

昭和59年度人形峠事業所資源開発部
業務報告

1985年 5 月

動力炉・核燃料開発事業団
人形峠事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒708-0698 岡山県苫田郡上斎原村1550番地

核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター
環境保全技術開発部 管理課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Co-ordination Section, Environmental Research and Development Division,
Ningyo-Toge Environmental Engineering Center,
Japan Nuclear Cycle Development Institute,
1550 Kamisaibara-son, Tomada-gun, Okayama-ken, 708-0698
Japan Nuclear Cycle Development Institute,

© Japan Nuclear Cycle Development Institute
(核燃料サイクル開発機構)

昭和59年度人形峠事業所資源開発部業務報告

岩 田 一 郎 他*

要 旨

昭和59年度の資源開発部各課室における業務の概要についてとりまとめた。

採鉍課は、露天採掘およびヒープリーチングの操業化試験、3級アミン型樹脂によるイオン交換試験を行ったほか、鉍害対策にも力を入れてきた。

鉍石試験室は、カナダ、ニジェールなどの海外からの鉍石の鉍物試験、オーストラリアマルガロックの鉍石処理試験およびF S、ダム廃水中のウラン回収設備による試験運転、ラジウム除去のための吸着剤の開発など数々の研究開発を行ったほか、製錬試験設備の第4期工事を終了した。

製錬課は、製錬転換パイロットプラントの交替勤務制による運転試験およびY Cドラム缶取扱装置、T C C分析装置、廃液処理設備の設置、改造を行った。回収ウラン転換試験設備では、各工程の一連の試験のほか、特に新H Fふっ化塔の運転試験を行った。

* 人形峠事業所資源開発部

目次

	報 告 者	頁
1. ま え が き	岩 田 一 郎	1
2. 採 鉍 課		2
(1) 採鉍業務概要	[]	2
(2) ヒープリーチング操業経過報告	[]	9
(3) 第2イオン交換試験操業について	[]	21
(4) 採鉍課の鉍害対策について	[]	32
3. 鉍石試験室		47
(1) 鉍石試験室概要	河 本 薫 明	47
(2) 鉍物試験結果	[]	50
(3) マルガロック産鉍石処理試験について	[]	83
(4) オール硫酸法技術開発について	[]	99
(5) ウラン・ラジウム回収(除去)試験について	[]	124
4. 製 錬 課		154
(1) 製錬転換PP, CTF-II運転概要	安 田 式 郎	154
(2) ドラム缶取扱装置の設置	[]	159
(3) TCO分析装置と測定結果	[]	170
(4) 廃液処理設備の改造及び運転結果	[]	186
(5) 新電解還元槽の運転実績	[]	212
(6) フッ化沈でん槽オーバーフロー液中のウラン処理技術開発	[]	221
(7) 新HFふっ化塔運転試験(中間報告)	[]	232
(8) F ₂ ふっ化塔における反応性とコールドトラップ捕集率について	[]	242

ま え が き

昭和59年度は、我が国の核燃料サイクルの自主的確立を目指す画期的な年度であった。

電事連は、青森県下北半島に再処理、ウラン濃縮、低レベル放射性廃棄物の核燃料サイクル三施設を建設することを発表した。また総合エネルギー調査会では、天然ウラン、回収ウランの転換事業についても検討する必要があるとしており、通産省では転換事業国産化の可能性について調査を開始することを決めている。一方人形峠においては、ウラン濃縮原型プラントの立地も決まり、59年末より土地造成工事に着手した。

このような周辺の情勢に対し、製錬転換パイロットプラントの重要性が増してきており、技術の確立、安定運転の実証が忙がれるわけであるが、そのような意味で、59年度は予定通り生産量が確保できたことは意義があることである。

回収ウランの転換についても、東京電力と回収ウラン再利用の実証試験を行うことで契約がなされ、UF₆転換部分を受け持った製錬課が、その責を全うしたことは、核燃料サイクルの確立に向けて、大きく前進したことになる。

安全確保については、採鉱課、鉱石試験室、製錬課とも、58年度に開始したKY活動を更に進め、大きな事故もなく業務を全うした。

2. 採 鉱 課

2-1(1) 採鉱課業務概要

報告者 採鉱課

1. 概 要

本年度の業務は59年度業務計画に基づき原鉱石採掘、ヒーブリーチング技術開発、鉱害対策の諸業務を実施した。

夜次北部鉱床から原鉱石約8,200tを露天採掘し、ヒーブリーチングへ供給した。11月15日の鉱石搬入をもって今年度の採掘を完了した。鉱石採掘量は業務を開始した昭和52年度以降最高の採掘量となった。ヒーブリーチング操業試験は、鉱石処理量の増大、処理期間の短縮、および硫酸消費量低減の目標達成に向けて、4月23日から5サイクル(15バッチ)の運転を開始し約8,150tの鉱石の浸出処理をイオン交換連動方式により実施した。

鉱害対策として、夜次採掘場周辺環境調査の継続、鉱さいダム内及び下流にボーリングを実施して地質、地下水挙動調査を行うと共に、夜次北部坑口閉塞、沈殿池の改修、露天採掘場跡地5,000㎡の植栽工事、神倉、鉛山鉱山跡地の維持管理を行った。

2. 試験結果

各試験項目とその成果は、別表-1の様であるが、その主な項目と成果をみると、まず原鉱石採掘は夜次採掘場から酸化鉱で乾鉱量8,145.7tを採掘し、達成率109%を得た。しかし、ウラン品位は当初予想を下回り平均0.054%であった。

ヒーブリーチング操業は、4月23日から開始し、11月2日までに5サイクル(15バッチ)を終了した。

当初計画で運転時間の短縮(15日/バッチ)を目指し操業に入ったが鉱石のウラン品位が低いことと、粘土質のため浸出に時間を要し平均29日/バッチの結果に止まった。又ウラン回収率も低品位鉱を扱ったため昨年の91%から86%(リーチング時)と低下した。

循環浸出工程での硫酸の添加調製等、硫酸消費量の低減化に努力した結果14.13kg/t-oreと当初目標を達成した。(表-2)

イオン交換設備運転試験での最重要課題は溶離液のウラン濃度増大であるが、熱交換器利用による温溶離によって最高5g-U/lとウラン濃度の増大が達成でき、液量の減量に成功

した。

溶液中の油水分離試験は、関西総合環境センターに依頼し測定した結果、別表-3の様な結果を得た。これによると処理液量700m³で油水分離器活性炭で処理したあと液中のエチルヘキシルアルコールは、9ppm以下を示し、目標値10ppmを下回ったが、処理液量920m³では110ppmと増大することが判明した。現場ヒープリーチングの基礎試験として、簡易浸出槽の材質試験を行ってきた結果、EVA3mmシートが遮水効果が認められた。引き続き漏水テストを継続中である。

露天採掘場周辺の地下水及び沢水中のU、およびRa含有量は各々1~4ppb-U、 $0.13 \sim 0.5 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{mL}$ -Raを示しており基準値60ppb-U、 $1.0 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{mL}$ -Raを越えていない。

鉱さいダム周辺のボーリング調査によってダム内の廃さいの状況が把握できた。廃砂推積量は6.674m³であり、沈殿物量は30.366m³に達している。又、殿物中のウラン含有量は最大0.44%で、Rn量は最大値が $1.3 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{mL}$ である。ダム内のRa最大含有量は、 $9.45 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{mL}$ であるが、ダム下流の沢水中のRa量は平均 $0.81 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{mL}$ である。

3. 今後の課題

本年度成果を踏まえ今後の課題としては

1. 採掘コストの低減化と鉱さい処分の技術開発を進める。
2. ヒープ操業試験において浸出時間の短縮(20日/バッチ)を行い、6サイクル(鉱石量9000t)の操業達成を実現する。
3. イオン交換工程では、3級アミン樹脂の最適吸着、溶離条件を決定する。温溶離によるウラン濃度増大は効果的なので更にこれを進めてウランを最大量吸収させ、溶離液量の減量を行う。
4. 遮水シート試験は、EVA槽のモニタリングの継続と他材料(粘土等)工法の検討、現場試験を実施する。
5. 夜次採掘場周辺の地下水、沢水のモニタリング及び鉱さいダムの漏水調査を継続すると共にウラン廃さいの処理、処分について研究を進める。
6. 採掘埋戻し跡地にRa、Rnの遡散に対しての抑制効果のある客土、植栽工事を行う。さらに旧坑跡地の閉塞等付帯工事を実施する。

表-1 昭和59年度試験項目と実績対比表

試験項目 (計画)	実績 (成果)	総括・今後の課題
1. 原鉱石採掘 ○採掘量 7,500t ○ウラン品位 0.08~0.1%, U量 6~10t ○二次剥土量 10,000m² 2. ヒープリーチング ○運転時間の短縮 15日/バッチ ○試験回数増大 5サイクル(15バッチ) ○硫酸消費量の低減 15Kg/t-ore 3. イオン交換設備運転 ○3級アミン樹脂による高硫酸濃度、低ウラン濃度液からのウラン回収, ウランリークを1ppm以下とする。 ○温溶離によるU濃度アップ 5g/l以上 ○溶離液中の油分の分離 10ppm以下 4. 現場ヒープリーチング試験 ○遮水シート試験 5. 鉱害対策 ○露天採掘場周辺の地下水, 沢水調査 ○鉱さいダム周辺の地質, 水質調査	採掘量 8,189.2t 達成率109% ウラン品位 0.054%, U量 4.5t 二次剥土量 6,467.8m² 浸出 最大40日/バッチ, 最小21日, 平均27日, 5サイクル(15バッチ) 硫酸消費量 14.4Kg/t-ore 樹脂の交換により高硫酸濃度液の処理が可能となり廃液へのウランリークが減少した。 最大5gU/l, 液量の減量に成功した。約700m²処理で処理液中のアルコール100ppm超過, 最大240ppm No1槽 ネオプレンゴムシート, 液の漏洩あり No2槽 EVAシート, 漏水テスト実施中 地下水, 沢水中のウラン量, 1~4ppb, Ra量0.13~ 1.5×10⁻⁹μCi/ml, ダム沈殿物30.366m²(最大4.3m)	○ウラン品位が推定値より低い, 採掘量は達成 ○採掘コストの低減, 現場ヒープリーチング法と鉱さい処分の技術開発 ○ウラン浸出量, 1バッチ操業日数の短縮が達成できなかった主な理由: 低品位鉱石, 粘土質で浸出液の効率が悪い。 ○浸出時間の短縮, 20日/バッチ, 6サイクル9,000t-ore ○最適吸着, 溶離条件の決定 ○最大吸着量の実現と溶離液量の減量 ○700m²を目安に活性炭の更新を行う。 ○遮水可能シートはEVA, コスト面で割高(3000n/t-ore) ○EVA槽のモニタリング, EVA厚と工法の検討, 他材料(粘土等)の試験 ○夜次採掘場周辺の地下水, 沢水のモニタリング ○鉱さいダム周辺の漏水調査, 廃物の処理処分

試験項目 (計画)	実績 (成果)	総括・今後の課題
6. 冬期基礎試験 ○ウランのアルカリ浸出試験 ①ビーカーテスト ②カラムテスト ○酸浸出における酸化鉄鉱物不溶の低限試験 ○頁岩中のRa 溶出試験 ○灰水のRa 除去試験	0.44%U, $51.3 \times 10^{-4} \mu\text{Ci/g Ra}$ 最大, ダム水 $9.45 \times 10^{-9} \mu\text{Ci/ml}$, ダム下流沢水 $0.81 \times 10^{-9} \mu\text{Ci/ml Ra}$ 最大 その他工事 夜次北部坑口閉塞工事 一号沈殿池改修 中の沢堆積土砂搬出 試験浸出槽改修 植栽 $5,000 \text{ m}^2$ 夜次鉱さい堆積場測量 ○ビーカーテストによるアルカリ浸出法では粉碎一攪拌及び粉碎一振盪で浸出率82.4~90.8% 又、カラム試験では浸出元液のダウンフロー循環法にて浸出率55.4~61.3%を得た。 ○フリー硫酸5g/lでは酸化鉄鉱物は不溶であるが10, 15, 20g/lと酸濃度が上がるにしたがい順次鉄の溶解量は増加する。 ○元液 $0.6 \mu\text{Ci/ml}$, PH3.0 でビーカーテストを行いその結果 $1.79 \mu\text{Ci/ml}$ 溶出することが判った。 ○Dowex-50WR-SO₃H 強酸性陽イオン交換樹脂によるカラム試験、樹脂のコンディショニングをかねて試験中	○粘土を利用した現場ヒープ、廃さい処分技術の開発 ○採掘場跡の植栽工事 $3,000 \text{ m}^2$ ○旧坑跡の閉塞工事 ○鉱石浸出後の洗浄法の検討 ○カラム試験の結果が低率回収であるので再検討を行う。 ○フリー硫酸5~10g/lの間での試験が必要である。 ○継続試験により確認を行う。 ○植栽試験により確認を行う。

試 験 項 目 (計 画)	実 績 (成 果)	総 括 ・ 今 後 の 課 題
○ 3 級アミン樹脂の最適溶離剤試験 ○ 第 2 イオン交換樹脂劣化試験	○ 2M-NaNO₃, 0.5M-H₂SO₄を用いることにより良好な溶離曲線が得られた。 ○ 吸着, 溶離性能とも劣化は認められない。	○ 硫酸を使用しての最適溶離条件の検討 ○ 継続試験を行う。

表-2 59年度副原料使用量と原単位

工 程	副原料	用水 ($m^3/t\text{-ore}$)	硫酸 ($kg/t\text{-ore}$)	消石灰 ($kg/t\text{-ore}$)	苛性ソーダ ($kg/t\text{-ore}$)	プロパンガス ($kg/t\text{-ore}$)	電 力 ($KWH/t\text{-ore}$)
浸出工程			7.52				
水洗工程		0.55					
第2イオン交換(固定床)			5.40			0.22	
第1イオン交換(移動床)		0.01	1.47				
捨石中和工程		0.13		0.20	2.07		
廃液中和工程		0.22		13.93			
使用量		7,388.9 m^3	117.179 kg	115.080 kg	16.872 kg	1.768 kg	63,979.4 (4月~11月)
合計	原単位	0.907	14.39	14.13	2.07	0.22	7.85

備考： 鉬石処理量8,145.7 t /年、硫酸9.8%, プロパン比重1.964 kg/m^3 、苛性ソーダ量 $3,374.4kg \times 0.5 = 1,687.2kg$ /年(100%NaOH)

年 度 別 鉬 石 処 理 量 の 推 移

年 度	54	55	56	57	58	59	60	61
鉬石・副原料								
鉬石採掘量(t)	1,176.0	4,631.0	2,923.0	5,043.0	4,352.0	8,189		
鉬石処理量(t)	1,494.0	4,586.6	3,148.3	4,259.1	4,390.0	8,145.7		
硫酸 年間(t)	102.64	227.4	118.3	113.7	106.9	117.18		
$kg/t\text{-ore}$	68.7	49.6	37.6	26.7	24.0	14.39		
消石灰 年間(t)	100.0	220.6	116.2	112.0	487.2	1150.8		
$kg/t\text{-ore}$	67.1	48.1	36.9	26.3	111.0	141.3		

表 - 3 溶液中の油分濃度測定結果

試料名	計量項目	トリ-n-オクチルアミン (ppm)	2-エチルヘキシルアルコール (ppm)	処 理 液量 ml
7/17 油水分離器元液		< 1.2 5	1 4 7.5	700
7/17 油水分離器コアレッサーあと液		< 1.2 5	1 3 0	
7/17 油水分離器活性炭あと液		< 1.2 5	< 9	
8/1 油水分離器元液		< 1.2 5	1 9 0	920
8/1 油水分離器コアレッサーあと液		< 1.2 5	1 9 0	
8/1 油水分離器活性炭あと液		< 1.2 5	1 1 0	
10/8 油水分離器元液		7.2 5	2 5 7.5	1361
10/8 油水分離器コアレッサーあと液		2.2 5	2 4 0	
10/8 油水分離器活性炭あと液		< 1.2 5	2 3 2.5	
11/28 油水分離器元液		9.5	2 8 7.5	1564
11/28 油水分離器コアレッサーあと液		1 1.7 5	2 5 2.5	
11/28 油水分離器活性炭あと液		5.2 5	2 4 0	

溶液 200 cc中の油分を四塩化炭素 50 ccに抽出し、その四塩化炭素中のトリ-n-オクチルアミン
および 2-エチルヘキシルアルコールの測定結果である。従って数値を $\frac{1}{4}$ の値として濃度を修正した。

2-(2) ヒープリーチング操業経過報告

報告者 採鉱課

1. 過去の業績と59年の比較

現在の500t浸出槽は54年7月から試験を始めており、現在にいたっている。その6年間の操業の主な成績をグラフ化して、59年の状況と今後のやり方について検討をおこなった。

(1) 鉱石処理量と鉱石品位(図-1)

59年におけるウラン鉱石処理量は、5サイクルの操業を行い、目標7,500t処理に対し8,146t処理することができた。54年は峠3号坑の鉱石を使用した。55年以後は夜次鉱石を使用している。

ウラン品位は、54年は平均0.144%であり、人形峠地区の最高品位であるが、59年は平均0.054%(最小0.034%;最大0.105%)と低品位鉱であった。過去6年間の使用鉱石総量は乾量にして、26,022tである。

(2) ウラン回収量と回収率(図-2)

6年間のウラン回収量総計は、22,546kgであり、59年の回収量は、4,567kgで6年間の中で第3位となった。鉱石からの実質ウラン回収量は、3,762kgで上述の59年回収量より少ないが、この差は製錬課からの製錬尾液を処理した805kgに相当する。

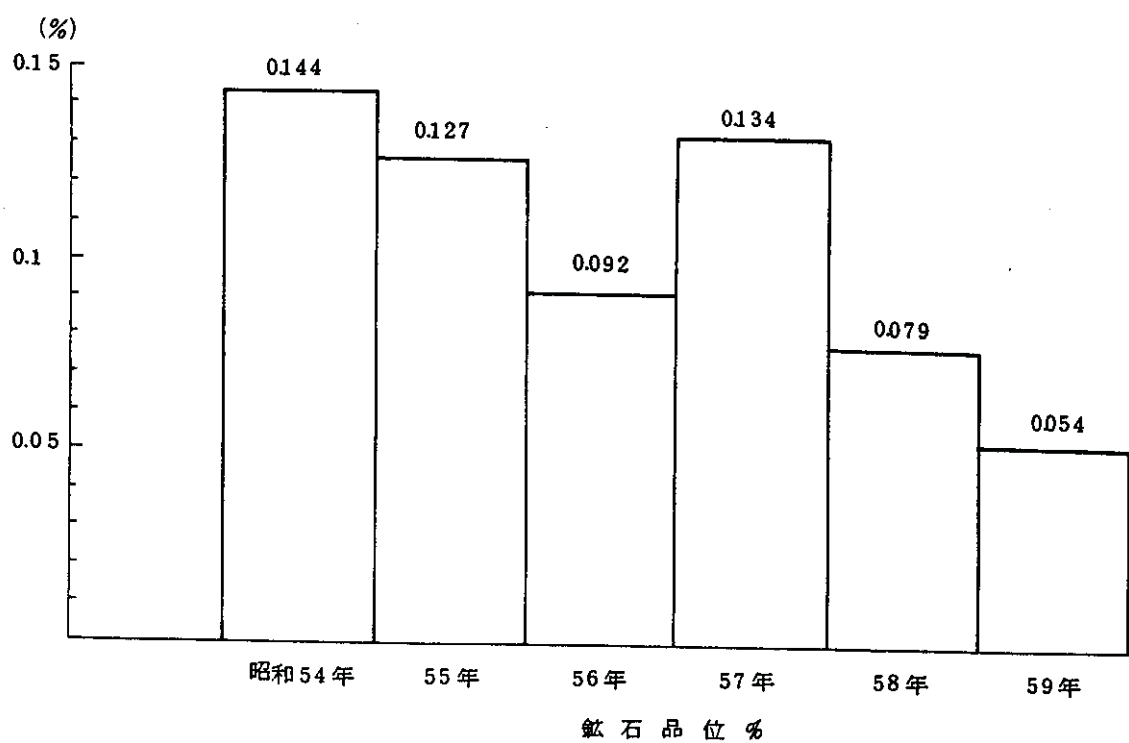
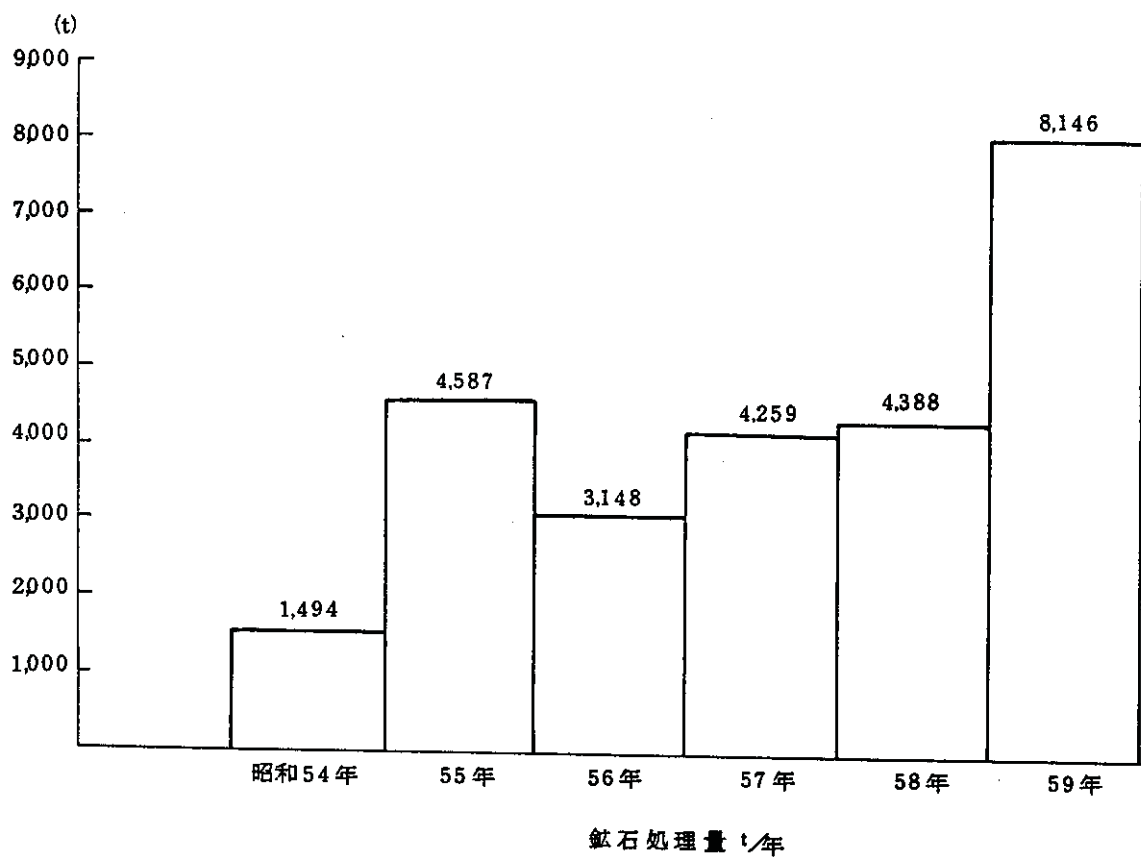
回収率について、鉱石からの実績回収率は86%と6年間中第5位となった。低品位鉱の浸出は浸出総量が少なく、また浸出回収の終点を30ppmの含有ウラン量と定めているので、高品位鉱と比べると、回収率は低くなる。

回収目標6,000kgに対し、量、率共に不本意な成績に終わった。6年間の平均回収率は89%となった。

(3) 硫酸原単位と平均1バッチ操業期間(図-3)

硫酸原単位目標の15kg/t鉱石は達成できた。58年から廃液リサイクルによる浸出を行なったが、59年は本格的にこれに取り組んだ。イオン交換処理用とヒープ処理用と硫酸原単位は半々の使用となった。

操業期間の目標15日/バッチは達成できなかった。59年の5サイクル、15バッチ操業では、最小21日/バッチ;平均27日/バッチであり、6年間の成績では1位で、漸減の形となっている。



図一 1 鉍石処理量と鉍石品位

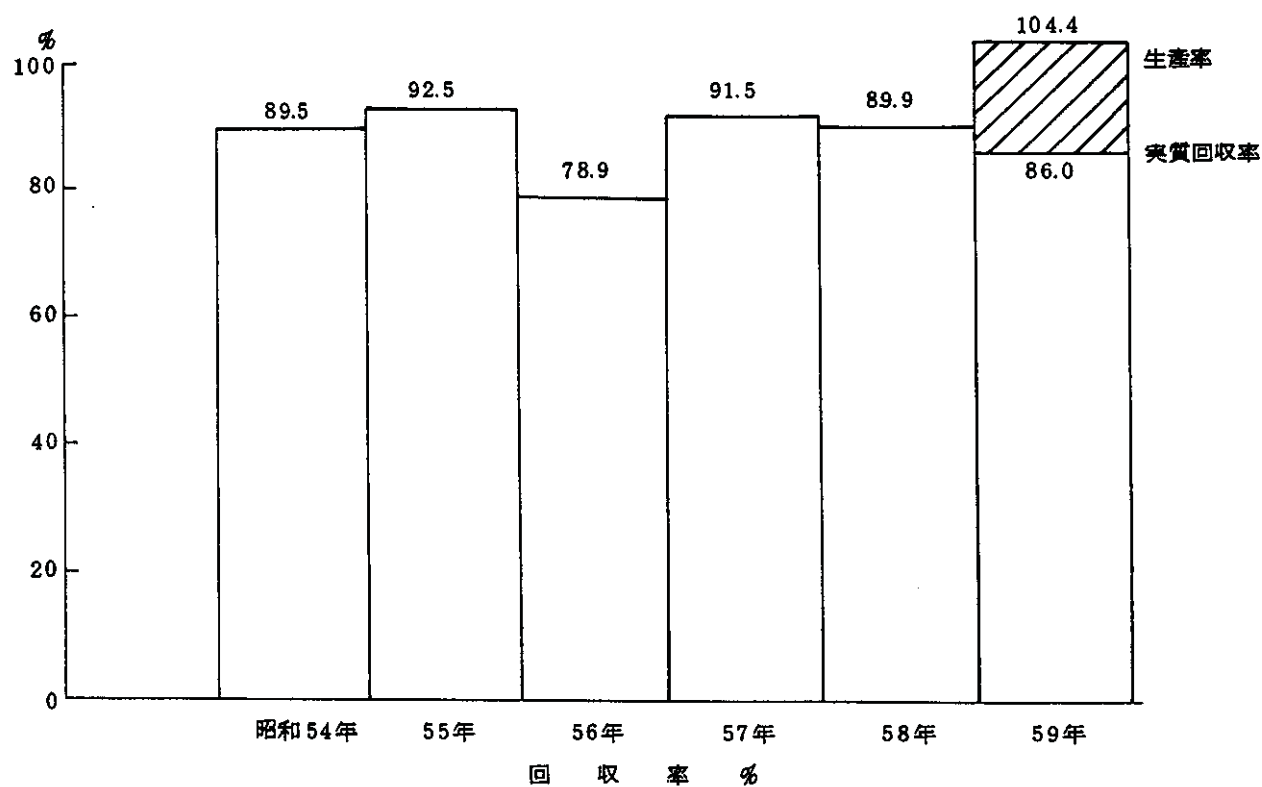
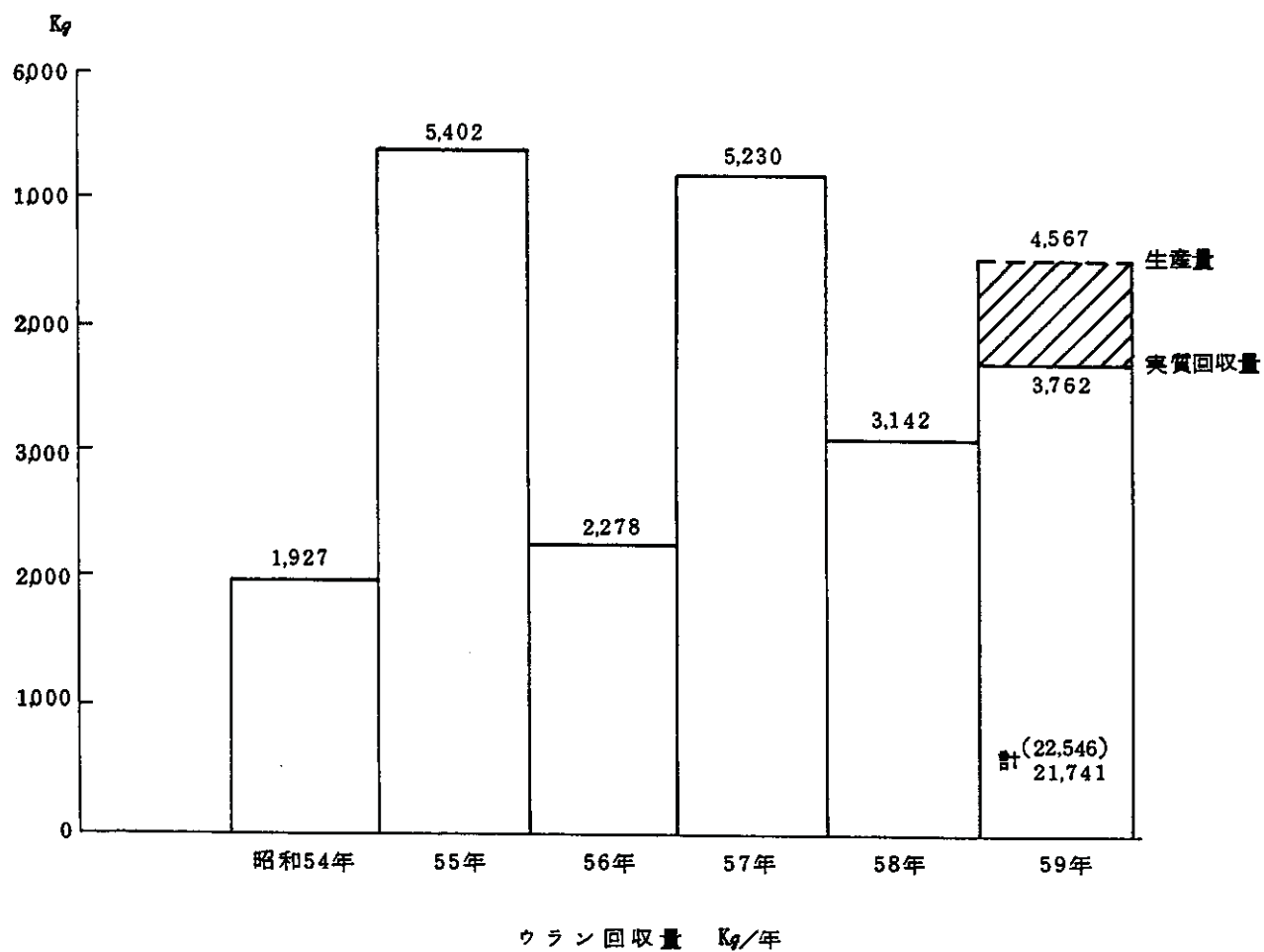


図-2 ウラン回収量と回収率

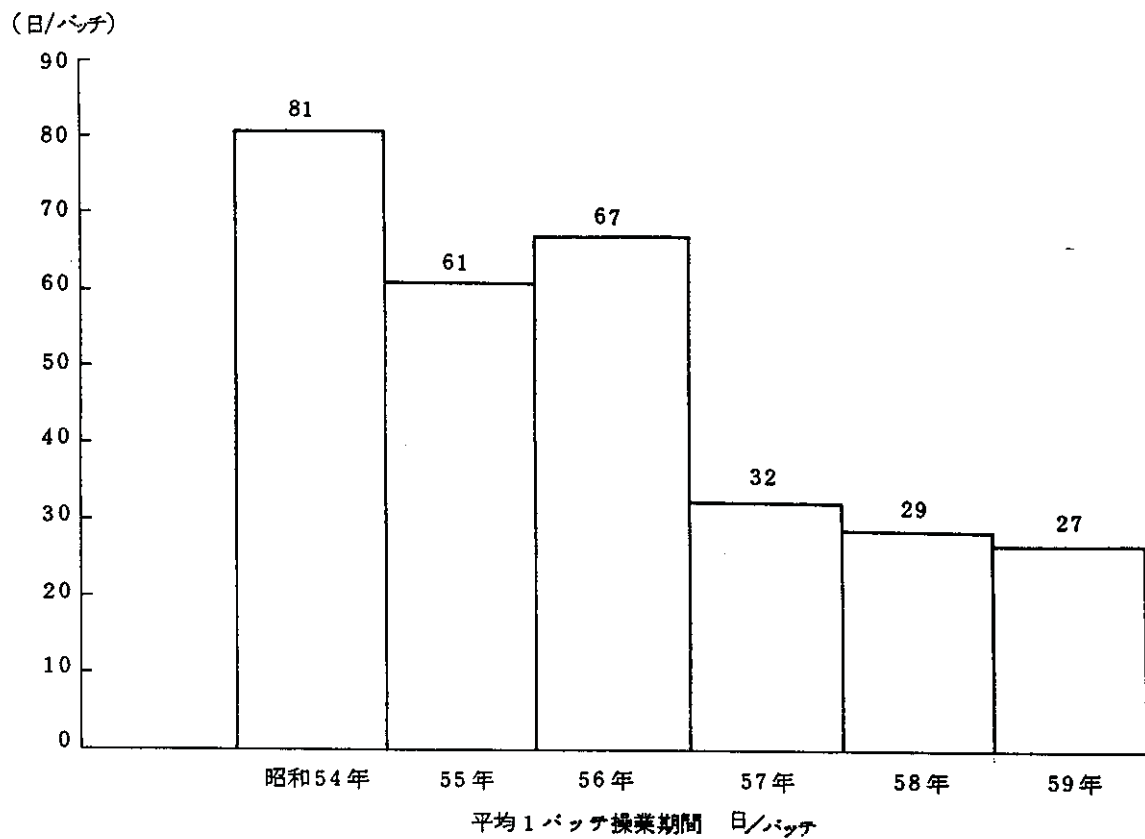
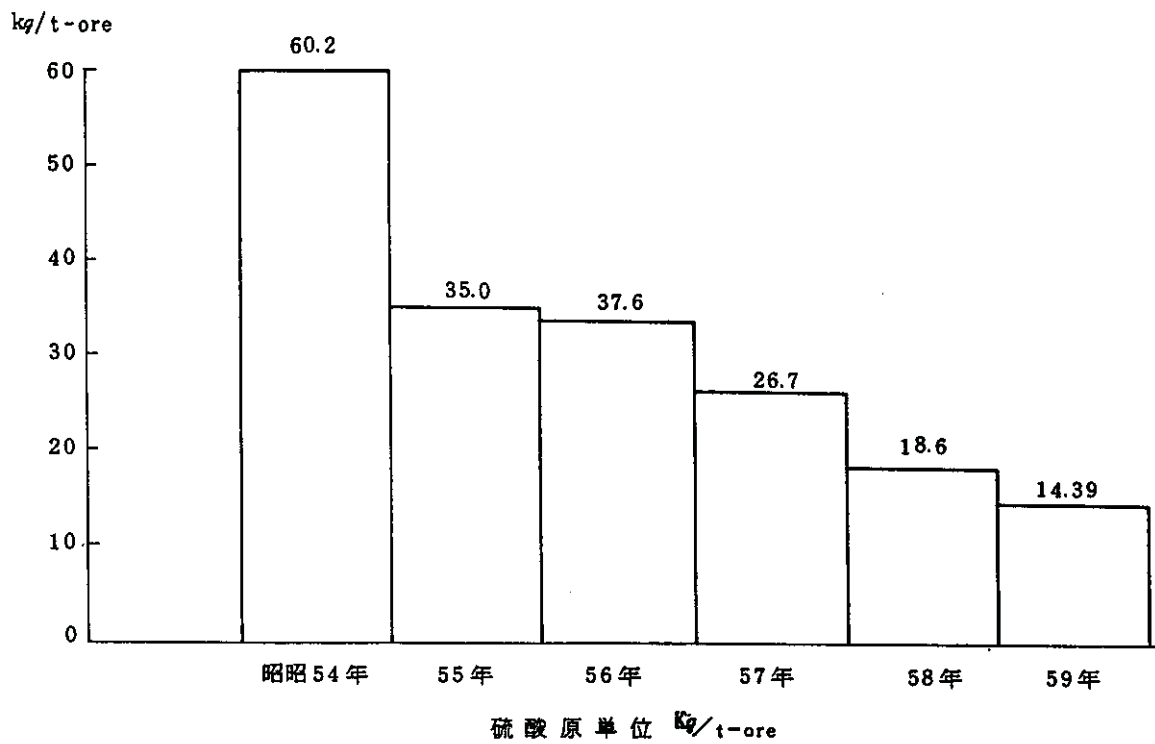


図-3 硫酸原単位と平均1バッチ操業期間

昭和59年度

月日		4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月
種類	サイクル									
バットリイ チンク操業	缶1 浸出槽			充填	充填	充填	充填			
	缶2 浸出槽			充填	充填	充填	充填			
	缶3 浸出槽			充填	充填	充填	充填			
その他	その他 缶1. 缶5 屋根工事									
	製錬定修工事									
	油水分離機運転		据付						搬出 シート 缶1 缶2 充填 充填	缶1 搬出
	1000t試験槽									
第1イオ交換	樹脂									
	交換									

図-4 リーチンク操業経過

リーチング工程表図

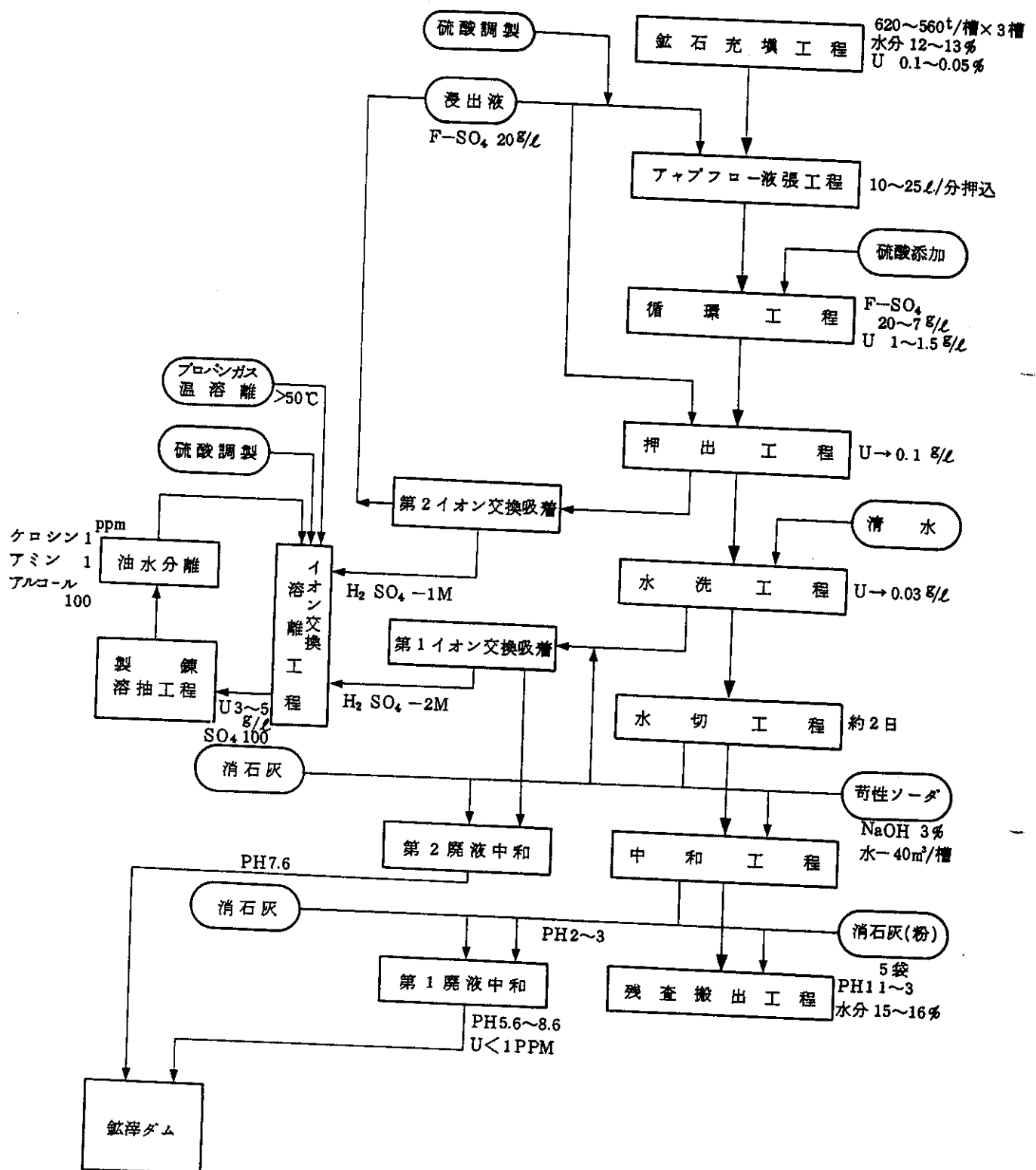


図-5 リーチング工程図

2. 59年度の操業経過

(1) 目標達成指針

(a) リサイクル廃液の活用

- (i) 低濃度酸液でウランのみを溶かし、鉄、アルミを溶かさない様に濃度管理する。
- (ii) 休日による操業停止を変更し、不要の鉄、アルミの溶け出しを防止する為サイクル中は休日出勤する。
- (iii) 製錬尾液の酸をできるだけ活用する。

(b) 操業期間短縮

- (i) 時間当りの循環量をできるだけ多くし、全体として期間短縮を図る。
- (ii) 分折をできるだけ早くし、対応を早くする。操業は、これら上述の方針で行なった。

(2) 操業経過表(図-4)

4月23日から11月5日の間で5サイクル; 15バッチの操業を行なった。この間にNa1とNa5貯液槽の屋根工事と製錬定期検査がおこなわれたがNa1槽の代用槽として、#1浸出槽を利用し、また製錬定期検査前の8月5日までウラン回収液を製錬に引渡、貯液槽を空にすることができ、定期検査中にも第4サイクルの操業がおこなえる。

その他として油水分離機の据付運転、第1イオン交換設備の樹脂更新、1.000t現場リーチング設備の耐圧試験が59年度中の主な業務であった。

(3) 操業工程フローシート(図-5)

リサイクルの目的は、廃液量及び副原料量の低減である。

- (a) 浸出液のイオン吸着後の循環再利用。
- (b) イオン交換樹脂のウラン溶離液は、製錬の溶媒抽出後の廃液に硫酸を加え酸調製して再び溶離液として、再利用する。製錬課の工程で、洗浄によって液量が増えて戻ってくるので、この余液を浸出元液として利用する。
- (c) 製錬尾液もイオン交換処理でウランを吸着した後、浸出元液として再利用する。

(4) 循環グラフ(図-7)

最短操業ができた時のグラフである。アップフロー液張りから循環工程に移ると、フリー酸は鉱石と反応し、その結果、酸濃度は低下し、7g/l度になり溶出ウラン濃度は一定値に近づく。そこで硫酸を添加すると再びウランは溶出し、溶出ウラン濃度は上昇するが、やがてはその濃度は一定値に近づく。ここで浸出は終了したものとして次の押出回収工程に

試験第6回循環液変化

S59年 第2サイクル + 1 浸出槽

○ U
 □ F-SO₄
 △ F
 ● T-SO₄

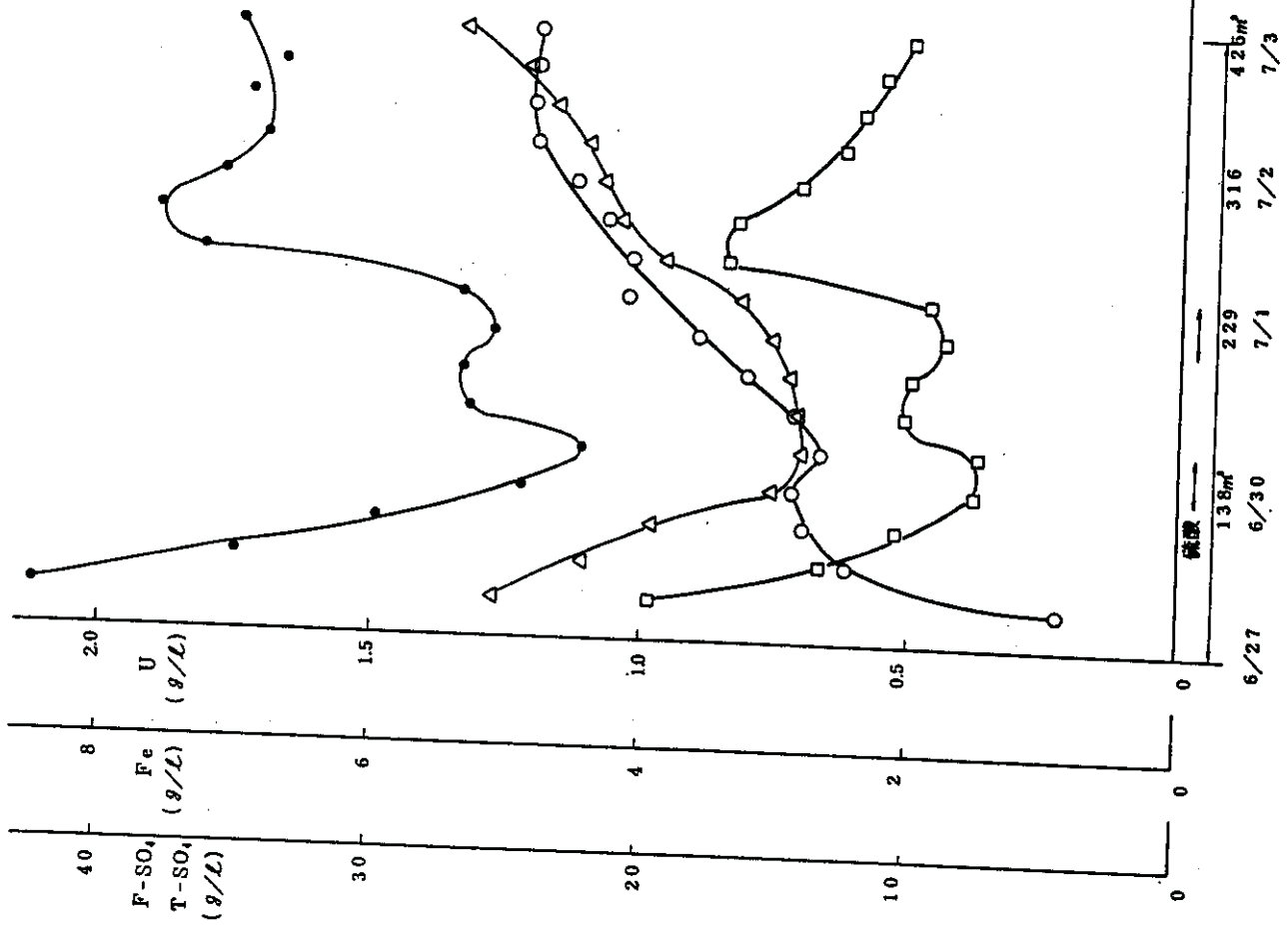


図-6 循環液変化の1例

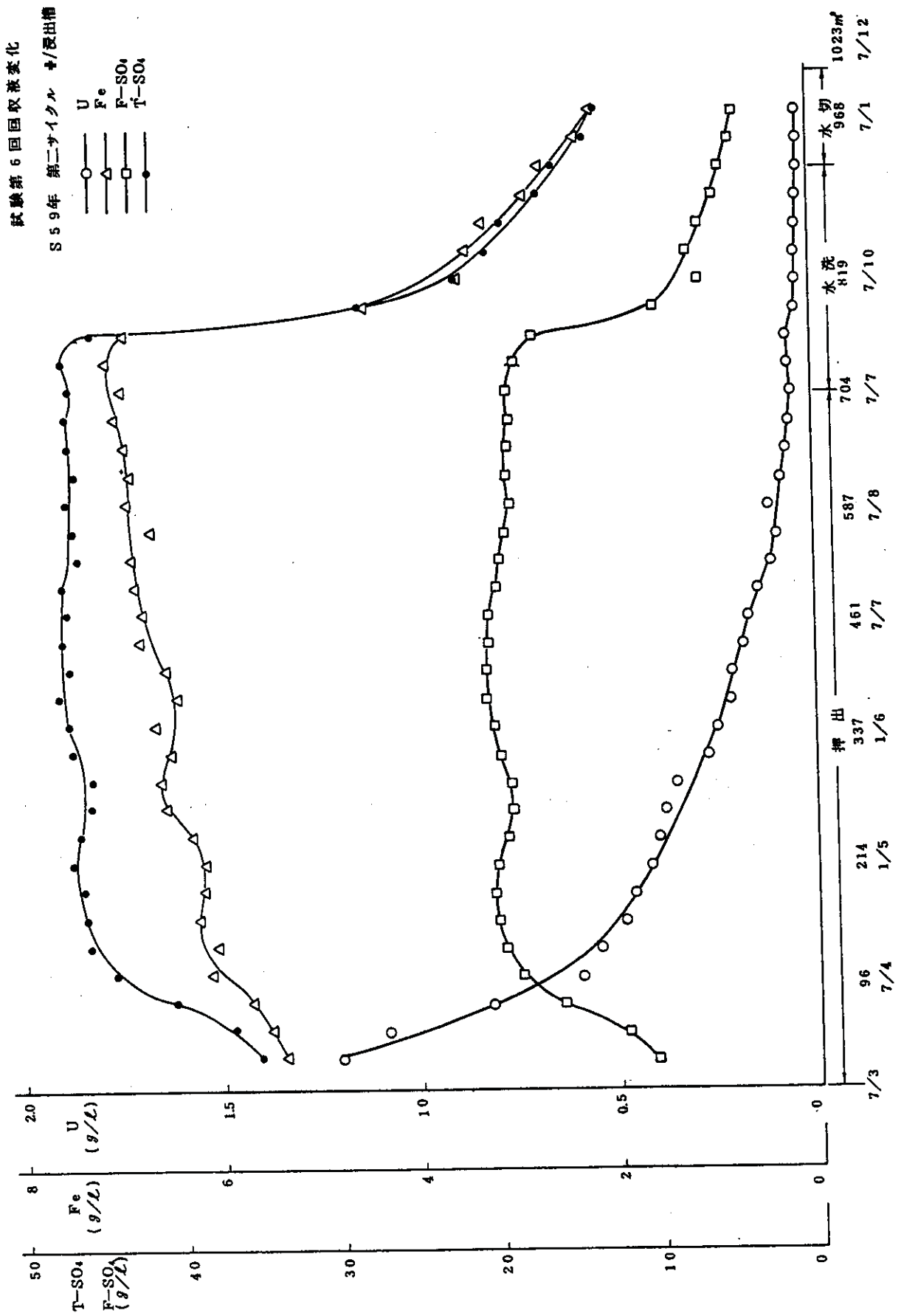


図-7 回収液変化の一例

入る。図の液循環量は423 m³であったが、約600 m³を目安として循環工程を終る。

(5) 押出回収および水洗グラフ(図-7)

リサイクル廃酸液によって押出回収を行い、液量約600 m³でウラン濃度が0.1 g/lに減少すると、浸出槽に水を加えて鉱石を水洗する。濃度が30 ppmになると、浸出回収は終わったものとする。水洗量は約600 m³である。

鉱石残査内に残留している微量酸は、苛性ソーダと消石灰を加えて中和し、採掘跡に埋戻す。

今年おこなった5サイクル共に同一操業工程で、硫酸液によるヒーブリーチング、イオン効換処理ワンスルー方式に依った。

3. 昭和60年目標に対して

採鉱課での昭和60年目標は(1)安全性の確歩、(2)生産性の向上、(3)経済性の追求である。
ヒーブリーチングの対応としては、

(1) 安全性

(a) 人の危害防止

(b) 鉱害の防止

(c) 残査、廃酸の完全中和処理

有用なウランを回収後、残査および廃酸を完全に中和した後に埋設及び放流する。

(d) 酸液、薬液の溢出、漏出防止

(2) 生産性

(a) 処理量9,000 t, 6サイクル

(b) ウラン回収率の向上

(3) 経済性

(a) 操業期間の短縮

(b) 副資材原単位の低減

(c) リサイクル操業管理

(d) 低濃度、一定濃度の酸浸出

上述の管理方法を59年の経験を踏えて操業したいと考える。

質疑応答記録

- Q 1 低品位鉱 0.34 % のときの回収率は？

A 83 %

- Q 2 低品位鉱のときは、回収率が下るのは当然ではないのか？

A 回収終了基準を 30 ㎫と定めているので当然下る。(図-8 参照)

回収曲線で見られる様に終了頃は裾野が長く、基準を下げると操業時日は延びても回収量はわずかである。又基準を上げると操業時日は短くなるが、回収率を犠牲にすることになる。

- Q 3 鉄の溶出曲線はあるがアルミについては？

A 58 年操業では鉄、アルミ共分析していたが、その挙動は鉄とほぼ同様であったので、59 年ではアルミの分析は取止めた。

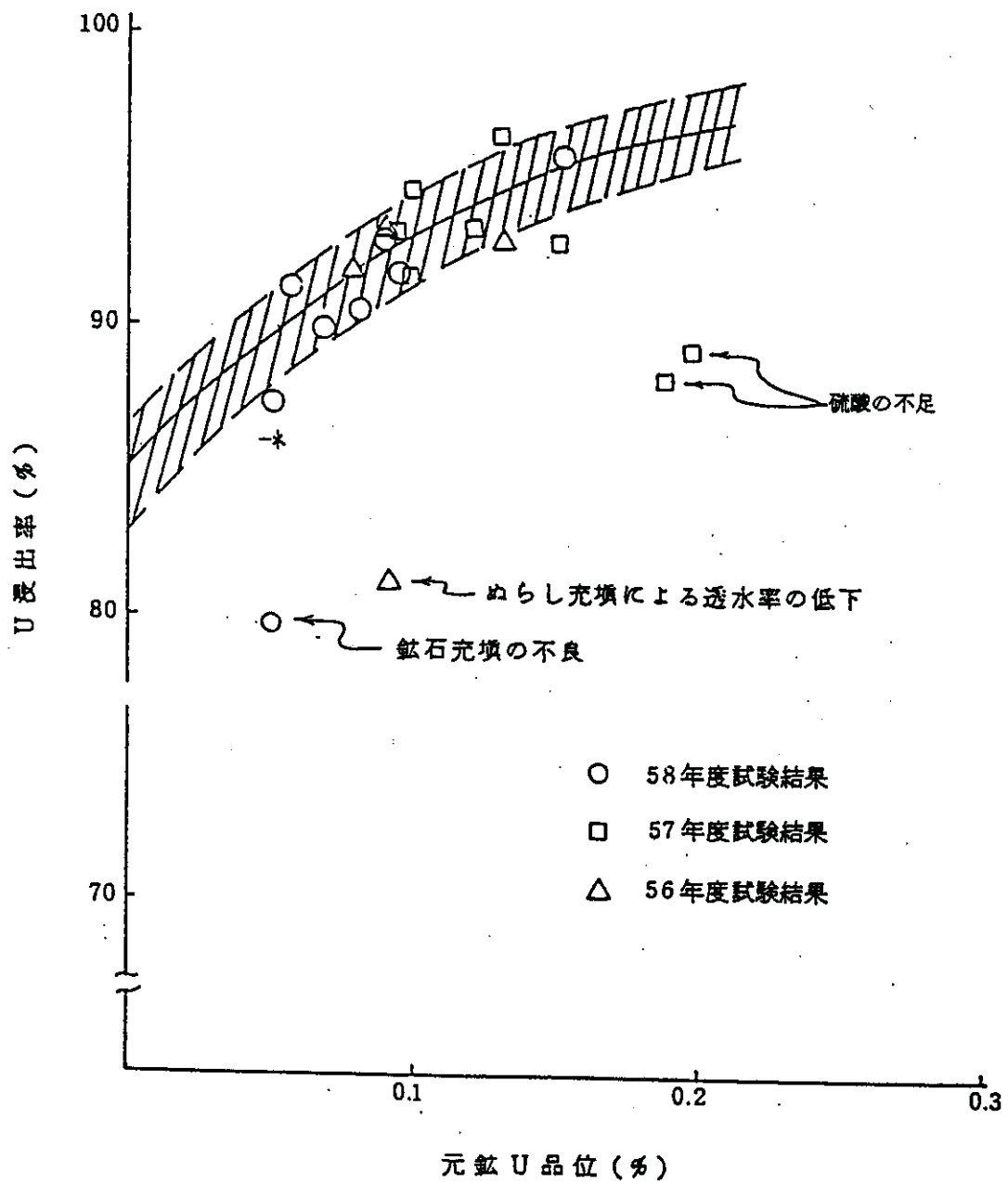


図-8 元鉍ウラン品位と浸出率の関係

2-(3) 第2イオン交換試験操業について

報告者 採鉱課

第2イオン交換では59年度の操業開始に当り図-1に示すような5項目の目標を掲げ運転に入った。最初に5つの目標とそれらに対する試験操業の結果を対応して示すと次のようになる。

1. メリーゴーランドでの方式：ヒーブリーチングとの連動運転に主眼をおき順調に推移した。
2. サンプリング自動システム：サンプリング及び吸光度測定の実現し、終点の判別が容易になった。
3. イオン吸着量：50g-U/l以上を目標として試験操業を行なったが、結果としては20～30g-U/lの吸着量しか得られなかった。しかしながら吸着量に対しては液中のU濃度、 $T-SO_4^{2-}$ 濃度が大きく影響することから、現状の元液組成U 0.1～1g/l、 $T-SO_4^{2-}$ 40～50g/lを考え合えると妥当な結果であろう。
4. 溶離液ウラン濃度：溶離液ウラン濃度については、吸着量と密接に関連することから、今年の実績3g-U/lは致し方ないところであるが、部分的にみると59年10月には5g-U/lという月間成績も出ており、ある程度見通しが得られたと考えている。
5. 油水分離装置：油水分離装置を経た溶媒抽出廃液をイオン交換溶液離液として循環使用した結果、樹脂の劣化等の問題点は生じなかった。

以上が目標と結果の総括であるが、特に3及び4項について多少の説明を付け加えることにする。図-2はメリーゴーランド方式の運転概念図である。第2イオン交換装置は、A、B、C塔の3塔を有し、1塔当り5m³の樹脂が充填されている。初めにA→B 2塔を直列に使い通液吸着操業を行なう。その間にC塔を再生処理する。A塔がUで飽和した時点でB→C通液に切替えて今後はA塔を再生処理する。同じようにB塔がUで飽和したならC→A通液に切替えB塔を再生処理する。このようなローテーション方式を、いわゆるメリーゴーランド方式と云う。図-3はU吸着量が元液のU濃度と酸濃度により大きく影響されることを示している。6月のA→B通液においては、39kg位のUしか吸着しておらず、その時の元液中のU濃度は、0.202g/l、酸濃度はおよそ50g/l位である。一方、10月のC→A通液では約162kgのUが吸着しており、その際の元液中のU濃度は0.563g/l、酸濃度は36g/lの品位である。即ち、U吸着量を増大させるためには、元液中のU濃度を高く、酸濃度は低くする必要がある。図-4は図-3で示した浸出液を吸着させたA塔、C塔からUを溶離した時の溶離工程を終了させるまでには同量程度の溶離液を必要とすることを表わしている。従って採鉱課が

ら製錬課の溶媒抽出工程へ送液している溶離液のU濃度を高くするためには、(1)通液工程で樹脂に吸着するU量を増大する。(2)吸着量が同じとすれば溶離液量を減少しなければならない。等の方法が考えられる。さて、U吸着量に元液中のU濃度、酸濃度が大きく影響することは前述したが、図-5はU吸着量に対してどのような要因が関連するかを特性要因図として示したものである。イオン交換のU吸着量に影響を与える大きな要因としては、元液組成、樹脂の再生状態、溶液の処理条件、樹脂の能力等が考えられるが、概ね90%以上元液組成の中、主としてU濃度、酸濃度で決定されると思われる。図-6は、U吸着量とU、 SO_4^{2-} 濃度の関係をA.HimsleyのContinuous ion exchange processes in Uranium extractionから引用したものである。これによるとU濃度が低く、酸濃度が高い場合吸着量が減少することは明らかであり、現在の第2イオン交換装置で処理している元液のT- SO_4^{2-} 濃度が40~50g/lであることから考え合せると、59年度実績で20~30g-U/lの吸着量を得たことは良好な成績といってもよい。

一方、溶離液量の減少については、図-7に示すように常温で溶離したよりも50℃の方がベッド数が少なくてすむことから、溶離液量が少なくて済み、かつ溶離液のU濃度も高くなることがわかる。現在は熱交換器を設置し溶離液を50℃まで加温しながら試験操業を継続しており、更に図-8に示すように溶離時、サンプリング装置にブリンクマン吸光度計を接続し、吸光度によってウラン濃度を測定しながら溶離工程のモニタリングを行ない、溶離工程の終点の判定が容易となった。その結果は溶離液の使用量は7~8beds(35~40m³)と少なくなり、溶離液中のウラン濃度上昇に大きな効果をもたらしている。

以上が59年度の経過の概要であるが、60年度も最大吸着量の実現と溶離液U濃度の上昇を目標としており、そのためにはリーチング工程でいかにしてU濃度を上昇させ、かつT- SO_4^{2-} 濃度を上げない、即ちFe、Al等を溶出しないでUだけをいかに効率良く浸出するが大きな課題であろう。イオン交換だけに限定すれば、例えば酸濃度を低くするため元液を水で希釈するか、あるいは中和した後にイオン交換に給液するといった方策も考えられるが、水で希釈するとU濃度も低下し吸着に対して不利になり、また取扱うべき液量が増大しコスト高になる問題が生ずる。中和に関しては、イオン交換吸着廃液を鉱石の浸出で再使用すること及び中和処理することにより発生する塩類をイオン交換塔に給液する前に尹過しなければならない等いろいろな問題を含んでおり早急に実施することは不可能である。このような理由からリーチング工程において、酸分を繰返し使用し硫酸原単位を低減しながら、いかにしてT- SO_4^{2-} 濃度を

上げない工夫をするかが最も大切な課題となろう。

質問1 鉍石のU品位，浸出液のU濃度及び酸濃度から考えて，吸着量 $50g-U/l$ というのは目標が高過ぎるのではないか？

答 $50g-U/l$ 以上を吸着させるための具体的な対策を現在では持ち合せていない。目標が高過ぎるといわれても仕方がない。しかし大きな目標に向かって努力することが最も大切なことだと思う。

質問2 人形峠におけるプロセスのみにこだわるのではなく，世界に広く目を向けた意味での技術開発について，採鉍課では何か考えているか？

答 59年度に採鉍課では第1イオン交換設備に新しく3級アミン系の樹脂を導入した。この樹脂は溶離性能に多少問題はあるが，吸着容量が非常に大きいという特徴を持っている。例えば，砂漠等の不便な場所で操業する場合に，吸着容量が大きいことは種々な面で大変有利になることから，3級アミン系樹脂を使いこなす技術を身に付けることは重要であると考える。このような面から採鉍課においても単に人形峠に通用するプロセスを考えるだけではなく，あらゆる場合での適合性ということを常々考慮しながら試験を実施している。

59年度第2イオン操業目標

1. メリーゴーランド方式での運転
2. 溶離工程の自動化を行う。
3. 浸出液の流下量に合せた効率的な運転を行い、最大吸着量を確認する。
(50g-U/l 以上を目標)
4. 熱交換器を応用し、溶離液ウラン濃度を高める。
(6g-U/l 以上を目標)
5. 溶媒抽出廃液をイオン交換溶離液として循環使用し、問題点の把握及び解決を行う。

図 - 1

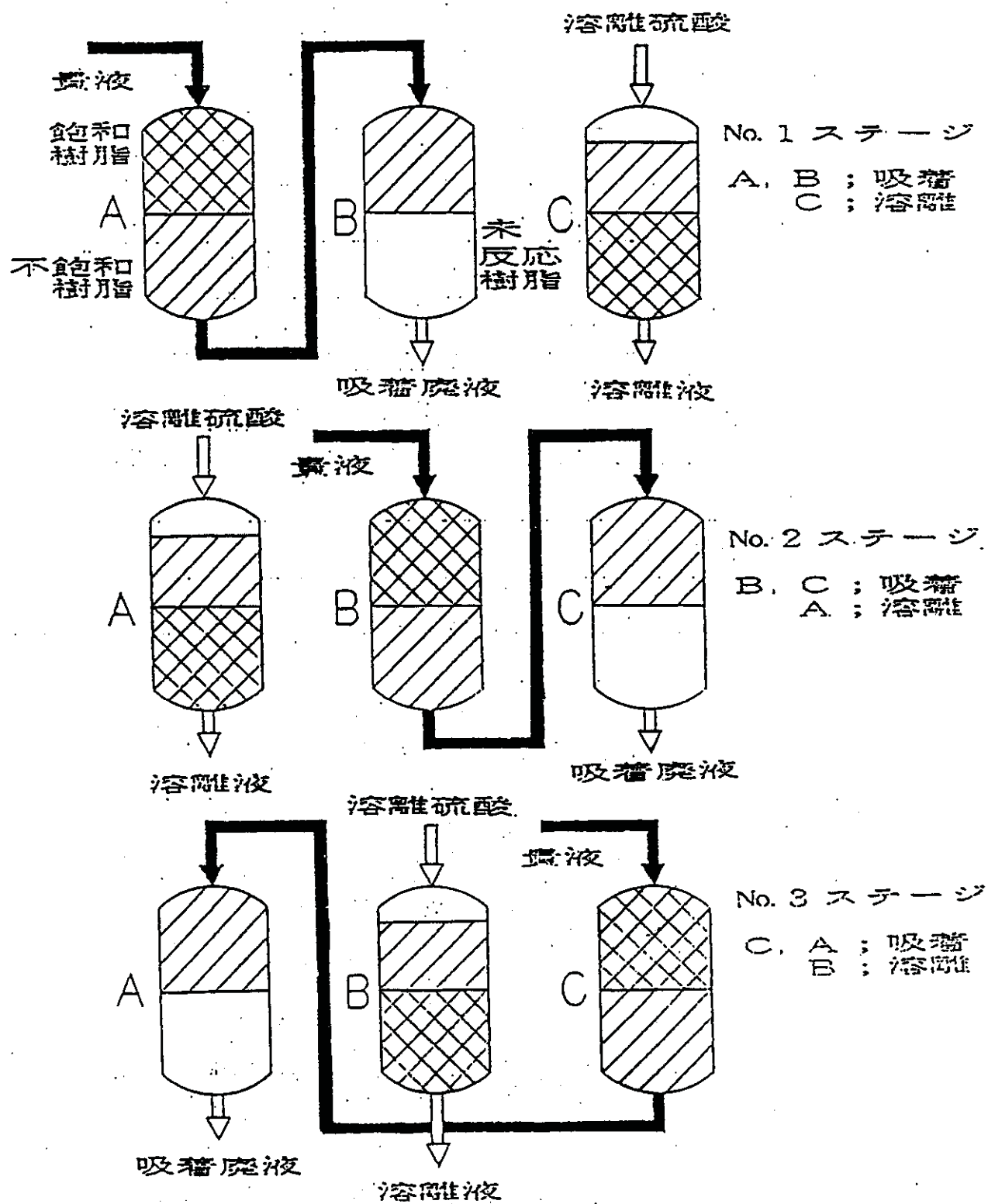


図-2 メリーゴーランド式イオン交換設備運転概念図

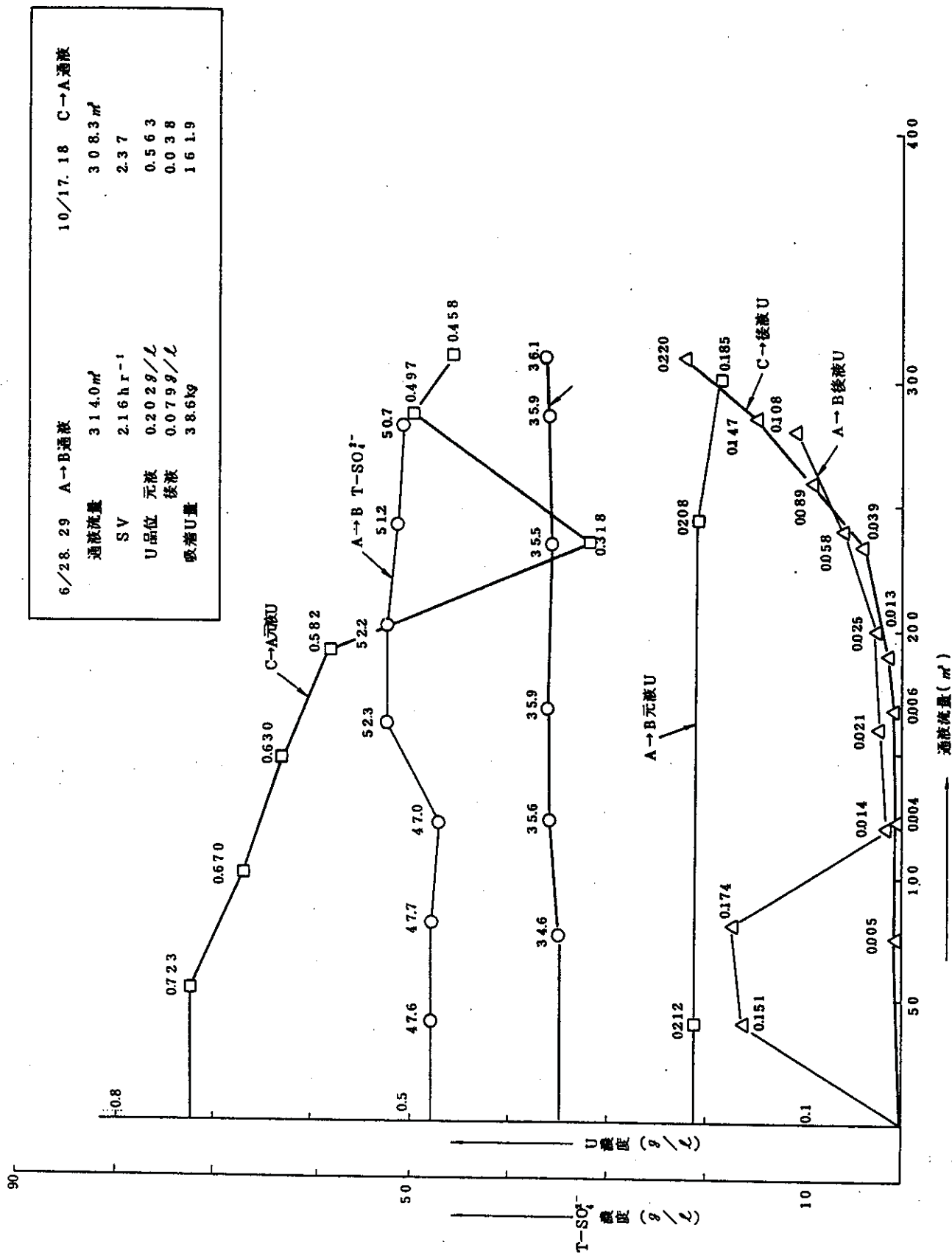


図-3 吸着量とウラン及び硫酸濃度について

A 塔		C 塔
溶 液	4 3.6 m ³	3 3.5 m ³
U 重	5 8.2 6 0 kg	1 8 8.5 8 4 kg

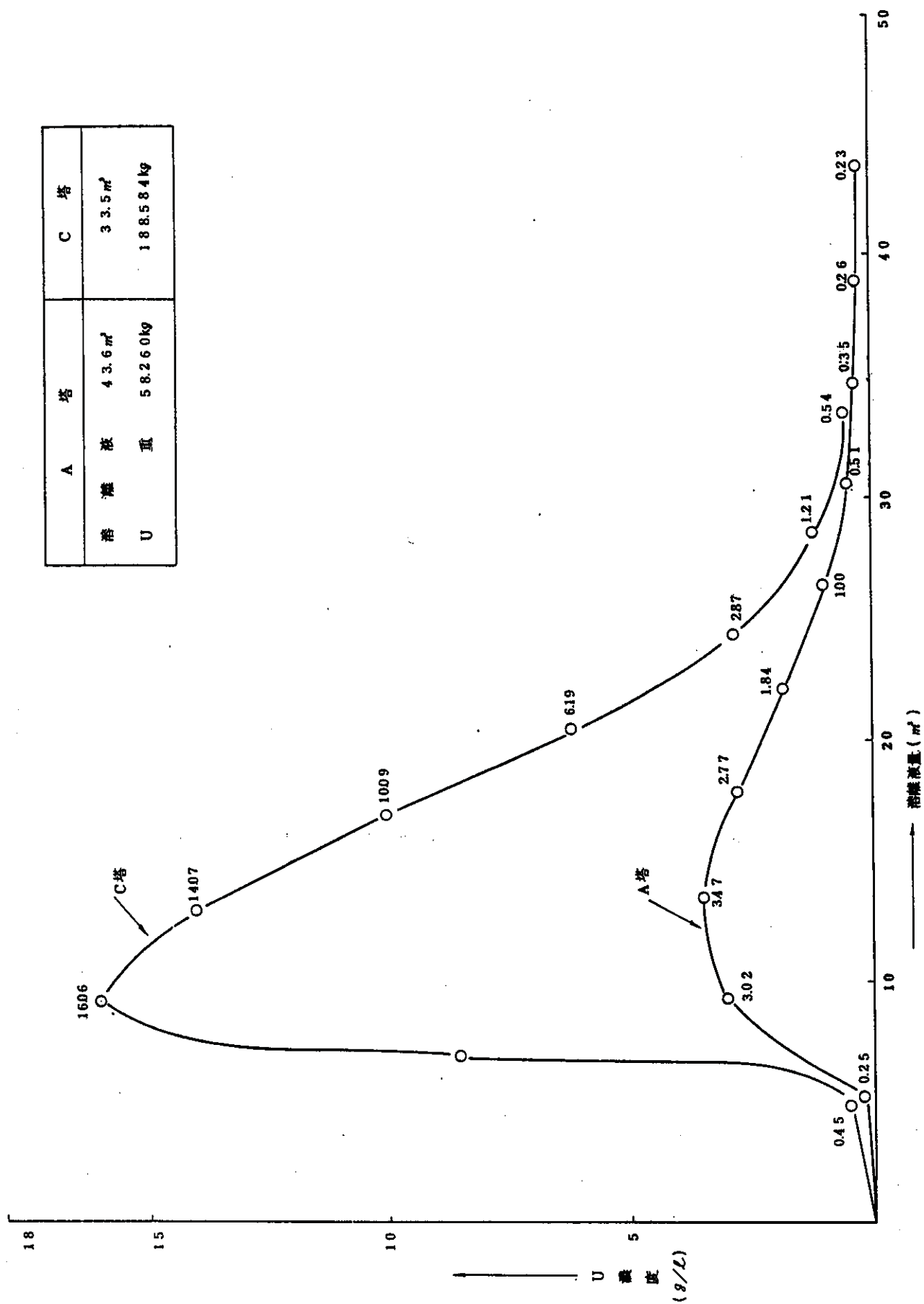


圖 4-4 溶 離 曲 線

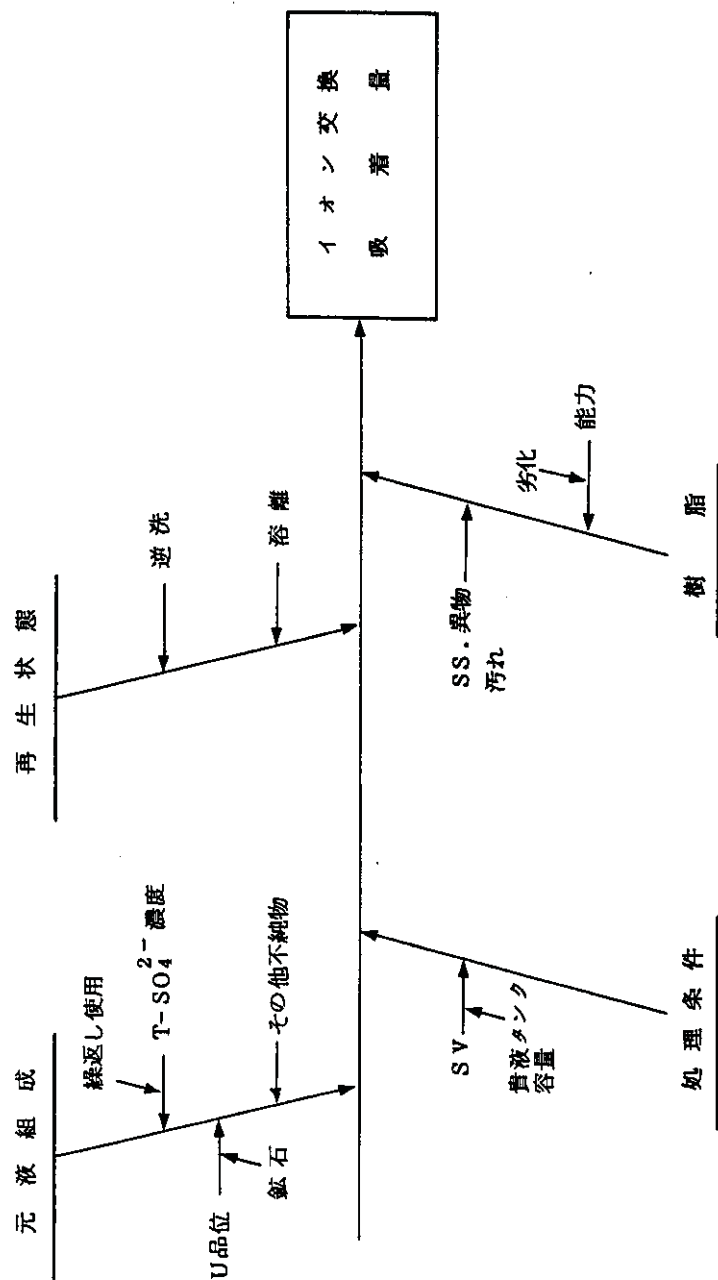


図-5 吸着量に影響を与える要因

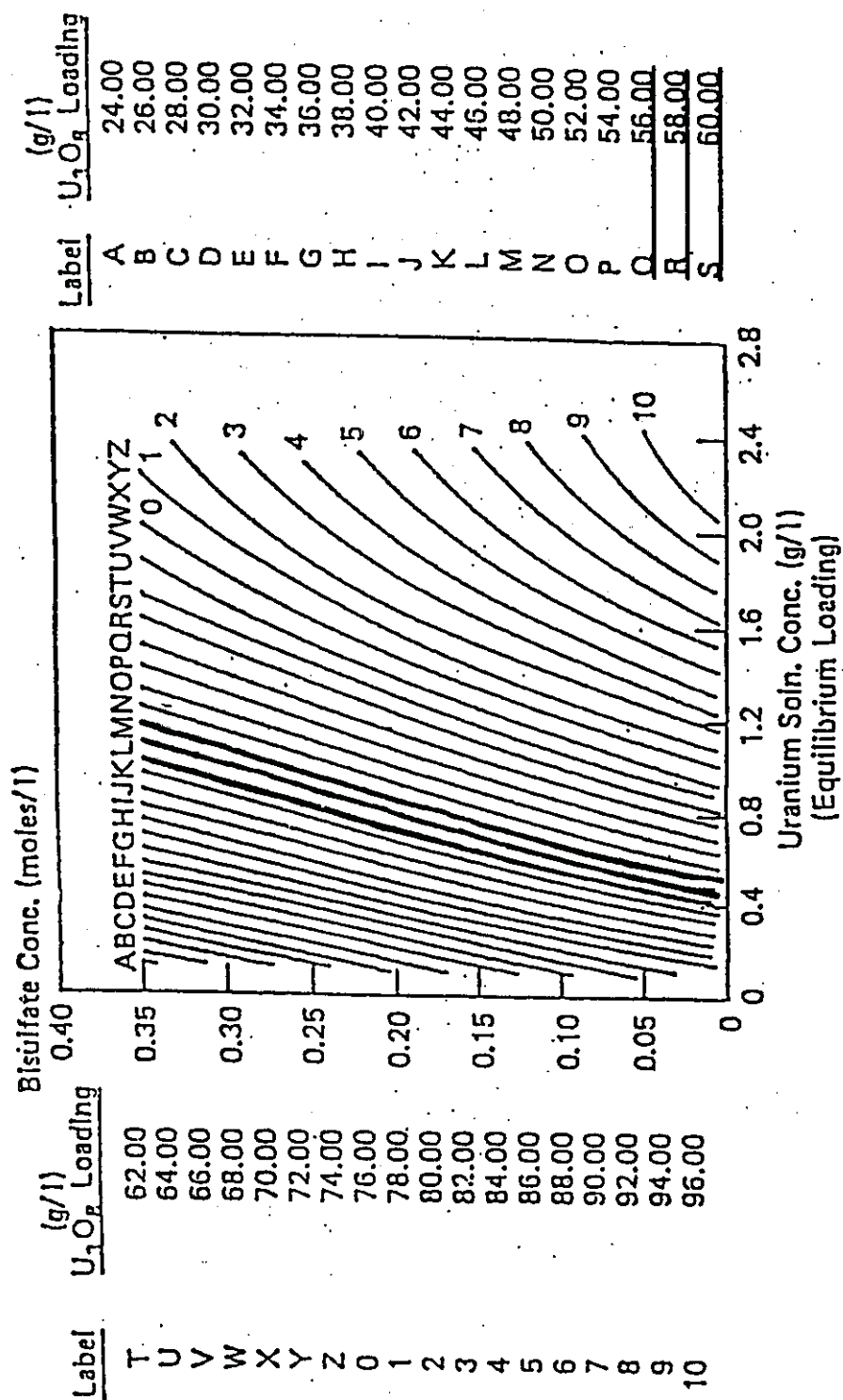


図-6 U吸着量とU, SO₄²⁻濃度の関係

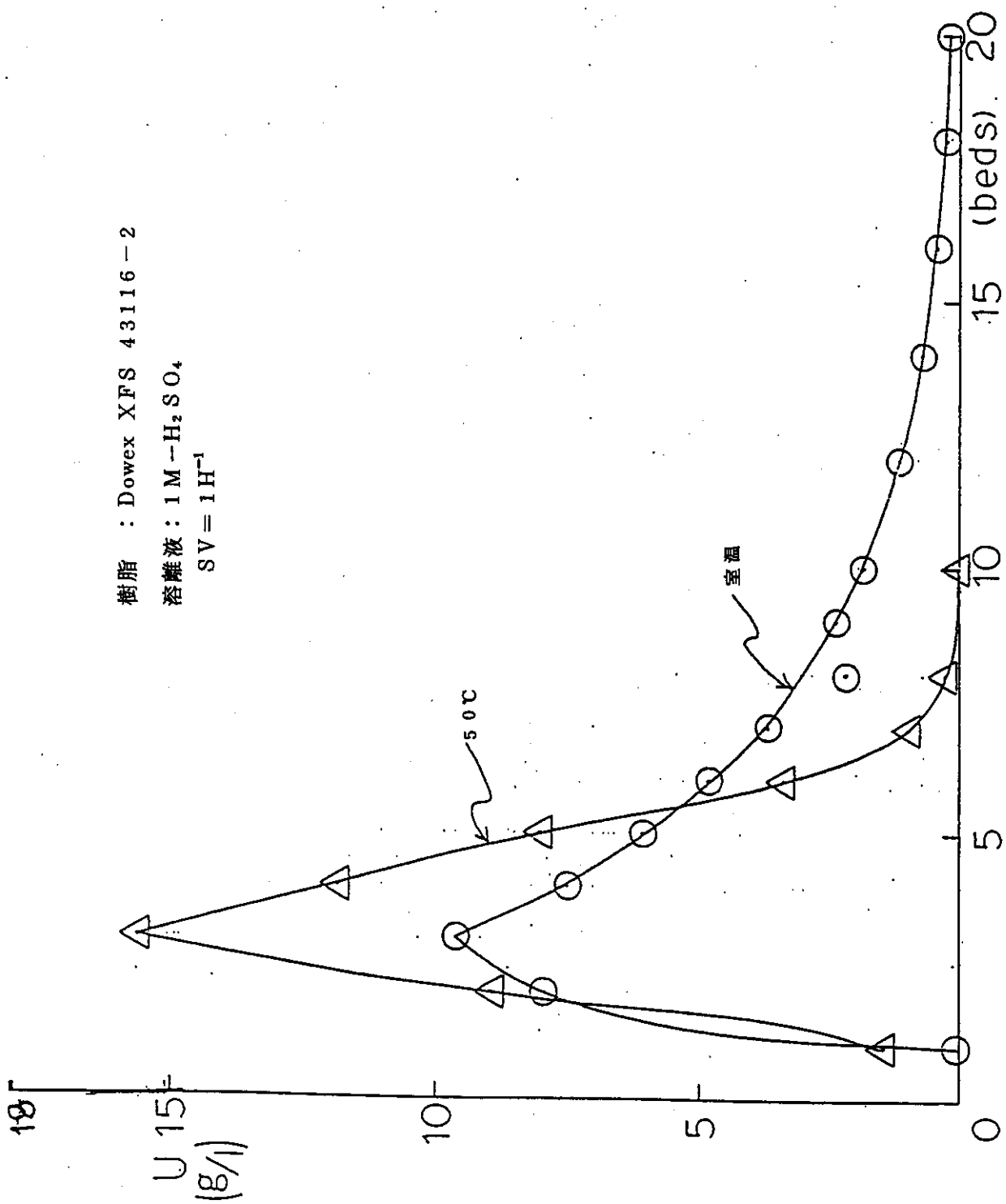


图-7 温溶離試驗

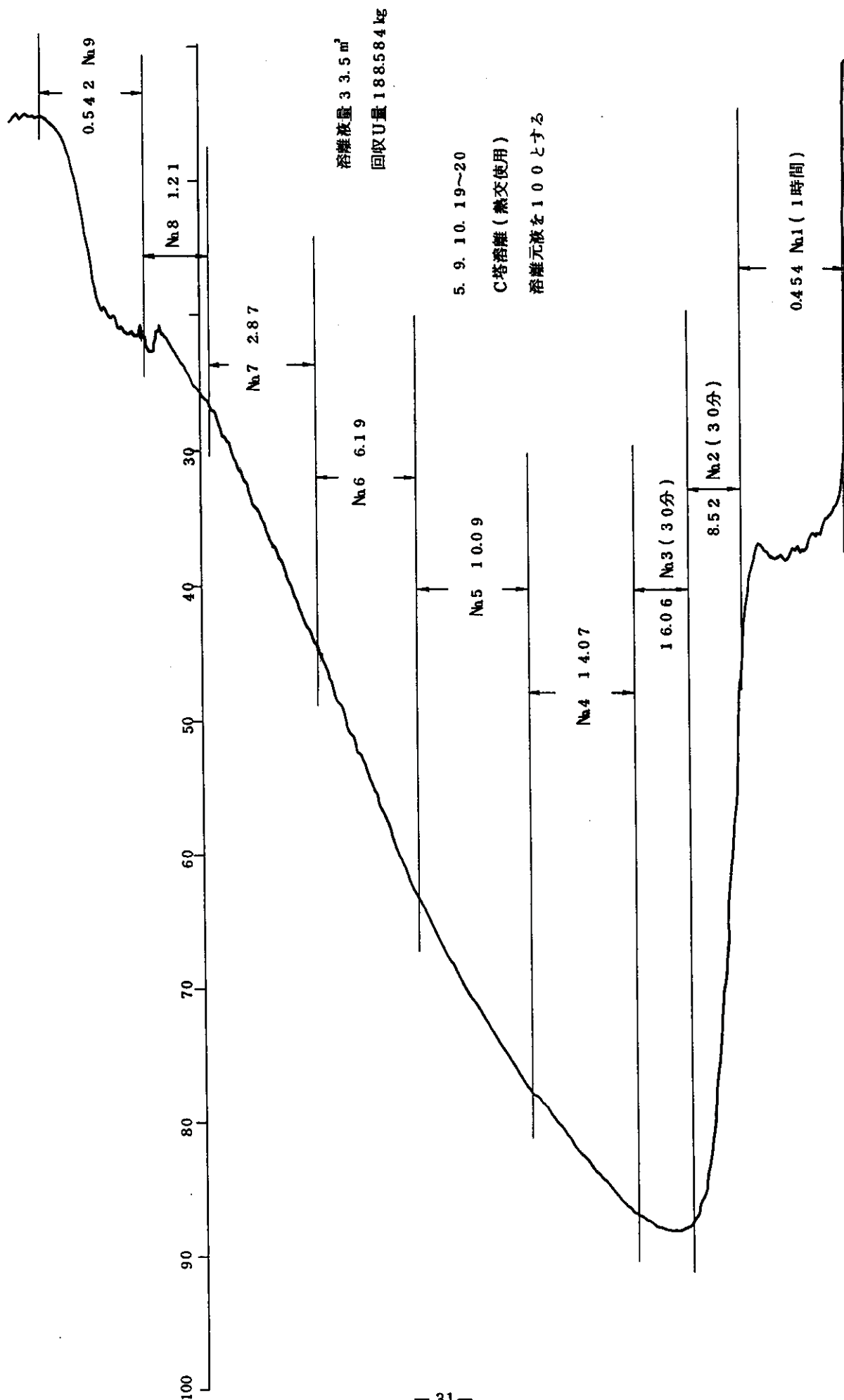


図-8 10/19, 20 C塔溶離時の吸光度測定グラフ

2-(4) 採鉱課の鉱害対策について

報告者 採鉱課

1. はじめに

人形峠事業所におけるウラン採掘は、昭和30年11月12日地調のカーボン調査班による切割面に露出していた強放射性鉱石の発見が端緒となって、昭和32年峠鉱床の坑内掘り採掘が始まり、長壁式採鉱法、両翼式採鉱法、水力採鉱法と種々試験採鉱を重ねた。その間保安面を最重点に作業効率の上昇による原単位の圧縮と採鉱技術開発試験を進め坑内掘りによる採鉱法の試験を行った結果、初期の試験目的を達成した。

