

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 2001. 6. 20

[技術情報室]

FBR 燃料再処理試験設備 (CPF/A系列)のウラン試験

1983年5月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

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。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

布す
この

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001



FBR燃料再処理試験設備(CPF/A系列)のウラン試験

小林 重夫**	樫原英千世*	篠原 輝寿***
根本 慎一*	上田 和隆*	橋本 力雄*
田中 幸一*	算用子裕孝*	

期 間 1982年1月～1982年3月

目 的 CPF再処理試験設備(A系列)の機器特性、遠隔操作性などをウラン試験により確認するとともに、ホット試験に向けての必要な改良箇所の摘出を行う。

要 旨 東海事業所高レベル放射性物質試験施設(CPF)の再処理試験設備(A系列)において、ホット試験に先立ち、未照射天然ウランを用いてのウラン試験が上記期間中に実施された。

A系列には、高速炉燃料再処理技術の基礎的試験を行うべく、小型の溶解槽やミキサセトラなどの試験機器が4つのセルに設置されており、これらは全てマスタスレーブマニプレータなどにより遠隔で操作されるよう考慮されている。

高速実験炉「常陽」の照射済燃料を使用するホット試験に先立ち、3次にわたり、天然ウランを用いて、セル内各種機器類の特性や、それらの遠隔操作性を確認するための試験を実施した。

これら一連のウラン試験の結果、機器特性や遠隔操作性に根本的な問題がないことが確認されたが、いくつかの改良することが望ましい点が指摘された。これらの対策について検討を進め、適切な処置を施すことにより、ホット試験が支障なく進められることを確認した。

* 技術部 技術課 CPF 高レベル放射性物質試験室

** 現在計算資料室

*** 現在再処理工場

May, 1983



Pre-operational tests of the FBR fuel reprocessing unit in CPF

Shigeo Kobayashi**, Hidechiyo Kashihara*,
Teruju Shinohara**, Shinichi Nemoto*,
Kazutaka Ueda*, Rikio Hashimoto*,
Koichi Tanaka*, Hirotaka Sanyoshi*

Abstract

Pre-operational tests of FBR reprocessing unit in the Chemical Processing Facility (CPF) at PNC Tokai Works were performed with non-irradiated natural uranium fuel pins in early 1982.

The test unit, installed in 4 hot cells and some glove boxes of CPF, consists of chopping process, dissolving, solvent extraction with mixer-settlers, off-gas treatment and conversion of uranium and plutonium nitrate.

These tests have confirmed the availability of each process equipment and remote handling system and also disclosed the modification to start the hot operation with irradiated FBR fuels such as MOx Fuels from the experimental Fast Breeding Reactor JOYO.

* Chemical Processing Research Section.

** Computer and Information Section.

*** Reprocessing Plant.

目 次

1. 緒 言	1
2. ウラン試験の概要	2
3. 工 程 別	11
3.1 燃料ピン剪断工程	11
3.2 溶解工程	18
3.3 調整工程	46
3.4 抽出工程	51
3.5 オフガス処理工程	79
4. 結 論	111
5. 謝 辞	112

1. 緒 言

高速炉使用済燃料の再処理技術を確立するため、動燃事業団は昭和 60 年代運開を目標として高速炉燃料再処理試験施設（120 kg/d）の設計、研究を進めている。

CPF-A 系列は上記試験施設の設計およびその運転に直接反映できるホットデータを得る目的で昭和 53 年に建設開始された。

本施設は昭和 56 年に完成し、設備の各種通水試験、各機器の遠隔操作性の確認試験を経て手直し等がなされ、翌 57 年 1 月には管理区域が設定された。

再処理試験設備は 56 年 12 月に行なった化学試験に引続き、57 年 1 月 7 日には天然ウラン燃料ピンを 15 本搬入しウラン試験を開始した。

本ウラン試験は第一次、第二次、第三次で構成され、全ての試験を約 3 ヶ月で終了した。又この間燃料輸送容器（TN 6-4 型）の取扱い訓練も実施し、本期間内で燃料受入から抽出工程までの全ての操作訓練、並びにホット運転に移行するに当ってプロセス上の諸問題の摘出を行ない無事終了した。

