.13	50	3.13
脱硝濃縮沈殿槽	2	5	0.006	30	0.17	0.00	130	0.96	50	0.33	50	0.33	50	0.33	50	0.33
沈殿ろ過溶解槽	4	5	0.043	30	0.41	0.00	70	1.68	—	—	60	1.27	30	0.41	30	0.41

第2-2表 試薬供給室（B）のセル内に試薬等を供給するための設備の構成

	試薬供給室（B） 試薬ホルダー	供給の方法	コネクターによる流路選択	セル内機器及び貯槽名
1	乾燥空気	圧空源		エアーチャンバ
2	汎用試薬ホルダー（2L）	重力落下		脱硝・濃縮沈殿槽
3	0.8 M シュウ酸（2L）	定量ポンプ G-P-17301		沈殿ろ過溶解槽
4	辛酸（2L）	G-P-17301		ろ液受槽（2）
5	8.0 M 硝酸（2L）	定量ポンプ G-P-17302	コネクターの差し替えて自由に流路を変更することができる。	ろ液受槽（1）
6	9.0 M 硝酸（2L）	G-P-17302		流出液調整槽
7	4.0 M 水酸化ナトリウム水溶液（2L）	G-P-17302		吸着カラム
8	D I D P A（2L）	定量ポンプ G-P-17303	専用配管	抽出器1の有機溶液入口
9	0.5 M 硝酸（2L）	定量ポンプ G-P-17304	専用配管	抽出器1の洗浄溶液入口
10	4.0 M 硝酸（2L）	定量ポンプ G-P-17305	専用配管	抽出器1の逆抽溶液入口
11	0.8 M シュウ酸（2L）	定量ポンプ G-P-17306	専用配管	抽出器2の逆抽溶液入口

第2-3表 操作室のセル内に試薬等を供給するための設備の構成

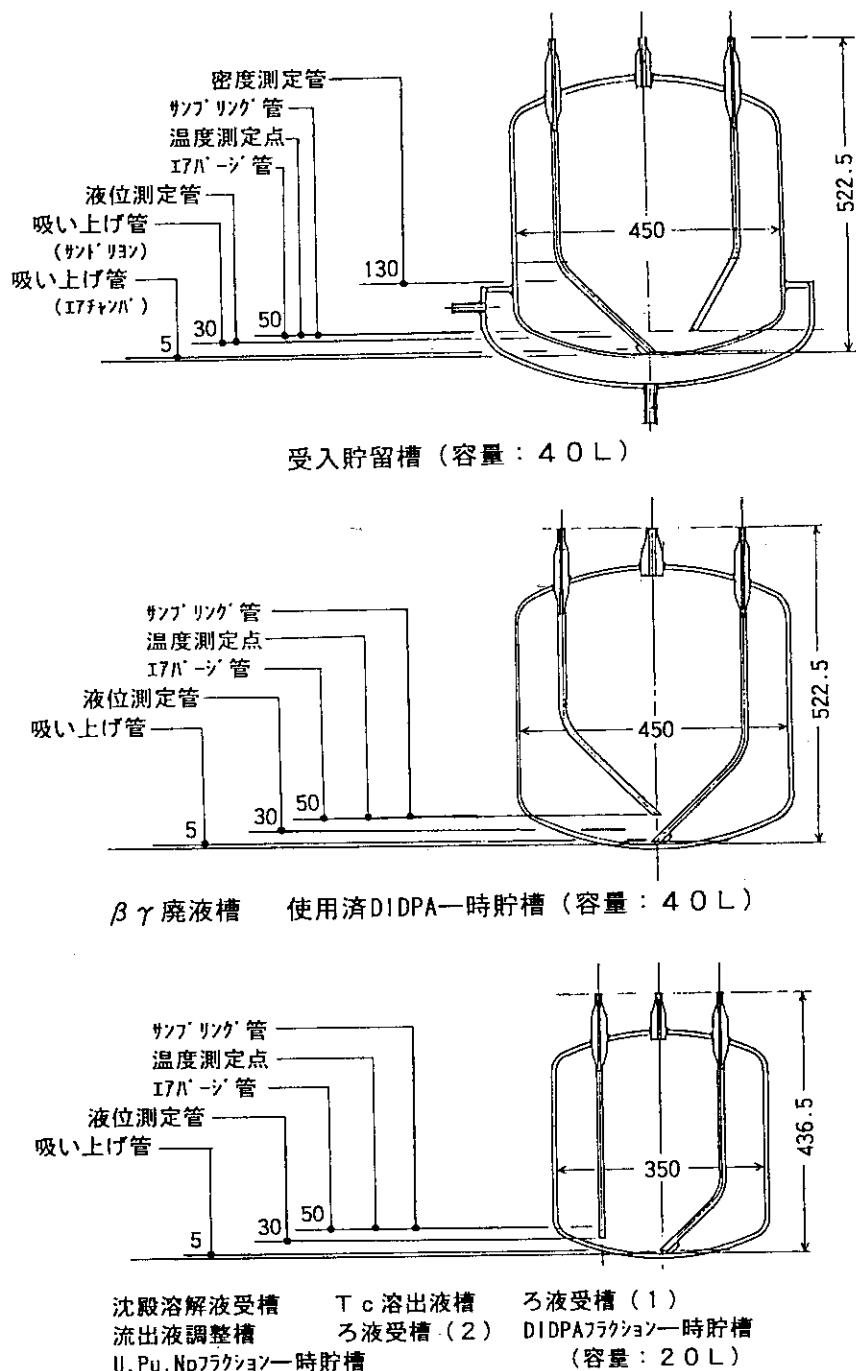
	操作室試薬ホルダー	供給の方法	配管	セル内機器及び貯槽名
1	汎用試薬ホルダー (4L)	圧空による	専用配管	汎用ポリエチレン製タンク
2	無機用分注希釈装置 (最大分取量 1mL) (最大希釈量 10mL)	ピストン シリンジ	専用配管	分析用試料瓶
3	有機用分注希釈装置 (最大分取量 1mL) (最大希釈量 10mL)	ピストン シリンジ	専用配管	分析用試料瓶

第2-4表 装置からの流出液とロートを介した貯槽の構成

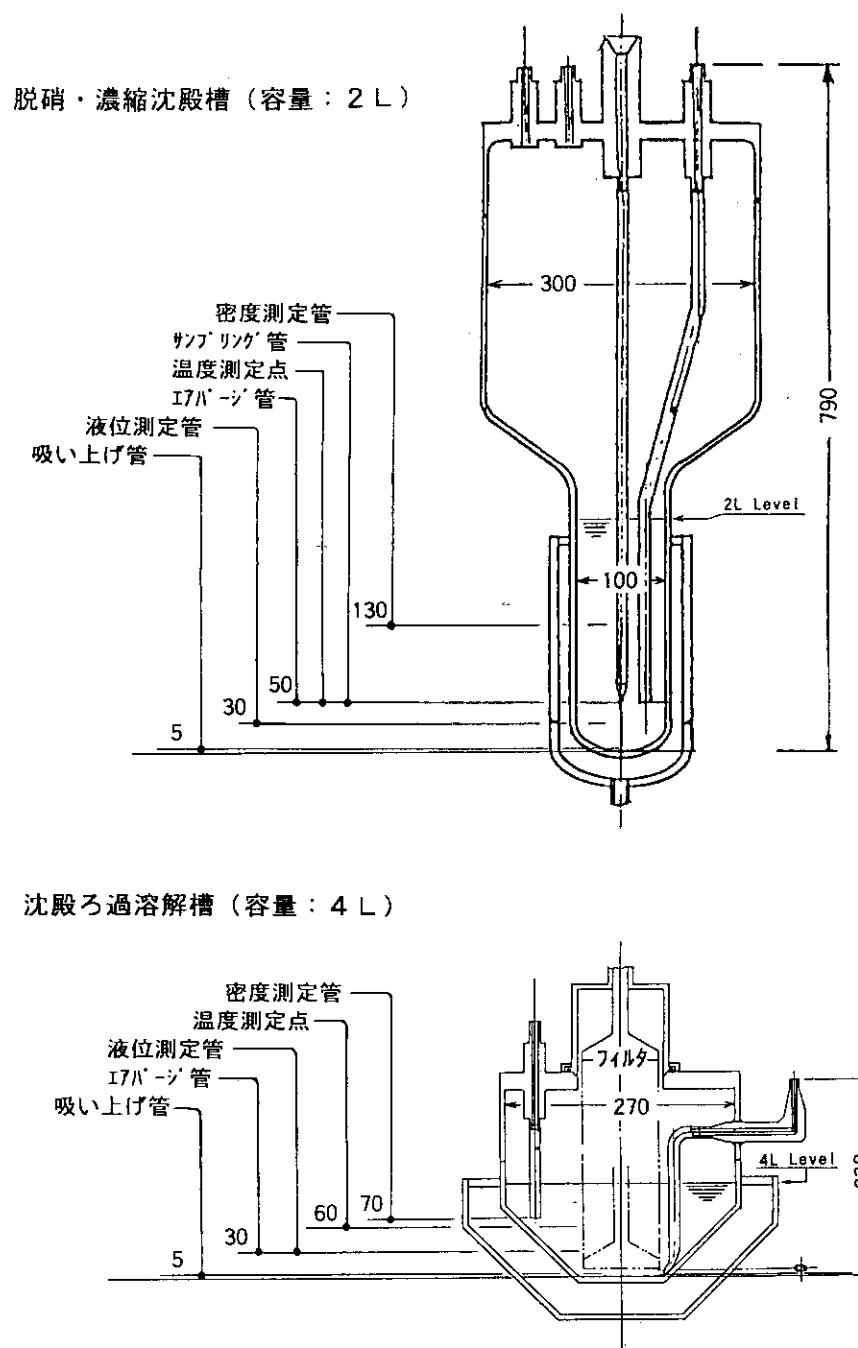
流出液出口	受け口	弁番号	貯槽名
吸着カラム (A)	ロート →	G-VL-23301	→ Tc 溶出液槽
吸着カラム (B)	ロート →	G-VL-23302	→ 流出液調整槽
	ロート →	G-VL-23303	→ βγ 廃液槽
	フレキシブルチューブのロートへの差し替えで自由に流路を変更できる		
抽出器 (1) 抽出残液	→ ロート →	G-VL-23401	→ ろ液受槽 (1)
抽出器 (1) 逆抽出液	→ ロート →	G-VL-23402	→ 沈殿溶解液受槽
		G-VL-23403	→ ろ液受槽 (2)
抽出器 (1) 有機相	→ ロート →	G-VL-23404	→ DIDPAフラクション一時貯槽
抽出器 (2) 逆抽出液	→ ロート →	G-VL-23405	→ U,Pu,Npフラクション一時貯槽
抽出器 (2) 有機相	→ ロート →	G-VL-23406	→ 使用済DIDPA一時貯槽

第2-5表 加熱装置の温度制御運転モード

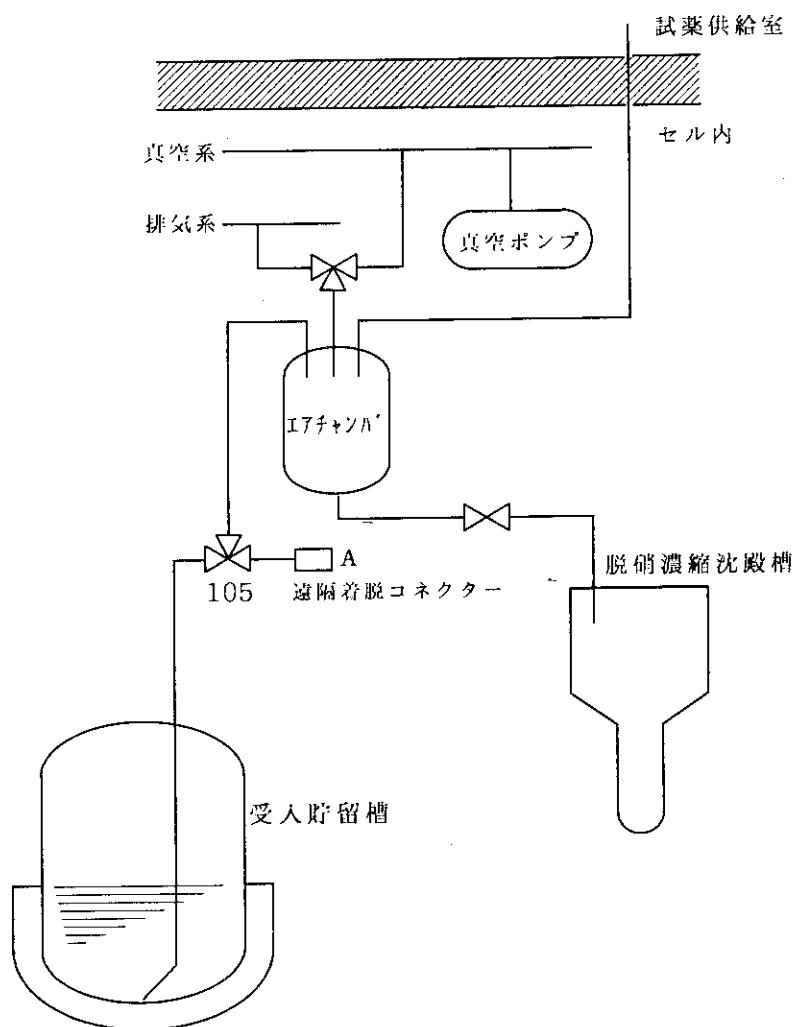
昇温機器	温度検出端	動作	被温度制御機器	選択	温度検出端	動作	モード	運転	制御方法と制御温度特性
G-TIA-23104 循環ポンプ、 循環出口温度	操作室監視盤 に表示 ヒータ停止	脱硝・ 濃縮沈殿槽	井	G-TICA-23102 操作室監視盤 に表示 ヒータ停止	貯槽液中温度	CASCADE によるヒーター の出力制御 DDCS CRTに 表示 液温設定値 で熱媒装置 循環及び 停止	MANUAL	・制御方法 ヒーターの出力 を手動でDDCSに する ・ヒーターの 温度特性は一定 であるので放熱 量は一定に保持 され ・ヒーランスす れ。但し、温度 は燃焼器設定 値(H)に到達し、 ヒーターが停止 となる	
G-TIA-23105 循環ポンプ、 循環出口温度	操作室監視盤 に表示 ヒータ停止	操 作	操 作	G-TICA-23201 ヒーターの表面温 度測定 ヒーター停止	沈殿ろ過 溶解槽	CASCADE によるヒーター の出力制御 DDCS CRTに 表示 液温設定値 で熱媒装置 循環及び 停止	AUTO	・制御方法 温度検出端(G-TIA-23108)の出力と 燃焼温度を自動的に求めDDCSに入力する ・前燃焼温度が制御範囲 で加熱溶液 ヒーターが停止	
G-TIA-23106 循環装置	ヒーターの表面温 度測定 ヒーター停止	操 作	操 作	G-TICA-23201 ヒーターの表面温 度計2基中 1基は予備	沈殿ろ過 溶解槽	CASCADE によるヒーター の出力制御 DDCS CRTに 表示 液温設定値 で熱媒装置 循環及び 停止	CASCADE	・制御方法 温度検出端(G-TICA-23102あるいはG- TICA-23201)の出力と貯槽液中温度 を比較し、DDCSに最適化する ・前燃焼温度が変動する場合、DDCSに 設定値を求めてDDCSに自働的 に温度設定値を出力する ・制御範囲 で加熱溶液 ヒーターが停止	
G-TIA-23107 ヒーターの表面温 度	ヒーターの表面温 度	AUTO MODE に するヒーターの 出力	AUTO MODE に するヒーターの 出力	G-TIA-23108 循環ポンプ、 循環出口温度	AUTO MODE に するヒーターの 出力	AUTO MODE に するヒーター の出力制御 DDCS CRTに 表示 液温設定値 で熱媒装置 循環及び 停止	MANUAL	・制御方法 共に燃焼 循環装置に同じ	
乾燥器内 電気ヒーター	——	乾燥器	——	——	G-TIC-23304 G-TA-23305 乾燥器内温度	——	AUTO	・制御方法 温度検出端(G-TIC-23304)の出力と 乾燥器内温度設定値を比較し、DDCSに 最適化する ・前燃焼器出力 ヒーターの 温度が停止	モードなし