その後坑内採掘法では保安上鉱体中に保安鉱柱を残さざるを得ないなど、採掘実収率向上には限界があり、国内の少ないウラン資源を有効に活用するためや露天採掘法の技術修得などのために夜次北部鉱床を対象に昭和52年剝土作業を開始し、昭和54年より露天掘りによるヒーブリーチング研究開発のための出鉱を開始し現在に至っている。

その間、鉱害防止に関しては、旧原燃時代の採鉱坑道および立坑の閉塞、堆積場の法面安定化のため植生工事などを積極的におこなってきた。

最近の資源開発部採鉱課における鉱害防止の取り組みについては、図-1に示す。先ず鉱害防止の対象サイトを4ヶ所に分けた。すなわち

- (1) 露天採掘場によって生ずるであろうと思われる鉱害対策と環境モニタリング。
- (2) ウラン鉱石の希硫酸浸出工程によって生ずる鉱石残渣(捨石)の採掘場跡地埋戻し処分と環境モニタリング、廃液固化。
- (3) 旧坑内採掘に対する鉱害防止対策
- (4) 夜次鉱さい堆積場の環境モニタリング。

などが最近の鉱害防止に対する取り組みの概要であり次に更に具体的に詳述する。

2. 最近の鉱害防止に対する取り組み

(1) 鉱石運搬の際の鉱害防止

これは鉱石の掘削、積込、運搬等による構内、構外の汚染防止のための対策について次のような事項に配慮し構内の鉱石の移動(運搬)を行っている。

(I) 鉱石運搬

露天採掘場での使用機器毎に鉱石と直接接触する部分、即ちブルドーザーとバックホ

ウについては、ブレード、キャタピラ、およびバケット等を事業団で購入し、下請業者に貸し与えて装着を義務づけ、鉱石掘削重機による構内外への汚染拡大のないよう特に配慮している。

次に、鉱石運搬のダンプトラックについては函体内容器（ベッセルカバー）を考案しこれを鉱石運搬時に装着させ使用させている。

またトラックタイヤ、函体よりの鉱石飛散、車体付着鉱などによる道路上の鉱石による汚染を考慮し、洗車プール、洗車機、および道路面清掃のためのスプリンクラーの取付等、二重三重に汚染拡散防止をはかっている。それらの排水は、夜次鉱さいダムに送水し排水処理を行なったのち公共河川に放流している。

(II) 地下水への影響防止

(a) 露天採掘工事をおこなった結果、周辺地下水が汚染することを防止するために、露天採掘場降雨水が地下へ浸透することによって主として生じた地下水を、旧坑道内に布設した集水パイプにより集水し、夜次鉱さいダムに送水して処理している。

(b) 露天採掘場周辺地下水の監視体制は、露天採掘場周辺に設置した10本のモニタリング井戸によっておこなっている。測定はU、およびRa濃度、地下水位、PH、水温および電導度である。

図-2は、夜次露天採掘場周辺モニタリング井戸の調査地点配置図を示す。

図-3は、モニタリング井戸設置方法を示している。

図-4は、No1孔内水理状況の例で。調査モニタリング井戸掘削の水理状況などを示し、それは地下の岩石の亀裂状態、地下水位の移動を知るのに利用している。次に現在までの探鉱ボーリング、モニタリング井戸の地下水のデータをもとに露天周辺地下水位コンターマップを作成した。図-5に示す。これによると採掘場北西部より地下水が流入し、北西部以外の露天採掘場周辺から流下していることがわかる。地形コンターと地下水位コンターがほぼ平行していることから周辺の地質は比較的均一性のもので地下水位がある一定下であることがこれからもわかる。

図-6、図-7はモニタリング井戸からの水中のラジウム値で、横軸に孔別、月別をとり、縦軸にRaの分析値を示す。

この図では、Ra値の変動が採掘による影響か、自然界で生じる変動かどうかよく判断出来ない。さらに地下水位の連続自記記録計で測定をして詳しい地下水の挙動解析を

する予定である。

尚、モニタリング井戸によって現在までにわかったことは、次の様である。

1. 採掘場の地下岩盤の透水係数は $10^{-4} \sim 10^{-8} \text{ cm/sec}$ であり、比較的小さい。
2. 地下水のコンターマップから、採掘場の地下水は北西部尾根筋より供給され、採掘場の周囲に流下することがわかる。
3. 採掘場周辺の地下水位は、新第三紀礫岩～風化花崗岩中にある。
4. 採掘場周辺の地下水の流動速度を^(註)ダルシー則から求めた。図-8-1, 図-8-2に示す。
^(註)ダルシーの法則 (H. Darcy, フランス, 1856年) が実験的に見出したもので $V = Q/A = KI$, ここに Q は地下水流に直角な断面積 A を通って流れる流量, I は地下水の勾配 (動水勾配である)。

(Ⅲ) 地表水の監視

(a) 露天採掘場地表水 (降雨水) による河川への汚染防止

露天採掘場の地表水を沈殿池に導水し、泥砂を沈殿させて除去した後、夜次鉍さいダムに送水し、排水処理を行っている。

- #### (b) 露天周辺沢水については定期的に採水し Ra^{226} 値を分析している。図-9は夜次露天採掘場周辺沢水の採水位置を示している。 Ra^{226} 。なお、岡山県の河川水中 Ra^{226} 管理目標値は 1 pci/l である。

(Ⅳ) 表土堆積場 (一次剝土堆積場) における鉍害防止

(a) 堆積場降雨水による

堆積場に植生を行い、泥土の流出、斜面安定に役立てた。堆積場土かん止堤下流にコンクリート重力ダムを設置し、泥砂の沈降を行ったのち清澄水の放流を行い、放流点で水質監視計による PH, 濁度の監視を行っている。

(b) 堆積土によるすべり事故防止

堆積土中へパイプ歪計, 孔内傾斜計を埋設し堆積土の水平変位量の動態観測を行っている。測定をはじめてから現在まで堆積土の変位はなく安定していることを確認している。(図-10参照)。

2. 浸出工程での鉍害防止

(I) 残査の鉍害防止

残査は、中和処理後露天採掘跡地へ埋戻しを行う。この際ラドンガス抑制、表土からのラジウム溶出を防ぐ目的で、採掘跡地へ残査を埋戻し、その上に約地土2.6mの覆土を行い、さらにマサ土を客土したのち芝吹付を行い降雨水の地下浸透を極力押え地下の放射性物質の水分による移動を防いでいる。

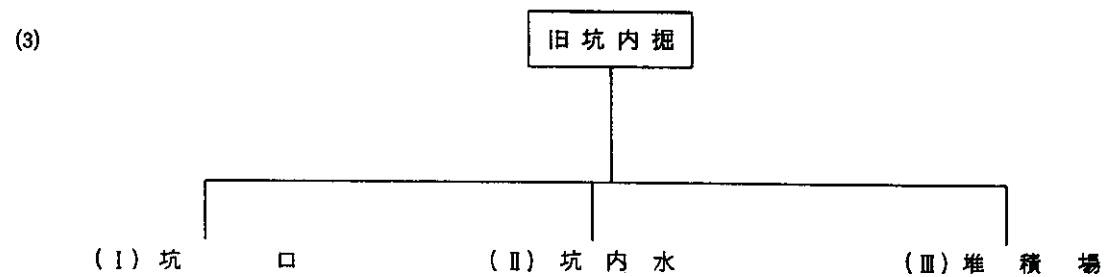
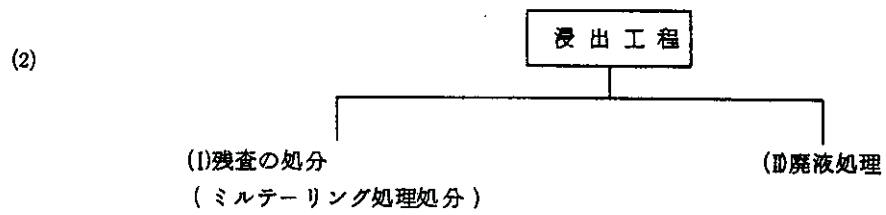
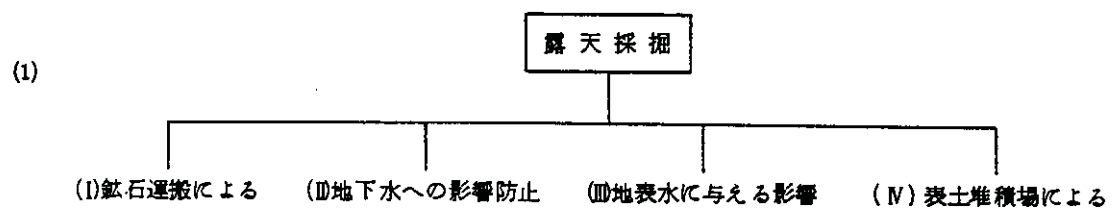
(Ⅲ) 浸出より出る中和廃液の処分

鉍石の硫酸浸出液、および残査水洗液をイオン交換することによって出る廃液を消石灰で中和し、中和沈殿物（硫酸カルシウム、水酸化物）と廃液とに固液分離し、廃液については下流の処理場にて処理して公共河川に放流している。

中和沈殿物についてはセメント固化処理技術の実用化に関する試験研究を昭和56年より実施し、最終処分の指針を得ている。

まとめ

人形峠事業所採鉍課における鉍害防止に対する取り組みを概略説明したが、鉍害防止に対しては、常にその時の最良の方法と最高の技術で対処すべきものであり、将来に悔を残さないため、更に強力に取り組んでいかなければならない。また、ヒープリーチング、粗製錬から出る残査、廃液の安全処理、処分のための試験研究は、低廃棄物処分として、地層処分に継げるべき試験テーマとして今後も継続してゆかなければならない。



最近の鉱害防止に対する取り組み

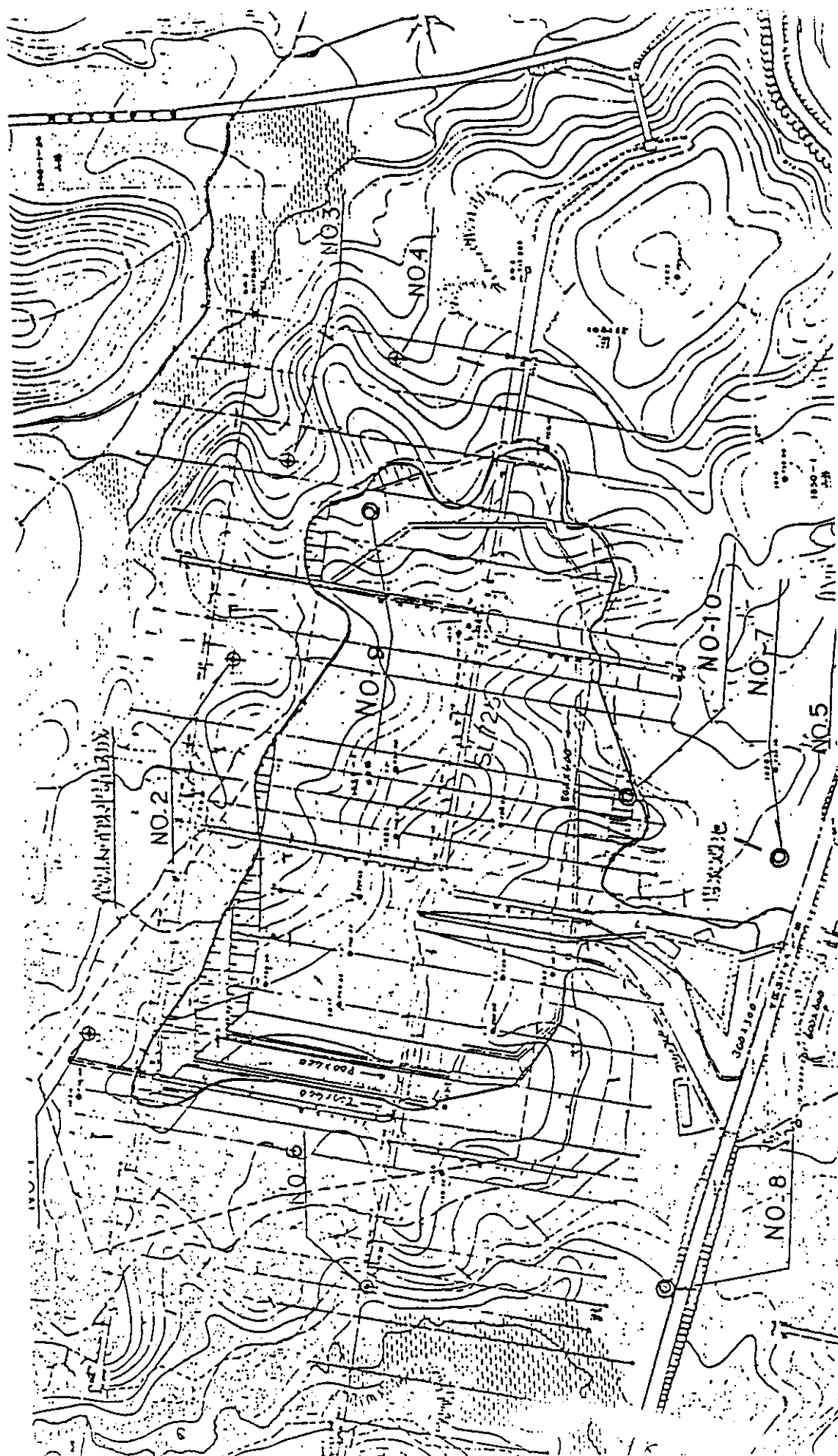


图-2 调查地点配置图

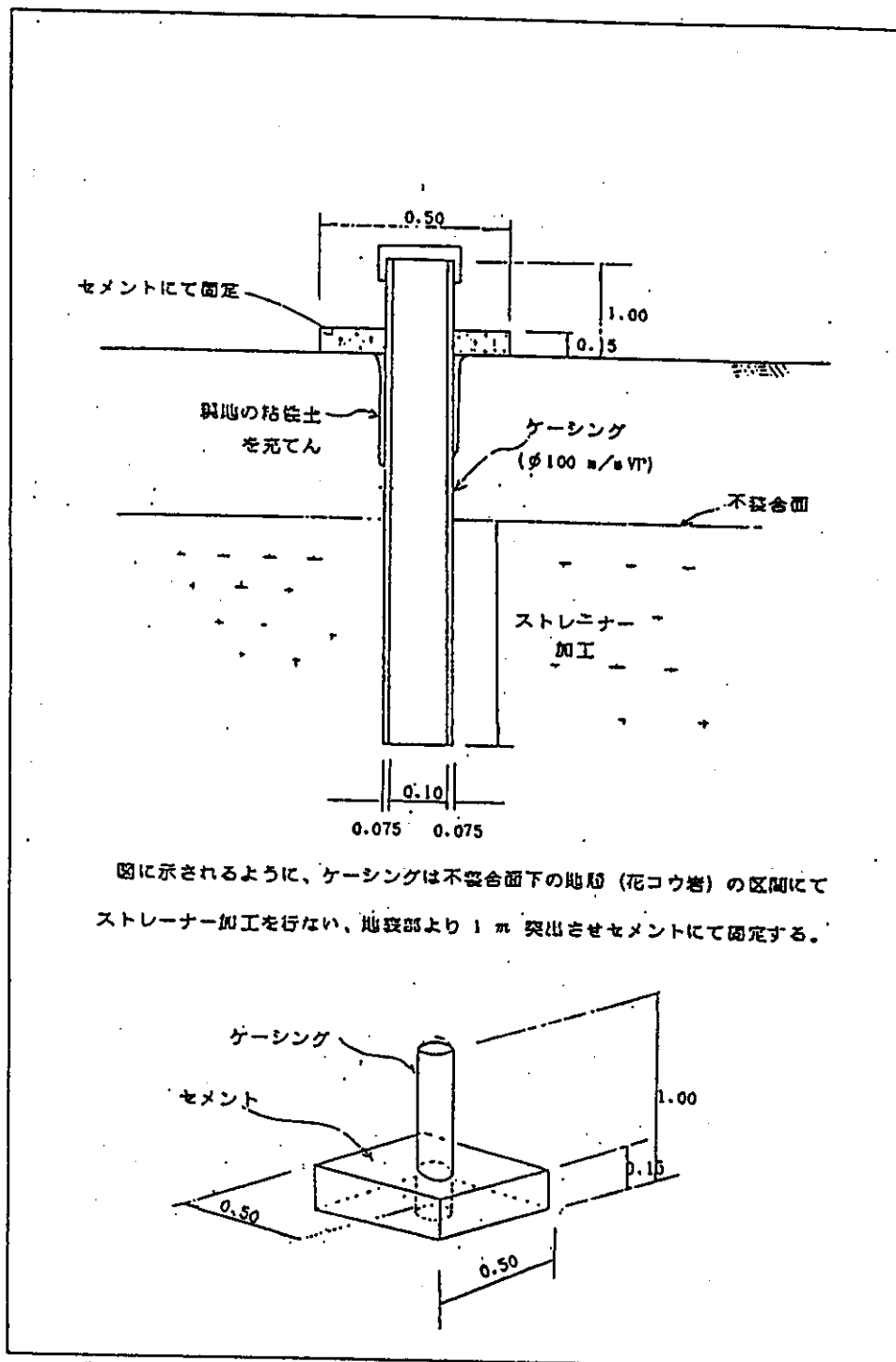
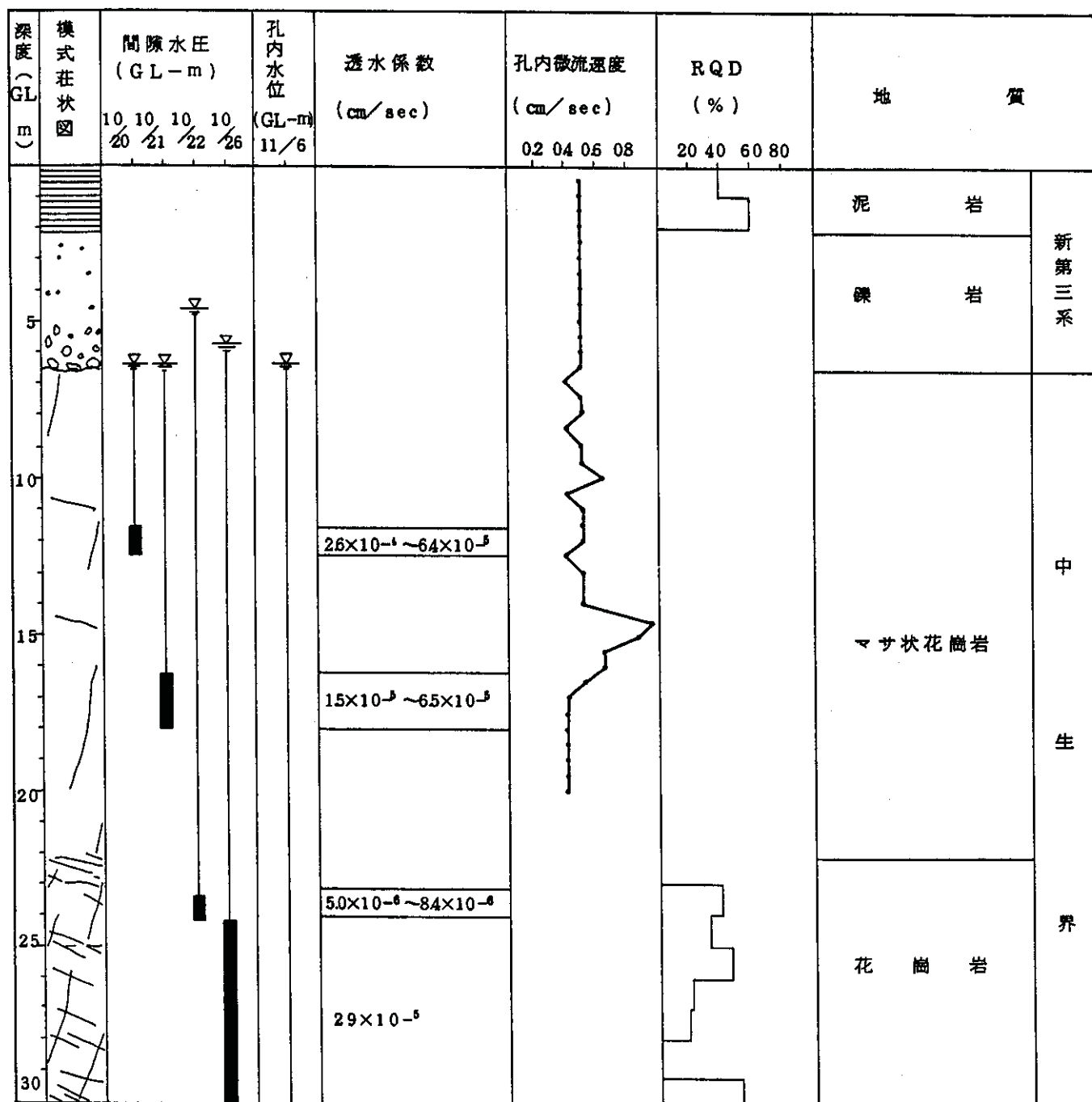
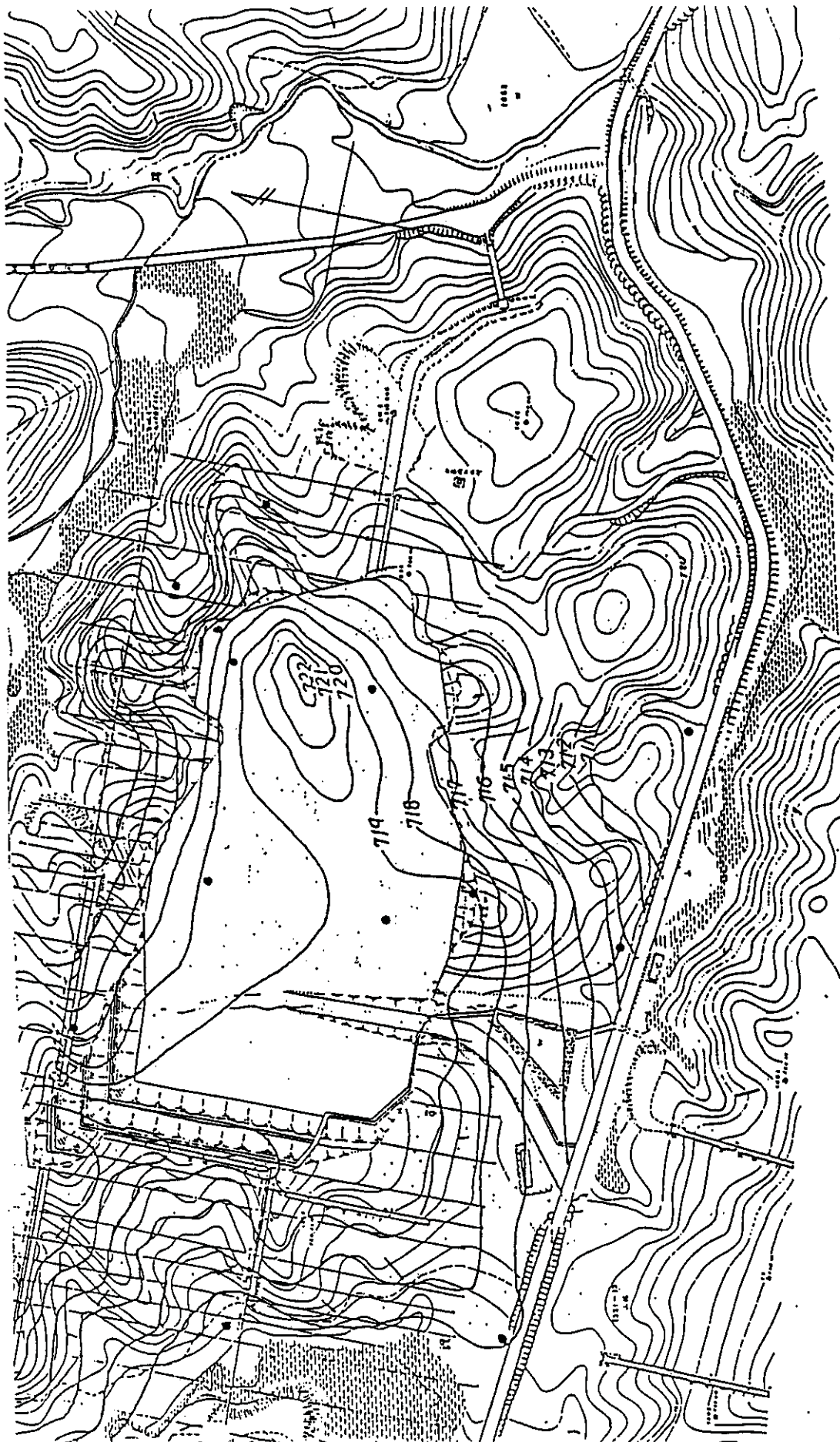


図-3 モニタリング井戸設置方法



鉗 ■ 測定区間

図-4 孔内水理状況図 (No. 1)



1:2,000

図-5 露天周辺地下水位コンターマップ

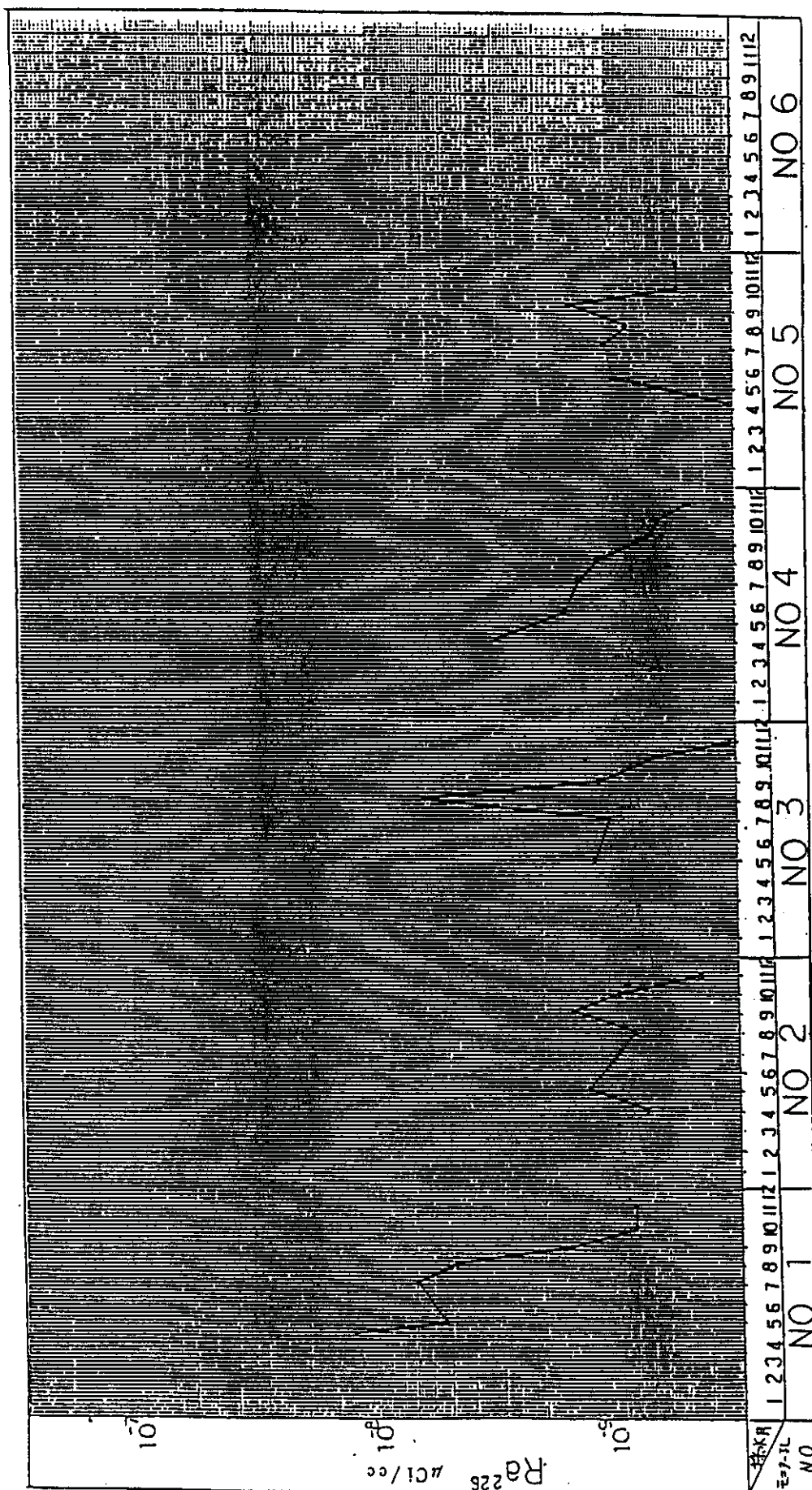


図-6 S59モニタリング孔 Ra 測定値図

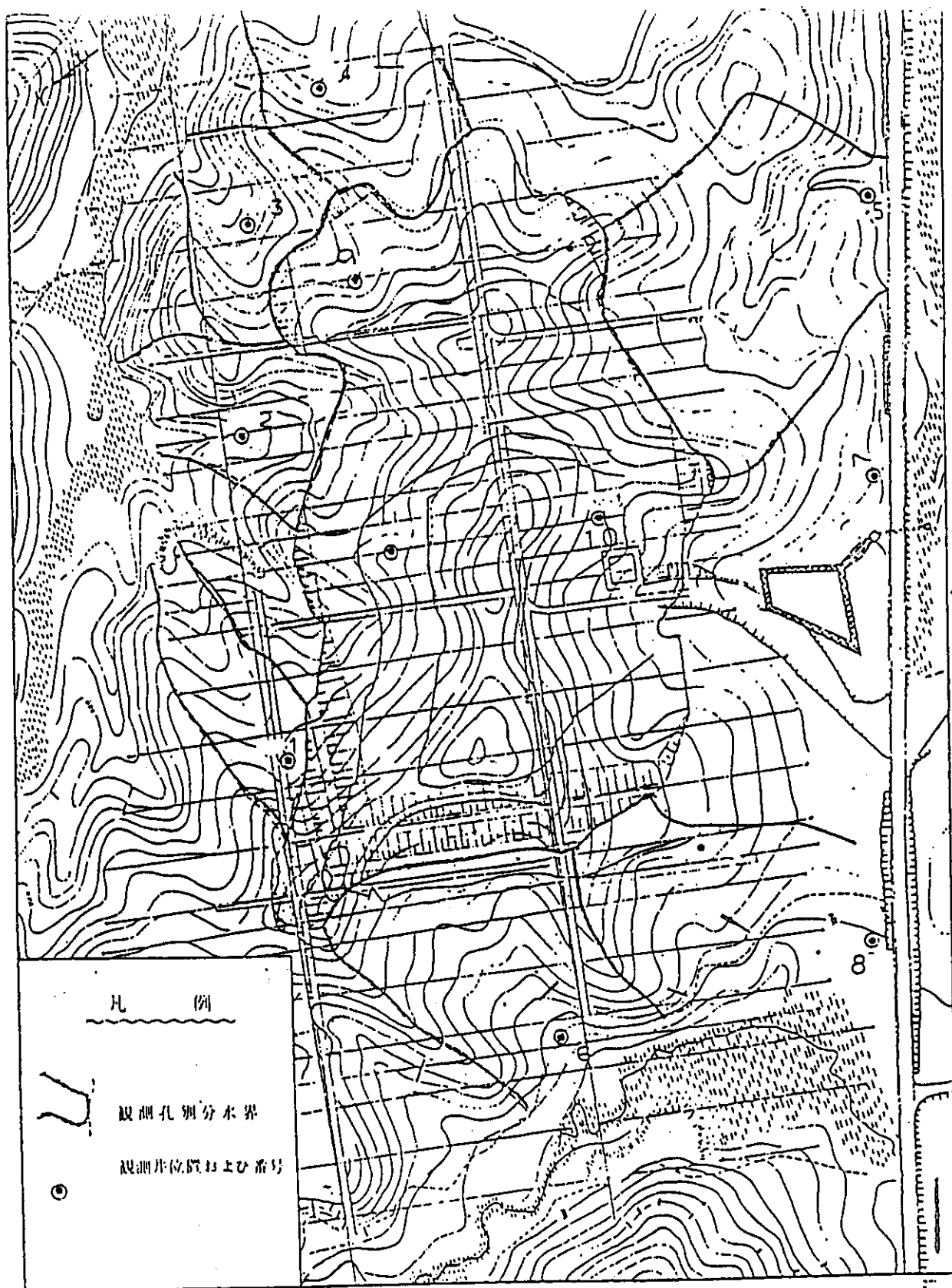


図-8 観測孔別分水界図(縮尺 1/2,000)



觀測井 No. 1

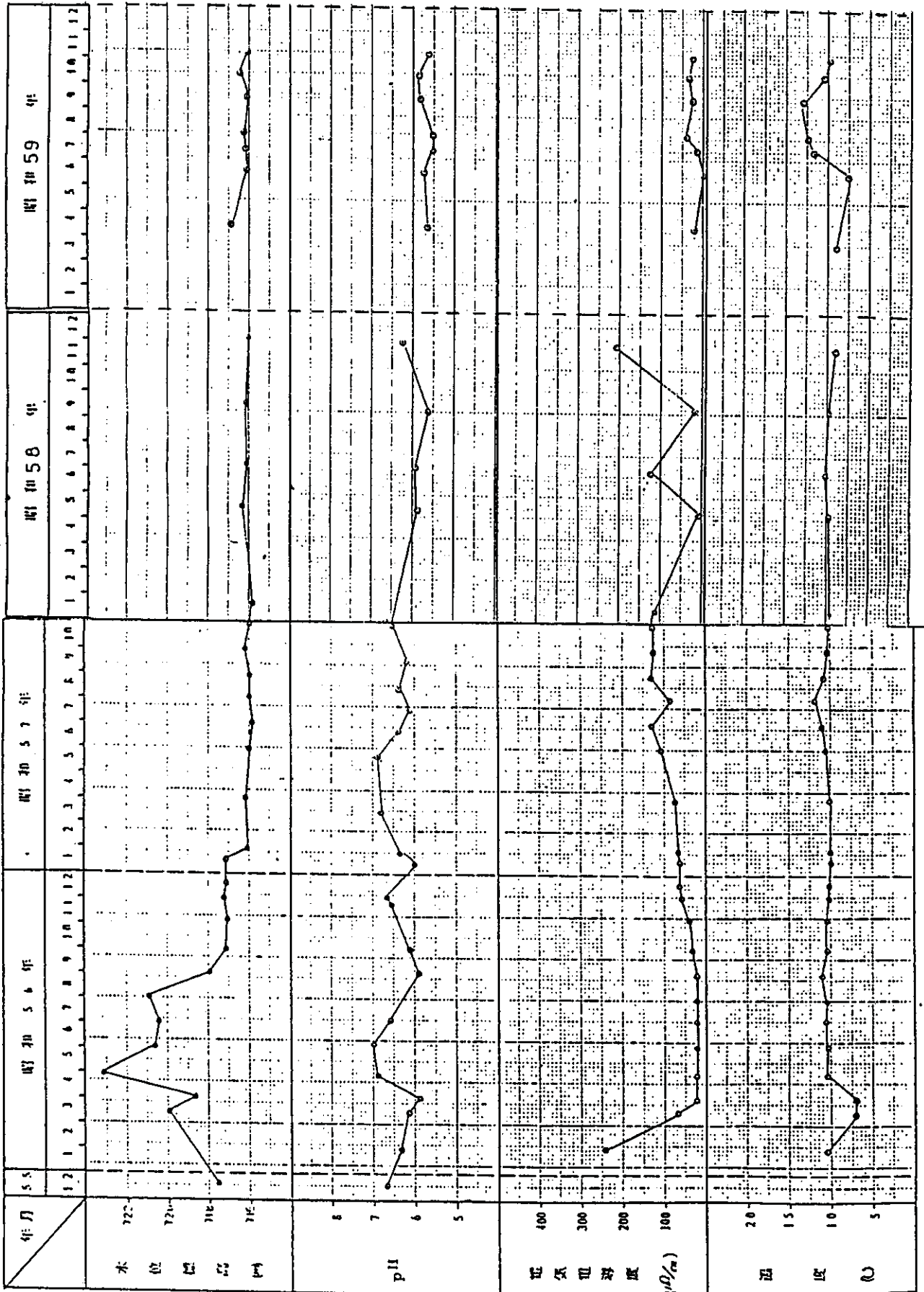
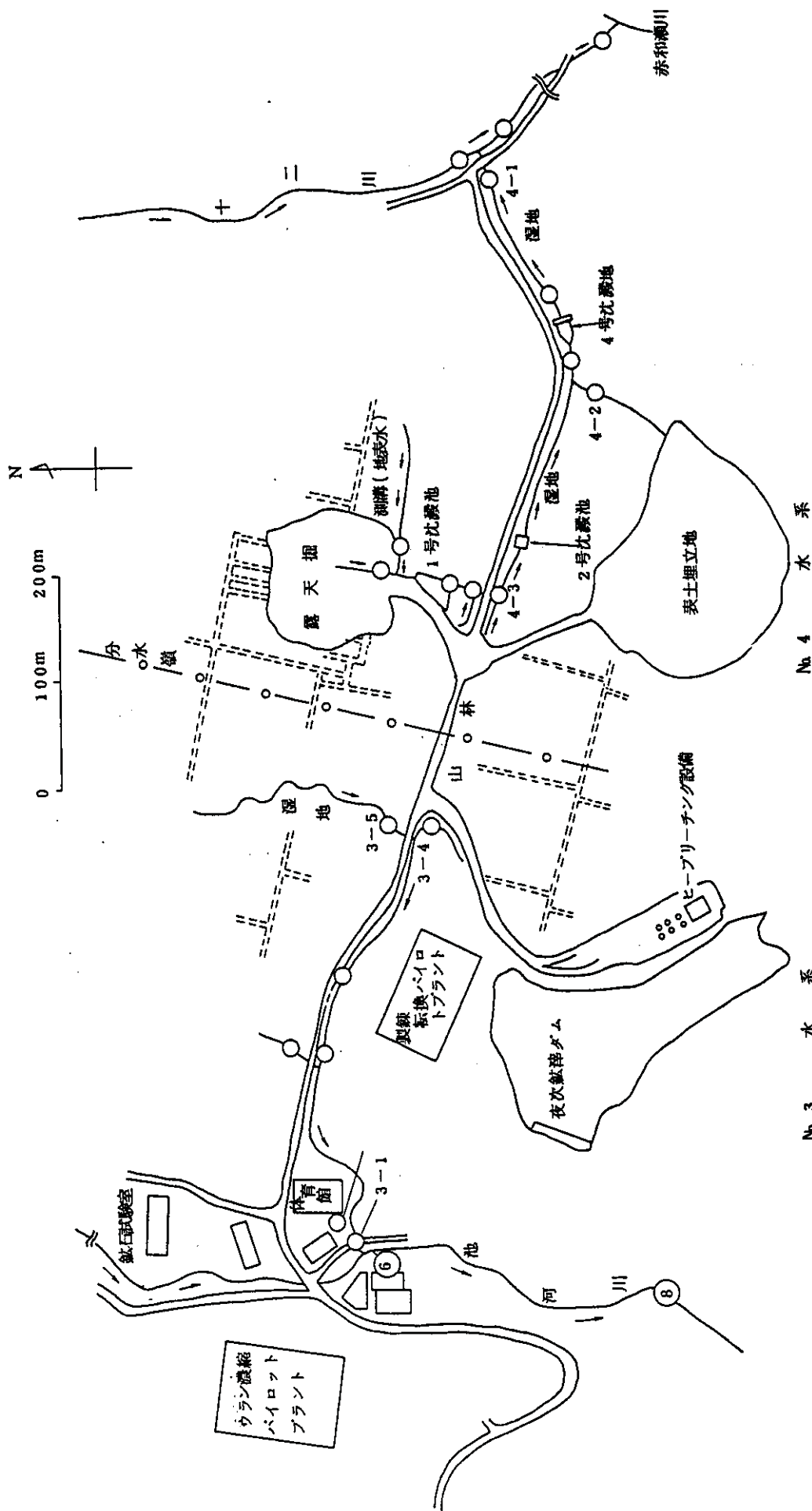


圖 8-2 地下水觀測結果一覽圖



No 3 水系		No 4 水系	
試料No	採水地点	試料No	採水地点
3-1	定期採水地点(下)	4-1	定期採水地点(敷地)
3-4	湧水	4-3	湧水(上流)
3-5	湧水	4-2	湧水(上流)

図-9 No 3, 4 水系試料採水地点図

3. 鉍 石 試 験 室

3-1(1) 鉍石試験室業務概要

報告者 鉍石試験室 河 本 薫 明

昭和59年度鉍石試験室で実施した業務概要について報告する。

海外探鉍及び開発に関する鉍物試験、マルガロック鉍石についての基礎試験、オール硫酸法の開発及び製錬プロセス試験設備については、第4期工事を完了した。また、低濃度ウラン回収技術開発は、主としてラジウム除去に関する基礎試験を行った。その他ダム廃水からのウラン回収設備の試運転を行った。

1. 鉍物試験

カナダ、オーストラリア、ニジェール及び中国産試料などの鉍物試験を行い、これらの試験結果については、各担当者及び関係者に報告し海外探鉍活動に反映させるなど探査、探鉍への支援を行った。また、その他事業所各施設からの試験に伴う固体試料についての試験も実施した。それら59年度の処理件数は約374件である。

2. 鉍石処理試験

(1) 製錬基礎試験

オーストラリア・マルガロック鉍石の製錬法を決定するために、前年度より引続き浸出、固液分離及び溶媒抽出試験などの基礎試験を行い、これらの結果を基に予備F・Sの報告書を作成した。また、製錬プロセス試験設備は第4期工事（イオン交換工程）を終了し模擬ウラン溶液による溶媒抽出及びイオン交換工程の試運転を行った。

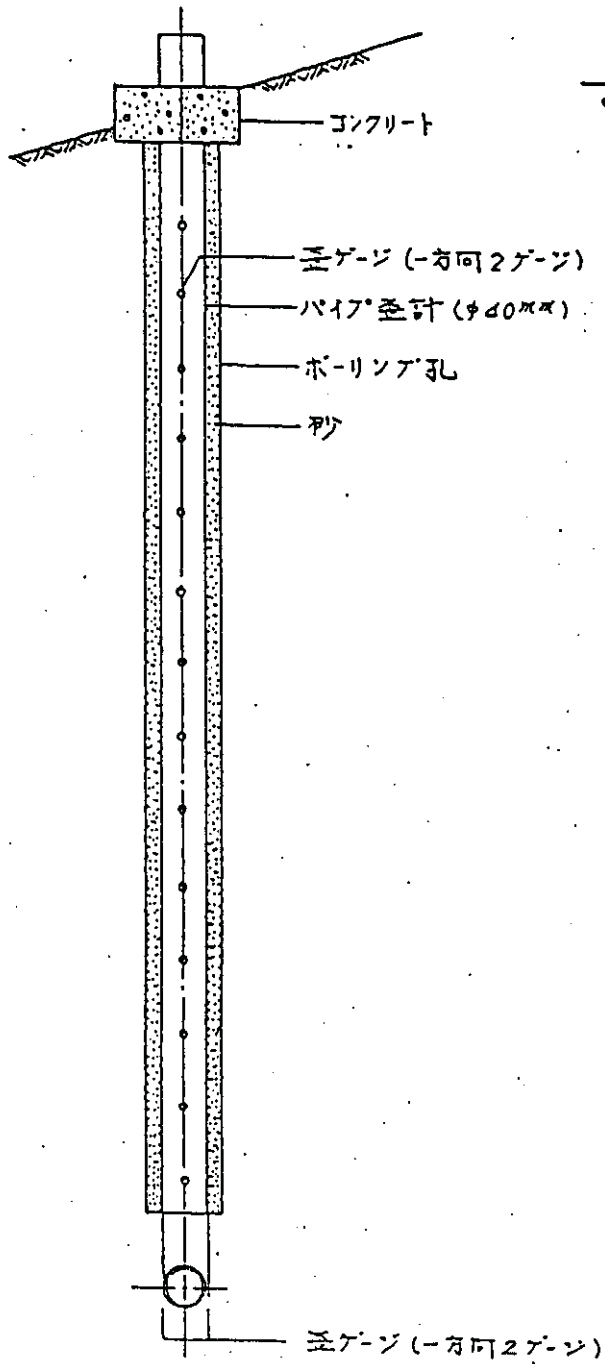
(2) オール硫酸法の開発

前年度に引続き硫酸ウラナス晶析試験、溶媒抽出試験及び電解還元基礎研究を行った。また、改良オール硫酸法開発基礎試験も行った。

3. 低濃度ウラン回収試験

(1) ウラン回収設備

パイプ歪計設置概念図



ケーシングの設置状況

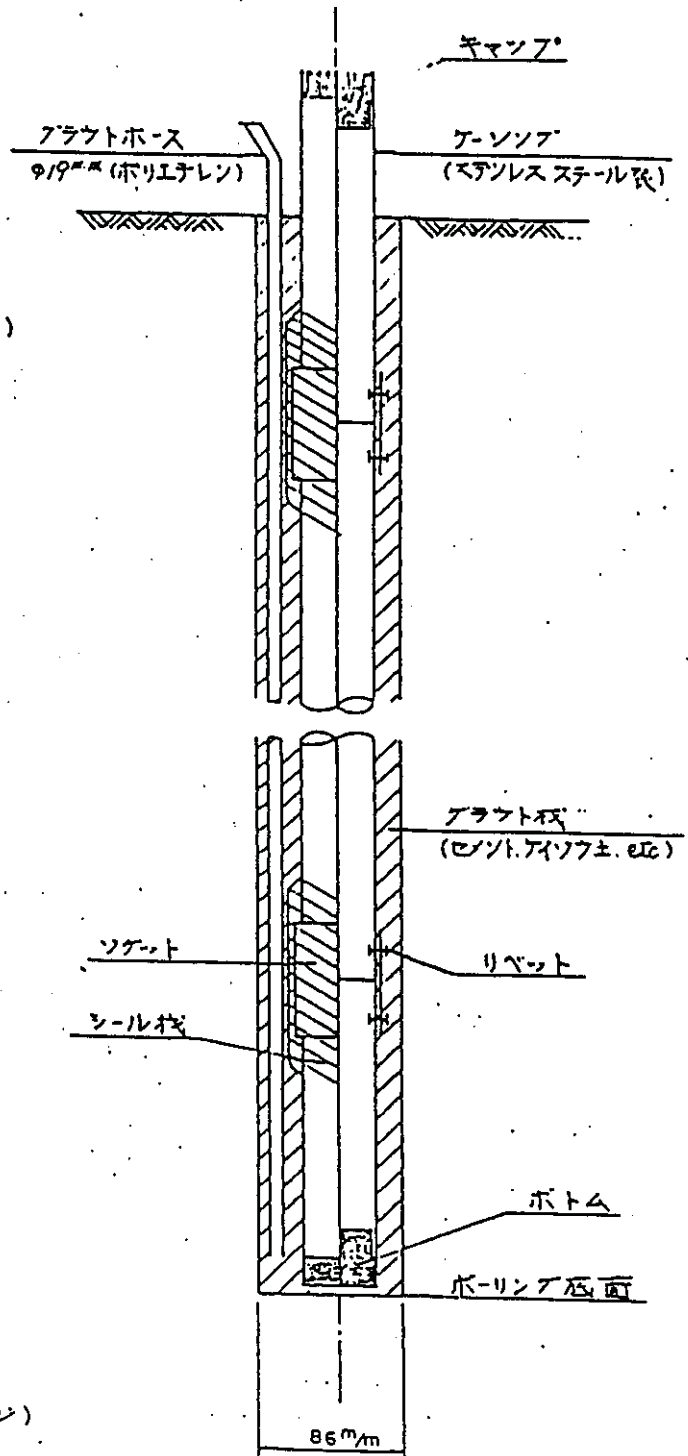


図-10 パイプ歪計概念図 孔内傾斜計設置概念図

4月下旬より試運転を再開し約63,000m³(ウラン吸着予想量約2.9kg/U)を処理し、運転状況は順調であった。また、溶離工程の試験も行った。

(2) 回収剤開発

ダム廃水中のラジウム除去法確立のため、各種の吸着剤開発及び吸脱着試験を行った。今年度は、メタル分散型フェノールホルマリン系、アルキルリン酸系、人工合成雲母及び市販樹脂について各種試験を行った。

年度当初、各グループ毎に試験計画を設定し、その試験項目及び内容については、ほぼ100%の目標を達成した。

3-② 鉱物試験

報告者 鉱石試験室

I. は じ め に

昭和59年度の鉱物試験の成果を報告する。鉱物試験の目的・内容などは昨年の成果報告会ですでに説明した。今回はその続きとして、(1)X線マイクロアナライザ(EPMA: electron probe microanalyser)とその関連機器を簡単に説明したい。我々の使用機器のなかでも、EPMAはミクロン(μm)オーダーの情報を提供してくれる、鉱物試験にとって欠くことのできない装置である。また、さまざまな分析機器の中でも、EPMAを含む表面物理分析機器は、近年、急速の進歩をとげている。

次に、(2)59年度の業務内容の概略を述べ、(3)最重点目標として行なったカナダ・テクルシリレイク地域での“変質ハロー試験”の成果を報告する。

II. EPMA とその他の表面分析機器

1. X線マイクロアナライザ(EPMA)

EPMAは真空下で15～25 KeVの電子線を固体表面に照射し、発生する特性X線の波長とその強度から、定性・定量分析を主として行なう装置である。しかし、得られる情報源はX線だけではない。そのことを図1を用いて説明する。

入射電子が固体表面に当たると、その一部の電子は持っているエネルギーをあまり失わずに、後方散乱電子(反射電子とも言う)となって試料からはじき出されてしまう。その強度は平均原子番号に比例するので、おおまかな組成を知るのに利用できる。もし試料が十分に薄いならば、一部の電子は透過電子として試料を通り抜ける。これら以外の残りの電子は吸収電子となって試料に吸収される。

入射電子によって試料からはじき出される電子——2次電子——もある。これは低エネルギーのため試料表面近くで発生したものしか検出されないで、その量は表面形態の情報になる。さらに、X線や電子線のほかに、カソードルミネッセンスと呼ばれる、可視光線あるいは赤外線も検出できる。(これは無機物中の不純物の分析に利用されることがある。)

入射電子の持つエネルギーの99%以上は熱に変換され、極少量がX線——連続X線と特性X線の発生に利用され、後者の波長から含有元素が、その強度から含有量が、それぞれ求められる。

すなわち、EPMAは

- (a) 定性・定量分析に使う特性X線
- (b) 後方散乱電子・透過電子・吸収電子・2次電子といった各種の電子線
- (c) 可視光線や赤外線であるカソードルミネッセンス（これは無機物中の不純物の分析に利用されることがある）

が測定できる；その他

- (d) 元素の結合状態の解析——状態分析——に応用できるX線のピークシフト（ケミカルシフトとも言う）

さらに、付属装置もつけると、

- (e) 結晶の方位決定に使える、電子チャネルリングパターン、そして
- (f) 格子定数の精密測定に使えるコッセル像

も測定できる。いわば、EPMAは多目的・総合分析機器と言ってよい。

EPMAの分析領域は数 μm （深さも数 μm ）で、試料中の分析位置は光学顕微鏡で直接観察できる。また、非破壊分析でもある。

EPMAの最も大きな特徴は汎用性のある補正法が確立していることであり、0.1%以上含まれていれば、F～U間のX全元素が、有効数字2～3桁で定量分析できる。（B, C, N, Oも検出できるが、感度は良くない。）

この汎用性のある定量法は、あとで述べるさまざまな表面分析法にない点であり、上記の多目的・総合性とあいまってEPMAが実用上もっとも重要かつ普及している理由となっている。

2. 透過型電子顕微鏡（TEM: transmitted electron microscope）又は略して電子顕微鏡（EM）

上に述べた透過電子の専用観察装置のことであり、透過力を高めるために、通常100～200 KeVの高電圧を使用する。得られる像の分解能は1～数 $\text{\AA}$ ，最大倍率は50万倍程度である。ほとんどの装置は電子線回析もできるようになっている。さらに一部の装置はエネルギー分

散型のX線分光器を備えており、分析もできるようになっている。

3. 走査電子顕微鏡 (SEM: scanning electron microscope)

2次電子専用観察装置のことである。これはTEMと異なり試料表面を電子線が2次元的に走査することから命名されている。加速電圧は2次電子を発生させるだけなので、TEMのように高くする必要はなく、EPMAと同じく15~25 KeVである。分解能は数十Å、最大倍率は10万~30万倍が多い。

EPMA, TEMおよびSEMの常用真空度は $10^{-5} \sim 10^{-6}$ Torrである。

さらに、いくつかの代表的な表面物理分析法を図1を用いて簡単に説明する。

4. オージェ電子分光 (AES: Auger electron spectroscopy)

数KeVの低電圧電子線を照射したとき、発生するオージェ電子*を利用して元素の分析*をおこなう方法である。状態分析もできる場合がある。分析領域はnmオーダーであるが、深さは数Å~数10Åの極表面に限られるのが特徴である。したがって、表面汚染物質の定性・半定量分析に最適で、その他吸着・触媒・腐食などの研究に有効である。半面、吸着した気体分子の影響を除くため $10^{-10} \sim 10^{-11}$ Torrの超高真空を必要とする。信号源が電子のため、絶縁物の分析は困難で、しかもオージェ電子という低エネルギー電子の測定のため検出限界が1%程度と悪い。イオンスパッタリング装置と併用すると深さ方向の分析も可能である。

電子線を数μmに細かく絞って表面上を走査できるようにしたものを走査オージェ電子分光分析 (SAS: scanning Auger electron microscopy) という。

5. レーザー発光分光分析 (LMP: laser microprobe spectroscopy)

電子線のかわりにレーザーを用いた一種の局所発光分析で、分析領域は50 μmとやや広いが、絶縁物も分析可能で、真空にする必要がない。軽元素も測定でき、検出感度も約10 ppmと高い。定量分析できないのが欠点である。

* X線や電子線によってK殻に生じた空位を他の殻の電子が埋める場合、そのエネルギー差に相当する特性X線を放出する過程と、1個の電子がK殻を埋めると同時にもう1個の電子が原子外に放出される過程の二通りある。後者をオージェ効果、放出される電子をオージェ電子と呼ぶ。この電子は元素の種類に対し固有のエネルギーを持つ。

6. イオンマイクロアナリシス (IMA: ion microanalysis)

固体表面を加速したイオンで衝撃すると、スパッタリングにより二次イオンが放出される。これを質量分析計で分析する方法がある。これを二次イオン質量分析計 (SIMS: secondary ion mass spectrometer) という。さらに、そのビームを数 μm に細く絞り走査できるようにした装置が IMA である。これは以前、IMMA: ion microprobe mass analyser と呼ばれていたこともあるように、EPMA とスパースソース型質量分析計を兼ね備えた機器である。その他の表面分析法と比較して、次のような長所がある。

- (a) AES と同じく、極薄表面層の分析ができる。しかも、スパッタリングにより深さ方向も含めた 3 次元分析も容易にできる。
- (b) 数 10 ppb 以上の微量元素の検出が可能。
- (c) 同位体元素の分離ができる。
- (d) H を含む超軽元素が高感度に分析できる。
- (e) AES や XPS (後述) よりも定量性が良い。

逆に短所は、

- (a) イオンによる表面の破壊が起る、
 - (b) 試料や対象元素による検出感度の差が大きく、定量分析が容易でない、
 - (c) 非電導物質は分析が困難、
- などである。

7. X線光電子分光 (XPS: X-ray photoelectron spectroscopy)

$\text{AlK}\alpha$ や $\text{MgK}\alpha$ の軟 X 線を試料に照射すると、さまざまなエネルギー単位にある電子は光電子として放出される。その運動エネルギーから各単位にある電子の結合エネルギーを知る方法である。固体表面層にある原子の種類のみならず、価電子状態あるいは結合状態を決めるのに有力な手段であるので、electron spectroscopy for chemical analysis-ESCA と呼ばれることもある。信号源が X 線であるので、非導電性物質 (非金属・有機物・無機物) も試験できるが、逆に、X 線は細く絞れないので分析領域は mm オーダーと広い。情報源が光電子という低エネルギー電子のため 10^{-8} Torr の真空が必要。次に述べる UPS と同じく、吸着や触媒の研究に特に有効である。

8. 真空紫外光電子分光 (UPS: ultraviolet photo spectroscopy)

紫外線を照射し発生する光電子のスペクトルを解析する方法。XPSと良く似た方法であるが、信号源が紫外線であり、X線よりエネルギーが弱いため、得られる光電子エネルギーも小さく、情報の深さもやや浅い (XPSでは数十Å, UPSでは数Å)。

9. 蛍光X線分析 (FXA: fluorescent X-ray analysis)

W, Mo, Crなどの強力なX線 (40~60 kV, 50mA程度) を当て、発生する二次X線——蛍光X線を測定する方法。C, N, Oの超軽元素は検出不可能で、F, Na, Mgも感度が悪いが、その他の元素については定量法が確立している。このX線は電子線などより透過力をはるかに強く (通常, 数十μm), 厳密には表面分析とは言えない。逆に高い透過力のため、空気中や、 $10^{-2} \sim 10^{-3}$ Torrの低真空度で利用できる。液体試料も専用ホルダーの使用により分析できる。EPMAと同様に、X線のケミカルシフトを測ることにより状態分析も可能である。

10. ま と め

以上、EPMAに始まり、TEM, SEM, AES, LMP, IMA, XPS, UPS, FXAなど、さまざまな機器を簡単に紹介した。これらの機器の共通の原理は次のようにまとめることができる。

一般に、図1に示したように、固体表面にエネルギー粒子 (電子, イオンなど) や電磁波 (X線, 光線) が当たると、さまざまなエネルギー粒子や電子波が飛び出す。何を信号源とするか、そして、何を情報源とするか——信号源と情報源の組み合わせ——によって、それぞれの分析機器が識別され、(試料の制約, 分析領域, 必要真空度, 得られる情報など) 長所と短所もおのずと決定されるわけである。表1に各種表面物理分析法の比較を示す。

これらの分析法は、表面・界面偏析, 拡散, 吸着, 触媒, 腐食などの研究に直接的なデータを与える、かけがえのない手段である。また、顕微鏡で観察しながら分析できる。これは、その他、在来 of 分析機器にない大きな特徴である。

最近では、総合的な情報を得るために、EPMAとSAM, AESとXPS, SIMSとAES, XPSとSIMSなどの組み合わせを持つ複合分析機器も開発されつつある。今後さらに改良され、近い将来、我々、資源開発部関係の試験・研究にも有効な手段になると期待される。

詳しくは、EPMAについては内山・渡辺・紀本(1972)、Reed(1975)、Heinrich(1981); IMA, AES, XPS, UPSについては染野・安盛(1976)、LMPやIMAについてはArdersen(1973)を参照されたい。

Ⅱ. 59年度の業務内容

1. 試験件数

図2は鉍物試験グループにおける処理件数、担当人員の過去7年間の変化を表わしている。人員はかわらないにもかかわらず、件数は400~500件と増加している。また、試験内容も単なる鉍物同定だけでなく、より高度化・複雑化してきている。

昭和59年度に行なった試験は481件で、その内訳は次のとおりである。

(a) 海外探鉍関係 394件

カナダ	テクルシリ	レイク地区	279件
	ブラック	レイク地区	18件
	デュバント	レイク地区	5件
オーストラリア	マルガロック	地区	5件
アフリカ	ニジュール	セキレ地区	63件
	ザンビア	カリバ レイク地区	21件
中国	雲南省	地区	3件

(b) 人形峠 資源開発部関係 68件

製 錬 課	46件
探 鉍 課	3件
鉍石試験室	19件

(c) その他、中部探鉍事務所、ウラン濃縮工場関係など19件

総 計 481件

海外探鉍関係が80%以上を占めているが、資源開発部関係も約15%あり、少なくない。

2. 業務内容

海外探鉍関係の業務は、放射性鉍物や各種鉍物の固定やその産状の把握、岩石種の決定か

ら放射年代の決定や変質ハローの有無など多岐にわたっているが、その目的はウラン鉱化部の成因の研究から、その探査地域の有望性を評価し、今後の探鉱指針に役立てることである。

資源開発部関係の試験は、プラント工程や各種試験で生じた未知物質の固定や含有元素の検出であって、とりわけ、四フッ化ウランや硫酸ウラナス等のウラン化合物の試料が多い。同定はX線回折計により、元素分析は蛍光X線分析装置により行なっている。四フッ化ウランの場合、走査電子顕微鏡による形状観察や写真撮影を行なうことも少なくない。

59年度の最重点実施項目はカナダ・テクルシリ レイク地区での“変質ハロー試験”であり、これは処理件数の半数以上を占めている。その概要は次章に報告する。

VI. カナダ・テクルシリ レイク地域での変質ハロー試験

ウラン鉱化体のまわりに“変質ハロー”が存在するかどうか、存在する場合、それがウラン探査に利用できるかどうか；これらの点について、カナダ、北西準州 テクルシリ レイク地区のウラン鉱地周辺をケース・スタディとして調べてみた。

（ここでは、概要のみ述べるにとどめ、詳細は別に報告する。）

1. 作業仮説

一般に、ウランを含んだ熱水が岩石にとりこまれると、それを中心とする熱勾配が形成される。この熱勾配の結果、岩石やその中の鉱物の性質は若干変化する。つまり過去の熱勾配によって形成されたいわゆる熱水変質が現在の岩石や鉱物に記録されているはずであり、その記録を読み取ることにより過去のウランを含んだ熱水系の中心——ウラン鉱体の中心をさぐることができるはずである。

このような、熱水鉱脈型のウラン鉱体を取り囲む岩石（母岩）にみられる母岩やその構成鉱物の性質の微細な変化（熱水変質）を“変質ハロー*”と呼ぶことにする。

変質ハローがみられるかどうか、また、逆に変質ハローからウラン鉱化帯の存在を“予測”できるかどうか、具体的に調べてみた。

2. 対象地区とサンプリング方法

対象として選んだ地区は、テクシルレイク地区に位置する一鉱区中であって、東西600m

南北、1000m、の面積を占める(図3)。地質は西半分はマイロナイトが、東半分は礫岩が分布する。ただし、礫岩は西にいくにつれマイロナイト化されている。また、東にいくにつれ砂岩に漸移する*。

ウラン鉱化作用はビッチブレンド脈として北と南の二箇所**に集中する。

地表でのサンプリングは、原則として鉱徴地近くでは25m間隔、その他は50m間隔で行なわれ、露頭観察したのち、岩石201件を系統的に採取した。

また、地下への変質ハローの広がりを知るために、南・北、それぞれのウラン鉱徴地**を東西に切る2箇所の断面、合計4断面を選び；その断面上に位置する試錐のコアサンプルの中から、原則として25m間隔で、試料76件を系統的に採取した。

3. 試験項目

変質ハローをとらえるには、岩石や鉱物のどのような性質が“センサー”として利用できるかが問題となる。そのため、まず58年度に、北と南の鉱徴地**、それぞれを東西に横切る二つの測線上の約30個の試料について予備試験を行なった。その結果、次のことがわかった。

- (a) マイロナイト、礫岩、ともに、主な構成鉱物は、石英、斜長石、アルカリ長石、緑泥石、絹雲母、赤鉄鉱、磁鉄鉱であった。しかし、その量の割合——鉱物組成はさまざまであって、一定の傾向を示さない。総化学組成も同様であろう。
- (b) 岩石のウラン含有量も傾向を示さない。
- (c) 同定できた鉄鉱物は、磁鉄鉱、赤鉄鉱および黄鉄鉱であった。黄鉄鉱は極少量で、岩石のS分析値も検出限界(0.01%)以下であるので無視できる。
- (d) 絹雲母のポリタイプはすべて2M型であった。(一般に、時間や熱により1M→1Md→2Mと進化する。)
- (e) 緑泥石や絹雲母の組成や結晶度は“センサー”として使える可能性がある。

* 鉱脈に接する母岩中の“変質帯”については各地で報告されており、その存在は肉眼で容易に確認できる。しかし、その幅は1m以内と狭いので、探査に利用することはできない。

** 北部はグリッドライン0+30N, 0+70Wの位置(TK82-16附近)を中心とする約70mの円内を占める。後者は南北に伸びた分布を示すが、その中心はTrench A附近(5+80s, 0+90w)である。

この予備試験と文献調査から、次のような試験項目を選び出した。

- ① $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$: 岩石中の Fe^{3+} と Fe^{2+} それぞれの含有量の比
- ② $\text{Ht}/\text{Ht}+\text{Mt}$: 赤鉄鉱 (Ht) と磁鉄鉱 (Mt) の量比 (%)
- ③ $\text{ch}/\text{ch}+\text{Ser}$: 緑泥石 (ch) と絹雲母 (Ser) の量比 (百分率)
- ④ $\text{ch comp}(x)$, ⑤ $\text{ch comp}(y)$, ⑥ $\text{ch comp}(E\text{Fe})$: 緑泥石の組成式は $(\text{Mg}_{6-x-y}\text{Fe}^{3+}_y\text{Al}_x)[\text{Si}_{4-x}\text{Al}_x]\text{O}_{10}(\text{OH})_8$ で表わされる。x は Al の量, y は Fe^{2+} の量を示す。また, Fe は緑泥石の構造のうち, 2:1 層中にも, 層間域にも存在するが, 2:1 層中の Fe の, 層間域の Fe にくらべた場合の過剰分を E Fe で表わす。
- ⑦ Ser comp : 絹雲母の組成を X 線回折の (001) と (002) のピーク強度比, $I(002)/I(001)$, で推定したもの。値が大きくなるにつれ, 組成中の Al/Fe+Mg 比が大きくなる。
- ⑧ ch cryst : 緑泥石の結晶度, および, ⑨ Ser cryst : 絹雲母の結晶度, 両者とも, それぞれの X 線回折ピークの半価幅より推定したもの, 数字が小さくなるほど結晶度が良い。

4. 試験結果

(1) 試験項目間の相関関係

図 4 は緑泥石の結晶度 (ch cryst) と絹雲母の結晶度 (Ser cryst) の相関図である。表 2 での相関係数 0.68 からわかるように, 一方の結晶度も良くなると, 他方の結晶度も良くなる。一般的な傾向として, 同一時代の同種の岩石の相互間では, 温度が高ければ, それに含まれる鉱物の結晶度もそれに応じて良くなる。特に, 絹雲母や緑泥石のような粘土鉱物の結晶度は温度変化に敏感に反応することが知られている。当地域においても, 緑泥石や絹雲母の結晶度は過去の熱勾配を見積るのに有効な "センサー" である可能性が高い。

これら両者の結晶度 (ch cryst と Ser cryst) に対する相関係数の高い項目を調べると, Ser comp (それぞれに対する係数は 0.35 と 0.20), $\text{ch comp}(E\text{Fe})$ (同じく -0.22 と -0.25) が挙げられる。 $\text{Ht}/\text{Ht}+\text{Mt}$ (-0.18 と -0.09) も両者の結晶度に対する弱い相関が認められる。これら 3 項目も両者の結晶度と同じく, 過去の熱勾配を反映

している可能性が高い。(その他の項目で、共に係数値が高いものは無く、どちらか一方は-0.01~0.05と低い。)

要するに、温度が高くなると、

- (a) 緑泥石の結晶度、および(b)絹雲母の結晶度が良くなり、
- (c) 絹雲母の組成はFe+Mgに富み、Alに乏しくなる。そして、
- (d) 緑泥石の組成(E・Fe)も大きい値となり、
- (e) 赤鉄鉱の量も(磁鉄鉱の量に比べて)多くなる、ようである。

(2) 地表での変質ハロー

図5~13は各試験項目の結果を図示したものである。

[岩相に伴う変化] Fe^{+3}/Fe^{+2} , $ch/ch+Ser$, $Ch\ comp(y)$ の変化を、それぞれ図5, 図6, 図7で観た場合、岩相分布と良く一致している。礫岩分布地域と比べて、マイロナイト分布地域は Fe^{+3}/Fe^{+2} 比が低く、 $ch/ch+Ser$ 比が高く、 $ch\ comp(y)$ の値が大きい。また、これら相互の相関(表2)も高い。野外の観察では、マイロナイトには強い緑泥石化作用が認められている。これらの事実は Fe^{+2} に富む緑泥石がマイロナイトには多いという事を示すものである。これらの性質ハローには関係しない。

[ウラン鉱化帯との関係]

緑泥石のAl量: $ch\ comp(x)$ は岩相変化にも、ウラン鉱化帯の位置にも無関係にばらつき、一定の傾向を示さない(図8)。

ウラン鉱徴地の位置と関係するような分布のパターンが得られたのは、 $Ht/Ht+Mt$, $ch\ comp(E, Fe)$, $Ser\ comp\ ch\ cryst$, $Ser\ cryst$ であって、これら諸項目の変化は次のようである。

(a) $Ht/Ht+Mt$: ウラン鉱化帯は、 $Ht/Ht+Mt$ が25%以下の低い(磁鉄鉱が相対的に多い)区域で囲まれた、 $Ht/Ht+Mt$ が75%以上の(赤鉄鉱が相対的に多い)区域に位置する(図9)。

(b) $ch\ comp(E, Fe)$: 0.4以上の値を示す部分が北のウラン鉱化帯内に位置するものの、南

* Fe^{3+}/Fe^{+2} と $ch/ch+Ser$ の相関係数は-0.27, $ch/ch+Ser$ と $ch\ comp(y)$ は0.18, $ch\ comp(y)$ と Fe^{3+}/Fe^{+2} は-0.31と高い相関関係が認められる。

この事から、①当地域において、ウラン鉱化作用に伴う“変質ハロー”が存在する、②それは、赤鉄鉱の相対的な増加、絹雲母の(Fe+Mg)富化、絹雲母および緑泥石の結晶度の上昇によって特徴づけられる、ことがわかった。

(3) 変質ハローからウラン鉱化帯の中心位置の推定

当地域のウラン鉱化作用には“変質ハロー”が伴うことがわかった。逆に、ここでは変質ハローだけからウラン鉱化部の中心が推定できないかチェックしてみよう。

図14は抽出された4つの試験項目－4種類の母岩の性質からそれぞれ選定された区域を示す。それぞれひとつの項目から区域を選ぶとすると、ウラン鉱化作用の、北と南の中心に一致ないしは近接する地点もあるが、例外も多くひとつの項目だけで区域を選定することはできない。

しかしながら、複数の試験項目からその重複する部分を選んだ場合、次の事実を指摘できる。

- (a) 3項目重なる地点が南のウラン鉱化部の中心に近接した個所を占めている。
- (b) 4項目すべてが重なる地点が北のウラン鉱化帯の分布の中心と“完全に一致”している。

すなわち、変質ハローだけでもウラン鉱化部の中心を推定できるといえる。

(4) 地下への変質ハローの広がり

次に、変質ハローの地下への広がりを検討し、当地域の有望性を評価してみよう。

- (a) $Ht/Ht+Mt > 75\%$ の条件が該当する場所は5+82Sと6+42Sの断面に若干認められるが、0+90Nと0+30Nの断面にはおのおの個所存在するだけである(図15)。
- (b) $Ser\ comp < 0.17$ の地下の部分は6+42S断面に1個所だけみられる^{*}(図16)。
- (c) $ch\ cryst < 0.19$ や $Ser\ cryst < 0.19$ に該当する場所はない(図17～18)。

これら項目の重なる程度を調べた場合、2項目を満足するのは6+42S断面の1個所だけで、3項目以上重なる場合はまったく存在しない。

これらの事実より、変質ハローは地表にのみ留まり、地下には広がっていない^{**}とみなさ

* 50mのずれがあるが、これはウラン鉱化脈と地熱勾配の中心との若干のくいちがいを表わすのかもしれない。

** これは、現在の地表面より上に、かつて有ったウラン鉱体が侵食されて無くなり、現在の地表面はそのごく底の部分の横切った面と考えると説明できる。

れる。(試錐結果でも、地表でみられたウラン鉱化作用は地表部だけで、より深部へは連続しない。)

結論として、当地域の地下にはウラン鉱体が存在する可能性は低いと判断できる。

5. 結論、および今後の課題

カナダ・テクルシリレイク地域のある区域を例として調査・試験した結果、(磁鉄鉱量に比べて)赤鉄鉱量の増加、絹雲母のFe+Mg

富化、緑泥石や絹雲母の高結晶度化といった母岩の性質変化を特徴とする“変質ハロー”の存在が確認された。変質ハローの性質とその分布を求める事——変質ハロー試験——により、ウラン鉱化部の中心を推定できる。試錐コアを使った変質ハロー試験により、地下での変質ハローの中心位置——熱勾配系の中心——が推定でき、そして、そこにウラン鉱体が胚胎している可能性が高い。^{*}

当地域では、変質ハローは地表部のみにとどまることから、地下にウラン鉱体が胚胎する可能性は非常に低いと考えられる。

*ただし、すべての変質ハローの中心にウラン鉱床が存在する訳ではないが、変質ハローがみられない場合はウラン鉱床が存在する可能性はほとんどない。

同様な、粘土鉱物の量・組成・結晶度の変化に注目した、母岩の変質に関する研究は昨年8月のカナダ鉱業会誌に掲載されている(Hoeve, 1983)。彼は(広義の熱水鉱脈型に属する)不整合関連型鉱脈鉱床のミッドウェストレイク鉱床を対象として、地表での変質ハロー(彼の言うclay mineral halo)から地下200mのウラン鉱床の位置を指摘できると報告している。

ウラン鉱化作用のタイプやその年代、母岩の種類などによっては変質ハローの性質もそれぞれ異なることが当然考えられる。そのため、ハローをとらえるためのセンサーである試験項目も、それぞれの“鉱床のくせ”に合わせて換えなければならない。

効果的な試験項目として次のような諸項目が想定される；

- (a) 母岩の化学組成：Na, K, Mgのような主要成分、ならびに、V, Sr, Mn, Ni, Co, Cuなどの微量成分。
- (b) 母岩の鉱物組成：構成鉱物の割合

(c) 粘土鉱物の量比, 組成, 結晶度, ポリタイプ

(d) 長石などの鉱物の温度型

各地のウラン探鉱現場で, 上記の試験項目から選んだ“センサー”を用いて変質ハロー試験を行なうのが今後の課題である。

いわゆる“堆積型”のウラン鉱床についても, 広い意味での“ハロー”が存在するか否か, 又, その探鉱上の有効性などについて検討する意義はあると考える。

文 献

Andersen, C. A. (1973): Microprobe analysis, John Wiley & Sons, 571p

Heinrich, K. F. J. (1981): Electron beam X-ray microanalysis, Van Nostrand Reinhold Comp. 578 p.

Hoeve, J. (1983): Host rock alteration and its application の鉱化帯近くには 0.4 以上の部分はない。逆に, 0.4 以上の値を示す例外の場所が 3 箇所も存在する。したがって, 実際に“センサー”として使うには適切な項目ではない。

(c) Ser comp : 0.17 より低い値をとる場所が 4 箇所みられるが, 1 例を除いてウラン鉱化帯の近傍にすべて位置する (図 11)。

(d) Ch cryst : 0.19 より低い値を示す場所, 4 箇所のうち, 2 箇所がウラン鉱徴地なしはその近傍部に位置する (図 12)。

(e) Ser cryst : 0.19 より低い値をとる場所 7 箇所のうち, 3 箇所がウラン鉱化帯なしはその近傍部を占める (図 13)。

つまり, ウラン鉱化帯に近づくにつれ, 母岩中の赤鉄鉱は (相対的に) 多くなり, 絹雲母の組成は (Al に比べて) Fe+Mg に富むようになる。また, 緑泥石や絹雲母の結晶度も高くなる傾向が認められる。

各地のウラン探鉱現場で、上記の試験項目から選んだ“センサー”を用いて変質ハロー試験を行なうのが今後の課題である。

いわゆる“堆積型”のウラン鉱床についても、広い意味での“ハロー”が存在するか否か、又、その探鉱上の有効性などについて検討する意義はあると考える。

文 献

Andersen, C. A. (1973), Microprobe analysis John Wiley & Sons, 571p.
Heinrich, K. F. J. (1981), Electron beam X-ray microanalysis, Van
Norstrand Reinhold comp, 578p.

Hoeve, J. (1983) Host rock alteration and its application as an ore
guide at the Midwest Lake Uranium deposit, northern Saskatchewan,
CIM Bull. 77 63-76.

Reed, S. J. B. (1975) Electron microprobe analysis, Cambridge Univers-
ity Press, 400p.

染野 壇・安盛岩雄(1976) 表面分析, 講談社 338p.

内山 郁・渡辺 融・紀本静雄(1972) X線マイクロアナライザ, 日刊工業新聞社
243p.