本報告書はこれら期間内に実施した試験をまとめたものである。

2. ウラン試験の概要

昭和56年に完成した高レベル放射性物質研究施設（CPF = Chemical Processing Facility）は、FBR再処理試験を行うA系列と高レベル廃液のガラス固化試験を行うB系列から成っている。この内、A系列について各機器の特性把握並びに運転技術の習熟を目的とし昭和57年1月から3月にかけて3次に分けてウラン試験を実施した。

天然ウラン燃料ピン15本を対象に、燃料輸送容器TN6-4型の取扱いも含め、燃料受入れから抽出工程まで、回収ウラン及びプルトニウムの脱硝工程を除く全ての工程について実施した。

今回実施した第一次、二次、三次ウラン試験のスケジュールを表1に、試験の概略フローを図1に示した。又、ウラン試験においてその操作性や特性を調べたセル内各種機器の配置を図2、3、4および5に示した。

表-1 ウラン試験工程表

項目	年月日	56年		57年															
		12月			1月			2月			3月			4月			5月		
		10	20	31	10	20	31	10	20	28	10	20	31	10	20	30	10	20	31
1. 化学試験		○════════════════○ 剪断～溶解, 抽出全工程																	
被覆管の剪断, 硝酸-TBP使用した。試薬調整																			
2. 第一次ウラン試験					○════════════════○ 剪断～溶解, 抽出全工程														
天然ウラン入ピンの剪断溶解, 抽出を行った。																			
3. 第二次ウラン試験										○════════○ 剪断～溶解, 調整*									
天然ウラン入りピンの剪断溶解, 抽出を行った。																			
4. 第三次ウラン試験												○════════○ 第2抽出サイクル							
抽出(第2サイクル)を2交替で行った。												(ウラン溶液は*第二次ウラン試験で) ものを使用した。							
5. 燃料受入りハーサル TN6-4型キャスク取扱												○════○ TN6-4型キャスク セル外, セル内での取扱訓練							