第2-1-A図 貯槽類縦方向断面図及び配管等の位置図

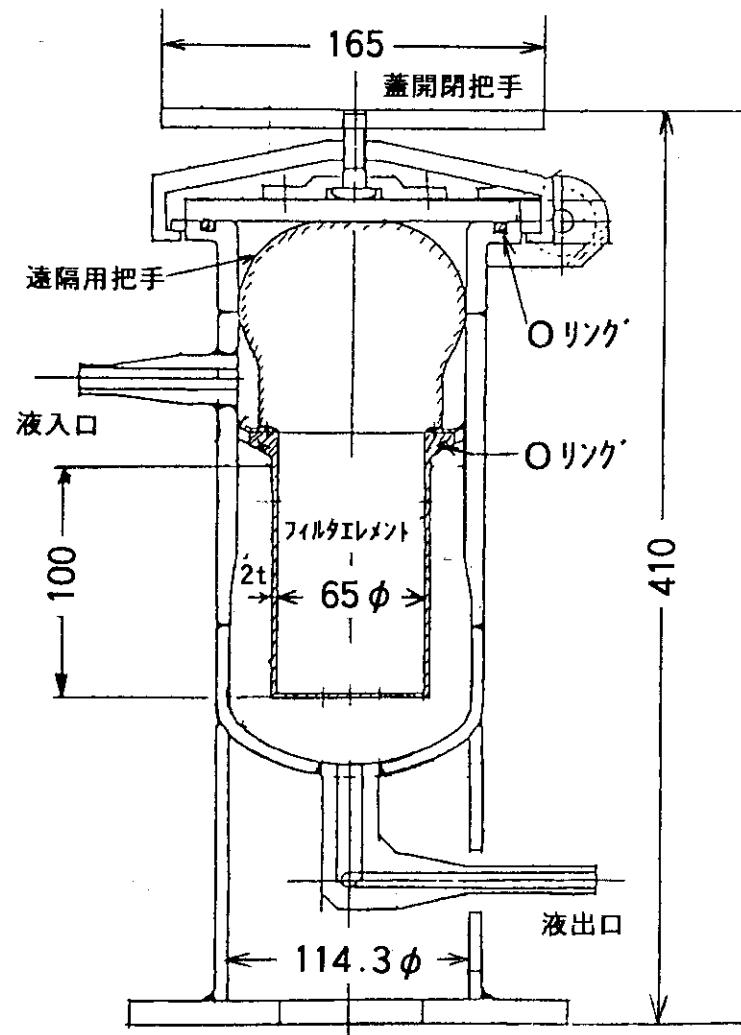


第 2 - 1 - B 図 貯槽類縦方向断面図及び配管等の位置図

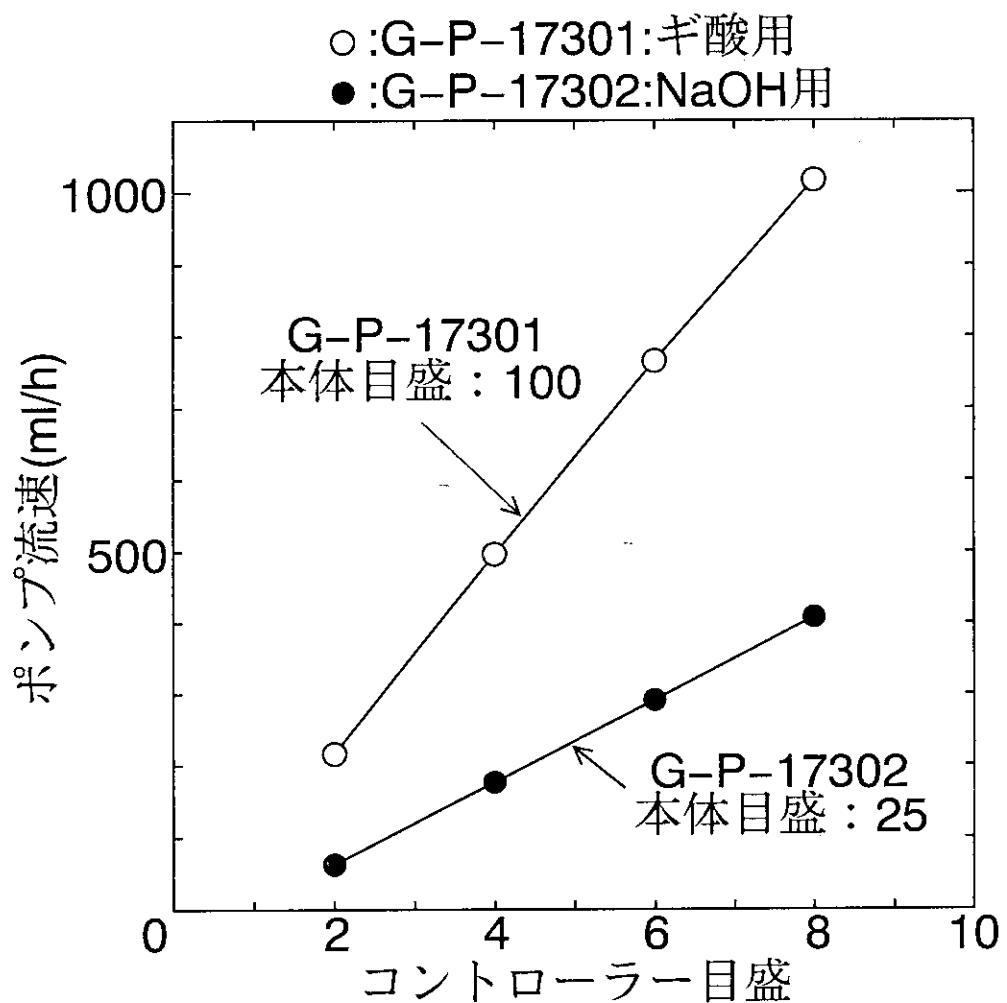


第2-2図

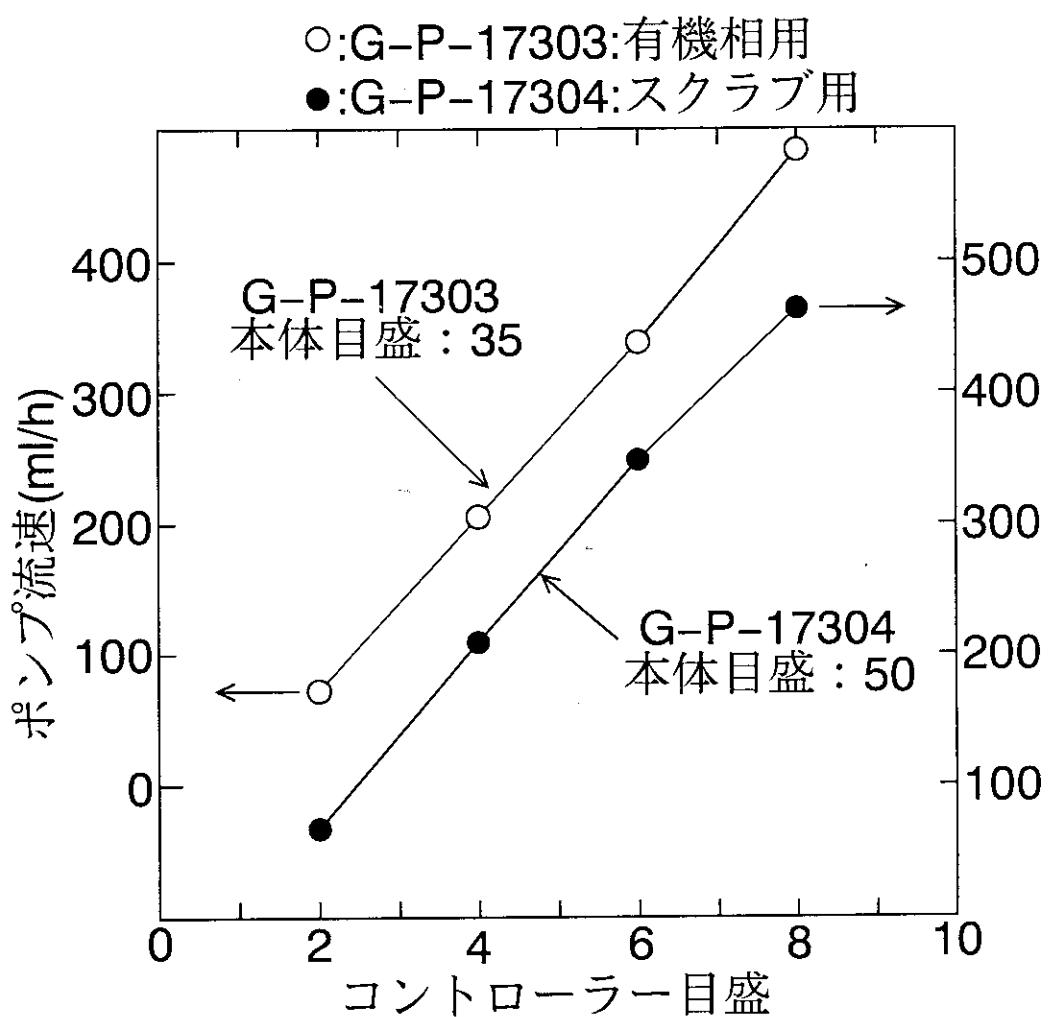
第2-2図 受入貯留槽—エアチャンバー脱硝・濃縮沈殿槽周りの配管模式図



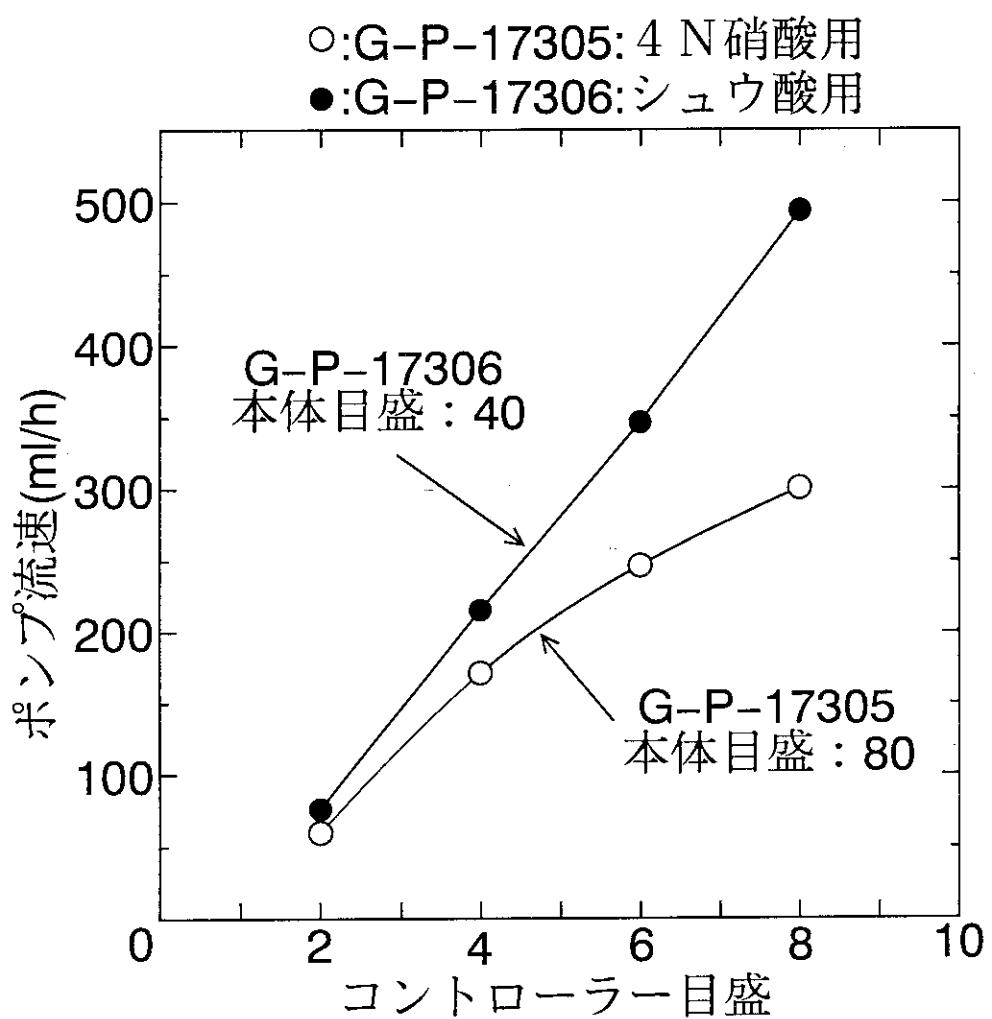
第2-3図 フィルタケース及びフィルタの縦方向断面図



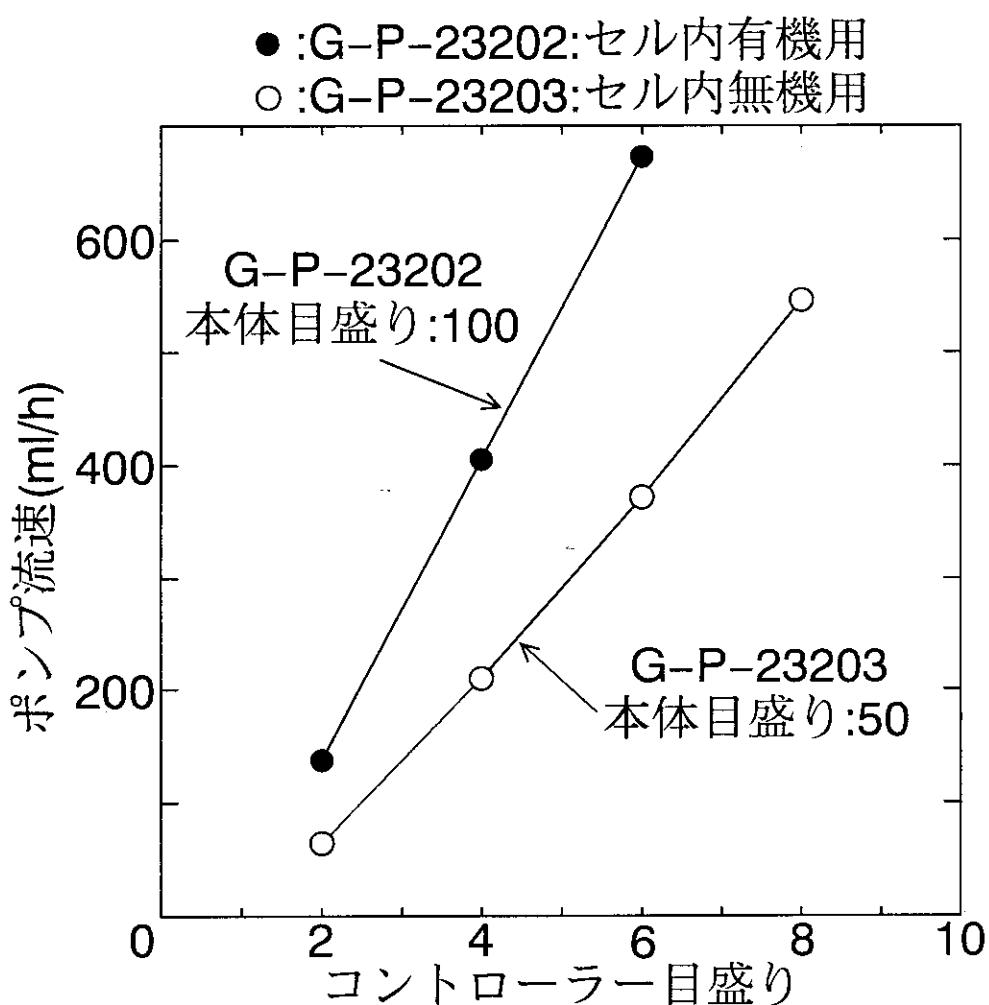
第2-4-A図 試薬供給室（B）の定量ポンプ流量特性



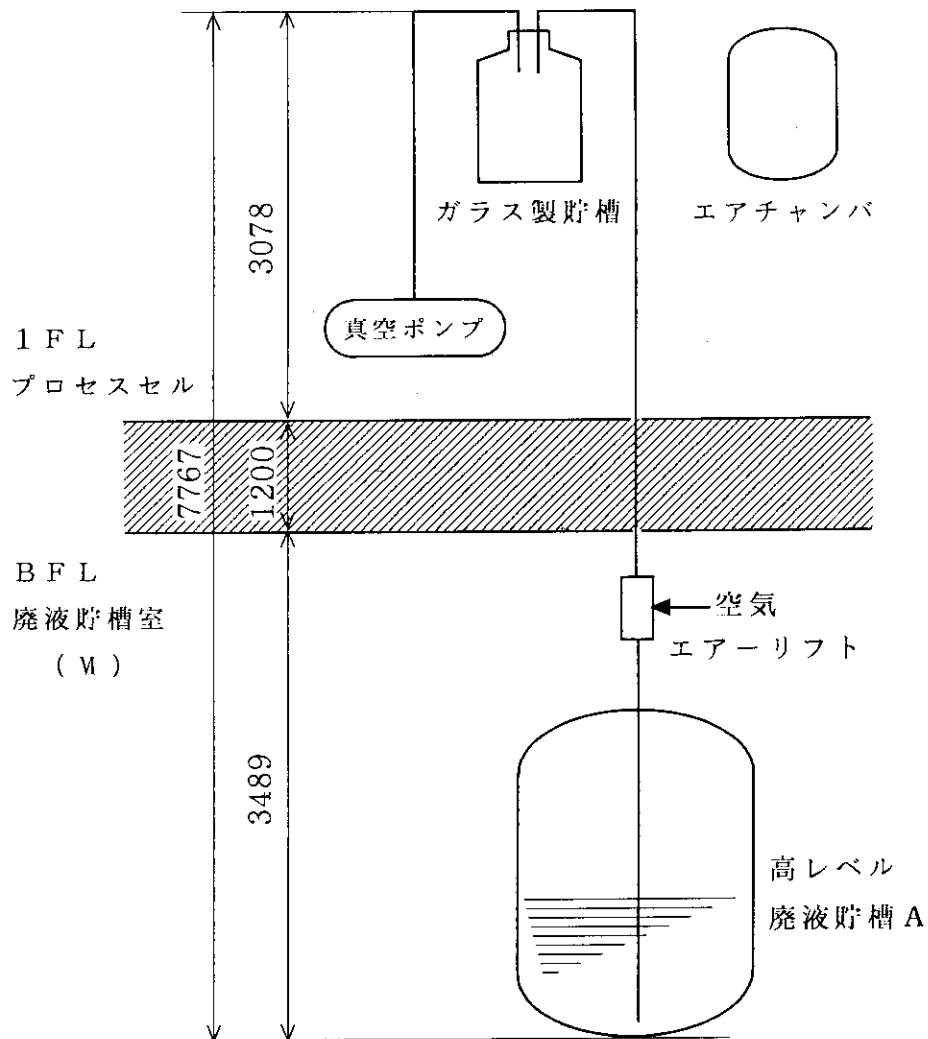
第2-4-B図 試薬供給室（B）の定量ポンプ流量特性



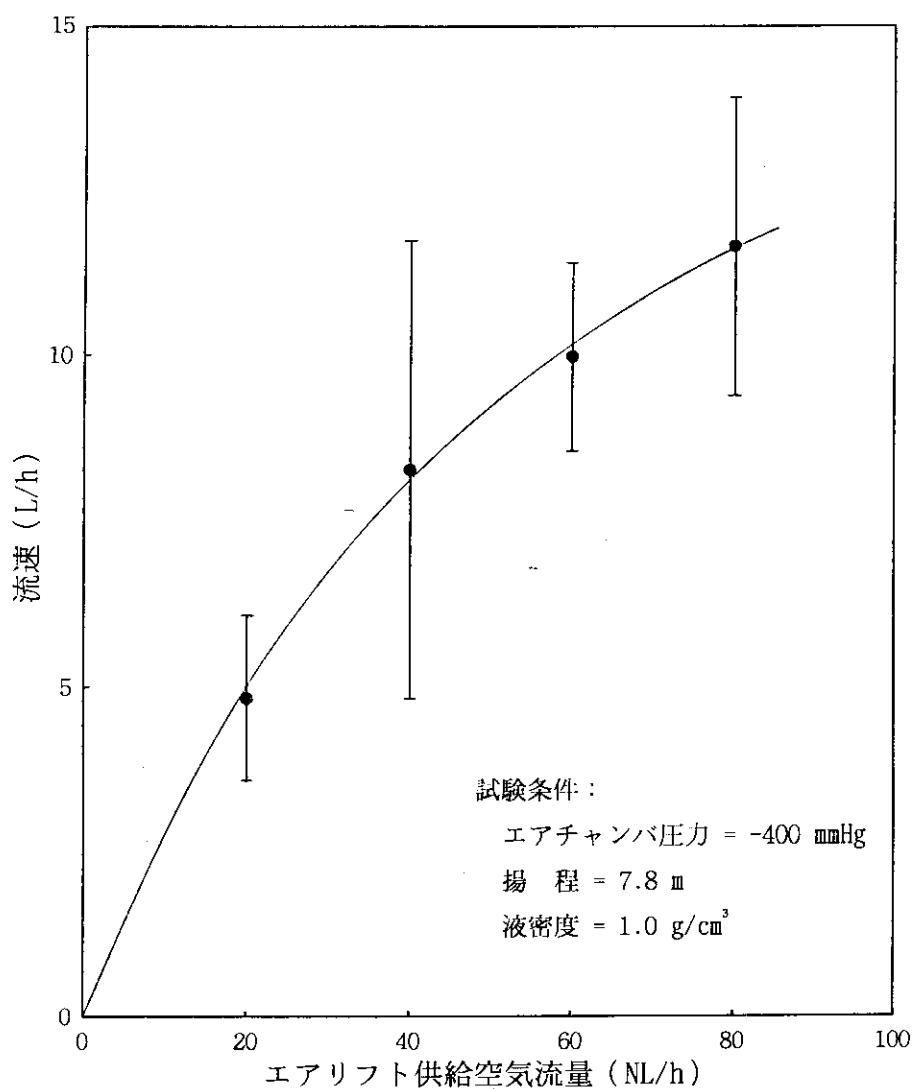
第2-4-C図 試薬供給室(B)の定量ポンプ流量特性



第2-5図 セル内の定量ポンプ流量特性



第2-6図 廃液貯槽室（VI）とプロセスセル間の貯槽及び配管配置の模式図



第2-7図 高レベル廃液貯槽A付きエアリフトの供給空気量と揚水流量の関係

### 3. 硝酸を用いた試験

硝酸を用いた装置性能試験は、1995年3月から1995年5月にかけて実施した。試験項目は脱硝・濃縮沈殿槽を用いたギ酸による脱硝及び硝酸溶液の濃縮、ミキサーセトラ抽出器を用いたDIDA抽出及びシュウ酸逆抽出、無機イオン交換カラムの通液、無機イオン交換カラムの乾燥と仮焼試験である。TRU、REのシュウ酸塩沈殿・ろ過・溶解試験は模擬廃液を用いた群分離試験以降に実施することにしたのでここでは割愛する。

#### 3. 1 濃縮及び脱硝試験

##### 3. 1. 1 濃縮試験

###### ・試験方法

脱硝・濃縮沈殿槽に2M硝酸2.02L及びエアチャンバ、配管類の洗浄水1Lを添加し、熱媒加熱循環装置のオイルを脱硝・濃縮沈殿槽のジャケットに循環した。運転条件はAUTO MODE SV=130°C (SV:Set Value 設定値) 釜温度93°C 揚拌空気(LA)=0.3m<sup>3</sup>/hとした。上部冷却器にて凝縮した水は弁操作により $\beta\gamma$ 廃液槽に導いた。この時の脱硝・濃縮沈殿槽の液位低下及び $\beta\gamma$ 廃液槽の液位上昇率を観察した。

###### ・試験結果

第1回目の濃縮試験において冷却器と $\beta\gamma$ 廃液槽の間に設置された液シールのU字管(150mm)及びUシールから $\beta\gamma$ 廃液槽までの配管中に残存する液だまりの抵抗等で凝縮液が $\beta\gamma$ 廃液槽へ流入しないという現象が生じた。そこでU字管の高さを20mmに改造し、再び濃縮試験を実施したところ、濃縮操作は可能となった。濃縮速度は400ml/hであった。