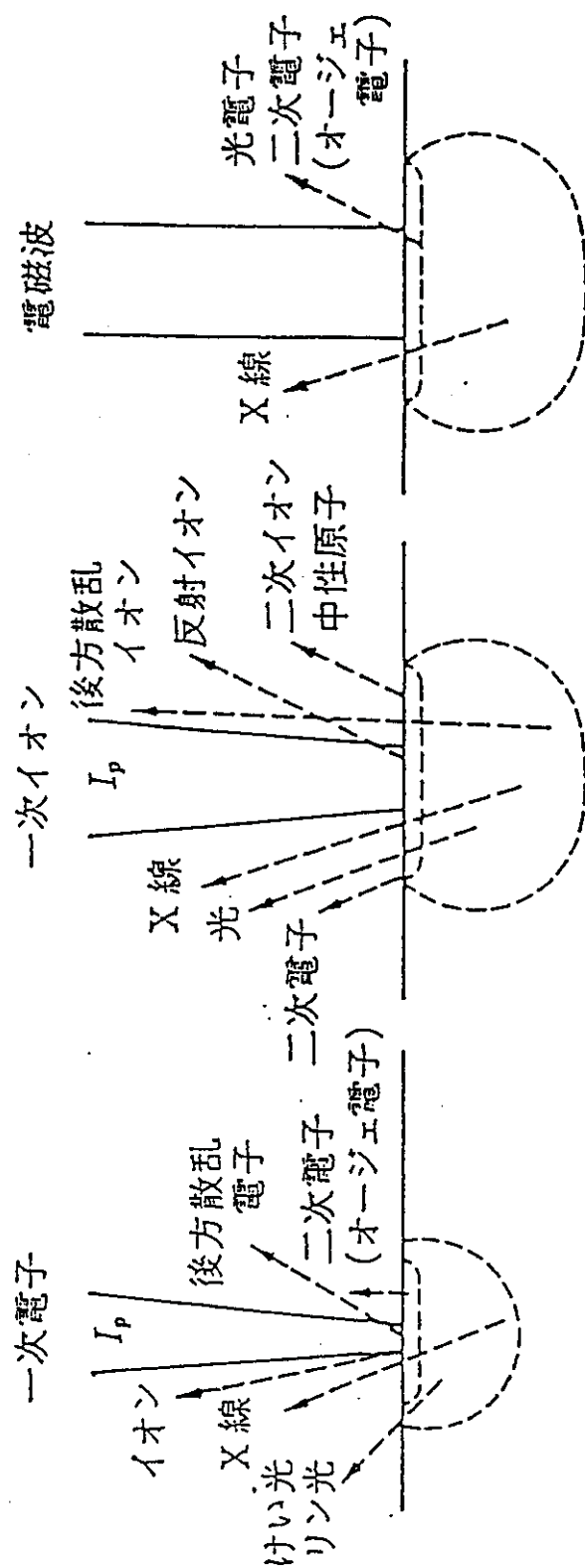


図-1 イオン，電子，光子（X線）と固体表面の相互作用の模式図

表-1. 表面物理分析法の比較

励起源	信号源	分析技術	得られる情報	特徴その他
電子	反射一次電子	低速電子エネルギー損失スペクトル (LEES)	吸着状態	数 eV の低エネルギー電子を使う。 吸着分子の振動状態がわかる。
	オーグマン電子	オーグマン電子分光 (AES)	元素分析, 結合エネルギー, 化学効果による状態分析	〜 3 keV 程度の電子線を使う。 1 μm 以下のビームによる表面分析も可能。
	イオン	電子衝撃離脱法 スパーク型固体質量分析	吸着物の元素分析 微量元素分析	微小電流で表面衝撃し吸着イオンを脱離させ質量分離
光子	特性 X 線	X 線マイクロアナライザ (EPMA)	微小部元素分析	微小部分分析では常用されている。検知深さは 1 μm 程度。
	(紫外) 光 (可視光)	発光分光分析	元素分析	
	二次電子	イオン中和スペクトル (INS)	表面の電子状態, 吸着状態	オーグマン電子による元素分析 (研究中)
イオン	反射イオン	イオン散乱スペクトル (ISS)	単原子量の元素分析	低速イオン (1〜数 keV) を使い, 反射してくる一次イオンのエネルギー分離を行なう。
	後方散乱イオン	後方散乱 (IBS)	組成, 元素分析, 深さ方向分布	数 MeV の He^+ を使い, 後方散乱された He^+ イオンのエネルギーを測定する。
	二次イオン	二次イオン質量分析 (SIMS) イオンマイクロアナリシス (IMA)	微量分析, 深さ方向分布 微小部分分析, 深さ方向分布	薄膜, 表面分析, バルクの微量分析, 深さ方向の濃度分布
X 線 紫外線	特性 X 線	イオン励起 X 線分析	元素分析	研究中
	光電子	光電子分光 (XPS) 真空紫外電子分光 (UPS)	元素分析 電子結合エネルギー	光電子のエネルギー測定により, 電子の結合エネルギー 元素分析を行なう。
	二次 X 線	けい光 X 線分析 軟 X 線分析	元素分析 電子状態	軟 X 線 (10〜10 ³ eV) を照射して原子の電子状態を測定する。

LEES: low energy electron spectroscopy
INS: ion neutralization spectroscopy
ISS: ion scattering spectroscopy
IBS: ion back scattering

(染野・安盛 (1976) による)

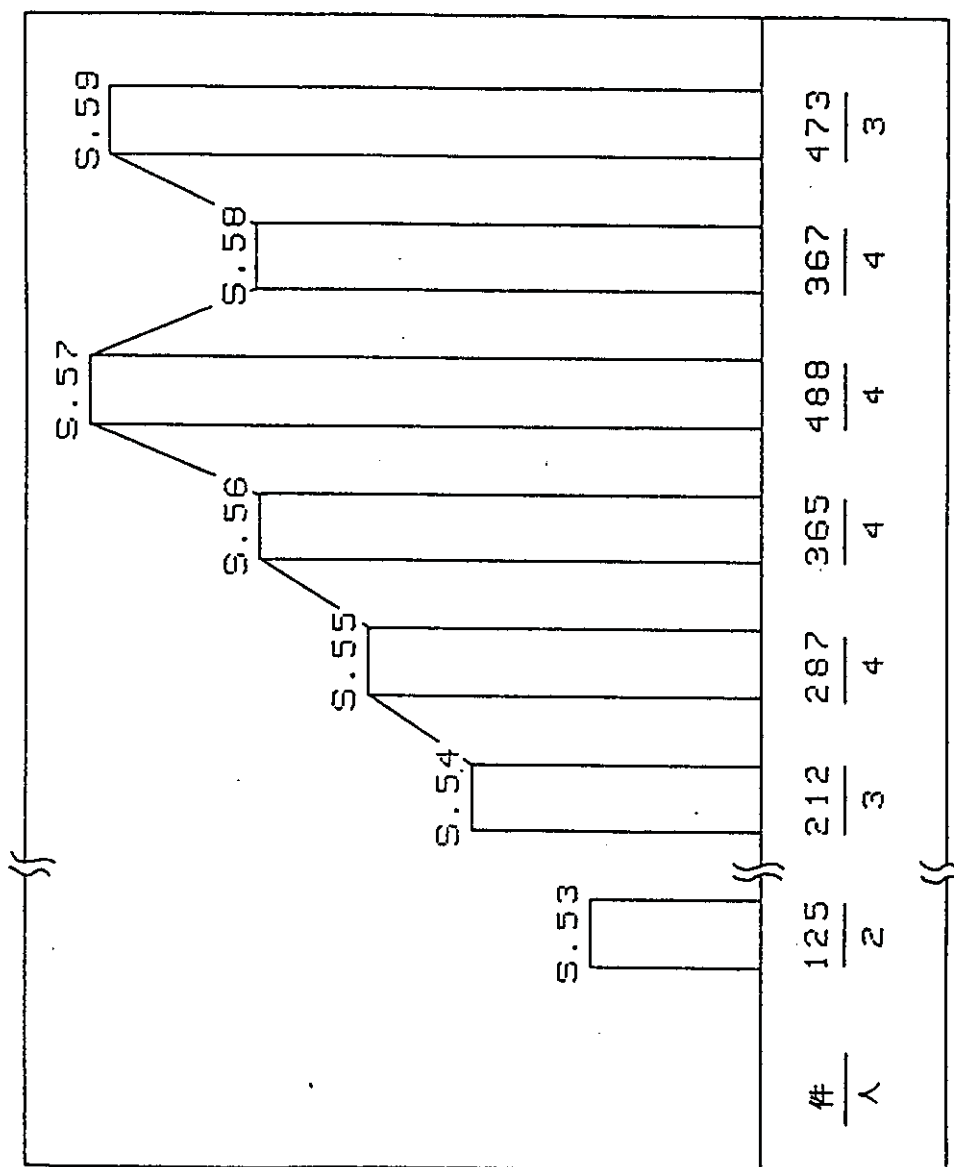
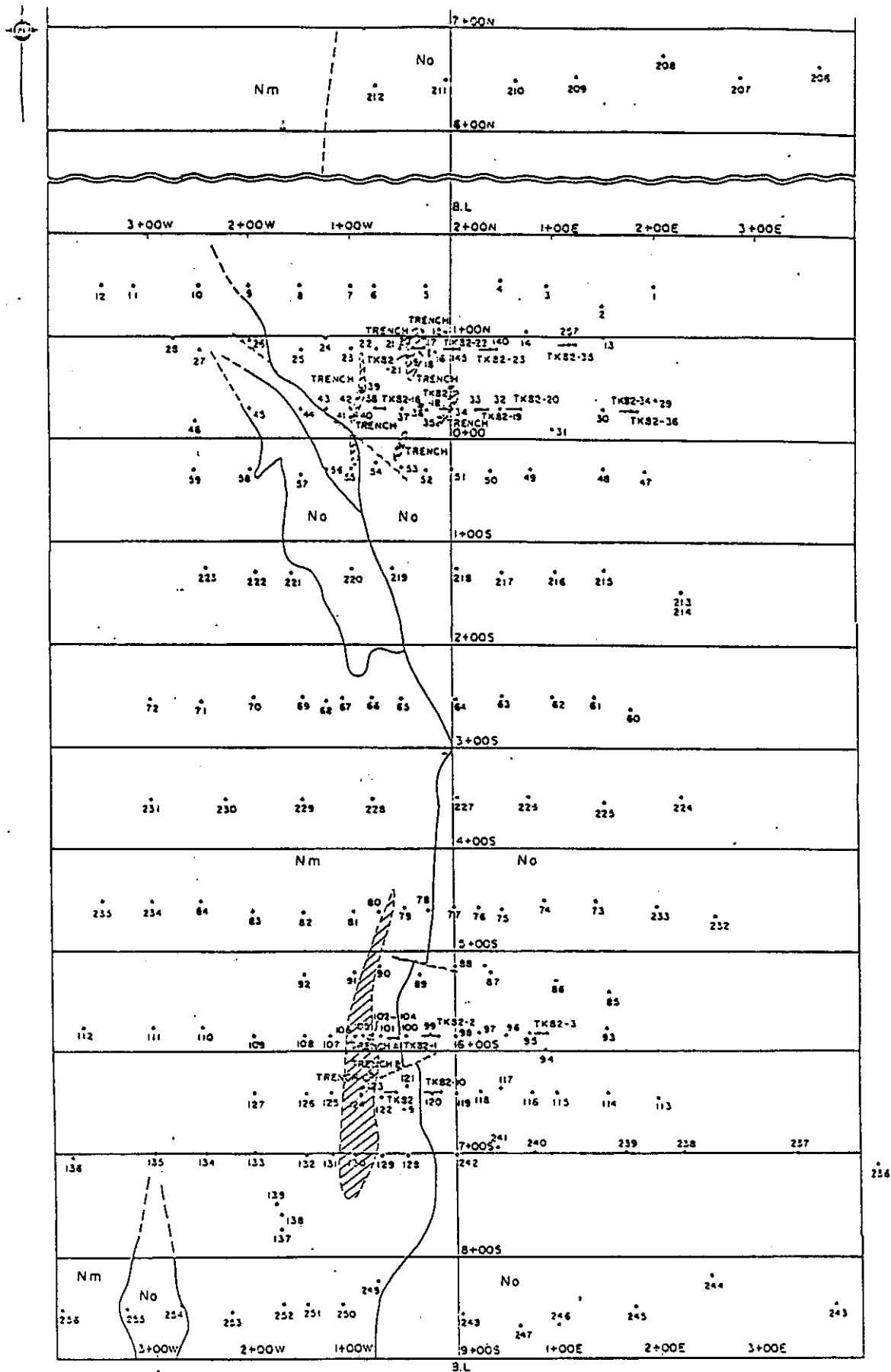


図-2 鉱物試験グループにおける処理件数、担当人員の過去7年間の変化



LEGEND

Nm : Mylonite

No : Basal Oligomictic Conglomerate of Nonacho Group

▨ : Mineralized Zone

Tr-1 : Trench

TK82-1 : Drill Hole

• : Sample Location

0 50 100 150m

Scale

図-3 “変質ハロー” 調査地域

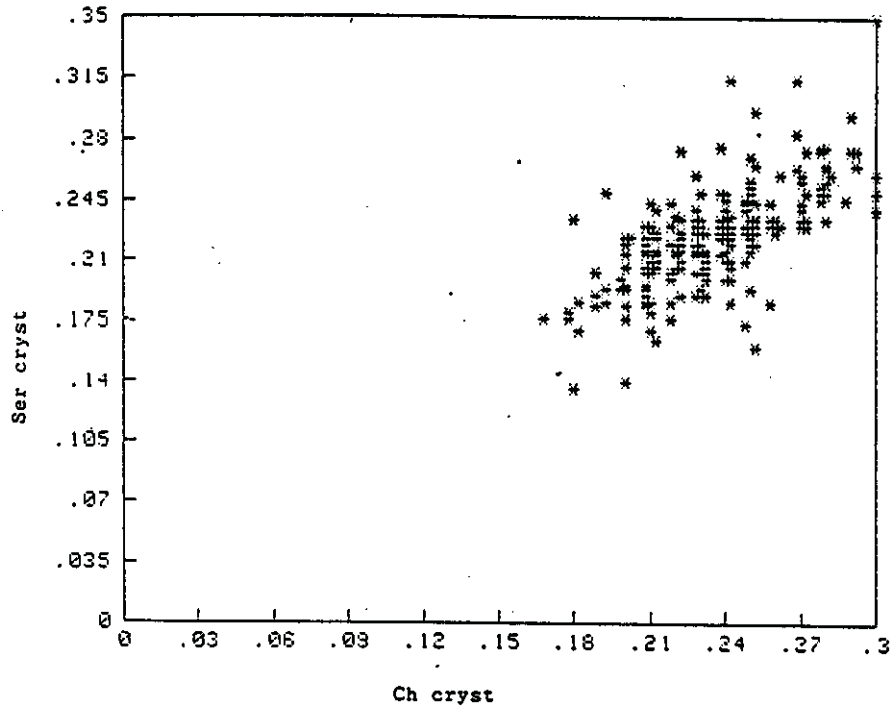


図-4 緑泥石の結晶度 (Ch cryst) と絹雲母の結晶度 (Ser cryst) との相関図

表-2 試験項目、相互間の相関係数

$\frac{\text{Fe}^{+3}}{\text{Fe}^{+2}}$									
$\frac{\text{Ht}}{\text{Ht} + \text{Mt}}$	0.12								
$\frac{\text{Ch}}{\text{Ch} + \text{Ser}}$	-0.12	0.07							
Ch Comp (X)	-0.27	-0.18	0.02						
Ch Comp (Y)	-0.31	-0.34	0.18	0.35					
Ch Comp (E.Fe)	-0.13	0.16	0.08	-0.04	-0.10				
Ch Cryst	0.07	-0.18	-0.18	-0.24	-0.11	0.22			
Ser Comp	0.10	0.04	0.19	-0.16	-0.07	-0.46	0.35		
Ser Cryst	0.03	-0.09	-0.03	0.01	-0.05	-0.25	0.68	0.20	
	$\frac{\text{Fe}^{+3}}{\text{Fe}^{+2}}$	$\frac{\text{Ht}}{\text{Ht} + \text{Mt}}$	$\frac{\text{Ch}}{\text{Ch} + \text{Ser}}$	Ch Comp (X)	Ch Comp (Y)	Ch Comp (E.Fe)	Ch Cryst	Ser Comp	Ser Cryst

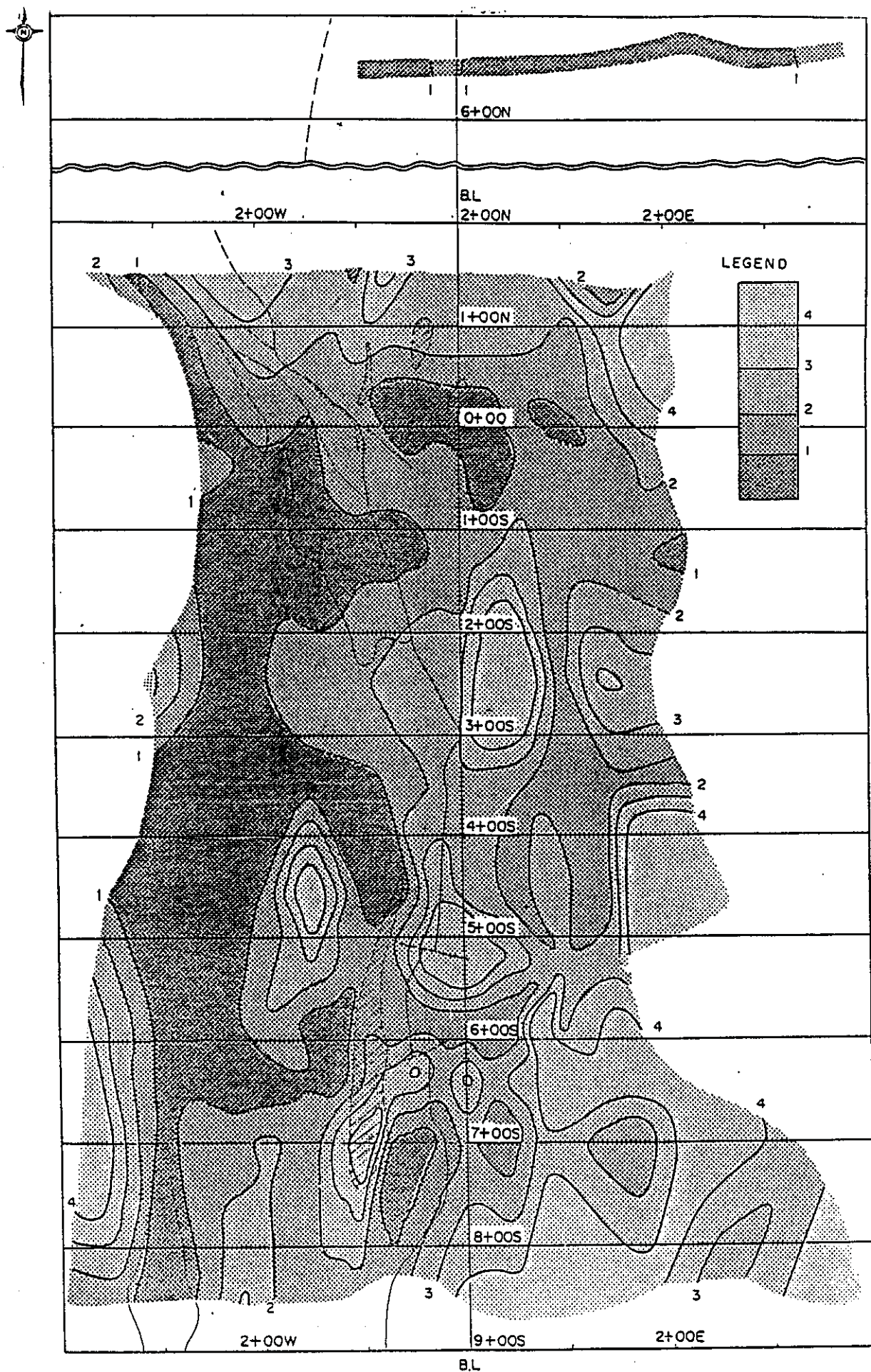


図-5 岩石中の $\text{Fe}^{+3}/\text{Fe}^{+2}$ 比

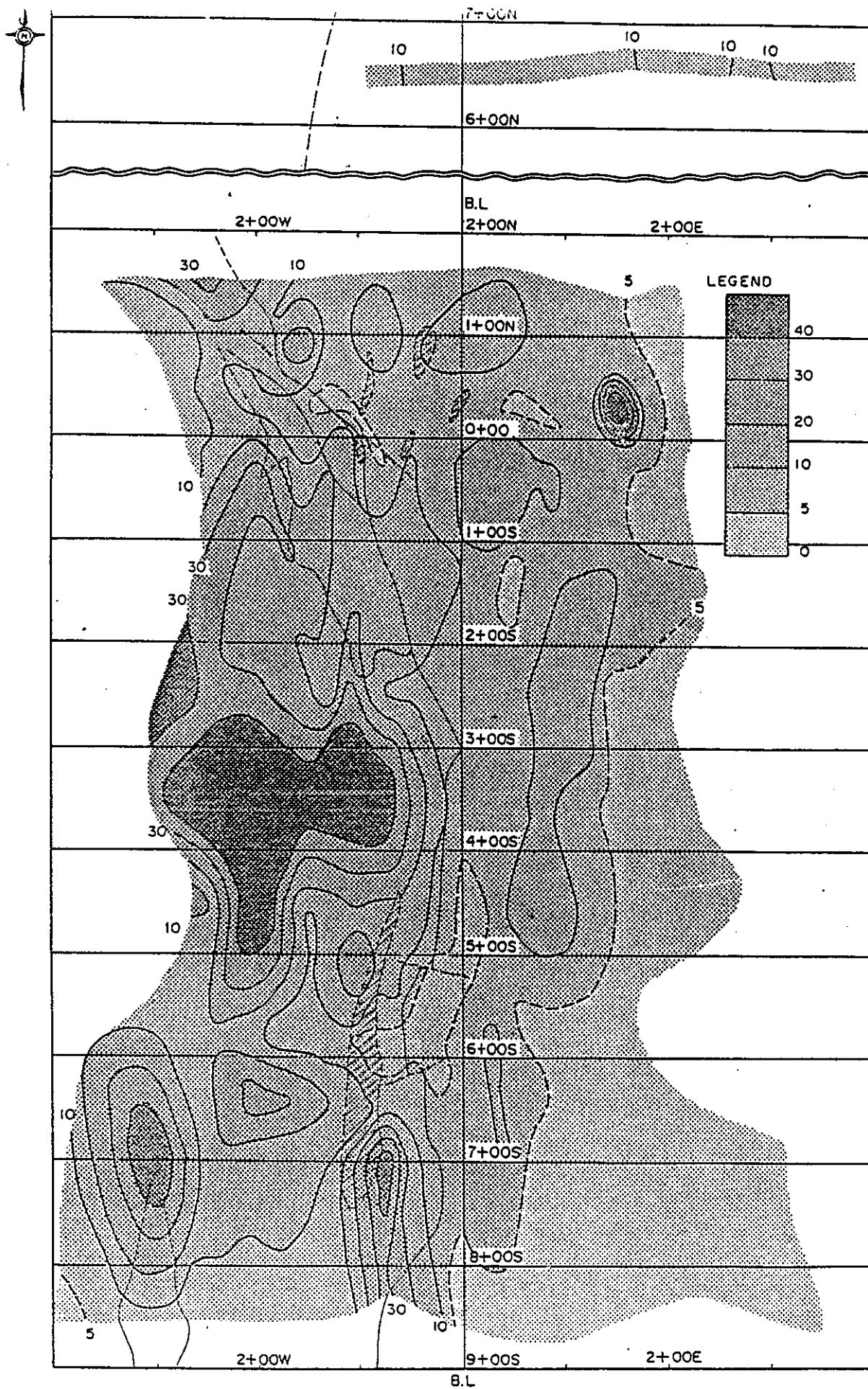


図-6 Ch/Ch+Ser : 緑泥石 (Ch) と絹雲母 (Ser) の量比 (%)

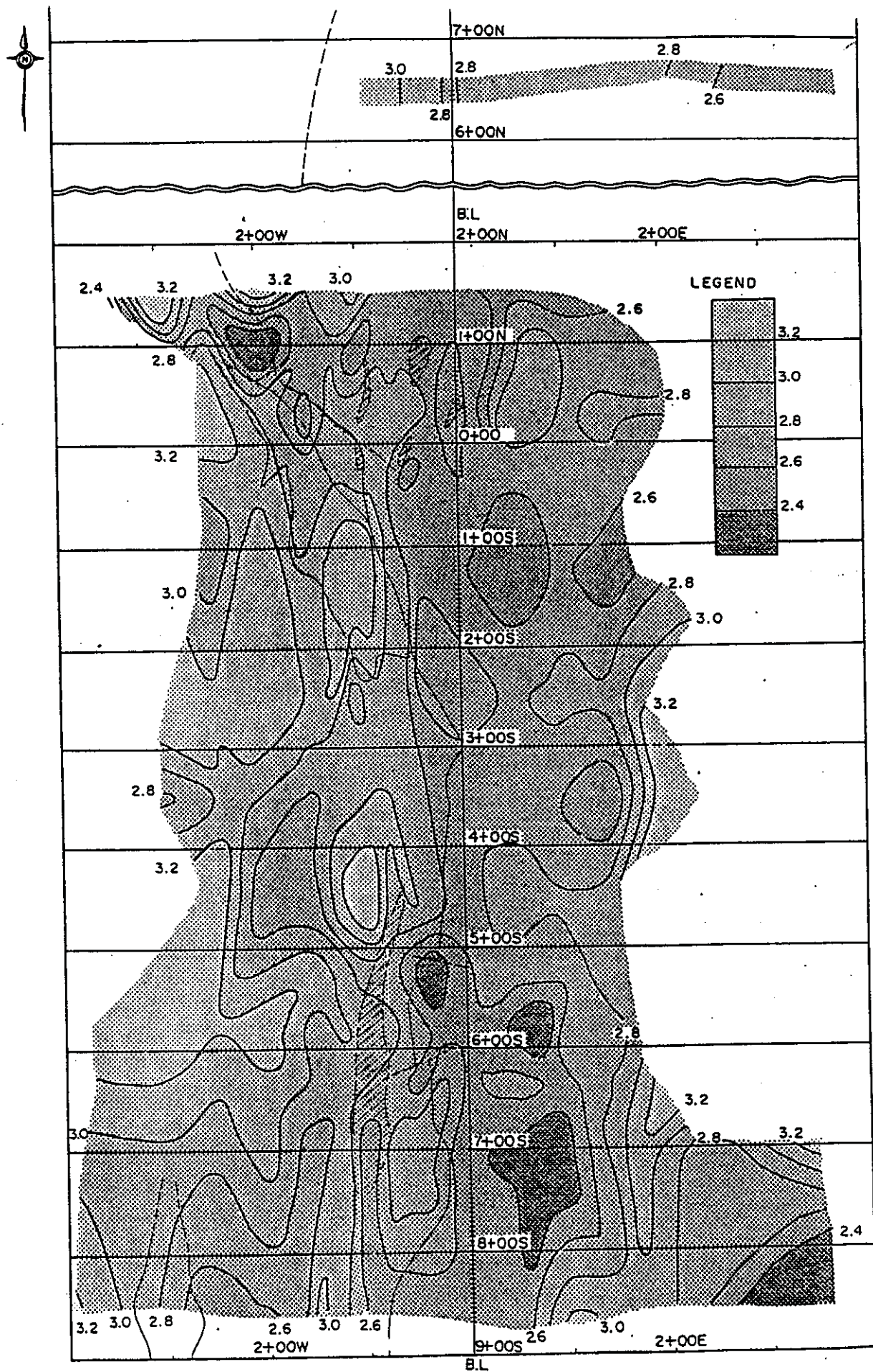


図-7 Ch comp(y) : 緑泥石の組成中の Fe^{+2} 量

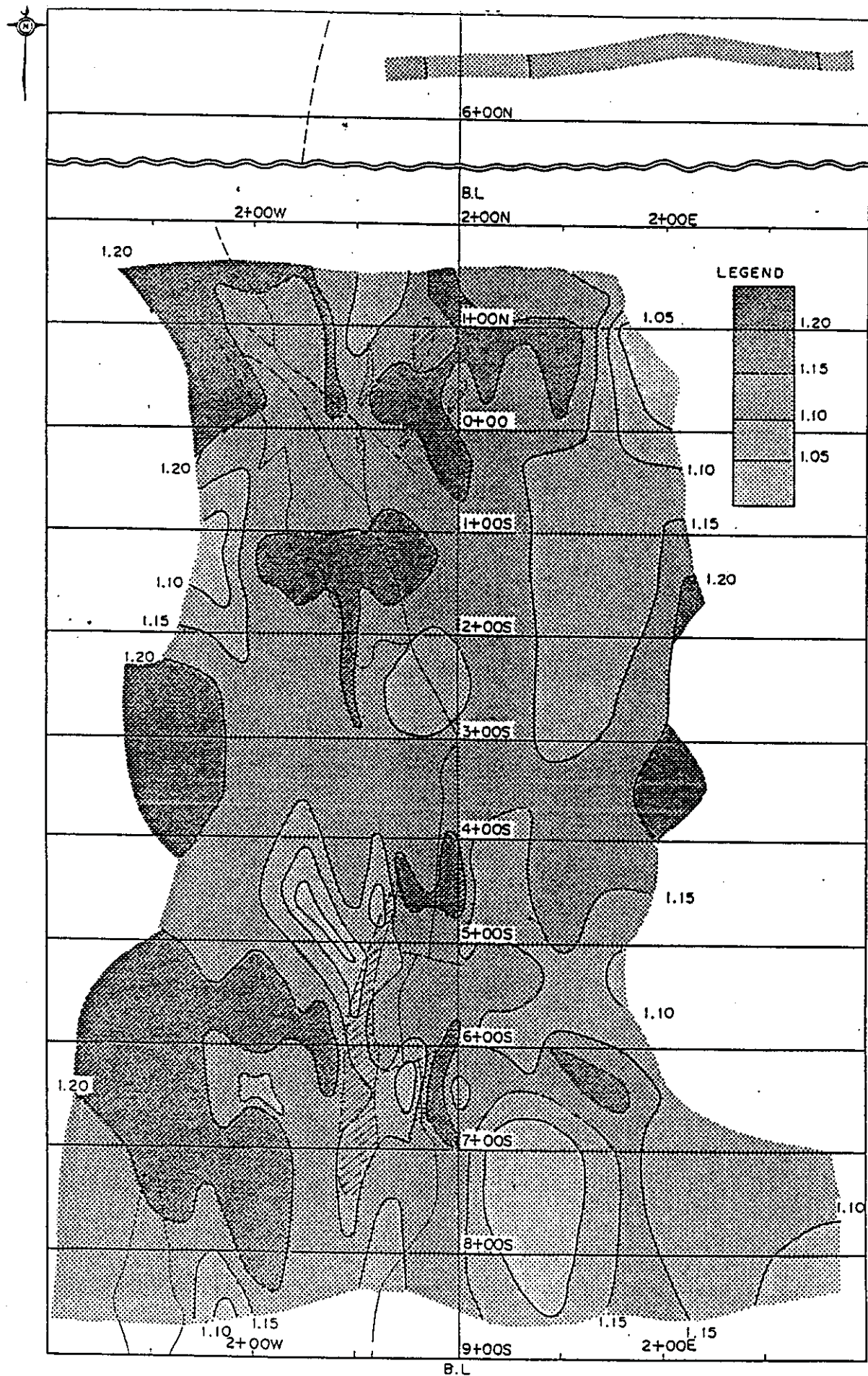


図-8 Ch comp(x) : 緑泥石の組成中の Al 量

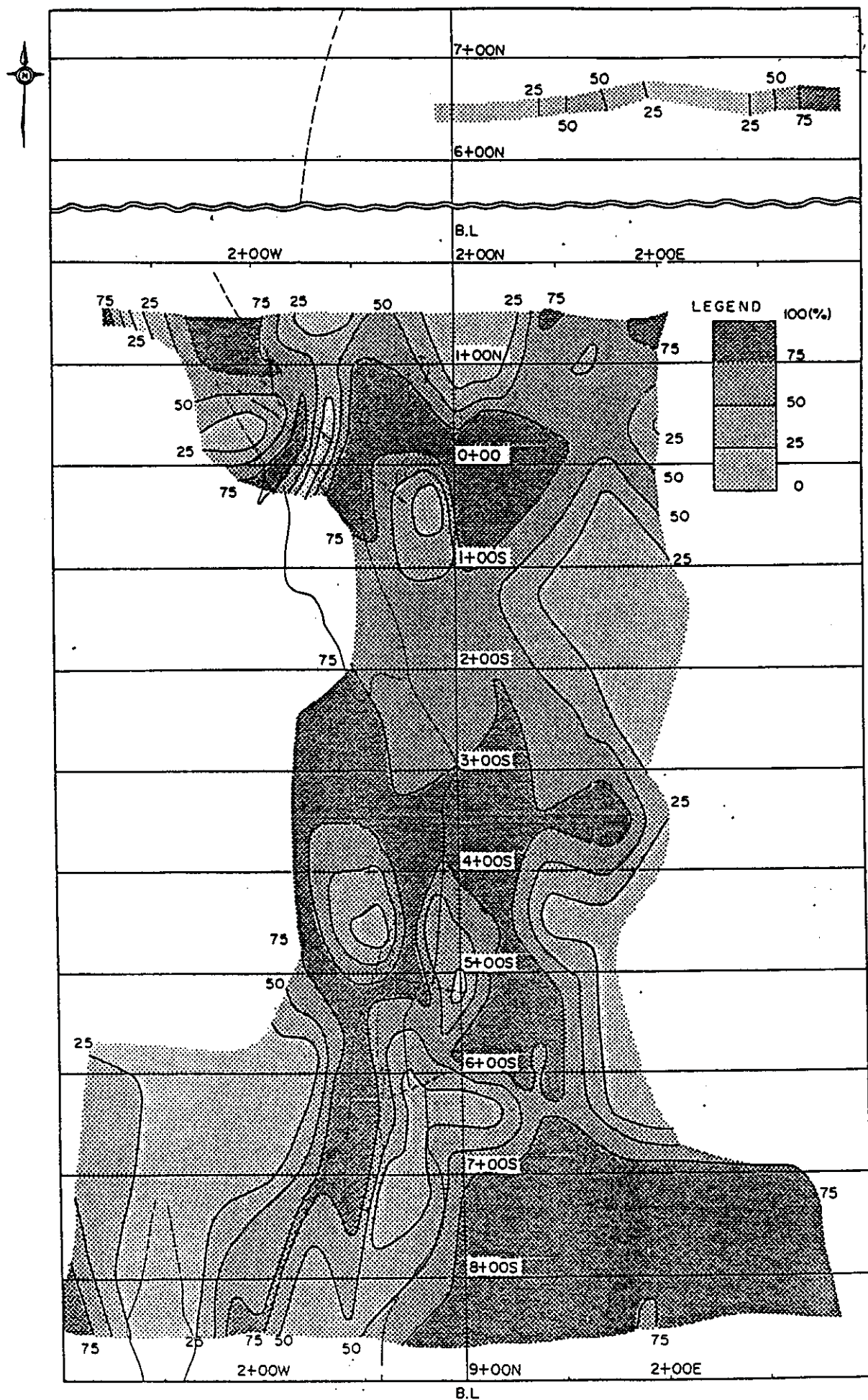


図-9 $Ht/(Ht+Mt)$: 赤鉄鉱 (Ht) と磁鉄鉱 (Mt) の量比 (%)

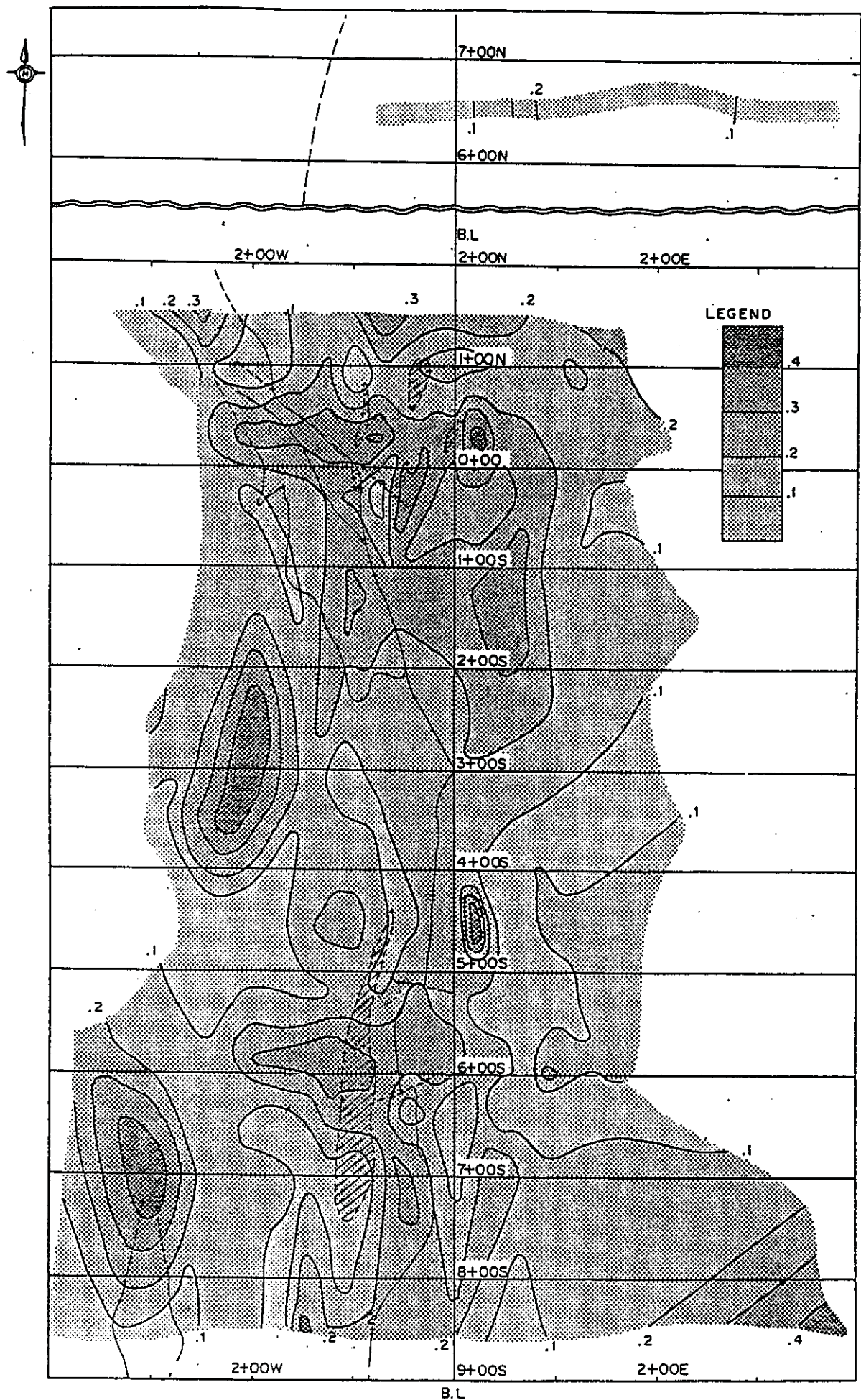


図-10 Ch comp (E. Fe) : 緑泥石 2 : 1 層中の Fe の, 層間域の Fe に比べた場合の過剰分

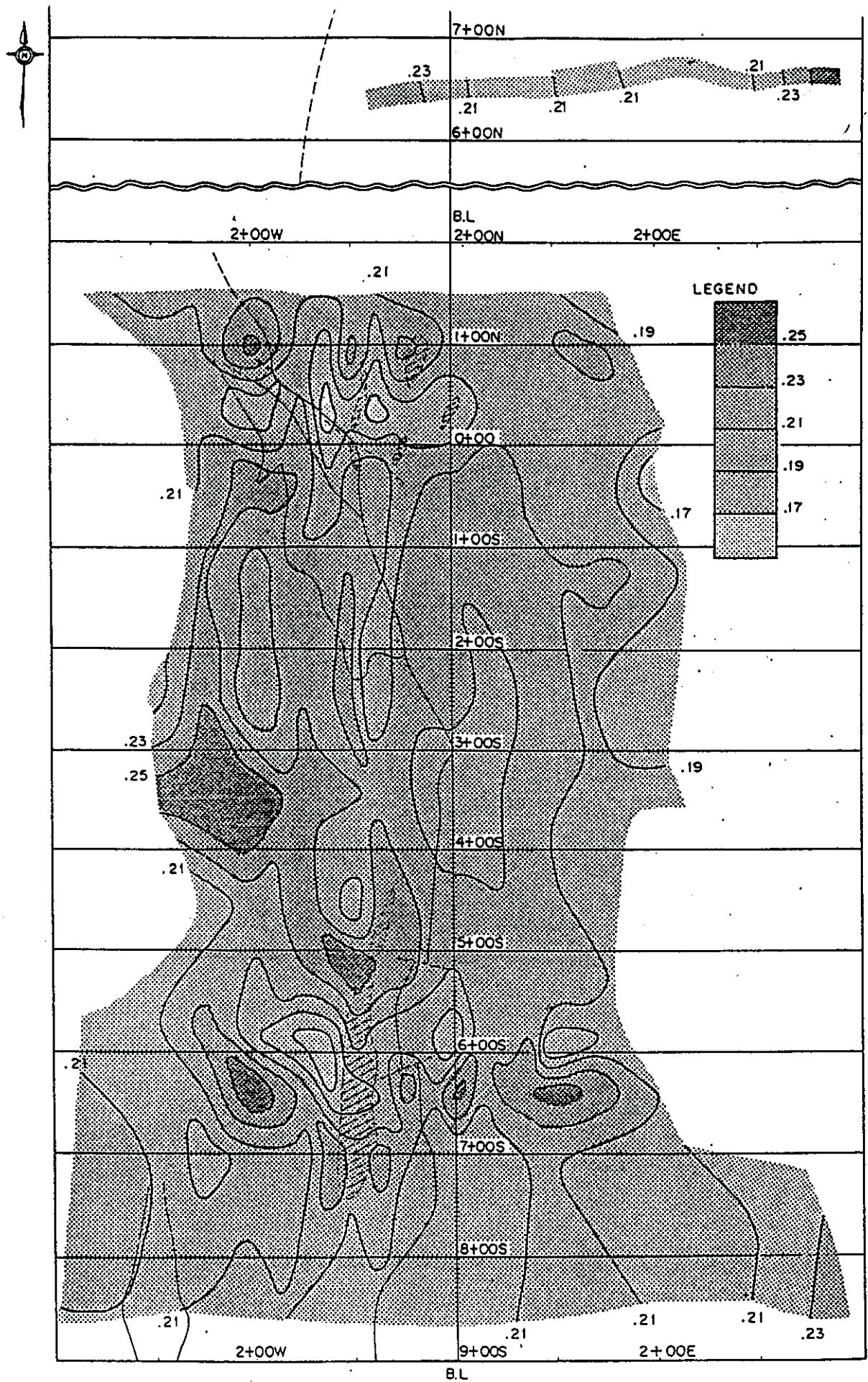


図-11 Ser comp : 絹雲母の組成中の Al/Fe+Mg 比

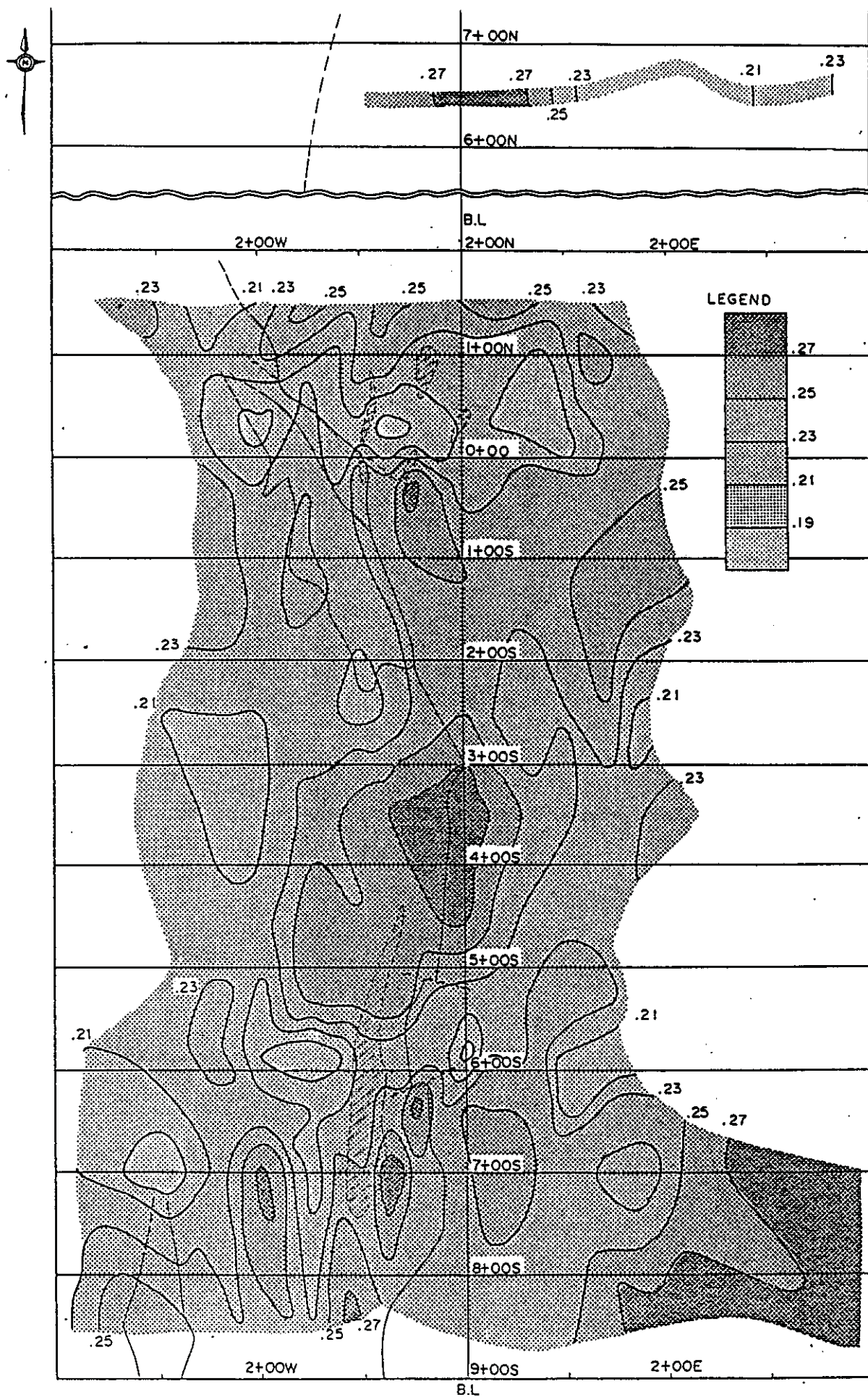


図-12 Ch cryst: 緑泥石の結晶度 (結晶度が高いほど値は低くなる)

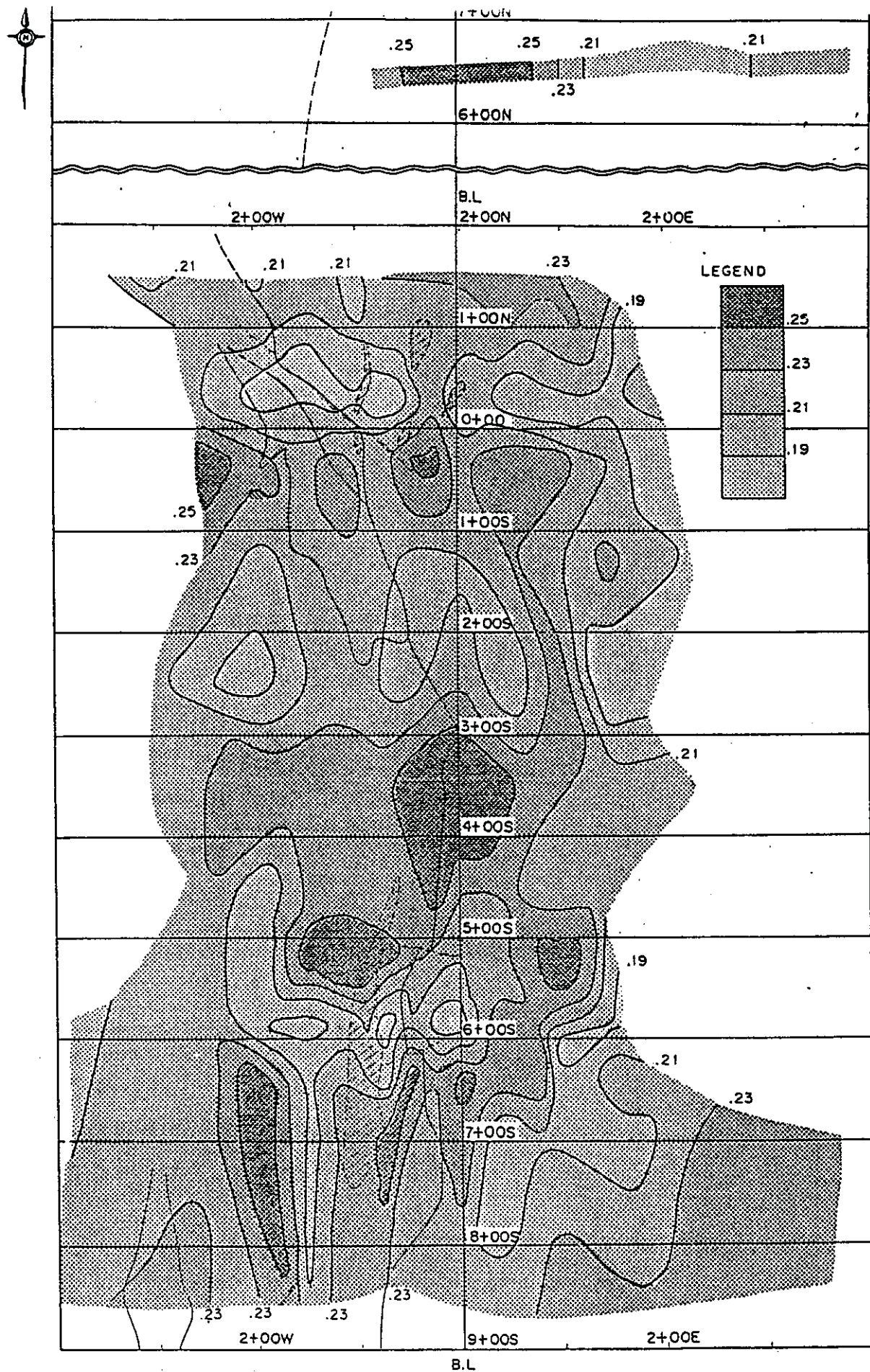


図-13 Ser cryst: 絹雲母の結晶度 (結晶度が高いほど値は低くなる)

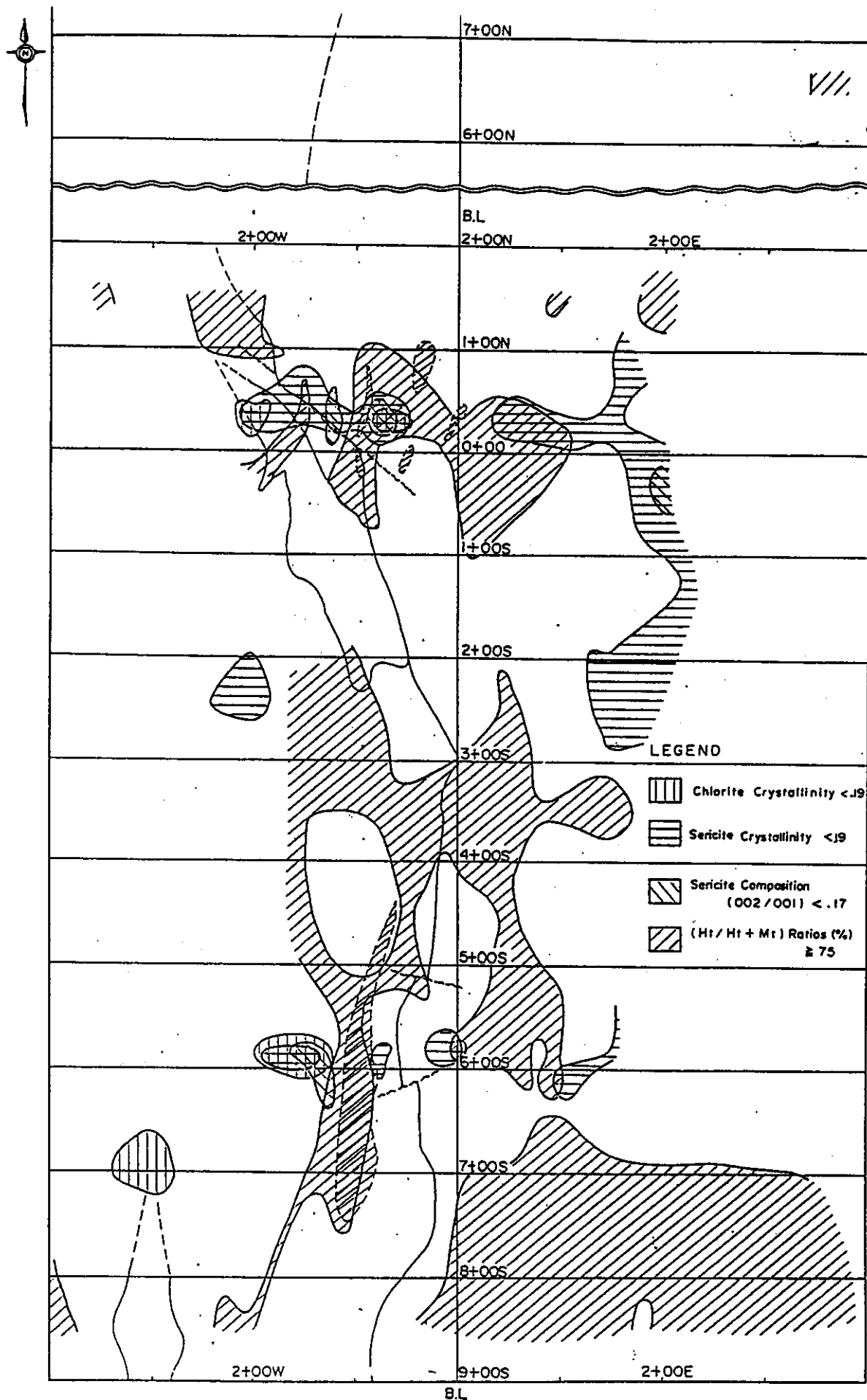


図-14 変質ハローによるウラン鉱化部の推定

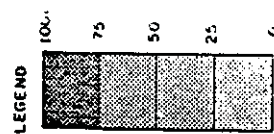
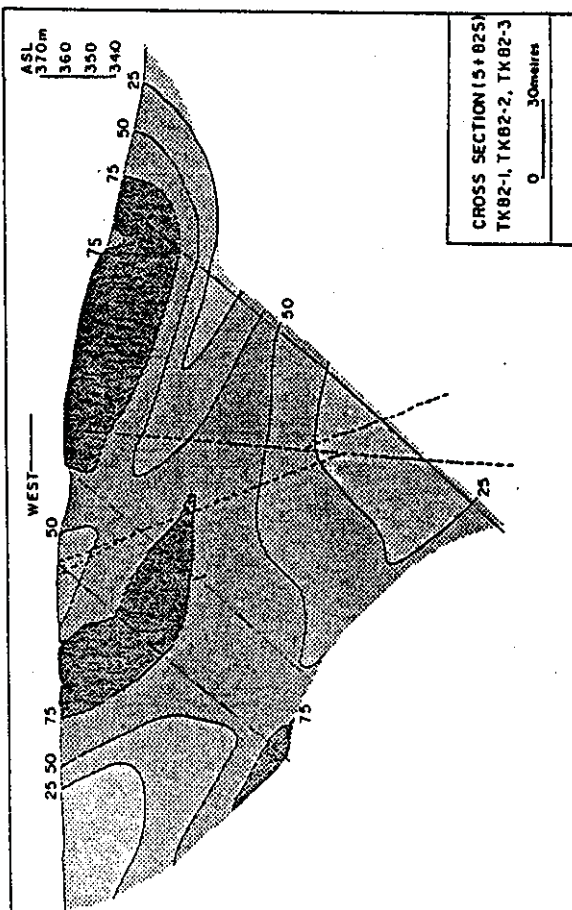
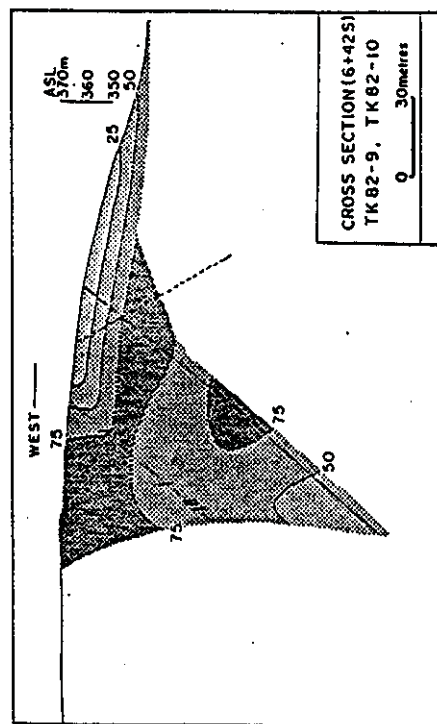
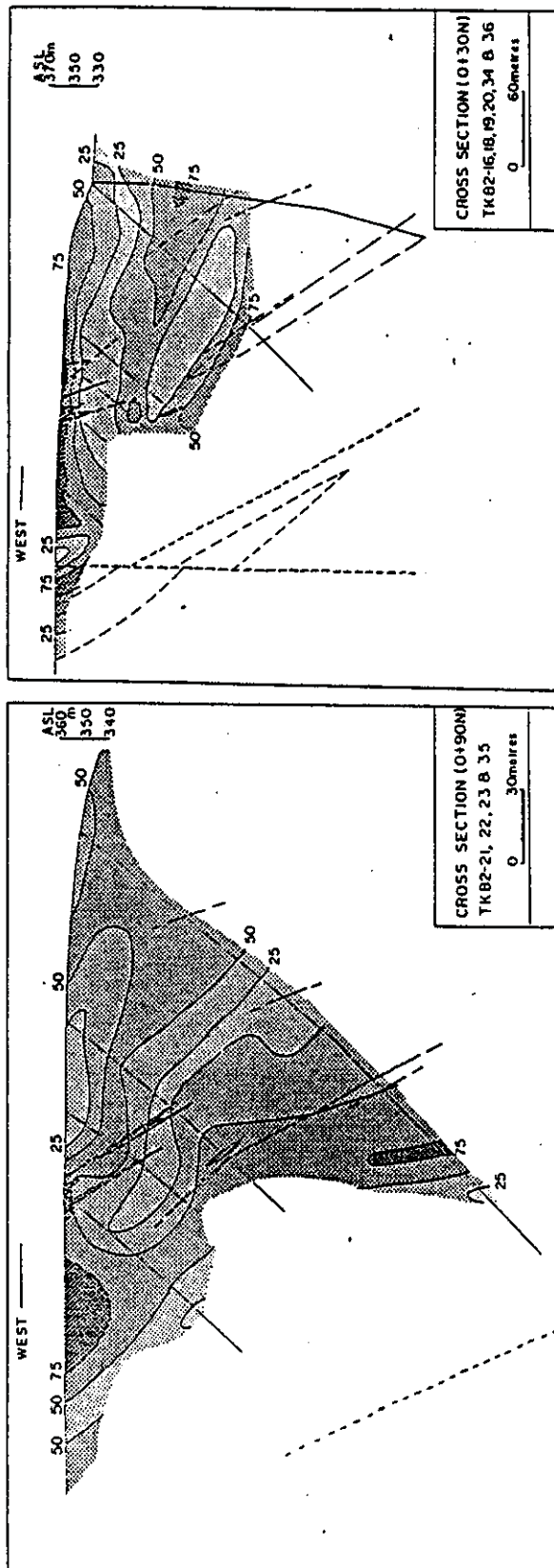


図-15 H_t/H_t+M_t による変質ハローの地下への広がり

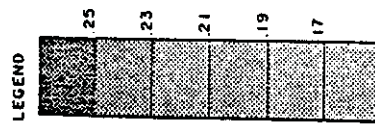
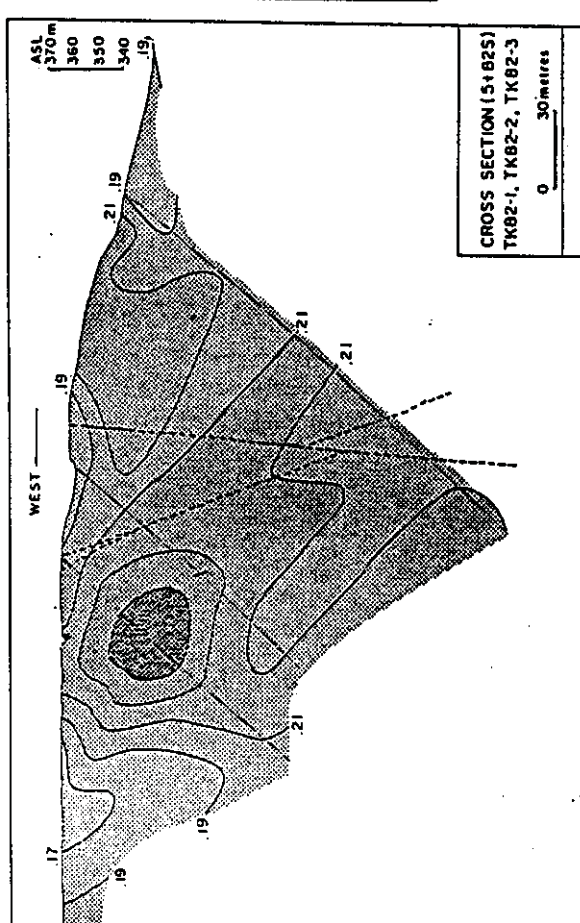
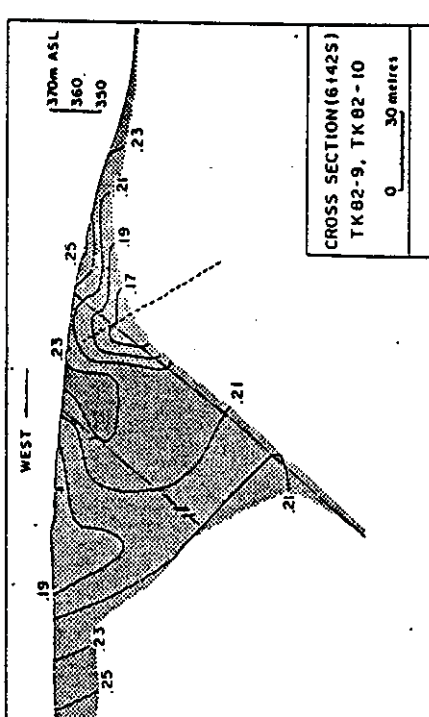
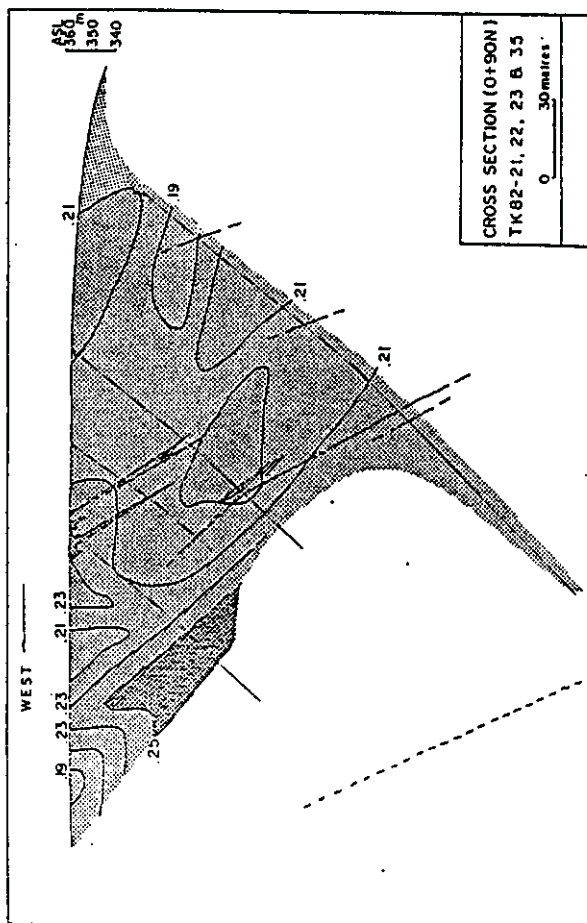
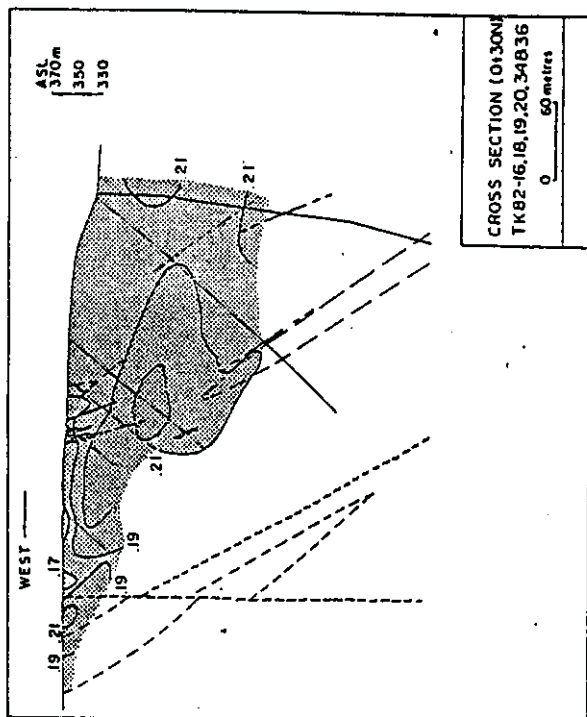


図-16 9er comp による変質ハローの地下への広が

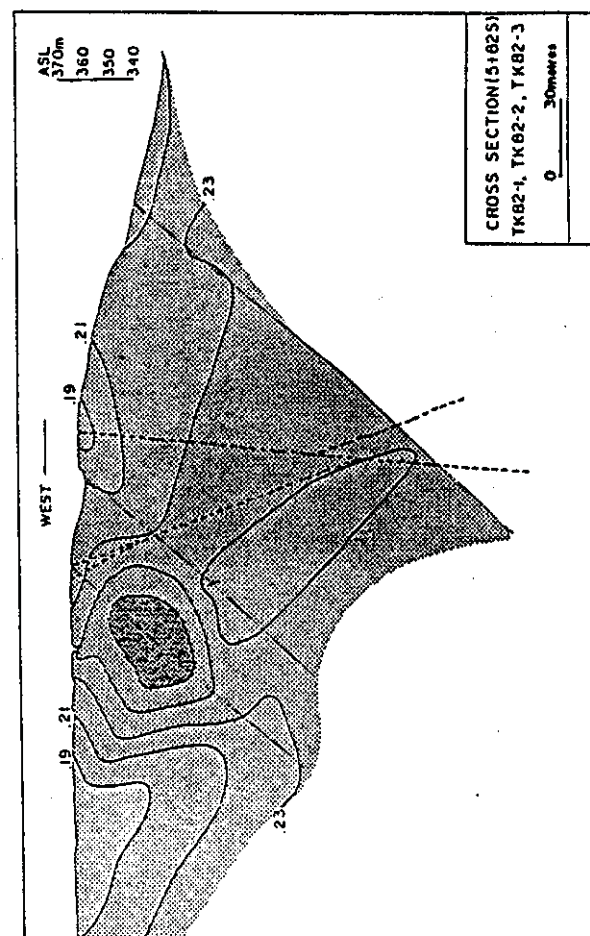
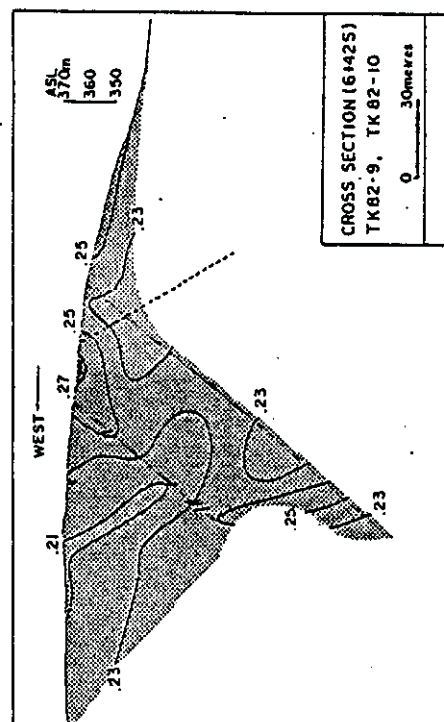
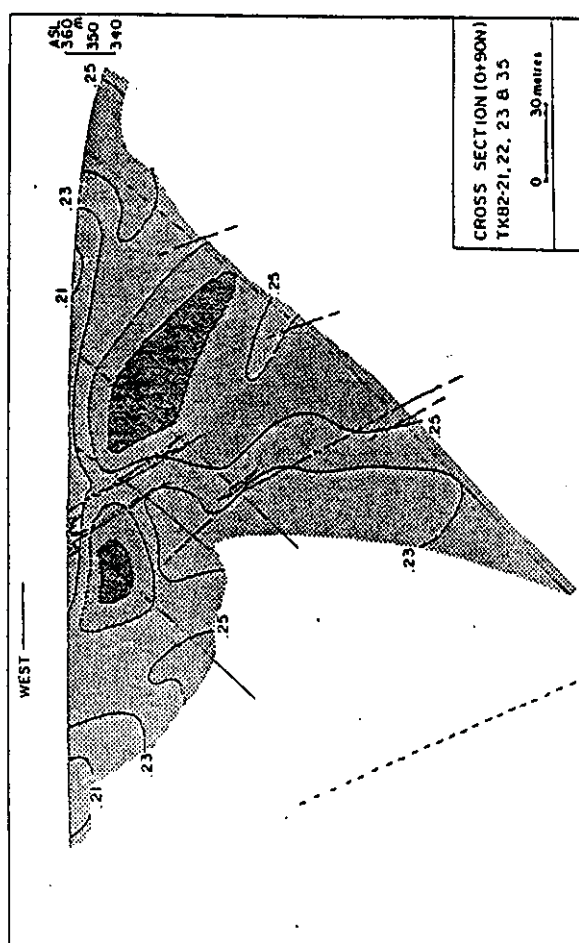
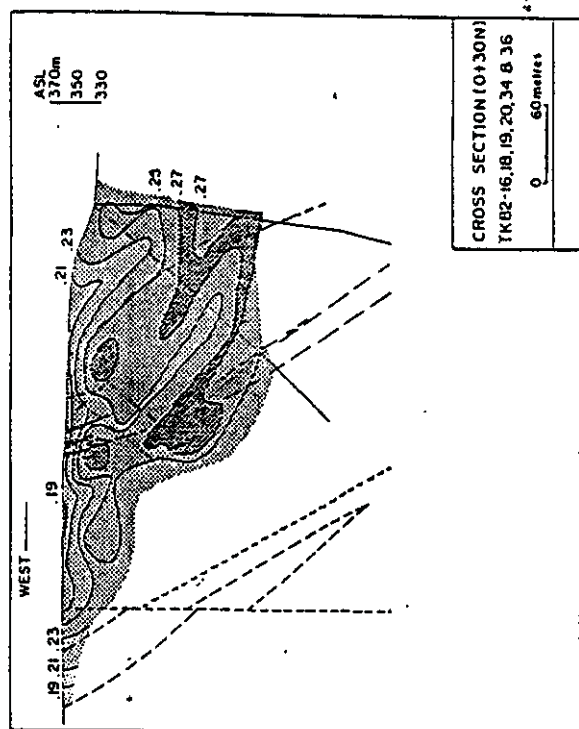


図-17 Oh cryst による変質ハローの地下への広がり

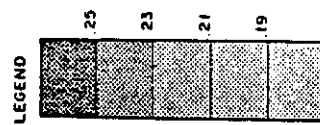
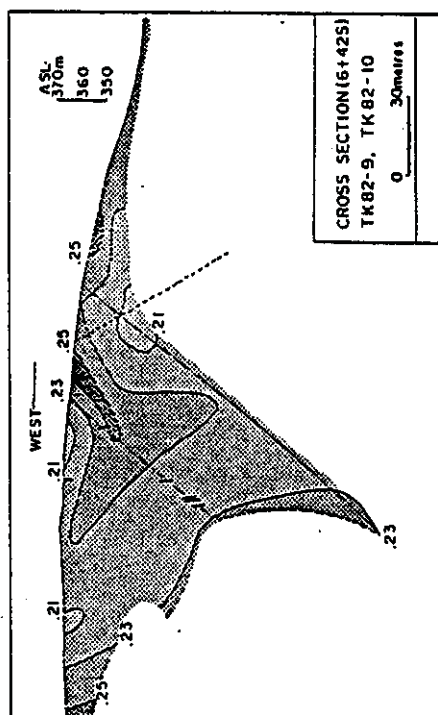
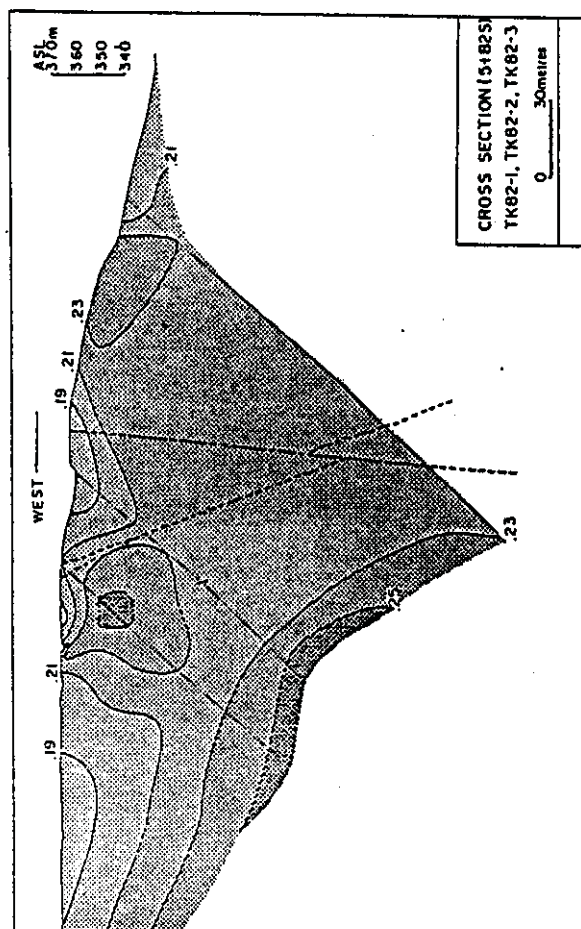
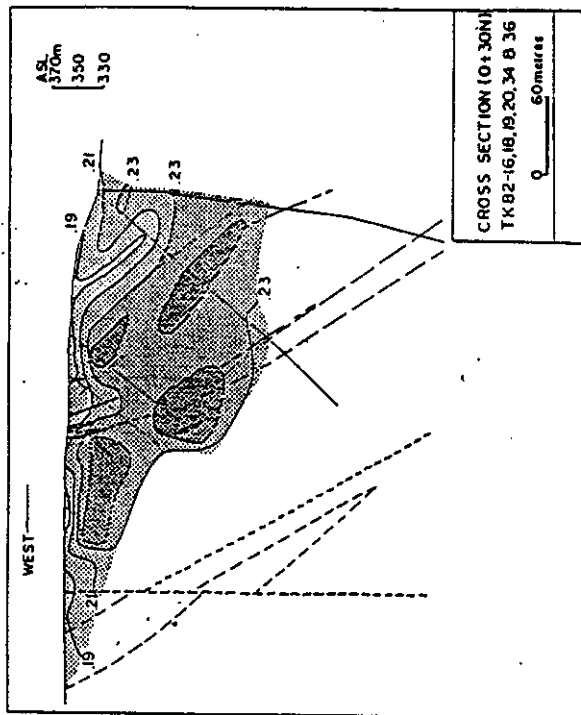
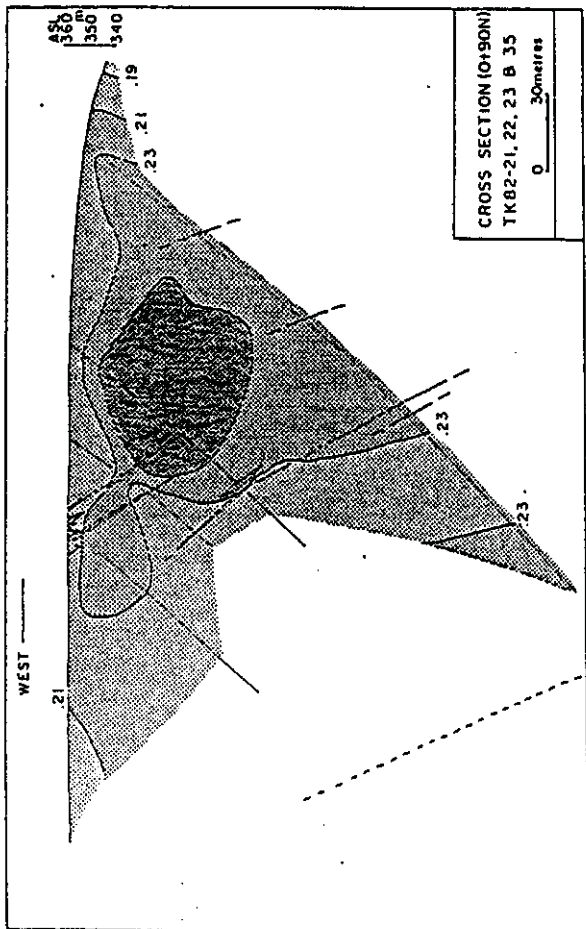


図-18 Ser c tによる変質ハローの地下への広がり

3-③ マルガロック鉍石処理試験について

報告者

鉍石試験室

BPC (BLACK PEATY CLAY) 鉍石によるウラン浸出、固液分離、および模擬貴液を使用して抽出試験を、実施した。これらの結果と、昨年度で製錬プロセス試験設備が完成したので、あわせて報告する。

1. BPC 鉍石について

- ① 酸化還元境界下部の黒色泥岩質粘土岩である。
- ② 炭質物（炭素含有量で表示）は、PNCコンポジットサンプル（Composite Sample）と比べて多い。
- ③ 粘土鉍物の含有量は、PNCコンポジットサンプルと比べて少ない。
- ④ 他の元素については、大きな差異はない。

2. 鉍石の粒径

浸出試験および固液分離試験に用いた鉍石は全て、2 mm以下の粒径に調製した。

3. ウラン浸出試験

3-1 希硫酸法

硫酸量：60, 80, 100 kg/t-ore, 酸化剤（ NaClO_3 ）量：3, 6, 10, 20 kg/t-ore, 浸出温度 60℃：浸出時間 300 分, パルプ濃度 50%（Wet base）で浸出した結果を、表-1, 図-1 に示す。

この図から解かるように、酸化剤の添加量が増しても、ウラン浸出率の増加は少ない。

次に、浸出時間とウラン浸出率の効果については、図-2 に示すように、5 時間と 24 時間とでは、ほとんど変化がなく 1 時間でもかなりの浸出率が得られていることが解る。

3-2 焙焼した場合

BPC 鉍石を、700℃, 2 時間, 電気炉に入れて焙焼した。焙焼による減量は、炭質物の燃焼と合わせて、約 65% 程度認められた。このようにして得られた焙焼鉍石を用いて、パルプ濃度 40% の条件で浸出を行なった。その結果を表-2 に示す。

硫酸量を、100, 120, 140, 200kg/t-ore と変化させた。酸化剤の量は、10kg / t-ore で一定にした。硫酸量200kg/t-ore の条件で得られた浸出率は、82%で未焙焼鉍石の場合に比べてかなり低い値であった。

3-3 硫酸混和法

硫酸量60, 100kg/t-ore, 酸化剤量10kg/t-ore, 加熱温度80℃, 加熱時間60分で行った結果を、表-3に示す。この表から、未焙焼鉍石の希硫酸法によるウラン浸出率と、ほぼ同様の結果が得られた。

4. 固液分離特性

4-1 沈降試験

① 未焙焼鉍石の場合

パルプ濃度20%(Dry base), Separan MG200を、スラリー量に対してそれぞれ添加した時の沈降特性を図-3に示す。Separan MG200を、600ppm添加すると、フロックの沈降速度が、他の添加濃度に比べて、相当早くなることが解った。

② 焙焼鉍石の場合

パルプ濃度30%で、SeparanMG200を、スラリー量に対してそれぞれ添加した時の沈降特性を図-4に示す。この結果から、SeparanMG200の添加濃度は、30ppm前後が適当な濃度と考えられる。

4-2 ケークの戸過比抵抗の測定

リーフテスターにより測定した結果を、表-4に示す。この結果から、鉍石を乾燥することによって、戸過比抵抗値は、小さくなることが解った。

5. 溶媒抽出試験

ウラン抽出剤として、D2EHPA+TBP+クロシン溶媒を用いて、試験を行った。

5-1 抽出試験

第3相防止のためのD2EHPA濃度と、TBP限界濃度との関係を図-5に示す。

次に、TBP濃度の影響を知るために、D2EHPA濃度を一定にして、TBP濃度を変化させた結果を表-5に示す。表-5の結果から、TBP濃度0.07~0.2Mの範囲で、ウランの分配係数が、最も高くなると考えられる。

5-2 逆抽出試験

逆抽出剤として炭酸ナトリウム（かん水で溶解）を用いた。炭酸ナトリウムの濃度の影響を調べた結果を表-6に示す。その結果、0.1M-D2EHPA+0.075M-TBP-クロシン溶媒では、15%炭酸ナトリウム、0.2M-D2EHPA+0.09M-TBP+クロシン溶媒では、20%炭酸ナトリウムが、最適であった。

6. ま と め

6-1 浸出試験

① 硫酸浸出（未焙焼鉍石）

硫酸量 80kg/t-ore，酸化剤量（ NaClO_3 ）3kg/t-ore，浸出温度 60℃，浸出時間 180分，パルプ濃度 50%（Wet base）が，現段階の最適条件でそのときのウラン浸出率は，約 90%であった。

② 硫酸浸出（焙焼鉍石）

硫酸量を，未焙焼鉍石の約 3 倍以上使用しても，ウラン浸出率は，82%であった。しかし，焙焼することにより，重量が原鉍石の 1/2 以下になることや，固液分離特性を考えると，まだ検討する必要がある。

③ 硫酸混和法

試験件数は，少ないが硫酸浸出（未焙焼鉍石）とほぼ同様の結果が得られた。

6-2 固液分離特性

未焙焼，焙焼鉍石ともに，沈降性は悪い。戸過抵抗は，未焙焼鉍石は，中程度であるが，110℃で乾燥することにより，更に戸過抵抗は，小さくなった。

6-3 溶媒抽出

D2EHPA+TBP+クロシン溶媒は，かん水でも効率よくウランを吸着した。

逆抽出剤は，炭酸ナトリウム溶液で，逆抽出可能である。

7. 製錬プロセス試験設備

フローシートを，表-7に示す。又，スライドにより，各工程，装置の説明を行なった。

表-1 浸出結果 希硫酸浸出法 (B.P.O. 試料)

No	含水量 (%) (1)	鉍石重量 (g) (2)	H ₂ SO ₄ 添加量 (kg/t ore)	NaClO ₃ 添加量 (kg/t ore)	浸 出 液			浸 出 残 査			元 鈹 (計算値)		%U ₃ O ₈ 浸 出 率 $\frac{(3)}{(3)+(4) \times (5)}$	備 考
					pH	Eh (mV)	U ₃ O ₈ (mg) (3)	重量 (g) (4)	U ₃ O ₈ (mg/g) (5)	U ₃ O ₈ (mg) (4)×(5)	U ₃ O ₈ (mg) (3)+(4)×(5)	$\frac{\%U_3O_8}{(1)+(2) \times (3)}$ 94		
1	36.41	96.49	60	3	0.59	416	217	63.97	0.570	36.5	253.5	0.27	85.6	
2	"	"	"	6	0.59	410	221	62.75	0.499	31.3	252.3	0.27	87.6	
3	"	"	"	10	0.56	406	233	62.40	0.487	30.4	263.4	0.28	88.5	
4	"	"	"	20	0.56	407	237	62.47	0.393	24.6	261.6	0.28	90.6	
5	36.93	97.28	80	3	0.38	403	223	62.17	0.376	23.4	246.4	0.26	90.5	
6	37.62	98.36	"	6	0.57	403	223	63.14	0.415	26.2	249.2	0.27	09.5	
7	"	"	"	10	0.55	406	227	63.78	0.375	23.9	250.9	0.27	90.5	
8	"	"	"	20	0.52	410	222	63.68	0.445	20.3	250.3	0.27	88.7	
9	"	"	100	3	0.48	403	216	63.43	0.543	34.4	250.4	0.27	86.3	
10	"	"	"	6	0.41	407	232	62.61	0.295	18.5	250.5	0.27	92.6	
11	"	"	"	10	0.40	411	227	62.56	0.355	22.3	249.3	0.27	91.1	

備考：34.72%含水量での元鈹品位U₃O₈% = 0.26

(1)(2)：34.72%含水量鉍石であれば、鉍石重量は、計算により94gとなる。

浸出温度：60℃

パルプ濃度50% (34.72%含水量鉍石 / 浸出液 = 1/1) 鉍石粒径：-2mm

浸出時間：300分

表-2 浸出結果 焙焼鉍石による希硫酸浸出法 (B. P. C 試料, 焙焼温度 : 700℃, 焙焼時間 : 2時間)

No	鉍石重量 (g)	H ₂ SO ₄ 添加量 (kg/t-ore)	NaClO ₃ 添加量 (kg/t-ore)	浸 出 液			浸 出 残 査			元 鈹 (計 算 値)		備 考
				pH	Eh (mV)	U ₃ O ₈ (mg) (1)	重 量 (g) (2)	U ₃ O ₈ (mg/g) (3)	U ₃ O ₈ (mg) (2) (3)	U ₃ O ₈ (mg) (1)H(2)×(3) 65	%U ₃ O ₈ 浸 出 率 (1) (1)H(2)×(3)	
13	65	100	10	3.53	446	354	66.91	1.830	122.4	476.4	74.3	
14	65	120	"	3.52	452	363	66.27	1.458	96.6	459.6	79.0	
15	65	140	"	3.46	463	362	65.94	1.473	97.1	459.1	78.8	
16	65	180	"									
17	65	200	"	3.44	479	384	64.99	1.298	84.4	468.4	82.0	

備考 : パルプ濃度 : 40% (焙焼鉍石 / 浸出液 = 1 / 1.5)

浸出温度 : 60℃

鉍石粒径 : - 2mm

浸出時間 : 300分

焙焼後の元鈹品位 U₃O₈ % - 0.74

表一 3 浸出結果 硫酸混和法 (B. P. C 試料)

[illegible]備考：34.72%含水量での元鉱の品位 $U_3O_8\%$ = 0.26

鈇石粒徑：-2mm

炉内温度 = 80℃

加熱時間 = 60 分

鉍石に一定量の97%濃硫酸を加えて混和したのち、一定温度に加熱した電気炉中に入れ、一定時間加熱する。

炉から取り出し、80℃の温水を（含水量34.72%鉍石/温水濃硫酸=1/1になる様）に入れて攪拌する。

30分後に戸過する。

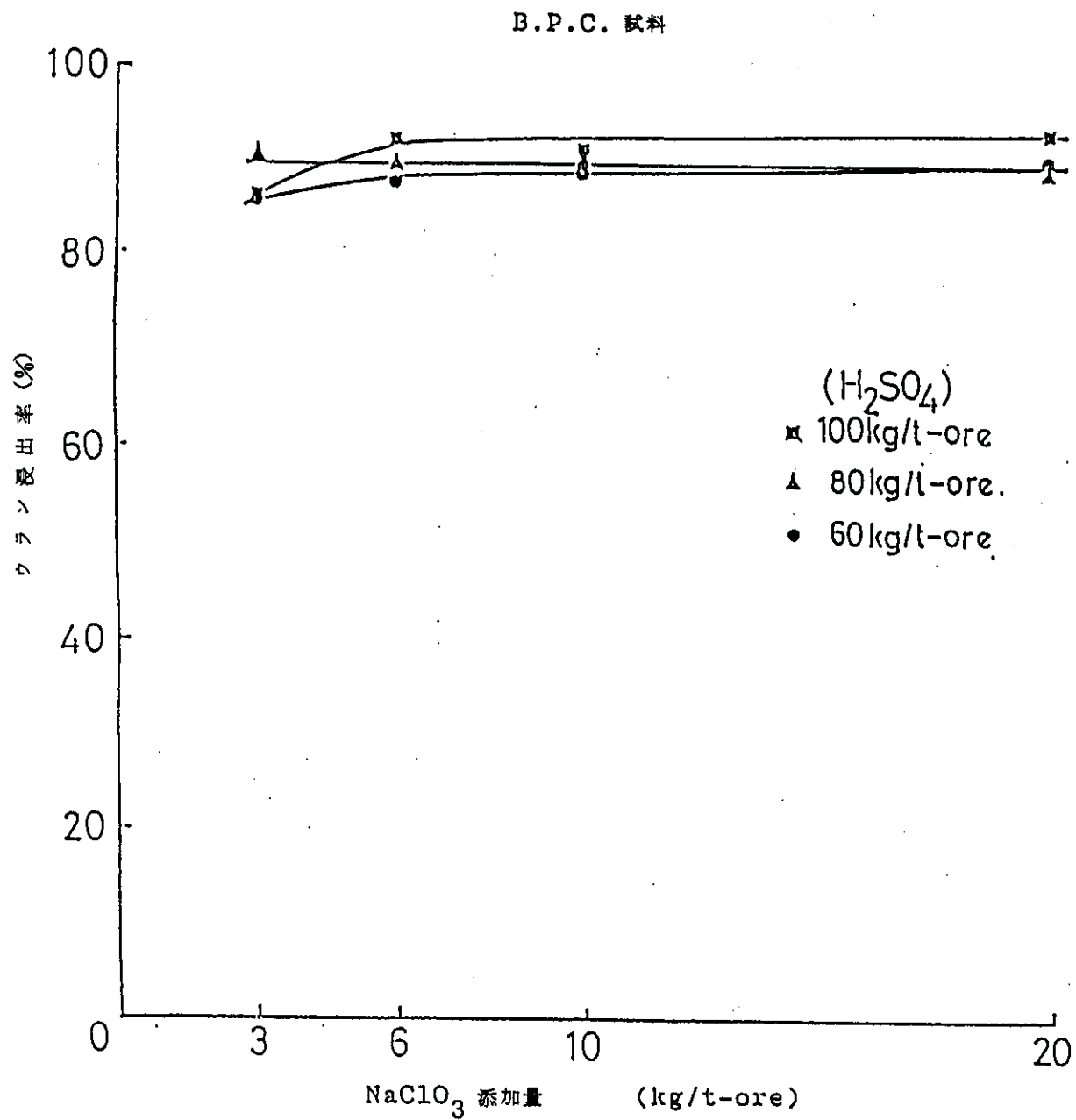


図-1 ウラン浸出率に与えるH₂SO₄と酸化剤の効果
 (浸出温度: 60℃ 浸出時間: 300分 パルプ濃度: 50%(含水状態))

B.P.C. 試料

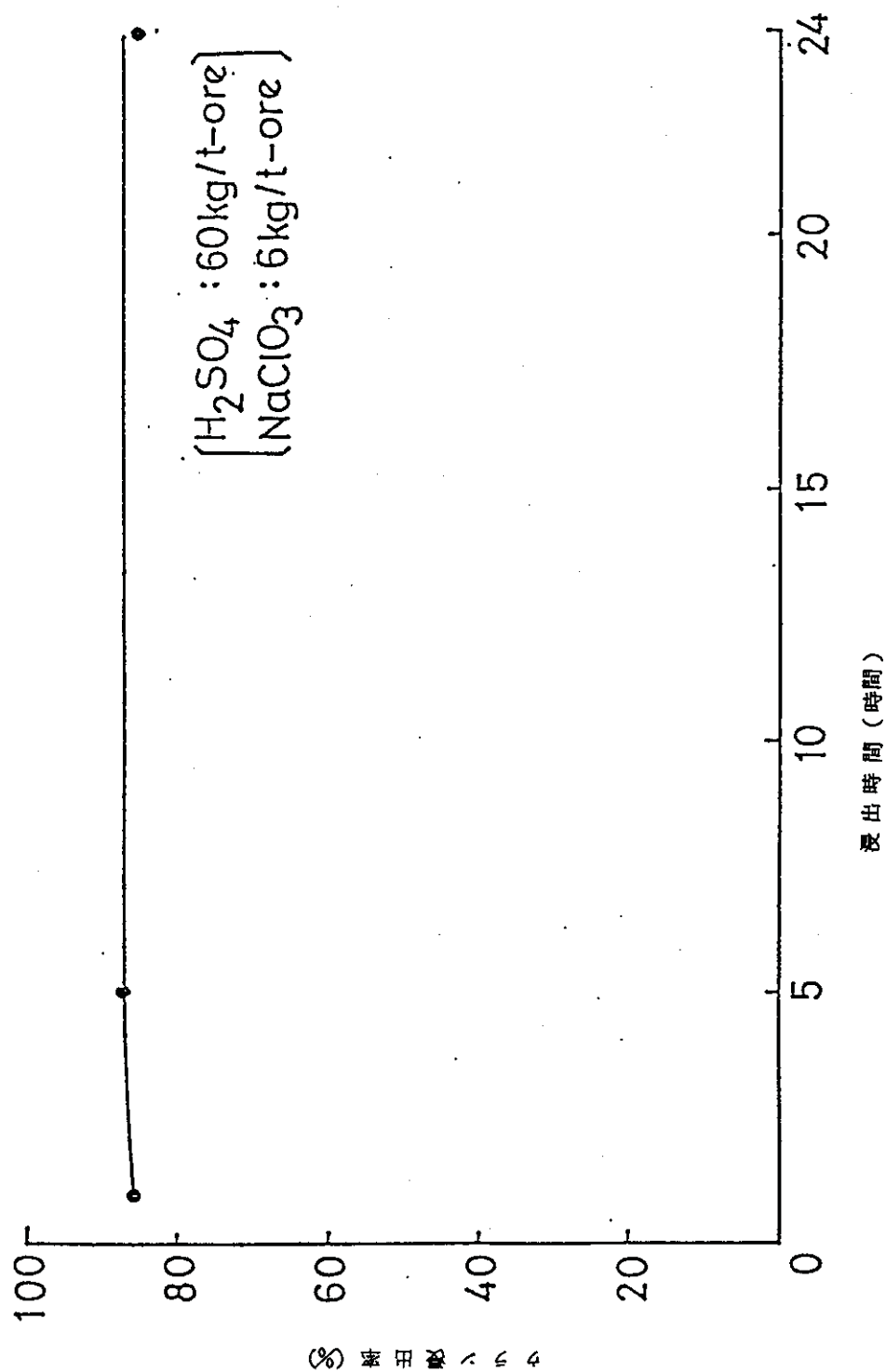


図-2 ウラン浸出率に与える浸出時間の効果

(H_2SO_4 添加量: 60 kg/t-ore , NaClO_3 添加量: 6 kg/t-ore)

浸出温度: 60°C , パルプ濃度: 50% (含水状態)