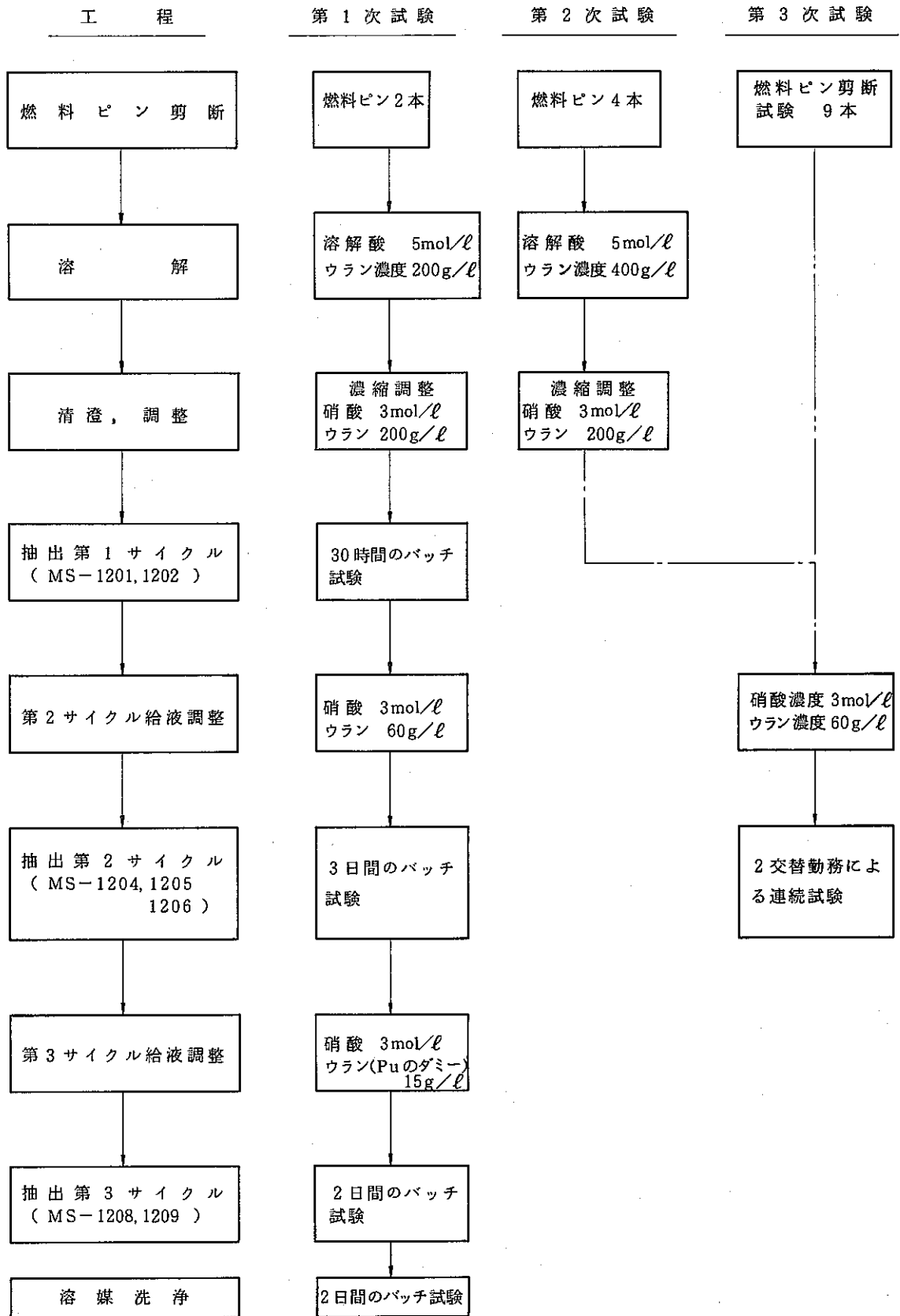


図-1 ウラン試験の概略フロー