#### 3. 1. 2 脱硝試験

2回の脱硝試験を実施した。最初の試験において、ギ酸添加後3時間20分の加熱を維持したが、脱硝が不十分であり、最終酸濃度が0.5M硝酸溶液となるべきところ0.829Mとなつた。そこで、条件を変えて再度脱硝試験を実施した。

###### ・試験方法（第1回脱硝試験）

濃縮試験終了後、凝縮水が脱硝・濃縮沈殿槽へ戻る還流モードとなるよう弁を切り換えた。

その後、試薬供給室よりギ酸を定量ポンプで所定量添加した。

熱媒加熱循環装置及び脱硝・濃縮沈殿槽の運転条件はAUTO MODEとし、脱硝・濃縮沈殿槽内の溶液温度を90°Cに保つため設定値(SV)を130, 120, 116°Cに順次変更した。脱硝・濃縮沈殿槽の揚拌空気(LA)は0.1m<sup>3</sup>/hで流し、ギ酸：硝酸モル比を1.5、ギ酸の添加速度を100ml/h(ギ酸濃度25.9219M)とした。ギ酸添加後、配管内に残存するギ酸の追い出しのため300mlの洗浄水を添加した。

###### ・試験方法（第2回脱硝試験）

第1回脱硝試験後の液を脱硝・濃縮沈殿槽から払い出し、改めて脱硝・濃縮沈殿槽に

2M 硝酸 2.0Lを入れた。第1回脱硝試験と同じく還流モードである。その後、試薬供給室よりギ酸を定量ポンプで所定量添加した。

運転条件は AUTO MODE SV=130°Cである。脱硝・濃縮沈殿槽の搅拌空気は流さなかった。ギ酸：硝酸モル比は第1回試験と同じく 1.5とし、またギ酸の添加速度は 450ml/hとした。また、ギ酸添加後、第1回試験と同じくギ酸追い出しのための洗浄水を添加した。

第1回脱硝試験と第2回脱硝試験の相違点をまとめて以下に示す。

第1回試験では脱硝・濃縮沈殿槽の溶液温度を 90°Cにセットし、搅拌空気を 0.1m<sup>3</sup>/h流して脱硝した。また、ギ酸添加速度は 100ml/hとしている。

第2回試験では脱硝・濃縮沈殿槽の溶液を沸騰状態に保ち（溶液温度 98.5°C一定）、搅拌空気は脱硝反応の触媒と考えられるNO<sub>x</sub>を追い出すことになるので通気をしなかった。また、ギ酸添加速度は 450ml/h（第1回試験の 4.5倍）とし、また、脱硝時間は酸濃度チェックを行いつつ決定した。

#### ・試験結果

脱硝における酸濃度の時間変化を第3-1図に示す。

第1回、第2回脱硝試験共に脱硝・濃縮沈殿槽の液位は脱硝操作時に変化はなく、また、冷却器の温度は室温 20.5°Cから 39.3°Cに上昇したもの、十分蒸気が凝縮する温度（警報設定値 60°C）以下であることを確認した。

第1回試験におけるギ酸添加後 3時間 20分の加熱で、最終酸濃度は 0.829Mとなり、冷却器温度は最大値 31°Cとなった。

第2回試験ではギ酸添加後 6時間 40分の加熱で、最終酸濃度は 0.529Mとなり、冷却器温度は第1回試験最大値 31°Cから 39.3°Cに上昇、すなわち、搅拌空気通気時の温度上昇から計算される気体流量が 0.323m<sup>3</sup>/hから 0.515m<sup>3</sup>/hに上昇（1.6倍）した。