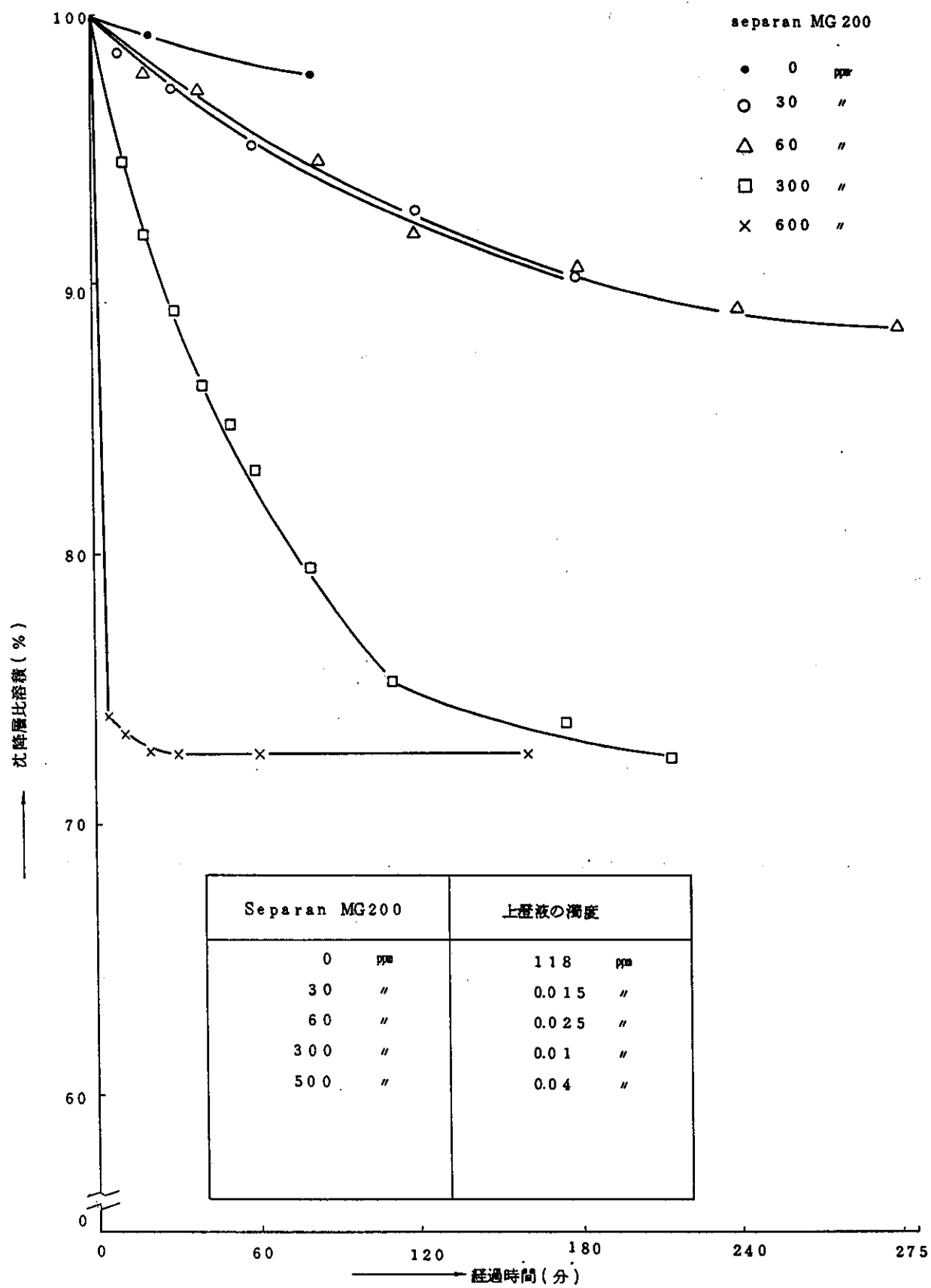


図-3 未焙焼鉍石沈降試験 (B.P.C 鉍石)
パルプ濃度 20 %

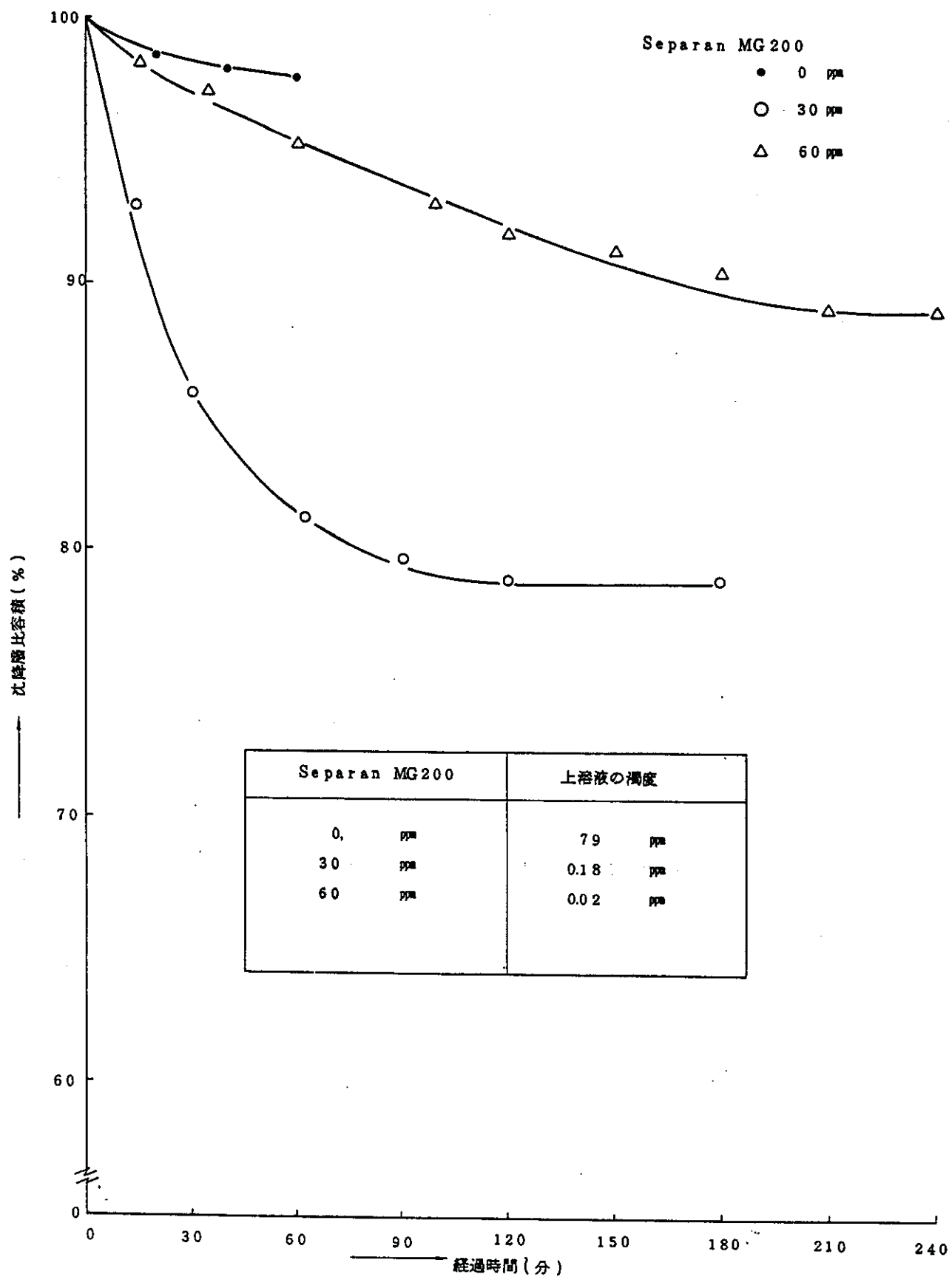


図-4 焙焼鉍石沈降試験 (B.P.C 鉍石)
パルプ濃度 30 %

表-4 戸過比抵抗の測定 (B. P. C. 鉍石)

試 料	浸 出 法	パルプ濃度 (%)	※-1 戸過比抵抗値 α (m/kg)
未焙焼鉍石	硫 酸 浸 出	32.6	1.26×10^{12}
焙 焼 鉍 石	硫 酸 浸 出	40.0	4.2×10^{11}
※-2 乾燥鉍石	硫 酸 浸 出	32.6	3.0×10^{10}
乾 燥 鉍 石	硫 混 法		8.54×10^{10}

※-1 戸過比抵抗値

$$\alpha = \frac{2 \cdot \Delta p \cdot g c \cdot A^2}{k \cdot \mu \cdot c}$$

Δp : 戸 過 圧 (kg/m²)

A : 戸 過 面 積 (m²)

C : 換算係数 [乾燥ケーキ / 戸液量] (kg/m³)

μ : 戸液粘度 (kg/m·sec)

gc : 重力単位換算係数 (kg·m/kg·sec²)

k : 実験値から得られた値 (m⁶/sec)

※-2 乾燥鉍石

乾燥器内温度 110℃ で付着水分を除いた鉍石

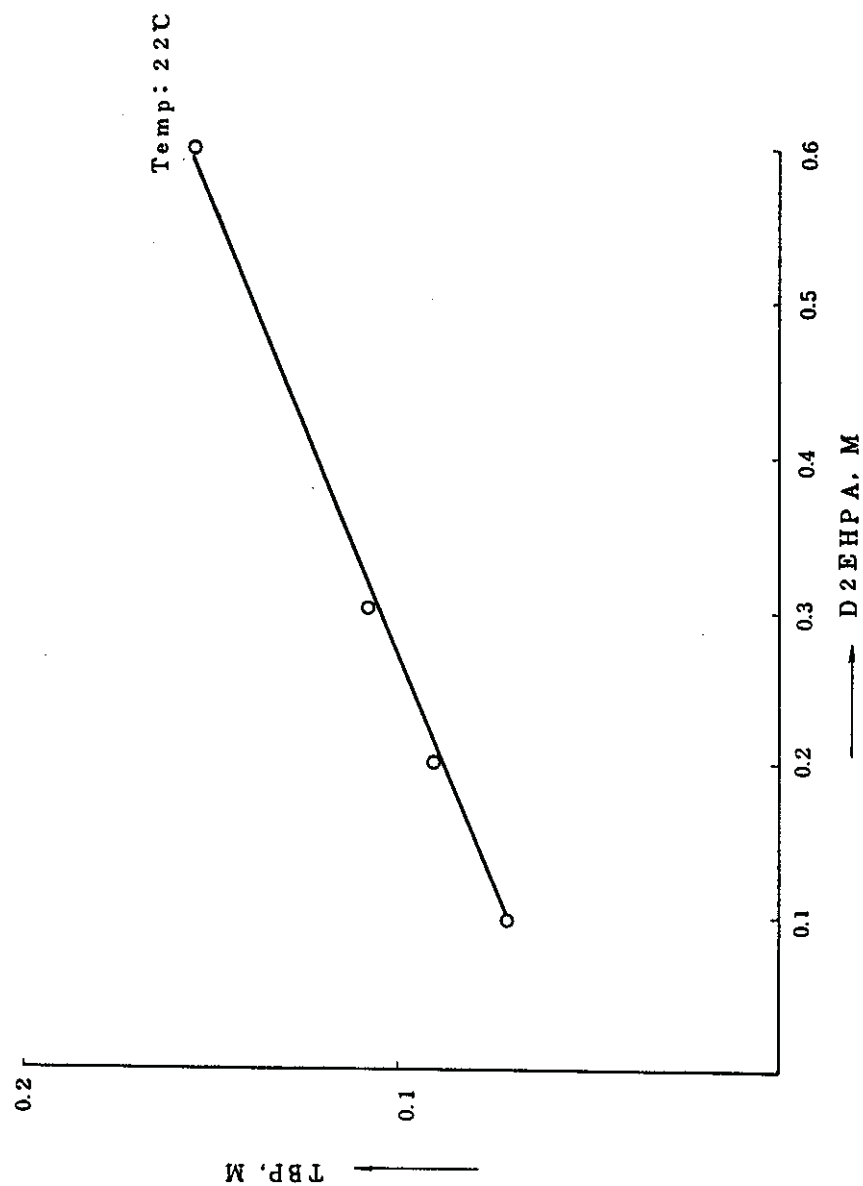


図-5 第3相防止のためのD2EHPA濃度とTBP限界濃度との関係, 溶媒と10%- Na_2CO_3 との液比=2/1

表 - 5 TBP 濃度の影響

D ₂ EHPA M	TBP M	ウラン濃度 (g/l)		E _A ^o
		U in aq	U in Org	
0.1	0.07	0.016	4.584	287
0.1	0.20	0.014	4.596	328
0.1	0.30	0.018	4.572	254
0.1	0.50	0.030	4.50	150
0.1	0.70	0.045	4.41	98

貴液組成

U : 0.78 g/l

NaCl : 75 g/l

Na₂ SO₄ : 17 g/l

pH : 1.0

O/A = 1/6

表-6 逆抽出試験

A) 0.1M-D2EHPA+0.075M-TBP+Kerosine

O/A	10%-Na ₂ CO ₃			15%-Na ₂ CO ₃			20%-Na ₂ CO ₃			25%-Na ₂ CO ₃		
	U _{inorg} (g/L)	U _{inaq} (g/L)	逆抽出率 (%)	U _{inorg} (g/L)	U _{inaq} (g/L)	逆抽出率 (%)	U _{inorg} (g/L)	U _{inaq} (g/L)	逆抽出率 (%)	U _{inorg} (g/L)	U _{inaq} (g/L)	逆抽出率 (%)
10/1	0.296	28.3	90.5	0.188	27.52	93.6	0.545	23.95	81.5	1.132	18.08	61.5
13/1	1.257	24.297	59.8	0.363	33.5	87.7	0.800	27.82	72.8	1.311	21.18	55.4
15/1	1.835	19.365	41.3	0.421	37.79	85.7	1.025	28.73	65.2	1.835	16.58	37.6

Na₂CO₃ 溶液は、かん水にて調整

溶媒中のウラン濃度：3.126 g/L (10%-Na₂CO₃)

2.94 g/L (15-25%Na₂CO₃)

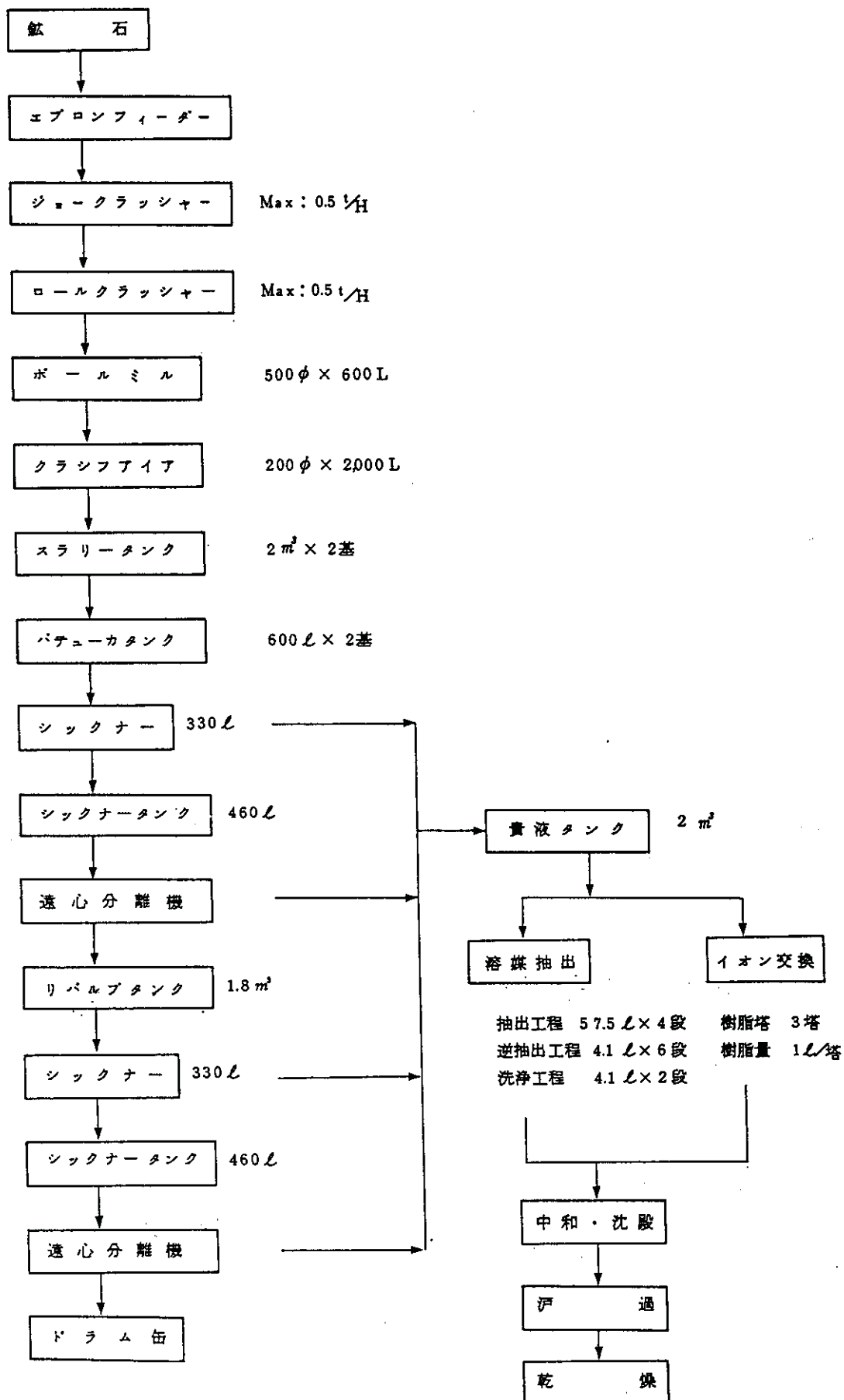
B) 0.2M-D2EHPA+0.09M-TBP+Kerosine

O/A	10%-Na ₂ CO ₃			15%-Na ₂ CO ₃			20%-Na ₂ CO ₃			25%-Na ₂ CO ₃		
	U _{inorg} (g/L)	U _{inaq} (g/L)	逆抽出率 (%)	U _{inorg} (g/L)	U _{inaq} (g/L)	逆抽出率 (%)	U _{inorg} (g/L)	U _{inaq} (g/L)	逆抽出率 (%)	U _{inorg} (g/L)	U _{inaq} (g/L)	逆抽出率 (%)
10/1	3.269	0.021	0.6	0.476	28.14	85.5	0.296	29.94	91.0	0.274	30.16	91.7
13/1	3.290	0	0	2.284	13.078	30.6	0.7606	32.882	76.9	0.625	34.654	81.0
15/1	3.290	0	0	3.149	2.115	4.3	1.665	24.375	49.4	2.436	12.81	26.0

Na₂CO₃ 溶液はかん水にて調整

溶媒中のウラン濃度：3.290 g/L

表-7 製錬プロセス試験設備フローシート



質 疑 応 答 記 録

質 疑

- ① 700℃程度で焙焼したら、浸出率がわるくなっているのは、どういう原因か。
- ② 粒度分布とウラン浸出率の関係は、どうか。
- ③ 沈降特性の悪いのは粘土に関係しているのか。

応 答

①に対して、

鉱物的には、決定できないが、おそらく炭質物の燃焼によりウランが還元され、浸出しにくくなったためと思われる。

②に対して、

粒度分布別に浸出した結果、ウラン浸出率には、大きな差異は認められなかった。

③に対して、

700℃ で焙焼すると、脱水にともなう粘土の物性変化によって、沈降特性は良くなると考えられる。沈降特性の悪いのは粘土に関係していると言える。

3-(4) オール硫酸法技術開発について

報告者 鉾石試験室

1. はじめに

オール硫酸法とは、溶媒抽出の逆抽出工程において、塩酸を使用せず硫酸のみを使用する方法である。このため副原料入手困難な場所において非常に有効な方法であり、完全なクローズドシステムも可能である。

図1の現行のPNC法との比較より、メリットとしては、①廃液のリサイクルが可能、②逆抽出が簡単、③炭酸ソーダ洗浄工程が不要、④固体廃棄物が少ない等が考えられるが、一方デメリットとしては、工程が多くなる等があげられる。

本年度は、オール硫酸法に関する残された問題点として、①溶媒抽出試験、②電解還元連続化に関する試験、③硫酸ウラナスの溶解範囲の決定等について行なった。

2. 溶媒抽出試験

ニジェール産Y、Cを比較的低濃度の硫酸(120g/l程度)に溶解して抽出廃液中の硫酸濃度を低下させ、これに伴ないU濃度を小さくすること、及びMo、Zr等の不純物の挙動を調べることを目的とした。

1) 分配係数の決定

ニジェール産Y、Cを30~400g/l程度の硫酸50mlに溶解して0.6M-TNOA+2-Ethyl hexyl alcohol+Kerosene 50mlとを分液ロートで振とうさせ、10分後平衡に達した有機相、無機相中のU、Mo、Zr濃度を分析し、分配係数を求めた。その結果を図2に示した。

2) ミキサーセトラーによる試験

ニジェール産Y、Cを118g/l硫酸に溶解し、貴液とした。この貴液と1)に示した組成の有機溶媒を表1に示した流速でミキサー容量約200ml、セトラー容量約300mlの各10段に流した。この時の逆抽出液、抽出廃液中のU、Mo、 SO_4^{2-} 濃度の経時変化を図3に示した。また、トータル35時間運転後の各段の有機相、無機相中のU、Mo、Zr、 SO_4^{2-} 濃度を求めた。この結果を表1に示した。

以上の結果より、貴液の硫酸濃度が118 g/lであるにもかかわらず、抽出廃液中の硫酸濃度は、時間の経過とともに高くなり、35時間後には212 g/lと高い値になった。またウランについても74 ppmと高い値を示し、1 ppm以下におさえる事はできない事がわかった。

抽出廃液中のU濃度を1 ppm以下にするためには、抽出廃液中の SO_4^{2-} 濃度を30 g/l程度にする必要があり、そのためには、逆抽出工程から出た溶媒中の硫酸濃度をなんらかの方法により、下げる必要がある。

また、Moについては、逆抽出液中のMo濃度は121 ppmであり、電流効率が1%低下する値100 ppmとほぼ同値であった。

Zrについては、逆抽出液中の濃度は19 ppmであった。Zrについては電解還元のスベック記載がないので今後検討を要する。

3. 電解還元の連続化に関する試験

本年度は、回分式電解法によるウラニルイオンの還元速度並びに電流効率の経時変化に関する理論的考察を行なうと共に、実操業におけるウランの電解還元の還元率及び還元の終点を検出する為の小型モニター電極の開発を行なった。又小型複極式電解槽を用いた硫酸ウラニル水溶液の回分式電解還元を行ない、電解中に陰極表面で発生する水素ガスの役割並びにチタン電極の水素過電圧の低下がウランの電解還元特性に及ぼす影響について検討した。さらに、新たなウランの連続式電解法の開発にあたって必要となるウラニルイオンの電解還元特性に及ぼすフッ酸の影響について検討した。

1) ウランの電解還元モニターの開発

図4に示すようなモニター電極を陰極液の循環経路の陰極室の出口に組み込んだ。このモニターは、チタン参照電極(RE)、チタン陰極(WE)及び白金対極(CE)から成るので、内径 $\approx 0.9\text{cm}$ のアクリル樹脂製の円管の内側に液の流れの上流からRE、WE、CEの順に電極を配置したものである。

図5は上記の実験中の電解還元開始後、0、10、20、30、及び40分後におけるモニター電極系で得られた電流-電圧曲線である。この際使用した陰極電位の走引速度は 10 mVs^{-1} であった。図より明らかなようにモニター電極系で得られた電流-電圧曲線は還元反応の進行と共に下方向に移動し、反応物質であるウラニルイオン濃度の低下を示している。

図の各電流－電圧曲線に対し低電位側及び高電位側にそれぞれ接線を引き、それらの交点Pの示す電流値からウラニルイオンの電解還元の限界電流値、 I_L を決定した。この I_L 値は、陰極液の流動条件が一定の下では、ウラニルイオン濃度に比例するものである。従って、 $I_{L,0}$ を電解開始直後の限界電流値、 $I_{L,t}$ を時刻 t におけるそれとすると $1 - (I_{L,t}/I_{L,0})$ は、ウラニルイオンの消費率、すなわち還元率を与えることになる。そこで図5の限界電流値から算出した還元率と実際に化学分析によって決定した還元率との比較を行なった。それらの結果を図6に示す。図は縦軸に $\{1 - (I_{L,t}/I_{L,0})\} \times 100$ 、横軸に化学分析で得たウラニルイオンの還元率をとったもので両者に1対1の対応があれば傾き1の直線関係を示す。図より明らかなように同様な組成の硫酸ウラニル水溶液を用いて実験を三度繰返し行なったが、何れの場合にもデータは傾き1の直線関係を示した。この結果は、ウラニルイオンの電解還元中に化学分析によって還元率決定を行なうかわりに、モニター電極系を用い限界電流値を決定することにより還元率を知ることができることを示している。

一方、複極式電解槽でウランの電解還元を行なう際、モニター電極系を常時一定電位で駆動し流れる電流の経時変化を記録したものが図7である。モニター電極系の設定電位は -800mV であった。この図より電解還元の進行と共にモニター電極系で観測される電流値が減少してゆくことがわかる。さらに興味深いことは電解開始後67分18秒でモニター電極系に流れる電流が零になった直後、電流の急激な立上がりが見られることである。この時点での化学分析によるウラニルイオンの還元率は100%であった。

2) 実操業で使用されたチタン電極のウランの電解還元特性

製錬・転換パイロットプラントの電解還元工程で、すでに2500～3000時間の操業に使用した電極から切り出したチタン電極を用いて硫酸ウラニルの電解還元の電流－電圧曲線を測定した。図8にその結果を示した。

図から明らかなように、実操業に使用されていたチタン電極の電流－電圧曲線(3)は、新しいチタン電極によるもの(1)より貴電位側へ移動する。又、ウラニルイオンの還元反応の限界電流に対応する電流の停滞は認められず、陰極電位の低下と共に電流は指数関数的に増大する。これについては、電解中の陰極表面の観察で、陰極電位 $-450\text{mV vs } 3.3\text{mol} \cdot \ell^{-1} \text{KCl AgCl-Ag}$ 附近から陰極表面においてさかんに水素ガスの発生が認められたことから判断して水素イオンの放電反応の電流がウラニルイオンの還元反応の電流に重なっ

たためと考えられる。この原因として、陽極から溶け出した白金が陽イオン交換膜を通して陰極液中に入り、これがチタン陰極表面に析出したためと考えられる。

以上の実験事実より、実操業において長時間使用されたチタン電極は、その表面への白金の析出により水素過電圧の低い電極になっていることがわかる。そこで、このような電極の表面処理を行ない、新しいチタン電極のように水素過電圧の大きな電極特性を回復させることを試みた。そのため、実操業で使用された電極を加熱した1:3の硝酸-塩酸混合水溶液(主水)中に5分間浸漬した電極、及び製錬・転換パイロットプラントにおいてチタン電極の活性化処理に用いられているフッ酸-リン酸系混合水溶液中に3分間浸漬した電極を用いてウラニルイオンの電解還元の電流-電圧曲線を測定した。これらの結果を前に示した図8の曲線4及び5に示した。

図から明らかなように、何れの表面処理を行なったチタン電極の電流-電圧曲線も新しいチタン電極の電流-電圧曲線(1)の近傍へ移動すると共にウラニルイオンの電解還元の限界電流に対応する電流の停滞を示す。

以上の実験事実に基づいて、実操業で長時間使用されたチタン電極を例えば上に述べた方法によって表面処理することにより電極のウラニルイオン還元特性を回復させることが可能である。

次に、実操業で使用されたチタン電極を用いてウラニルイオンの回分式電解還元を行ない還元速度並びに平均電流効率の経時変化を調べた。図9より水素過電圧の低下した電極によるウラニルイオンの電解還元は電解当初より低い電流効率で進行する。従って、長時間の実操業においてチタン電極上に白金が析出し電極の水素過電圧が低下することは、実操業におけるウランの電解還元の最終電流効率の低下をもたらす要因の一つと考えられる。また、製錬・転換パイロットプラントにおいては、ウランの電解還元の終期において特に電流効率の低下が著しくなることを経験している。これに対して図9より明らかなように実操業で使用されたチタン電極によるウラニルイオンの還元速度は還元率70%以上の終期においても、それほど減少を示さず、本実験条件下においては約62分で電解還元が終了した。つまり、実操業で長時間使用されたチタン電極を図4に示した複極式電解槽に組み込みウラニルイオンの電解還元を行なった場合には電解終期に還元反応が限界電流密度条件下へ移行しても、陰極表面からの水素ガス発生・離脱に基づく電解液の攪拌効果によりウラニルイオンの大きな物質移動速度が持続されるものと考えられる。

3) フッ酸イオン存在下におけるウランの電解還元に分極特性

現在、製錬・転換パイロットプラントにおいては回分方式の電解還元によりウラニルイオンをウラナスイオンに還元する方法が採用されている。これを連続方式の電解還元で行なう場合には、例えば還元率50%の電解液から反応生成物であるウラナスイオンをフッ酸添加により UF_4 として沈殿除去を行ない、残液中のウラニルイオン濃度を電解当初の値へもどして、再び電解還元を行なうというような連続方式の電解還元法の確立のための基礎実験として本実験を行なった。

本実験に用いた実験装置の模式図を図10に示した。

そこで、硫酸ウラニルの電解還元に関与するフッ酸濃度の影響を調べるため、フッ酸濃度を0.877, 1.75, 2.63, 4.38, 5.26, 6.14, 及び8.24 g/lの7水準に設定し、電解還元特性を測定した。得られた結果を図11に示した。図より明らかなように電流-電圧曲線は1.75 g/lまでのフッ酸添加により貴電位側に移動し、ターフェルプロットに相当する直線部分の勾配はフッ酸無添加の場合の $110\text{ mV} \cdot \text{decade}^{-1}$ から $160\text{ mV} \cdot \text{decade}^{-1}$ へと増大する。さらに添加フッ酸濃度が増大すると、電流-電圧曲線は逆に低電位側に移動し、ターフェル領域の直線の勾配も減少し8.24 g/lのフッ酸濃度においては $60\text{ mV} \cdot \text{decade}^{-1}$ の値となる。

図11のすべての実験条件下でウラニルイオンの電解還元反応がターフェル領域にあると考えられる陰極電位 -400 mV $NaCl$ $3.3\text{ mol} \cdot l^{-1}$ KCl $AgCl-Ag$ における電流値を添加フッ酸濃度に対してプロットしたのが図12である。図から明らかなように100 g/lの硫酸ウラニルの電解還元速度は少量のフッ酸添加で増大し、フッ酸濃度2 g/l近傍で最大値を示すが、さらにフッ酸濃度を増大させると逆に減少し、フッ酸濃度約4 g/lでフッ酸無添加のものと同程度の値を示した後、それ以下の値へ減少する。

従って、連続式のウランの電解還元を行なうに当っては陰極液中のフッ素イオン濃度4 g/l以下に保つ必要がある。

4. 硫酸ウラナスの溶解領域の決定

硫酸ウラナス溶液の結晶析出を、温度、ウラン濃度、硫酸濃度、及び時間を変化させ、またHFを添加したときの溶解範囲を調べることにより、拡散透析装置、四フッ化ウラン沈殿工程へのスペックを決定する事を目的として行なった。

〔実験方法及び結果〕

本実験に使用した硫酸ウラナス溶液は、金属ウランを硫酸に溶解した硫酸ウラニル溶液（約U:100 g/ℓ, SO_4^{2-} :100 g/ℓ）を100%電解還元したものを原液として行なった。

1) 硫酸ウラナスの溶解領域について

原液に硫酸を適量添加し、硫酸濃度の異なる4通りの硫酸ウラナス溶液を作成した。これを500ml三角フラスコに入れ、ゴム栓をして、恒温水槽中で振とうし、温度を25, 60, 90℃一定にし、溶液中の $[\text{U}^{4+}]_T$, $[\text{SO}_4^{2-}]_T$, 濃度が平衡になるまで経時変化を調べ、平衡に達した時の液組成を図13に示した。この図より、温度が高くなるに従い、溶解領域が小さくなる事がわかった。また25℃については、Uが60 g/ℓ以上において、沈殿生成物が非晶質である事から溶解度が大きくなったと推察される。

2) 生成した硫酸ウラナス沈殿について

硫酸ウラナス溶液よりの沈殿生成物について化学分析、X線回折及び熱分析を行ない、その同定を行なった。それらの結果を図14表2, 3に示した。これらの結果より総合的に考えるとその大部分は主に $\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ の組成を示し、比較的結晶度の良好な硫酸ウラナスである。しかし、25℃の μ_1 , μ_2 , 90℃の μ_1 は他と異なり25℃の μ_1 は非晶質の硫酸ウラナス、又25℃の μ_2 , 90℃の μ_1 については、含水量が4水塩とは異なる硫酸ウラナスに対応するものと推察される。

3) 硫酸ウラナスの溶解度積について

25℃における硫酸ウラナスの溶解平衡状態にある硫酸ウラナス溶液に存在すると考えられる6種の化学種, $[\text{H}^+]$, $[\text{SO}_4^{2-}]$, $[\text{HSO}_4^-]$, $[\text{U}^{4+}]$, $[\text{U}(\text{SO}_4)^{2+}]$, 及び $[\text{U}(\text{SO}_4)_3]$ を硫酸の解離定数, ウラナスイオンの硫酸錯体生成定数, 電気的中性条件及び硫酸とウランに関する物質収支より計算すると硫酸ウラナスの溶解度積は表4のようになる。2)の沈殿生成物の同定から、硫酸ウラナスの溶解度積は、実験 μ_3 , 4を平均して 1.2×10^{-6} が妥当と考えられる。また μ_1 については幾分溶解度積が大きい。これはおそらく沈殿生成物が非晶質物質でしかも $\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ とは異なるためと推察される。

4) HFを $[\text{U}^{4+}]_T$ に対して2倍モル添加した場合の溶解度

温度と溶解度の関係を図-15に示した。

この図より、60℃までは溶解度にあまり差がなく、また60℃以上では、溶解度は非

常に小さくなる事がわかった。生成した沈殿の同定については、現在検討中である。

5. ま と め

溶媒抽出試験については、抽出廃液中のU濃度を下げる手段として、Y、Oの溶解に使用する硫酸濃度の低下を考えたが、この方法ではU濃度を下げる事ができないとわかった。したがって、今後この対策として早急に逆抽出工程から出た有機溶媒中の硫酸濃度を何らかの方法により下げることが、この問題の解決につながると思われる。

また不純物のDFについてもさらに多くの元素について調べる必要がある。

電解還元については、①モニター電極の電流-電圧曲線上の限界電流値からウランの還元率を決定出来る。②さらに定電位で駆動した際に得られる電流-時間曲線より、電流の減少が終了した際の電流値の急激な立上りから電解還元の終点を検出することが出来る。③製錬転換パイロットプラントで長時間実操業に使用したチタン電極は、電極上に白金が析出し、水素過電圧が低下している。④またこのチタン電極は、熱王水あるいはフッ酸混合液で処理することにより元の状態にもどる。⑤電解中陰極表面から発生する水素ガスは濃度境界層の攪乱によりU(VI)の物質移動速度を増大させる。⑥ 2 g/l程度(U:100 g/lの場合)のフッ酸の存在は、フッ酸のない場合に比較してウランの還元速度を増大することが明らかとなった。

硫酸ウラナスの溶解範囲の決定については、①溶解範囲は、温度が高くなるにつれて小さくなる事がわかった。②生成した沈殿のほとんどは含水量が4水塩である。③25℃における溶解度積は 1.2×10^{-6} である。④HFを $[U^{4+}]_T$ に対して2倍モル添加した場合生成した沈殿について、25～60℃までは、溶解度にあまり差はなく、60℃以上では溶解度は非常に小さくなる事がわかった。

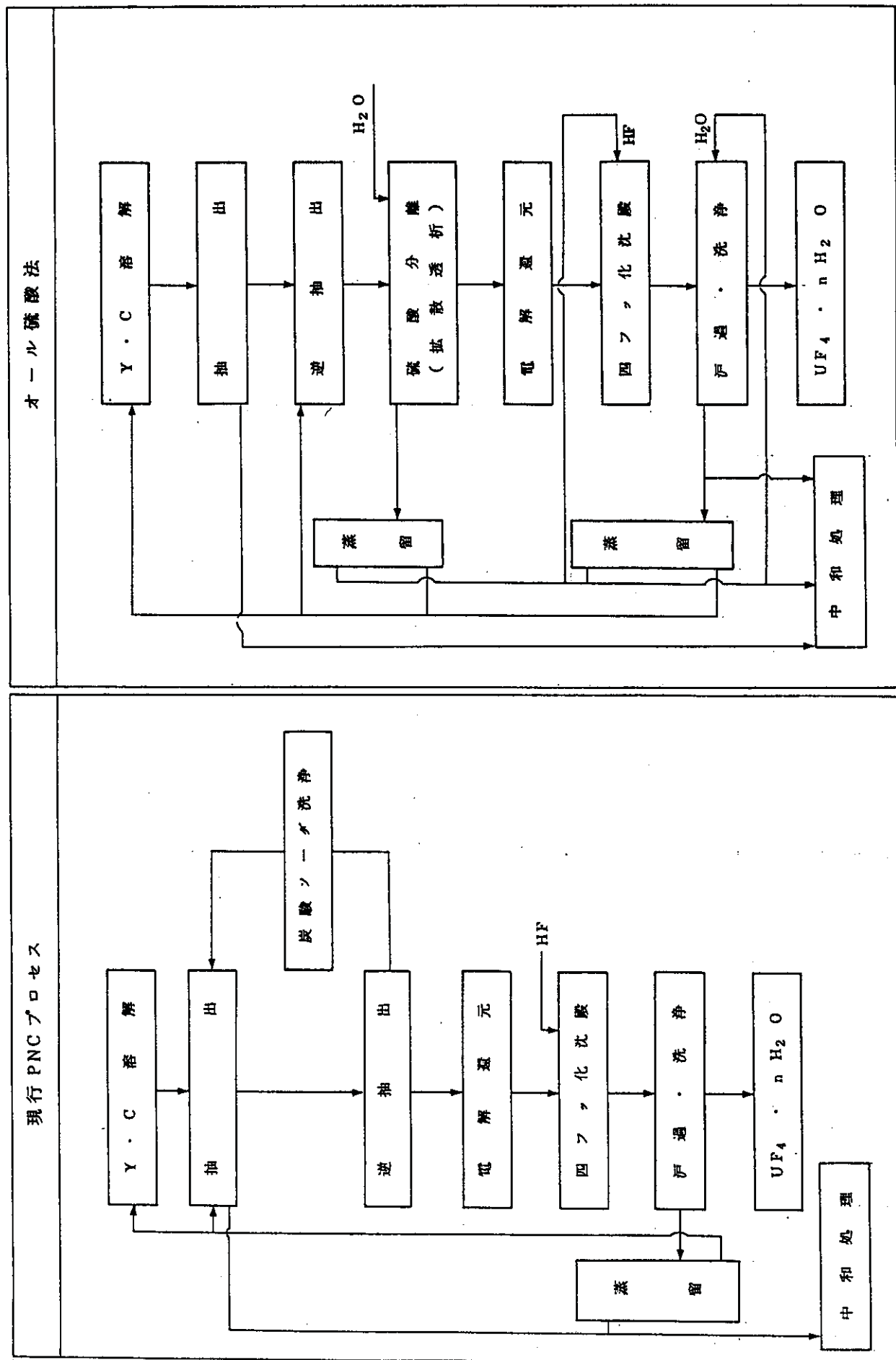


図-1 現行PNC法とオールル硫酸法との比較

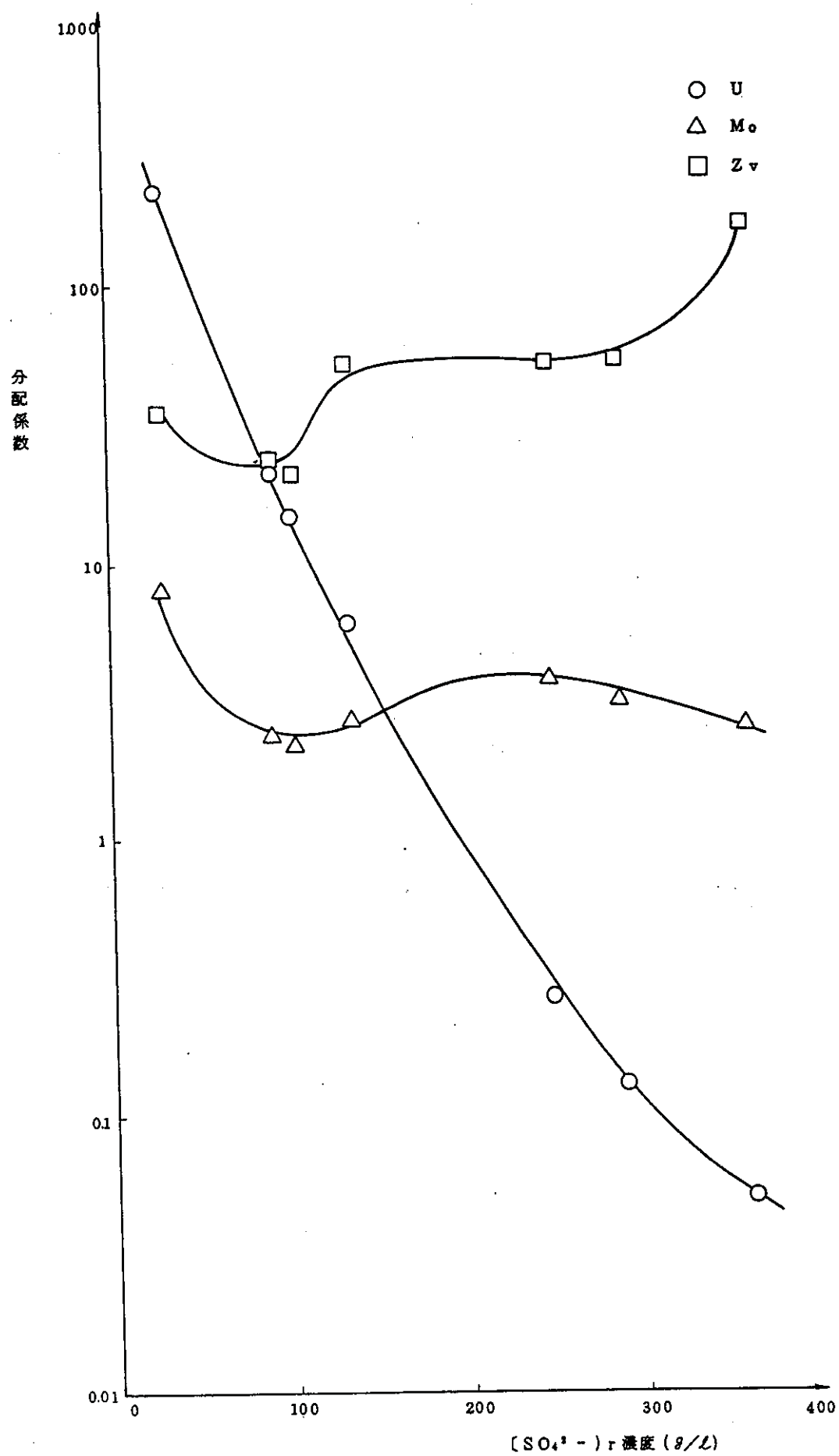


図-2 U Zr Moの分配係数

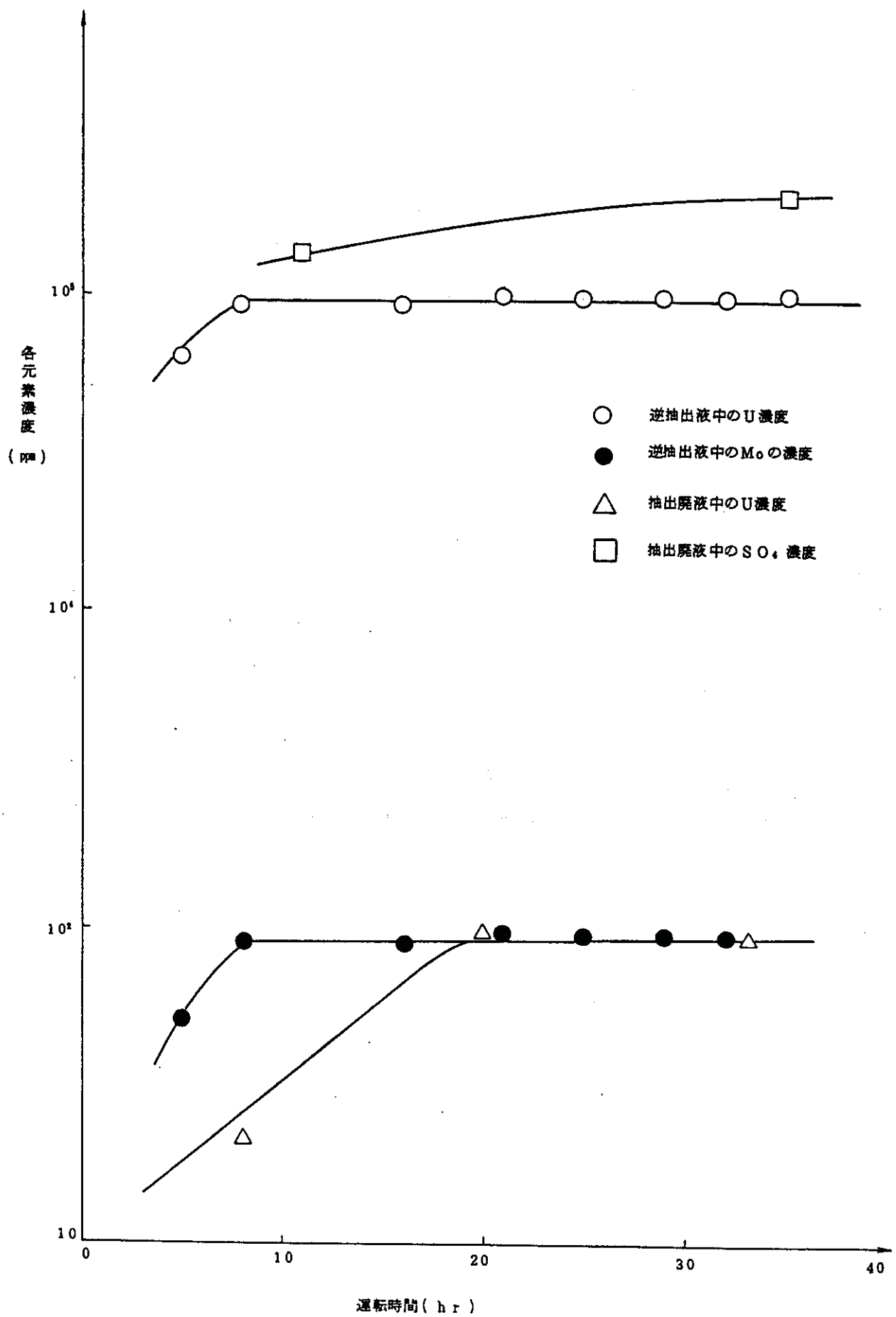
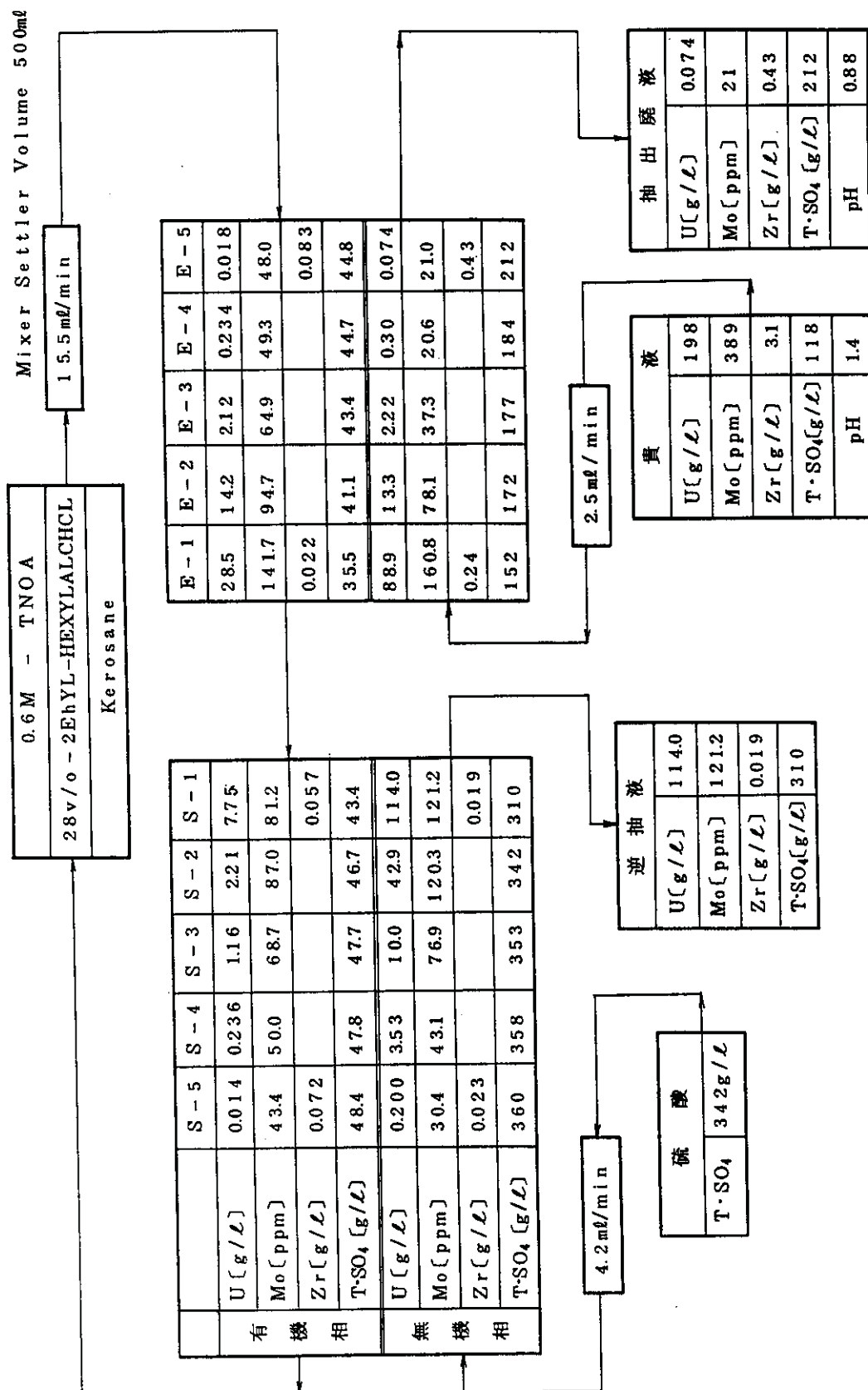


図-3 各元素の経時変化による挙動

表-1. 溶媒抽出試驗結果

'84. 8. 27 ~ '84. 8. 31



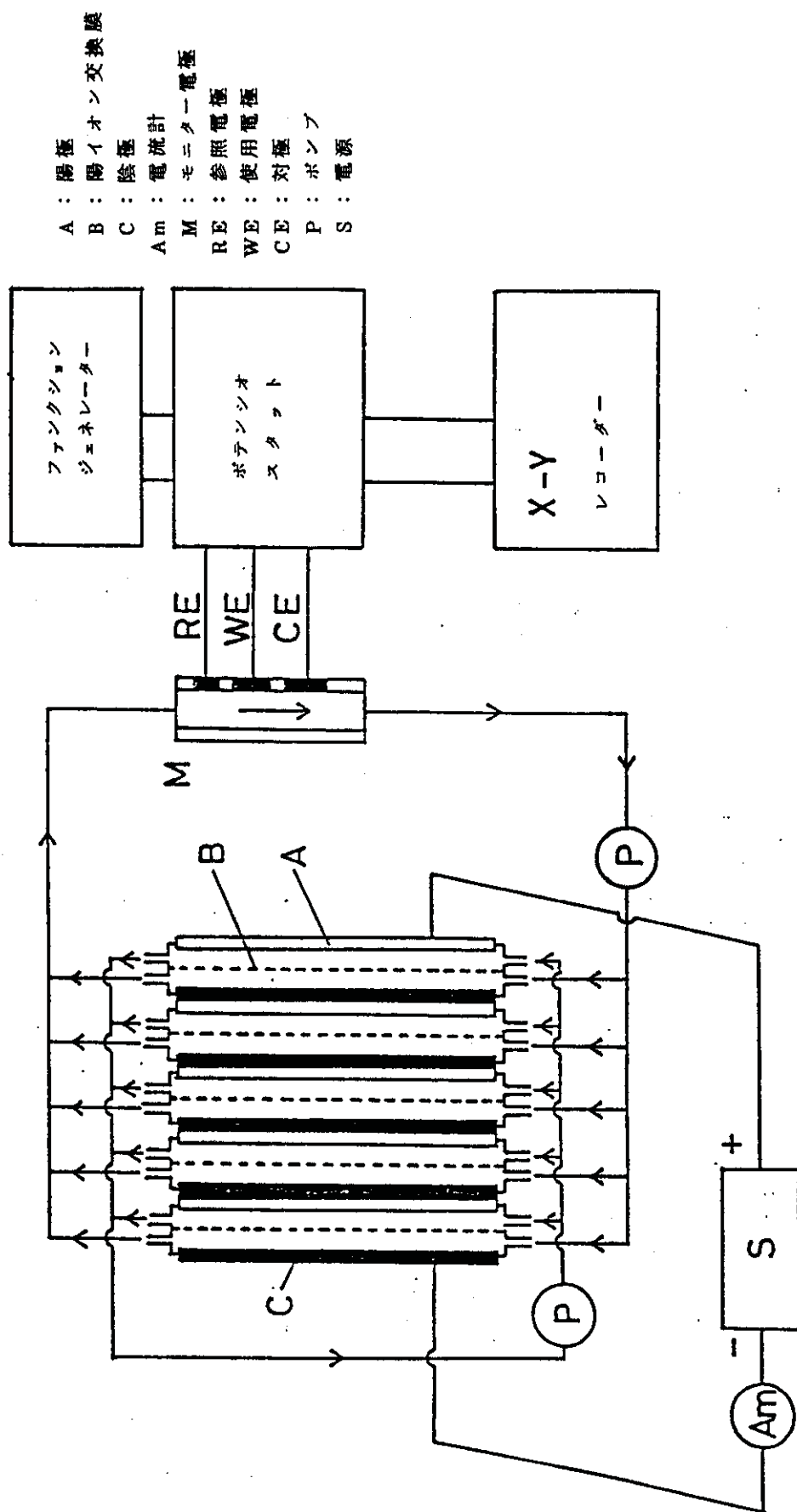


図-4 ウランの回分式電解還元を使用した小型複極式電解槽とモニター電極

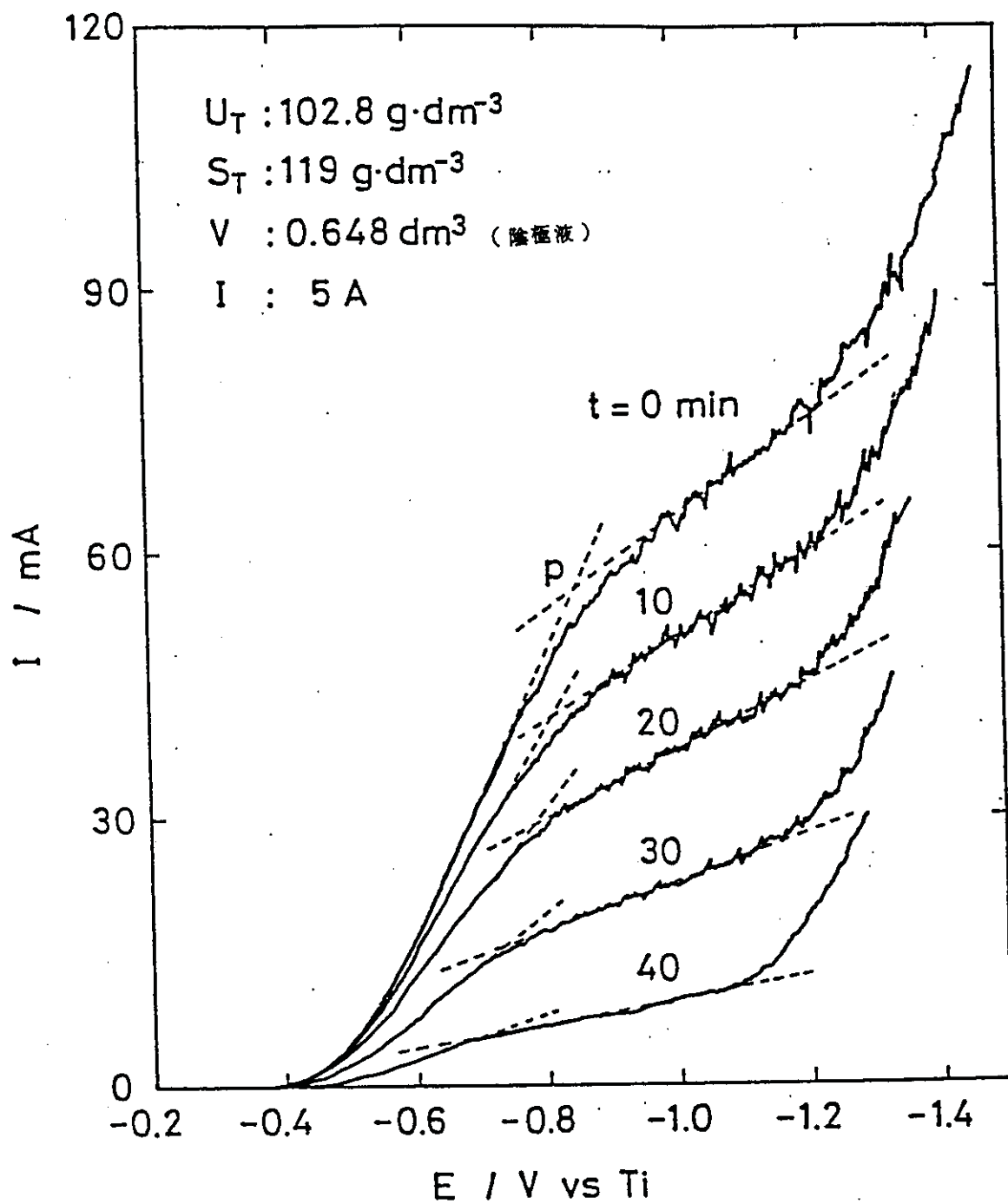


図-5 ウランの回分式電解還元モニター電極によって得られた
 電流-電圧曲線の経時変化

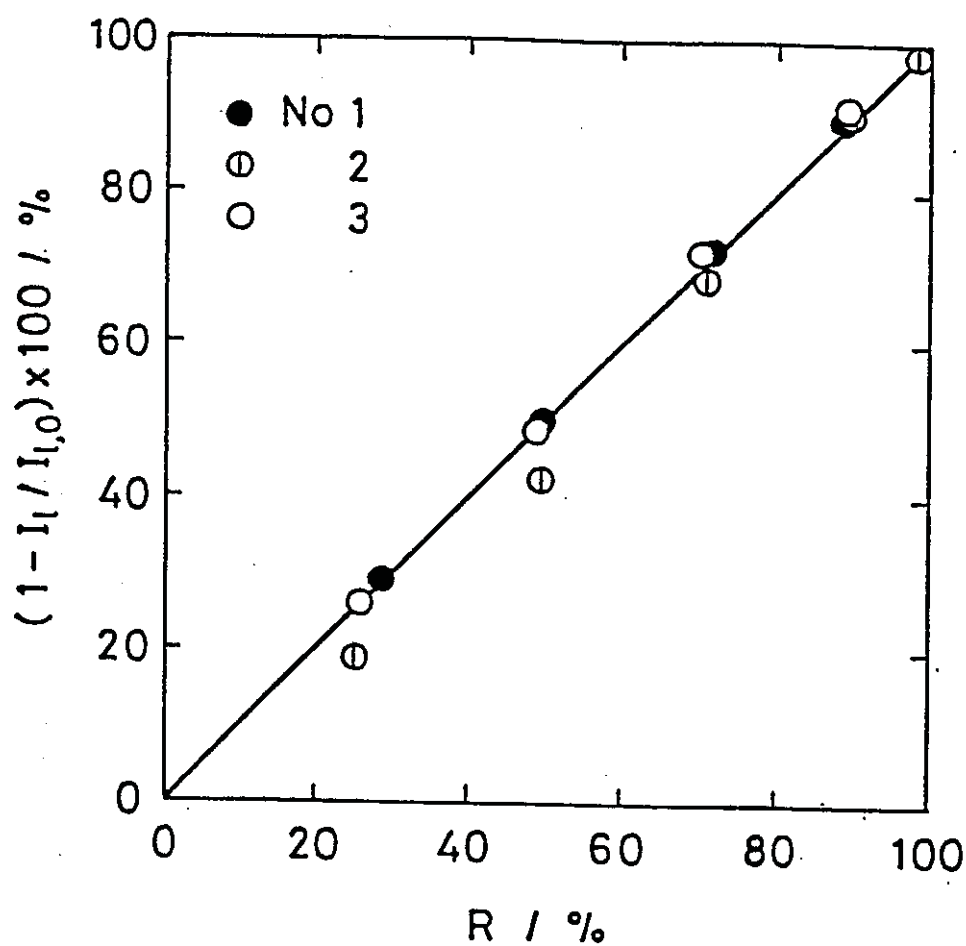


図-6 モニター電極で測定した限界電流値から計算した還元率と化学分析に基づく還元率との比較

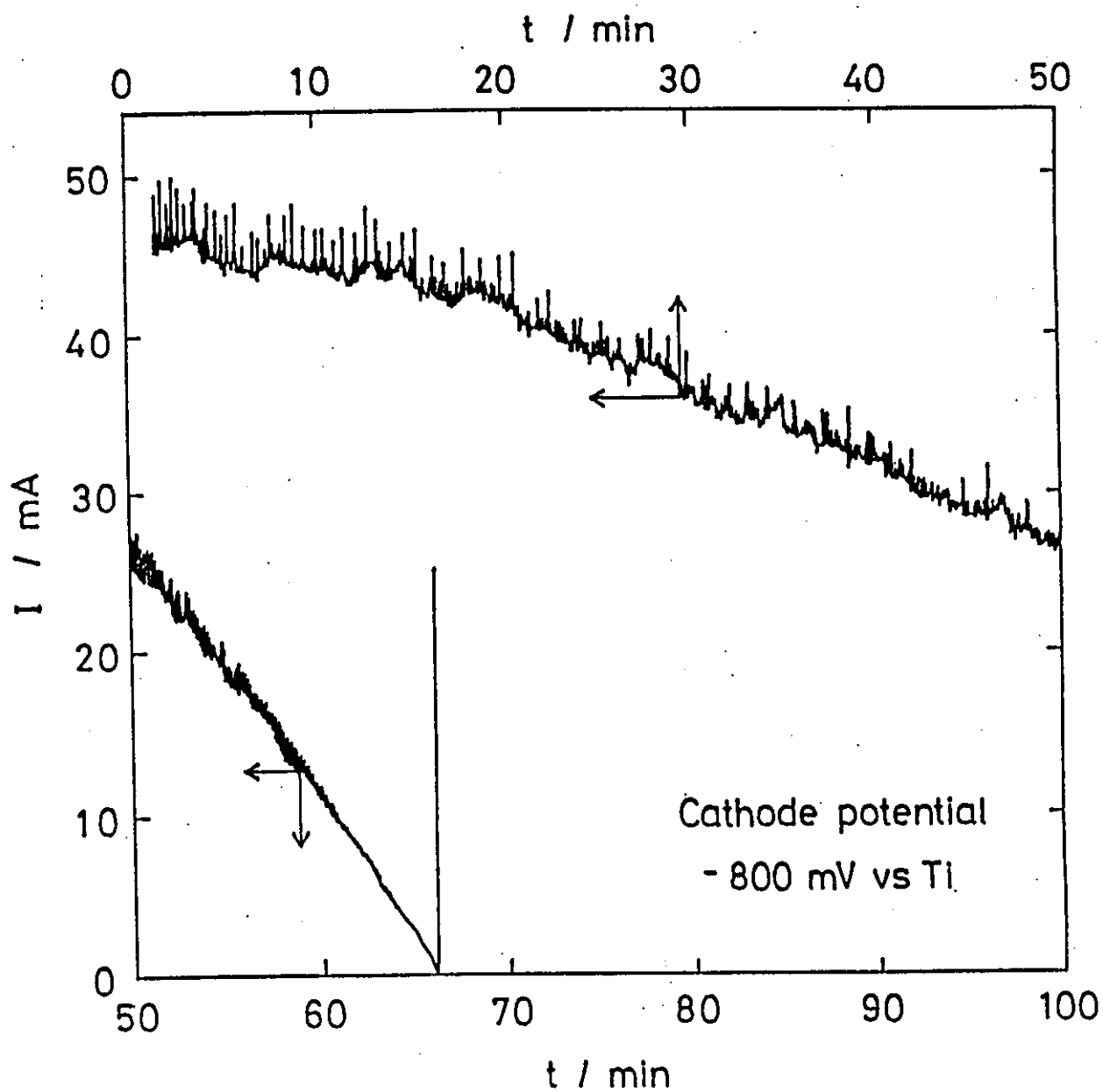


図7 ウランの回分式電解還元中の-800mVに設定した
モニター電極に流れる電流の経時変化

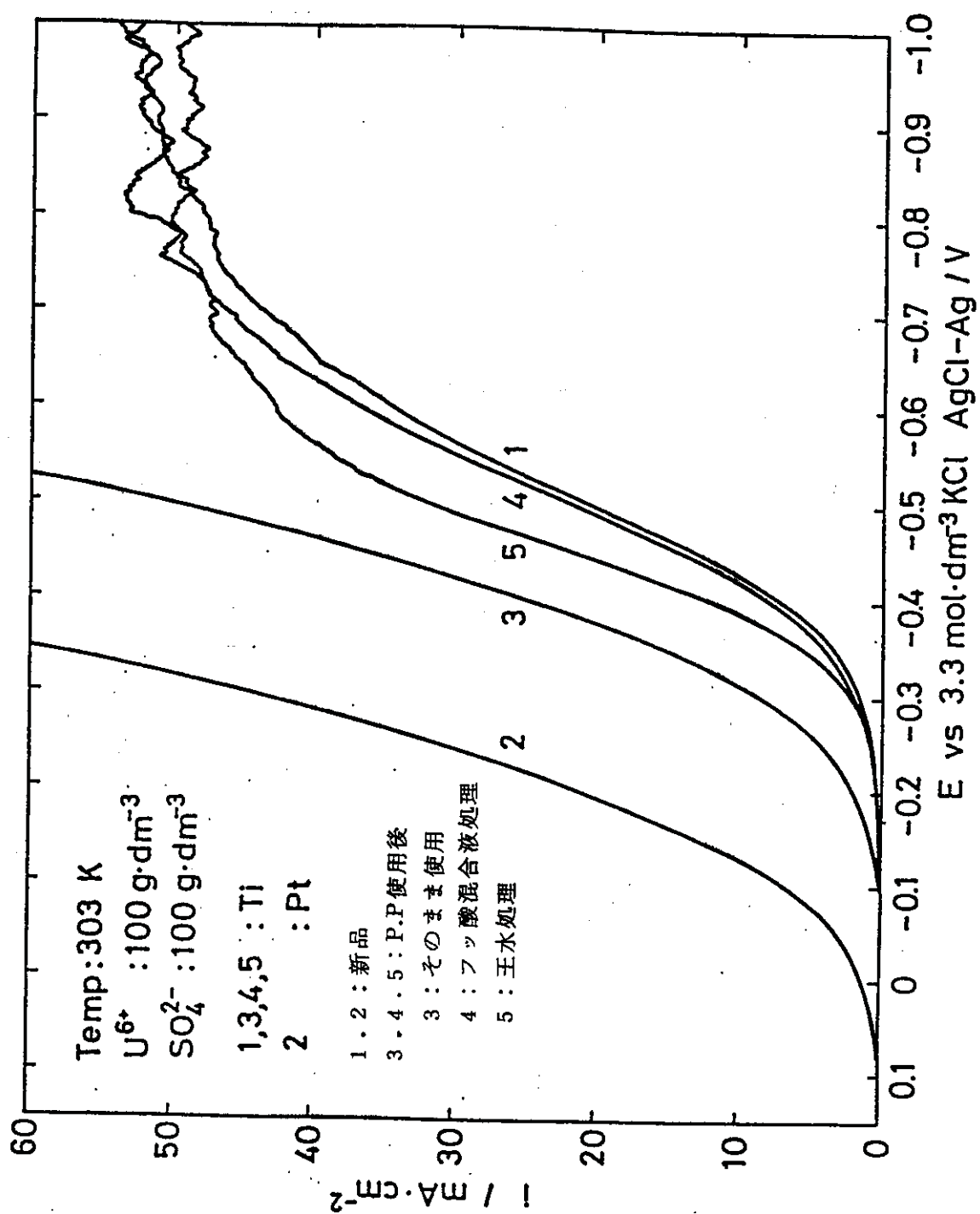


図-8 チタン電極上での硫酸ウランの電解還元電流-電圧曲線

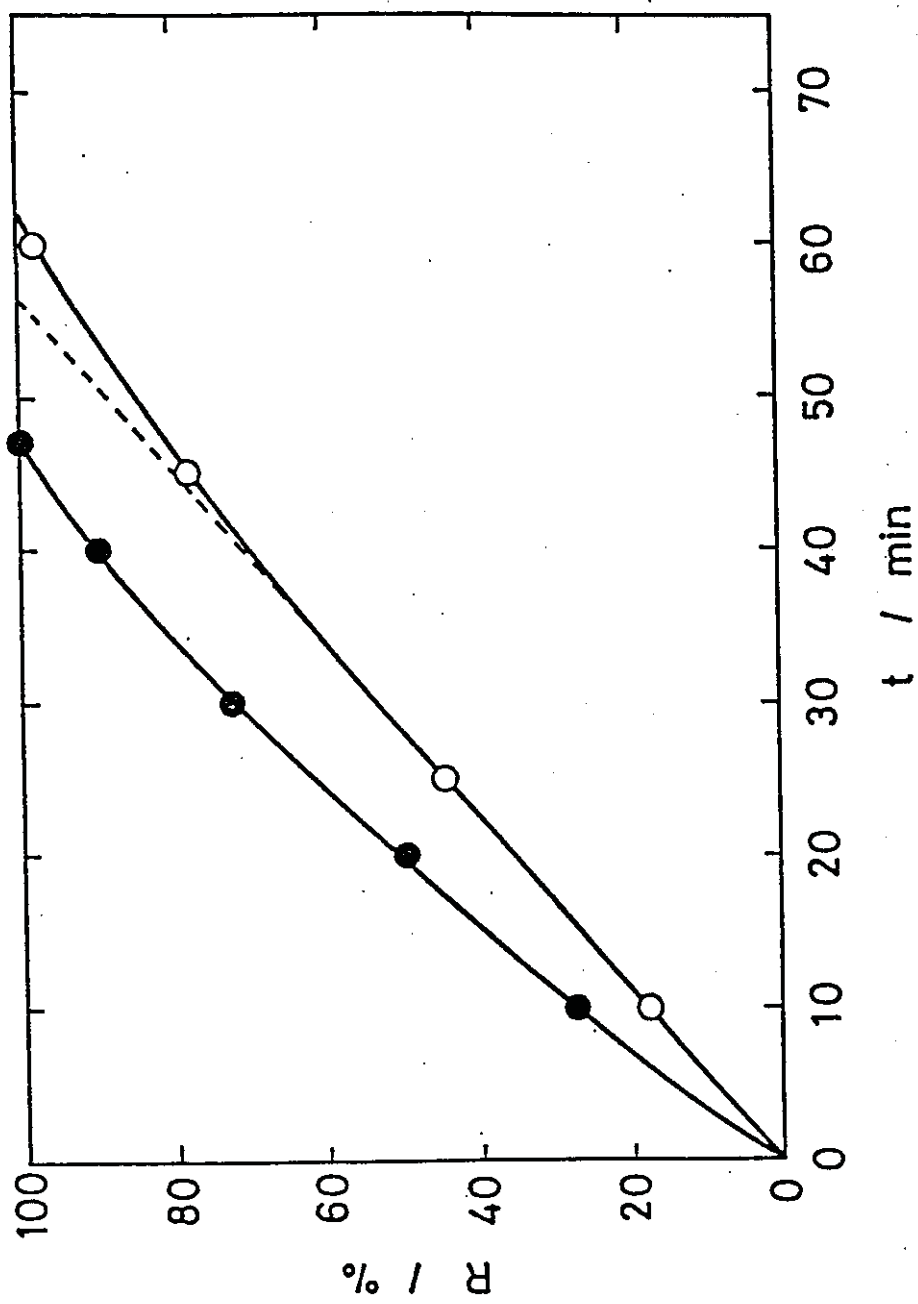
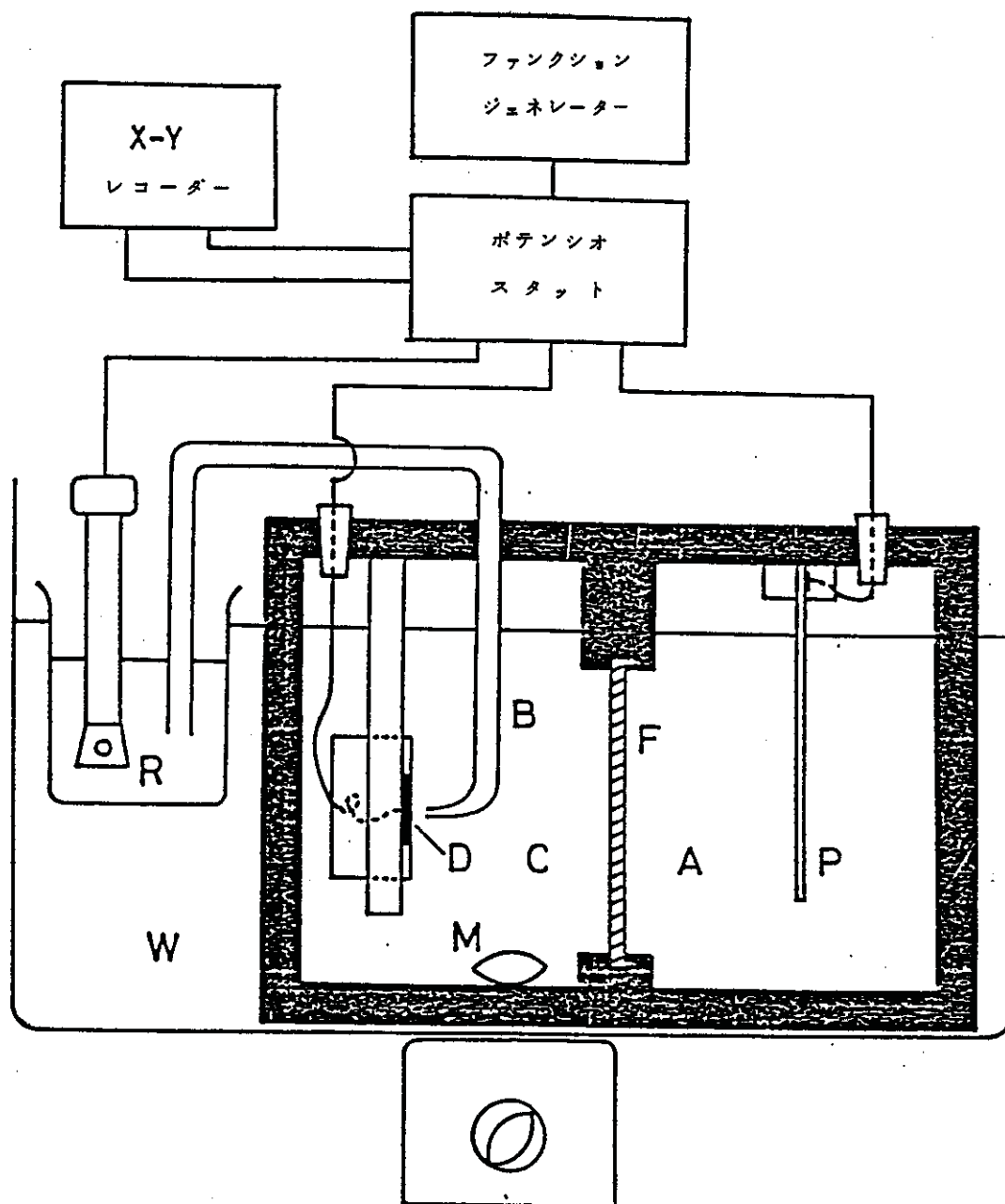


図-9 実操業で使用されたタタン電極(○)及び新しいタタン電極(●)によるウランの回分式電解還元中の還元率の経時変化



- | | |
|-------------|-----------------|
| A : 陽極室 | P : 陽極 |
| B : 塩橋 | R : 参照電極 |
| C : 陰極室 | M : マグネチックスターラー |
| D : 陰極 | W : 水浴 |
| F : 陽イオン交換膜 | |

図-10 ウランの電解還元に使った実験装置

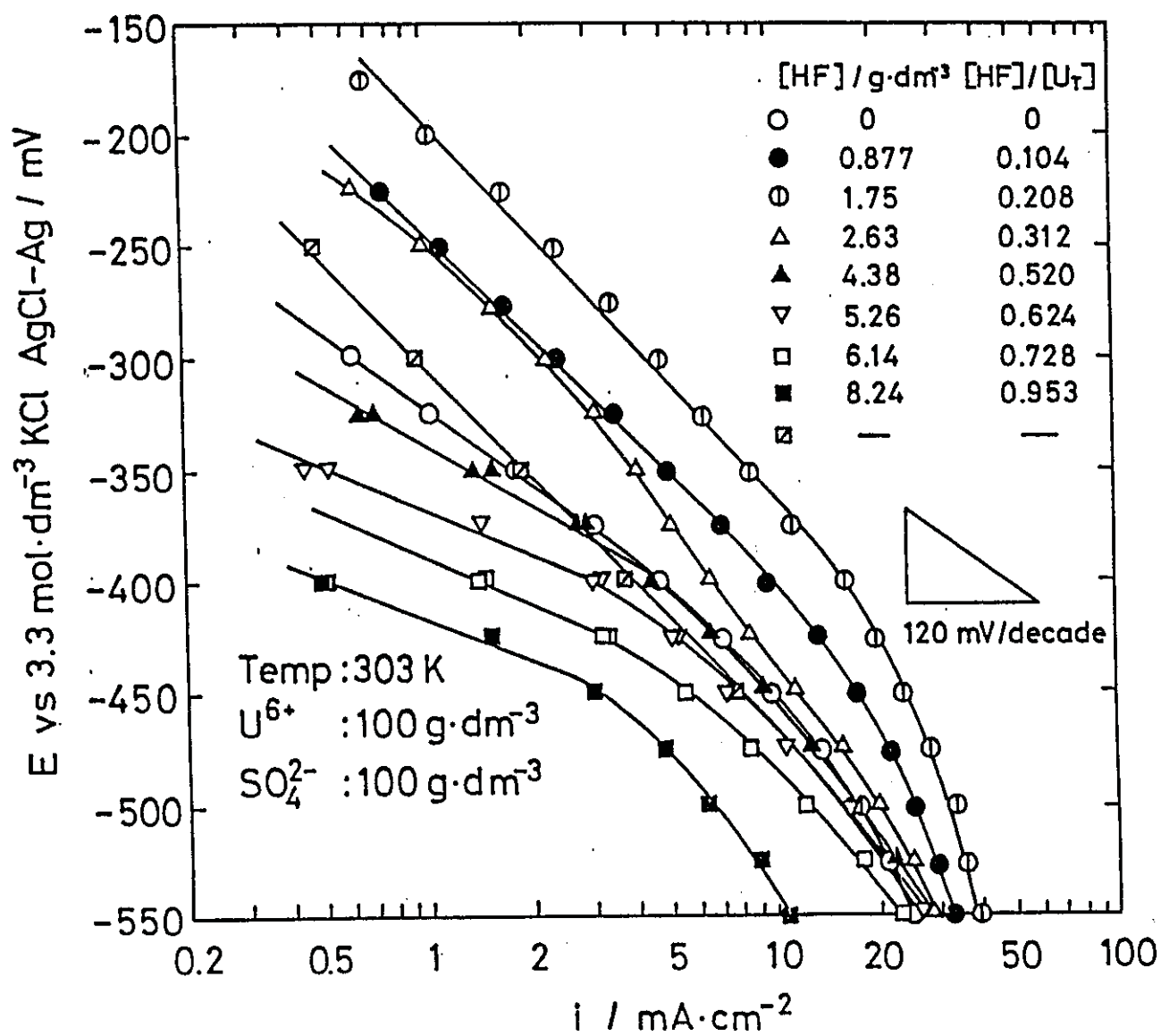


図-11 チタン電極上での硫酸ウラニルの電解還元特性に及ぼすフッ酸の影響

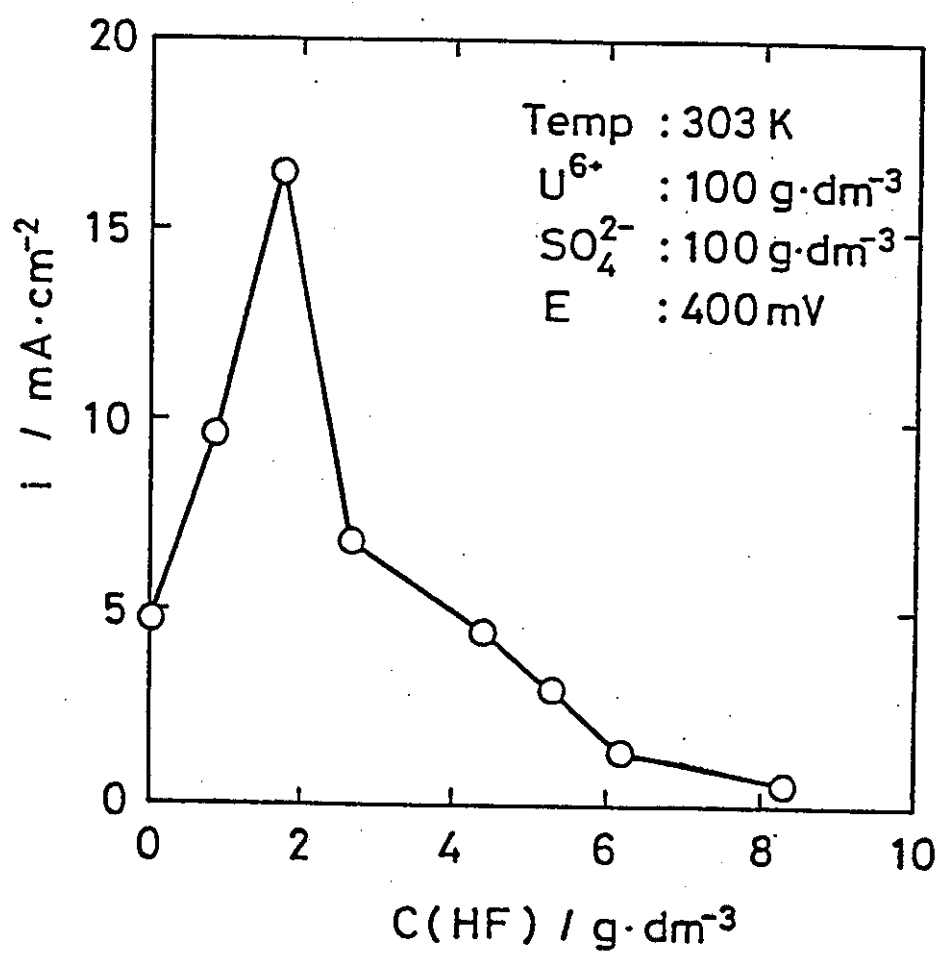


図-12 ウランの電解還元速度に及ぼすフッ酸添加濃度の影響

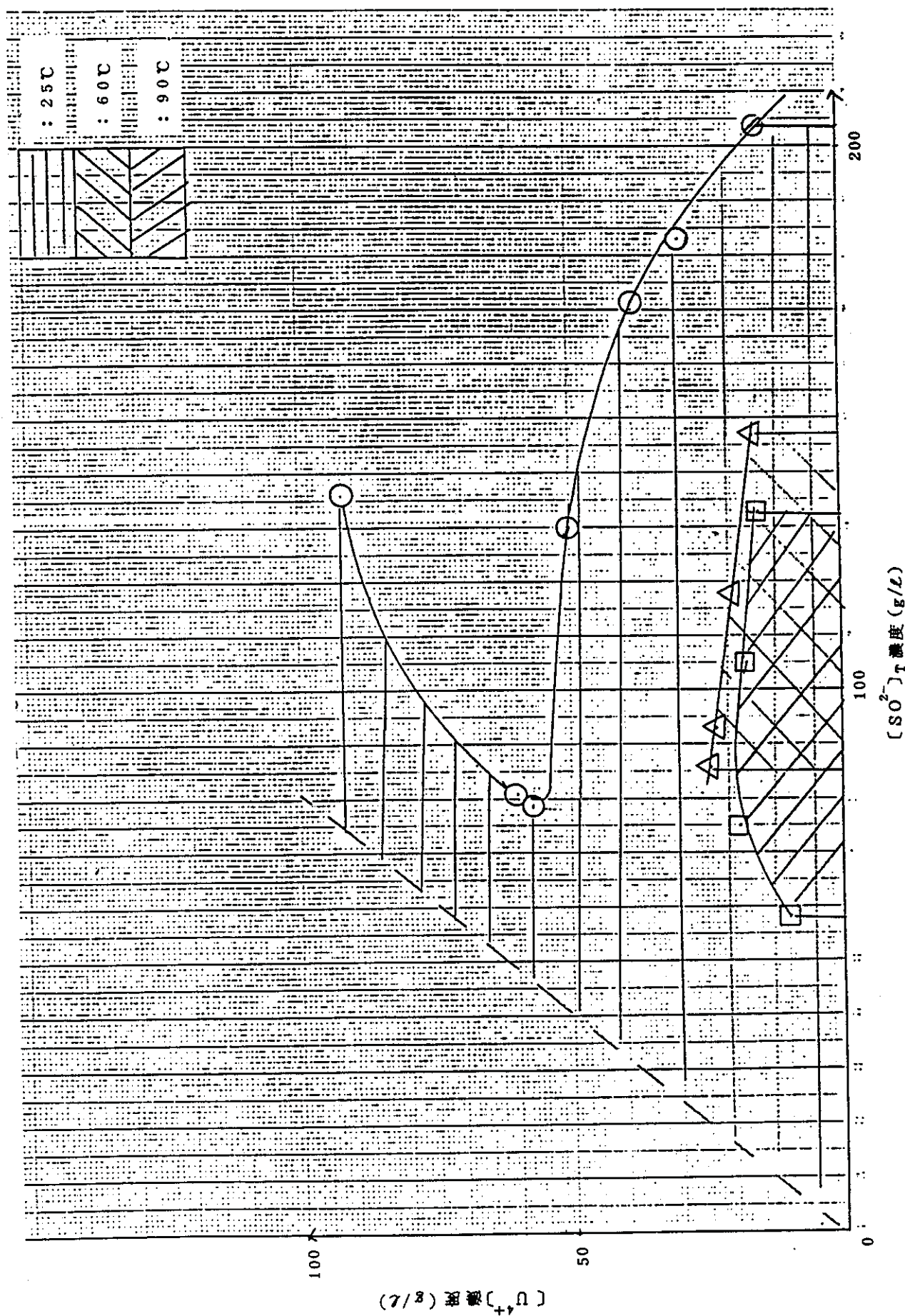


図-13 硫酸ウラナスの溶解領域

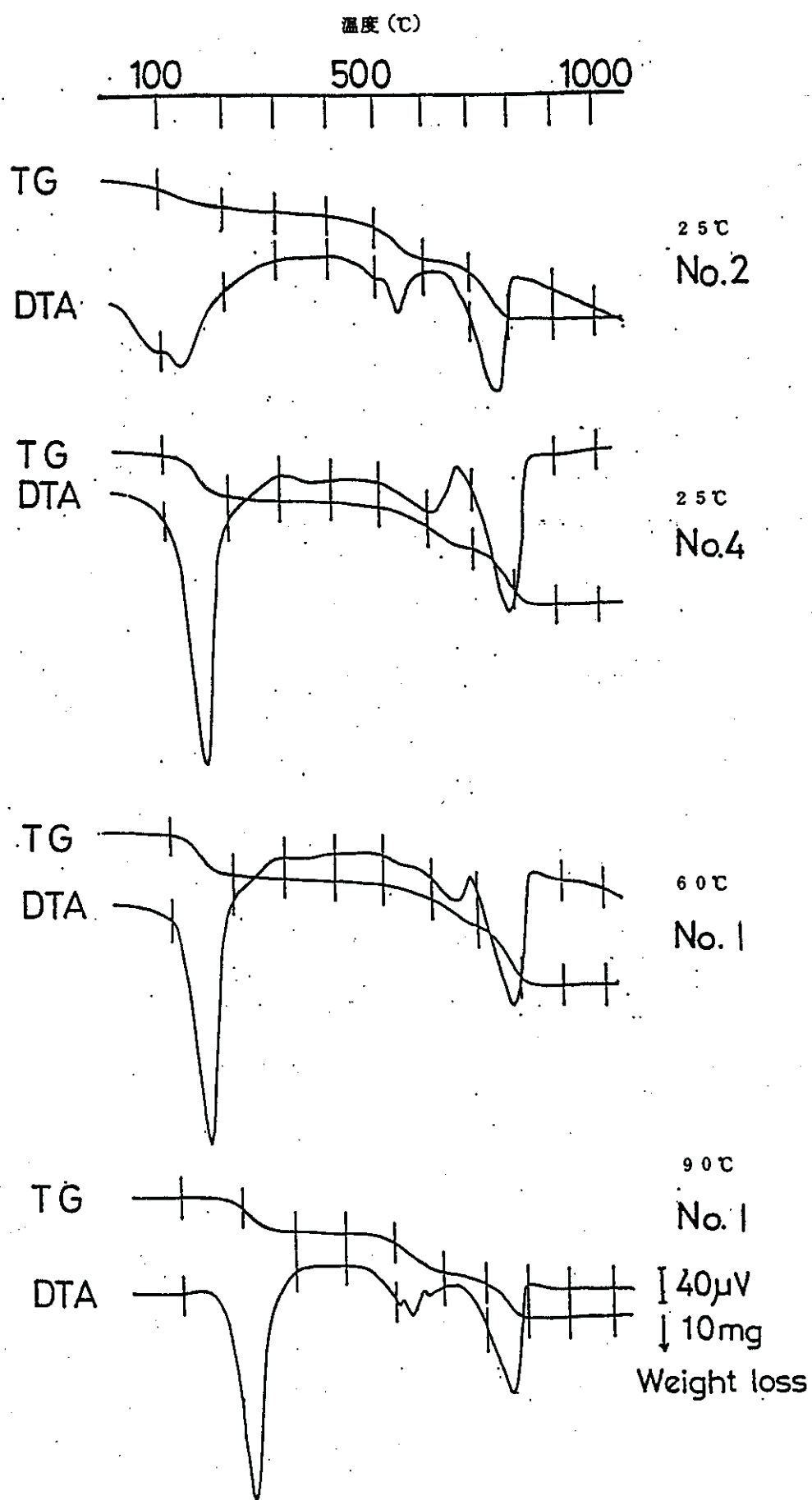


図-14 硫酸ウラナス溶液から析出した沈殿の熱分析曲線

表-2 硫酸ウラナス溶液より析出した沈殿の $[\text{SO}_4^{2-}]_T/[\text{U}]_T$ 比 (化学分析より)