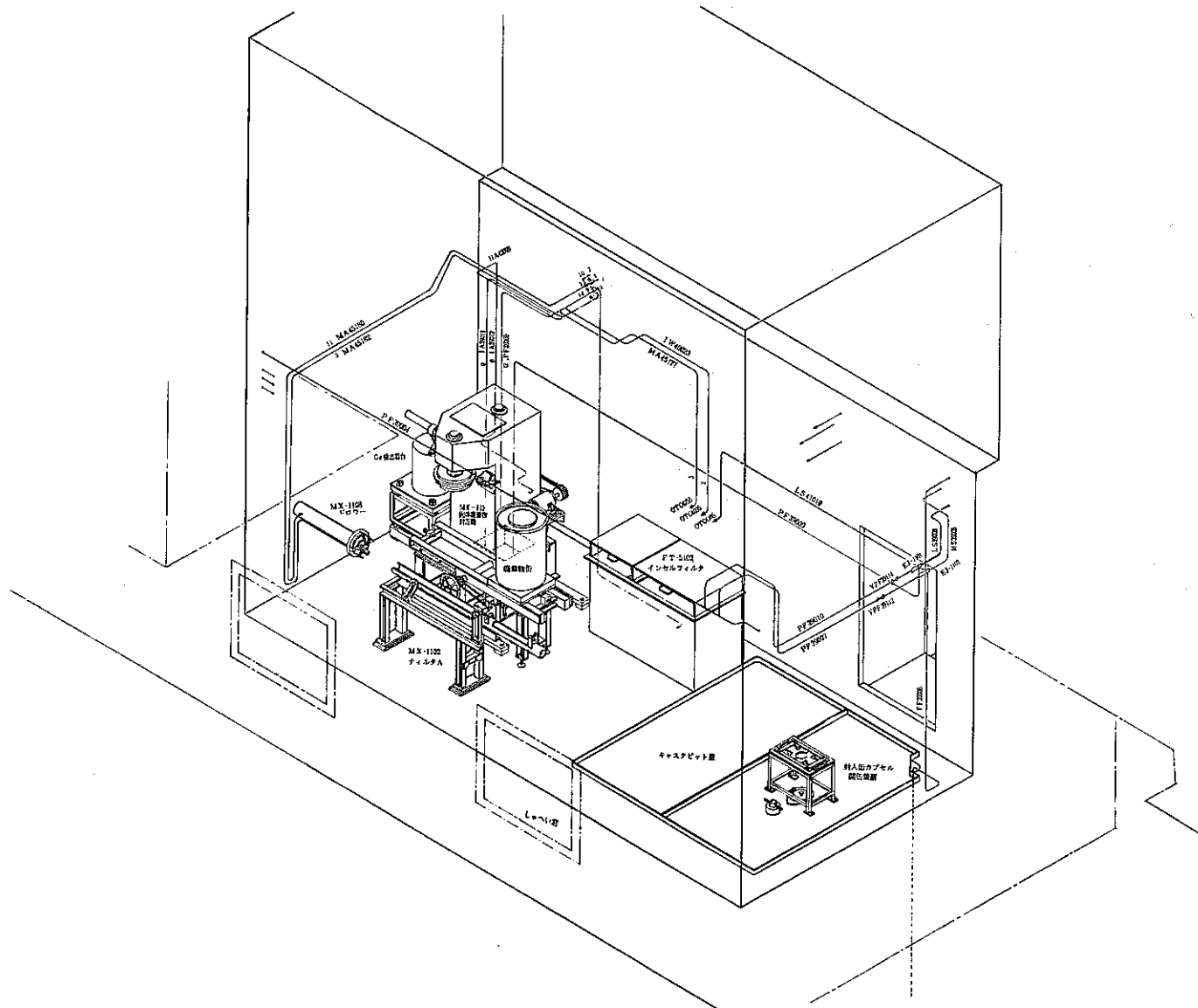


図-2 CA-1セル機器配管図

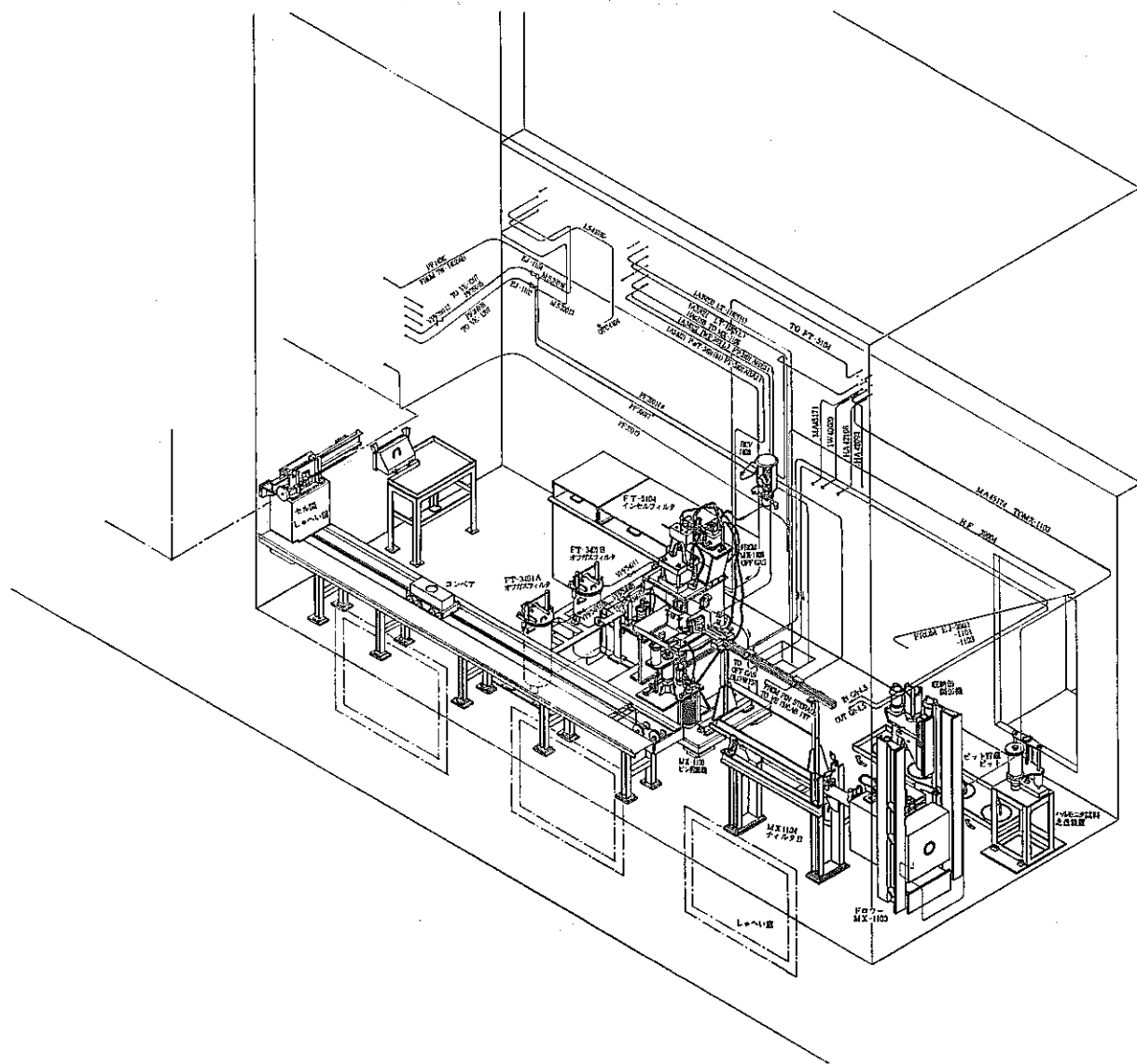