また、脱硝・濃縮沈殿槽の液温度を沸騰状態に保ち、搅拌空気を停止することにより脱硝速度が速まることがわかった。これらの結果、第2回目脱硝試験の条件を用い、脱硝時間はギ酸添加後 6時間 40分以上加熱維持すれば良いことがわかった。

### 3. 1. 3 脱硝における脱硝・濃縮沈殿槽接液部の溶出量測定

脱硝・濃縮沈殿槽の接液部は硝酸に対する耐腐食性に優れた SUS304L を用いている。

90%以上のギ酸に対する SUS304L の室温における耐腐食性は、<若干の影響はあるが、条件により十分使用に耐える>の部類にランクされており、また、ギ酸添加後のギ酸最大濃度は被反応液（硝酸）に希釀されて約 10%以下となっている。従って、単に室温において 10%以下のギ酸がステンレス鋼に接触していても腐食が著しく進行することは考えられない。しかし、本脱硝工程では、硝酸の共存下で沸騰状態に保たれ、また、脱硝反応を伴っている。脱硝を行うことによって脱硝・濃縮沈殿槽接液部からどの程度の金属が溶出するのか調べた。

#### ・試験方法

第1回脱硝試験後の試料溶液及び第2回脱硝試験中の脱硝・濃縮沈殿槽から分取した試料溶液の金属イオン濃度を ICP を用いて測定した。金属イオン濃度の標準は原子吸光用

の標準溶液を用いた。

#### ・試験結果

ステンレス鋼の組成 (SUS304L) 及び脱硝操作で溶出した金属イオン濃度測定値の割合(%)を第3-1表に示す。測定値の Ni, Cr, Fe 組成は文献値と良く一致するので、鉄のみの溶出量評価で十分である。第2回脱硝試験中の脱硝・濃縮沈殿槽中の鉄イオン濃度と脱硝時間の関係を第3-1図に示す。

脱硝1回当たりの鉄イオン濃度の増加は 0.043mMであり、また、脱硝終了時の鉄イオン濃度は脱硝前の釜の汚れ等も含めて 0.167mMとなった。高レベル廃液にはすでに数十 mMかそれ以上の濃度の鉄イオンが含まれており、群分離工程での脱硝による鉄イオンの増加は、釜の汚れ等も含めても、問題とならない量である。

釜母体の健全性については、液量が 2Lの場合、缶体の接液面積は約 1000cm<sup>2</sup>であるので、上記溶出量から計算すると、1回の脱硝操作で 0.01 μ m減容することとなる。缶体厚は 6mmであることから、1/10減容するまで使用するとしても 6×10<sup>4</sup>回の脱硝操作が可能である。なお、第1回脱硝試験でも釜母体の溶出については同様の結果が得られた。

### 3. 2 抽出及び逆抽出試験

#### ・試験方法

抽出器(1)に 0.5M 硝酸を、抽出器(2)には抽出器(1)を通過した抽出剤(DIDPA-ドデカン)をプロセスセル内の無機定量ポンプ及び有機定量ポンプで供給した。抽出剤、逆抽出剤等の試薬は試薬供給室より定量ポンプでそれぞれ添加した。抽出器の定常状態を待ち、その後、減圧にした試料瓶をサンプリング用針に刺すことによって有機相及び水相をサンプリングした。

運転条件	ポンプ	本体目盛	コントローラ目盛	流速(ml/h)
抽出器(1)	DIDPA	30	7.3	409
	Scrub	25	4.4	103
	Strip	60	5.0	100
	Feed	50	2.6	102
抽出器(2)	シュウ酸 Feed(DIDPA)	40 100	4.0 3.2	300 290

抽出器(1)全運転時間 13時間 30分 Feed無し運転 7時間 30分

抽出器(2)全運転時間 6時間

#### ・試験結果

経過時間に対する各貯槽の液位変化はほぼ直線関係にあり、各定量ポンプ及び抽出器の運転は正常であった。抽出器(1)での各バンクからの遠隔によるサンプリングは可能である。但し、抽出器(2)では、有機相のサンプリングは可能であったが、水相サンプリングは針にシュウ酸の結晶が詰まり不可能であった。この原因は検収試験時のシュウ酸(0.8M)をバンク内に放置したためと考えられる。このような不具合を解決するために、シュウ酸逆抽出運転後、シュウ酸を 0.2M硝酸に替え十分洗浄置換する必要がある。なお、この置換操作の際、より安定な保管状況を得るため、有機相についてもDIDPAからドデカンに置換すること

とした。

針の詰まりは針板をセル外に持ち出し、温水、超音波洗浄及び物理的搔き出しを併用することで洗浄し解決した。

### 3. 3 無機イオン交換カラム装置の試験

無機イオン交換カラム装置の試験では、活性炭カラムによるTc、白金族元素の分離、チタン酸ーゼオライト混合カラムによるSr、Csの分離法を試験した。Tc、白金族元素の分離ではDIDPA抽出時の抽出残液を直接、活性炭カラムに通液するが、Sr、Csの分離では前処理として活性炭カラム通過液あるいはDIDPA抽出残液を中和又は脱硝法により酸濃度調整を行い、溶液のpHを調整する。ここでは水酸化ナトリウム溶液による中和法を検討した。また、吸着後のカラムは貯蔵中の安全性を高めるため、カラム内の空隙に存在する溶液を圧空によって追い出し、更に加温して乾燥する。チタン酸ーゼオライト混合カラムはその後、仮焼し、更に安全性を高める。

#### 3. 3. 1 前処理試験（中和ろ過）

##### ・試験方法

セル内中和作業の前段階として、抽出残液の一部試料をセル外（実験室）に持ち出し、中和操作の予備試験を行った。その結果をもとにセル内での中和作業を実施した。

中和液としては1Mと0.1MのNaOH溶液を用い、試薬供給室より直接流出液調整槽に投入した。攪拌は流出液調整槽に空気を0.8m<sup>3</sup>/hで吹き込んだ。流出液調整槽の溶液のpHは、循環ポンプ(G-P-23301)でpH測定装置に汲み上げ測定した。pH測定装置内の溶液はオーバーフローしたのち重力落下で流出液調整槽に戻る。

その後、流出液調整槽からフィルタを経由して、ろ液受槽(2)へ真空移送し沈殿をろ過した。洗浄水500mlも同ルートで通水した。

##### ・試験結果

pH測定装置内の液量は概ね140mLであった。中和操作の結果を第3-2図に示す。循環ポンプの作動も順調であり、目標のpHに調整できることを確認した。但し、被中和液の液性及び液量は0.143M硝酸溶液、6.85Lと多量であり、また、pHの測定は直接貯槽内の液を測定するのではなく、pH測定装置内で計測するので、pHが安定するまで約10分程度の時間が必要であった。中和液は試薬供給室から長い配管を用いて供給しているので、pHの終点近傍では過剰のアルカリ投入を防ぐために配管の洗浄操作も中和の途中に挟まねばならないので、流出液調整槽内の最終液量は9.29Lとなった。沈殿がないのでろ過操作の試験とすることはできなかったが、当該配管ラインの通液は可能であることが確認できた。

#### 3. 3. 2 カラムの通水試験

##### ・試験方法

無機イオン交換カラムに20~50メッシュ粒径の活性炭及びチタン酸ーゼオライト混合

体をそれぞれ2本ずつ充填した。まず、無機イオン交換カラム装置に活性炭カラムを2本装填し、溶液が2本のカラムを直列に流れるよう弁操作した。活性炭カラム通水試験後、活性炭カラムを取り外し、次いでチタン酸ーゼオライト混合カラムを装填した。

活性炭カラムにはD I D P A抽出時の抽出残液を直接通液した。チタン酸ーゼオライト混合カラムには活性炭カラム通過液を中和・ろ過（前処理）した溶液を通液した。

通液の方法はプロセスセル内の無機用定量ポンプを用いた。定量ポンプの運転条件は本体目盛50コントローラ目盛7.7とした。このときの流速は414ml/h、線速は81.1cm/hであった。

#### ・試験結果

活性炭カラムの通液時に無機イオン交換カラム装置とカラムの接合部（カラム取り外しのためノズル形式となっている）から液漏れした。

この原因を調査した結果、カラムの高さ方向寸法に287mm～291mmの製作誤差があり、短い寸法である287mmのカラムを使用するとノズルにカラムの穴が差し込まれず液漏れするためであることがわかった。カラム長の最適寸法を計測し、それに合わせてカラム寸法を291.5±0.5mmに改造することとし、とりあえず、カラムの下部にかさ上げ部材を挿入し通水試験を実施した。

セル内定量ポンプ(G-P-23203)によるFeed液の通液、試薬供給室の定量ポンプ(G-P-17302)による洗浄水の通液共に問題なくできることができた。

チタン酸ーゼオライト混合カラムの場合もFeed液の通液に関しては問題なかった。但し、洗浄水440mlを流した所で圧損のために流速が低下した。カラム1本毎の流速を測定したところ、初期に400ml/hで通液しているにもかかわらず、それぞれ、218ml/h及び225ml/hの流速であった。

この原因是、水洗によるカラム内の液性変化で交換体、特にチタン酸の膨潤、あるいは交換体粒子の破壊による粒径変化等でカラムの液出入口に取り付けた金属フィルタの細孔をふさいだものと考えられる。今回使用したチタン酸にはカラム操作で特に粒子の硬さ等に問題がある。カラム操作により適したチタン酸を見い出すべく、現在、実験室規模で造粒法、製造法の異なるチタン酸の性能試験を実施している。

### 3. 3. 3 カラムの乾燥試験

#### ・試験方法

チタン酸ーゼオライト混合カラムの通水試験に用いたカラムに60L/h(3kg/cm<sup>2</sup>)の空気を流し、空隙水を押し出した。

本来は、このようにして通気したカラムを加熱して乾燥させるのであるが、今回は、乾燥済みのゼオライトと重量既知の水300gを添加したカラムを別に用意し、乾燥器内のバケットに装填して、以下の条件で乾燥試験を実施した。蒸発量は、カラム全体の重量を乾燥前後で計測し、重量減少より求めた。乾燥器の縦方向断面図を第3-3図に示す。

	試験番号	MODE	設定温度	運転時間
乾燥器の 運転条件	1	AUTO	SV= 90°C	6:34
	2	AUTO	SV=120°C	6:00
	3	AUTO	SV=140°C	5:26
	4	AUTO	SV=140°C	7:25

#### ・試験結果

カラムの乾燥空気通気試験ではカラム1本当たり通気の初期に 130mlの液が排出され、その後、約 30分で空気のみとなった。

乾燥器を用いた乾燥試験において、試験番号 1 : 90°C 6時間 34分の加熱では蒸発量はほとんど0であった。同カラムを再び試験番号 2 として 120°C 6時間の乾燥をしたところ、16g蒸発した。検収試験時の結果と比較すると本試験での蒸発量は異常に少なく、この原因是検収試験の最終段階で 800°Cに昇温したカラムを本試験に再使用したため、金属フィルタの細孔が潰れ、蒸発が阻害されていると考えられた。従って、試験番号 3 以降はカラム液出入口から金属フィルタを取り外して試験した。試験番号 3 : 140°C 5時間 26分の乾燥で 104g蒸発し、排気ダクト中間ポットの凝縮水として 27ml捕集できた。試験番号 4 : 140°C 7時間 25分の乾燥で 153g蒸発し、排気ダクト中間ポットの凝縮水として 58ml捕集できた。

これらの乾燥操作で 273gの蒸発があり、実験室放置中の自然蒸発分 27gと合わせて、あらかじめ添加した水(300ml)の 100%が追い出された。また、排気ダクト中間ポット凝縮水は 85mlであり約 30%が捕集できた。但し、本データーはカラムに取り付けた金属フィルタを取り外した状態で測定したので、健全なフィルタを取り付けた場合には若干蒸発速度が低下する可能性がある。しかし、検収試験では健全なフィルタを取り付け、SV=120°Cで昇温すれば十分に乾燥できるという結果が得られている。今回の試験より、140°Cで 13時間以上乾燥運転すれば仮焼操作に移ると考えられる。

一方、DDCS表示の温度が SV=140°Cの運転で 170°Cまでオーバーシュートし、約30分後に安定することから、この間、カラム本体の過加熱が案じられたため、カラム本体（カラム側面）に熱電対を取り付けカラム表面の温度を実測した。乾燥器内部（DDCS表示）及びカラム表面温度の時間変化を第3-4図に示す。乾燥器内部温度が 140°Cでもカラム本体の温度はカラム中の水分が蒸発していれば 110°C以上にはならないことがわかった。

### 3. 3. 4 交換体の仮焼試験

#### ・試験方法

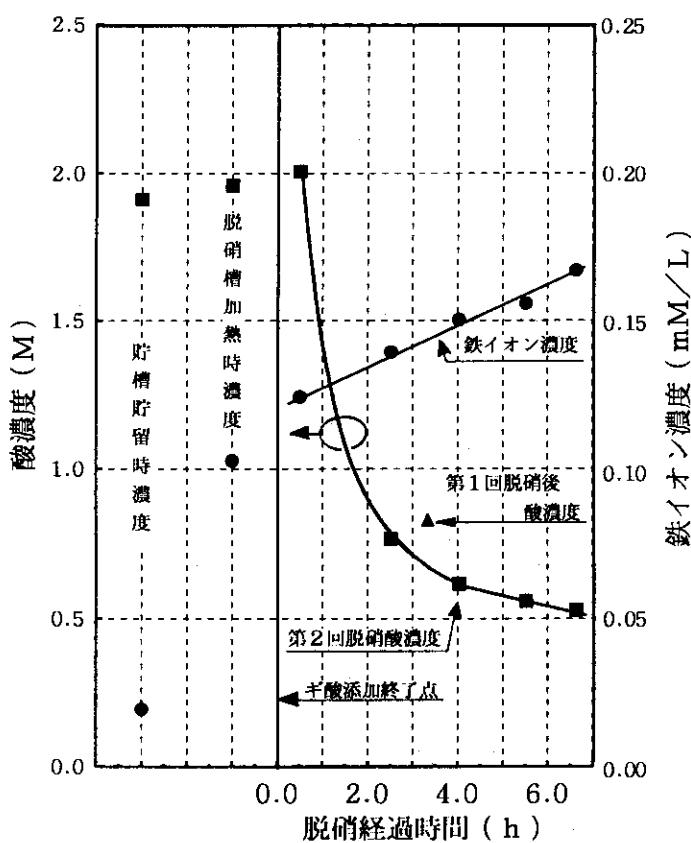
前節で述べた加熱乾燥試験に用いたカラムを同乾燥器で 800°C 6時間 55分加熱した。なお、重量の増減は測定しなかった。