温度 (℃)	実験 No	$[\text{U}]_T$ (M)	$[\text{SO}_4^{2-}]_T$ (M)	モル比 $[\text{SO}_4^{2-}]/[\text{U}]_T$
25	2	0.20	0.44	2.2
	3	0.19	0.38	2.0
	4	0.19	0.40	2.1
60	1	0.19	0.43	2.3
	2	0.19	0.39	2.1
	3	0.19	0.40	2.1
	4	0.19	0.38	2.0
90	1	0.20	0.37	1.9
	2	0.20	0.37	1.9
	3	0.20	0.39	2.0
	4	0.20	0.38	1.9

表-3. 硫酸ウラナス溶液より析出した沈殿の同定

Temp (℃)	No	Identified materials
25	1	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (amorphous)
	2	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ($n \neq 4$)
	3	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
	4	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
60	1	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
	2	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
	3	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
	4	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
90	1	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ($n \neq 3$)
	2	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
	3	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
	4	$\text{U}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$

表-4. 硫酸ウラナスの溶解度積 (K_{sp})

実験 №	溶解度積
1	4.6×10^{-5}
2	2.5×10^{-5}
3	8.3×10^{-6}
4	1.5×10^{-5}

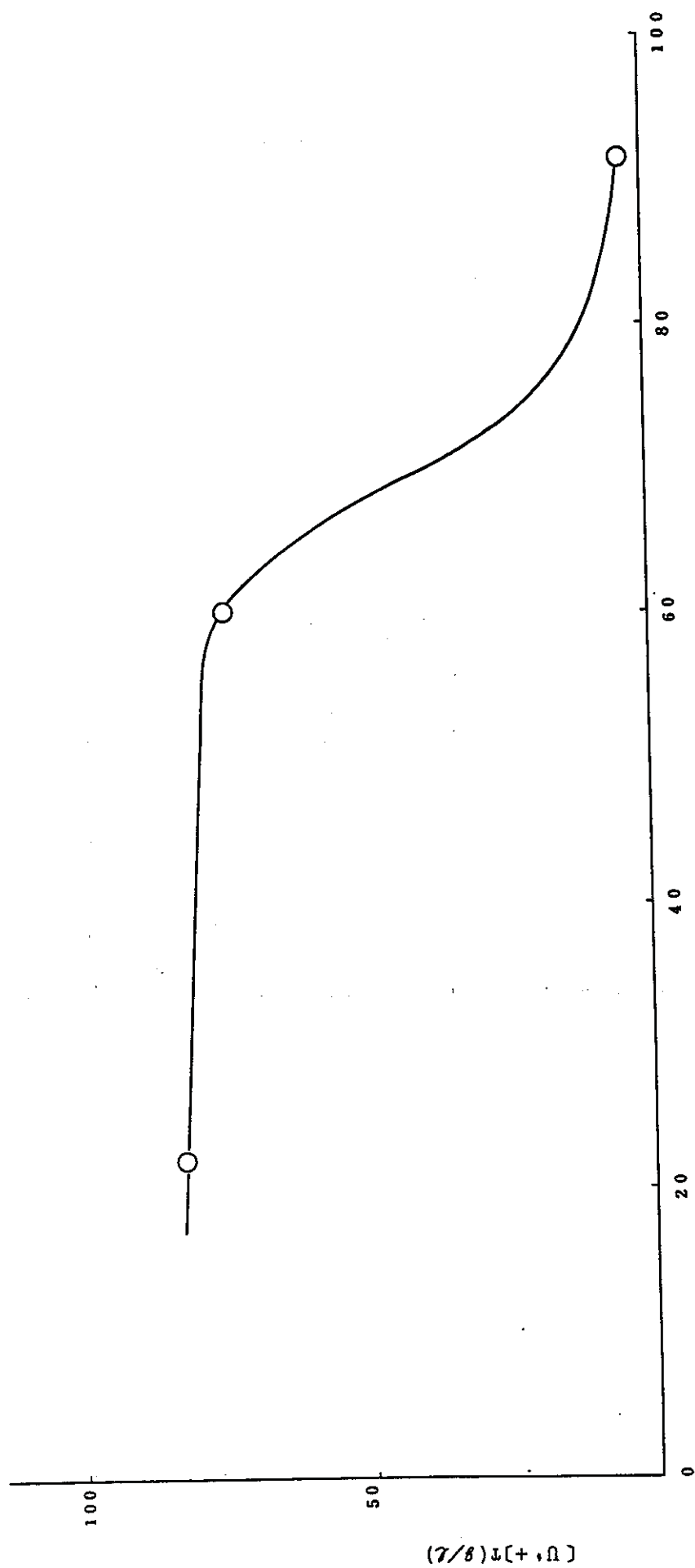


図-15 温度による四フッ化ウラン沈殿の溶解度

3-(5) ウラン・ラジウム回収(除去)試験について

報告者 鉾石試験室

1. ウラン回収

(1) ウラン回収設備の概要

鉾さいダムから排出されるダム廃水に次亜塩素酸ナトリウム 5 ppm 添加して、微生物および藻類の殺菌と、 Mn^{2+} 、 Fe^{2+} の酸化をおこなう。スーパーサイフォンフィルター(重力式急速濾過器)で懸濁物質を濾過した後、濾過水中に残存する遊離の塩素は活性炭濾過器で除去する。

次いで2塔直列の樹脂塔にダム廃水を導入し、第1塔目からのウラン漏出濃度が0.1 ppm(岡山県協定ウラン管理目標値)に達した時は、樹脂塔を切換える。

なお、スーパーサイフォンフィルター、活性炭濾過器および樹脂塔に懸濁物質が堆積し、通水抵抗が大きくなった場合には、自動または手動で逆洗をおこない堆積物を除去する。

ウラン吸着条件のフローには、図1の通常運転時の2塔直列方式($100\text{ m}^3/\text{Hr}$)と、図2および図3のような融雪時、雨期、台風シーズンなどの大量運転時の2塔直列の2系統並列方式($200\text{ m}^3/\text{Hr}$)および4塔並列方式($400\text{ m}^3/\text{Hr}$)がある。

現在、各樹脂塔には 4 m^3 のCR-50(アミドキシム型キレート樹脂)が充填され、 1 m^3 当たり3~5 kgのウランを吸着する。

溶離工程の条件としては、溶離剤として1規定の硫酸を用い、空間速度(SV)3でおこなう。ウランを含んだ溶離液はピットへ回収され、回収されたウラン溶離液は採鉾課のヒーブリーチング試験での浸出液として利用している。

(2) 運転状況

ウラン回収設備は、昭和58年6月から試運転を開始している。本年は昨年のダム廃水の処理量の2倍を目標とした。その運転実績の比較(58年度と59年度)を図4に示す。図からわかるように、59年度はダム廃水処理量およびウラン吸着量とも約2倍となっている。この運転実績向上に大きく寄与したのは、建家内の暖房工事により12月から3月までの冬期運転が可能になったためである。

ただし、本年は8月から10月にかけてダム廃水処理量が低下している。これは雨量が

少なくダム水位が低下したため、運転日数が減少したことに帰因する。

(8) 試験関係

① 吸着工程

2塔直列方式(100m³/Hr)で常時運転をしているが、大量運転時の4塔並列方式(400m³/Hr)は、4月26日おこなったところ、各機器とも正常に作動し問題無いことを確認した。

② 溶離工程

ウラン吸着はまだ充分出来る状態であった樹脂塔Aについて、8月28日に試運転をかねて溶離試験を実施したところ、ウラン量約3.1kgを回収出来た。

溶離曲線については図5に示す。図中のウラン回収ビットに投入された溶離液は採鉱課のヒーブリーテングでウラン回収し、硫酸を再利用するためにタンクローリー車で運搬した。

③ ウラン吸着剤の研究

CR-50(アミドキシム型キレート樹脂)、CR-55(CR-50の改良品)、ES-137(強塩基性陰イオン交換樹脂)およびA-101D/U(強塩基性陰イオン交換樹脂でSiO₂対策用)の4種類について(物性は表1に示す。)ウラン吸着試験をおこなった。この結果を表2のバッチ試験、図6および図7のカラム試験に示す。バッチ試験ではCR-50およびCR-55に比べ、ES-137およびA-101D/Uは約5倍(15~18/3.1~3.6mg/ml-R)のウラン吸着能が認められる。

また、カラム試験においても、ウラン漏出濃度0.1ppm以下までの通液ベッド数をみると、空間速度20が50に増大した場合、CR-50およびCR-55は大幅にそのベッド数が減少しているのに対し、ES-137およびA-101D/Uはあまり減少していない。このことからES-137およびA-101D/Uは吸着速度が速いことがわかる。

なお、空間速度50の場合、ES-137およびA-101D/UはCR-50およびCR-55に比べ、約5~10倍(7,200~11,500/1,200~1,400ℓ/ℓ-R)の通液ベッド数をもっている。

(4) 今後の方向

ウラン回収設備については、将来の無人化運転を目ざして、溶離工程試験および各機器の改良をおこない万全を期す。

ウラン吸着剤では、今回は、従来のものよりウラン吸着能の優れたイオン交換樹脂（ES-137およびA-101D/U）が認められたが、さらに溶離およびライフ試験をおこない、総合的なウラン吸着剤の良否判定をしていく。

2. ラジウム除去試験

昨年、市販の吸着剤（強酸性陽イオン交換樹脂、弱酸性陽イオン交換樹脂、強塩基性陰イオン交換樹脂、およびキレート樹脂）および逆浸透装置についてラジウムバッチとカラム吸着試験をおこなった。

この結果、強酸性陽イオン交換樹脂の5種類がラジウム吸着能が優れていることがわかった。

これにもとづき本年は、次の方法でラジウム除去試験をおこなった。

(1) ラジウム吸着試験（内部実施）

5種類の強酸性陽イオン交換樹脂によるラジウム吸着量と通液ベッド数について、次の図8～11の条件でおこなった。

図 8：原水濃度 $1 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$, SV10

図 9：原水濃度 $1 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$, SV20

図10：原水濃度 $1 \times 10^{-7} \mu\text{Ci/ml}$, SV10

図11：原水濃度 $1 \times 10^{-7} \mu\text{Ci/ml}$, SV20

この結果、県のラジウム管理目標値 $1 \times 10^{-9} \mu\text{Ci/ml}$ までの通液ベッド数は、ラジウム原水濃度 $1 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$ の場合、PK-228 > ES-26 > 252 ≥ C-20 > SK-1B の順である。なお、空間速度10と20の通液ベッド数の比は2：1（960～1500/480～960ℓ/ℓ-R）となっている。つぎに、ラジウム原水濃度 $1 \times 10^{-7} \mu\text{Ci/ml}$ の場合、空間速度10では通液ベッド数が300～800であるが、空間速度20になると最初の段階から県のラジウム管理目標値の $1 \times 10^{-9} \mu\text{Ci/ml}$ を越えている。

本実験から、5種類の強酸性陽イオン交換樹脂のうち、特にPK-228およびES-26

の2種類がラジウム吸着能が優れていることがわかった。

以下の実験では、この2種類について試験した。

(2) 他社（委託研究）でのラジウム吸着カラム試験

市販の2種類の強酸性陽イオン交換樹脂（PK-228とES-26）、ユニチカ㈱のUR-3710Mキレート樹脂、トビー工業㈱のNa-TNダイモナイト（人工合成雲母）および昭和59年度に入手したダウケミカル㈱のI-R100キレート樹脂についてラジウム吸着カラム試験の比較をおこなった。

$$\left[\begin{array}{l} \text{条件： 原水濃度 } 2 \sim 3 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/ml} \\ \text{空間速度 } 10 \end{array} \right]$$

この結果、図12に示すとおり、ラジウム漏出濃度 $1 \times 10^{-9} \mu\text{Ci/ml}$ までの通液ベッド数の順は、I-R100 > UR-3710M > PK-228 > ES-26 > Na-TN ダイモナイトであった。

特に、I-R100が優れているが、物性が不明であるため問い合わせ中である。

なお、Na-TNダイモナイトについては、トビー工業㈱で空間速度3でおこなったところ、ラジウム漏出濃度 $1 \times 10^{-9} \mu\text{Ci/ml}$ までの通液ベッド数は約1,500であった。

(3) ラジウム吸着等温線

市販の2種類のPK-228とES-26およびユニチカ㈱のUR-3710Mについてみると、図13のとおり、ラジウム平衡濃度 $10 \times 10^{-9} \mu\text{Ci/ml}$ での分配比は、UR-3710Mで7000、PK-228で3,700およびES-26で2,400の順となっている。

(4) ラジウム吸着におよぼす他要因

① 温度の影響

一般的にイオン交換樹脂は吸着時の温度を高くすれば、吸着量は向上すると言われている。

このため、温度を3水準して、(2, 20, および40℃)および、ラジウム原水濃度を2水準 (4×10^{-7} , および $5 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$) に分け、ウラン吸着量を調査したところ、表3のとおり、ウラン吸着量の差異は認められなかった。

② ウラン濃度差による影響

ラジウム原水中のウラン濃度を0.1 ppmと1 ppmに分け、ウラン濃度差によるラジウム漏出濃度 $1 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ までの通液ベッド数を比較したところ、図14のとおり、原水中のウラン濃度1 ppmの方が通液ベッド数が若干少ないが、この程度であればウラン吸着能の差異があるとは言えないであろう。

③ カルシウム濃度差による影響

昨年報告したとおり、カルシウム濃度が500 ppmを越えると、原水中のカルシウム濃度200 ppmに比べ、ラジウム濃度 $1 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ までの通液ベッド数は、PK-228の場合、約60%減少(1700から700 ℓ/ℓ -R)する。

(5) ラジウム脱着パッチ試験

58年度に報告したとおり、硝酸および硝酸塩の場合、ラジウム脱離率は90%を超える事が判明したが、窒素公害問題および脱離液の後処理でのラジウム共沈率が悪く、実用化が困難である。なお塩酸の場合、ラジウム脱離率が悪く、4規定の塩酸で30~40%であった。

このため、59年度では対象となる溶離剤は硝酸塩の酸化力の強い事に着目するとともに、樹脂の再生方法も考え*複合溶離剤とした。

最初に10%塩化ナトリウムと1または2規定の塩酸および0.01~0.1%過酸化水素の複合溶離剤でおこなった。この結果、ラジウム脱離率は90%台になった。しかしながら、10%塩化ナトリウムではあまりにも濃度が高いため、つぎに塩化ナトリウム濃度を下げ、逆に塩酸濃度を上げたところ、複合溶離剤としては2規定の塩酸と3%塩化ナトリウムおよび0.03%過酸化水素水で約70%のラジウム脱離が出来ることがわかった(図16参照)。この事実をわかりやすく示すため、図17に塩酸濃度と塩化ナトリウム濃度の量に対するラジウム脱離等温線を示す。これによると塩酸濃度より塩化ナトリウム濃度の方がラジウム脱離に大きく寄与することがわかった。

なお、過酸化水素の酸化剤濃度については、0.01~0.1%でラジウム脱離率は変わらないことがわかり、酸化の効果は0.01%程度で十分と思われる。

* 複合溶離剤とは塩化ナトリウムと塩酸および過酸化水素の組合せ溶液である。

(6) ラジウム吸脱着ライフバッチ試験

ラジウムバッチ試験より、溶離剤としては2規定の塩酸と3%塩化ナトリウムおよび0.03%過酸化水素でラジウム脱離率が70%あることがわかったのでこれを用い、5回くり返しによる吸脱着試験をおこなった。この結果を図18および表4に示した。

全体的にみると、3樹脂(PK-228, ES-26およびI-R100)ともラジウム吸着量はやや下がる傾向にあるが、ラジウム脱離量は殆んど変わらず、またラジウム脱離率についても70~95%範囲で推移している。なお、溶離剤中の過酸化水素の酸化効果を調べるため、投入日(前日と当日)をかえてみたがラジウム脱離率の差異は認められなかった。さらに各樹脂の減耗率についても調査したところ、攪拌時の回転数が違うため、いちがいには言えないが、PK-228とI-R100については殆んど減耗が認められなかった。ES-26については、約3~16%の減耗が認められた。

(7) ラジウム脱離カラム試験

ラジウム溶離剤としては、2, 3および4規定に塩酸濃度を変え、3%塩化ナトリウムと0.03%過酸化水素は一定とした。また、空間速度は2, 3および5でおこない、通液ベッド数は5および10ベッドまでとし、それぞれのラジウム脱離率を試験した。それらの結果を図19および20に示す。ラジウム脱離率に寄与するのは溶離剤中の塩酸濃度の影響が大きく、空間速度の違いは殆んど認められない。しかしながら、今回の実験では溶離剤中の塩酸濃度が4規定で、通液ベッド数までのラジウム脱離率は低く、PK-228では約45%, ES-26でも約55%であった。このラジウム脱離率の低い原因については樹脂と溶離剤の接触時間が短いなどが考えられ、今後検討していく。

(8) 今後の方向

実験室でのラジウム除去試験については、強酸性陽イオン交換樹脂の2種類(PK-228およびES-26)で①カラム試験によるラジウム脱離向上の検討および実施、②カラム試験によるラジウム吸脱着ライフテストを実施し、昭和59年度に入手したI-R100キレート樹脂では③カラム試験による吸着速度(SV20および40)上昇に伴うラジウム吸着能の実施、④バッチおよびカラム試験による溶離剤の検討および実施する。

次に実験室でのラジウム除去試験から、種々のラジウム吸脱着条件を定め、ラジウム小

型装置の設計および試験をおこなう。

3. ウラン・ラジウム回収（除去）試験についての質疑応答

- (1) 質疑：ウラン吸着剤として、現行のものより良いものがあるが、価格と溶離方法についてはどうか。

応答：価格については現行品以下と思われ（問い合わせ）、溶離方法では硫酸濃度を1および2規定で実験を考えている（文献では10%硫酸で溶離出来る）。

- (2) 質疑：ラジウム分析は何法か。

応答：すべてのラジウム分析値は、エマネーション法である。

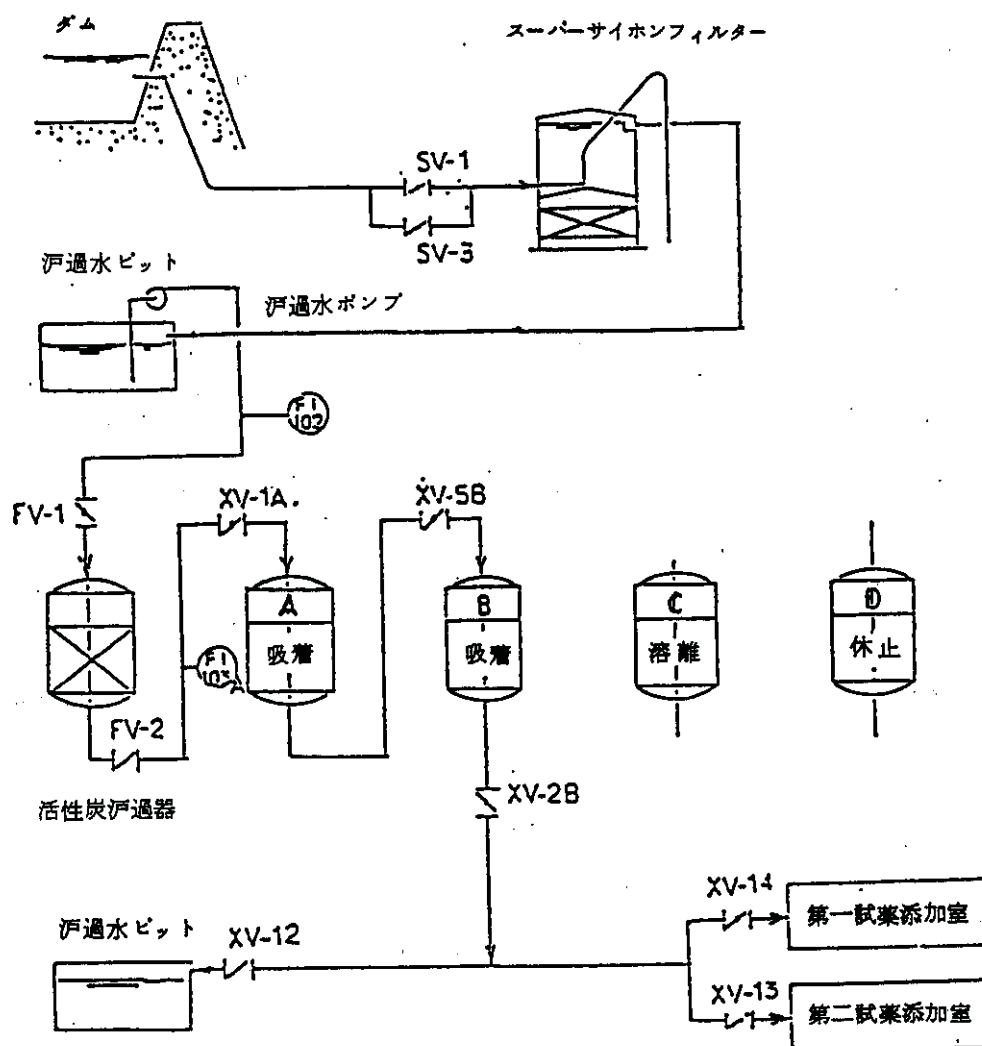
- (3) 質疑：ラジウム吸着剤としてI-R100が優れているが、溶離をやめ吸着のみで使い捨てしてはどうか。

応答：現在のところ、カラム試験でのラジウム脱離率が低く問題があるが、さらに検討しラジウム脱離率の向上を目指す。

なお、ラジウム吸着のみで、樹脂の使い捨てした場合、樹脂の年間コストが莫大になる。

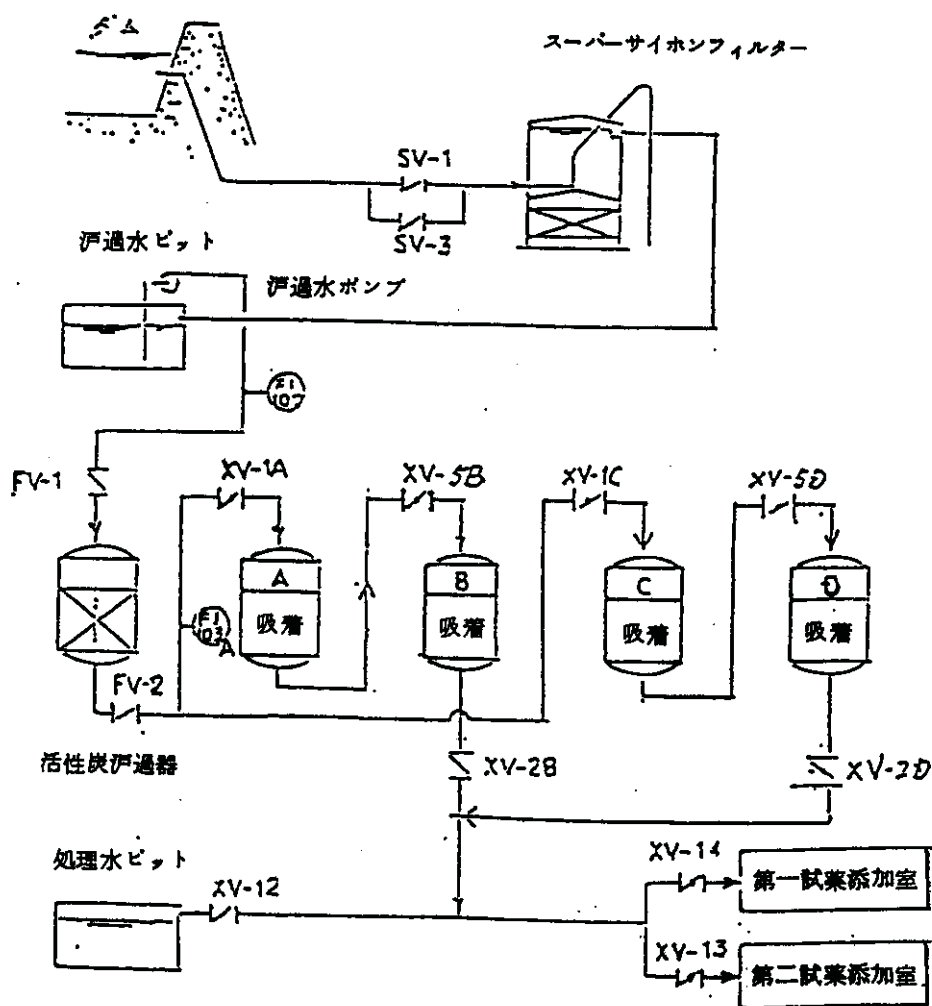
〔例：年間10万 m^3 のダム廃水処理量をした場合、約6000万円となる。〕

（10万 m^3 ダム廃水処理量／2500 m^3/m^2 -R×150万/ m^2 -R）〕



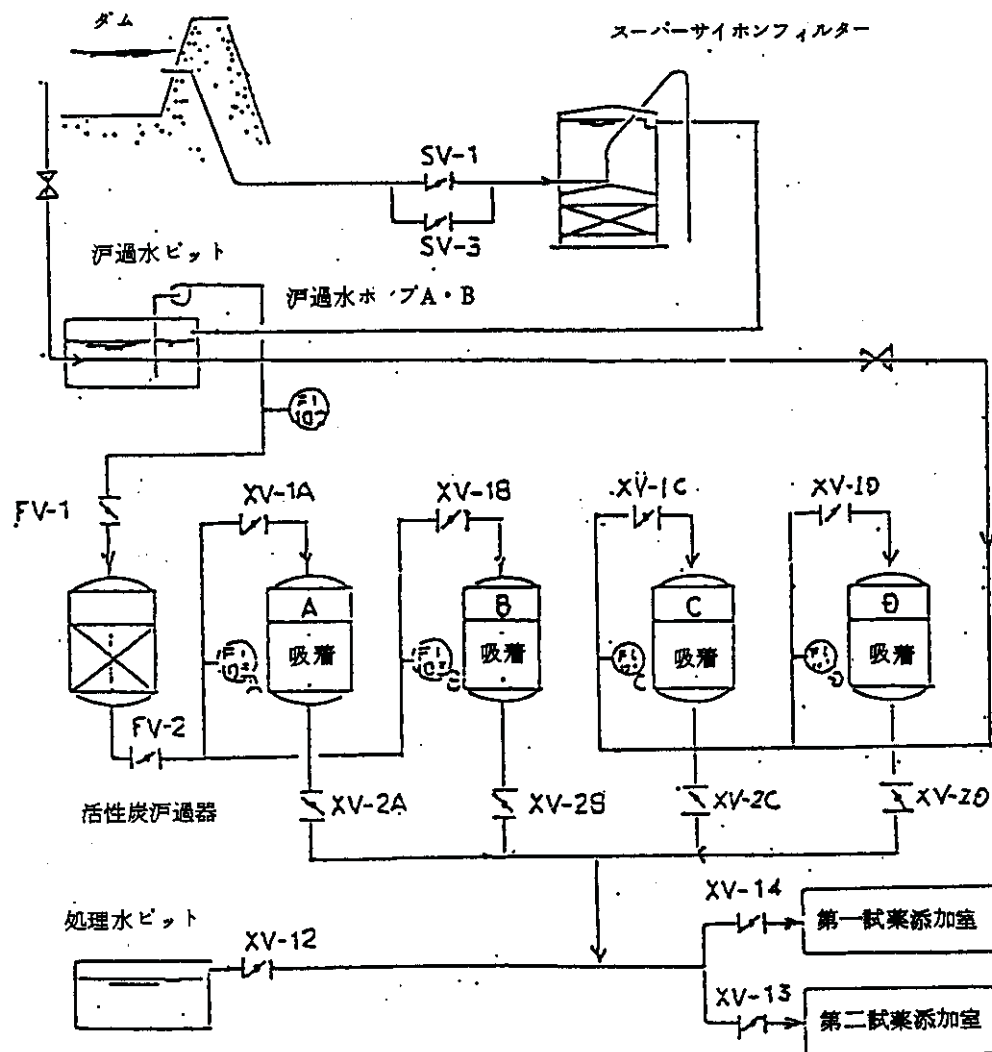
XV-13, XV-14 は試薬添加室の受入れ
条件によりどちらかの弁を自動とします。

図-1 通常運転時のウラン吸着 ($100\text{ m}^3/\text{Hr}$) 2 塔直列方式



XV-13、XV-14は試薬添加室の受入れ条件によりどちらかの弁を開とします。

図-2 大量運転時のウラン吸着 ($200\text{m}^3/\text{Hr}$) 2塔直列の2系統並列方式



XV-13, XV-14は試薬添加室の受入れ
条件によりどちらかの弁を開とします。

図-3 大量運転時のウラン吸着 ($400\text{m}^3/\text{Hr}$) 4塔並列方式

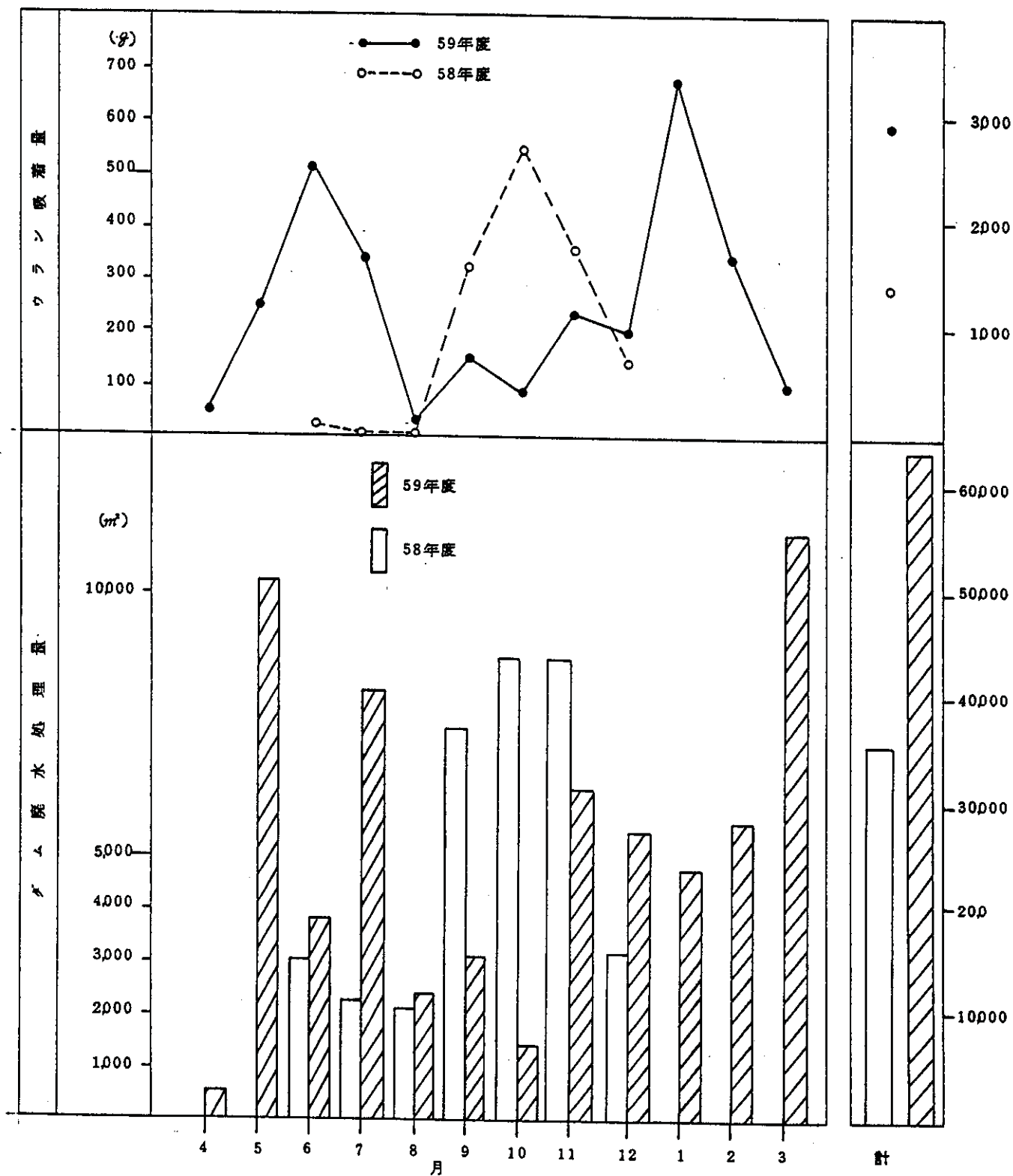


図-4 ウラン回収設備の運転実績

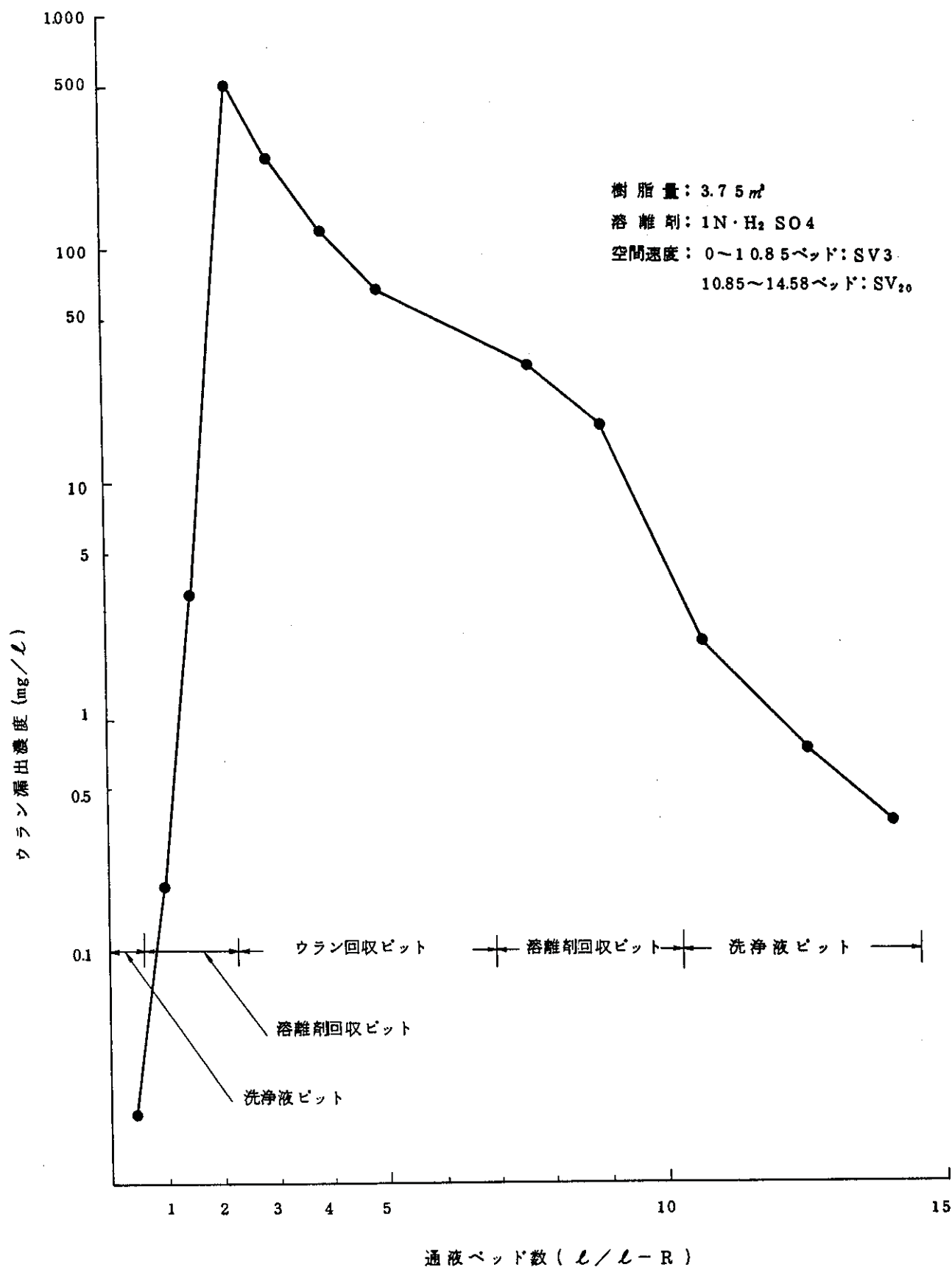


図 - 5 ウラン回収設備の溶離曲線

表-1. ウラン吸着剤の物性

樹脂名	CR-50	CR-55	ES-137	A-101D/U
メーカー	三菱化成	三菱化成	ローム・アンド・ハース	ローム・アンド・ハース
樹脂性状	アミトキシン型ゼライト	同 左	強塩基アニオン交換	同 左
母体	スチレン DVB	同 左	ポリスチレン	同 左
交換基	$-\text{C} \begin{matrix} \nearrow \text{NOH} \\ \searrow \text{NH}_2 \end{matrix}$	同 左	$-\text{N}(\text{CH}_3)_3$	同 左
外観	不透明の白色	同 左	不透明な球の クリーム色	半透明な球の 赤茶色
球形	95%以上	同 左	95%以上	同 左
完球	90%以上	同 左	90%以上	同 左
真比重	約 1.1	1.13	1.1 (Cl^-) 1.15 (SO_4^{2-})	1.2 (Cl^-) 1.3 (SO_4^{2-})
見掛比重 (g/l)	680	672	740	785
含水率	40~45%	50~55%	45~50% (Cl^-)	43~52% (Cl^-)
全交換容量	3~5 g·u/l	4~6 g·u/l	1.4 eq·u/l (Cl^-) 3.7 eq·u/l (Cl^-)	1.3 eq·u/l (Cl^-) 3.2 eq·u/l (Cl^-)
膨潤性			SO_4-OH 12%以下	同 左
粒度分布	0.25~0.84mm		0.30~1.00mm	同 左
有効径	0.32mm	0.44mm		
均一径数	1.2	1.44		
販売時の型			SO_4^{2-} 又は Cl^-	同 左
有効 pH 範囲				
耐用最高温度			60℃ (OH^-) 100℃ (Cl^- 及び SO_4^{2-})	同 左
耐薬品性			酸・アルカリに安定	同 左
その他		CR-50の改良品		SiO_2 対策用

表-2 バッチ試験によるウラン吸着結果

樹 脂 名	液 比 (樹脂ml : 原水ml)	残液中のウラン濃度 (mg/ℓ)	ウラン吸着量 (mg/ml-Resin)
CR-50 (三菱化成) アミドキシム型キレート	1 : 1000	21.8	3.2
	2 : 2000	22.0	3.0
CR-55 (三菱化成) CR-50改良型	1 : 1000	21.3	3.7
	2 : 2000	21.6	3.4
ES-137 (ローム・アンド・ハース) 強塩基アニオン交換	1 : 1000	7.2	17.8
	2 : 2000	7.3	17.7
A-101D/U (ローム・アンド・ハース) 強塩基アニオン交換	1 : 1000	10.1	14.9
	2 : 2000	9.3	15.7

備考 1) 原水中のu濃度 : 25.0 mg/ℓ

2) 攪拌時間 : 4 Hr

3) 液温度 : 約20℃

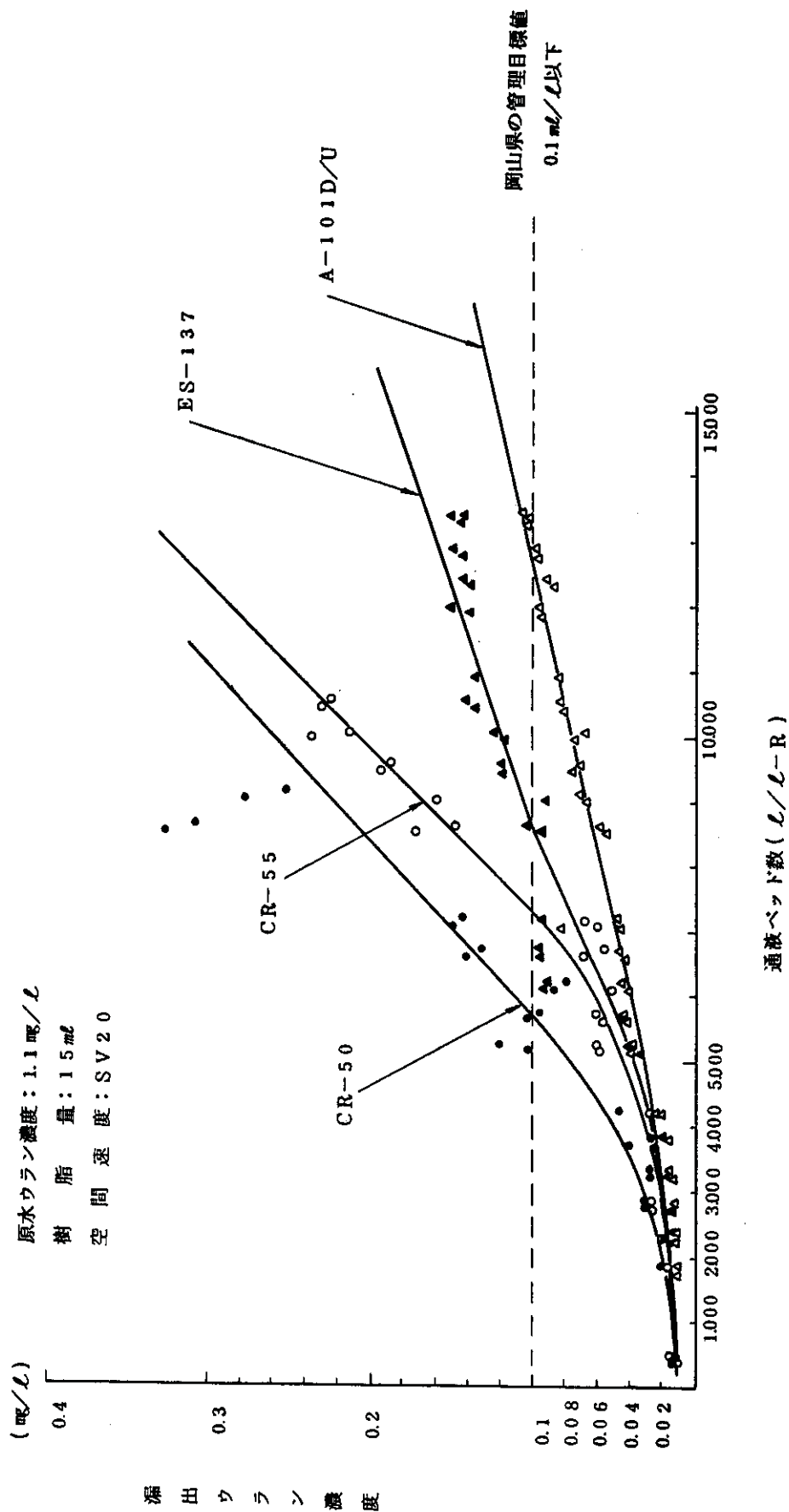


図-6 各吸着剤によるウラン吸着量と通液ベッド数との関係 (SV20)

ウラン濃度 0.1 ㏎/㍓までの通液ベッド数

吸着剤名	空間速度	SV 20	SV 50
CR-50 (三菱化成品)		5.700 ㍓/㍓-R	1.200 ㍓/㍓-R
CR-55 (三菱化成品)		7.300 "	1.400 "
ES-137 (ロム・アンド・ハーズ品)		8.700 "	7.200 "
A-101D/U(ロム・アンド・ハーズ品)		12.500 "	11.500 "

原水ウラン濃度: 1.1 ㏎/㍓
樹脂量: 5 ml
空間速度: SV 50

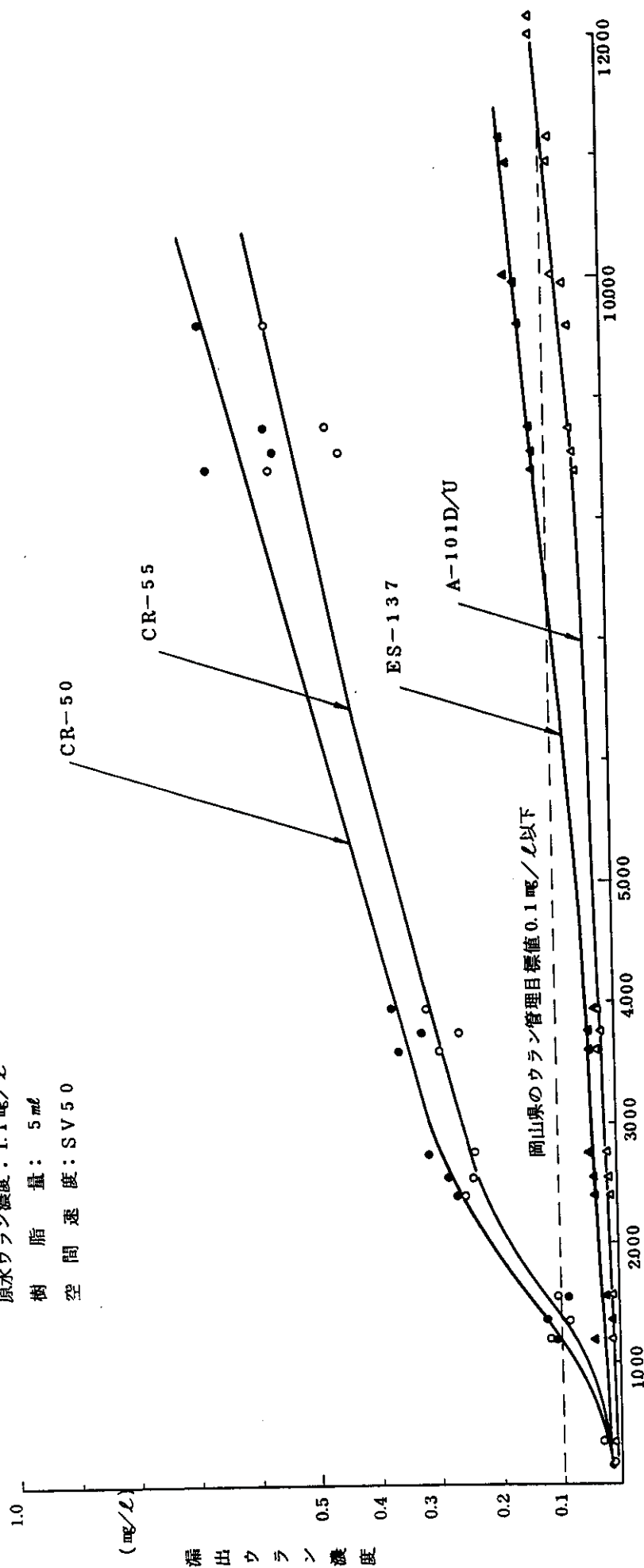


図-7 各吸着剤によるウラン吸着量と通液ベッド数との関係 (SV 50)

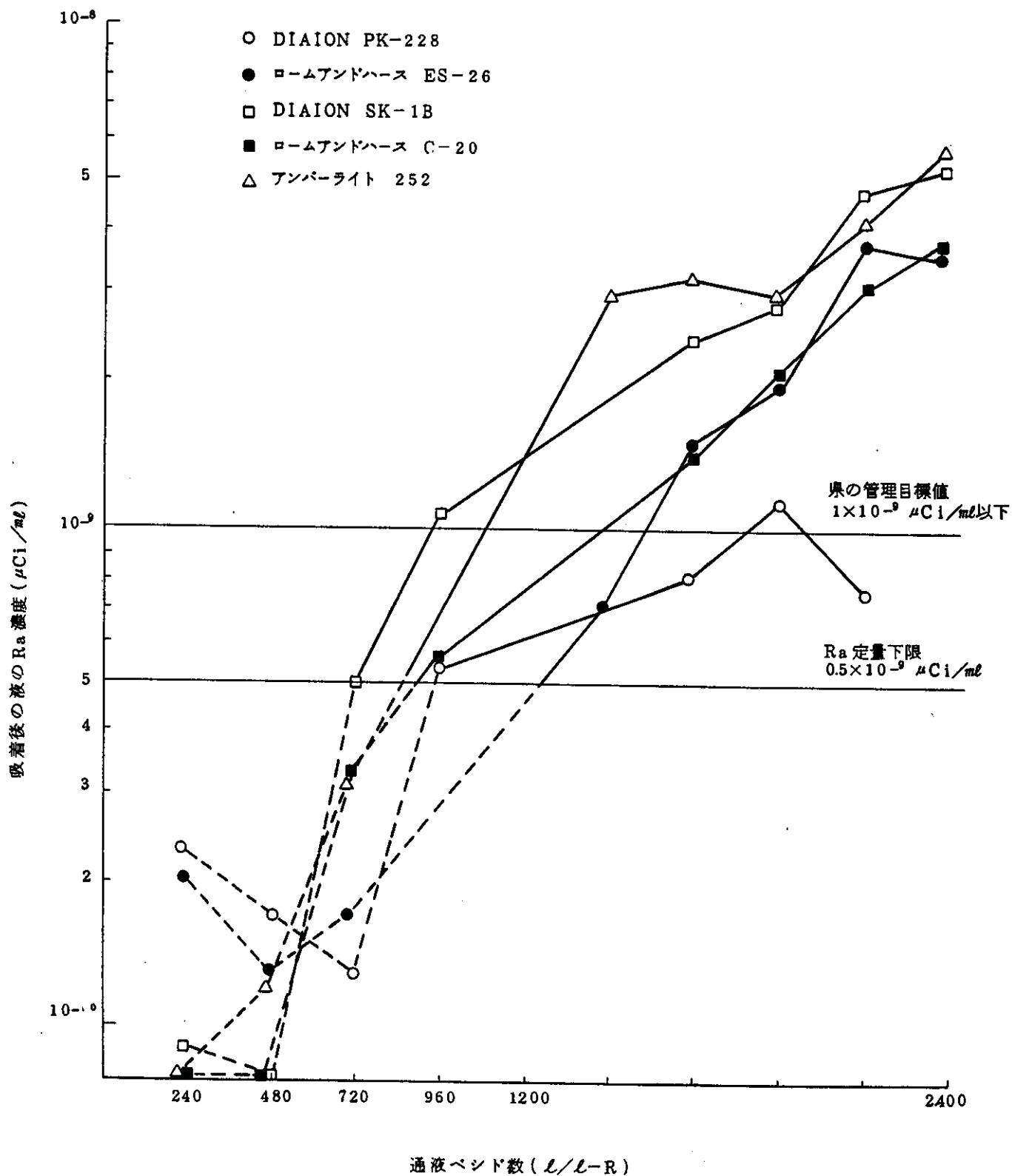


図-8 強酸性陽イオン交換樹脂によるラジウム吸着量と通液ベツド数との関係

原水濃度: $1 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{ml}$

吸着速度: SV 10

樹脂量: 20ml

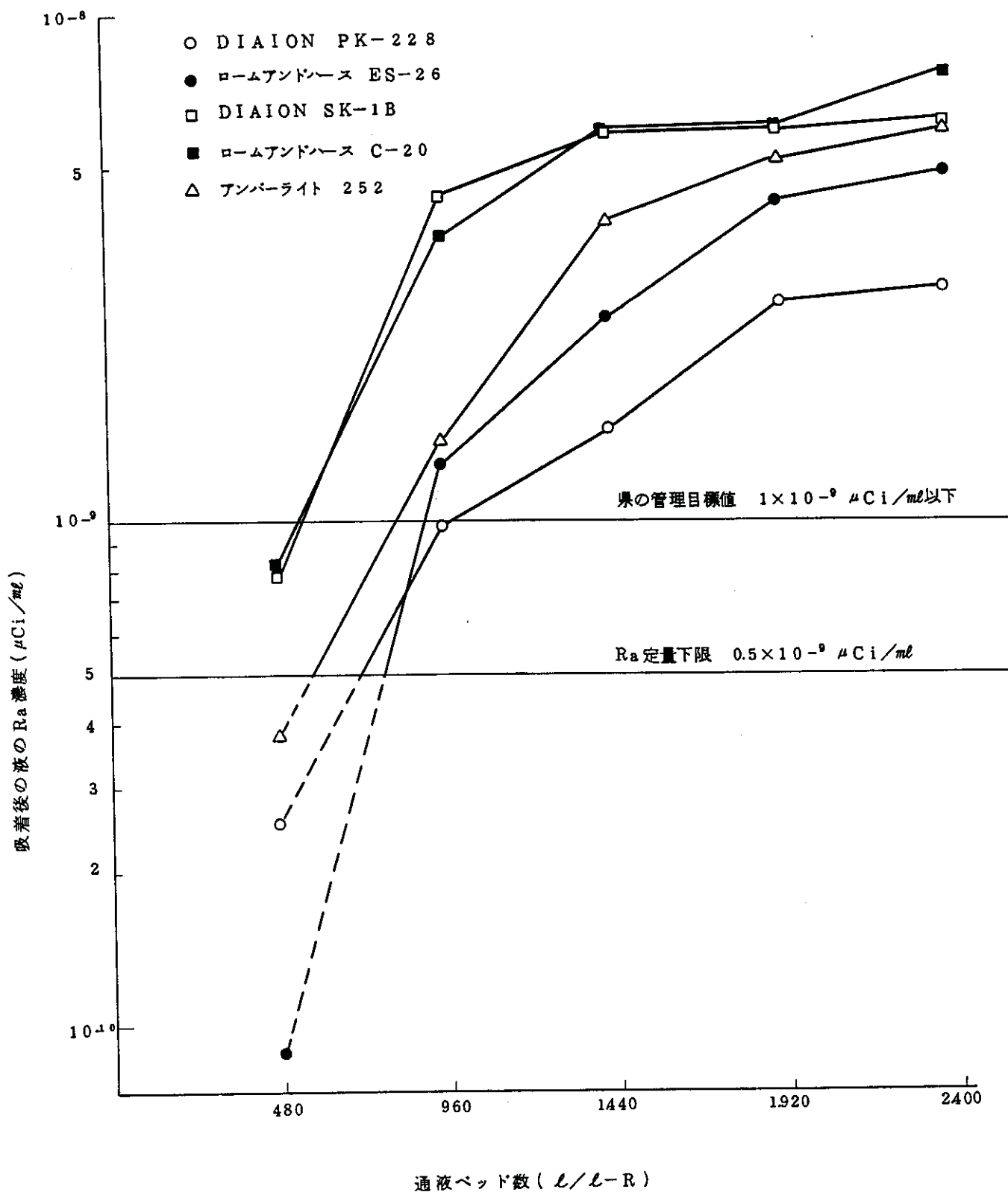


図-9 強酸性陽イオン交換樹脂によるラジウム吸着量と通液ベッド数との関係

原水濃度: $1 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{ml}$

吸着速度: SV 20

樹脂量: 10 ml

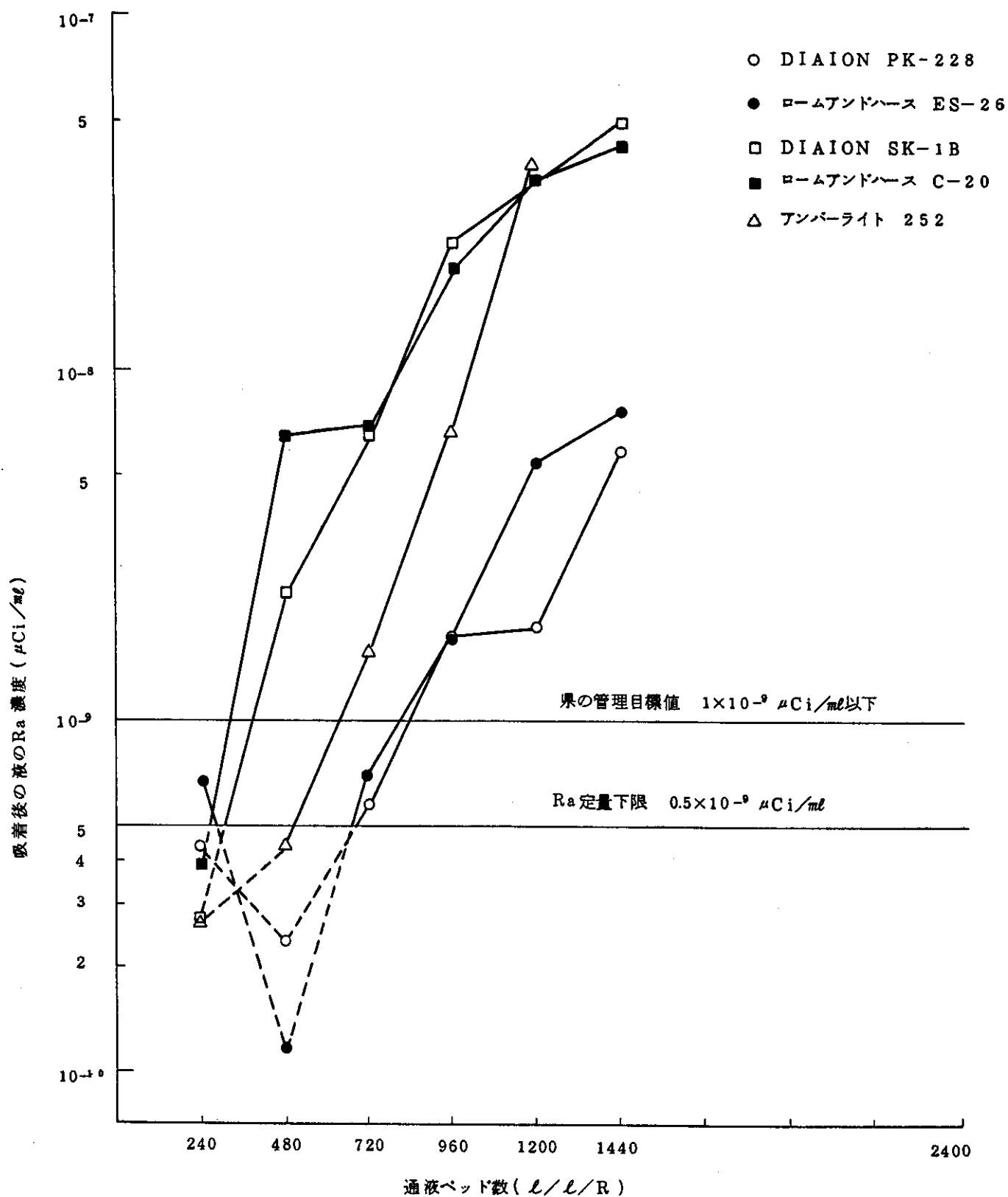


図-10 強酸性陽イオン交換樹脂によるラジウム吸着量と通液ベッド数との関係

原水濃度: $1 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{ml}$

吸着速度: SV10

樹脂量: 20 ml

原水濃度： $1 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{ml}$

吸着速度：SV20

樹脂量：10ml

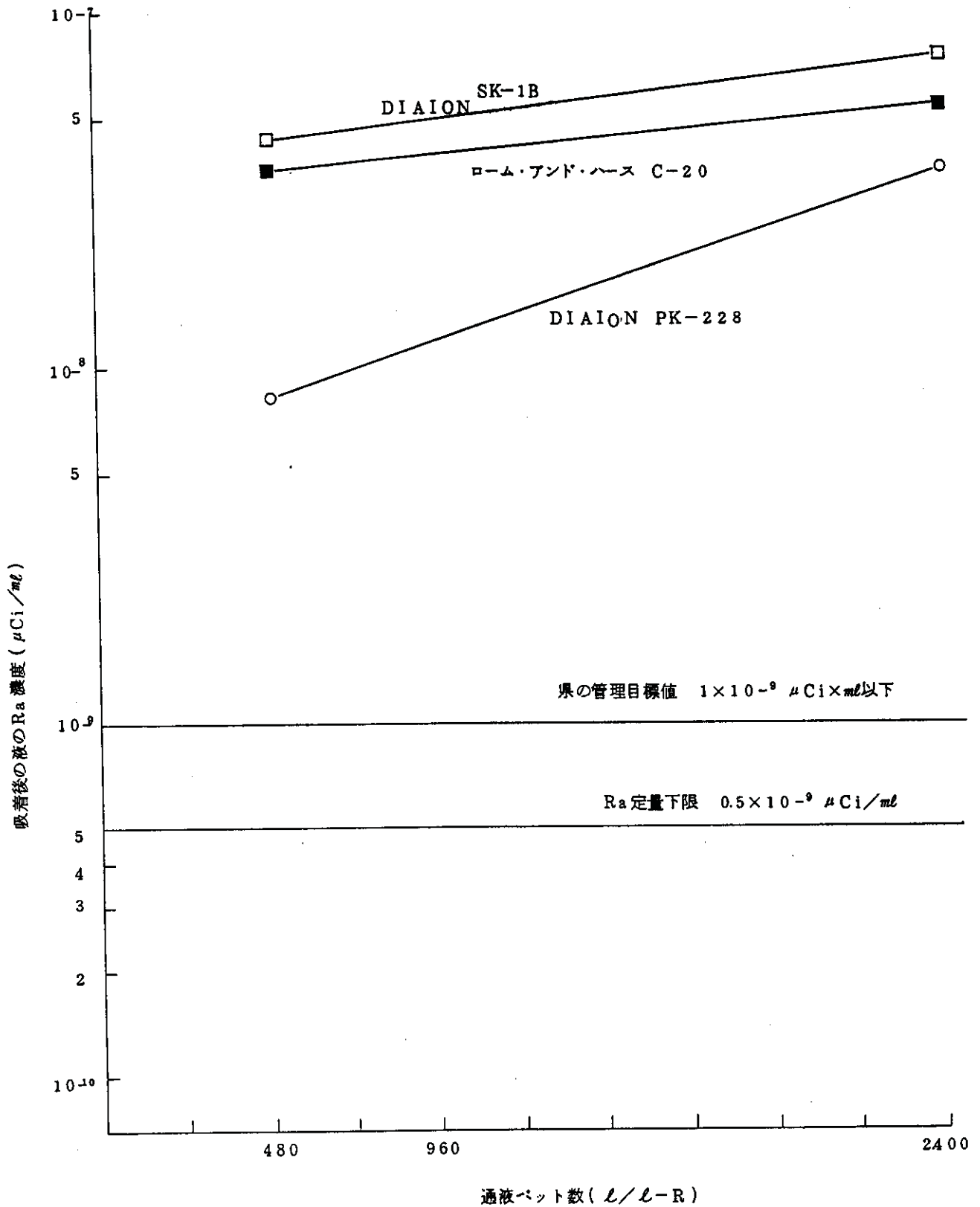


図-11 強酸性陽イオン交換樹脂によるラジウム吸着量と通液ベット数との関係

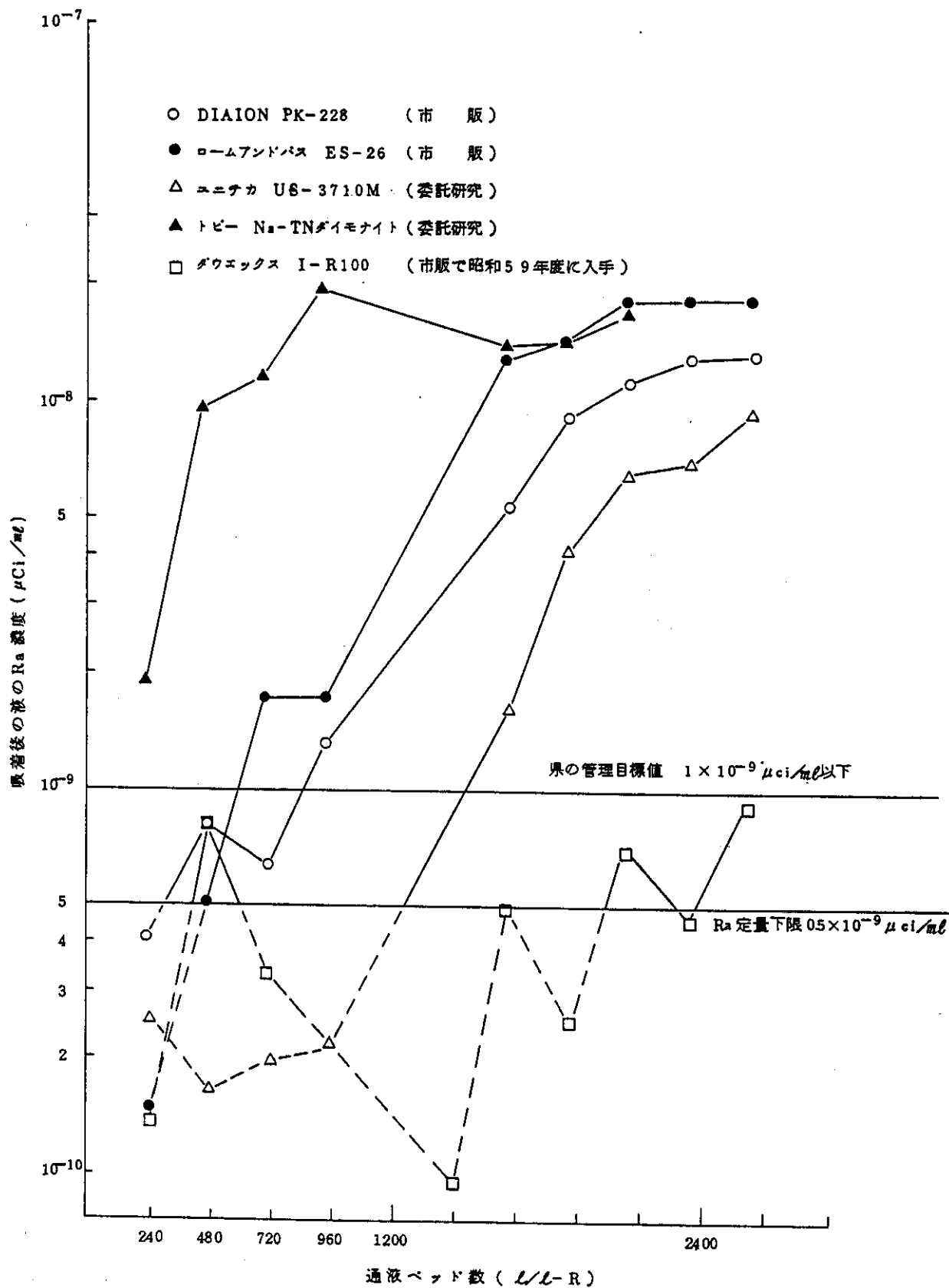


図-12 他社商品によるラジウム吸着量と通液ベッド数との関係

原水濃度: $2 \sim 3 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{ml}$

吸着速度: SV 10

樹脂量: 20ml

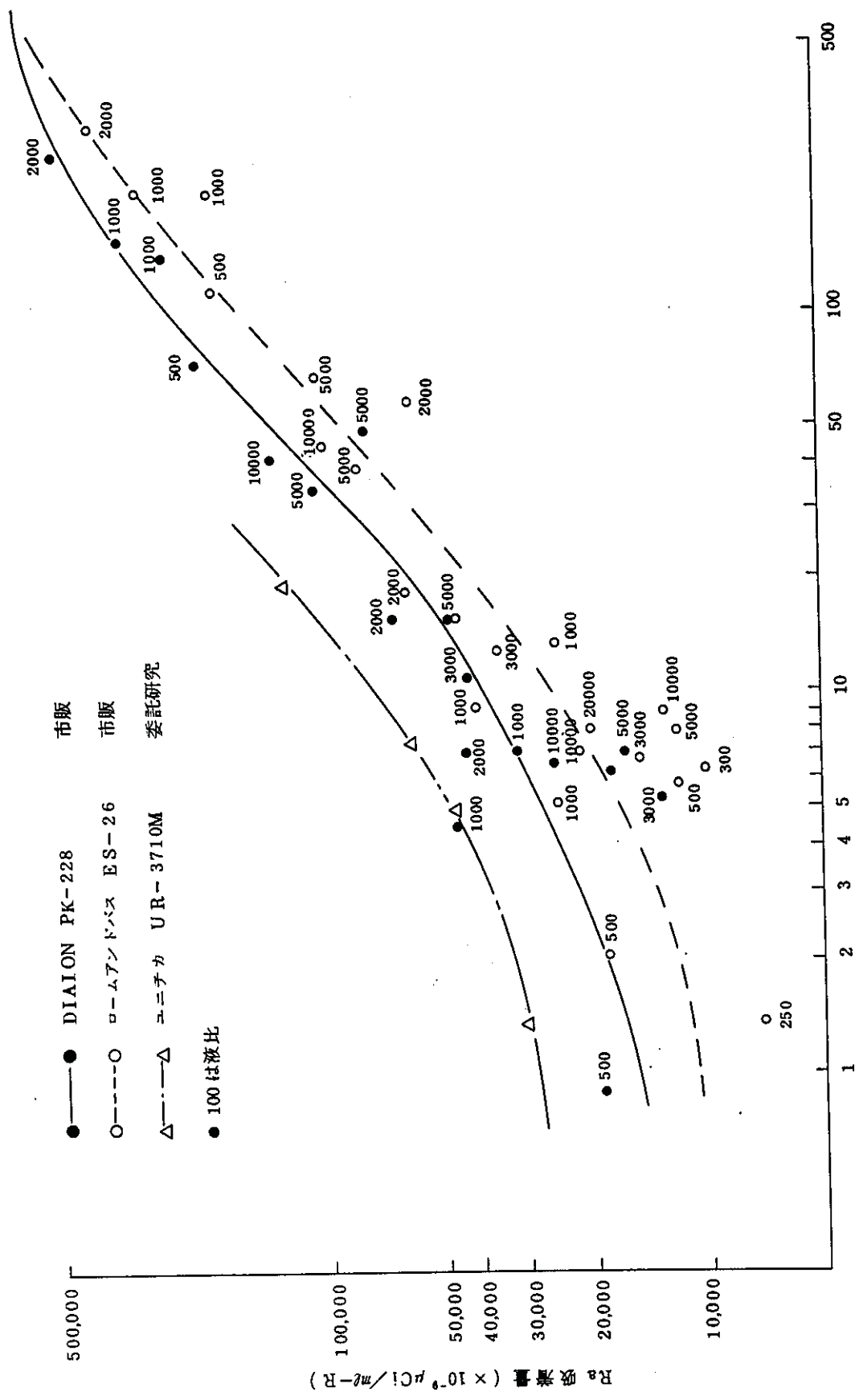


図-13 Ra平衡濃度 ($\times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{ml}$)
 Ra 原水濃度 : 約 $5 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{ml}$
 攪拌時間 : 4Hr (但しユニチカ 24Hr)
 温度 : 常温

表-3. ラジウム吸着におよぼす温度の影響

メーカー 設定温度 ラジウム原水濃度 ($\mu\text{Ci/ml}$)	ラジウム吸着量 ($\mu\text{Ci/ml}$)					
	DIAION PK-228			ロームアンドハース ES-26		
	2℃	20℃	40℃	2℃	20℃	40℃
4.02×10^{-7}	2.40×10^{-4}	2.66×10^{-4}	2.58×10^{-4}	2.07×10^{-4}	1.98×10^{-4}	1.98×10^{-4}
4.86×10^{-8}	3.58×10^{-5}	3.68×10^{-5}	3.74×10^{-5}	3.00×10^{-5}	2.85×10^{-5}	2.80×10^{-5}

攪拌時間：4 Hr

液 比：1：2000

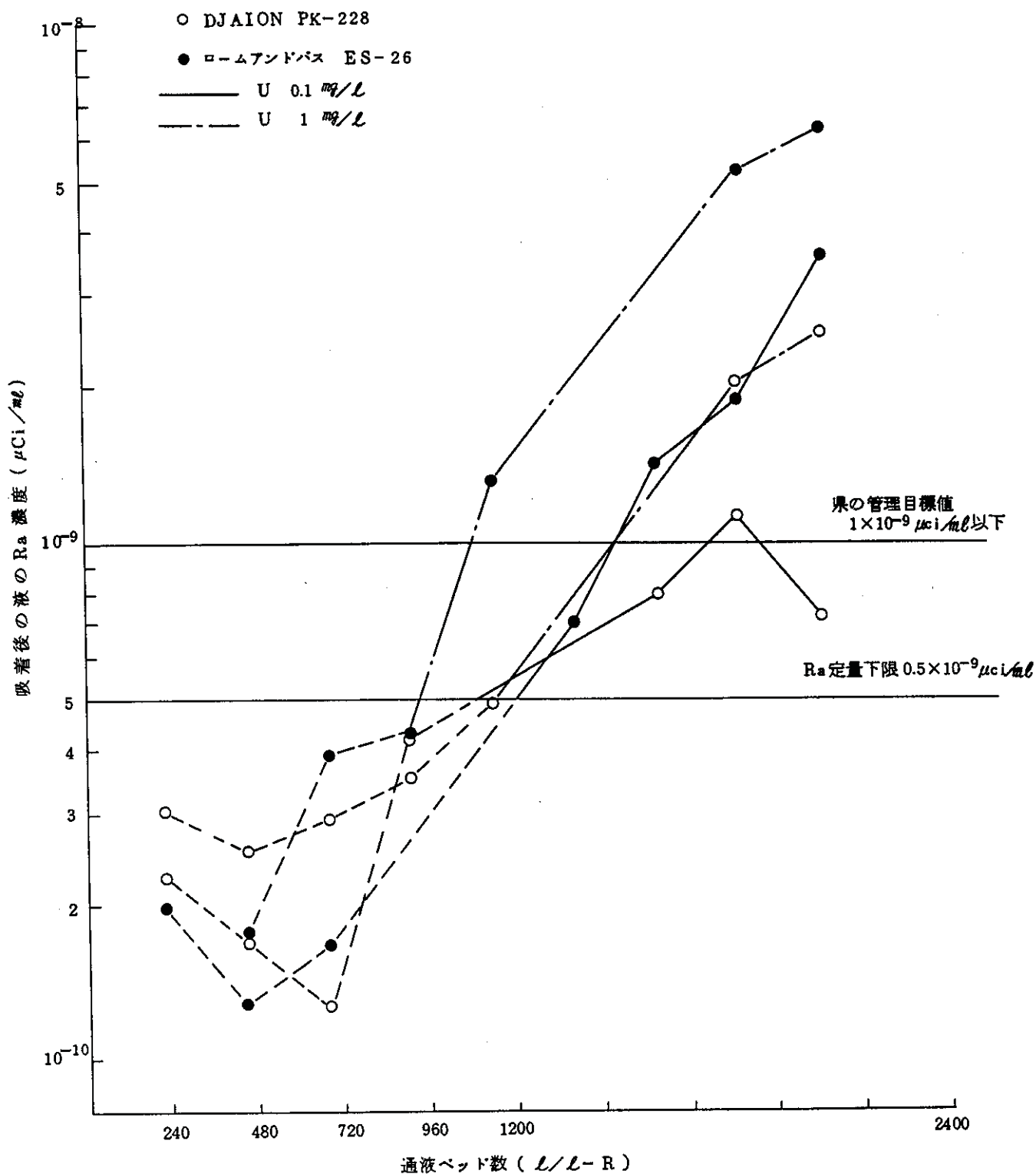


図-14 ラジウム吸着におよぼすウラン濃度の影響

原水濃度 : $1 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$

吸着速度 : SV 10

樹脂量 : 20 ml

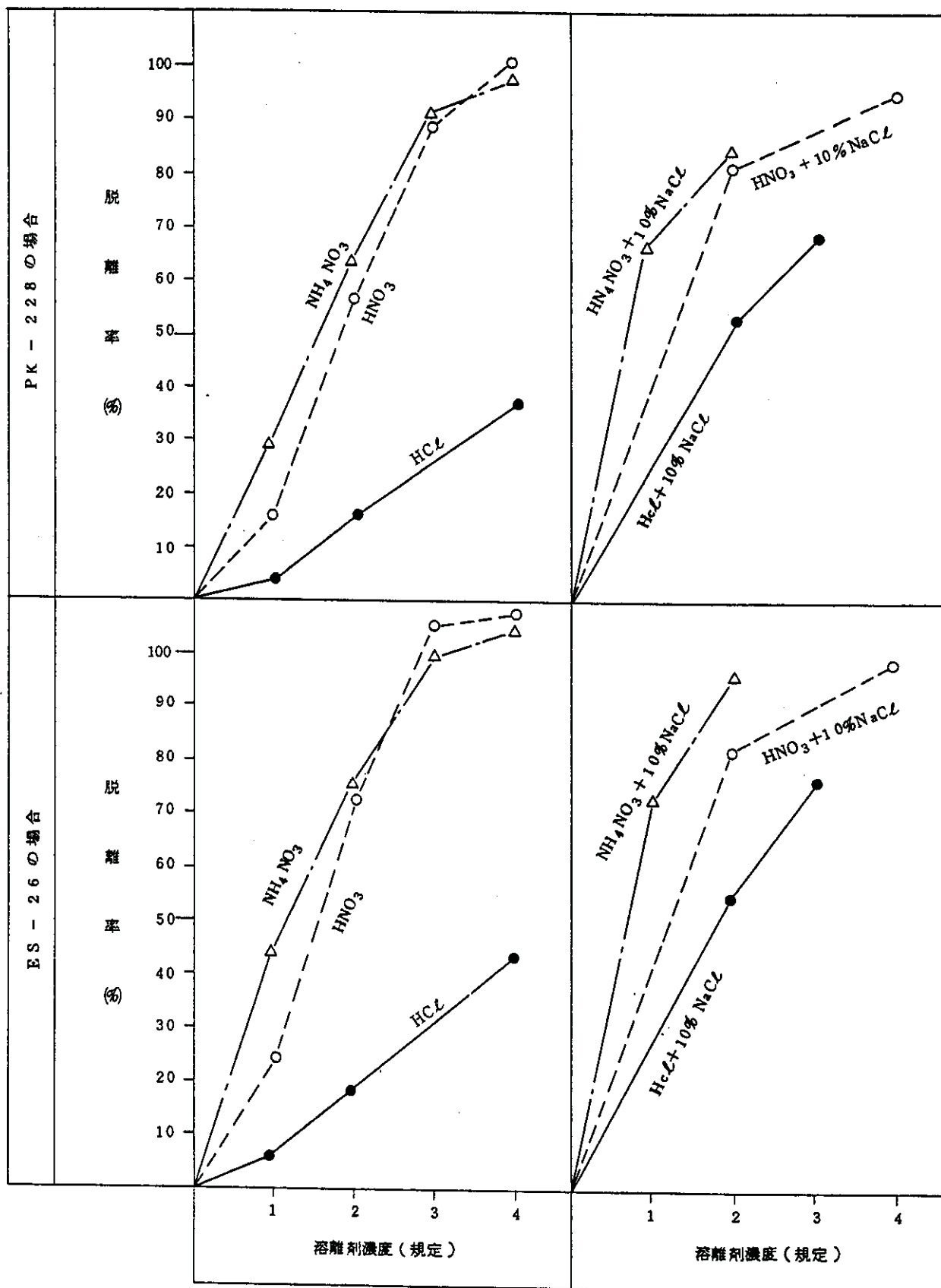


図-15 強酸性陽イオン交換樹脂によるラジウム脱離率

{ 攪拌時間 : 4Hr
液 比 : 1 : 30 }

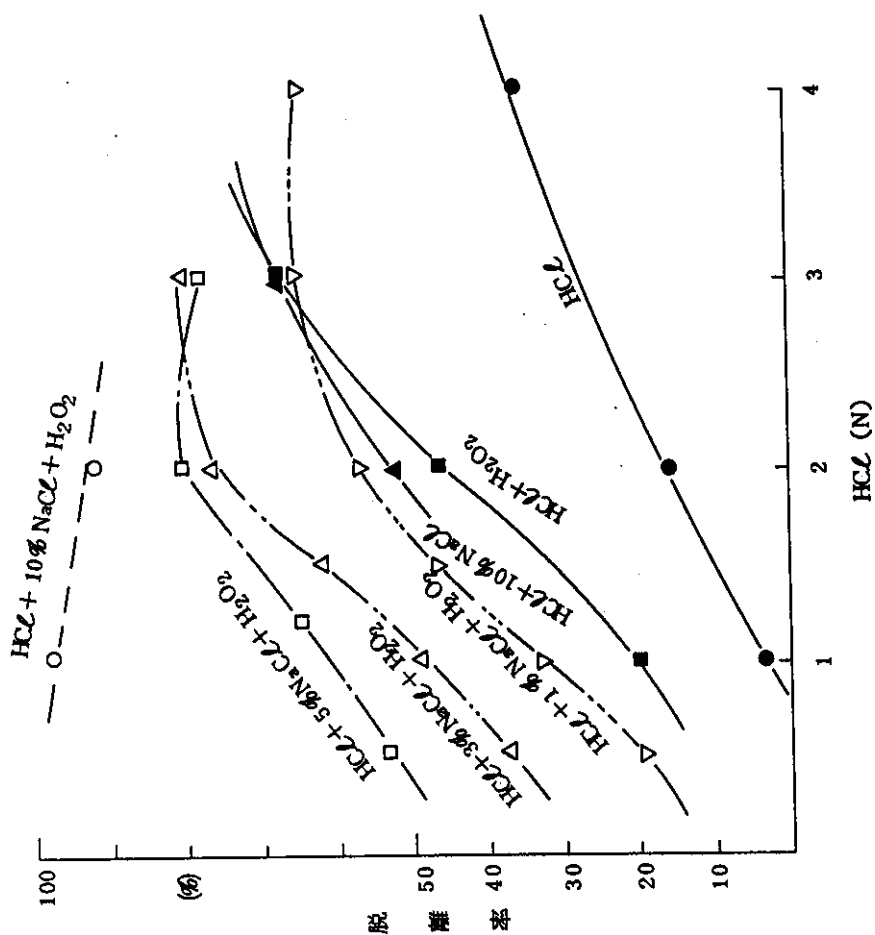
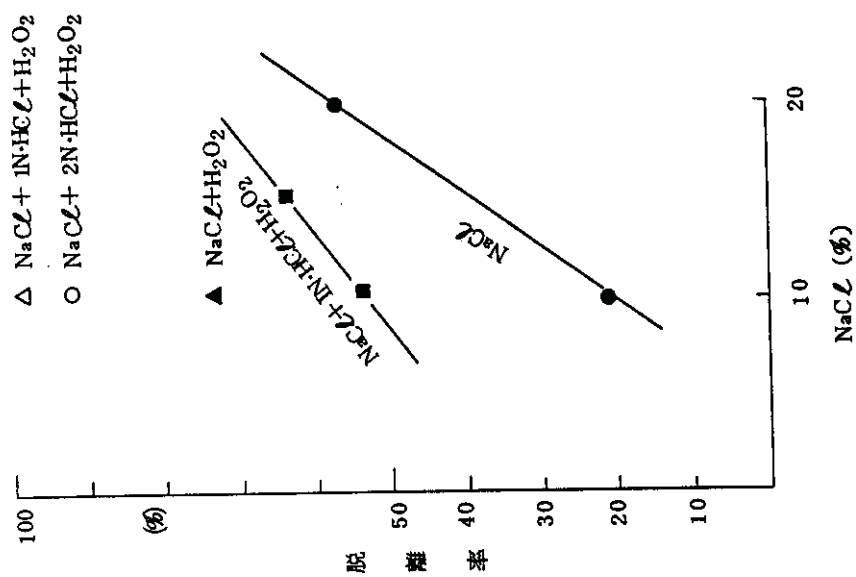