#### ・試験結果

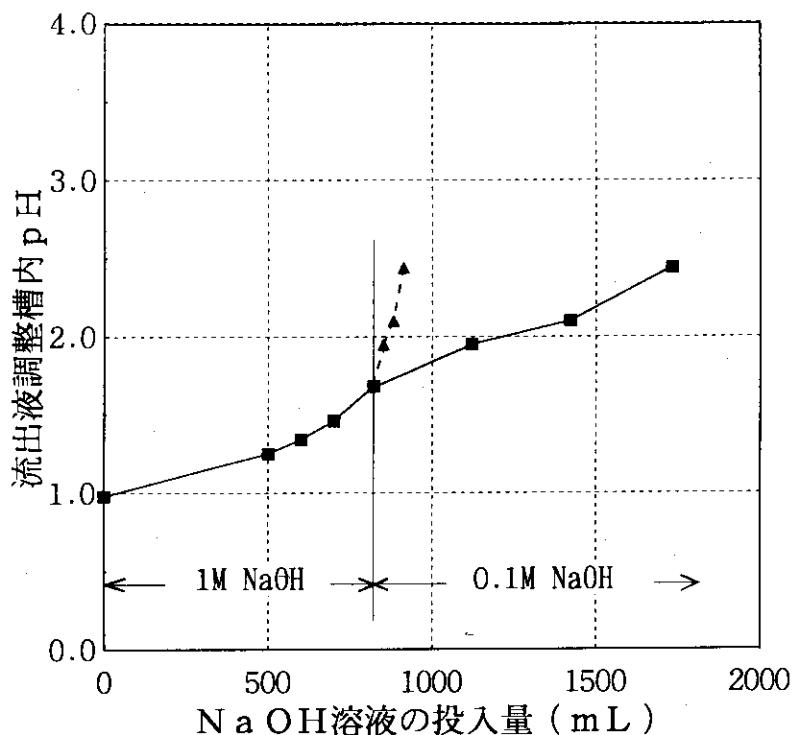
排気ダクト中間ポットの凝縮水は 45mlであった。乾燥器内部（DDCS表示）及びカラム表面温度の時間変化を第3-5図に示す。乾燥器内部温度は設定値に対してほとんどオーバーシュートせず、また、カラム側面に取り付けた熱電対の温度も DDCS 表示に追従することがわかった。

第3-1表 ステンレス鋼 (SUS304L) の組成と溶出金属の割合 (%)

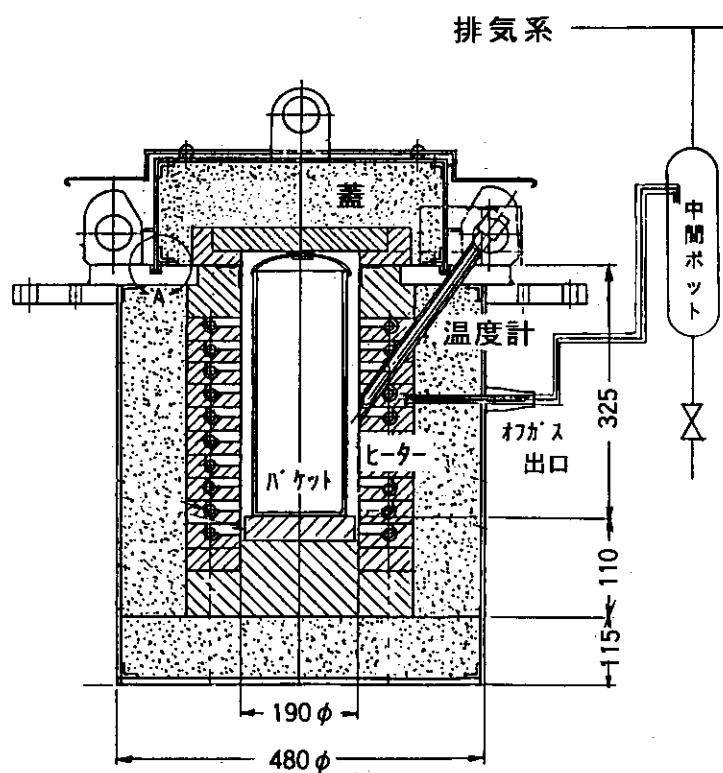
元素 (W %)	C	S i	M n	N i	C r	F e	Z n
ステンレス鋼 組成 (文献値)	≤ 0.03	≤ 1.00	≤ 2.00	9.00 ~ 13.00	18.00 ~ 20.00	残 (64~73)	—
溶出金属 測定値	検出限界 以下	検出限界 以下	定性分析 検出	8.6	15.6	75.8	定性分析 検出



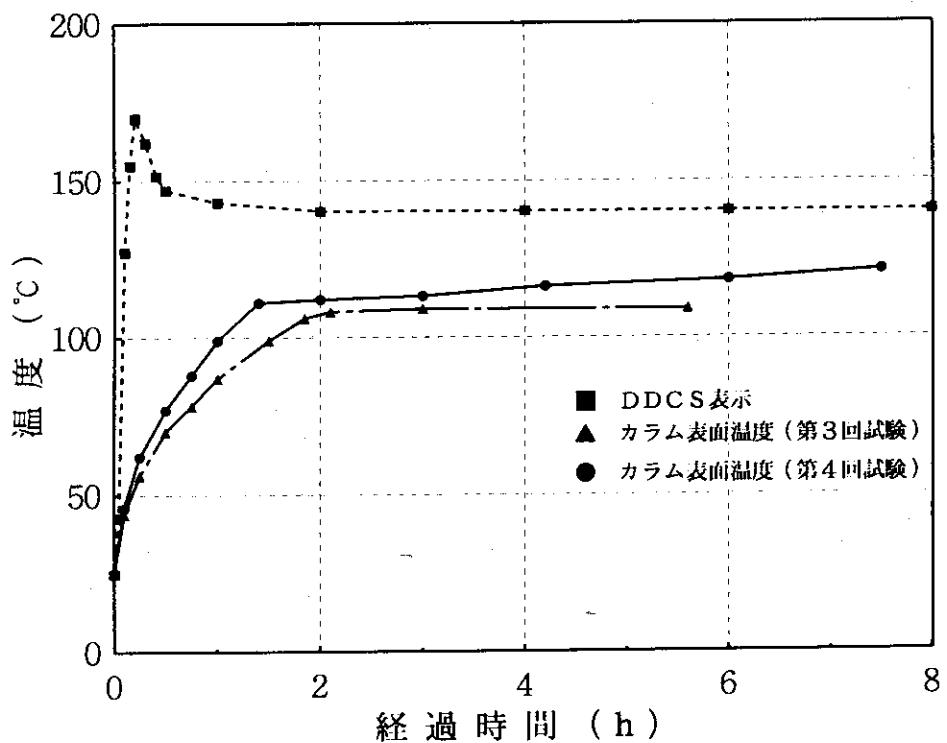
第3-1図 脱硝操作による酸濃度変化とステンレス鋼の溶出試験



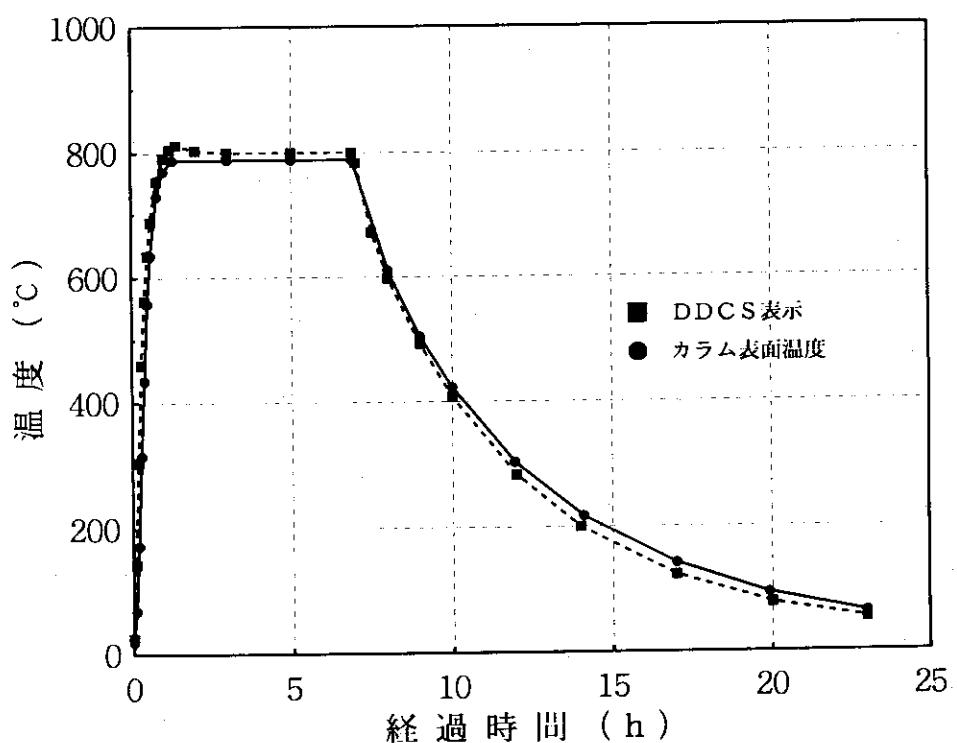
第3-2図 セル内中和装置による中和試験



第3-3図 乾燥器の縦方向断面図



第3-4図 乾燥器内表示温度とカラム表面温度の関係 (140°C昇温時)



第3-5図 乾燥器内表示温度とカラム表面温度の関係 (800°C昇温時)

#### 4. 付加機器の取り付けと改善・調整

実高レベル廃液を使用した群分離試験に必要な付加機器等をセル内外に取り付け調整した。また、試験中に認められた既存装置の不具合はその都度手直しを行い、改善した。

##### 4. 1 付加機器の取り付け

###### 4. 1. 1 群分離試験試料のセル外搬出法の検討

NUCEFセルでは高レベル廃液を最大  $1.85 \times 10^{14} \text{Bq}/2\text{L}$  (バッチ) 搬入し、群分離試験を実施する計画である。群分離試験での元素挙動及び分離効率等を測定するためには各工程で分取した試料をセル外に搬出し、元素濃度、性状等を詳しく調べる必要がある。

群分離試験後の各分取試料はプロセスセルから化学セルを経由して、サンプリングボックス (グローブボックスタイプ)<sup>⑥)</sup> に導き、ダブルドアトランスマーシステムを用いてセル外に搬出する。本サンプリングボックスは  $\gamma$ 線に対してほとんど遮へい能力は無く、核燃料物質使用許可における高レベル放射性廃液の使用許可量は  $7.4 \times 10^7 \text{Bq}$  である。従つて、高レベル廃液  $1.85 \times 10^{14} \text{Bq}$  を用いて群分離試験を実施した場合、使用量の  $4 \times 10^{-7}$  倍以下を搬出する必要がある。そこで綱川エンジニアリング株式会社製分注希釈装置をセルに2台 (無機及び有機液の分注希釈に用いる) 組み込み、この問題に対処した。

###### 4. 1. 2 その他の機器

###### A. 試料瓶遠隔開封装置

前章で述べた様に各工程で分取した試料は分注希釈装置を用いて希釈し、セル外に搬出する必要がある。即ち、セル内で試料瓶を開封しなければならない。そのため、第4-1図に示す装置を設計製作しセル内にセットした。灼熱したニクロム線にポリエチレン製試料瓶を接触させ試料瓶の首を切断する。セル外にはニクロム線に印加する電圧コントローラ (図中 電源部) を置きセル内本機器と配線した。

###### B. 加圧式汎用試薬ホルダー

操作室から簡易な方法でセル内に試薬を供給する加圧式汎用試薬ホルダーをセットした。本器とセル周り模式図を第4-2図に示す。被移送溶液を本ホルダー内に入れた後、容器内を加圧ポンプで昇圧しセル内に液移送する。

##### 4. 2 試験中に見い出された不具合とその改善

###### A. 有機用定量ポンプの吸入、吐出ノズルの交換

定量ポンプの吸入及び吐出ノズルには耐薬品性に優れたテフロン製チューブを用いている。しかし、DIDPAードデカン有機試薬中でテフロンが硬化・縮少し、コネクター部で液漏れが発生したので同サイズのステンレス鋼管に交換した。

###### B. 流速測定用ビュレットの取り付け

試薬供給室定量ポンプ流速測定法の改良前後の模式図を第4-3図に示す。

改良前は①点でメスシリンダーを用いて流速を計測していたが、改良後、②のビュレットを用いて計測できるようになり、利便性が格段に向上した。

#### C. セル内定量ポンプ出口の3方弁取り付け

セル内定量ポンプ流速測定法及び操作性改良前後の模式図を第4-4図に示す。

セル内無機用定量ポンプ(G-P-23203)は抽出器及び無機イオン交換体カラム装置へのFeed液供給用として使用している。その流路切り替えには遠隔着脱コネクター(G1, G2)をポンプコネクターと抜き差ししていたが、第4-4図改良図のごとく3方弁(407)とし、利便性を格段に向上させた。また、無機用及び有機用定量ポンプの流速測定は抽出器(1)及び抽出器(2)のFeed用フレキシブルパイプをそれぞれの抽出器から引き抜き(図中①、②)、無機イオン交換体ではカラムの出口(図中③)にメスシリンダーを用いて計測していた。この場合、流速測定後にフレキシブルパイプをそれぞれの抽出器あるいはロート等に戻すことは液だれ等による放射能汚染が案じられた。従って、第4-4図改良図のごとく3方弁(408, 409)を取り付け、流速測定用専用配管を設けた。

#### D. セル内フレキシブルチューブの交換

セル内ポンプの吸入及び吐出口から遠隔着脱コネクターの間及び遠隔着脱コネクター間の配管にはフレキシブル性のあるテフロン製チューブを用いており、フレキシブル性を持たせるためにチューブは蛇腹となっている。これらの配管及び定量ポンプを用いて液移送操作をすると、蛇腹の中に取り込まれた空気が不定期にポンプヘッドに取り込まれ、定量ポンプの定量性能を著しく阻害することがわかった。そのため、これらのテフロン製チューブ全てをフレキシブル性のあるストレートパイプに交換した。

#### E. 抽出器付きロートの交換

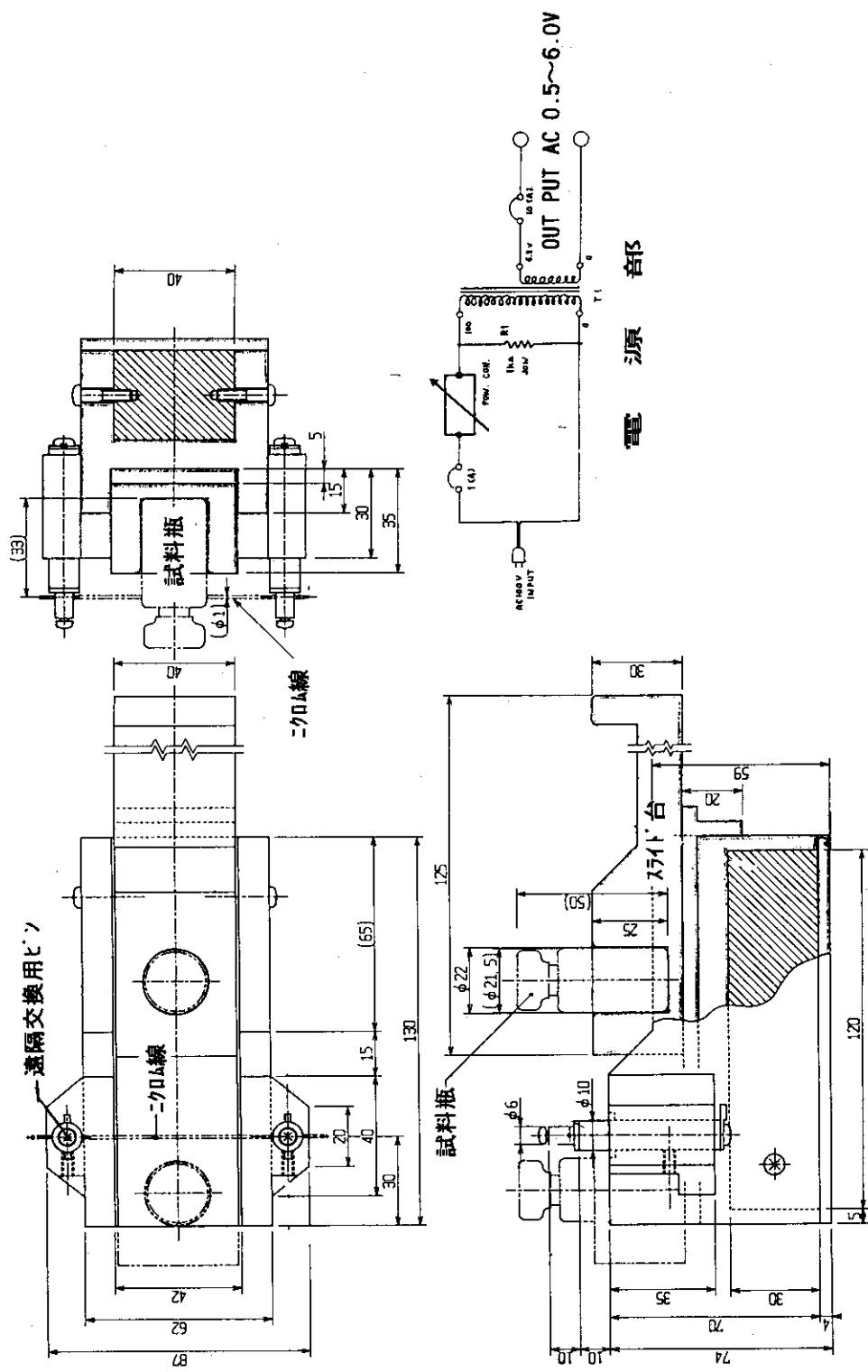
抽出器運転中の試薬注入目視確認のため、不透明抽出器付きロートを透明アクリル製にした。

#### F. セル内カーブドミラーの取り付け

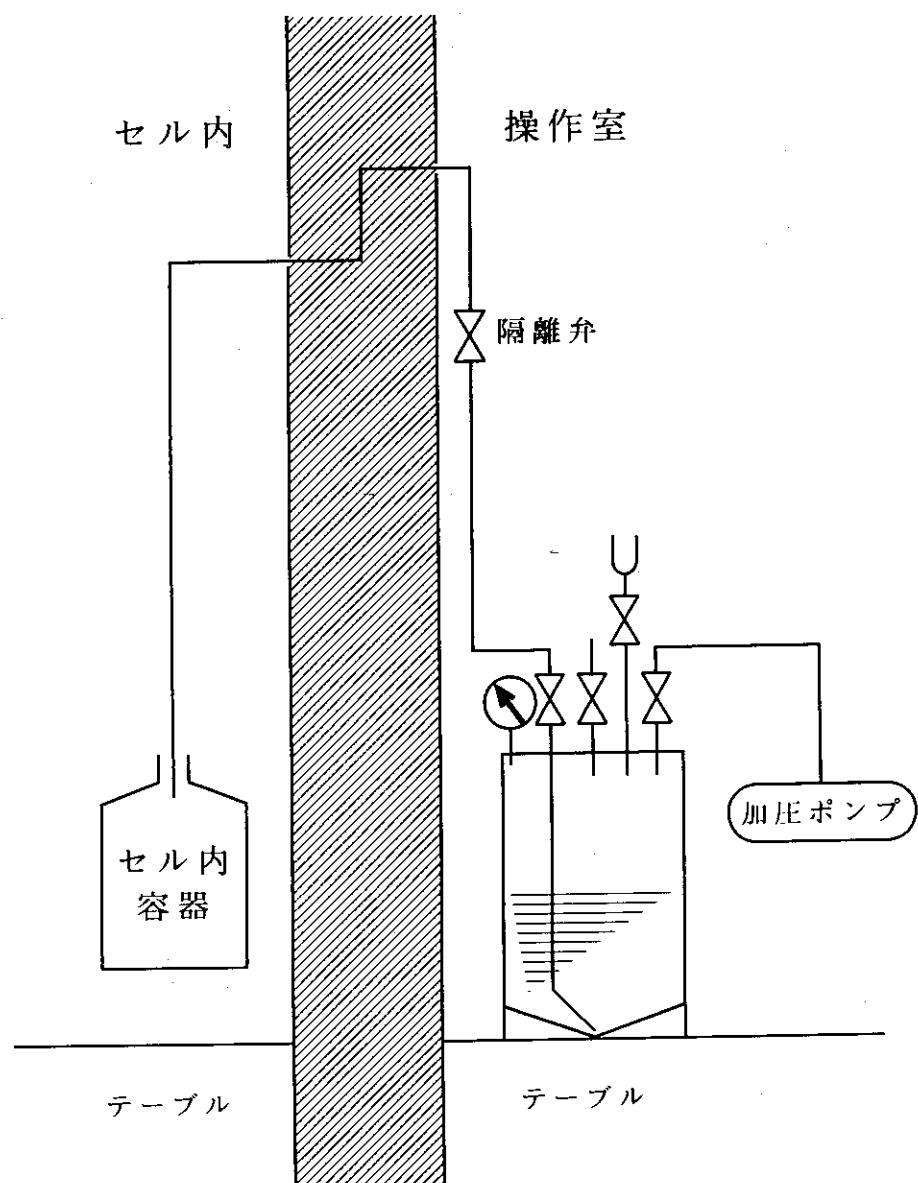
無機イオン交換体カラム装置の弁及びカラム取り付け等の操作は設置場所の関係から視認性が悪かったため凸面鏡を取り付けた。

#### G. 無機イオン交換体カラム装置の圧力計の取り付け

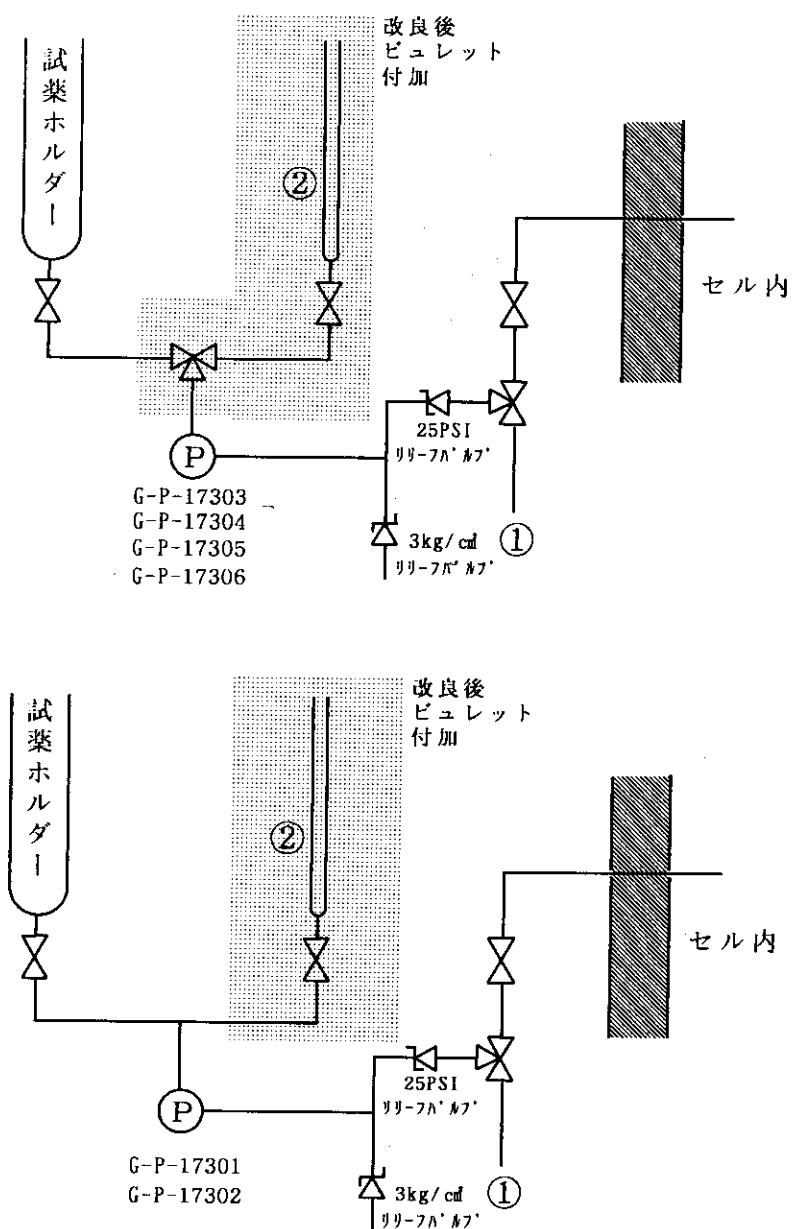
無機イオン交換体カラム装置のFeed及び溶離液供給側に圧力計を取り付け、装置内の圧力を測定できるようにした。それぞれの取り付け位置を第4-5図に示す。