図-16 強酸性陽イオン交換樹脂 (PK-228) による各溶離剤のラジウム脱離率

攪拌時間 : 4 Hr
 濃比 : 1 : 200
 H₂O₂ 添加量 : 0.01 ~ 0.1 %

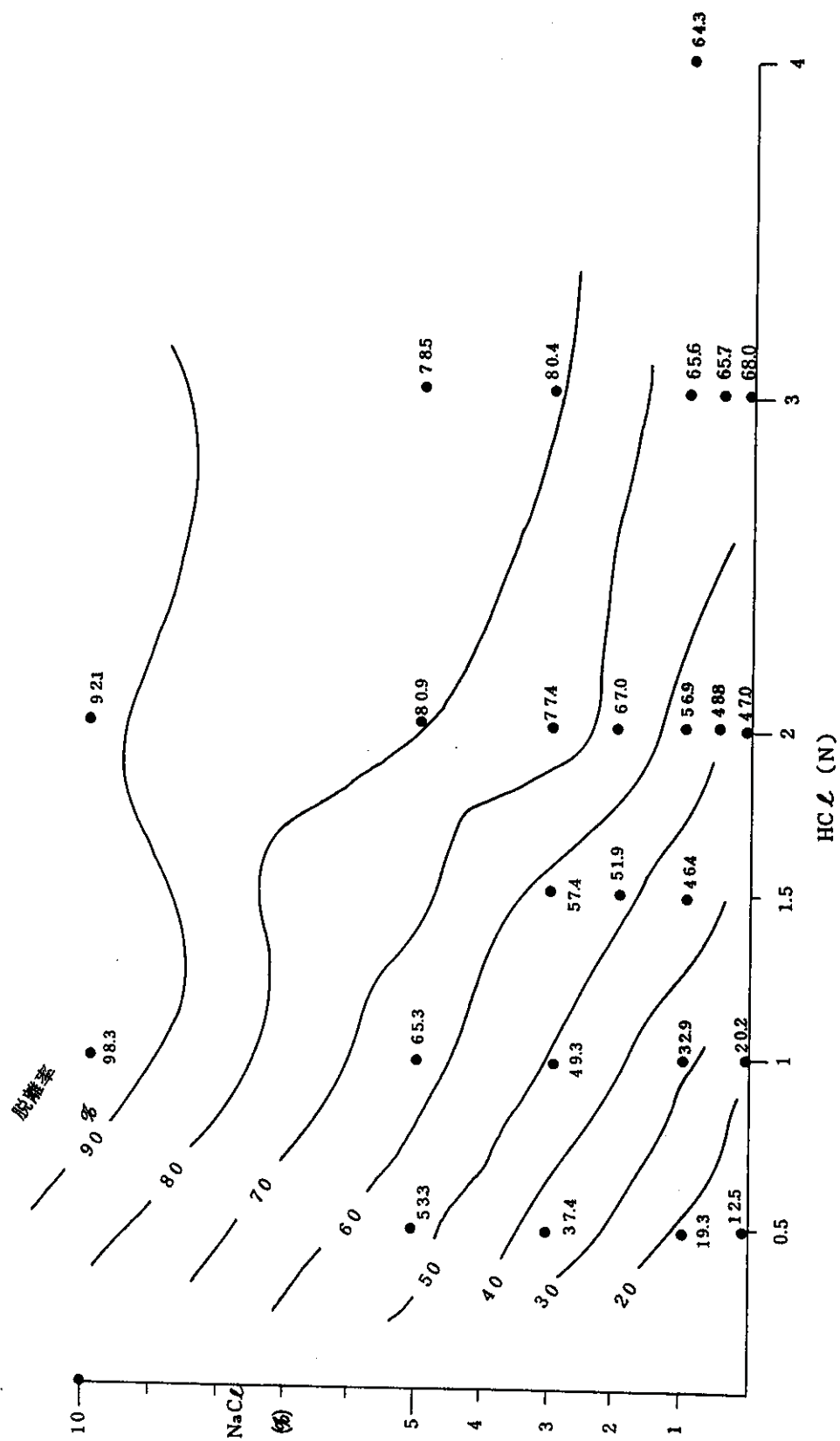


図-17 強酸性陽イオン交換樹脂 (RK-228) のラジウム脱離等温線

溶離剤: HCℓ+NaCl+0.01~0.1% H₂O₂

攪拌時間: 4Hr

濃比: 1:200

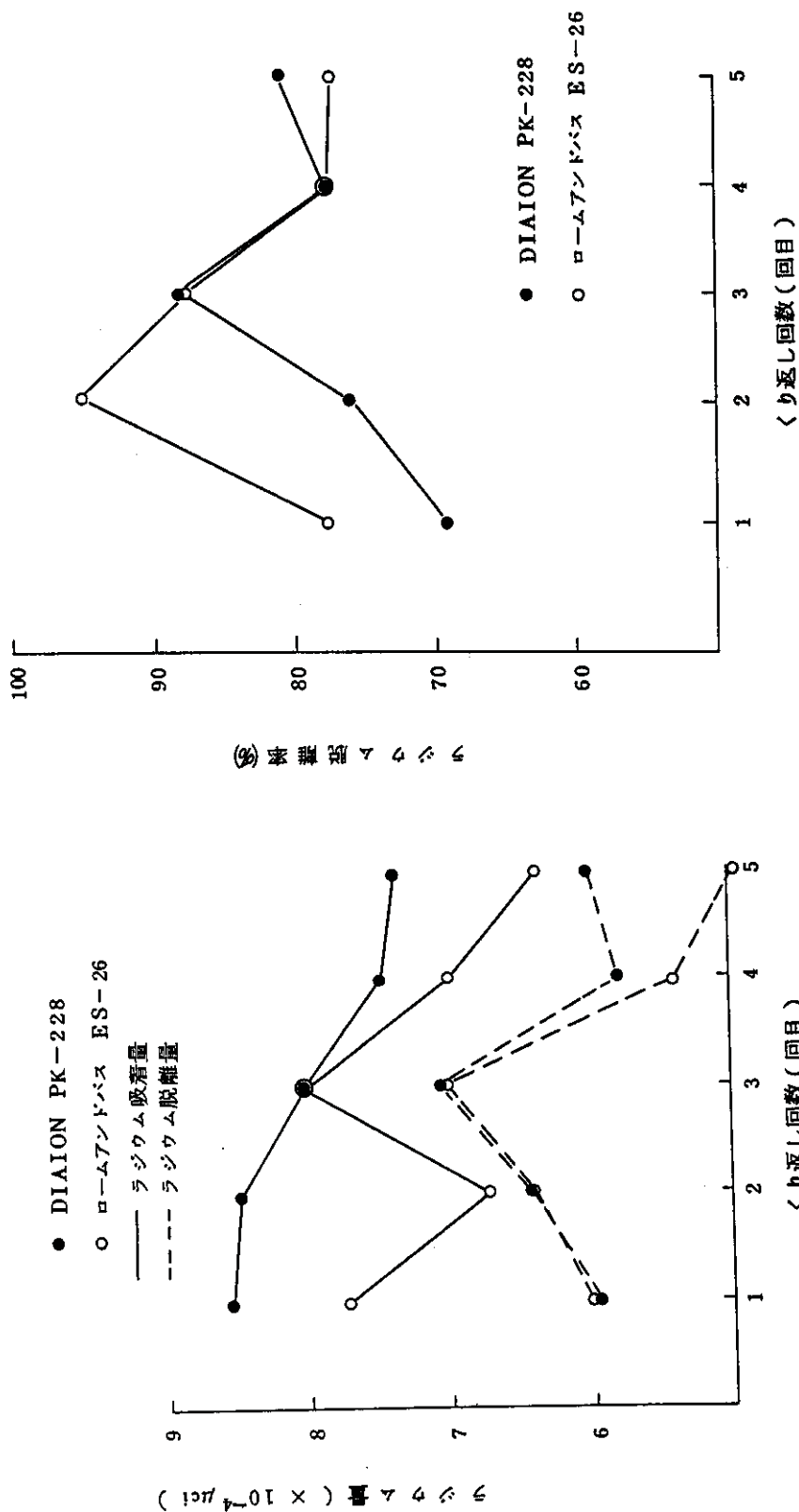


図-18 ラジウムライフバッチ試験 (5 回くり返し)

表-4. ラジウムライフパッチ試験 (5回くり返し)

脱離方法 ラジウム 樹方	1 回 目			2 回 目			3 回 目			4 回 目			5 回 目		
	吸着量	脱離量	脱離率	吸着量	脱離量	脱離率	吸着量	脱離量	脱離率	吸着量	脱離量	脱離率	吸着量	脱離量	脱離率
	$\times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	$\times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	%	$\times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	$\times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	%	$\times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	$\times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	%	$\times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	$\times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	%	$\times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	$\times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	%
DIAION PH-228	A	8.52	5.95	69.8	8.48	6.47	76.3	8.01	7.09	88.5	7.46	58.1	7.38	6.02	81.5
	B	8.52	6.03	70.8	7.46	6.52	87.4	7.54	7.08	93.9	7.42	5.41	6.36	6.15	96.7
	C	8.07	6.49	80.4	7.74	7.61	98.3	8.74	8.43	96.4	7.95	6.18	6.94	7.53	108.5
	D	8.92	6.89	77.2	7.75	7.59	97.9	8.87	7.86	88.6	7.95	6.36	7.40	7.43	100.4
ES-26	A	7.72	6.03	78.1	6.74	6.44	95.5	8.01	7.07	88.3	6.98	5.42	6.36	4.92	77.4
	B	8.20	5.91	72.1	6.74	6.18	91.7	8.08	6.89	85.3	6.96	5.31	7.16	5.38	75.1
	C	8.97	7.53	83.9	7.12	7.18	101.0	8.08	7.43	92.0	7.22	6.14	6.08	6.94	114.1
	D	8.93	7.26	81.3	7.20	7.32	101.6	8.15	7.23	88.8	7.32	6.16	6.34	6.81	107.4
IR-100	A	9.80	6.59	67.2	9.47	6.90	72.8	9.76	8.14	83.4	8.21	5.90	8.98	5.08	56.6
	B	9.63	6.76	70.2	9.48	7.21	76.1	9.75	8.04	82.4	9.67	6.75	9.03	5.43	60.1
	C	9.72	7.86	80.9	9.46	9.20	97.3	8.61	5.16	59.9	7.68	5.93	8.48	8.81	103.9
	D	9.47	7.55	79.7	9.49	9.25	97.5	5.56	4.00	71.9	7.32	8.80	9.03	8.22	91.0

備考 1. 吸着条件: $5 \times 10^{-7} \mu\text{Cl}/\text{ml} \times 2000\text{ml}/10\text{ml Resin} \times 4 \text{ Hr mixing}$

2. 脱離条件: A $2\text{N} \cdot \text{HCl} + 3\% \text{NaCl} + 0.03\% \text{H}_2\text{O}_2$ (前日投入) $\times 500$ 又は $1000\text{ml}/10\text{ml} \cdot \text{Resin} \times 4 \text{ Hr mixing}$

B " (当日投入)

C " (2段方式前日投入)

D " (" 当日投入)

3. 減耗率: PK-288及びIR-100は殆んど無し, ES-26は3~16%減耗

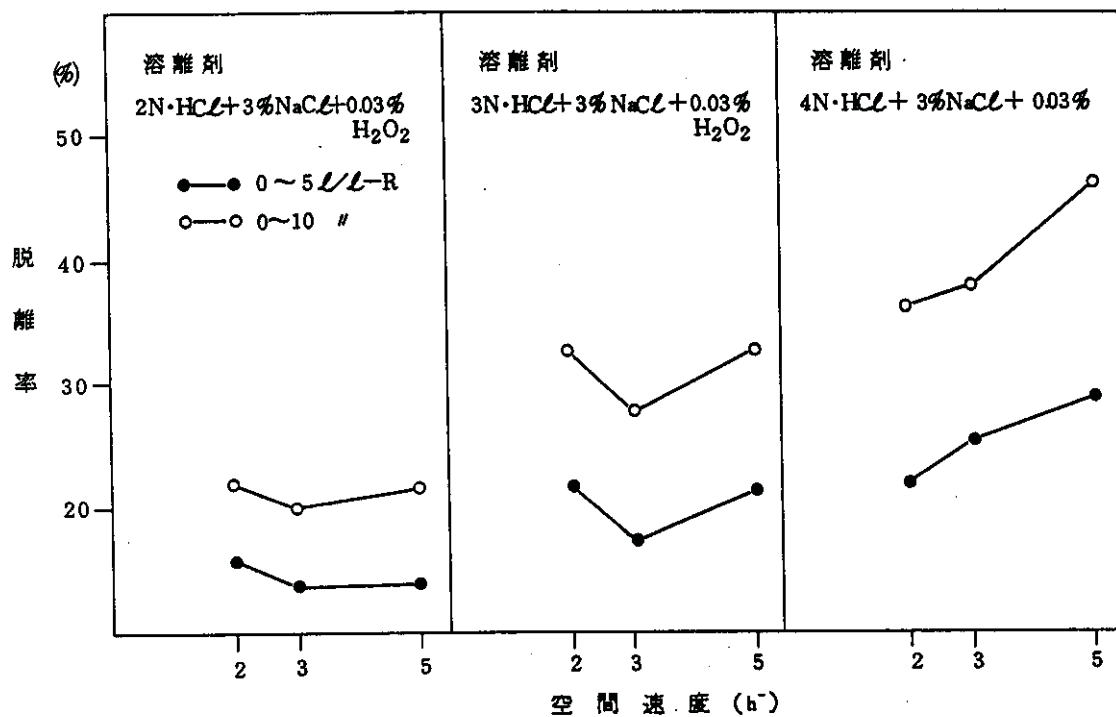


図-19 Ra 脱離カラム試験 (DIAION PK-228)

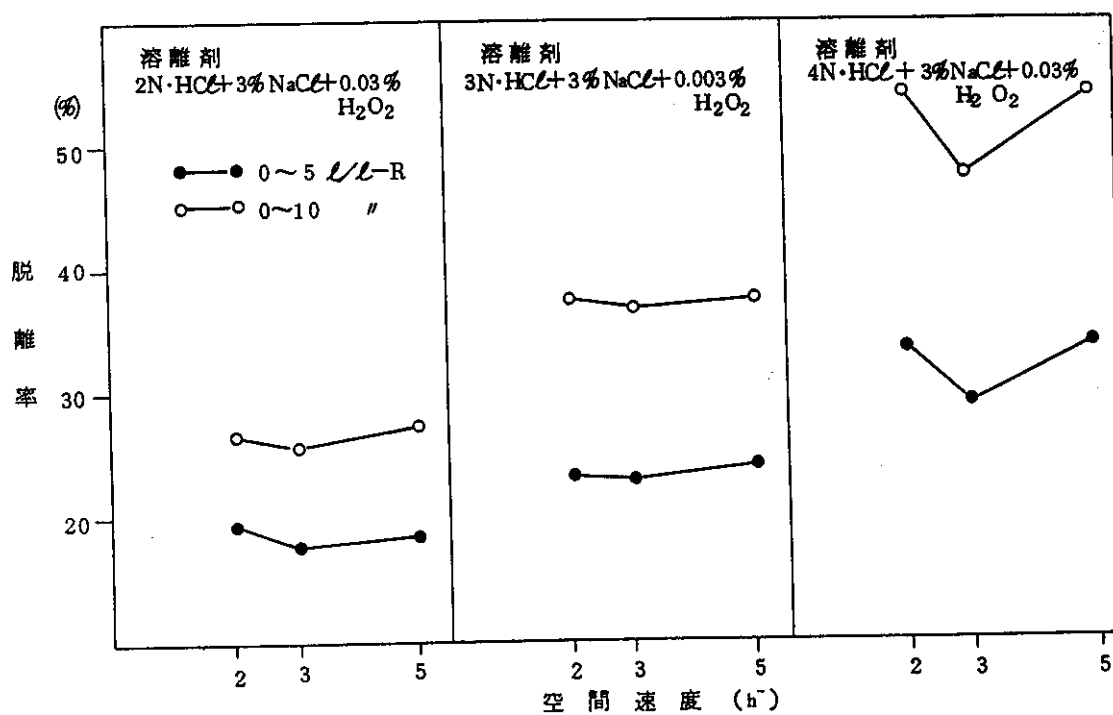


図-20 Ra 脱離カラム試験 (ローム・アンド・パークス ES-26)

4. 製 錬 課

4-(1) 製錬・転換パイロットプラント及びCTF-II運転概況

報告者 製錬課 安 田 式 郎

1. 製錬・転換パイロットプラント運転概況

59年度は前年度に引続き、図-1に示すように4班3交替勤務による運転を行い、当初の計画通り65 t-UのUF₆を生産することができた。図-2に本プラントの運転方式を示す。

i 第1期(59年/4月~4月末)

4班3交替勤務により、全工程の3分割運転を行い、2.5 t-UのUF₆を製造した。

ii 第2期(59年/5月初~7月末)

4班3交替勤務により、2分割Iの運転を行い、15.5 t-UのUF₆を製造した。この期間中イエローケーキドラム缶取扱い装置を完成した。

iii 夏期定期検査、工事(59年/8月~9月)

ユーティリティ設備の定期点検、工程設備の整備、核燃料物質の実在庫調査を行うと共に、TCC分析装置、新型電解還元槽を設置した。

iv 第3期(59年/10月~12月)

4班3交替勤務により、2分割Iの運転を行い、26 t-UのUF₆を製造した。また、ウラン、ふっ素吸着除去設備を完成した。

v 第4期(60年/1月~3月)

4班3交替勤務により、2分割IIの運転を行い、21 t-UのUF₆を製造した。

2. CTF-II運転概況

CTF-IIについては、59年度当初、前年度に引続き各工程の運転を通してスケールアップデータを取得する方向であったが、「東京電力㈱福島原子力発電所の取替燃料の一部に回収ウランを使用する計画」に基づき、本年度は生産を主体とした運転を行った。その結果、図-3に示すごとく「計画」に必要な2.9 t-UのUF₆を製造することができた。

i 第1期(59年/4月~8月初)

前年度に引続き日勤により、各工程の運転を行い、0.5 t-UのUF₆を製造した。本期間中、混合前処理試験装置及び大型のHFふっ化塔を完成した。

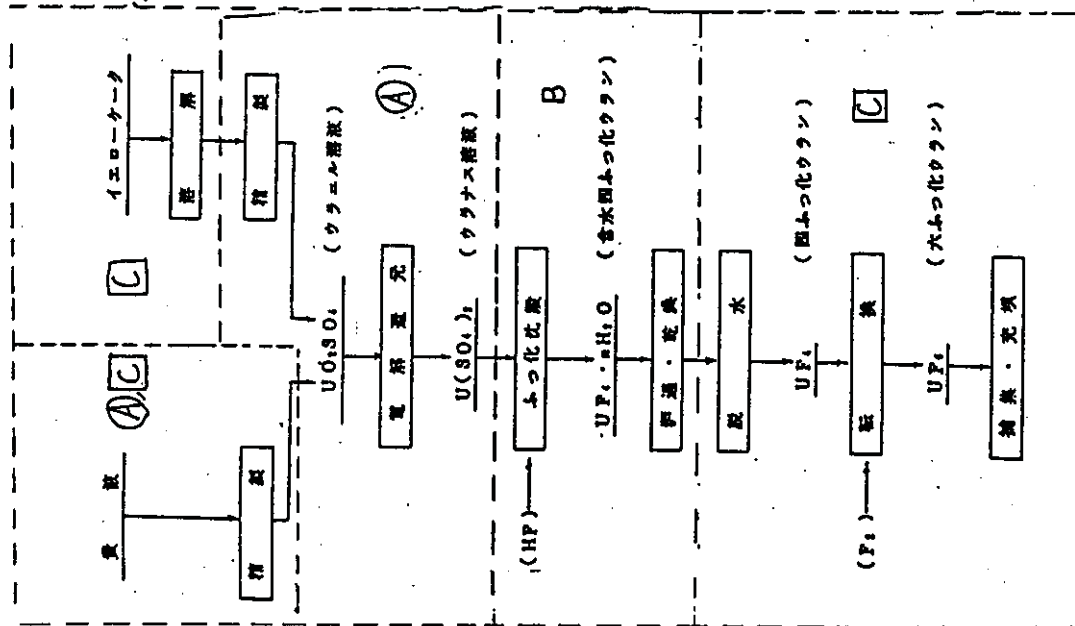
ii 第2期(59年/9月~60年/3月)

変則2班2交替勤務(月曜~金曜の間1直:8:30~17:00, 2直16:45~1:15)
により各工程の運転を行い, 2.4 t-UのUF₆を製造した。なお, 大型脱水還元塔の工場
製作に着手した。

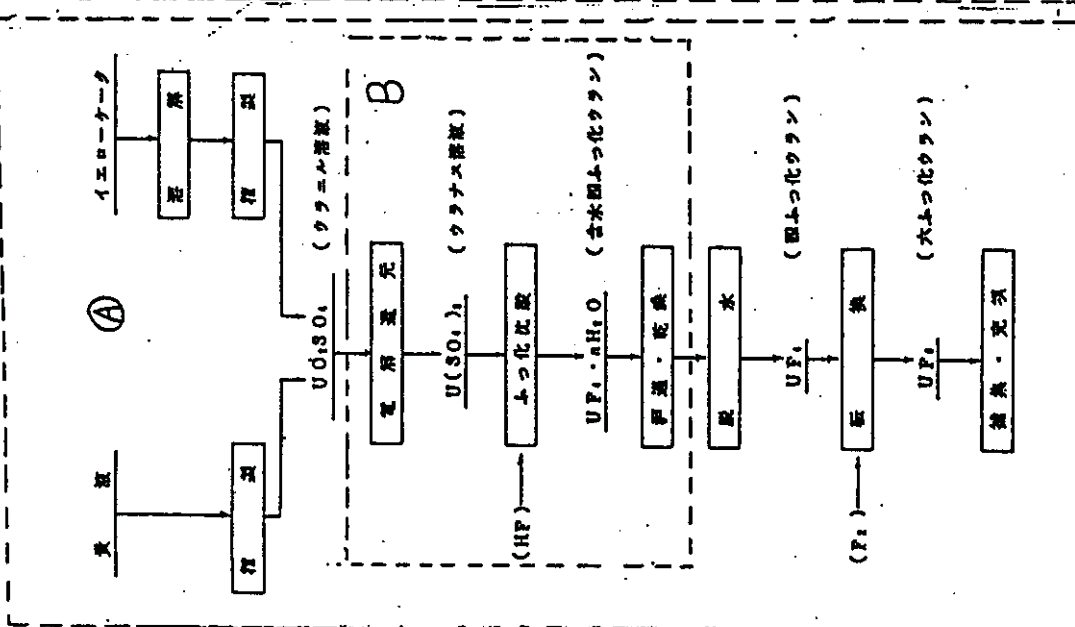
図-1 製錬・転換P P運転及び工事実績

年 月		5 9								6 0			
		4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
運 転 実 績	運 転	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔
	運 転 方 法	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔
	生 産 量	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔
工 事	ドラム缶取扱装置	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔
	TCC分析装置	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔
	廃液処理設備	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔
	新電解還元槽	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔
	UF、中間受槽	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔	↔

3 分割運転



2 分割 I 運転



2 分割 II 運転

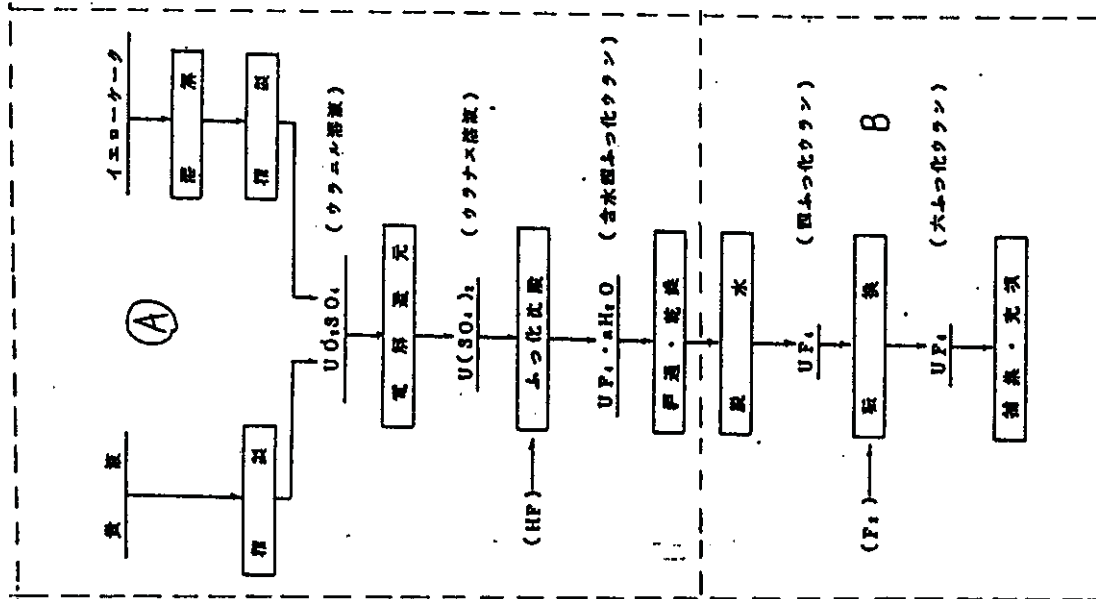


図-2 製錬・転換パイロットプラント運転方式

年 月		5 9								6 0			
		4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
運 転 実 績	運 転	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
	運 転 方 法	→	日	勤	→	定 検	→	→	→	2 班 2 交 替	→	→	→
	生 産 量	→	→	→	→	0.5 t-U	→	→	→	2.4 t-U	→	→	→
工 事	大型HFふっ化塔	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
	混合前処理装置	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
	大型脱水還元塔	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
												工場製作	

図 - 3 C T F - Ⅱ 運 転 及 び 工 事 実 績

4-(2) ドラム缶取扱装置の設置

報告者

製錬課

--

1. 概要

海外から購入のイエローケーキは、製錬転換パイロットプラントでまず溶解されるが、溶解に先立ってドラム缶からイエローケーキホッパに移送しなければならない。

この移送方法は、製錬転換パイロットプラント操業初期では、ドラム缶反転法（昭和57年2月～昭和57年9月）を用い、主要機器としては、YCドラム回転機、ドラム洗浄装置、YC粉砕機およびYCコンベアを使用した。しかしながら、この方法では不便な点が多かったので、移送方式を全面変更した。すなわち、気流輸送法（全手動）（昭和57年9月～昭和59年6月）を用い、主要機器としては、ブロワ、サイクロン式分離装置、バグフィルタおよびドラム洗浄装置を使用した。引続き同方式で安全性、省力化を考慮して、改良を加え気流輸送法（自動（一部手動介入））（昭和59年7月～現在）とした。主要機器は、ブロワ、サイクロン式分離装置、バグフィルタ、ドラム缶取扱装置、および洗浄液槽である。

各移送方式の主要機器の仕様を表-1に示す。

2. 運転状況

各移送方式の運転状況は、次の様である。

1 ドラム缶反転法

図-1にドラム缶反転法の設置断面図（概略）を、図-2に主要機器のドラム回転機の側面図（概略）を示す。

ドラム缶反転法の運転は、

1) 昭和57年2月19日～3月12日

ドラム缶反転を3日間行い2tU（ドラム缶8本）のイエローケーキをホッパに移送

2) 昭和57年4月18日

3交替でドラム反転を行い、2tUのイエローケーキをホッパに移送。この方式は、上述の2度しか実施できなかった。その理由としては、

- 1) ドラム缶上部開梱部と回転機の密着性が悪く、ドラム缶回転時イエローケーキが漏洩する（密着性不良の原因は、ドラム缶がJIS規格と大きく異なったり、真円でなかったため）

2) イエローケーキ粉砕機およびコンベアなどのシール性が悪く、イエローケーキが漏洩した。

3) 密着用油圧ポンプ故障

4) イエローケーキ漏洩で、溶解室1, 2階の汚染が生じた。したがって、半面マスクに応じて全面)およびタイベックスーツの着用を義務化した。

これらのようなトラブルにより、運転不能の状態に陥ったからである。

これらのようなトラブルで、イエローケーキ移送の円滑化が困難となり、そのことから、製錬転換パイロットプラントの操業にも影響が生じたので、速やかに解決する移送方式を検討した結果、乾式工程で採用している気流輸送方式に変更することとした。

2 気流輸送法(手動)

方式としては、気流輸送法に決定したが、次のような理由からドラム缶反転装置の撤去はおこなわず、図-3に示すように、気流輸送装置を、イエローケーキ溶解室2階に設置した。すなわち、

- 1) 粉砕を要するイエローケーキが輸入される可能性があり、直ちにドラム缶反転装置を全面撤去できない。
- 2) 操業上緊急を要し、機器の購入、据付が容易なものでなければならない。
- 3) 気流輸送方式による輸送能力、配管閉塞とその対策および除塵(イエローケーキ捕集)効果などに多少不安が残る。

この気流輸送法(手動)の運転状況は次の様である。

1) 昭和57年9月27日~10月18日(試運転及び運転習熟期間)

4日間気流輸送を行い、4 tU(ドラム缶16本)のイエローケーキをホッパに移送した。

2) 昭和57年11月30日~昭和59年6月11日(本運転)

3~4名の運転員が6~7時間で2 tUのイエローケーキをホッパに移送した。合計移送量は60 tUである。

この方式でのトラブルとしては、

- 1) 分離装置抜出用ロータリーバルブが、イエローケーキに混入していたと考えられる石片(又はガラス片)のカミコミで、回転不能となった。
- 2) 洗浄装置の洗浄液抜出配管に曲管部が多数存在する為、閉塞がおこった。

3) 洗浄装置のドラム缶反転部ギヤの摩耗により、洗浄が不良となったなどである。しかしながら、これらのトラブルは、気流輸送方式自体とは殆んど無関係な周辺機器のトラブルであり、この期間の運転で移送方式として気流輸送法に自信を持てる結果が得られた。

3 気流輸送法（自動（一部手動介入））装置の信頼性に問題はないが、

- 1) 半面マスク（必要に応じて全面）、タイベックスーツを着用するので、ドラム缶搬出入、吸引ノズルおよび、ドラム缶洗浄（装置上も問題あり）などの作業性や、作業能率が悪い。
- 2) 上記のために、少人数（3～4名）での連続運転は困難である。
- 3) 作業時には、かなり騒音を発するので、運転員の意志疎通が不十分になりがちである。またクレーンによるドラム缶の移送（1→2階）では、安全性が問題である。

上述の問題を解決するために、図-4に示すように従来のイエローケーキ倉庫1階の一部を区画し、ドラム缶取扱室を設け、内部に図-5に示すドラム缶取扱装置（概略）一式を設置した。

ドラム缶取扱装置は、負圧（5 mm Aq）に維持された3分割のフードから構成され、ドラム缶上蓋の開梱、イエローケーキの気流輸送および空ドラム缶の水洗浄をほぼ自動で行うものである。しかしながら、ドラム缶の形状は、製錬所によって相違することがあり、また運搬時に変形することがあるので、そのような場合には全自動運転はできず、したがって、運転員が随時手動でおこなえるような構造となっている。

装置の運転方法を簡単に示すと、約350kgのイエローケーキを詰められたドラム缶は、フード外から開梱部に自動ローラで移送され、上蓋はグローブを用い手動で開梱される。続いて自動ローラで気送部に移送され、イエローケーキは自動降下するノズルで吸引されホッパへ移送される。イエローケーキの吸引を能率的に行なう為に、種々の機器が付帯設備として取付られている。移送後吸引ノズルなどは直ちに移送前の状態に戻り、空ドラム缶は自動ローラで洗浄部へ移送され、油圧で吊り下げられて横転状態で水洗される。水洗により残留した少量のイエローケーキは洗い流され硫酸で溶解後、イエローケーキ溶解槽へ送液される。一方水洗された空ドラム缶は自動ローラでフード外へ搬出される。

気流輸送装置（自動）の運転は、

1) 昭和59年6月29日～7月23日(試運転及び運転習熟期間)の4日間気流輸送を行ない、4 tU(ドラム缶16本)のイエローケーキをホッパに移送した。

2) 昭和59年9月30日～昭和60年4月13日(本運転)には、1～2名の人員によって、約7時間で2 tUのイエローケーキをホッパに移送した。合計78 tUのイエローケーキ輸送を実施し継続中である。

全自動気流輸送方式のトラブルとして、初期の運転未熟による制御ミスがあったが、最近では全く無く良好な運転を行っている。

まとめ

イエローケーキ移送装置の運転状況とトラブルについては、表-2に示す。

自動気流輸送装置の優秀性は、表-2からも明らかである。ただし2 tUを処理する運転時間が7時間で、全手動気流輸送装置と同様な事から、この事柄については、処理能力の増加が今後の検討課題として残っている。

質疑応答

(質疑)現在の装置で改良すべき問題点はないのか。

(応答)イエローケーキ輸送能力の向上の為、吸引ノズルの改良やシーケンスの変更が考えられる。根本的な装置上の問題点はないと考えて良い。

(質疑)サイクロン式分離装置の捕集効果は数値として得られているのか。またバグフィルタの圧損は増加していると思うが測定しているのか。

(応答)サイクロン式分離装置の捕集効果はメーカー仕様で99%以上の捕集となっている。

確認方法としてバグフィルタでの捕集量から求める事しかできないが、これによると99%以上の捕集効率が得られていると思われる。

バグフィルタの圧損は、気流輸送運転初期の昭和57年9月頃で80 mm Aq、その後2年以上沪指の交換を行っていない現在でも100 mm Aqと問題ない値を示している。

表 - 1 主要機器名称と仕様

名	称	仕 様
ドラム缶反転装置	ドラム回転機	
	Y C 粉碎機	ロールクラッシャー
	Y C コンベア	バケット型
全手動気流輸送装置	分離装置	サイクロン式 捕集効率 99%以上
	バグフィルタ	逆圧型 濾布面積 $6.5 m^2$
	Y C 搬送用ブロワ	風量 $9.3 m^3/min$ 静圧 $1500 mm Aq$ (輸送能力 $2000 kg/Hr$ (カサ比重 2))
自動気流輸送装置	ドラム缶取扱装置	・ドラム缶の開梱・Y C の気流輸送・ドラム缶の洗浄を自動で行う機器と、これを密閉するフードからなる装置 ・フードは手動操作用グローブ・Y C 移送用配管等が設置され、開梱・気送・洗浄の工程ごとにドラム缶移動用ドアで3分割されている。
	洗浄液槽	材 質：アクリル板・SUS 304・SS41 寸 法： $1.5 \times 3.7 \times 5.1 (m)$
	分離装置	材 質：FRP 寸 法： $0.8 \phi \times 1.2 (m)$ ($0.5 m^3$)
	バグフィルタ	全手動気流輸送法同機器
	Y C 搬送用ブロワ	風量 $7 m^3/min$ 静圧 $3000 mm Aq$ (輸送能力 $1200 kg/Hr$ (カサ比重 2))

表-2 イエローケーク輸送状況とトラブル

輸 送 装 置	運 転 状 況				ト ラ ブ ル
	人 員 名/回	運 転 時 間 時間/回	輸 送 量 t U/回	輸 送 量 tU/合計	
ドラム缶反転装置	4 以上	—	—	4	1. ドラム缶回転時YC漏洩 2. 粉碎機、コンベア等からのYC漏洩 3. 密着用油圧ポンプ故障 4. YC漏洩により溶解室の汚染
全手動気流輸送装置	3 ~ 4	6 ~ 7	2	60	1. 抜出用ロータリーバルブ回転不能 2. 洗浄装置の洗浄液抜出配管の閉塞 3. 洗浄装置のドラム缶反転不良
自動気流輸送装置	1 ~ 2	7	2	78	

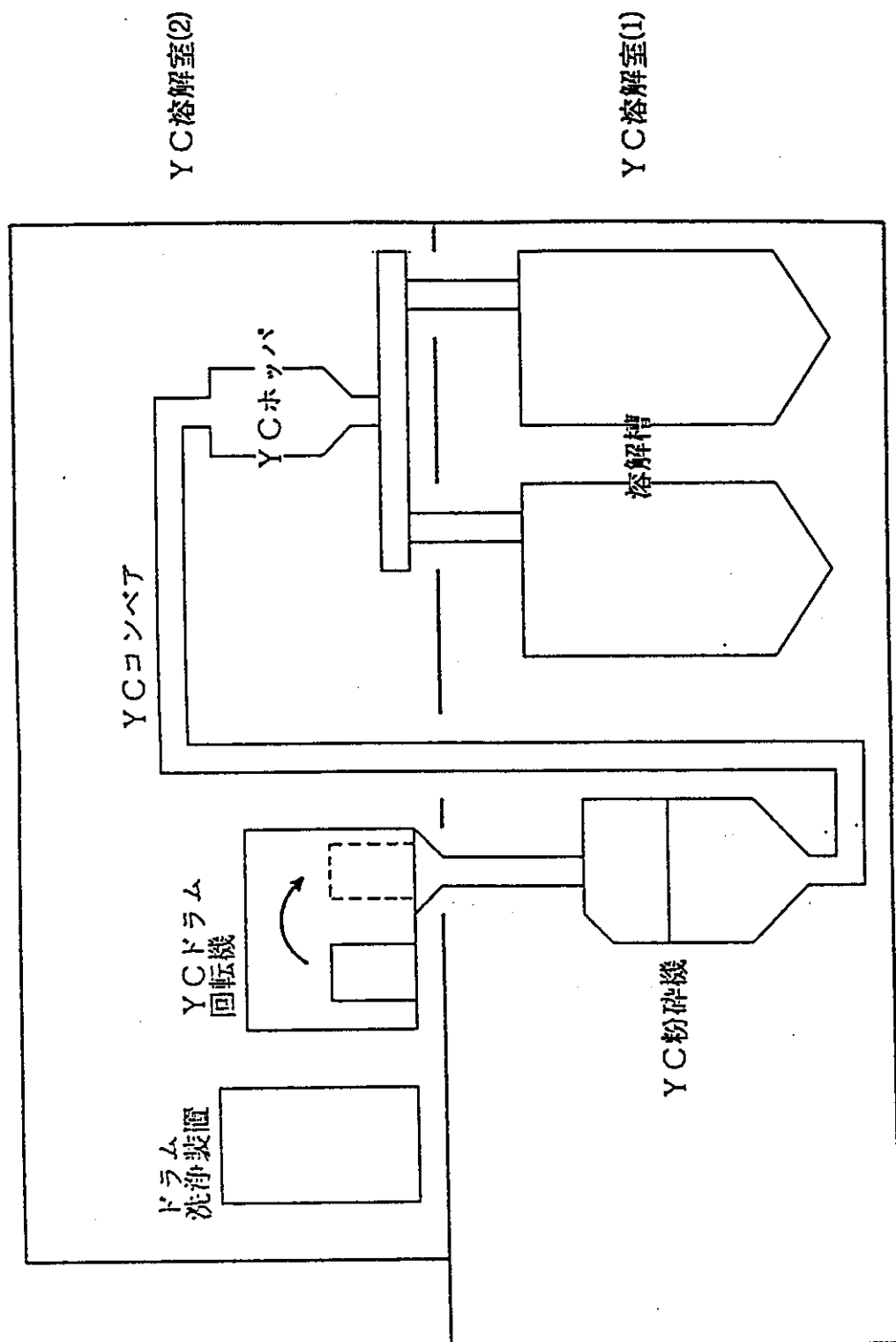


図-1 ドラム缶反転装置設置断面図

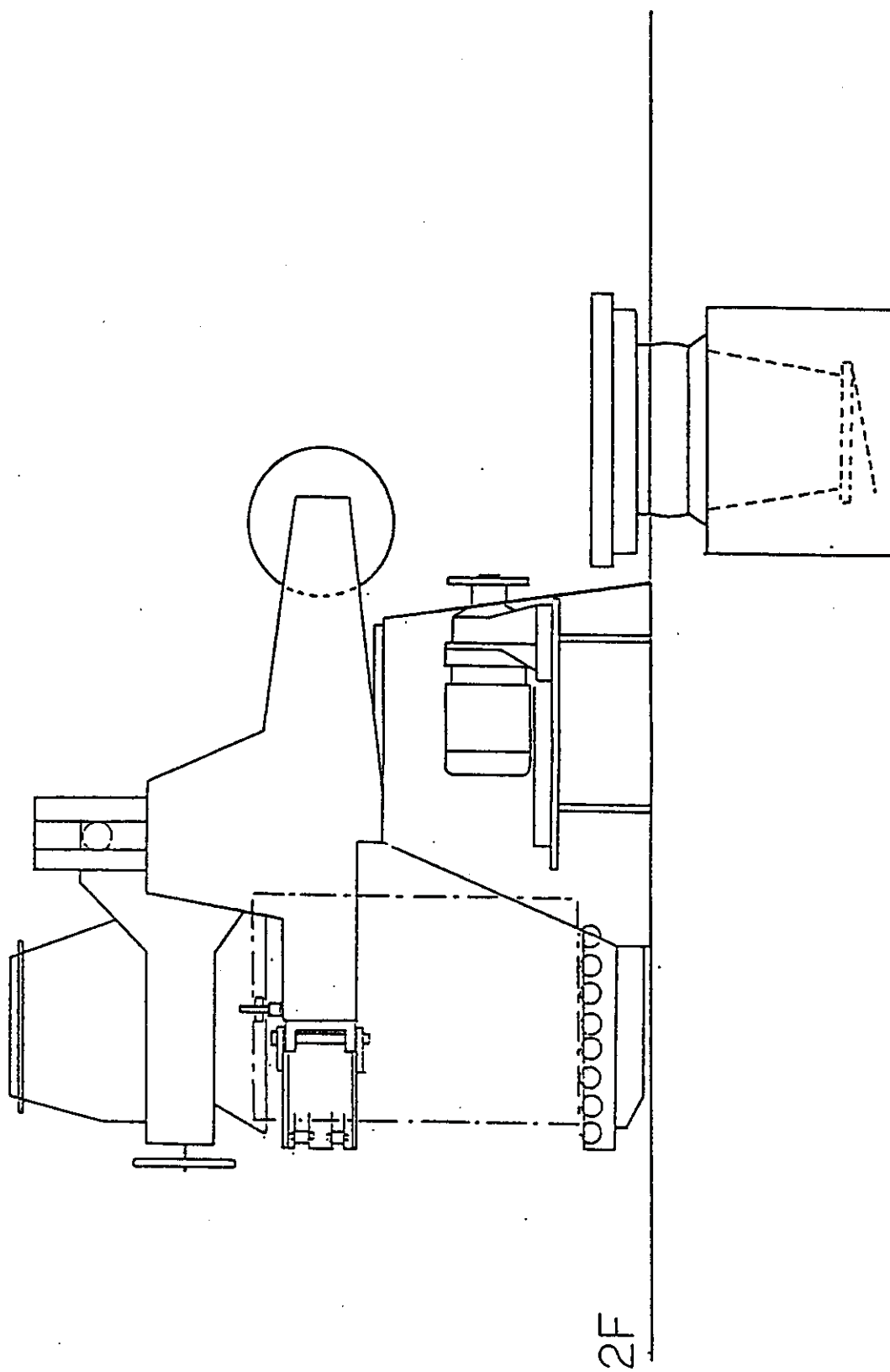
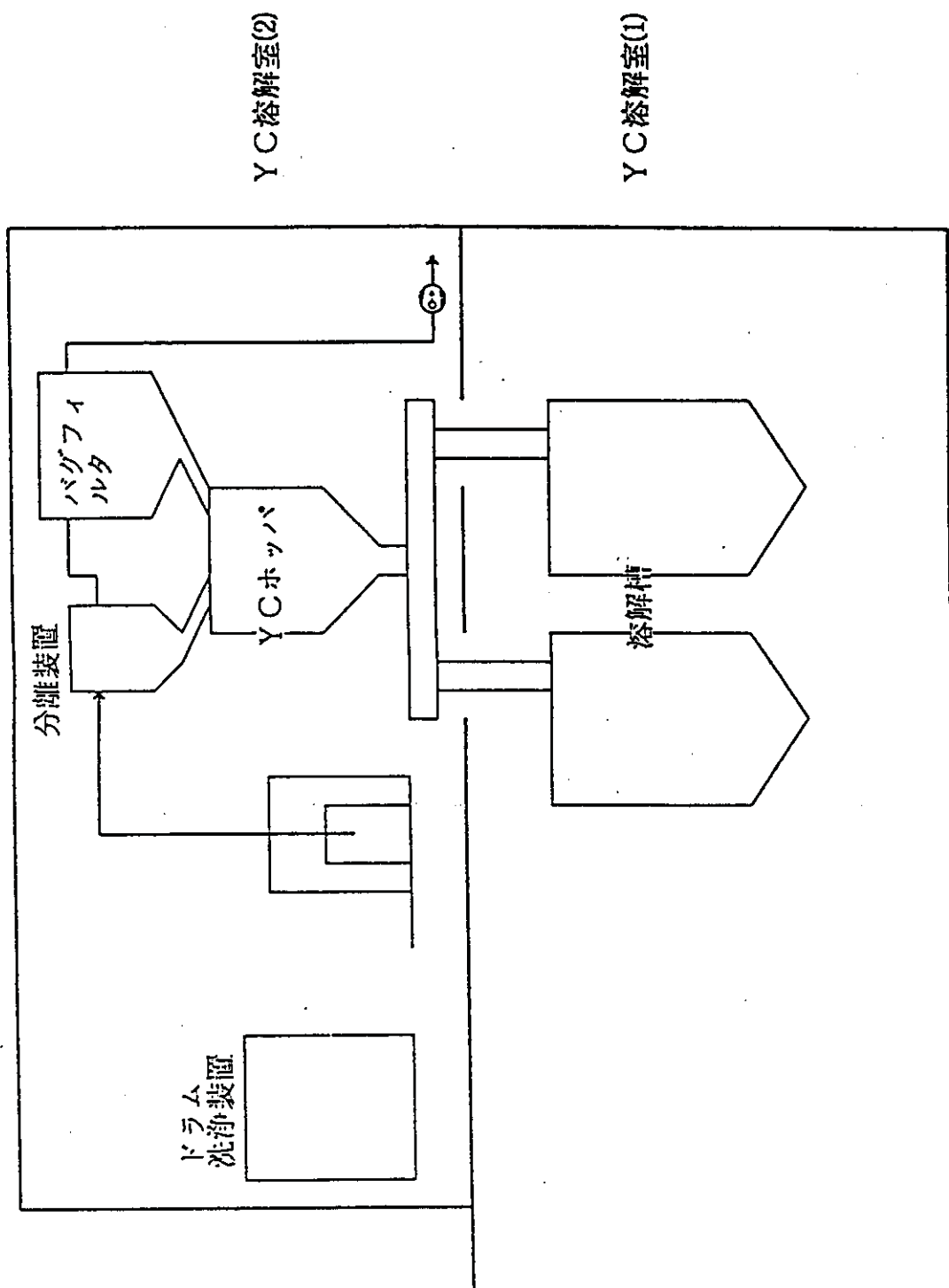


図-2 ドラム回転機側面図



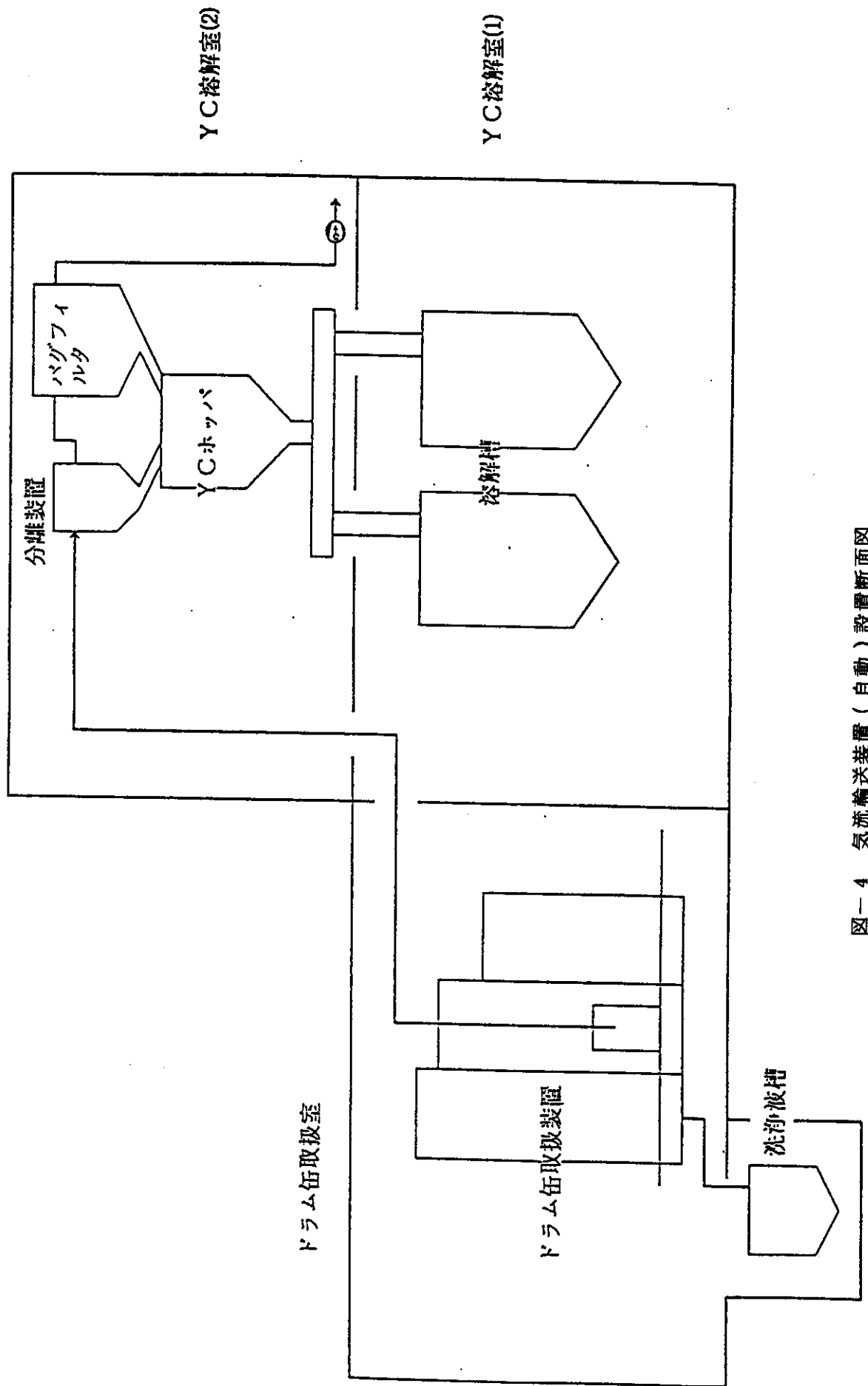


図-4 気流輪送装置(自動)設置断面図

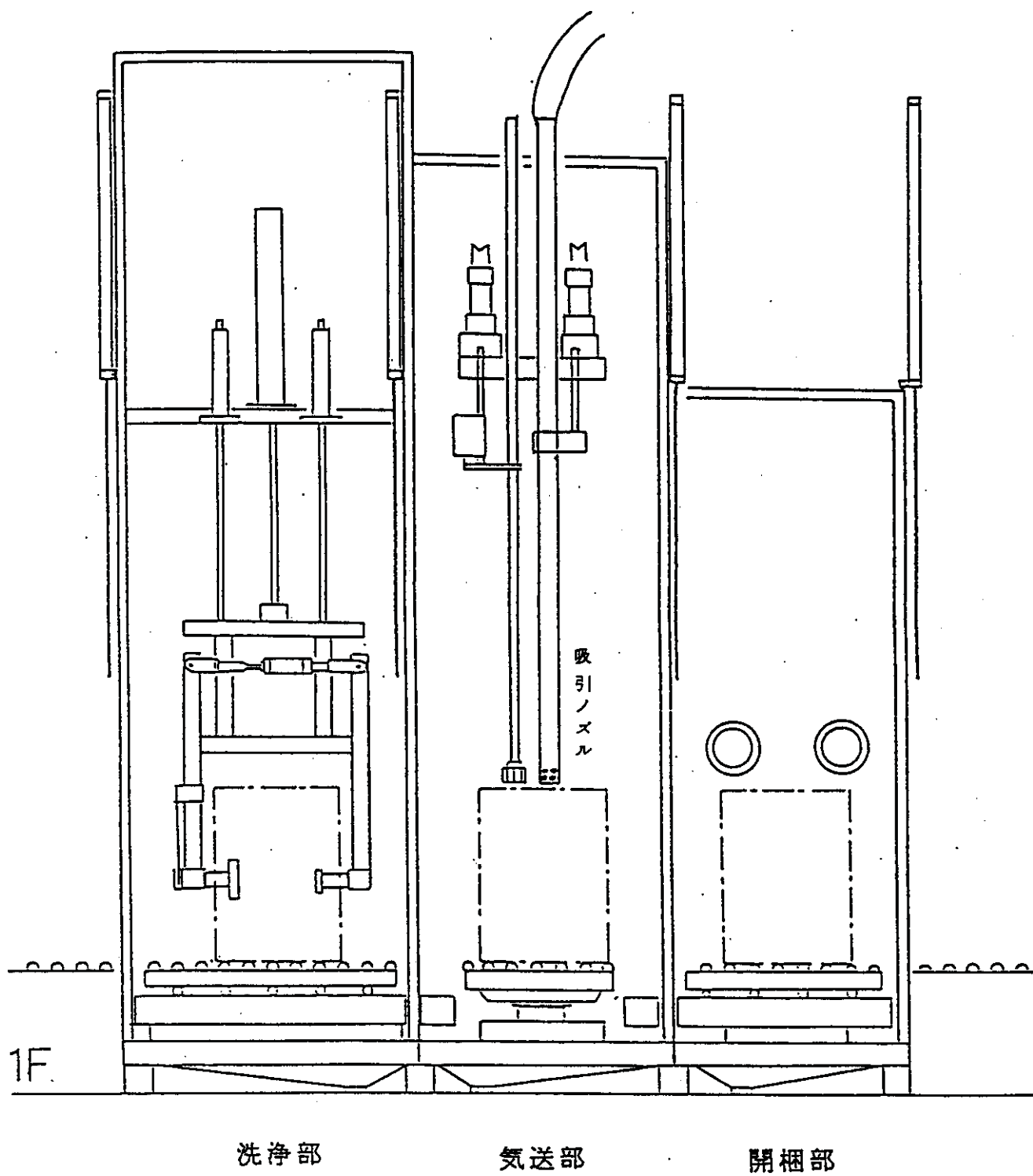


図-5 ドラム缶取扱装置側面図

4-(3) TCC分析装置の設置と測定結果

報告者 製錬課

1. 発表資料 オーバーヘッドペーパー 12枚

2. 発表内容

2.1 プロセスフロー (図2-1)

脱水工程で結晶水が取除かれた UF_4 粉体と N_2 ガスで希釈された F_2 ガスは、 F_2 ふっ化炉で反応して UF_6 が生成される。生成した UF_6 は気体となって、 N_2 および未反応 F_2 とともに排出される。1次および2次コールドトラップで UF_6 が固体捕集され、残ガスは NaF トラップおよび Al_2O_3 トラップで廃ガス処理されて排出される。捕集した UF_6 は加熱液化され30Bシリンダに充填される。転換捕集と液化充填を連続で行うため、1次コールドトラップから Al_2O_3 トラップまでは、AB2系列設置されている。

2.2 TCC分析装置設置の目的

(1) コールドトラップ捕集率の評価

転換／捕集充填工程には分析装置が無いため、運転中の状況把握が困難であった。製品 UF_6 は重量で評価できるが、コールドトラップの捕集状況把握には、本分析装置が有用である。

(2) コールドトラップ捕集終了の判断

これまでは、コールドトラップ捕集状態を把握していなかったため、ガス温度の変化あるいはコールドトラップの圧力変化等で間接的に捕集終了を判断していた。分析装置設置後はコールドトラップ出口でのガス濃度を測定することにより定量的に判断できる。

(3) $UF_4 \cdot F_2$ 反応率の評価

これまで UF_4 と F_2 の平均供給速度から算出していた反応率をガス濃度を測定することにより、ある瞬時における反応率として評価できる。

(4) NaF/Al_2O_3 トラップ破過点の判断

微量 UF_6 を吸着処理する NaF トラップおよび未反応 F_2 を処理する Al_2O_3 トラップの破過点を定量的に判定できる。

2.3 TCC分析装置仕様 (図2-2)

測定方式は拡散型の熱伝導度セルで、着目成分ごとにNi製のフィラメントが菱形に組まれている。サンプルガスは先ず一方の対辺方向にフィラメントを通過し、着目成分が除去もしくは変換された後、他方の対辺方向を通過する。この時の電位変化を出力として取出し、ガス濃度に換算する。

本分析装置には、UF₆用セルおよびF₂用セルが組まれている。サンプルガスは先ずUF₆用セルおよびNaFトラップによってUF₆濃度を測定し、続いてF₂用セルおよびNaClトラップによってF₂濃度を測定する。F₂ガスはNaClとの反応でCl₂ガスを生成することにより熱伝導度の変化を大きくし、測定の感度を上げている。

2.4 TCC分析装置の構成 (図2-3)

本分析装置は、プロセスメインラインからサンプルガスを吸引することにより測定を行う。サンプリング位置はF₂ふっ化炉出口からAl₂O₃トラップ出口まで、5ヶ所～8点である。

分析装置は、先に述べたセル、吸着トラップ等が組みこまれた本体、校正のための標準ガス調整系、サンプルガスを処理する廃ガス処理系から成っており、管理区域に設置されている。分析装置の通電、出力切換等を行う制御部および出力を表示記録する記録計はコントロール室に設置されている。また、サンプルガスを分析装置へ導入するバルブは、コントロール室より遠隔操作で選択・切換が可能である。

2.5 TCC分析結果

59年11月のA系捕集運転時における測定結果をUF₆転換量をパラメータとして表2-1に示す。

- (1) UF₆濃度は1次コールドトラップ入口、出口、2次コールドトラップ出口と系統的に下がっており、捕集状況を示している。UF₆1400kg処理までは若干バラツキはあるが、捕集状況は変わらない。
- (2) F₂濃度測定結果より、0.05～0.30 vol %の未反応F₂が残存することがわかる。
- (3) UF₆1500kg処理の時点で、1次コールドトラップ出口のUF₆濃度は変化ないが、2次コールドトラップ出口でのUF₆濃度が著しく高くなっており捕集能力が低下していることを示している。

- (4) UF₄ 1500kg処理時点で、1次コールドトラップ入口UF₆濃度が()付きで若干低いのは、測定中にF₂ふっ化炉へのUF₄供給が停止し、UF₆濃度が大きく変化したためである。またこの時F₂濃度も増大し、未反応F₂が増加したことを示している。

2.6 コールドトラップ捕集率およびF₂利用率の評価

2.5で得られた測定結果から、コールドトラップ捕集率、1次/2次捕集率およびF₂利用率を算出し、表2-2に示す。

- (1) 1次コールドトラップ入口UF₆濃度と2次コールドトラップ出口UF₆濃度よりコールドトラップ全体のUF₆捕集率を算出するとUF₄ 1400kg処理までは99%以上を示しているが、1500kg処理の時点で、93%と大きく低下している。従ってこれ以上転換捕集を継続しても、7%以上のUF₆がNaFトラップへの損失となる。
- (2) 1次コールドトラップ入口/出口および2次コールドトラップ入口/出口の濃度変化の比をコールドトラップの捕集比として算出すると、1次コールドトラップで、0.77~0.92となる。
- (3) 供給するF₂濃度と未反応F₂濃度から転換に消費されたF₂利用率として算出すると、UF₄ 1400kg処理までは98%以上であるが、1500kg処理時点で大きく下がっている。UF₄供給停止による未反応F₂増大は、多数回経験しており、またUF₄再供給によってF₂濃度が低下する現象も見られるので、UF₄が供給口からベッドへ落下する間に、一部がF₂と反応するためだと考えられる。

2.7 運転データとの比較

TCC測定結果とUF₆の充填量との比較検討においては、充填量データのバラツキを平均化するため、A/B2系を数回連続運転したデータを採用することとし、表2-3に示す。

59. 11. 21.~29.の運転において、コールドトラップ出口におけるUF₆濃度は2.5で記述したデータと同程度であり、その結果より算出したコールドトラップ捕集率も同じ傾向である。

しかしながら、この時のUF₄転換量に対するUF₆充填量を製品回収率として算出すると、96.6%で、TCC分析結果から算出される捕集率よりも低い値となっている。

この原因としては、一旦捕集されたコールドトラップから後方へのUF₆の移動が考えられ、

とくに運転が不安定になった際にコールドトラップ内を N_2 のみ通気することによりそれが顕著になるためであろう。1次コールドトラップと2次コールドトラップの充填比(表2-4)についても、TCC分析結果より得られた捕集比より、平均的に1次コールドトラップの方が小さい。

更に、本キャンペーン後、回収したNaFペレットに、ほぼ不足分 UF_6 に相当する重量増が見られたことから裏付けられる。

2.8 コールドトラップ出口 UF_6 分圧の評価

次に、TCC分析結果の UF_6 濃度とその位置の圧力から計算した UF_6 分圧とコールドトラップ出口ガス温度に相当する UF_6 平衡蒸気圧とを比較してみた。(表2-5)

- (1) 1次コールドトラップ出口では UF_6 分圧と蒸気圧とがオーダーとしてほぼ一致しており、コールドトラップ内での冷却捕集温度が出口ガス温度とほぼ等しい。
- (2) 2次コールドトラップ出口では、 UF_6 処理量1400kgまでは UF_6 分圧が平衡蒸気圧より一桁小さく、コールドトラップ内での冷却捕集温度が、出口ガス温度よりも約10℃低い(-40~50℃)ことを示している。1500kg処理の時点で両者がほぼ等しくなったことから、2次コールドトラップ内部の冷却捕集温度が上昇した、即ち捕集能力が低下してきたことを示している。
- (3) コールドトラップ捕集率の低下が全体運転時間からみれば短時間でしか起っていないと考えられるにもかかわらず、製品回収率が低いことと考えあわせると、2次コールドトラップ内で過冷却によって UF_6 ミストが生成し、TCCに検知されないで、NaFへ飛散していることも考えられる。

2.9 F_2 利用率の評価

TCC分析結果からの F_2 利用率と UF_6 と F_2 の供給速度からの F_2 利用率とを比較検討した(表2-6) 後者は、TCC分析を行った前後1~2時間での UF_6 平均供給速度に相当する当量 F_2 流量と実際の F_2 流量との比として計算した。

- (1) $UF_6 \cdot F_2$ 供給速度基準の F_2 利用率は2例を除いてTCC基準の F_2 利用率より低い。即ち瞬時における F_2 利用率は高いが、 UF_6 供給停止等の不安定因により、全体としての F_2 利用率は若干低くなる。

- (2) F_2 利用率が 100 % を超えているのは、ベッド内の余剰 UF_4 が不足したため、意図的に UF_4 供給速度を上げたことによる。これも UF_4 供給不安定の一因となり、 F_2 利用率低下につながるものと考えられる。

2.10. まとめ

- (1) 安定運転時 ($UF_4 \cdot F_2$ 定常供給) のコールドトラップの捕集率は、TCC 分析結果によれば 99 % 以上である。しかし、実際の製品回収率は 97 % であり若干差異がある。この原因としては、今のところ、運転不安定時の N_2 通気による捕集 UF_6 の損失、2 次コールドトラップでの UF_6 ミストの損失が考えられる。
- (2) 2 次コールドトラップ出口での UF_6 濃度測定により捕集終了点を判定できる。また 1 次より 2 次の方が先に捕集限界に到達するので、コールドトラップの捕集容量を上げるには 1 次コールドトラップの捕集率を上げることが必要である。
- (3) 安定運転時は F_2 利用率は ~99 % であるが、 UF_4 供給停止時に未反応 F_2 が増加することから、 UF_4 粉体は落下してベッドに到達するまでの間に、 F_2 の一部と反応していると考えられる。また UF_4 供給が不安定になることが F_2 利用率低下の一因となっている。
- (4) プロセス各サンプリング点での UF_6 、 F_2 濃度を測定することにより、今まで以上に運転状況が明確にかつ定量的に把握できるようになった。これによりコールドトラップ捕集系の切換え、化学トラップ破過の判断等、運転操作へ反映できるようになった。

2.11. 測定上の問題点

- (1) 各サンプリング点を 1 点ずつ順次測定するため、測定結果は厳密には時間のずれを伴っており、サンプリング点から TCC 本体までの吸引時間、安定時間、測定後の N_2 パージ時間が必要なため、1 点測定にも時間がかかる。
- したがって同一条件での測定データを得るためには、連続安定運転が必要条件となる。
- (2) 着目成分分離用の吸着トラップは容量がそれほど大きくないので、所定時間分析ごとにトラップ交換が必要である。特に濃度の高いガスを長時間分析することにより一層頻度が増加する。

2. 12. 今後の方針

- (1) 運転の安定化，処理能力の増大を目的として，種々の運転条件における測定データを蓄積していく。
- (2) 運転状態を監視する目的のため，特定のサンプリング点での連続測定を行う。
- (3) 今後の分析経験をふまえて，装置を簡便化して取扱い易くし，測定が更に迅速に行えるよう検討していく。

3. 質疑応答

Q 1 UF_4/F_2 供給速度から求めた F_2 利用率が100%以上の場合， UF_4 過剰状態で UF_6 転換が不十分であることは考えられないか。

A 1 通常の運転条件としては，ベッド内にベッド重量の10%程度 UF_4 が存在している。
 UF_4 供給中断により，この過剰 UF_4 が減少したのを補うため，一時的に UF_4 を F_2 流量当量以上に供給したためである。

通常の運転条件においても， UF_4 は F_2 に対して過剰になっており， UF_6 転換が不十分になるとは考えられない。

Q 2 A系/B系で UF_4 処理量（ UF_6 捕集量）が異なるのは何故か。

A 2 これまでは，プロセスの圧バランス不良，運転スケジュール等により A/B 切換を行ってきた。TCC 分析開始後は，2次コールドトラップ出口 UF_6 ガス濃度により判断した結果として，表の如く，処理量に変化している。 UF_4 処理量に対する UF_6 充填量の比が都度異なることから，コールドトラップに滞留する UF_6 量の変化，冷却面の状況変化等により，捕集率が違うためであろう。

傾向としては，A系よりB系の方が捕集容量が大きい。

Q 3 TCC 分析を NaF/Al_2O_3 トラップ出口で行い，スクラバへの入口ガス濃度を常時監視することは考えているか。

A 3 種々のデータを採取し終れば，運転監視方法として考えているが，当面は各サンプリング点での分析を順次くり返していくことを主体に考えている。

（以上）

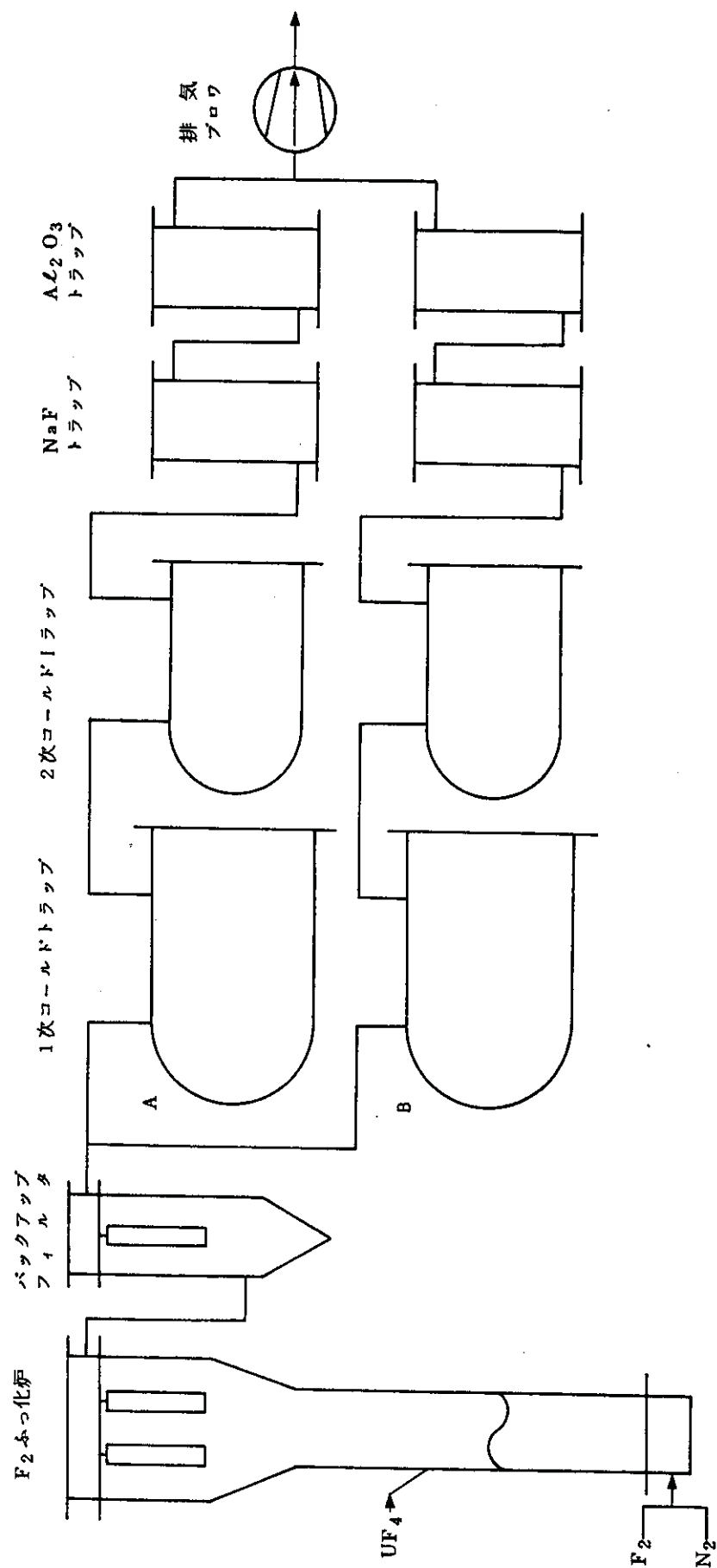


図 2-1 転換／捕集・充填工程フローシート

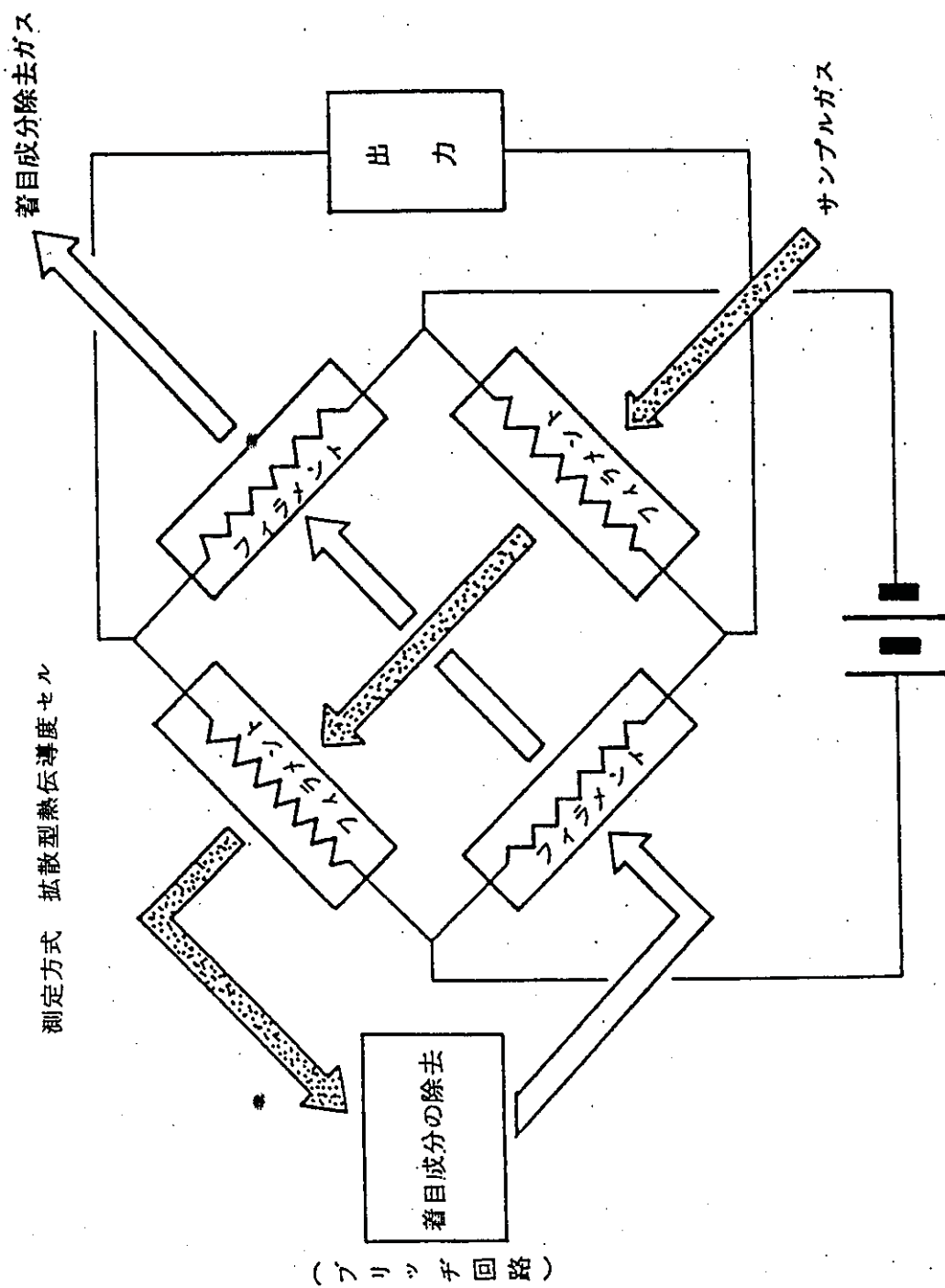


図 2-2 TCC 分析装置仕様

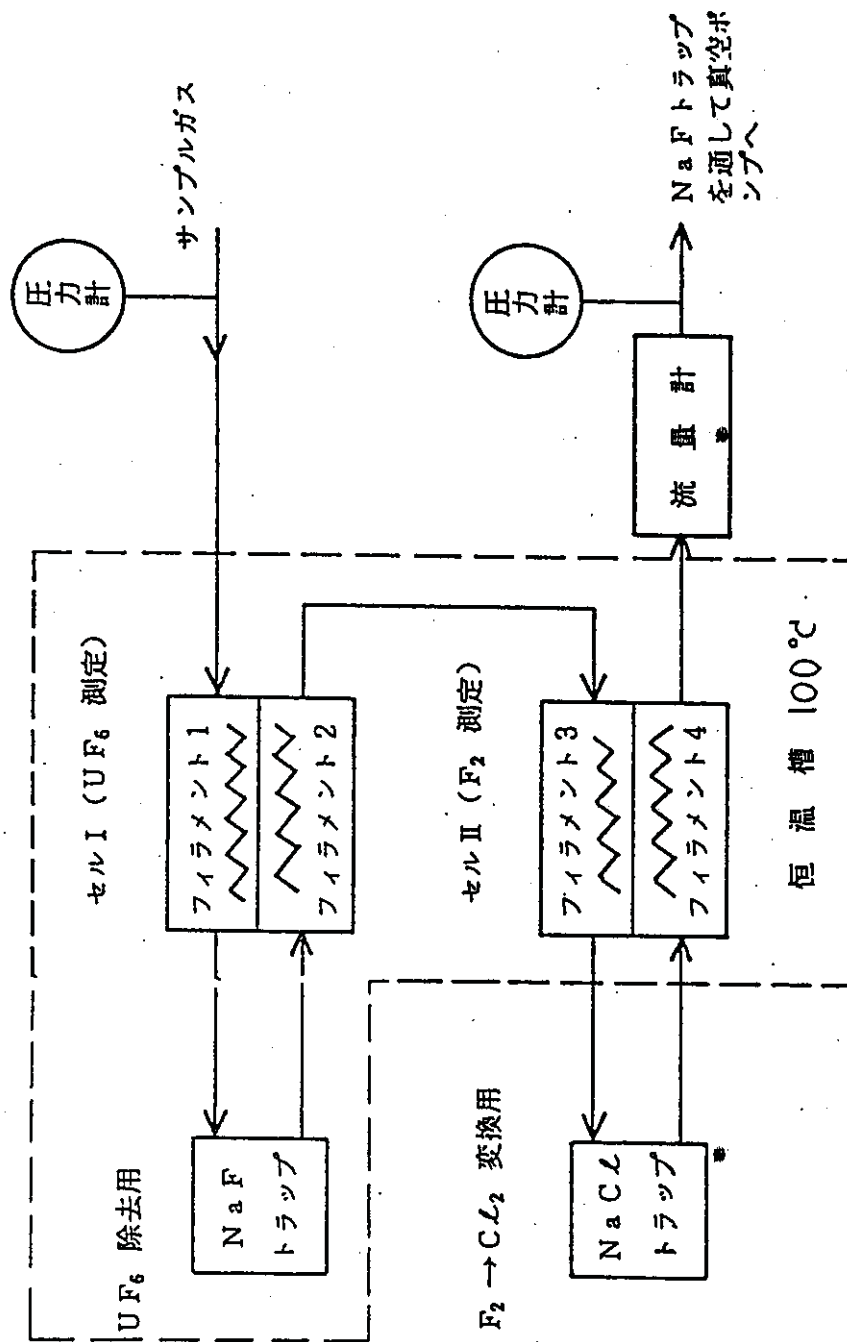


図 2-2 TCO 分析装置仕様 (続き)

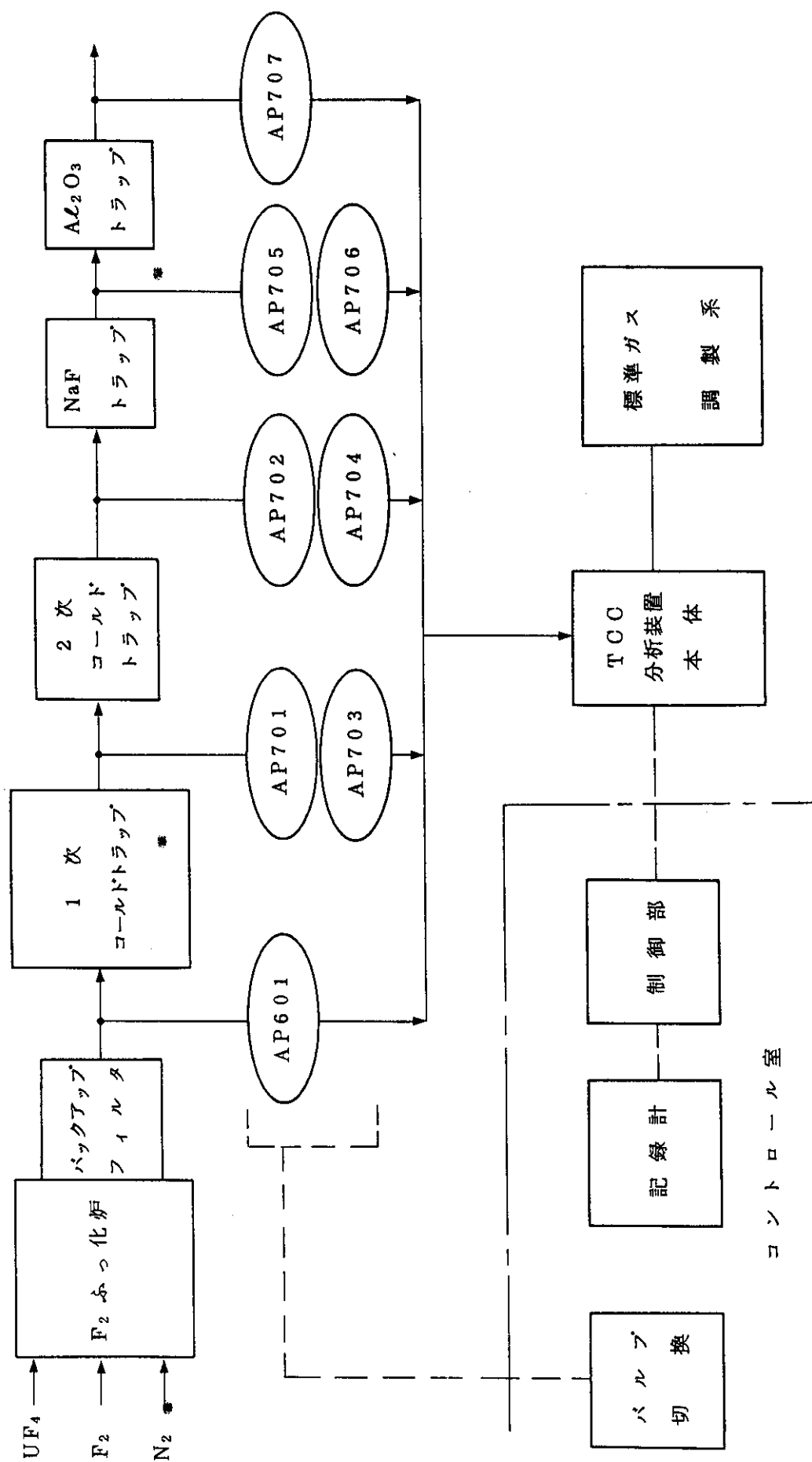


図 2-3 TOC 分析装置の構成

表 2-1 TCC 分析結果 (59. 11)

UF, 転換量 kg	UF, 濃 度			F ₂ 濃度 vol %
	1 次 C.T. 入口	2 次 C.T. 入口	2 次 C.T. 出口	
200	16.90	1.70	0.06	0.05
380	17.60	4.75	0.08	0.18
610	17.80	2.80	0.04	0.15
900	17.60	2.90	<0.01	0.15
※ 1100	17.60	3.50 [※]	0.03	0.15
1400	13.30	3.40	<0.01	0.30
1500	(~13)	3.75	1.50	1.10

表2-2 コールドトラップ捕集率等計算結果

UF ₄ 転換量 kg	コールドトラップ 捕集率 %	コールドトラップ捕集比 1次/2次	F ₂ 利用率 %
200	99.7	0.92/0.08	99.7
380	99.7	0.77/0.23	99.0
610	99.8	0.87/0.13	99.2
900	99.9	0.86/0.14	99.2
1100	99.8	0.83/0.17	99.2
1400	99.9	0.77/0.23	98.4
1500	93.1	0.89/0.11	93.2

表 2-3 TCC 測定結果

59. 11. 21~29

捕集系	UF: 転換量 kg	UF: 充填量 kg	UF: 濃度 vol % 1 次 C. T. 出口	UF: 濃度 vol % 2 次 C. T. 出口	C. T. 捕集率 %
A	1 5 5 2	1 5 3 0	1.70-4.75	<0.01-1.50	93.1-99.9
B	1 8 6 1	2 0 4 8	2.10-4.23	0.02-0.27	98.5-99.8
A	1 4 8 1	1 6 7 4	2.20-4.00	0.03-0.78	95.6-99.8
B	1 5 1 9	1 6 4 8	2.90-4.00	0.07-0.35	98.5-99.6
A	9 2 5	1 0 4 5	2.40-3.50	0.05-0.45	98.6-99.6
計	7 3 3 8	7 9 4 5	UF: 製品回収率 96.6 %		

表 2-4 コールドトラップ捕集比

捕集系	U F。充 填 量 kg 1 次 C. T. / 2 次 C. T.	U F。充 填 比 1 次 C. T. / 2 次 C. T.
A	1 2 2 7 / 3 0 3	0.8 0 / 0.2 0
B	1 6 0 2 / 4 4 6	0.7 8 / 0.2 2
A	1 3 2 8 / 3 4 6	0.7 9 / 0.2 1
B	1 2 9 1 / 3 5 7	0.7 8 / 0.2 2
A	8 3 4 / 2 1 1	0.8 0 / 0.2 0

表 2 - 5 U F , 分 圧 の 評 価

(圧 力 単 位 Torr)

U F , 転 換 量 kg	1 次 コー ル ド ト ラ ッ プ 出 口		2 次 コー ル ド ト ラ ッ プ 出 口	
	T C C 基 準	ガ ス 温 度 基 準	T C C 基 準	ガ ス 温 度 基 準
2 0 0	8.5 0	9.2 0	0.3 0 5	1.2 2
3 8 0	2 3.8	1 0.9	0.4 0 6	1.2 2
6 1 0	1 4.0	1 2.9	0.2 0 0	2.5 7
9 0 0	1 4.5	1 4.0	< 0.0 5	1.9 2
1 1 0 0	1 7.5	1 4.0	0.1 5 0	3.7 6
1 4 0 0	1 7.0	1 5.2	< 0.0 5	7.7 3
1 5 0 0	1 8.8	1 5.2	7.6 1	7.7 3

表 2 - 6 F₂ 利用率評価

UF ₄ 転換量 kg	F ₂ 利用率 (TCC) %	UF ₄ 平均供給 速度 kg/hr	F ₂ 流量 Nl/min	F ₂ 利用率 (UF ₄ /F ₂) %
200	99.7	54.0	69.64	92.2
380	99.0	55.3		94.4
610	99.2	53.0		90.5
900	99.2	57.6		98.3
1100	99.2	59.0		100.7
1400	98.4	62.2		106.2
1500	93.2	48.0	69.64	82.0

4-(4) 廃液処理設備の改造及び運転結果

報告者 ^{*} 製錬課

1. はじめに

昨年の業務成果報告会でも報告したとおり製錬転換パイロットプラントの廃液処理工程には以下に示す問題点があった。

- (1) 放射性固体廃棄物の発生量が大である。

(UF₆ 1 t 転換あたり 200 ℓ 入ドラム缶で 30~35 本発生する)

- (2) そのため廃棄物倉庫が 1~2 棟/年必要である。

- (3) U および F を管理目標値以下に除去できない。

(消石灰, 第 2 リン酸ソーダ, 硫酸添加による凝集沈殿では, フッ素 1.5 mg/ℓ, ウラン 3×10^{-8} $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ (0.09 mg/ℓ) 以下に低減されず, 4~5 倍の希釈が必要である。

- (4) 装置の処理能力が小さい。(50~60 m³/日)

- (5) 省力化されていない。(4 班 × 2 名)

改造前の廃液処理工程の運転は凝集沈殿, 浮遊等は, 殆んど手動運転であり, 特に CaF₂ スラリーをフィルタープレス(手動式)で浮遊するために 2 名以上の運転員を要した。

上述の問題点を解決するため, 吸着剤を用いてウラン及びフッ素を管理目標値以下に除去し, 運転の省力化, 放射性固体廃棄物発生量の低減化を図るウラン・ふっ素吸着除去設備及び CaF₂ 浮遊機(全自動式 F-906)を新増設した。

2. 許認可手続及び建設工事工程

- (1) 科技庁及び中国・四国鉱山保安監督部の許認可

科技庁の許認可は, CaF₂ 浮遊機の増設については昭和 59 年 1 月 17 日付けで使用変更の許可を受けた。ウラン・ふっ素吸着除去設備の新設については表-1 に示すように使用変更の局ヒアリングの後, 使用変更許可申請を行ない 4 月 27 日付けで使用変更許可を受けた。

「設計及び工事の方法(設工)」については CaF₂ 浮遊機の増設とウラン・ふっ素吸着除去設備の新設を一括して局ヒアの後, 書類を提出し, 6 月 28 日付けで受理された。

また中国・四国鉱山保安監督部の許認可については, 事前説明の後 7 月 20 日に施設変更認可申請をし, 7 月 31 日付けで認可を受けた。

(2) 建設工事工程

科技庁及び中国・四国鉱山保安監督部の許認可の後、事業所内の諸手続きを済ませ、表-2に示す工事工程で建設を進めた。7月19日から基礎工事の準備、8月5日より既設設備の温水槽(V-411)、電解液加熱器(H-401)、温水加熱器(H-402)、ウラン粉体物性測定用フード2基、pH調整系濾過機(F-904)の移設を行い、並行して基礎工事を進め8月22日に終了した。この基礎、移設工事は、製錬転換パイロットプラントの定期点検(8/4~9/20)で運転停止の時期に合わせて実施しUF₆生産に影響がないように配慮した。

ひきつづきウラン・ふっ素吸着除去設備及びCaF₂濾過機の各機器の据え付け工事、配管工事、電気計装工事を8月27日から開始し、10月16日までには工事と並行して自主検査を済ませた。

(3) 検査

科技庁の検査については、9月28日に検査申請をして10月17日に自主検査報告を行ない、10月25日に施設検査を受検した。施設検査の項目は、配置・員数検査、外観検査、水張検査、耐圧検査、耐震性検査である。施設検査に合格し11月7日付けで合格証が交付された。また中国・四国鉱山保安監督部の落成検査は10月31日に受検し翌日の11月1日に施設仮検査証が交付され実液運転データ結果より施設検査証が昭和60年1月23日付けで交付された。

3. ウラン・ふっ素吸着除去設備及びCaF₂濾過機の概要

(1) ウラン・ふっ素吸着除去設備

本設備は、製錬転換パイロットプラントの廃液処理工程において廃液中に含まれる微量のウラン及びフッ素を除去するもので下記の①~⑤に処理方法を示す。図-1にフローシートを示す。

①脱炭酸

貴液精製装置、TMイエローケーキ溶解精製装置から発生する炭酸溶媒洗浄廃液(U濃度1~100mg/ℓ)、ふっ化沈殿・乾燥装置から発生する酸回収塔凝縮液(U濃度1~100mg/ℓ、F濃度1.5~2.5g/ℓ)、UF₆結晶洗浄廃液(U濃度10~150mg/ℓ、F濃度15~100mg/ℓ)、スクラバ廃液等をまとめて脱炭酸槽(V-950)に入れ35%HCℓを添加しpH2以下とする。エア攪拌で炭酸溶媒洗浄廃液中に含まれる炭酸を除きウラン及びフ

ッ素の吸着効率を向上させる。

脱炭酸槽は材質がFRP、容積は 3 m^3 、箱型の槽である。

② CaF_2 中和

脱炭酸した廃液を CaF_2 中和槽 (V-951) へ導入して消石灰で中和し CaF_2 を沈殿させる。この CaF_2 中和槽は、内部が2分割されており2段中和をしている。1段目でpH7程度、2段目でpH10.5以上とする。消石灰の注入は廃液の種類によって異なる。

CaF_2 中和槽は材質がFRP、容積は 4 m^3 、箱型である。

③ CaF_2 凝集

CaF_2 中和後の懸濁液は、 CaF_2 凝集槽においてラジオライトおよび高分子凝集剤溶液を添加して沈降性、汙過性の優れたフロック状の CaF_2 を生じさせる。

CaF_2 凝集槽は、材質がFRP、容積は 1.8 m^3 、箱型の槽である。

④ 固液分離

フロック状の CaF_2 沈殿物 (以下、 CaF_2 スラリーという) は、 CaF_2 シックナー (F-903) で固液分離され、上澄水は汉過塔を経てF吸着塔、U吸着塔へ送られる。また CaF_2 スラリーは CaF_2 汉過機 (F-906) へ送られる。