第4-1図 試料瓶遠隔開封装置

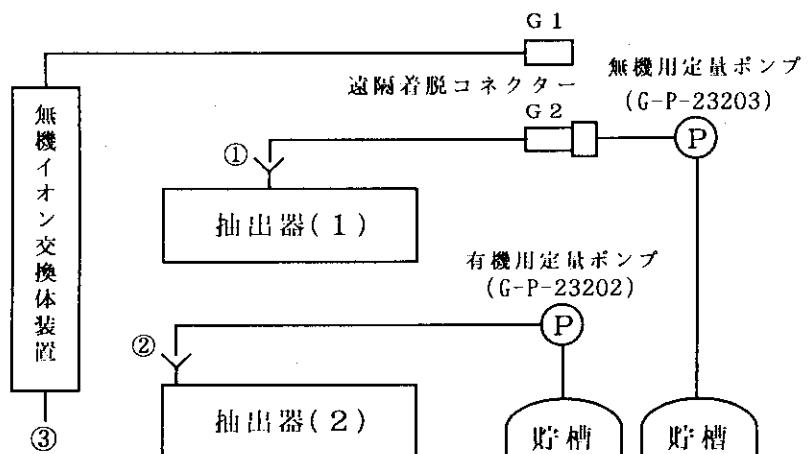


第4-2図 加圧式試薬供給装置と配管模式図

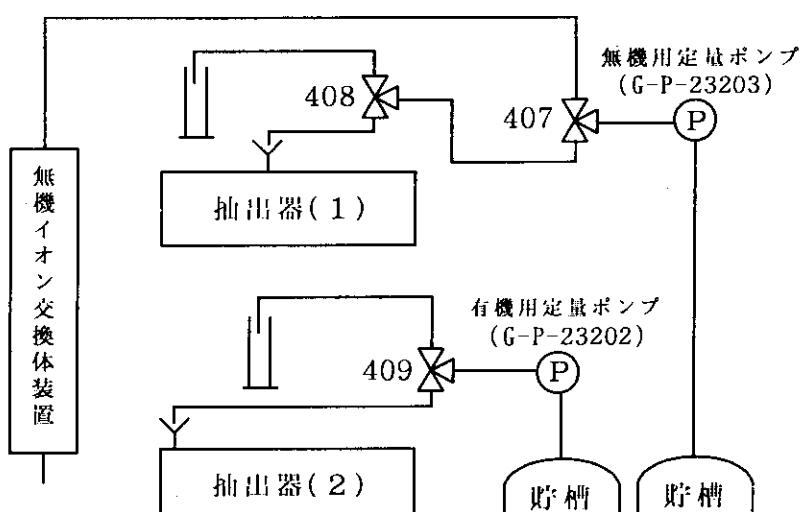


第4-3図 試薬供給室の定量ポンプ流速測定法の改良

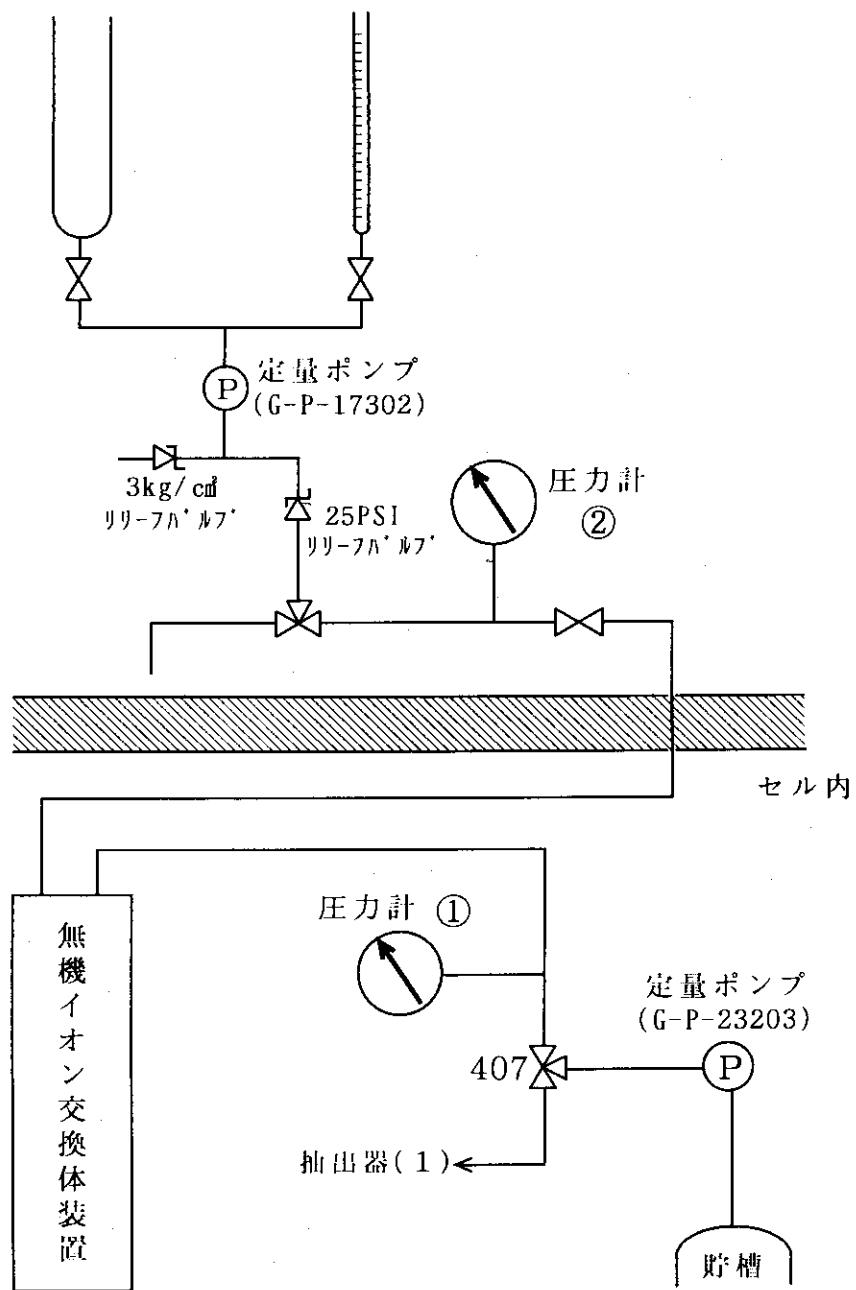
## 改良前



## 改良後



第4-4図 セル内の定量ポンプ流速測定法及び配管方法の改良



第4-5図 無機イオン交換体装置の圧力計取り付け

## 5. 結言

群分離処理法の開発研究を行うため、燃料サイクル安全工学研究施設に群分離研究施設を完成し、本群分離試験装置を用いて、脱硝沈殿法、シュウ酸塩沈殿法、溶媒抽出法及び無機イオン交換体分離法を組み合わせた群分離法について、水による液移送試験及び硝酸を用いての全工程の装置性能試験を実施した。各装置は、基本的に当初の設計に従って製作され、所定の機能を有することを確認した。但し、細かい点での不具合や、より安全、確実に運転するための改善すべき点等も見い出された。試験中に発生した不具合は、主に装置に起因するものはその都度、できる限り手直しを行い改善を図り、また、無機イオン交換体カラムの目詰り等プロセス上に起因するものは実験室規模でその解決策を見い出し、群分離試験装置の運転に反映させた。

現在、模擬高レベル廃液を用いた試験を実施しているが、この試験で見い出される不具合も適宜改善を加えており、実高レベル廃液試験の操作性と安全性を高めている。

今後は、N p - 237、T c - 99等を加えたトレーサー試験、少量の実高レベル廃液を用いるセミホット試験を順次行って、群分離試験装置の分離性能試験を引き続き進め、1998年頃には同じく NUC E F 内の再処理プロセス試験設備において発生する実際の高レベル廃液（最大  $1.85 \times 10^{14} \text{Bq}$ ）を使用した群分離試験を実施する予定である。

## 謝辞

最後に DDCS の取り扱い研修、その他、群分離試験装置付帯施設の運転方法等、また、群分離試験施設と廃液貯槽室 (VI) への通液試験等で御協力いただいた NUC E F 試験室の黒羽根史朗氏、藤田民義氏、谷津 修氏、内田敏嗣氏及び佐野成人氏に厚く感謝を表します。

## 5. 結言

群分離処理法の開発研究を行うため、燃料サイクル安全工学研究施設に群分離研究施設を完成し、本群分離試験装置を用いて、脱硝沈殿法、シュウ酸塩沈殿法、溶媒抽出法及び無機イオン交換体分離法を組み合わせた群分離法について、水による液移送試験及び硝酸を用いての全工程の装置性能試験を実施した。各装置は、基本的に当初の設計に従って製作され、所定の機能を有することを確認した。但し、細かい点での不具合や、より安全、確実に運転するための改善すべき点等も見い出された。試験中に発生した不具合は、主に装置に起因するものはその都度、できる限り手直しを行い改善を図り、また、無機イオン交換体カラムの目詰り等プロセス上に起因するものは実験室規模でその解決策を見い出し、群分離試験装置の運転に反映させた。

現在、模擬高レベル廃液を用いた試験を実施しているが、この試験で見い出される不具合も適宜改善を加えており、実高レベル廃液試験の操作性と安全性を高めている。

今後は、N p - 2 3 7、T c - 9 9 等を加えたトレーサー試験、少量の実高レベル廃液を用いるセミホット試験を順次行って、群分離試験装置の分離性能試験を引き続き進め、1998年頃には同じく N U C E F 内の再処理プロセス試験設備において発生する実際の高レベル廃液（最大  $1.85 \times 10^{14}$  Bq）を使用した群分離試験を実施する予定である。

## 謝辞

最後に D D C S の取り扱い研修、その他、群分離試験装置付帯施設の運転方法等、また、群分離試験施設と廃液貯槽室（VI）への通液試験等で御協力いただいた N U C E F 試験室の黒羽根史朗氏、藤田民義氏、谷津 修氏、内田敏嗣氏及び佐野成人氏に厚く感謝を表します。

引用文献

- 1) M. Kubota, H. Nakamura, S. Tachimori, T. Abe, H. Amano; "Removal of Transplutonium Elements from High-Level Waste", IAEA-SM-246/24(1981)
- 2) 山口、中村、久保田、館盛、佐藤; "群分離法の開発- 群分離試験用ケーブと装置の製作"、JAERI-M 9049(1980)
- 3) 久保田、山口、岡田、森田、中村; "群分離法の開発- 動燃再処理廃液による群分離試験- その1"、JAERI-M 83-011(1983)
- 4) 山口、久保田、岡田、森田、中村; "群分離法の開発- 動燃再処理廃液による群分離試験- その2"、JAERI-M 84-070(1984)
- 5) M. Kubota, I. Yamaguchi, Y. Morita, Y. Kondou, K. Shirahashi, I. Yamagishi, T. Fujiwara; "Development of a Partitioning Process for the Management of High-Level Waste", Proceedings of GLOBAL' 93, Vol. 1, 588-594, International Conference and Technology Exhibition, Future Nuclear Systems: Emerging Fuel Cycles and Waste Disposal Options, September 12-17, 1993, Seattle, USA(1993)
- 6) 山口、龍ヶ江、森田、近藤、白橋、山岸、藤原、藤本、谷津、藤田、黒羽根、青山、久保田; "群分離法の開発: NUC E F内に建設した群分離試験施設"、JAERI-Tech 94-030(1994)

付録

セルに組み込んだ分注希釈装置の精度検討

目 次

1. 目的
2. 試験
  2. 1 方法
    2. 1. 1 実験室での試験方法
    2. 1. 2 セルでの試験方法
  2. 2 重量から容量の補正
    2. 2. 1 密度補正
    2. 2. 2 浮力補正
    2. 2. 3 蒸発量の補正
    2. 2. 4 補正式
  3. 結果と考察
    3. 1 吸い込み量
    3. 2 吐出量
    3. 3 吸い込み量の標準偏差
    3. 4 吐出量の標準偏差
    3. 5 同機種による実験室とセル組み込みの差の原因
  4. 分注、希釈時の誤差
    4. 1 回帰分析結果からの標準偏差

## 1. 目的

本装置の精度はメーカー提示値 0.2mL分取時の標準偏差  $\sigma = 0.001699$  CV値=0.85% (配管長4m(内径 2mm 肉厚 0.5mmテフロンチューブを用いる)) であるが、セルに組み込んだ場合の配管長は約 9mとなり、また、配管にはテフロンチューブ( 2/3-1/2mm : 内径／外径を示す)、ステンレス鋼管(1/4-1/8inch : 外径を示す)を用い、それらの繋ぎには各種のジョイント及び隔離弁等を用いている。従って、セル組み込み時の総合的な精度はメーカー提示値より悪くなると考えられた。そこで、本装置をセルに組み込んだ状態で総合的な精度を確認し、分注希釈装置の有効性を検討した。

## 2. 試験

### 2. 1 方法

#### 2. 1. 1 実験室での試験方法

メーカー提示値の精度及びセル組み込み状態での精度を比較検討するため、実験室にセル組み込み状態を模擬してテフロンチューブ(2/3-1/2mm)を用いて配管した。装置の配置及び配管の方法を第1図の実験室での試験に示す。

##### 分取操作の精度

- ①電子天秤（小数点以下4桁表示）に 100mLポリエチレン製ビーカをのせ、ビーカ内に純水 20mLを満たした。
- ②分注希釈装置を運転し、ビーカ内の純水を規定量分取、その後、ビーカの重量を測定した。
- ③希釈液は廃棄用ビーカに廃棄し、再度ビーカ内の純水を規定量分取した。
- ④これらの操作を繰り返し、減少する重量を測定した。

##### 希釈操作の精度

- ①電子天秤に 200mLポリエチレン製ビーカをのせ、分注希釈装置を運転した。
- ②分取操作では配管内に空気を吸い込み、希釈操作時には電子天秤上のポリエチレン製ビーカに分注希釈装置の溶液を注入し、その後、ビーカの重量を測定した。
- ③これらの操作を繰り返し、増加する重量を測定した。

なお、これらの試験を2台（その分類をA機、B機と記す）の分注希釈装置について実施した。

#### 2. 1. 2 セルでの試験方法

セル組み込み状態での精度を確認するため、セルにテフロンチューブやステンレス鋼管を用いて配管した。装置の配置及び配管の方法を第1図のセルでの試験に示す。

分取操作及び希釈操作の精度測定は実験室の試験方法と同じである。なお、これらの試験を同じく2台の分注希釈装置について実施した。

また、セルでは無機溶液（純水）の試験ばかりでなく、2台の内の1台（B機）は有機溶液（ドデカン）の分注希釈試験も実施した。

## 2. 2 重量から容量の補正

### 2. 2. 1 密度補正

- ①純水の密度：室温 20℃における純水の密度は0.99823g/cm<sup>3</sup>である。
- ②ドデカンの密度：室温 20℃におけるドデカンの密度は0.7511g/cm<sup>3</sup>であるが、試薬の不純物等の誤差も考えられたので実測した。まず、1mL用ピペット（エッペンドルフ）で純水を 1mL×10回分取し、その重量平均からエッペンドルフの分取量を確認した。その後、ドデカンを 1mL×10回分取し、その重量平均を求め、ドデカンの密度を計算した。その結果、密度は0.7492g/cm<sup>3</sup>であった。

### 2. 2. 2 浮力補正

空气中での秤量では秤量物と同体積の空気の重さだけ軽くなる。したがって、真の重さは真空中の重さに換算する。

1気圧、室温 20℃、相対湿度 50%における空気の密度は0.001199g/cm<sup>3</sup>である。

### 2. 2. 3 蒸発量の補正

分注希釈装置を運転し、その分取量や吐出量を計測するに当たり、本重量法を用いると測定中に純水について重量変化がおこった。しかし、ドデカンの計測では重量変化が無かった。このことから純水の重量測定中に蒸発があると考えられたため、計測中の水の蒸発量を実測し補正した。まず、表面積 20cm<sup>2</sup>のビーカに水を満たし、2分間放置、その重量変化を 5回測定した平均から蒸発速度を求め、分注希釈装置の1回当たりの運転時間（約40秒）を乗じ、測定中の蒸発量を求めた。その結果、蒸発量は 0.003g/回であった。

### 2. 2. 4 補正式

これらの結果より、測定重量に以下の補正式で容量 (mL) を求めることとした。

$$\text{容量 (cm}^3\text{)} = \frac{\text{溶液重量 (W(g))} + \text{蒸発重量 (w(g))}}{\text{溶液密度 (\rho_s(g/cm}^3\text{))} - \text{空気密度 (\rho_a(g/cm}^3\text{))}}$$

水測定の場合

$$(\text{cm}^3\text{)} \text{ or (mL)} = \frac{W(g) + w(g)}{\rho_s (0.99823\text{g/cm}^3) - \rho_a (0.001199\text{g/cm}^3)}$$

ドデカンの場合

$$(cm^3) \text{ or } (mL) = \frac{W(g)}{\rho_s (0.7492g/cm^3) - \rho_a (0.001199g/cm^3)}$$

### 3. 結果と考察

#### 3. 1 吸い込み量

水を用いた実験室での分注希釈装置、A機の目盛りの設定値と吸い込み量の関係を第2図に示す。目盛りの設定値と吸い込み量の関係は直線関係であり、測定値のばらつきも0.2mL分取時で最大0.2003mLから最小0.1988mLと小さい。

水を用いた実験室でのB機、セル組み込みのA機、B機の測定結果、及びセル組み込み後のドデカンを用いたB機の測定結果は、第2図と同様、直線関係にあるので図の掲載を割愛する。なお、それぞれの回帰分析の結果を第1表の上段に示す。

#### 3. 2 吐出量

水を用いた実験室でのA機の目盛りの設定値と吐出量の関係を第3図に示す。目盛りの設定値と吐出量の関係は直線関係があり、また、測定値のばらつきも吸い込み時より更に小さい。

その他の測定の組み合わせは吸い込み量測定と同じく実施した。第3図と同様、直線関係にあるので図の掲載を割愛する。なお、それぞれの回帰分析の結果を第1表の下段に示す。

#### 3. 3 吸い込み量の標準偏差

分注希釈装置の精度を詳しく検討するため、吸い込み量の繰り返し測定した値の標準偏差を以下の式により求めた。

$$\text{標準偏差 } (\sigma) = \sqrt{\frac{\sum (X_i - \bar{X})^2}{n-1}}$$

分注希釈装置の目盛りを目標値0.1, 0.2, 0.3, 0.5, 0.7, 1.0mLとしたときのA、B機の吸い込み量のばらつきを第2表の上段に示す。

ここで、目盛りを目標値0.2mLとしたときのA機、B機の吸い込み量のばらつきに着目して考察を加えると、A機の吸い込み量の平均値は、実験室での測定とセル組み込み後の測定で0.00528mLの差があり、また、それぞれの標準偏差を平均値を中心に±1σをえた値は相対する平均値±1σに入らない。このことは68%の確率で有意の差が有るといえる。本2つの集団は±3σの中にも相互に入らないので、さらに高い確率で有意の差が有るといえる。

同様にB機の吸い込み量の平均値には0.00213mLの差があるが、相互の測定値は相対する±1σに入る所以有意の差は無いといえる。但し、セル組み込みの有機の集団は無機の集団に対して±3σの中にも入らないので、有意の差が有るといえる。

なお、目標値 0.2mL以外の値でも実験室での測定とセル組み込み後の測定でそれぞれ差があり、標準偏差から勘案して全体的に有意の差が認められた。

### 3. 4 吐出量の標準偏差

分注希釈装置の目盛りを目標値 2, 3, 5, 7, 10mLとしたときのA、B機の吐出量のばらつきを第2表の下段に示す。ここで、目盛りを目標値 5.0mLとしたときのA、B機の吐出量のばらつきについて、吸い込み量の標準偏差と同じ考察を加えると、平均値にはそれぞれ差があり、相互の測定値は相対する±1 $\sigma$ に入らないことがわかった。即ち 68%の確率で有意の差があるといえる。

なお、目標値 5.0mL以外の値でも実験室での測定とセル組み込み後の測定でそれぞれ差があり、標準偏差から勘案して全体的に有意の差が認められた。

### 3. 5 同機種による実験室とセル組み込みの差の原因

本装置の精度はセル組み込み状態でも 0.2mL分取時の標準偏差はメーカー提示値を満足したが、セル組み込み状態では実験室の値より分取量、吐出量共に低下することがわかった。この原因は実験室におけるシンプルな配管での試験より、セルに組み込んだ場合の配管は長く、また、配管にはテフロンチューブ、ステンレス鋼管等を用い、それらの繋ぎに各種のジョイント及び隔離弁等を用いているので、圧力損失が大きくなり、配管での圧力吸収効果が増したためと考えられる。

## 4. 分注、希釈時の誤差

### 4. 1 回帰分析結果からの標準偏差

分注希釈装置を実際に運転する場合、回帰分析から得られた補正式を用いて分取及び吐出量を定める。第2表では平均値からの標準偏差を求め議論したが、回帰直線からの標準偏差で分注、希釈時の誤差を考える方が現実的である。回帰直線からの標準偏差を第3表に示す。0.1mLの分取操作を除くとCV値(1 $\sigma$ /目標値×100)は最大 0.971% (B機、ドデカ、0.7mL分取時) である。

群分離試験で発生する試料の放射能濃度を測定するために $\gamma$ 線検出器等を用いるが、測定用試料を作製するまで分取-希釈操作を複数回行うことになる。本分注希釈装置の誤差の伝搬は、全て決まった方向に誤差が発生する（系統誤差）ものではなく、最初の分取操作で+方向に偏った場合、次の希釈操作では-方向に偏る場合もあるという誤差、すなわち、互いに誤差を相殺する（偶然誤差）ケースである。

このような場合の誤差の伝搬は以下の式で表される。

$$\text{標準偏差 } (\sigma) = \sqrt{(\sigma_1)^2 + (\sigma_2)^2 + \dots}$$

分取-希釈操作を7回行う(0.2mL分取4回+5mL希釈3回)とすると、1回当たりの最大

誤差 0.971%を上式に代入して、誤差は 2.569%となる。

ちなみに、全て決まった方向に誤差が発生すると考えた場合は、 $1.00971^7 \times 100 =$  最大 7.0%程度の誤差となる。ただし、この計算は最初の分取操作で+方向に偏った場合、次の希釈操作、次いで分取操作が全て+方向になった場合の誤差であるので  $0.5^6 \times 100 = 1.6\%$  で起こる確率である。

第1表 回帰分析の結果

実験条件	目盛りと吸い込み量の関係	
	A機	B機
場所：実験室	a = 0.996340	a = 0.995030
対象：水	b = 0.000215	b = 0.000061
場所：セル	a = 0.994481	a = 0.993285
対象：水	b = -0.005324	b = -0.001325
場所：セル		a = 0.971120
対象：ドーティン		b = -0.007268
実験条件	目盛りと吐出量の関係	
	A機	B機
場所：実験室	a = 0.991696	a = 0.996982
対象：水	b = 0.047444	b = 0.053082
場所：セル	a = 0.990599	a = 0.999149
対象：水	b = -0.022334	b = 0.039995
場所：セル		a = 1.000397
対象：ドーティン		b = -0.000203

注記： (吸い込み量) = a × (分注器目盛り) + b  
 ( 吐出量 ) = a × (分注器目盛り) + b

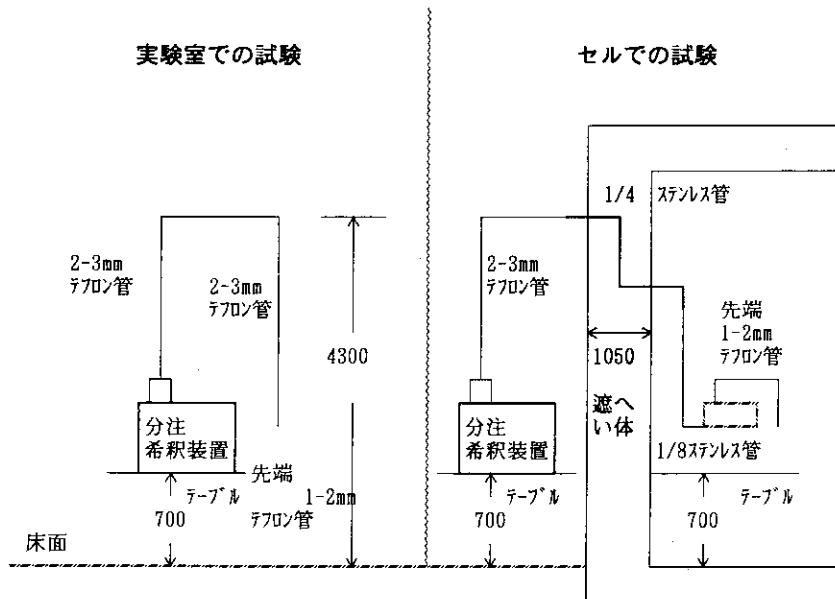
第2表 分注希釈装置の分取及び希釈操作における標準偏差

実験 条件	A機の吸い込み量					B機の吸い込み量			
	目盛り	サンプル数	平均(mL)	偏差( $\sigma$ )	C V値(%)	サンプル数	平均(mL)	偏差( $\sigma$ )	C V値(%)
場所： 実験室	0.1	10	0.10016	8.90E-04	0.888	3	0.09925	2.52E-04	0.254
	0.2	10	0.19954	4.49E-04	0.225	10	0.19930	5.00E-04	0.251
	0.3	3	0.29824	8.99E-04	0.301	3	0.29804	2.52E-04	0.085
	0.5	10	0.49822	1.02E-03	0.204	10	0.49814	6.04E-04	0.121
	0.7	2	0.69701	1.77E-03	0.254	3	0.69392	1.53E-04	0.022
	1.0	3	0.99727	1.12E-03	0.112	3	0.99618	5.52E-04	0.055
対象：水	0.1	5	0.09431	2.31E-03	2.451	5	0.09915	1.79E-03	1.805
	0.2	10	0.19426	1.28E-03	0.658	10	0.19717	2.97E-03	1.506
	0.3	4	0.29186	4.56E-04	0.156	5	0.29599	3.74E-03	1.264
	0.5	5	0.49199	1.22E-03	0.247	5	0.49628	1.76E-03	0.355
	0.7	4	0.68874	1.97E-03	0.286	5	0.69050	2.31E-03	0.335
	1.0	5	0.99079	1.11E-03	0.112	5	0.99406	1.76E-03	0.177
場所： セル	0.1					6	0.09035	1.11E-03	1.232
	0.2					10	0.18735	7.98E-04	0.426
	0.3					5	0.28406	9.47E-04	0.333
	0.5					5	0.47650	1.39E-03	0.293
	0.7					5	0.66674	9.57E-04	0.143
	1.0					5	0.96858	9.69E-04	0.100

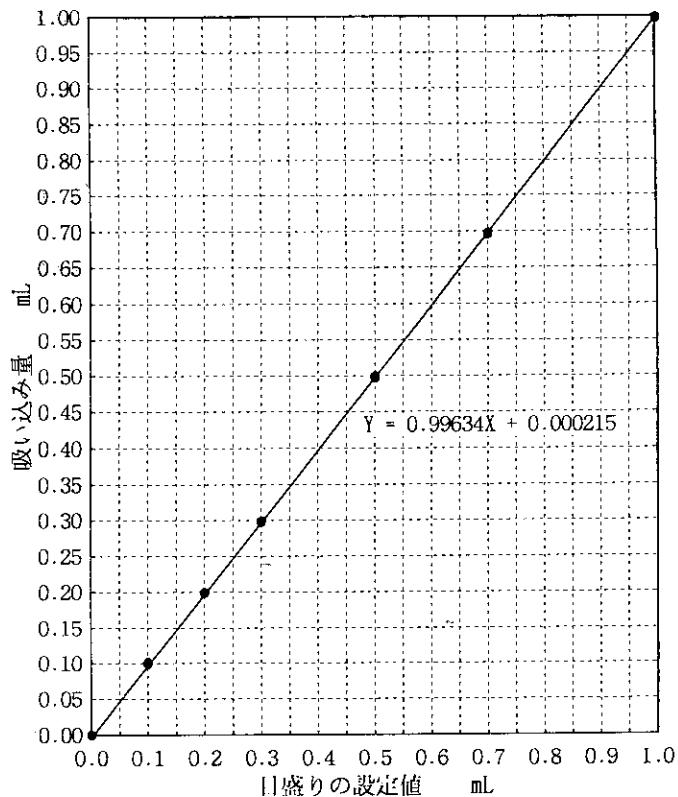
実験 条件	A機の吐き出し量					B機の吐き出し量			
	目盛り	サンプル数	平均(mL)	偏差( $\sigma$ )	C V値(%)	サンプル数	平均(mL)	偏差( $\sigma$ )	C V値(%)
場所： 実験室	2	3	2.02179	6.20E-03	0.307	3	2.03577	4.95E-04	0.024
	3	10	3.02442	3.45E-03	0.114	11	3.02831	3.01E-03	0.099
	5	10	5.01719	1.42E-03	0.028	12	5.05950	5.16E-03	0.102
	7	10	6.98919	9.34E-03	0.134	8	7.06205	1.03E-03	0.015
	10	3	9.94584	6.07E-03	0.061	12	10.00300	4.36E-03	0.044
	2	5	1.96045	3.80E-03	0.194	5	2.04594	3.29E-03	0.161
対象：水	3	5	2.94517	6.42E-03	0.218	5	3.04019	5.41E-03	0.178
	5	10	4.92762	8.48E-03	0.172	10	5.03661	5.62E-03	0.112
	7	5	6.91287	9.47E-03	0.137	5	7.03098	2.21E-03	0.032
	10	5	9.88695	7.10E-03	0.072	5	10.03040	4.81E-03	0.048
	2					5	1.98694	4.49E-04	0.023
	3					5	2.98718	4.37E-04	0.015
対象： ドテ'カン	5					10	5.02140	1.14E-03	0.023
	7					5	7.00564	8.64E-04	0.012
	10					5	9.98886	9.50E-04	0.010

第3表 回帰分析結果からの標準偏差

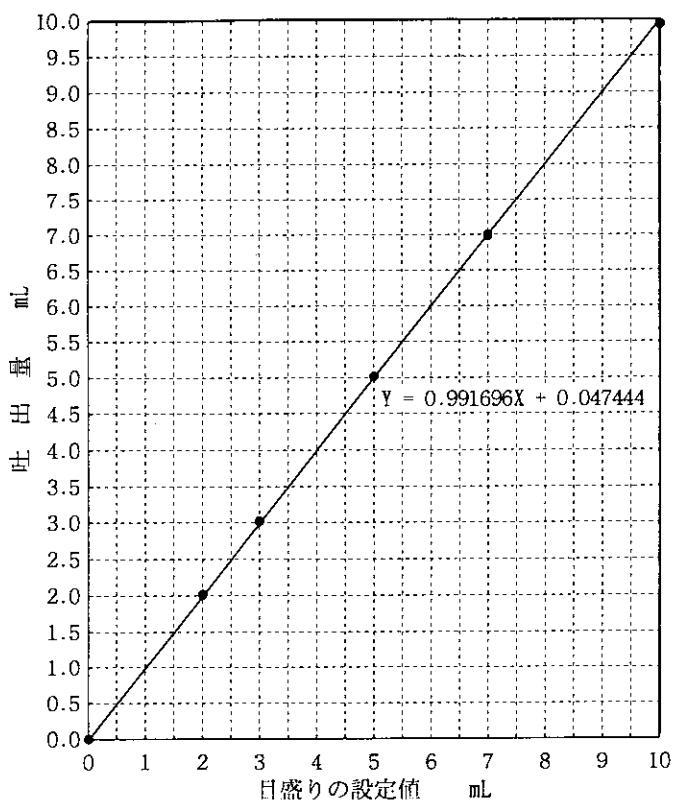
試験対象液 水					試験対象液 ドテカソ				
A機の吸い込み量					B機の吸い込み量				
目盛り	サンプル数	回帰分析値	偏差( $\sigma$ )	C V値(%)	サンプル数	回帰分析値	偏差( $\sigma$ )	C V値(%)	
0.1	5	0.09412	2.32E-03	2.466	6	0.08984	1.24E-03	1.385	
0.2	10	0.19357	1.47E-03	0.759	10	0.18696	9.00E-04	0.482	
0.3	4	0.29302	1.42E-03	0.484	5	0.28407	9.47E-04	0.333	
0.5	5	0.49192	1.22E-03	0.248	5	0.47829	2.44E-03	0.511	
0.7	4	0.69081	3.10E-03	0.449	5	0.67252	6.53E-03	0.971	
1.0	5	0.98916	2.14E-03	0.216	5	0.96385	5.37E-03	0.557	
A機の吐き出し量					B機の吐き出し量				
目盛り	サンプル数	回帰分析値	偏差( $\sigma$ )	C V値(%)	サンプル数	回帰分析値	偏差( $\sigma$ )	C V値(%)	
2	5	1.95886	4.19E-03	0.214	5	2.00059	1.53E-02	0.763	
3	5	2.94946	8.01E-03	0.272	5	3.00099	1.54E-02	0.515	
5	10	4.93066	9.07E-03	0.184	10	5.00178	2.07E-02	0.414	
7	5	6.91186	9.53E-03	0.138	5	7.00258	3.53E-03	0.050	
10	5	9.88366	8.00E-03	0.081	5	10.00377	1.67E-02	0.167	



第1図 分注希釆装置の配置と配管の方法



第2図 A機の目盛り設定値と吸い込み量の関係



第3図 A機の目盛り設定値と吐出量の関係