固液分離後の上澄水のU濃度は 1 mg/l 程度、F濃度は 7 mg/l 程度となる。

CaF_2 シックナーは材質がSS41+ゴムライニング、容積 8 m^3 、円錐底円筒型である。なおこの CaF_2 シックナーは既設のものを転用した。

⑤ 吸着除去

CaF_2 固液分離後の上澄水は、汉過塔中継槽 (V-953) 内において35% HCl を添加して吸着に最適なpH3~4に調整した後、汉過塔A又はB (T-940, T-941) で微細な固形物を除去し、F吸着塔A, B (T-942, T-943) に送られ残留しているフッ素を 1.5 mg/l 以下に吸着除去する。次にU吸着塔中継槽を経てU吸着塔A・B (T-944, T-945) へ送られウランを $3 \times 10^{-8}\text{ }\mu\text{Ci/cm}^3$ (0.09 mg/l) 以下に吸着除去する。ウラン及びフッ素が吸着除去された廃水は、処理水槽 (V-955) で4% NaOH を添加しpHを放出基準値 (pH 5.8~8.6) に調整し、排水ピットへ送り、ウラン及びフッ素濃度をモニタリング後施設外の廃水処理場へ送る。

なお、汉過塔は、差圧及び通液時間により交互に1塔運転される。材質はSS41+ゴムライニング、容積は 1.2 m^3 、円筒型である。

汚材は1塔あたりアンストラサイト450ℓ、けい砂340ℓが充てんされている。F吸着塔はメリーゴランド方式で通液時間により運転される。材質はSS41+ゴムライニング、容積は2.3 m³、円筒型である。吸着剤(UR-3700)は1 m³充てんされておりSV-5で通液される。U吸着塔もメリーゴランド方式で運転(通液時間で切換)される。材質はSS41+ゴムライニング、容積は1.2 m³、円筒型である。吸着剤(UR-3100)は0.5 m³充てんされておりSV-10で通液される。

汚過塔中継槽の材質はFRP 容積は3.0 m³、箱型である。U吸着塔中継槽及び処理水槽の材質はFRP、容積は1.5 m³、箱型である。

(2) CaF₂ 汚過機

CaF₂ 汚過機はCaF₂ シックナーで固液分離されたフロック状のCaF₂ スラリーを加圧汚過する装置である。図-1にフローシートを示す。CaF₂ スラリーをスラリー槽(V-956)に一定量集めCaF₂ 汚過機に送り汚過する。汚液は汚液槽(V-957)で受け集液槽(V-901 既設)へ送液され脱炭酸槽へリサイクルされる。一方汚過残渣であるCaF₂ スラッジは汚過機から取り出されドラム缶(200ℓ入)に詰められる。CaF₂ スラッジの取り出された汚布は汚布洗浄水槽(V-958)の工業用水で洗浄される。

CaF₂ 汚過機は、10~20%のCaF₂ スラリーを4 kg/cm²でポンプ圧入し、7 kg/cm²の圧縮空気で圧搾される。汚過面積は10 m²(80cm×80cm×12室)、汚さい容量は127ℓである。

スラリー槽は容積1.8 m³、汚液槽、汚布洗浄水槽は0.5 m³である。材質は各々FRP、型は円筒型である。図-2にCaF₂ 汚過機のメカニズムを示す。この図はCaF₂ 汚過機の製作メーカーである石垣機工協のパフレットより引用したものである。

(3) 使用する試薬

3.5% HCl ……プラントのヘッダーから分取し pH調整に用いる。

0.9 N HCl ……既設槽より分取し F吸着塔、U吸着塔の再生に用いる。

4% NaOH ……プラントのヘッダーから分取し pH調整、F吸着塔再生に用いる。

0.4M NaHCO₃ ……溶解槽(3.8 m³, FRP製、箱型)より供給しU吸着塔再生に用いる。

10% Ca(OH)₂ ……プラントのヘッダーから分取し中和沈殿に用いる。

高分子凝集剤 ……溶解槽(2 m³×2, FRP製箱型)より供給し凝集沈殿に用いる。

4. ウラン・ふッ素吸着除去設備及びCaF₂ 汚過機（以下新装置という）の運転状況

(1) 吸着除去

① F 吸着除去

図－3 に昭和60年2月12日～3月4日のF吸着除去の運転状況のグラフを示す。固液分離された上澄水中のフッ素濃度は、汚過塔中継槽（V－953）で5～8 mg/ℓ程度、F吸着塔を通過したU吸着塔中継槽（V－954）では0.01～0.1 mg/ℓ程度に吸着除去され処理水槽（V－955）でも変動なく1.5 mg/ℓの管理目標値を十分に満足している。

② U 吸着除去

図－4 にU吸着除去の運転状況のグラフを示す。固液分離された上澄水中のウラン濃度は、汚過塔中継槽（V－953）で0.4～0.6 mg/ℓ程度で設計値の1 mg/ℓより低く凝集沈殿で除去されている。U吸着塔中継槽（V－954）でV－953より少し低くなっておりF吸着塔においてもウランが吸着されていることを示している。U吸着塔を通過した後の処理水槽（V－955）のウラン濃度は検出限界以下～0.09 mg/ℓ（ 3×10^{-8} μCi/cmℓ）程度に除去され管理目標値の0.09 mg/ℓを満足している。

時々オーバーしている原因については分析方法、運転方法等を検討し究明する。

③ pH調整

図－5 にpH調整の運転状況を示す。汚過塔中継槽（V－953）で設計どおりpH3～4に調整され、処理水槽（V－955）で放出基準値（pH5.8～8.6）に調整されていることを示している。

(2) 放射性固体廃棄物（CaF₂ スラッジ）の発生量などの比較

① 昭和59年度月別放射性固体廃棄物発生量

図－6 にUF₆転換量と放射性固体廃棄物量（59年度月別）のグラフを示す。昭和59年度は65 tUのUF₆を転換し1170本（200ℓ入ドラム缶）の放射性固体廃棄物が発生した。8月、9月の定期点検時で運転が停止中でもスクラバ廃液等の処理で114本も発生した。改造前（11月以前）においては30～60本/Uの発生量であったが新装置を導入したことにより4本/tUに減少させることができた。

② 年度別放射性固体廃棄物発生量

年度別の放射性固体廃棄物発生量を表－3に示す。年度ごとのUF₆転換量当りのドラム缶（200ℓ入）発生本数は改造前（旧装置）には30～35本/tUであったものが新装置の

導入により5本/tU(59年12月~60年3月末)と低減化されている。しかしこの期間中にウラン転換試験設備(CTF-II)から発生するF濃度15g/l~25g/lの高濃度のアルカリスラバ廃液を処理したことから設計値(4本/tU)より多く発生しているが図-6に示すとおり昭和60年1月においては設計どおりになっている。

③今後の放射性固体廃棄物発生予測など

60年度以降の放射性固体廃棄物の発生予測を表-4に示す。60年, 61年度は4本/tUの発生量で100tUのUF₆を転換すれば, 各々400本の発生量となり62年度に現在委託研究を実施中であるノンスラッジ廃液処理法の導入を行なえば63年度以降の廃液処理で発生する放射性固体廃棄物はごくわずかとなる予定である。

図-7に表-3, 表-4をまとめてグラフ化したUF₆転換量と放射性固体廃棄物量(年度別)を示す。表-5に新旧装置の比較を示す。UF₆転換1tU当りのドラム缶発生量が, 1/8~1/10に低減化され, 自動フィルタープレスであるCaF₂濾過機の増設で7kg/cm²圧搾によりCaF₂スラッジの含水率を10~15%低下させることができた。CaF₂スラッジ発生量が減少したことからCaF₂スラッジ中のウラン含有率は10倍程度多くなっている。

(3) 処理量の比較

新旧装置の処理量の比較を表-6に示す。旧装置ではパッチ処理で50~60m³/日の能力であったものが新装置では5.3m³/時で連続処理され126m³/日と大幅に処理能力が増大した。

(4) 省力化の比較

表-7に省力化の比較を示す。旧装置では4班3交替の勤務で4班×2名の運転人員を要した。特にCaF₂スラリーの濾過は手動操作による重労働(CaF₂スラリーの濾布からの取出しはスコップ等を用いた作業)であった。新装置においては, 運転モードが(全自動, 工程自動, 半自動, 手動)選択でき自動化されたことにより, 運転データ記帳等の監視業務となり4班×1名で運転できるようになるとともにF, pH等の分析が運転員によりできるようになった。また図-8にフィルタープレス運転の比較を示しているが作業時間も1/4に短縮された。新装置での手動操作は200ℓ入の放射性固体廃棄物ドラム缶交換作業のみである。

(5) 汚過塔の逆洗, F吸着塔, U吸着塔の再生

① 汚過塔の逆洗

汚過塔の逆洗は, 30時間通液(150 m³処理)で逆洗を行う。逆洗の所要時間は45分間で逆洗水は10 m³必要である。

② F吸着塔の再生

表-8にF吸着塔再生工程条件表を示す。通液160時間(流量5 m³/時, 通液量800 m³)で再生を行ない再生の所要時間は約10時間である。再生廃液は約24 m³発生する。図-9にF吸着塔A(T-942)の溶離曲線を示す。

③ U吸着塔の再生

表-9にU吸着塔再生工程条件表を示す。再生の頻度はF吸着塔と同じであり再生の所要時間は, 約19.5時間である。再生廃液は約22 m³発生する。図-10にU吸着塔A(T-944)溶離曲線を示す。

5. 今後の検討事項

以上に述べたように新装置を導入することにより放射性固体廃棄物の低減化, ウラン, フッ素の管理目標値以下の除去, 処理量の増大, 省力化等廃液処理工程の問題点は解決されたわけであるが, 今後の検討事項として, (1)安定運転(ウランのリークの改善, 圧損の上昇に伴う流量低下の改善), (2)運転コストの評価(試薬, 電力等の使用量調査), (3)商用プラント適用評価等を実施する。またノンスラッジ廃液処理法の開発を進める。

(質疑応答)

(質) フッ素吸着樹脂, ウラン吸着樹脂は何を使用しているか。(中部探鉱事務所 広瀬氏)

(答) フッ素吸着樹脂はユニチカ(株)製 UR-3700 で Zr 型フェノール・ホルマリン樹脂, ウラン吸着樹脂は同じくユニチカ(株)製 UR-3100 でホスホン酸系キレート樹脂である。また, CaF₂ 汚過機(石垣機工製)を除くウラン・ふっ素吸着除去設備の設計施工はユニチカ(株)である。

(質) 放射性固体廃棄物である CaF₂ スラッジの発生量が約 1/10 に低減化されたということであるがなぜか。(同上)

(答) 図 - 10 に改造前の廃液処理工程のフロー, 図 - 11 に改造後の廃液処理工程のフローを示す。図 - 11 に示すように改造後においては中和処理の段階で第 2 リン酸ソーダ, 硫酸等を添加せず, 消石灰も F の 3 倍量添加することによりウラン及びフッ素を粗取りし, その後に吸着塔でさらに除去するフローにしたためである。

(質) 新装置を設置したことにより廃液処理量はどれくらい増えたか, (人形峠 音村氏)

(答) 旧装置はバッチ運転であり $50 \sim 60 \text{ m}^3 / \text{日}$ であったのに対して新装置は, $5.2 \text{ m}^3 / \text{時}$ の連続処理で $126 \text{ m}^3 / \text{日}$ の処理量があるので約 2 倍の処理能力を有する。

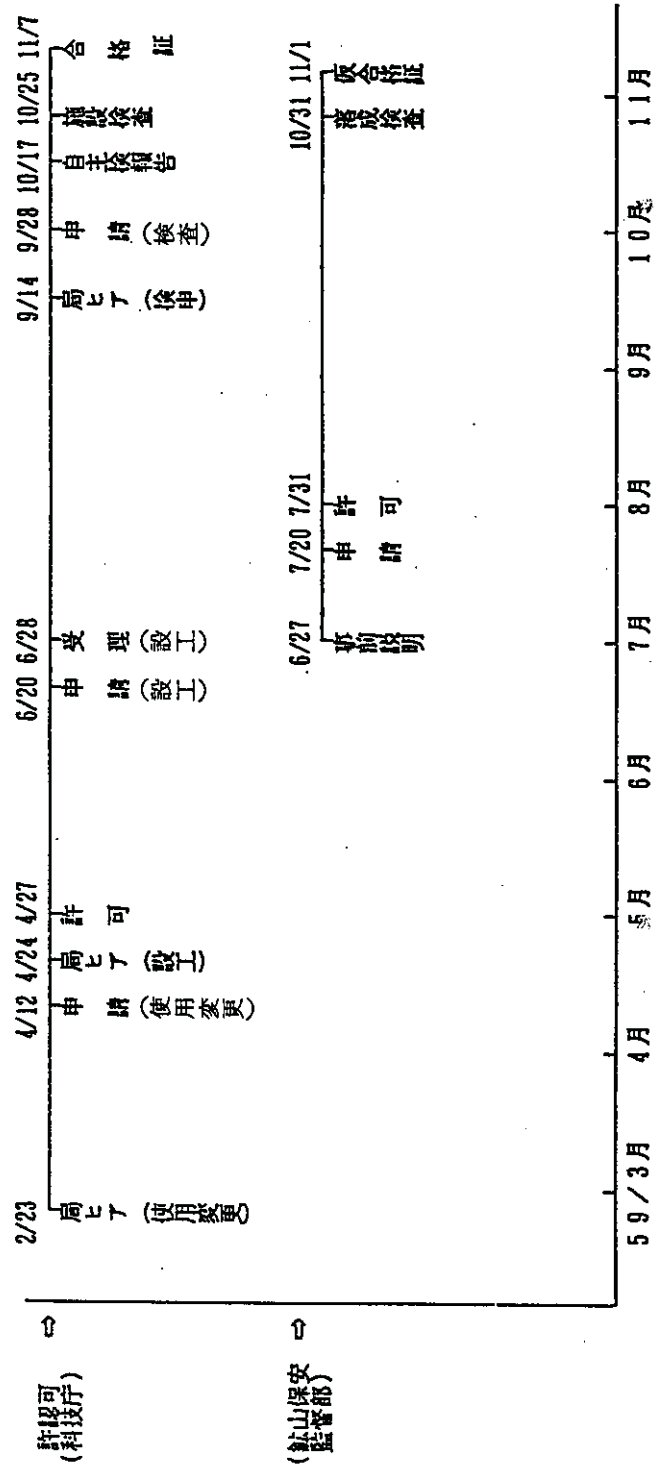


表-1 ウラン・ふっ素吸着除去設備の許可

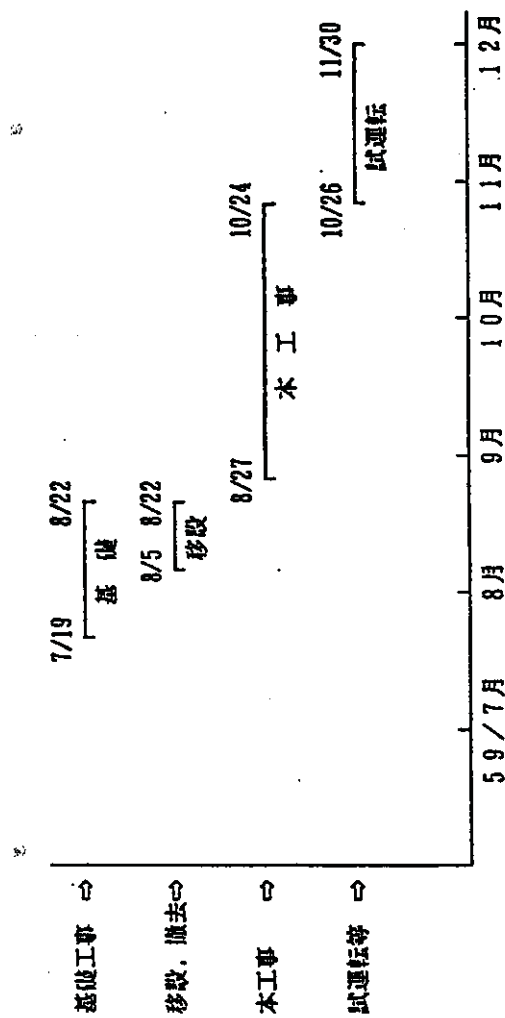
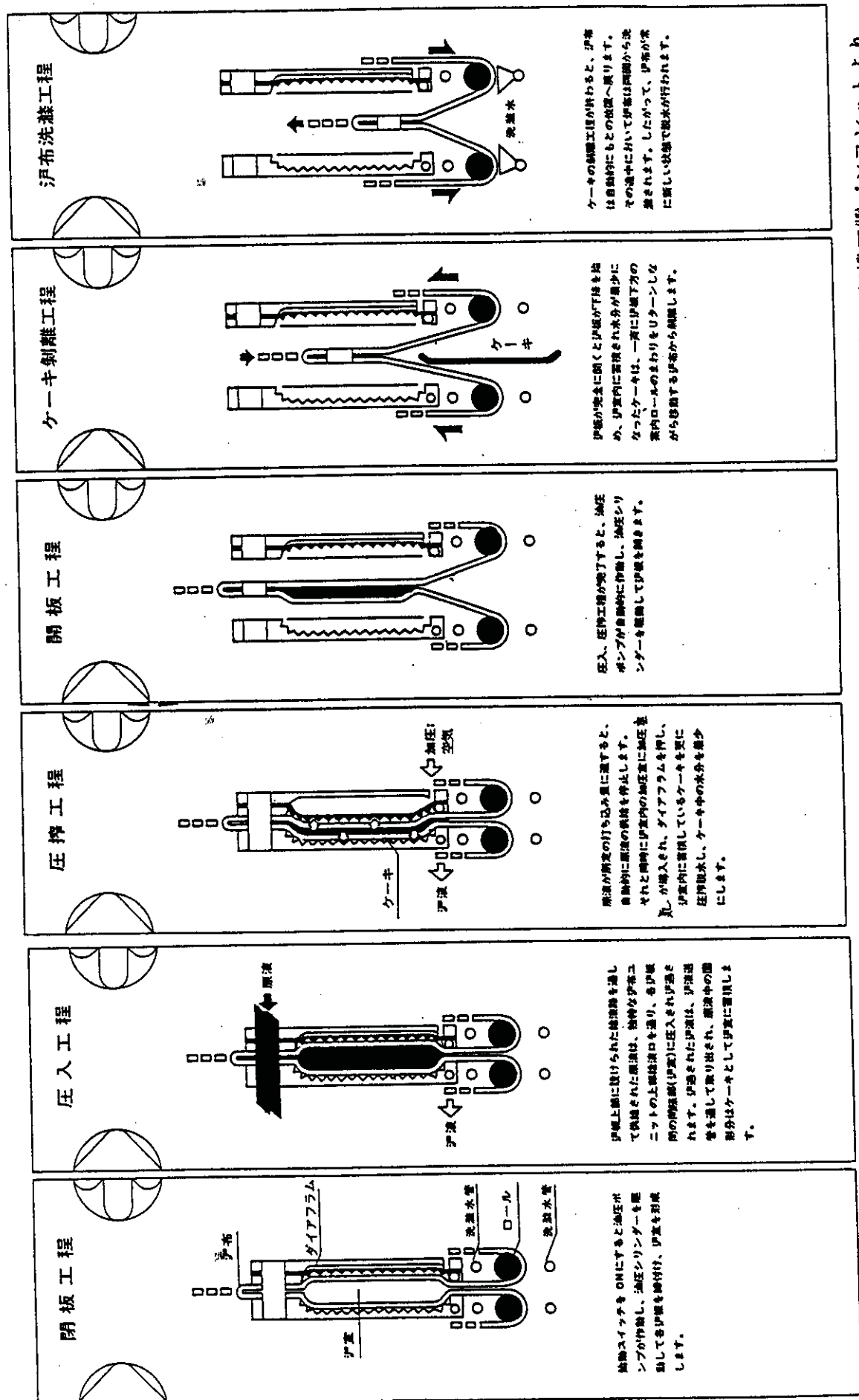


表-2 ウラン・ふっ素吸着除去設備工事工程



※ 石垣機工株式会社より

図-2 CaF_2 浴過機 (F-906) のメカニズム

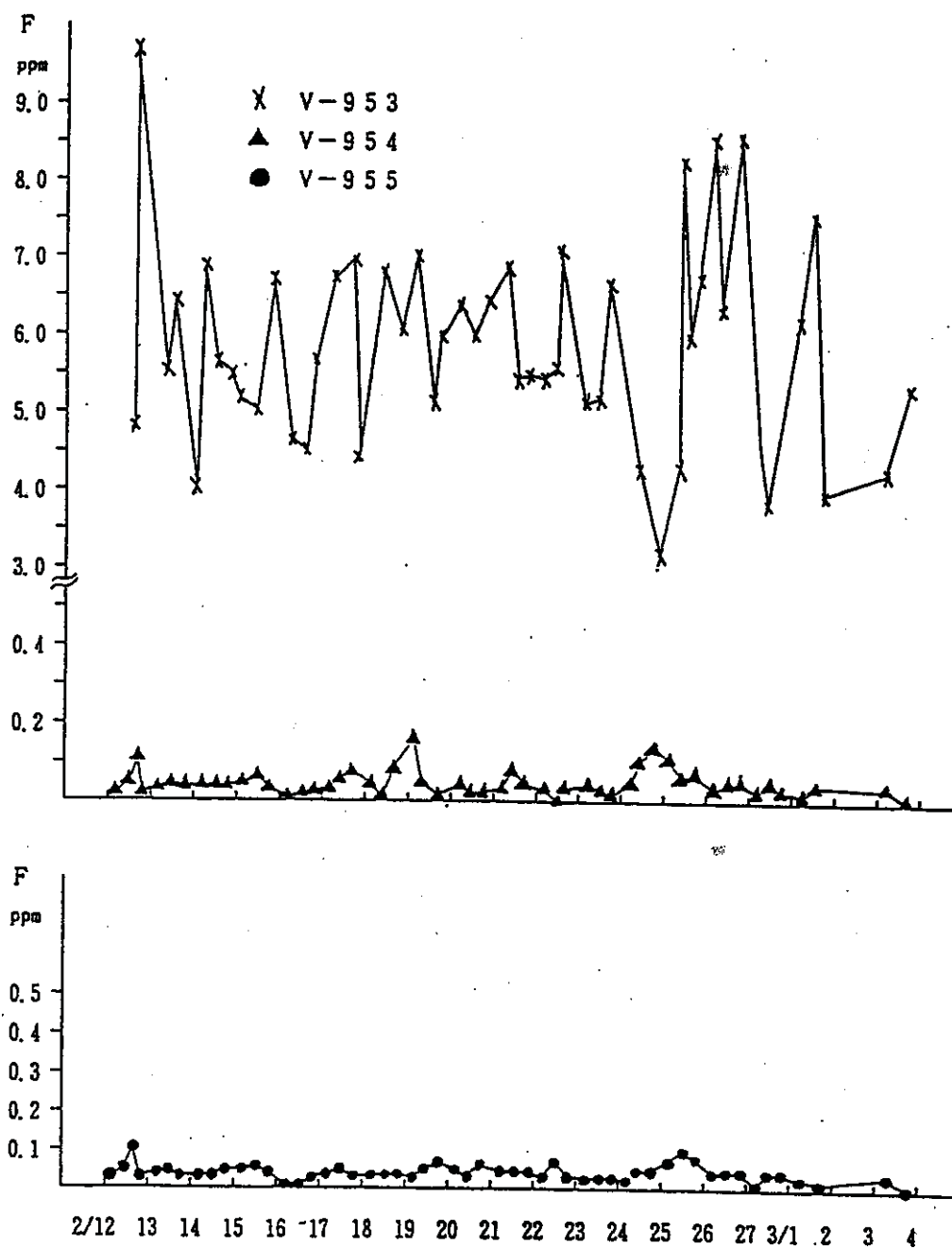


図-3 F吸着除去運転状況

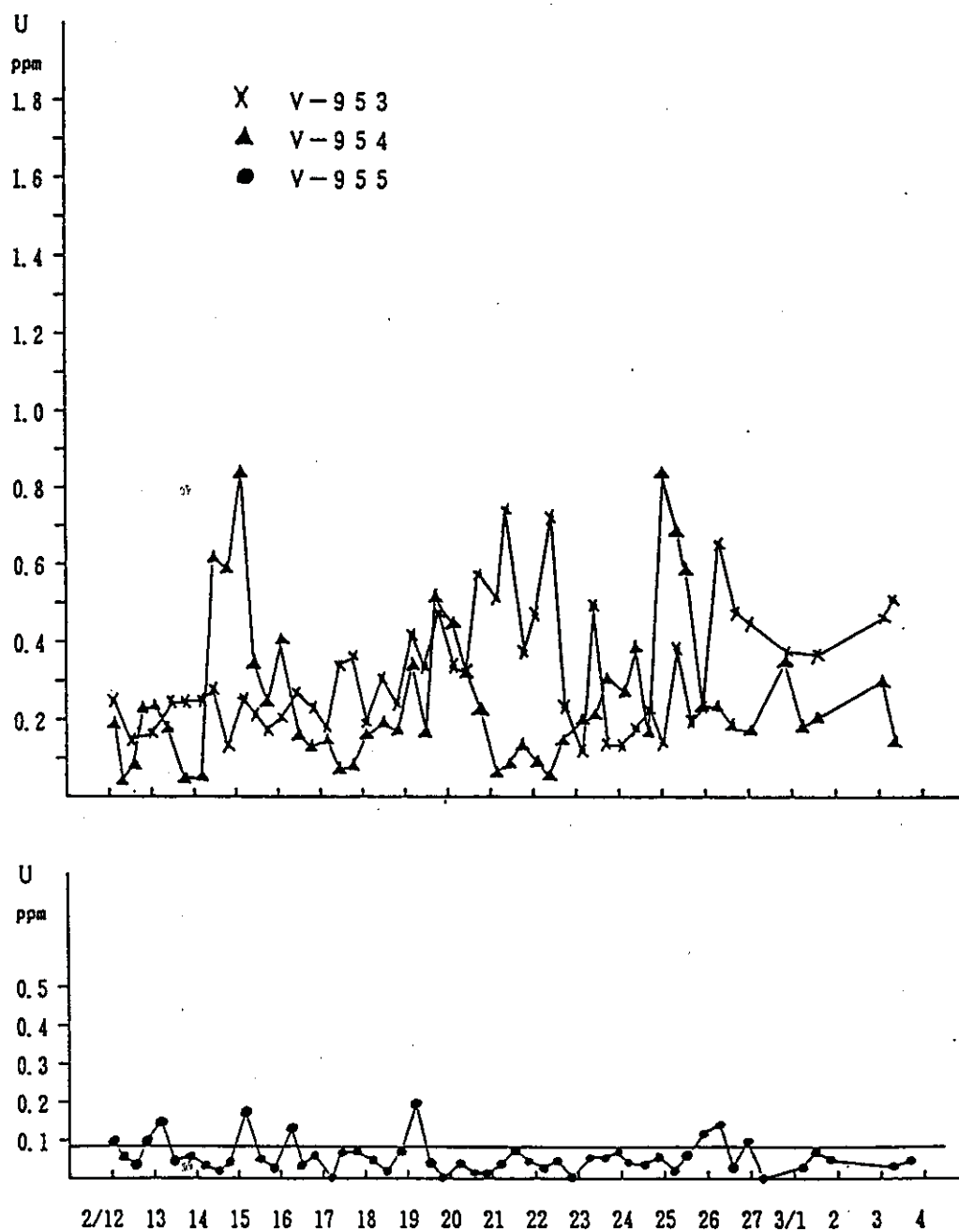


図-4 U吸着除去運転状況

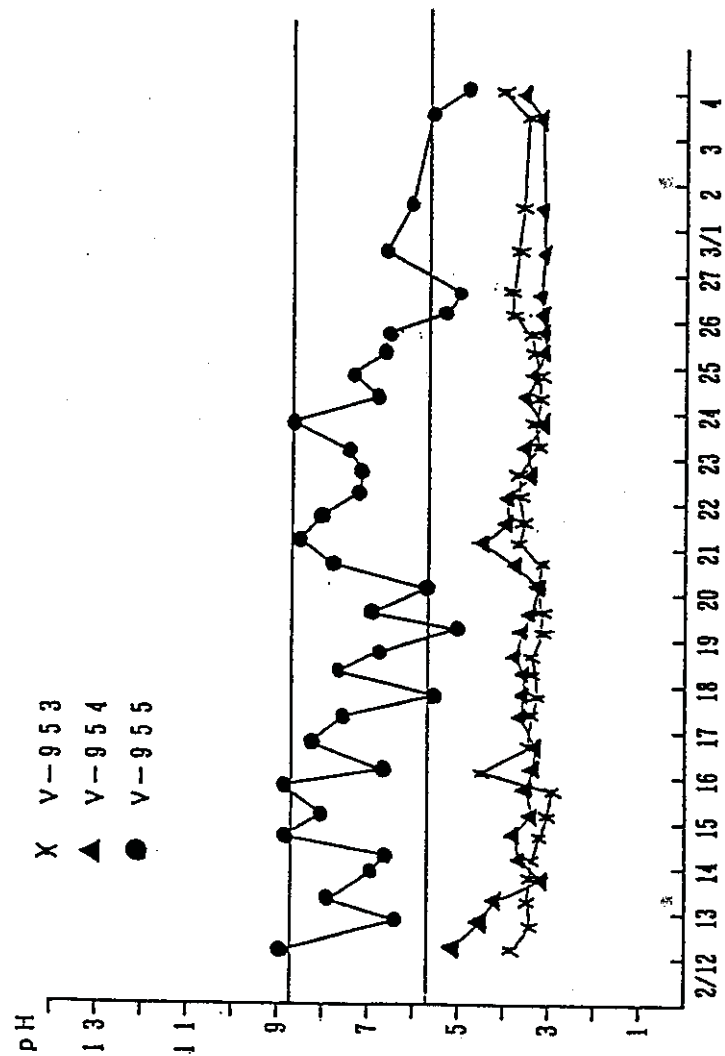


図-5 pH調整状況

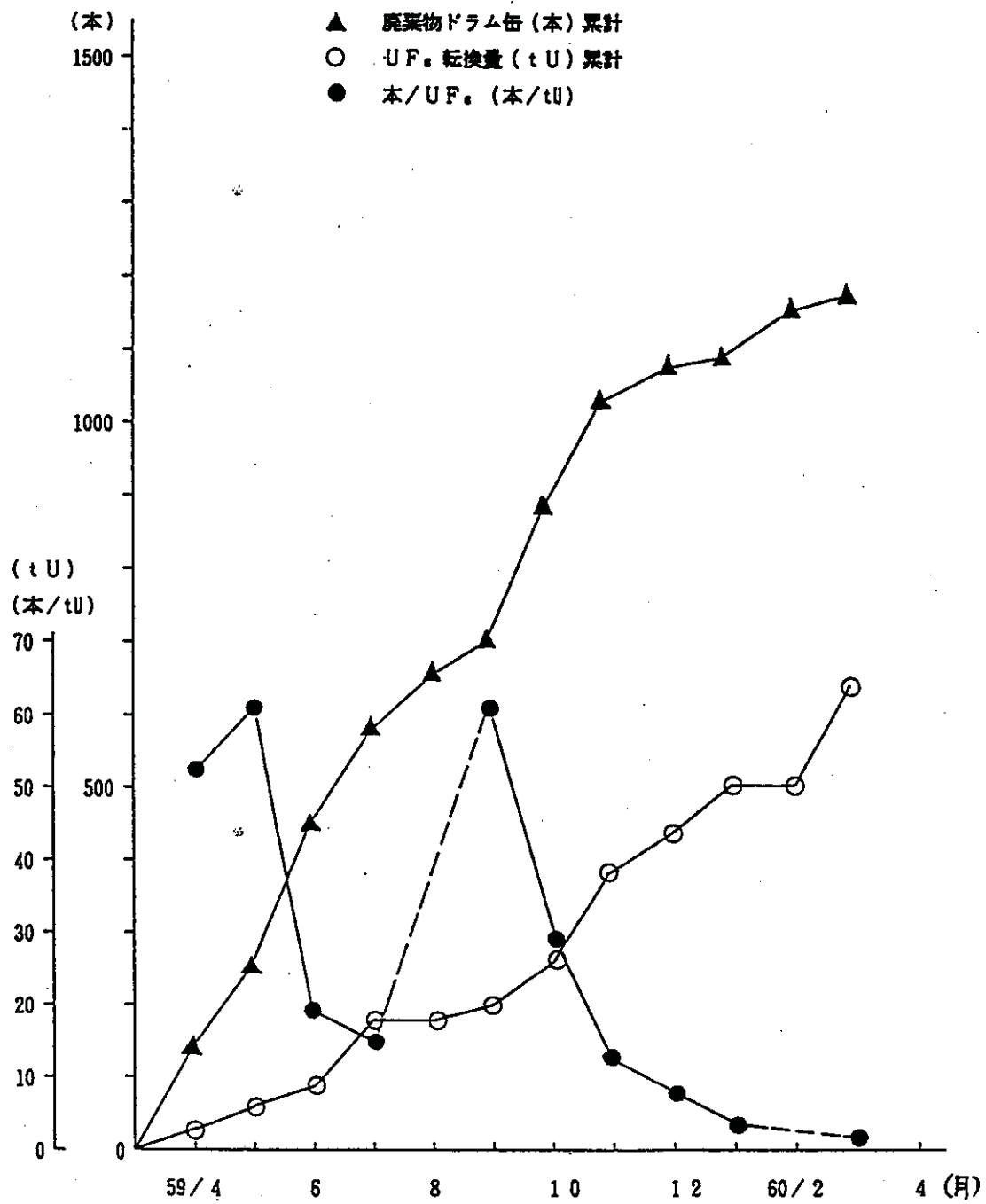


図-6 UF_6 転換量と放射性固体廃棄物量(59年度月別)

表-3 年度別放射性固体廃棄物発生量(200ℓ入ドラム缶本数)

年 度	UF ₆ (tU)	ドラム缶 (本)	ドラム缶本数 UF ₆ 転換量 (本/tU)
57	21.4	719	33.6
58	22.0	753	34.2
59(11月末)	36.7	1021	27.8
59(年度末)	65.0	1170	18.0
59/12~60/3月末	(28.3)	(149)	(5.2)

※ CaF₂ スラッジ発生量

表-4 今後の放射性固体廃棄物発生予測

年度	UF ₆ 転換量 (tU)	ドラム缶本数 (本)	ドラム缶本数/ UF ₆ 転換量 (本/tU)
60	100	400	4
61	100	400	4
62	0 (改造工事)	100	—
63	150	ごくわずか	ごくわずか
64	?	ごくわずか	ごくわずか

※ CaF₂ スラッジ発生量

表-5 放射性固体廃棄物の発生量などの比較

	ドラム缶本数/tU	ウラン含有量 (gU/kg)	含水量 (%)
旧装置	30 ~ 35	0.2 ~ 0.5	60 ~ 70
新装置	3 ~ 4	2 ~ 5	40 ~ 45

※ ドラム缶は200ℓ入りで約160kgのCaF₂ ケークが入る。

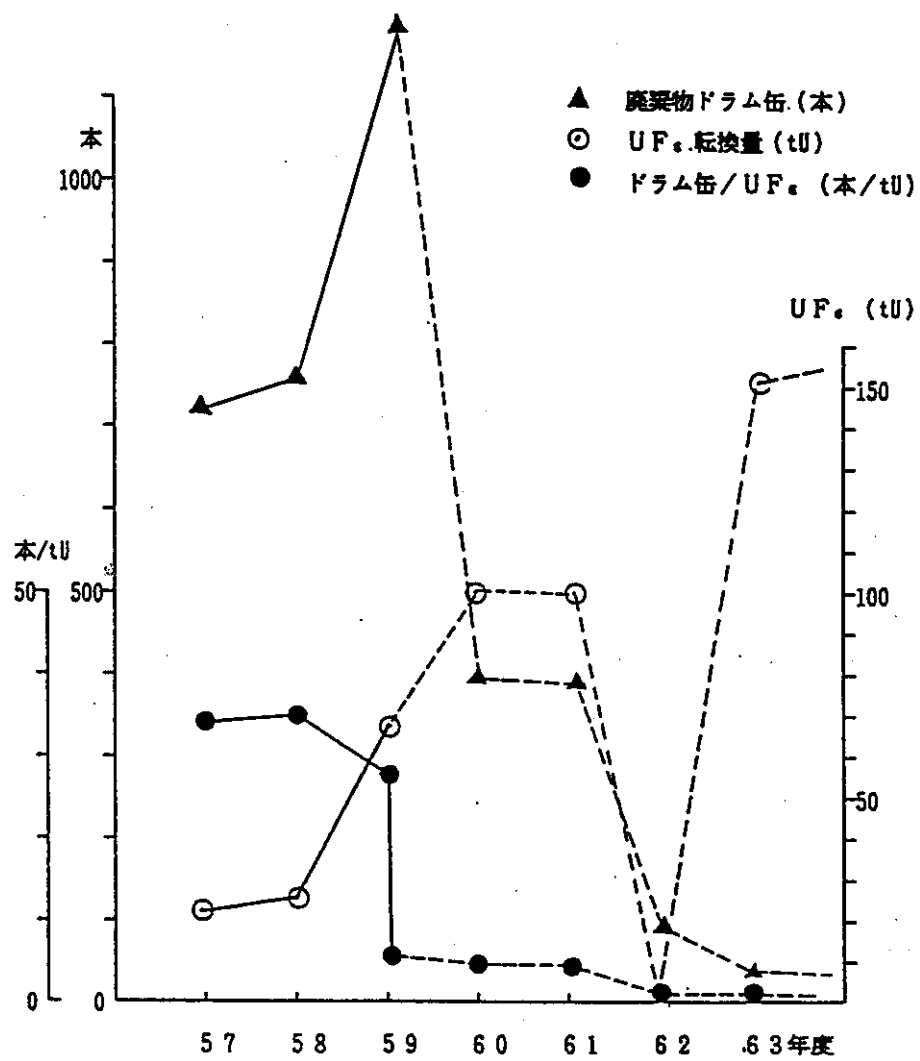


図-7 UF_6 転換量と放射性固体廃棄物量 (年度別)

表－6 処理量の比較

	処 理 量 m^3 /日	処 理 方 法
旧 装 置	50 ～ 60	バッチ 10 m^3 × 5 ～ 6 / 日
新 装 置	126	連 続 5.2 m^3 / 時

表－7 省力化の比較

	運 転 人 員	作 業 内 容
旧 装 置	4 班 × 2 名	重労働 (中和沈殿, 濾過)
新 装 置	4 班 × 1 名	監視業務 (F, pH 分析)

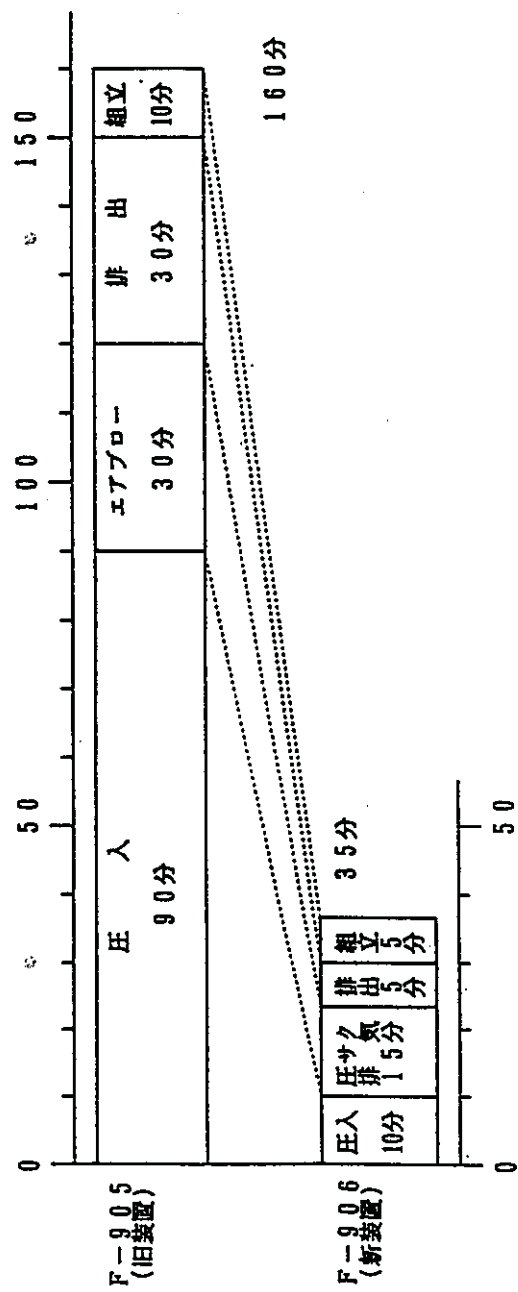


図-8 フィルタプレスの運転比較

表-8 F吸着塔再生工程条件表

R=1000ℓ, D=φ 1100mm, A=0.95m², Life= Hr

No	工 程	用 役	流れ	速 度		液 量		時 間	行 先
				sv(ℓ/H)	ℓ/min	vol	m ³	min	
1	水 逆 洗	用 水	↑	LV5 (m/Hr)	80	2.4	2.4	30	集 液 槽
2	静 置 1							5	
3	水 抜	(塔内水)	↓		40		1.0	25	集 液 槽
4	酸 洗 浄	0.9N-HCl	↓	2	33.3	0.5	0.5	15	〃
5	水 押 1	純 水	↓	2	〃	2.5	2.5	75	〃
6	溶 離 1	1N-NaOH	↓	2	〃	0.5	0.5	15	〃
7	空 気 攪 拌	エ ア -	↑	LV20 (m/H)	317	3.17	3.17 ^ℓ	10	第1排気ダクト
8	静 置 2							5	
9	溶 離 2	1N-NaOH	↓	2	33.3	2.5	2.5	75	集 液 槽
10	水 押 2	純 水	↓	2	〃	2	2	60	〃
11	塩 酸 化	0.9N-HCl	↓	2	〃	1.0	1.0	30	〃
12	水 押 3	純 水	↓	2	〃	3.0	3.0	90	〃
13	原 水 充 填	前塔処理水	↓	6.6	〃	1.0	1.0	9.1	塔内に貯留

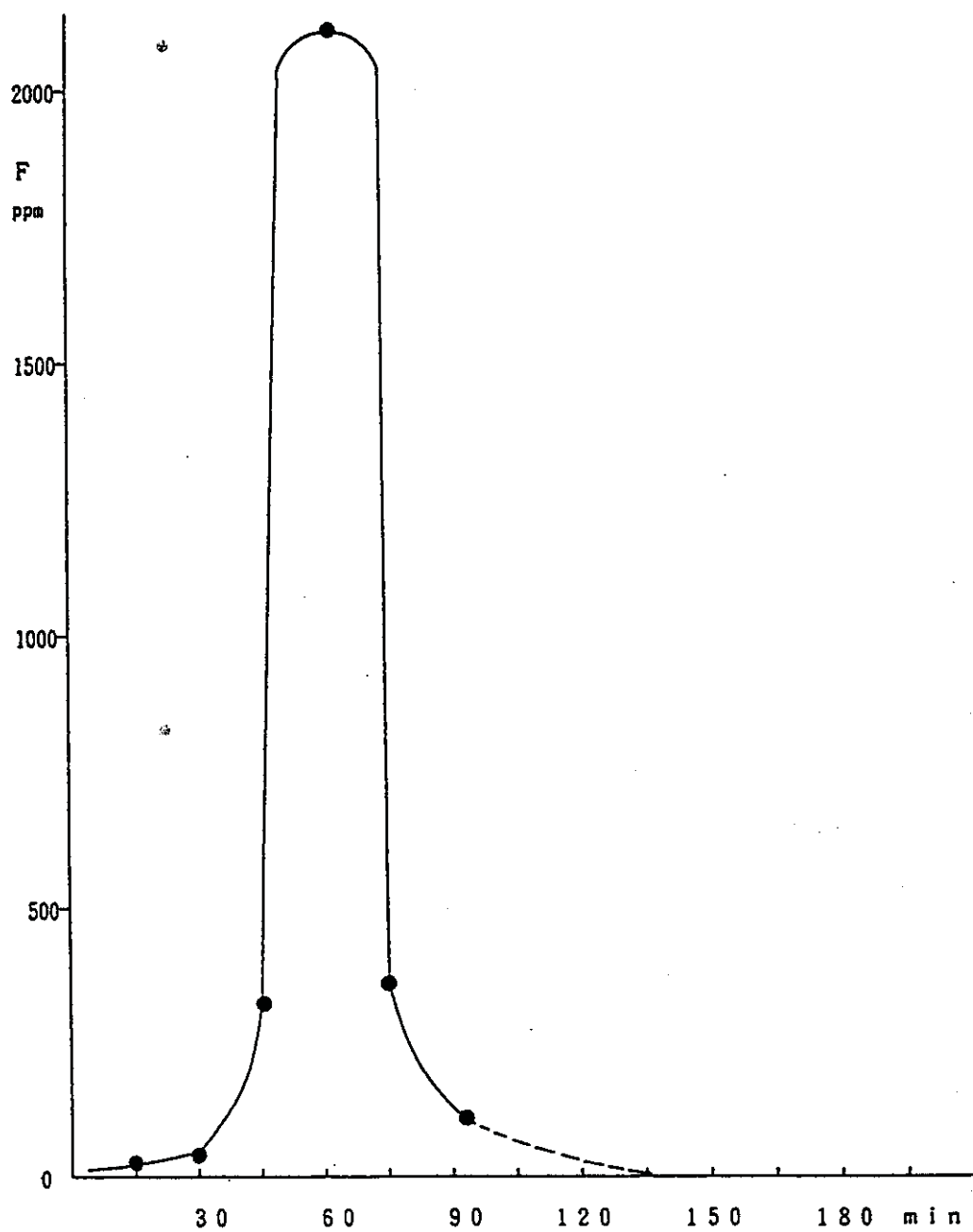


图-9 F吸着塔A (T-942) 溶離曲線

表-9 U 吸着塔再生工程条件表

R=500ℓ, D=φ800mm, A=0.5m², Life = Hr

No	工 程	用 役	流れ	速 度		液 量		時 間	行 先
				sv(ℓ/H)	ℓ/min	vol	m ³		
1	水 抜	(塔内水)	↓		—	—	0.2	20	集 液 槽
	空 気 逆 洗	空 気	↑	LV20 (m/H)	170	—	1.7	10	第1排気ダクト
	静 置				—	—		5	
	水 逆 洗	用 水	↑	LV5 (m/H)	42	—	1.2	30	集 液 槽
	静 置			—	—	—		5	
2	水 抜 1	(塔内水)	↓	—	—	—	0.2	20	集 液 槽
3	酸 洗 浄	0.9N-HCℓ	↓	2	16.7	1.2	0.6	36	〃
4	水 押 1	純 水	↓	2	〃	3	1.5	90	〃
5	ナトリウム化	0.2N-NaOH	↑	LV2 (m/H)	〃	10	5	300	〃
6	静 置			—	—	—		5	
7	水 抜 2	(塔内水)	↓	—	—	—	0.2	20	集 液 槽
8	溶 離	0.4M NaHCO ₃	↓	2	16.7	5	2.5	150	〃
9	水 押 2	純 水	↓	2	〃	2	1.0	60	〃
10	水 素 化	0.9N-HCℓ	↓	2	16.7	0.6	0.3	18	〃
11	原 水 充 填	前塔処理水	↓	13.2	110	0.44	0.22	2	塔 内
12	原 水 洗 浄	〃	↓	〃	〃	3.3	1.65	15	集 液 槽

再生
10
回
目
毎
に
実
行

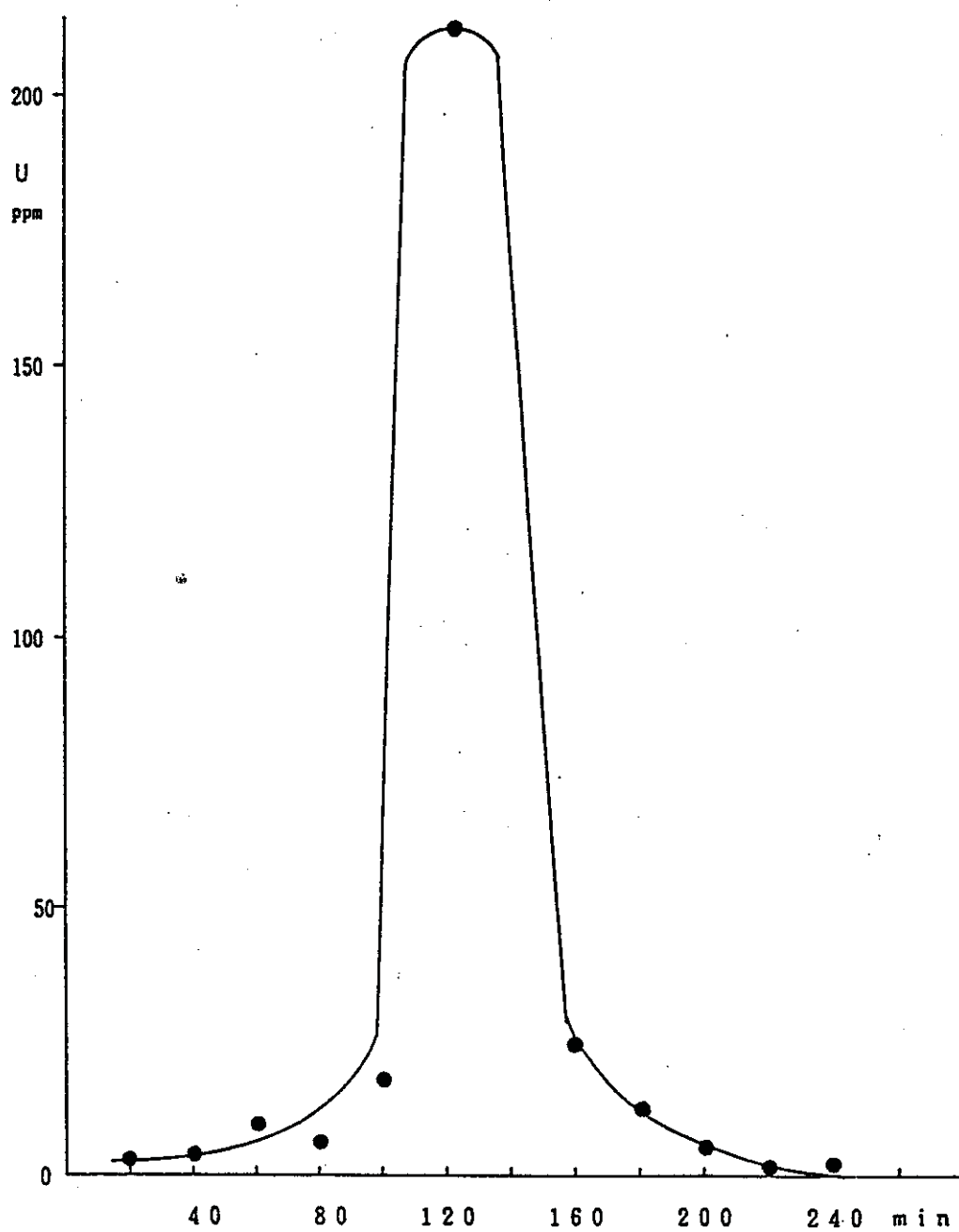


图-10 U吸着塔A(T-944)溶離曲線

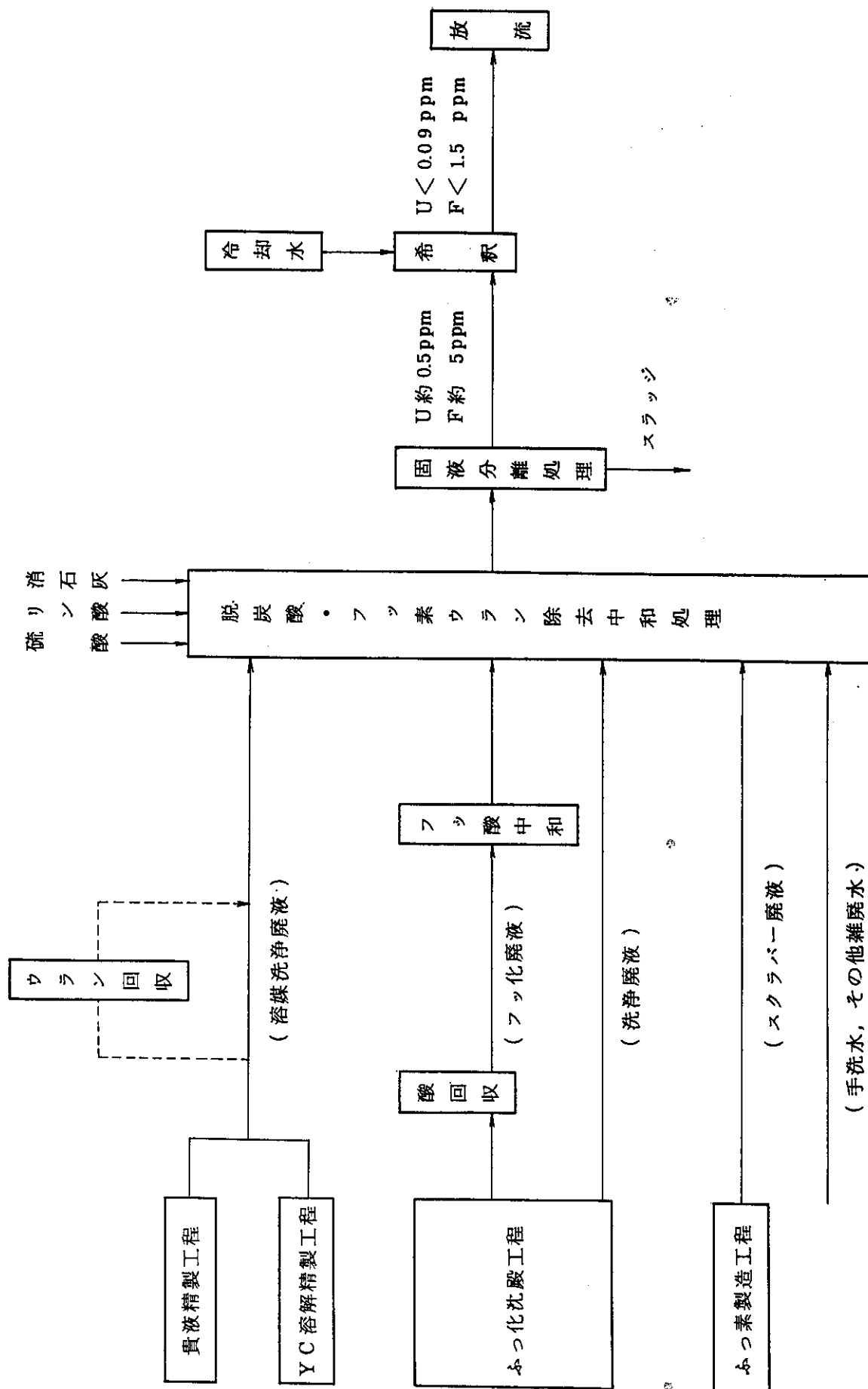


図-10 製錬転換パイロブロットプラント廃液処理工程（改造前）

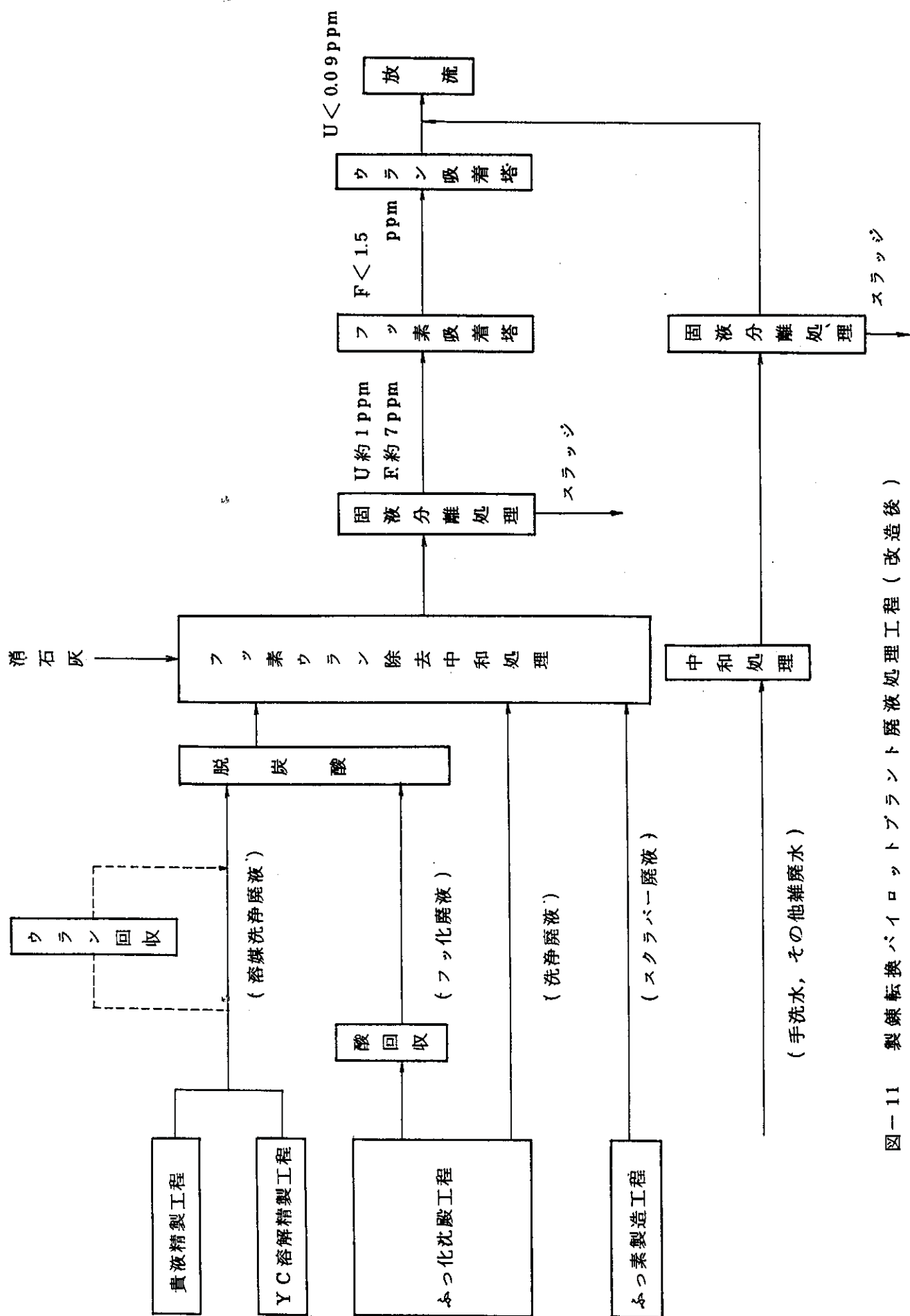


図-11 製錬転換パイロットプラント廃液処理工程（改造後）

4-(5) 新電解還元槽の運転実績

報告者 製錬課

1. 要 旨

59年8月に、メッシュ型電極を特長とする改良型電解槽を3パック中1パック導入して半年、1200時間通電した結果、電流効率が現有型のものに比べて約20%高いことがわかった。

2. 改良型解槽の導入経緯

電解還元工程は、57年2月にホット運転を開始して以来、次の2つの問題点があった(表1参照)

① スペーサーの縮み

58年6月および12月に、スペーサーの縮みを原因として、イオン交換膜に亀裂が入り、内部リークが生じるトラブルがあった。58年8月以降、スペーサーの材質を段階的に交換して、縮みによるトラブルを解決した。

② 電流効率の低下

電流効率は、59年4月以前の混酸ウラニルに対して約20%、また4月以降の硫酸ウラニルに対して約33%と低かった。

主として、この2つの問題点を解決するため、改良型電解槽を59年8月に導入し10月から60年3月の間1200時間運転した。

3. 改良型電解槽

① 改良型電解槽に要求されることとして

- i) 電極・イオン交換膜の保護
- ii) 電極表面積の増大
- iii) 電極間距離の減少
- iv) 電解コストの低減
- v) メンテナンスの容易化

の5点があげられる。

② 電解槽構造

現有型は、平板電極（複極）・スペーサー・イオン交換膜・スペーサー・電極の順となり、イオン交換膜は両側からスペーサーで保持されている。（図1参照）

一方、改良型は、イオン交換膜をスペーサーの代りに陰・陽メッシュ電極ではさんで保持する。陰・陽電極は、陰・陽極室仕切板を隔てて電氣的につながっている。（図2参照）

現有型および改良型電極をそれぞれ写真1，2に示す。

4. 評 価

改良型電解槽に要求される5点について、59年8月および60年3月に行った改良型1バックと現有型2バックでのそれぞれの運転データから評価した。

① 電極・膜の保護

60年3月に改良型電解槽解体の結果、電極はPtメッキはく離等なく良好。ただし両端の電極でそりが生じた。（写真3参照）

イオン交換膜は、亀裂等なく良好。（写真4参照）解体前に、膜端から外部へのにじみが生じており、これを防止するため、旭化成工業㈱で周囲をテーピング処理した。

② 電極表面積の増大

表2に示すように、電極面積は、セル当り、バック当りとも増大し500A通電時の電流密度は、現有型 12.2 A/dm^2 に対して改良型 7.3 A/dm^2 となる。電流効率は、改良型の方が59年8月の導入時で30%，1200時間通電後の60年3月で21%高い。これは、電極面積の増大に伴う電流密度の低下と、電極形状の違いによる。また、電流効率は、両者とも60年3月では低下している。これは、陽極Ptが溶出してイオン交換膜を通して陰極上に析出し、水素過電圧が低下したためと考えられる。

③ 電極間距離の減少

図3に示すように、平均電極間距離は、 15.7 mm から 4.7 mm に減少し、それに伴いセル端子間電圧は、表3に示すように改良型の方が低くなっている。

④ 電解コストの低減

表4に電力原単位と電解コストを比較した、電力単位を 20円/Kwh とした場合、改良型は 2.5万円/ton-U の電解コストになり、現有型の約 $1/2$ に低減できた。

⑤ メンテナンスの容易化

表5にまとめたように、セル当りの部品数は、6から2に減少し、バック解体・組立てに用いる正味の整備日数は2～2.5日から1.5日に、整備工数は12工から9工にそれぞれ減少した。

以上5項目のすべてにおいて改良型の方がすぐれていることが確認できた。

5. 課 題

イオン交換膜端からのにじみに対して、テーピング処理を施したが、抜本的にはシール構造の改良が必要である。

陰極のPtの汚染による電流動効率の低下に対して陽極液中に溶出したPtの除去と陰極面の活性化が必要である。

今回の評価は、1200時間通電で行ったが、連続運転では、2ヶ月運転に相当し、さらにロングランテストが必要である。

6. 質疑応答

Q 1200時間で評価できるか、また現有型は（現状ではく離が進んでいるが）1200時間ではどのような状況であったか？

A 現有型1200時間では、角部にはく離が多少あるだけであり、最終評価にはさらにロングランが必要である。

Q 現有型、改良型バックコストは？

A 現有型（56年の単価積算）5500万円、改良型3700万円（ただし現有型は現在さらに安くなるとされる参考値）

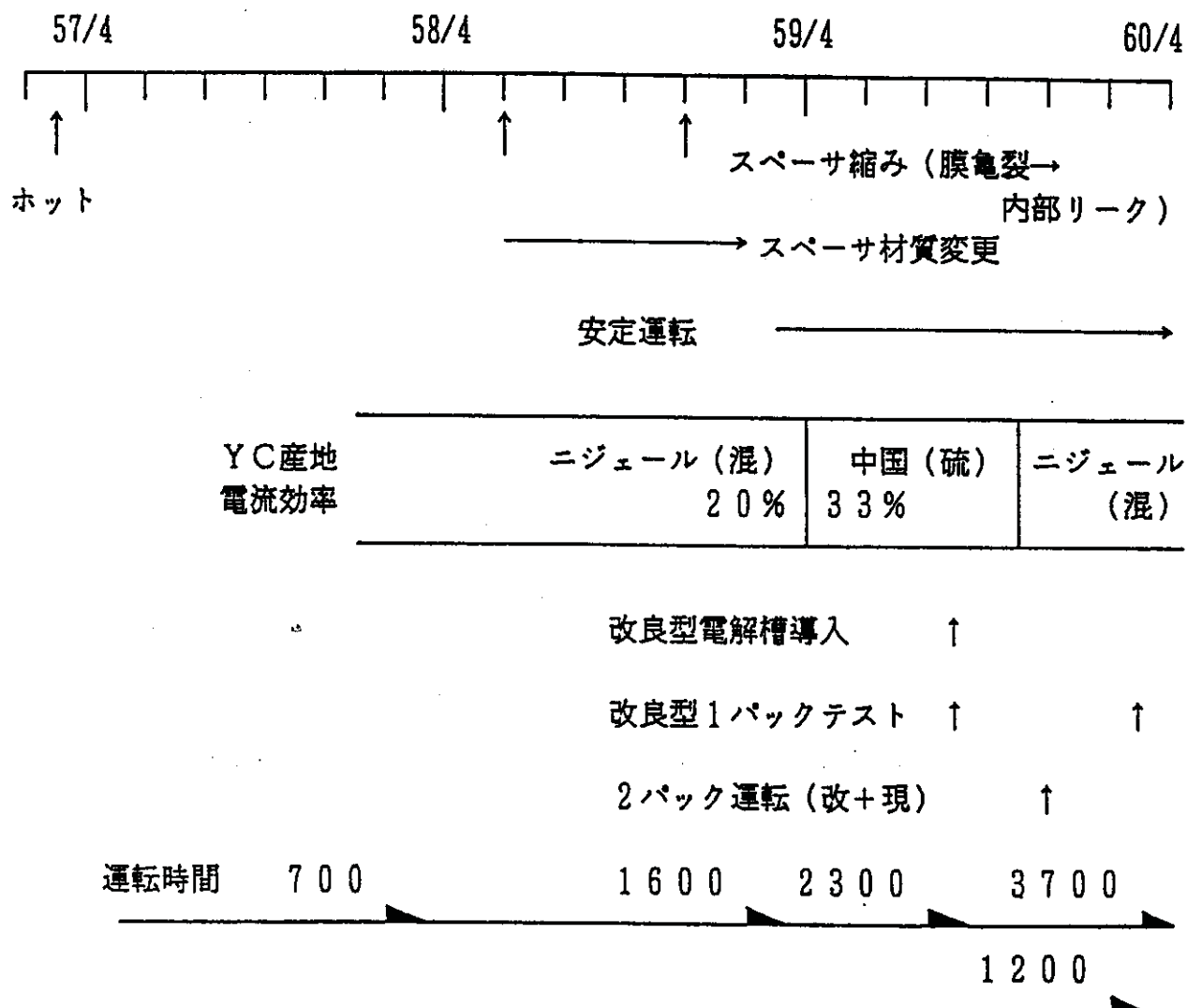
Q 電解コストが1/2に低減しているか理由は何か？

A 電流密度と電極形状の違い（平板→メッシュ）による。メッシュの場合、電極から発生する水素ガスのガス離れもよい。

Q セル内流速に現有型と改良型で差はあるか？

A 循環液は3バック並列に供給されており、ほとんど差はなく8 cm/sec程度である。

表-1 経緯と問題点



(OHP用 2/4)

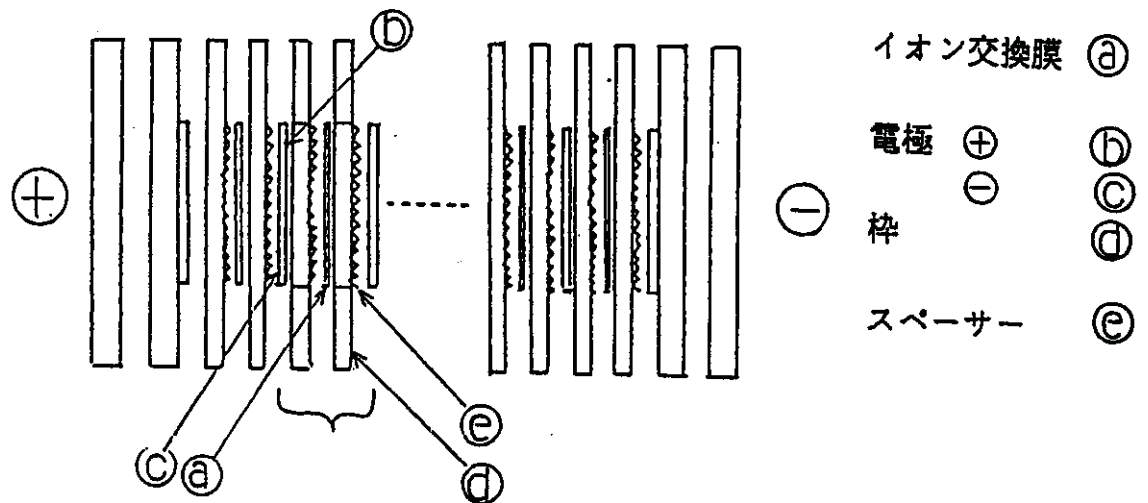


図-1 現有型 (平板電極)

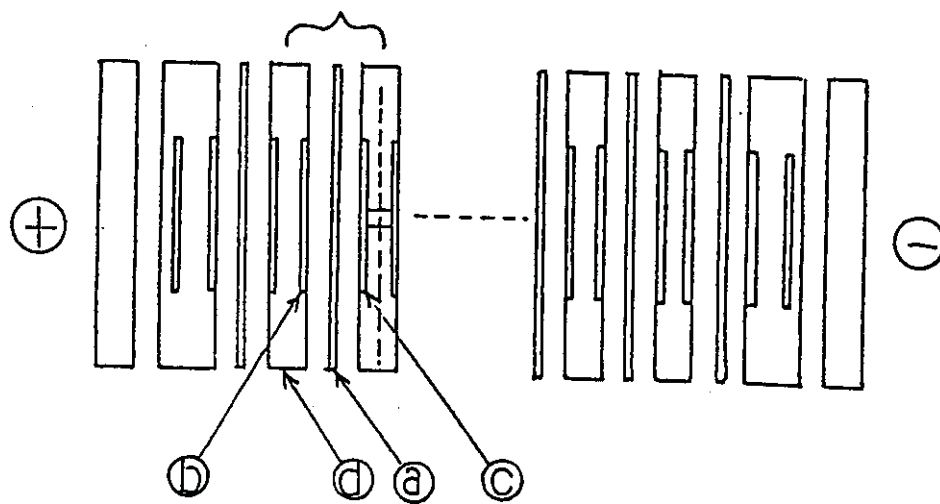


図-2 改良型 (メッシュ電極)

(OHP用 3/4)

表-2 電極表面積の増大

	電極面積		電流密度 500 A A / dm ²	電流効率% *	
	セルdm ²	バックdm ²		59/8	60/3
現有型	41.0	820	12.2	39	33
改良型	68.5	1100	7.3	69	54

*還元率98%アップ
濃度補正済

表-3

	端子間電圧V *	
	59/8	60/3
現有型	4.54	3.85
改良型	3.14	3.08

*セル当り, 時間平均値

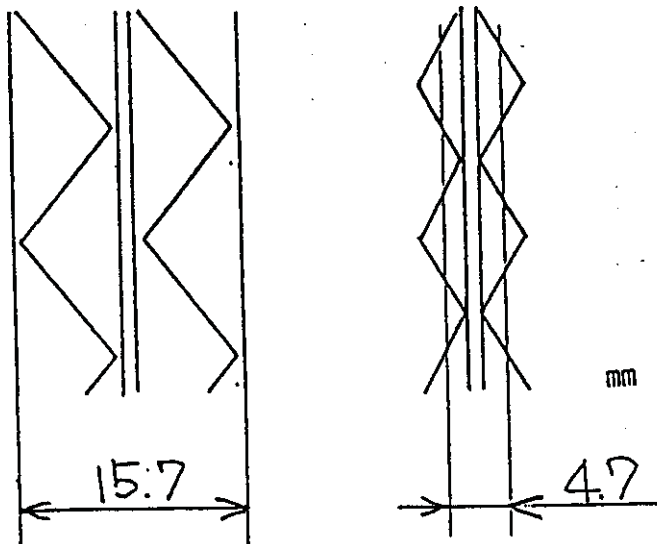


図-3 電極間距離の減少

(OHP用 4/4)

表-4 電解コストの低減

	電力原単位 DC-kwh/kg-U		電解コスト* 万円/ton-U
	59/8	60/3	60/3
現有型	2.57	2.46	4.9
改良型	1.06	1.27	2.5

*20円/kwh とする

表-5 メンテナンスの容易化

	部品数 セル当り	整備日数* 日	整備工数* 工
現有型	6	2~2.5	12
改良型	2	1.5	9

*1パック分の整備の正味
量で準備, 後片付け, リ
ークテスト等共通部を除
外した。

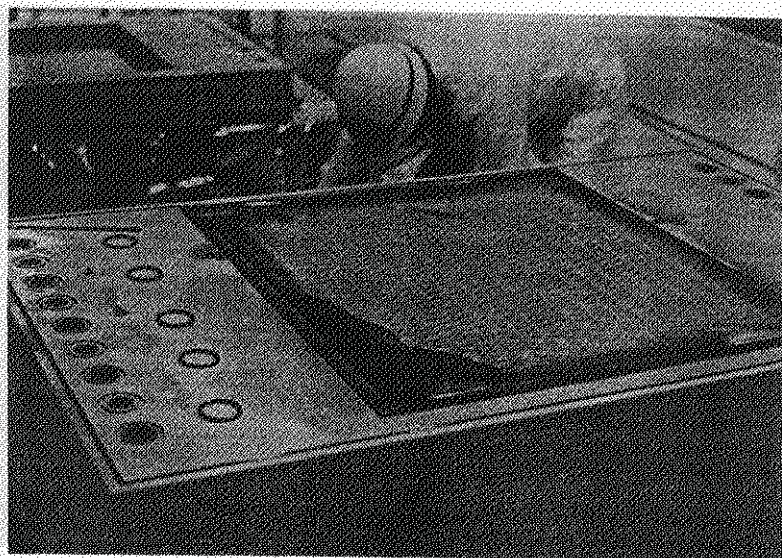


写真1 現有型平板電極



写真2 改良型メッシュ電極

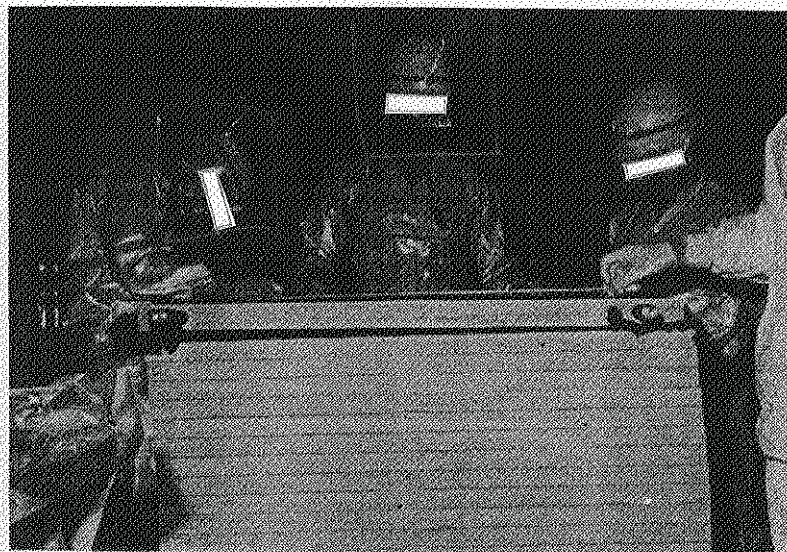


写真3 メッシュ電極のそり

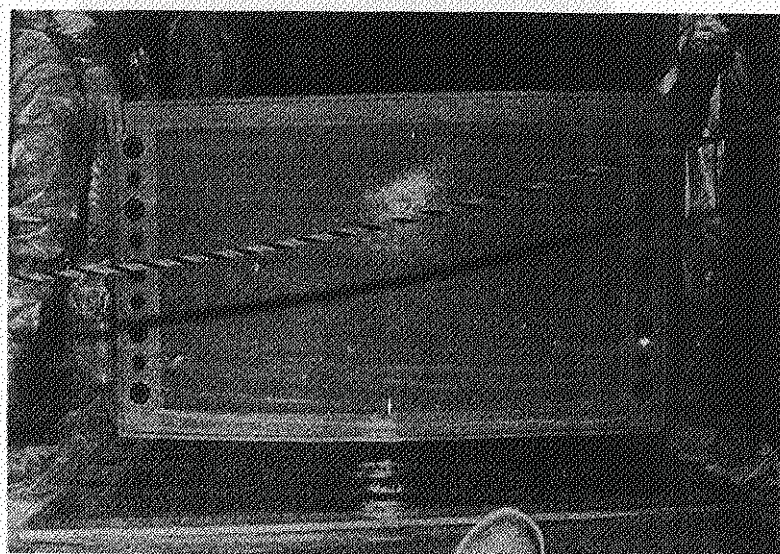


写真4 イオン交換膜（揚極側）

4-(6) フッ化沈でん槽オーバーフロー液中のウラン処理技術開発

報告者 製錬課

製錬転換パイロットプラントのフッ化沈でん工程(U-4)では、現在下記のような課題が課せられている。

- ① 含水UF₄の粉体物性の向上
(R-401の最適晶析条件の確立)
- ② ウラン実収率の向上
 - i) R-401オーバーフロー液
 - ii) 含水UF₄2級品(R-401スケール他)
 - iii) その他
- ③ 生産性の向上
 - i) R-401アンダーフロースラリ抜出し操作
 - ii) トラブル対策
 - iii) 省力化

本成果報告会では、これらの課題のうち、R-401オーバーフロー液処理系におけるウランの回収および種々のトラブルの解決の観点から、R-401オーバーフロー液中のウラン処理技術について報告する。

(1) フッ化沈でん工程におけるウラン実収率

昭和59年度のユニット4の生産実績は、表1に示すようであり、合計10回のキャンペーンでウラナス液を78.9tU(1573m³)処理し、含水UF₄を70.5tU生産した。ウラナス液の平均処理速度は0.84tU/日であり、ウラン実収率は89.3%であった。

また、1985 1.9-1.22および2.6-2.26のキャンペーンについて、ユニット4におけるウラン分布率をまとめると表2のようになる。表2に示すように、ユニット4で受入れたウランのうち、R-401オーバーフロー液処理系へのウラン損失は、フッ化廃液シクナ(F-402)スラッジ、65%回収硫酸および酸回収塔凝縮液に各々4.5、2.5および0.007%であり、合計7%である。なお、これらのうちF-402スラッジおよび65%回収硫酸中のスラリ(回収硫酸槽スラッジ)は、放射性固体廃棄物として、200ℓドラム缶に一時保管しており、製錬転換パイロットプラントの運転開始以来の発生量は、表3に示すように、合計25本(5.7t)に達している。

(2) フッ化沈でん槽オーバーフロー液処理系におけるトラブルおよび問題点

フッ化沈でん槽オーバーフロー液処理系におけるトラブルおよび問題点は下記のようにある。

- ① フッ化廃液シックナにおける $UF_4 \cdot nH_2O$ の析出および沈積した $UF_4 \cdot nH_2O$ 微結晶（懸濁分）のリサイクル不能
- ② R-401 オーバーフロー液処理系の配管の閉塞
- ③ 酸回収塔のレベル計の誤指示（計装用ノズルの閉塞）
- ④ 回収硫酸槽における $U(SO_4)_2 \cdot nH_2O$ の沈積
- ⑤ 65%回収硫酸の溶媒抽出工程でのリサイクル使用による悪影響（ U^{4+} と UO_2^{2+} との分配係数の差）
- ⑥ 放射性固体廃棄物の発生

(3) 回収硫酸スラリの処理に関する基礎試験

回収硫酸スラリの組成は、表4のようであり、全Uおよび U^{4+} 濃度は各々14.9および14.1 gU/kgであり、 $[U^{4+}/UT]$ モル比は0.95であることから、その主成分は $U(SO_4)_2 \cdot nH_2O$ と考えられる。なお、未溶解残渣は0.03 wt%と微量であり、 $UF_4 \cdot nH_2O$ も一部含有している。

回収硫酸スラリの H_2O_2 添加による溶解試験結果を図1に示す。処理液中の溶解全U濃度は、 $[H_2O_2/U^{4+}]$ 添加モル比が約1までは、 H_2O_2 添加量に比例して直線的に上昇し、1以上では一定になる。一方、溶解 U^{4+} 濃度は、 $[H_2O_2/U^{4+}]$ 添加モル比が約1までは、2~4 gU/lとほぼ一定であり、1以上ではゼロになる。

以上のことから、回収硫酸スラリの主成分は $U(SO_4)_2 \cdot nH_2O$ であり、 H_2O_2 を $[H_2O_2/U]$ モル比1添加することにより、ほぼその全量を溶解できることが明らかになった。

(4) R-401 オーバーフロー液の処理に関する基礎試験

R-401 オーバーフロー液の溶解ウランおよび懸濁物質濃度推移を各々図2および図3に示す。R-401 オーバーフロー液の全U、 U^{4+} および UO_2^{2+} 濃度は各々2.5~3.0、1.5~2.0 および約1.0 gU/lであり、また懸濁物質濃度はR-401の攪拌速度が30 rpmの場合、500 ppm以下である。なお懸濁物質濃度は、R-401の攪拌速度を45 rpmに増加すると、最大で約1500 ppmまで増大した。以上の結果、R-401 オーバーフロー液の組成は表5のようにまとめられ、R-401 オーバーフロー液中のウランは、その約90%は溶存ウラン、そして約10%が懸濁物質（ $UF_4 \cdot nH_2O$ ）として存在する。

R-401 オーバーフロー液の冷却・熱成効果を図4に示す。R-401 オーバーフロー液を90℃から室温まで自然放冷すると、溶解 U^{4+} 濃度は1.56から0.14 gU/ℓまで減少し、 U^{4+} の約90%が $UF_4 \cdot nH_2O$ の形で結晶析出する。一方、溶解 UO_2^{2+} 濃度は一定である。

R-401 オーバーフロー液の H_2O_2 による処理試験結果を図5に示す。R-401 オーバーフロー液の原液および H_2O_2 による処理液をそれぞれ室温まで自然放冷すると、溶解全U濃度は $[H_2O_2/U^{4+}]$ 添加モル比に比例して直線的に増大し、1以上では一定になる。一方、沈でん発生量は $[H_2O_2/U^{4+}]$ 添加モル比に逆比例して直線的に減少し、1ではほぼゼロになる。

以上のことから、R-401 オーバーフロー液には U^{4+} が1.5~2.0 gU/ℓ溶存し、冷却・熱成することにより、その約90%が $UF_4 \cdot nH_2O$ として結晶析出し、R-401 オーバーフロー液処理系におけるトラブルの主原因となっている。しかし、R-401 オーバーフロー液に H_2O_2 を添加することにより、これらのトラブルをほぼ解決することが可能であると考えられる。

なお、本法は製錬転換パイロットプラントに採用するためには、過剰の H_2O_2 に対する酸回収塔の材質（黒鉛質のトーカベイト）の耐食性について検討・評価する必要がある。

表-1 昭和59年度 ユニット-4の生産実績

運 転 期 間	運転時間 (h)	ウラナス処理量		含水UF ₄ 生産量	
		液 量 (m ³)	ウラン量 (tU)	(tUF ₄ ·nH ₂ O)	(tU)
1984. 4. 5— 4.19	246	161.19	8,339	10.27	7.39
5.15— 5.24	171	101.13	5,589	6.67	4.80
6.15— 6.28	297	197.91	11,891	15.31	11.02
7.27— 8. 5	125	78.21	4,049	5.20	3.74
10.19—10.31	277	198.74	7,859	9.39	6.76
11.11—11.19	191	123.89	6,198	8.09	5.82
12. 1—12. 6	97	74.46	3,603	4.35	3.13
12.12—12.16	108	82.75	4,142	4.83	3.48
1985. 1. 9— 1.22	306	209.42	10,528	13.26	9.55
2. 6— 2.26	427	345.59	16,725	20.49	14.75
(合 計)	2245	1573.29	78,923	97.86	70.46

ウラナス処理速度 : 0.84 tU/日

ウラン実収率 : 89.3 % (全U基準)

表-2 ユニット-4におけるウランの分布率

1. 含水UF ₄ 製品	89.
2. 含水UF ₄ 2級品 (R-401スケール他)	3.
3. R-401オーバーフロー液処理系	7.
(1) F-402スラッジ(放射性廃棄物)	4.5
(2) 65%回収硫酸(溶解・精製工程)	2.5
(3) 酸回収塔凝縮液(廃液処理工程)	0.007
4. F-403洗浄廃液(廃液処理工程)	1.

(単位：%)

表-3 ユニット-4における放射性固体廃棄物の発生量(1985.3現在)

	ドラム缶本数(本)	重量(t)
1. 含水UF ₄ 2級品 (R-401スケール)	22	5.6
2. F-402スラッジ	16	4.0
3. 回収硫酸スラリ (V-903スラッジ)	9	1.7
4. V-404スラッジ	9	2.2
5. その他	2	0.6
(合計)	58本	14.1 t
		(約8. tU)

表-4 回収硫酸スラリの組成

全U濃度	149 gU/kg
U ⁴⁺ 濃度	141 gU/kg
[U ⁴⁺ /U _T]モル比	0.95
SO ₄ 濃度	330 gSO ₄ /kg
未溶解残渣	0.03 wt %

表-5 R-401 オーバーフロー液の組成

溶存U _T 濃度	2.5~3.0 gU/kg·soln
U ⁴⁺ 濃度	1.5~2.0 gU/kg·soln
UO ₂ ²⁺ 濃度	1.0 gU/kg·soln
懸濁物質濃度	0.10~0.40 g/kg·soln (0.07~0.30 gU/kg·soln)

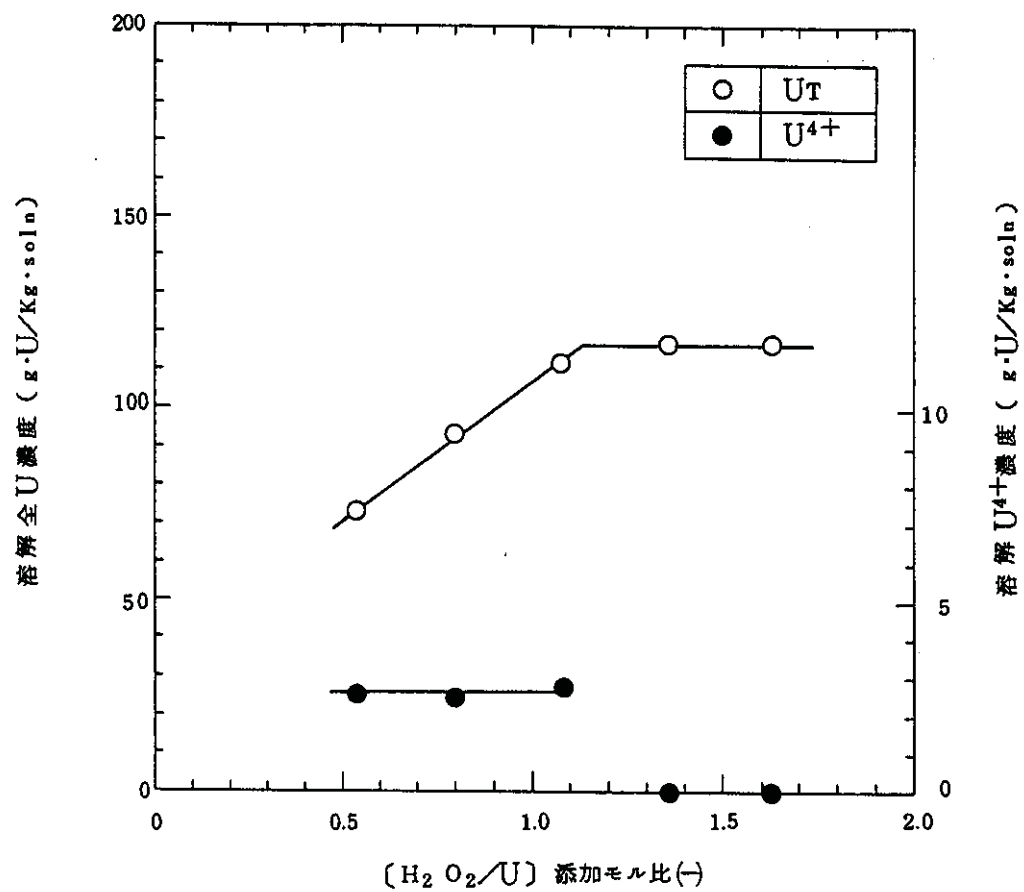


図-1 回収硫酸スラリの H_2O_2 添加による溶解試験結果

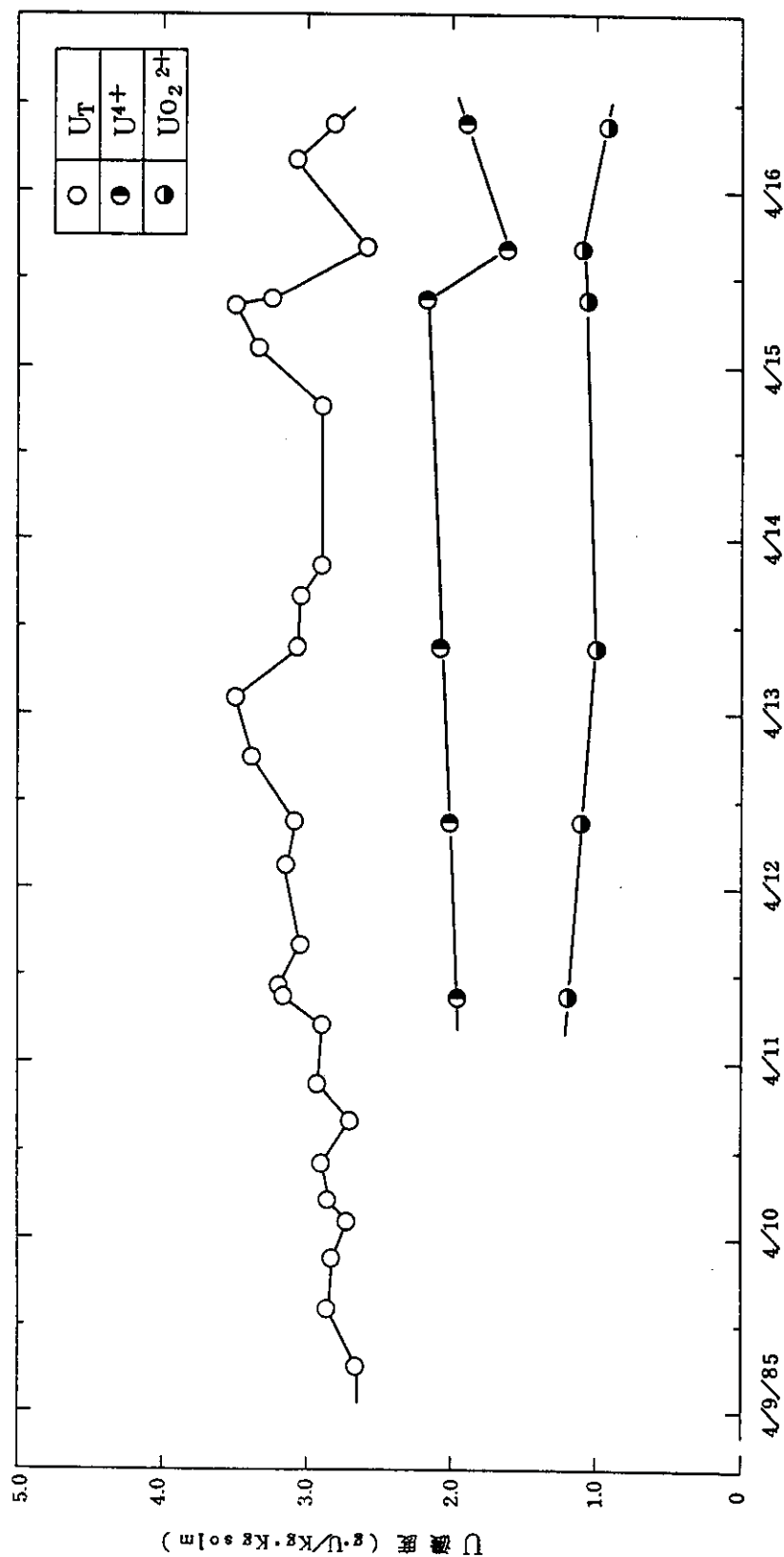


図-2 R-401 オーバーフロー液のウラン濃度の推移 (1985. 4. 9 ~ 4. 16)

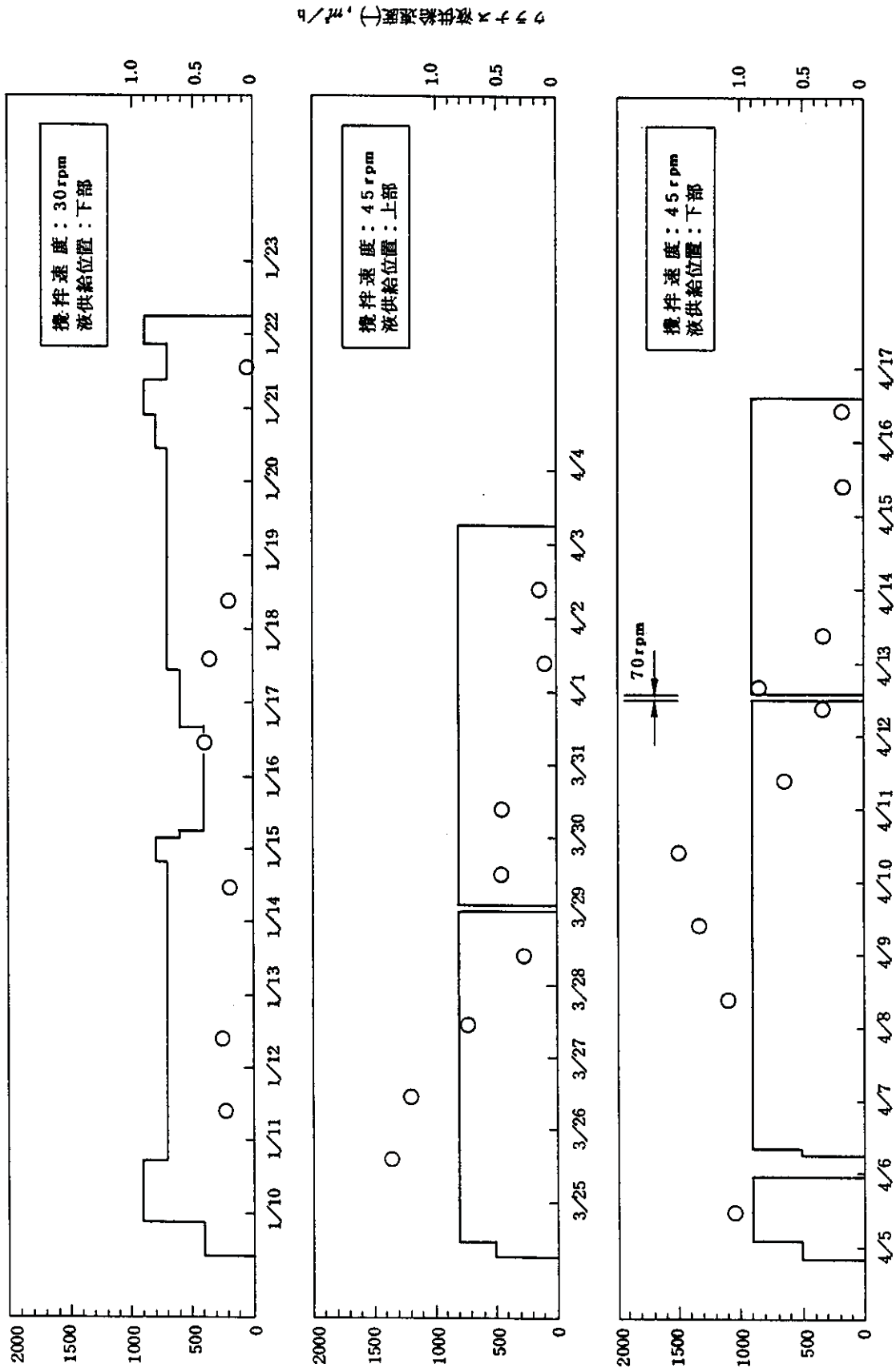


図-3 R-401オーバーフロー液の懸濁物質濃度の推移

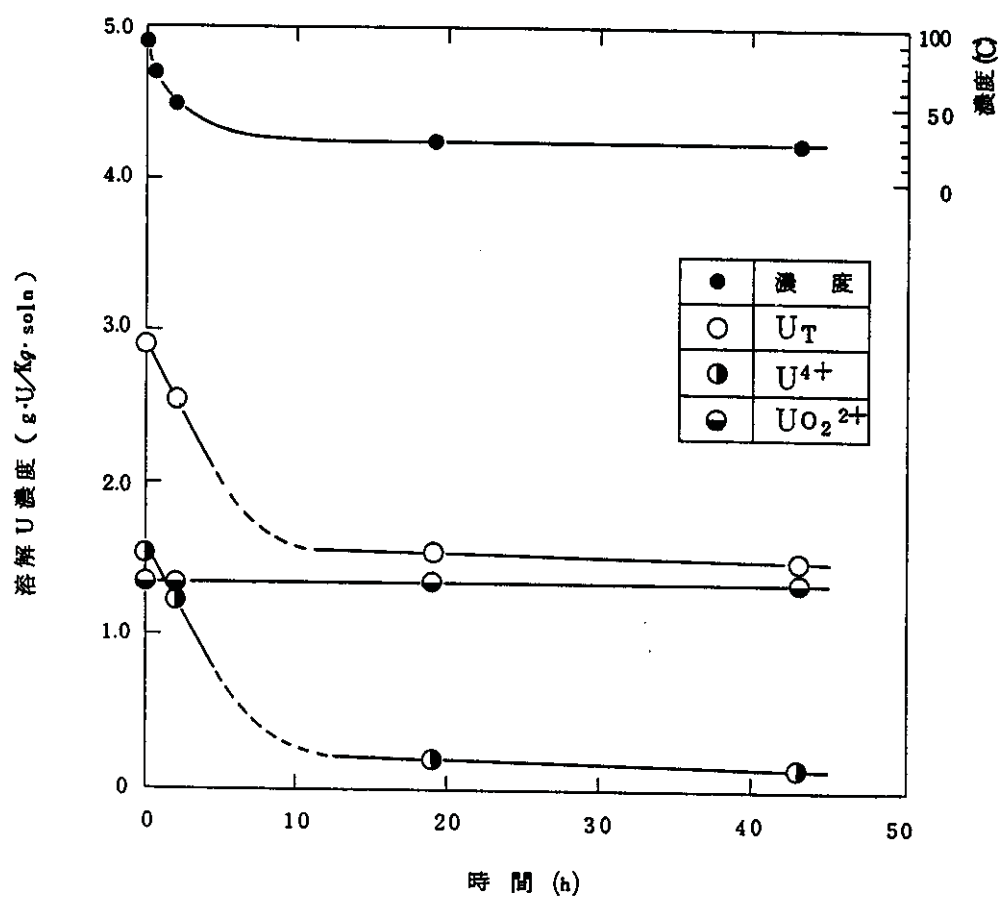


図-4 R-401 オーバーフロー液の冷却・熟成効果

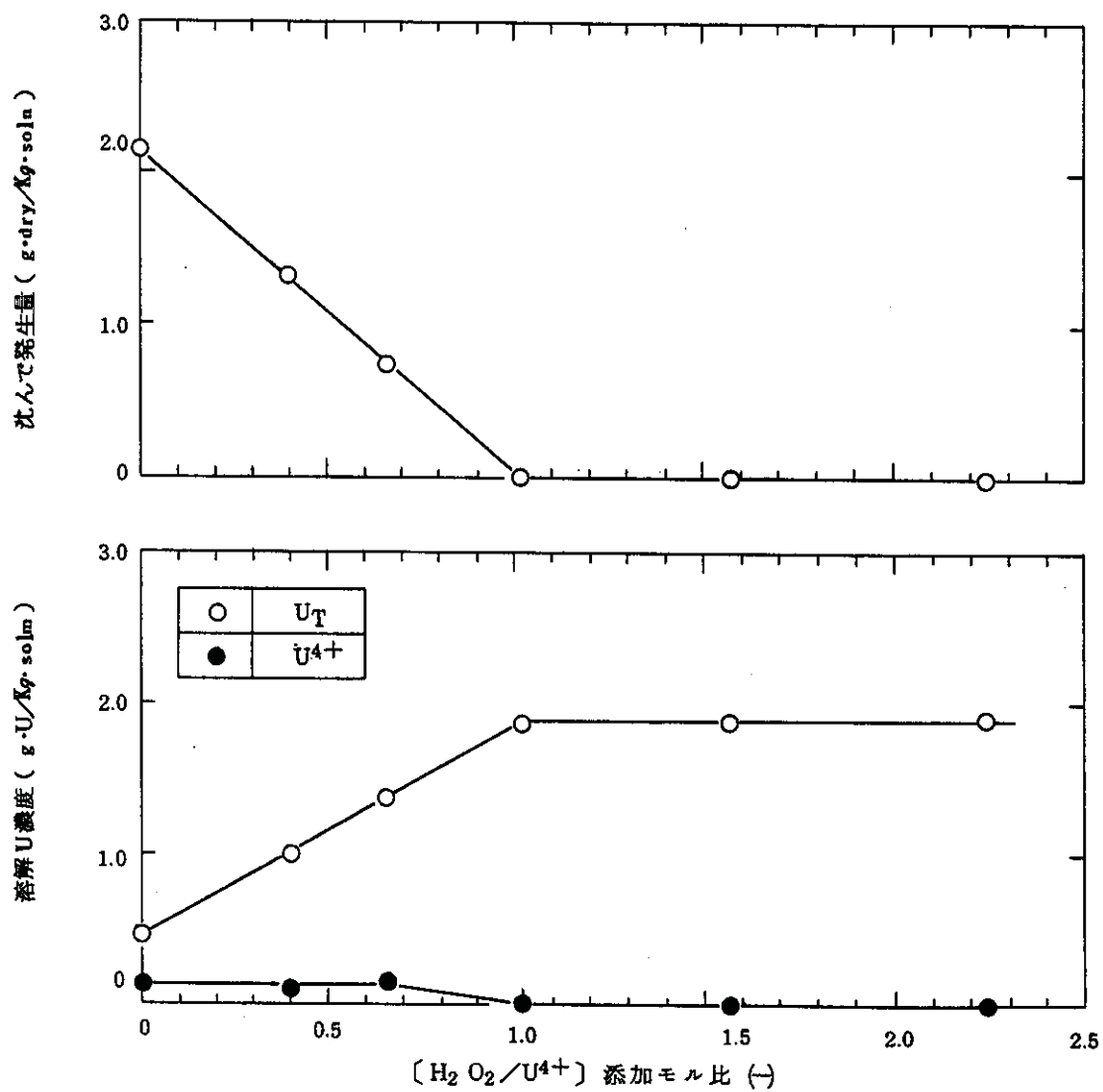


図-5 R-401 オーバーフロー液のH₂O₂による処理試験結果

4-(7) 新HFふっ化塔運転試験(中間報告)

報告者 製錬課

ウラン転換試験設備(CTF-II)に設置された新HFフッ化塔の運転試験結果について報告する。

図-1にフローシートを示す。 UO_2 粉体を流動層中でHFガスと接解させ UF_4 を得る点では既設のふっ化塔と同じである。新HFふっ化塔の特長は①装置が大きい事、②原料の供給が流動層下部へも可能な事、③製品は流動層上部よりオーバーフローし連続で得られる事である。

(表-1参照)

回分式における UF_4 反応率の変化の様子を図-2に示す。既設のふっ化塔と同程度の反応率を示している。反応性の悪い UO_2 に対しては(○印)既設のふっ化塔同様80%程度で飽和している。連続運転中の製品 UF_4 反応率は安定している(図-3参照)。下供給の方が少し反応率が悪いが、これは原料 UO_2 の反応性の差も考えられるので、この試験だけでは結論は出せない。

表-2に UF_4 の粉体物性を示す。大型HF塔の製品(O, F, UF_4)と小型HF塔の UF_4 を比較すると、粒径が小さく、タッブ密度が大きく(圧縮されやすく)、安息角・スパチュラ角が大きい。これらは粉体の流動性という点からは、悪くなる方向であり、好ましくない。しかし後工程で、粉体の供給が困難になる等の問題が生じる事はなかった。

図-4に連続開始後の製品 UF_4 の粒度分布変化の様子を示す。時間と共に粒径が大きくなり、ベットの粒度分布に近づいている事がわかる。しかし、完全に同一になる事はなく一定の範囲で安定してしまう。図-5は粒度分布積分の10・50・90%の粒径の時間変化をプロットしたものである。製品・ベット共ほぼ安定しており、時間的に変化してゆく傾向はない。

次に新HFふっ化塔での問題点を2つ説明する。

1つはHFコンデンサのHF回収率が悪いという事である。未反応HFガスはコンデンサで、冷却されて、水と共にフッ酸水として回収され、未回収のHFガスは次のHF吸収槽で水と接触吸収される。HF吸収槽でのHF量は気液平衡上はコンデンサ出口でのガス温度及びHF水の濃度で決まる。しかし分析して得られた量は気液平衡で得られた値よりも非常に大きい。ミストの存在か、気液平衡に達していないのか原因は不明であるが、将来の大型化に際して重要な問題である。(図-6参照)

第2に分散板差圧の増大という問題がある。分散板差圧が徐々に増加しており、所定量の反

応ガスが流せない。ケーキング等は見られず、分散板の目詰り又は腐食が原因ではないかと思われる。既設の装置では見られない現象であり、既設の装置はガスが200℃に予熱されている点異なる。交換用の分散板ができ次第確認試験が必要である。(図-7参照)

表-3に現在までに確認された能力と設計値との比較を示す。UF₄反応率・HF利用率は設計値近く達成されたが、HF流量、供給速度、滞留時間は、分散板差圧の問題から50%しか達成されていない。

今後の課題を表-4に示した。分散板差圧の問題の解消、将来の2段塔を模した試験、HF回収率の向上、HF利用率の向上の試験が必要である。

質疑応答

問 オーバーフローの場合原料が流動層をショートパスして製品側に出る事はないか。

答 現在の操作条件ではショートパスは見られない。

連続運転を開始しても製品のUF₄反応率に大きな変化は見られなかった。

問 製品UF₄の粒度分布が細かいという事は、流動層で分級されているという事か。

答 そうであると思われる。

①製品・ベツと共に粒度分布が安定している事から、流動中に粉体が破砕している可能性が大きい。

②UF₄反応率は製品・ベツでほぼ一致している事から、細い原料も充分な滞留時間が得られていると思われる。

今後原料供給速度が上がれば、製品の粒度分布はベツのそれに近づくと思われる。

問 HFコンデンサは気液平衡ではなく、ガス吸収塔として扱うべきではないか。

答 気液平衡計算ではあまりに現実と異なるので、今後検討したい。

問 分散板差圧の問題は解決可能か。

答 可能と思う。

①目詰りのしにくい多孔板を製作中

②既設HFふっ化塔では問題が起きていない。新HFふっ化塔では分散板の温度が~40℃と低く、生成した水蒸気が、分散板に悪影響を及ぼしているものと思われる。ガスの予熱でも解決可能と思う。

問 二段塔模き試験の予定は。

答 排ガス処理系の能力を充実させてから、実施したいと思っている。

現在の装置は新旧装置の処理能力が大きく異なる為、多量の未反応 HF を排ガスとして処理しなければならない。

HF コンデンサの能力を上げる、廃液処理の頻度を増やす等の対応が必要であるが、早急に実施したいと思っている。

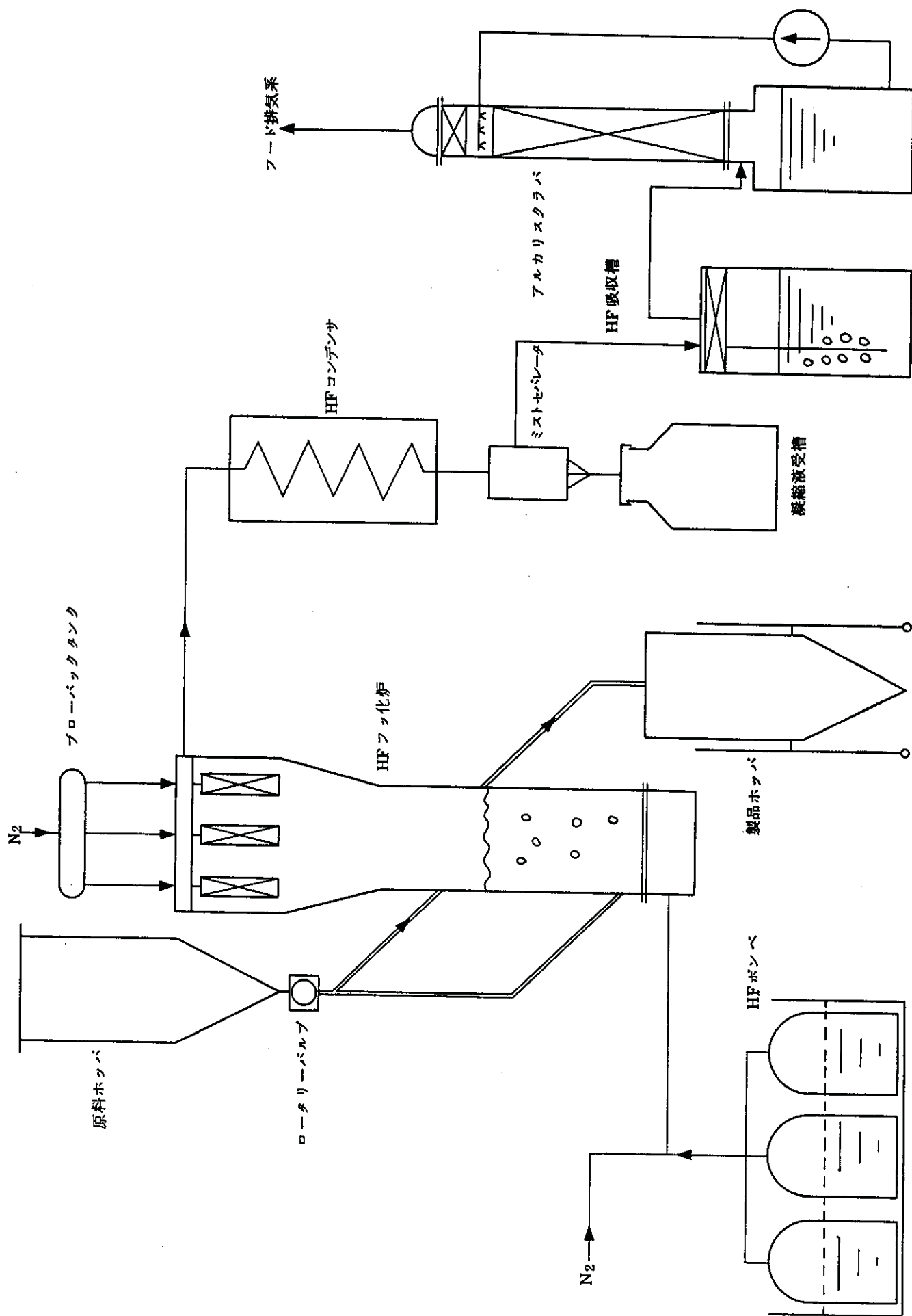


図-1 新HFふっ化塔フローシート

表 - 1 大型 H F フッ化塔の特長

装置が大きい。(処理能力約 10 倍)

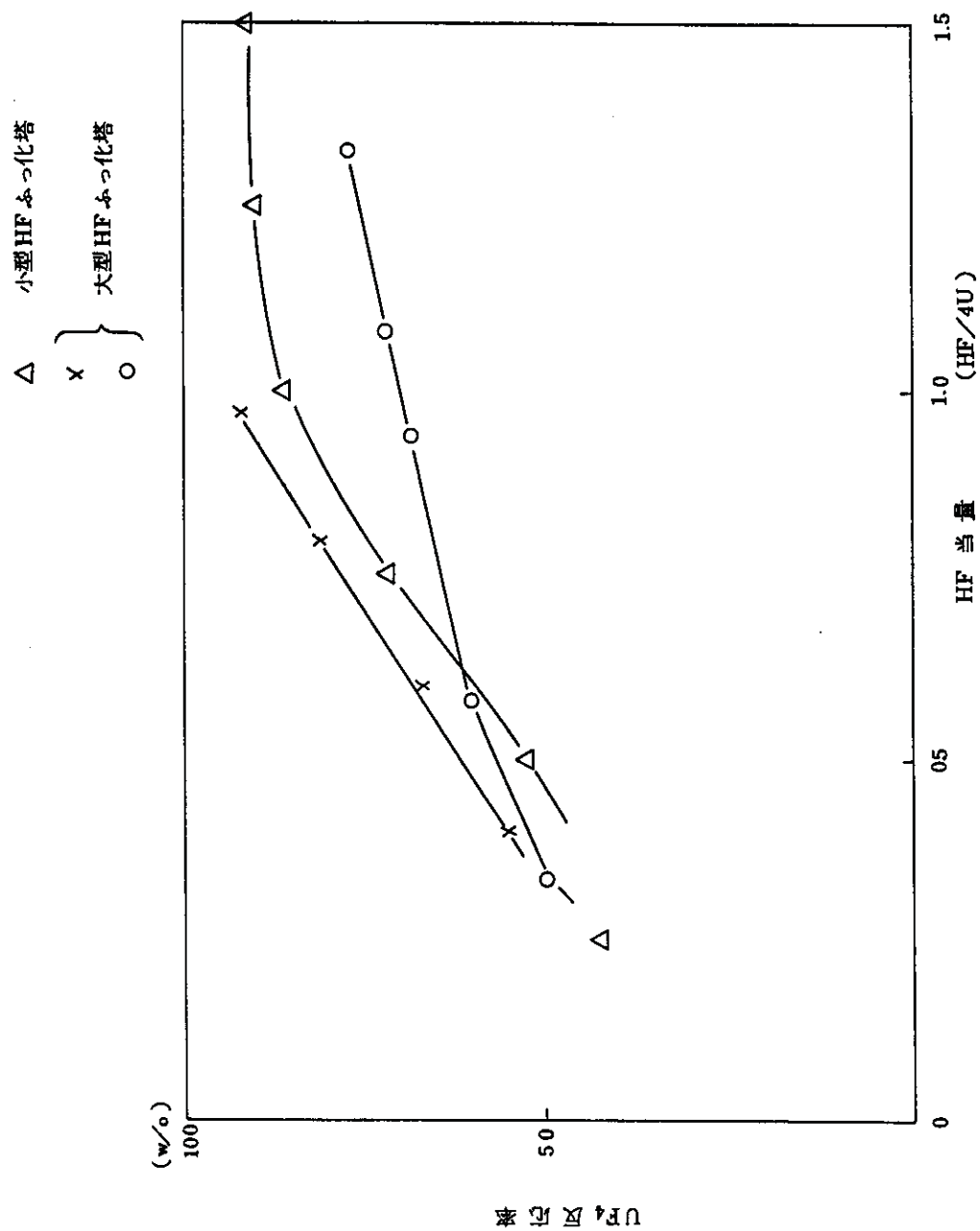
原料を流動層下部に供給可能

製品はオーバーフロー (UF₄ が少し細かい)

連続運転が容易 (抜出し装置がない)

表 - 2 UF₄ 粉体物性の比較

	小型 H F 塔 UF ₄	大型 H F 塔 炉下 UF ₄	大型 H F 塔 O, F, UF ₄
平均粒径 (μm)	107.	155.8	92.3
笠 密 度 (g/cm^3)	2.94	3.11	3.05
タ ッ プ 密 度 (g/cm^3)	3.58	3.47	3.80
安 息 角	33	35.	38.
スパチュラ角	42	43.	57.5
比 表 面 積 (m^2/g)	0.68	1.30	—



図—2 回分式における UF_4 反応率

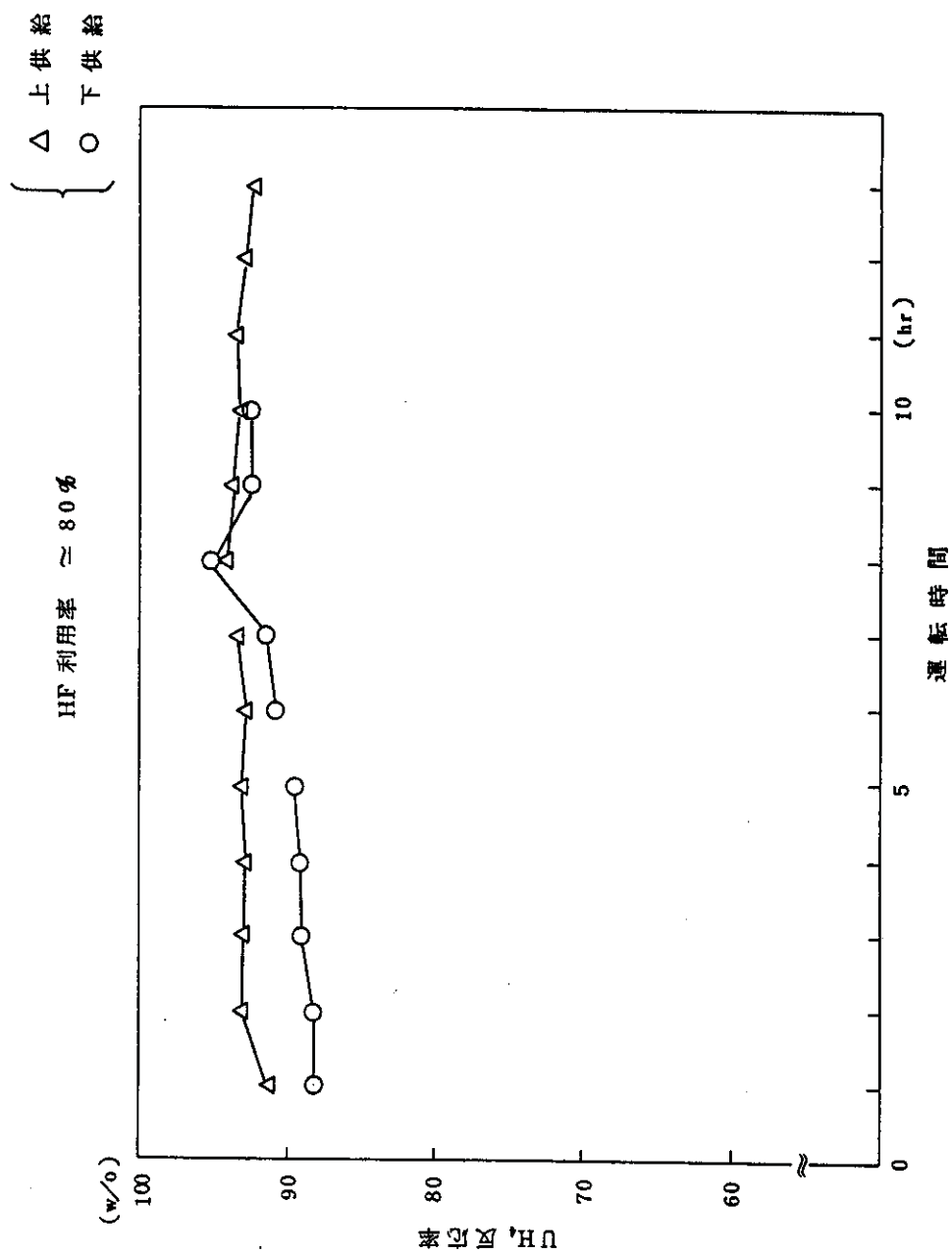


図-3 連続運転中の UF_4 反応率

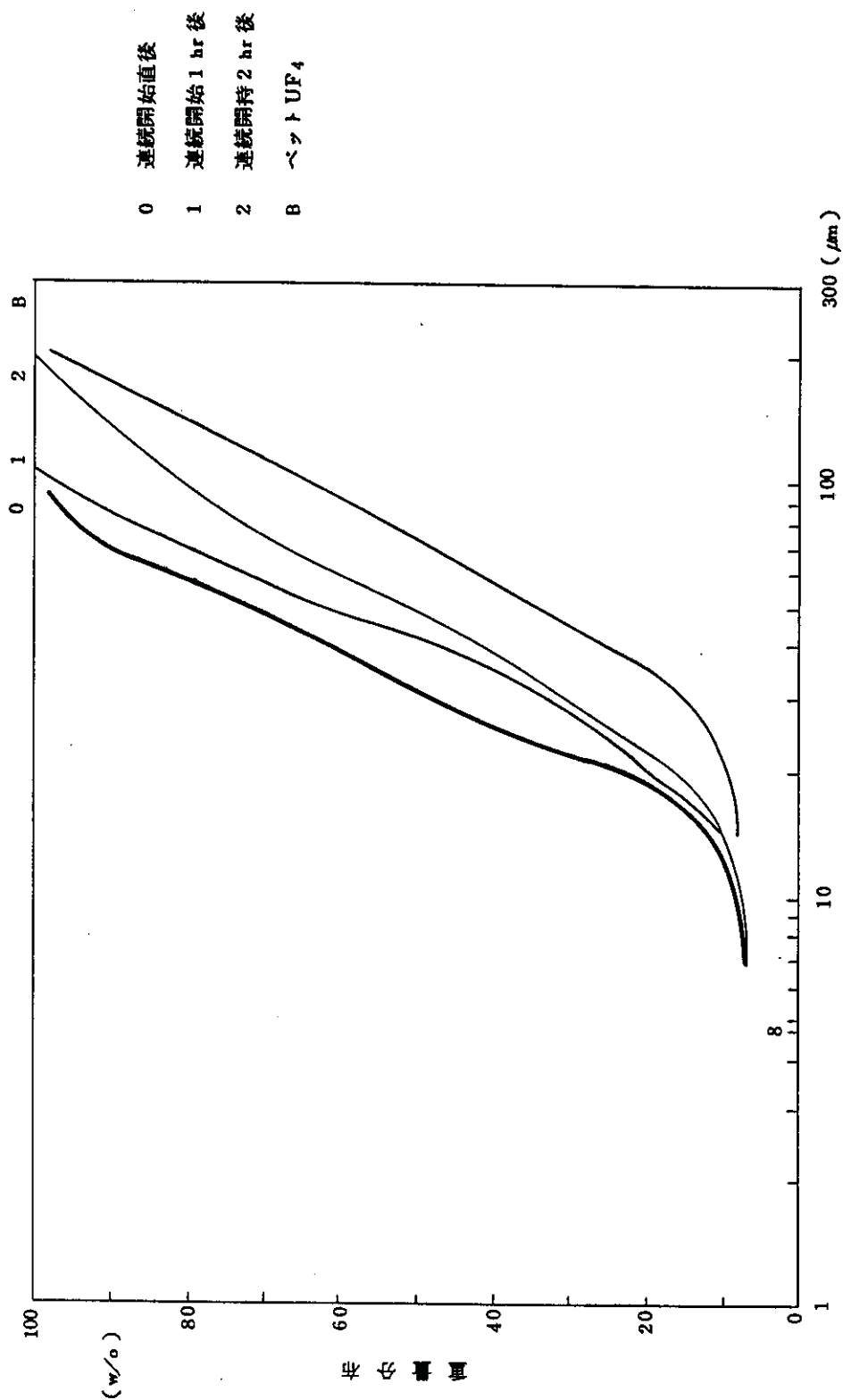


図-4 UF₄ 粒径の経時変化（連続中）

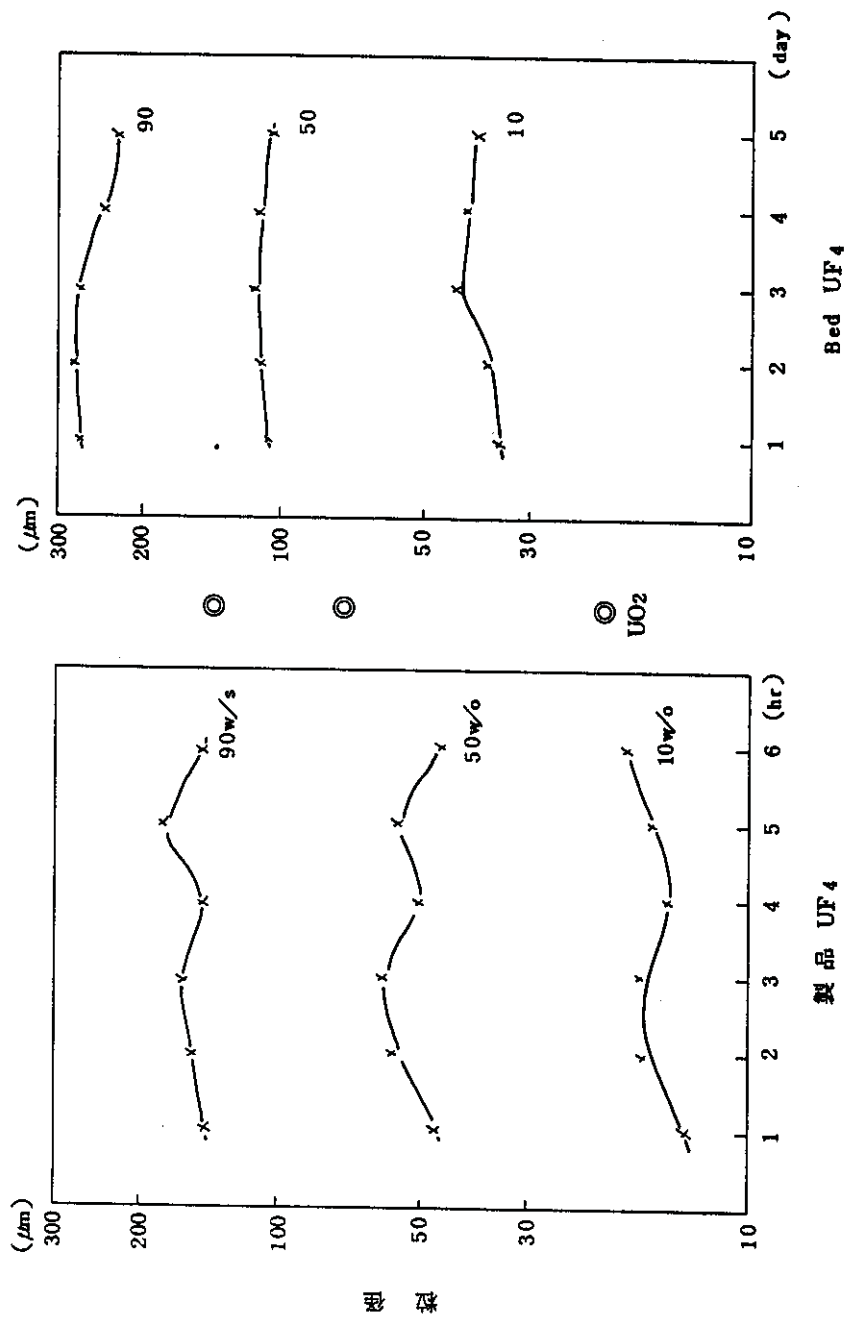


図-5 UF_4 粒径の経時変化

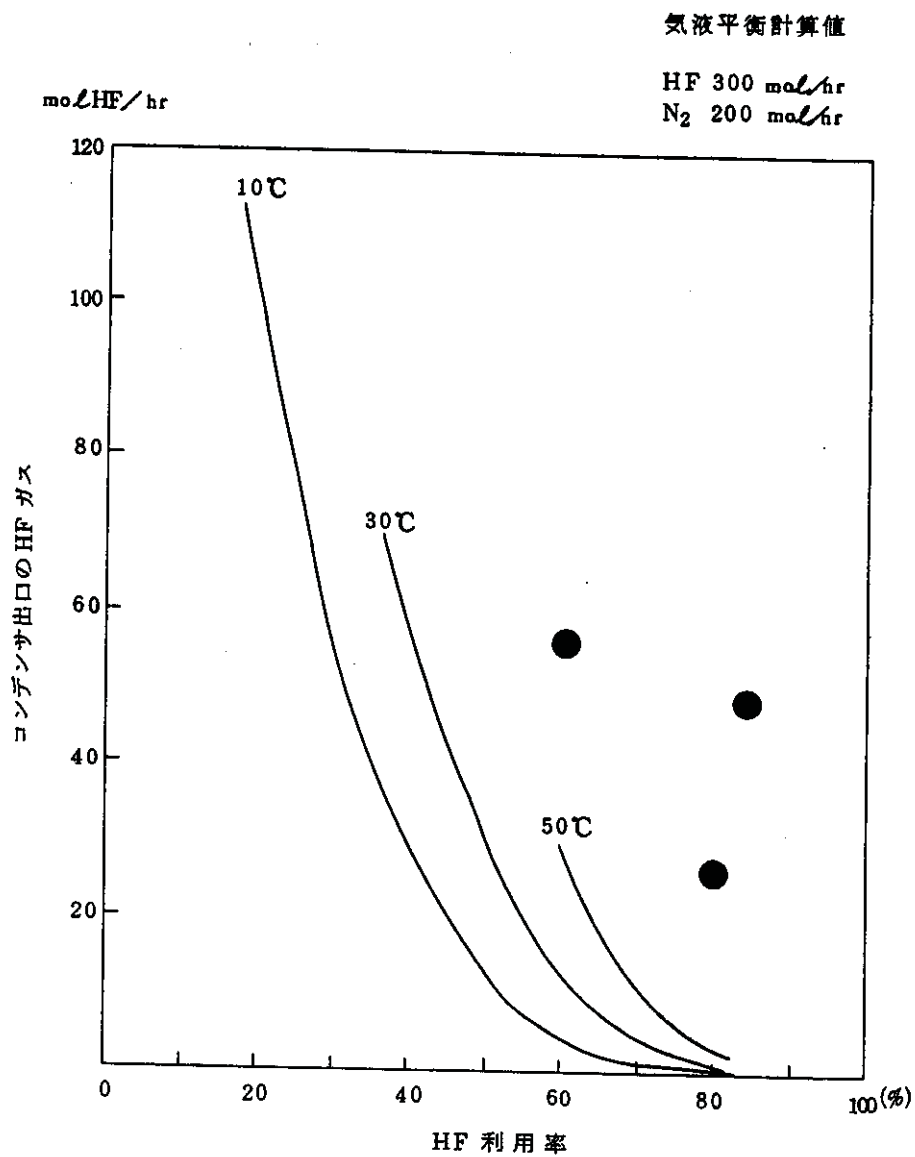


図-6 コンデンサ出口でのHFガス量

4-(8) 「F₂ ふっ化塔における反応性及びコールドトラップ捕集率について」

報告者 製錬課

1. 緒 言

F₂ ふっ化塔における反応性及びコールドトラップ捕集率について、現在、製錬課CTF-IIにおいて運転を行っているF₂ふっ化工程の運転データと理論式から求められる計算データの比較を行い、運転条件の把握及び計算結果の妥当性についての検討を行った。

2. F₂ ふっ化工程運転データと計算値の比較

2-1 F₂ ふっ化塔における反応性

1) 熱天秤試験結果の解析

F₂ ふっ化工程の原料である UF₄ の反応性を調べるため、熱天秤を用いて反応試験を行った。

UF₄ 反応率 86% (UF₄ : UO₂ = 86 : 14) の粉体の熱天秤結果を図1に示す。これより、W/W₀ = 0.86を境いとして反応状態が2つに大別できるが、UF₄ 反応率の異なる粉体についての熱天秤結果も考え合わせると、反応の急激な部分(図1では、0~4分まで)がUF₄ + F₂ → F₆、反応の緩やかな部分(4~40分)がUO₂ + 3F₂ → UF₆ の反応が主に行われていると考えられる。

そこで、UF₄ 及びUO₂ のF₂ ふっ化反応を未反応核モデルに適用すると、UF₄ では図2、UO₂ では図3の様に整理される。

ここで、

$$f_G(X_B) = 1 - (1 - X_B)^{2/3} = t/t^* \quad \text{—————} \quad \text{①}$$

(ガス境膜拡散律速)

$$f_R(X_B) = 1 - (1 - X_B)^{1/3} = t/t^* \quad \text{—————} \quad \text{②}$$

(表面反応律速)

X_B : 反応率

t : 反応時間

t* : 反応完了時間

図2及び図3から、表1が示される。

表-1 反応律速段階

ウラン化合物	反応律速段階
UF ₄	ガス境膜拡散律速
UO ₂	表面反応律速

さて、上記の各律速段階では、 t^* は以下の様に表示される。

$$t^*_{UF_4} = \frac{\rho_{UF_4} \cdot R_{UF_4}}{2 \cdot C_{F_2}} \cdot \frac{1}{K_{Co}} \quad \text{③}$$

$$t^*_{UO_2} = \frac{3 \cdot \rho_{UO_2} \cdot R_{UO_2}}{C_{F_2}} \cdot \frac{1}{K_s} \quad \text{④}$$

ρ : 粒子密度

R : 粒子粒径 (初期値)

C_{F_2} : F₂ 濃度

K_{Co} : ガス境膜物質移動係数

K_s : 反応速度定数

③及び④式に対して、実験結果を代入すると、 t^* , C_{F_2} , W に関して以下の式が得られる。(粒径 $100 \mu m$)

$$t^*_{UF_4} = 1.12 \times 10^{-2} \cdot \frac{1}{C_{F_2}} \cdot \frac{1}{\sqrt{a}} \quad \text{⑤}$$

$$t^*_{UO_2} = 4.30 \times 10^{-1} \cdot \frac{1}{C_{F_2}} \cdot \frac{1}{\sqrt{a}} \quad \text{⑥}$$

a : UF₄ 反応率

⑤及び⑥式を図示するとUF₄について図4, UO₂について図5となる。

これより、 t^* はF₂濃度が高い程短くなることがわかる。

2) F₂ふっ化塔におけるモデル化

F₂ふっ化塔におけるモデル化を以下の仮定に従い行った。

i) 塔内における粒子は完全混合

- ii) F_2 ガスは押し出し流れ
- iii) 中間ふっ化物の生成はない
- iv) 反応温度 420°C

この場合、基礎式は以下の様になる。

a) 平均未反応率, $1 - \bar{X}_B$

$$1 - \bar{X}_B = \int_0^{t^*} [1 - X_B(t)] \cdot E(t) \cdot dt \quad \text{_____} \quad ⑦$$

b) 滞留時間分布関数 $E(t)$

$$E(t) = \frac{e^{-t/\bar{t}}}{\bar{t}} \quad \text{_____} \quad ⑧$$

c) 未反応率

$\langle UF_4 \rangle$

$$1 - X_B(t) = \left(1 - \frac{t}{\bar{t}}\right)^{3/2} \quad \text{_____} \quad ⑨$$

$\langle UO_2 \rangle$

$$1 - X_B(t) = \left(1 - \frac{t}{\bar{t}}\right)^3 \quad \text{_____} \quad ⑩$$

X_B : 平均反応率

$\bar{t}$: 平均滞留時間

t^* : ⑤式及び⑥式にて示される。

⑦～⑩式について解いたものを図示すると、図6の様になる。

図6について、 F_2 ふっ化塔に適用した場合、図7に示す実線にて F_2 利用率が与えられる。また図7におけるプロットは F_2 ふっ化工程での実測値である。

図7より、 F_2 ふっ化塔における反応を熱天秤試験の結果を考慮してモデル化を行った場合、実測値を比較的良く説明することができると考えられる。

2-2 コールドトラップ捕集率

1) コールドトラップにおけるUF₆拔出量(実測値)と捕集量(TCC測定値)の比較。

表2に、コールドトラップUF₆拔出量とTCC測定による捕集量について示す。また、UF₆拔出ライン及びTCC測定ポイントを図8に示す。

表2において、ロットNo.1及びNo.2では、拔出量がTCC捕集量よりも若干少ないが、これはUF₆拔出時に主に、

- i) CT真空引きによるUF₆のロス
- ii) サンプル採取によるUF₆のロス
- iii) シリンダ充テン後、配管洗浄によるUF₆のロス

が発生するためと考えられる。

従って、コールドトラップによるUF₆の捕集率については、TCCによる測定値から説明することが可能と思われる。

2) コールドトラップ理論捕集率と実測捕集率の比較。

図9及び図10にコールドトラップにおける理論捕集率を実線で示す。また、実測捕集率をプロットで示す。

図9及び図10よりNo.1及びNo.2コールドトラップにおける捕集温度は、表3に示す値であることがわかった。

3 コールドトラップ捕集温度

コールドトラップ	捕集温度〔℃〕	冷媒温度〔℃〕
No.1	-12~-13	-25±2
No.2	-40±5	-50±2

また、F₂ふっ化工程運転上、コールドトラップの捕集率は、ほぼ設計値(捕集率=99.4%)を満足していることがわかった。

質疑応答

質 原料 UF_4 の粒径が変化した場合、 F_2 ふっ化塔のシュミレーションにどのような影響が出るか。

答 UF_4 の粒径に対応した値を計算に用いる必要がある。

質 熱天秤試験の結果を未反応核モデルに適用する場合の方法は。

答 反応時間 t に対する反応率 XB をチャートから求め、それを①式及び②式に代入する。

質 F_2 ふっ化塔内部における粉体の挙動として、焼結金属フィルタを通過する粉体が存在する可能性はあるか。

答 反応により粒径が減少し、終末速度を越えるため、焼結金属フィルタを通過する粉が存在すると思われる。

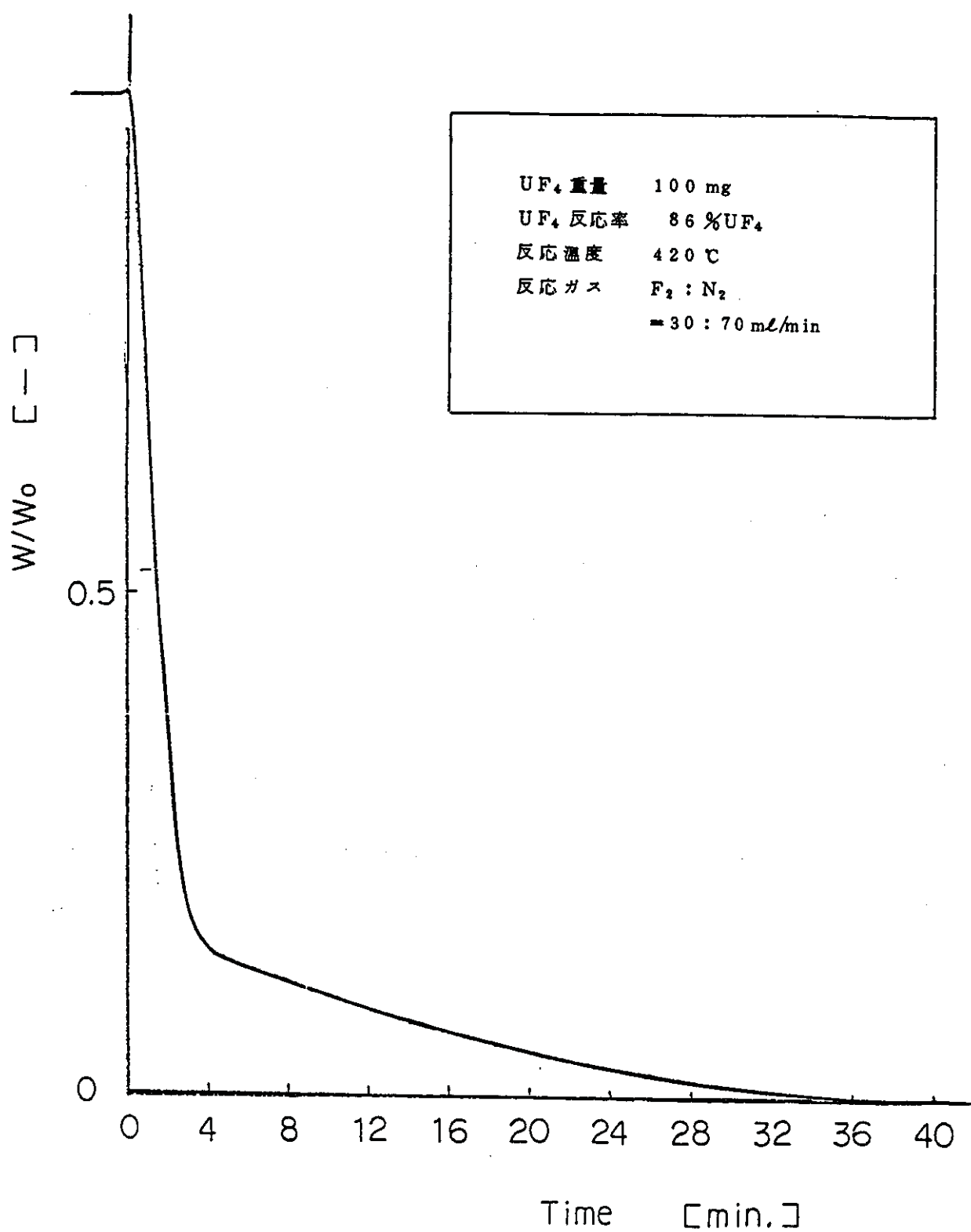


図-1 熱天秤試験による反応率変化

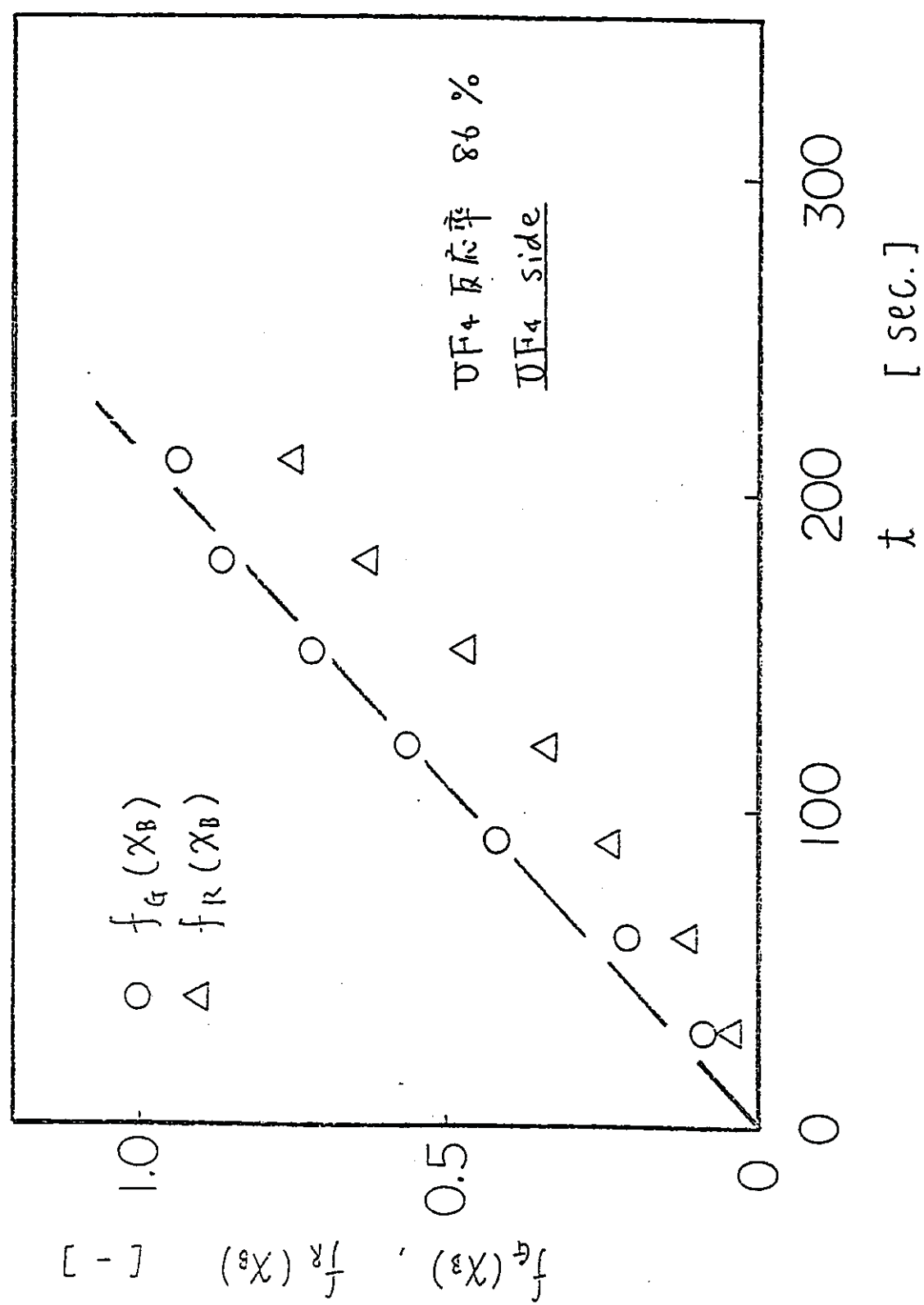


図-2 UF₄ 未反応核モデル

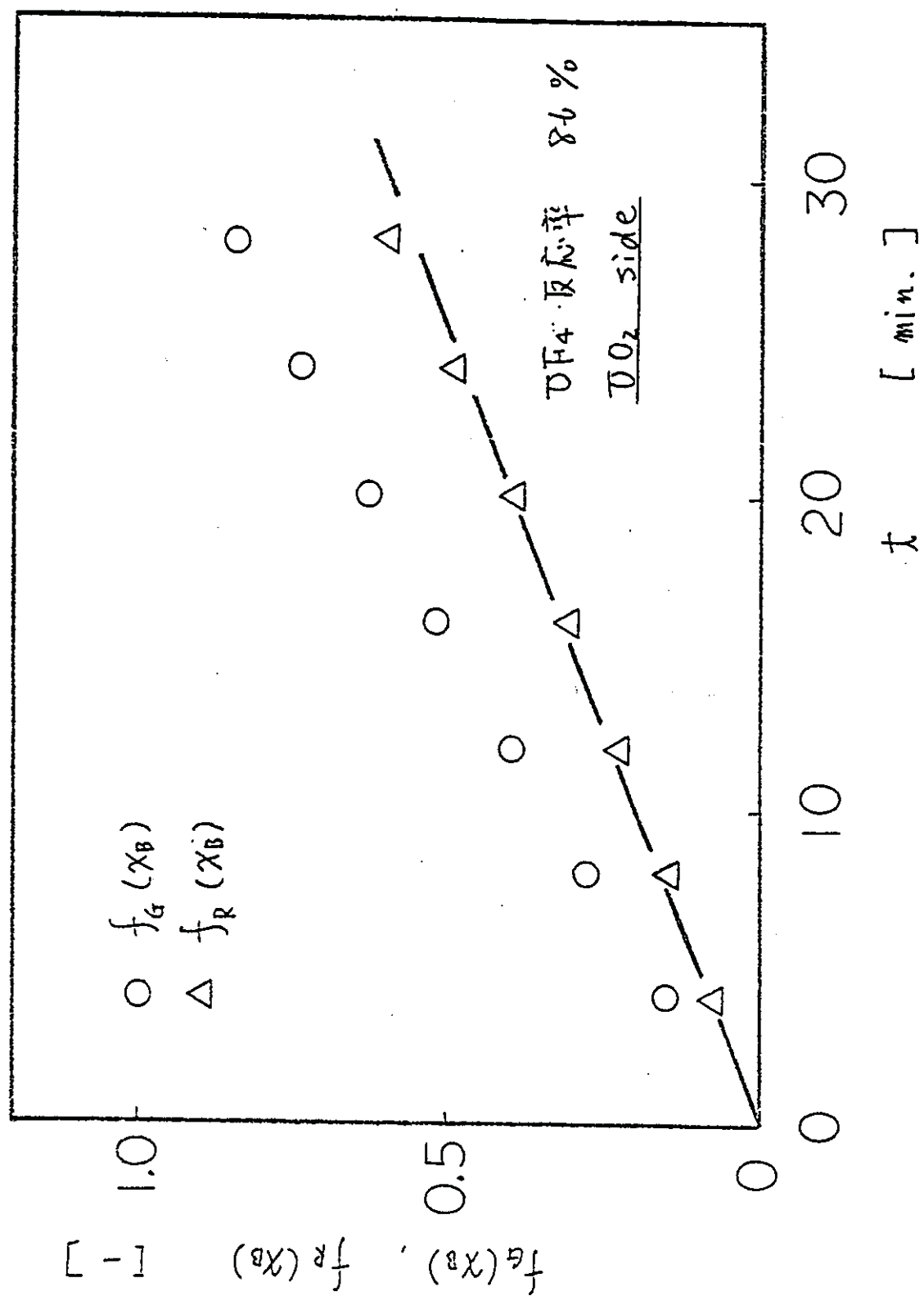


図-3 UO₂未反応核モデル

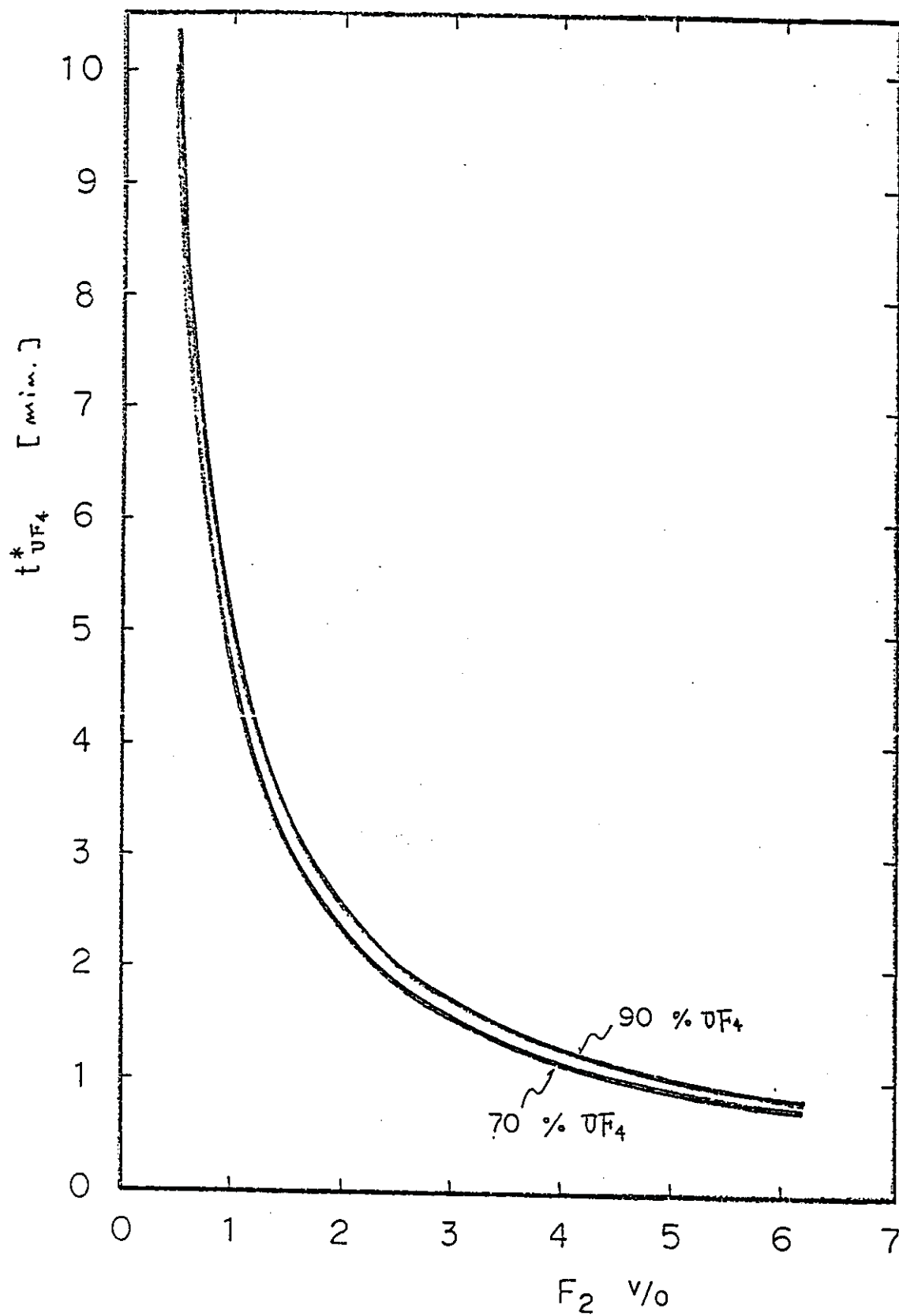


図-4 UF_4 反応完了時間

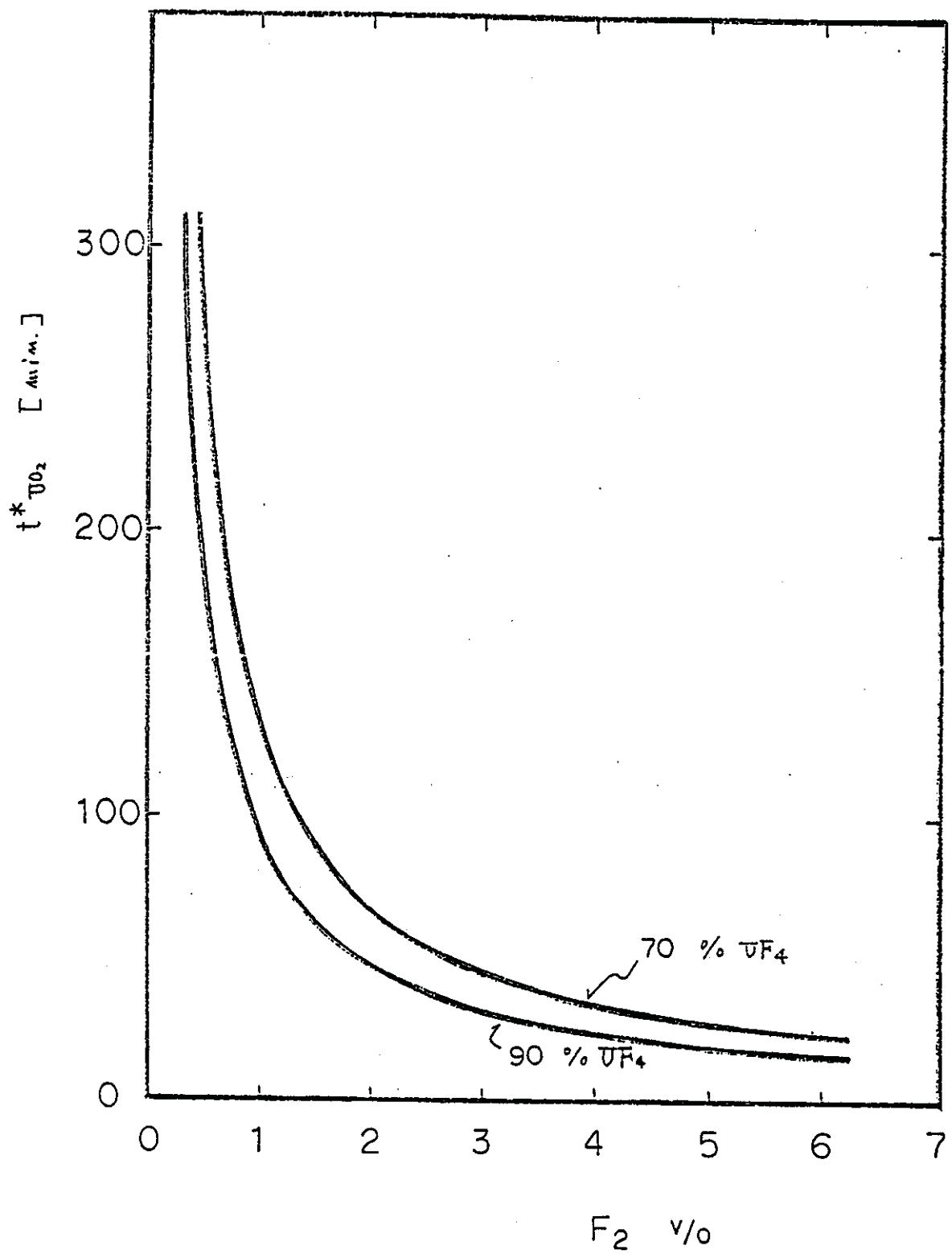


図-5 UO_2 反応完了時間

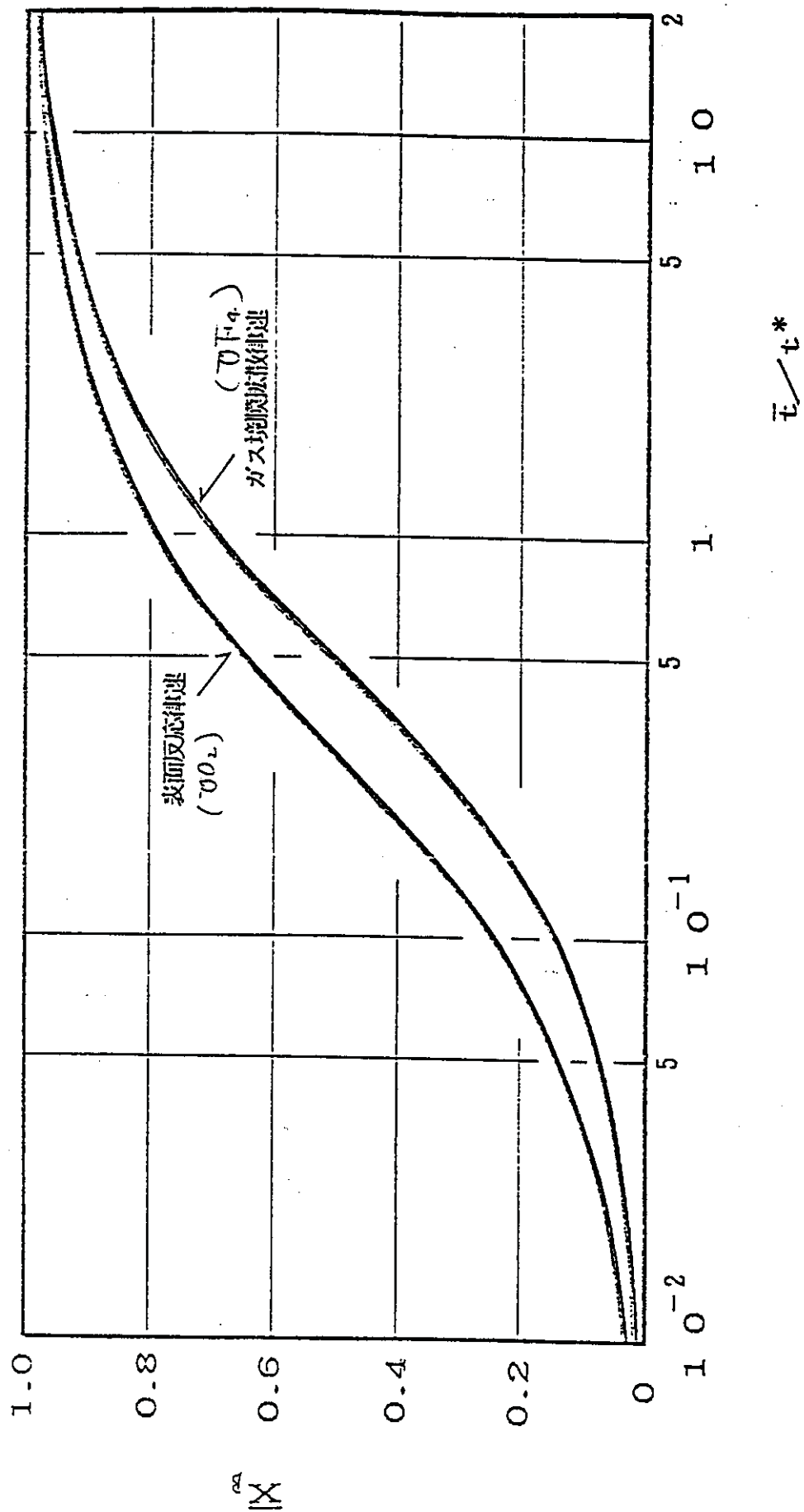


図-6 完全混合モデルにおける反応率

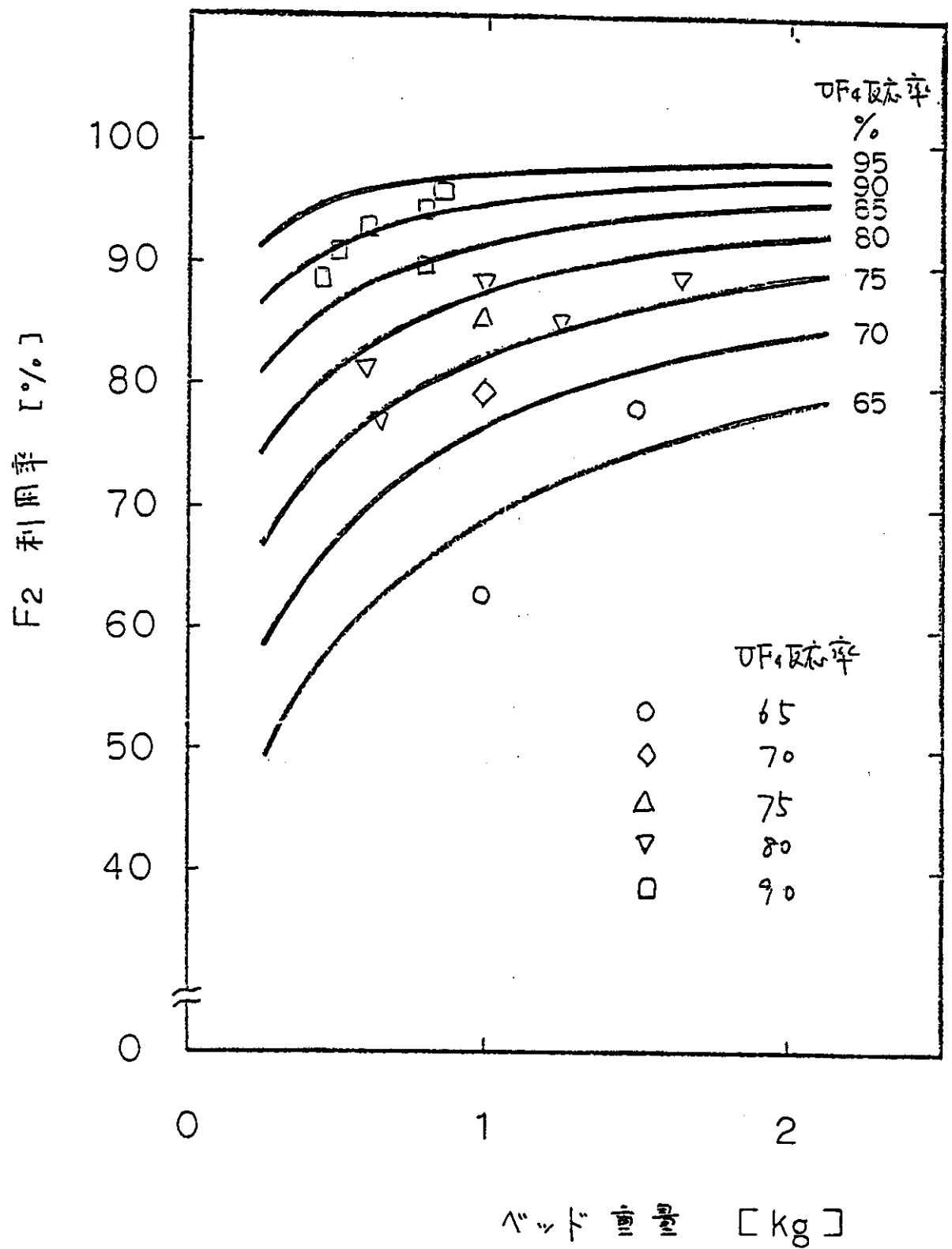


図-7 ベッド重量と F_2 利用率

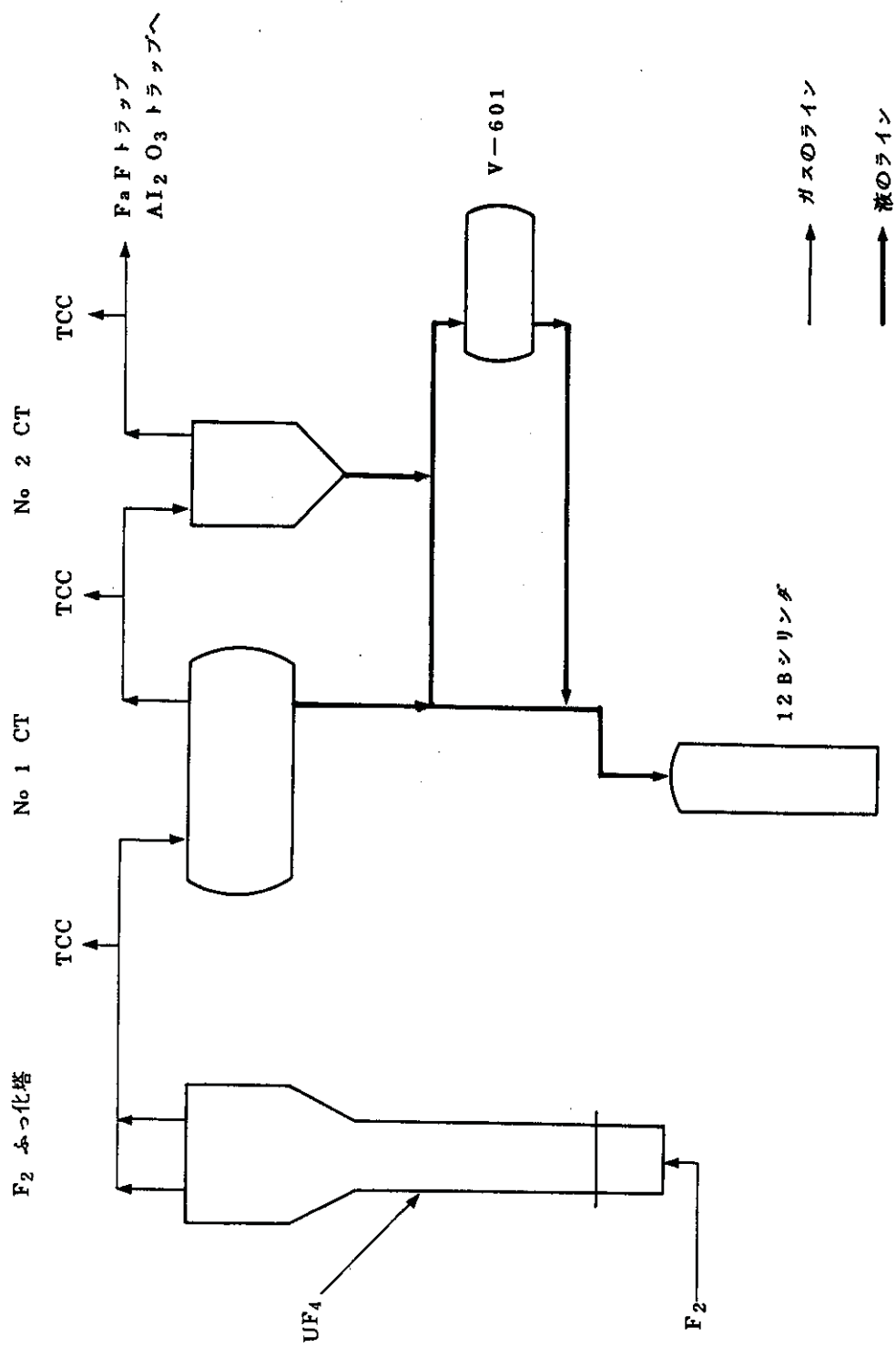


図-8 UF_6 抽出ライン及びTCC測定ポイント

表-2 UF。拔出量及び捕集量 (T C C 測定値)

ロット No	パッチ 重量 (UF ₁)	No 1 C T		No 2 C T		V-601 拔出量	Total		Error %	捕集率 % 〔拔出量〕 (T C C)					
		拔出量	T C C 捕集量	拔出量	T C C 捕集量		拔出量	T C C 捕集量							
1	5284	538	549	104	11.64	6.0	28180	28356	0.62	〔989〕 (995)					
	3934	382	41.0												
	4543	450	45.9												
	5774	588	59.2	9.0	8.82										
	5884	606	62.1												
2	4953	484	52.3	120	11.73	3.2	15760	15973	1.35	〔980〕 (993)					
	3833	398	39.1												
	5564	54.2	56.6												
3	7161	6847	75.9	108	12.67	16.6	23566	23527	0.16	〔998〕 (996)					
	8331	81.0	87.7												
	5583	58.79	59.0												

UF。重量基準

$$\text{Error} = \frac{\text{拔出量} - \text{TCC 捕集量}}{\text{拔出量}} \times 100$$

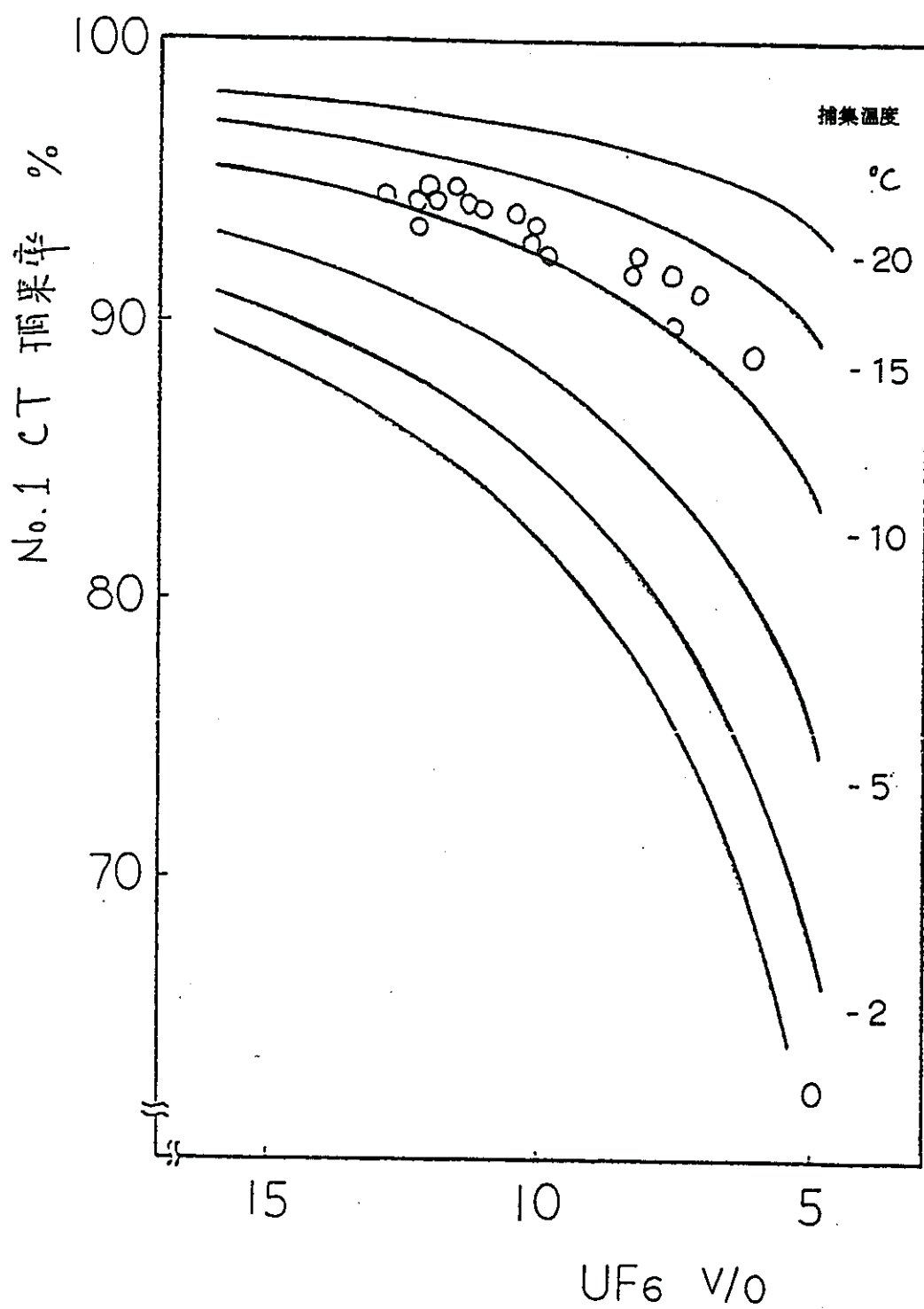
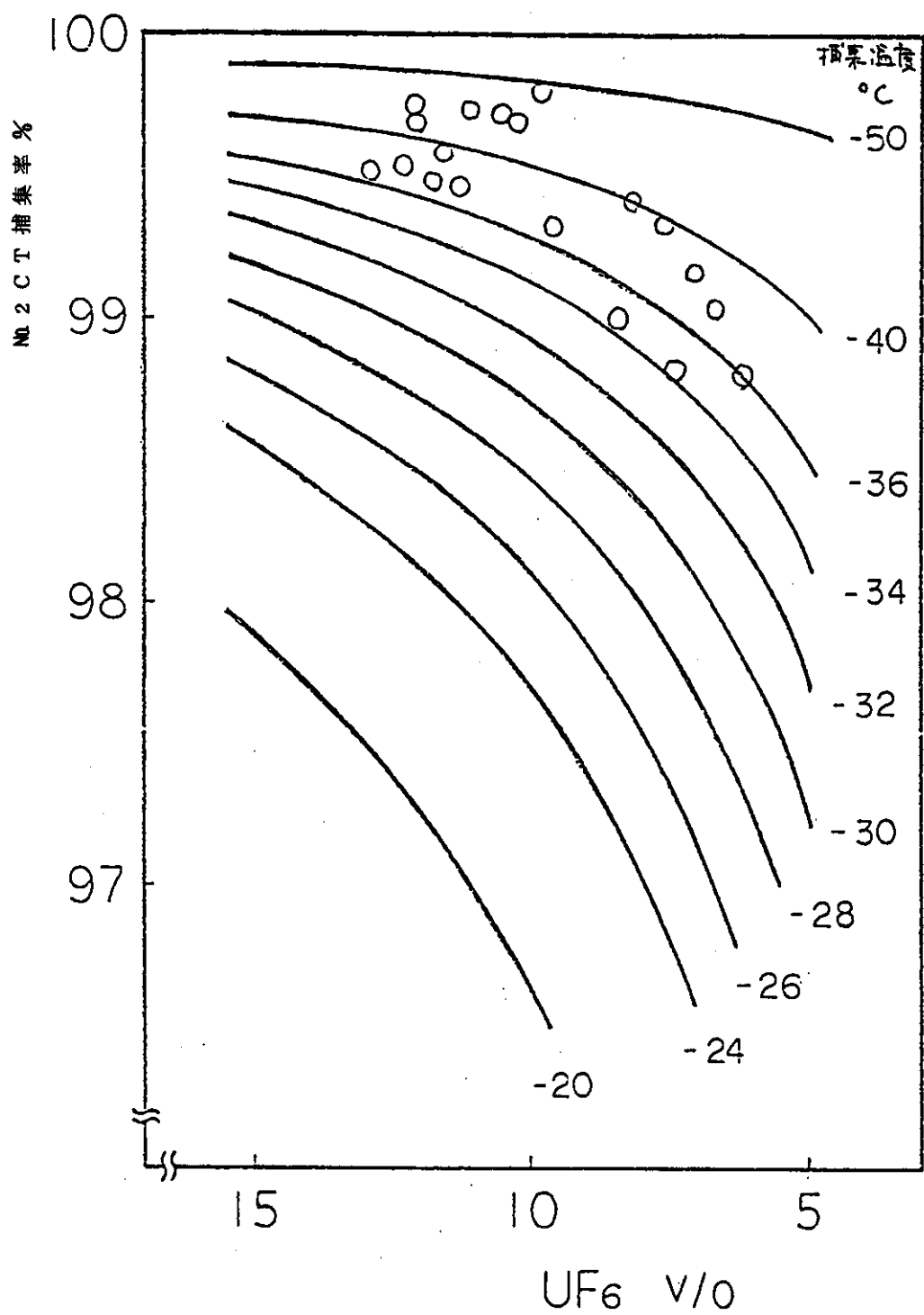


图-9 No. 1 CT捕集率



图—10 No. 2 C T 捕集率