図-3 CA-2セル機器配管図

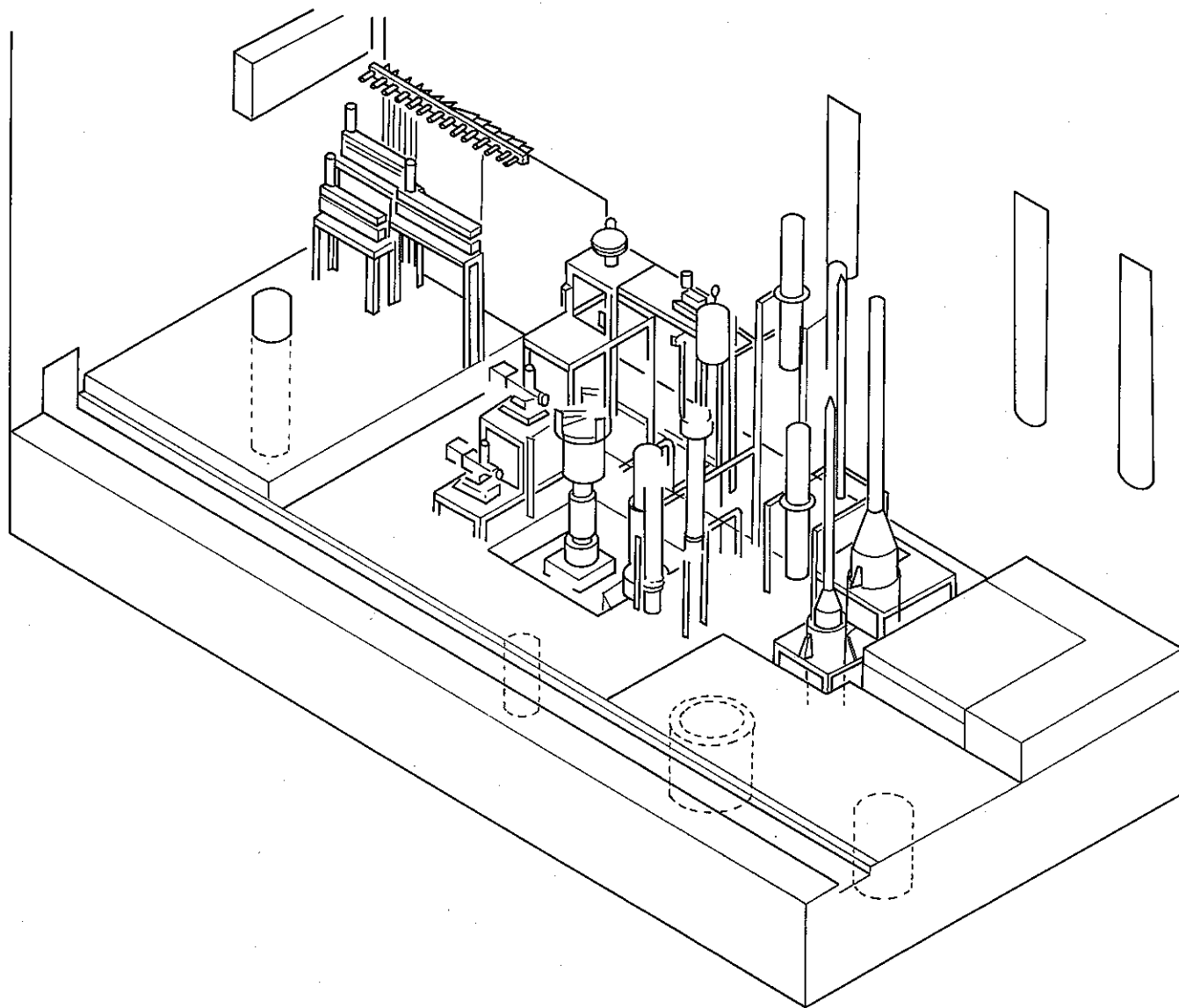


図-4 CA-3セル機器配管図

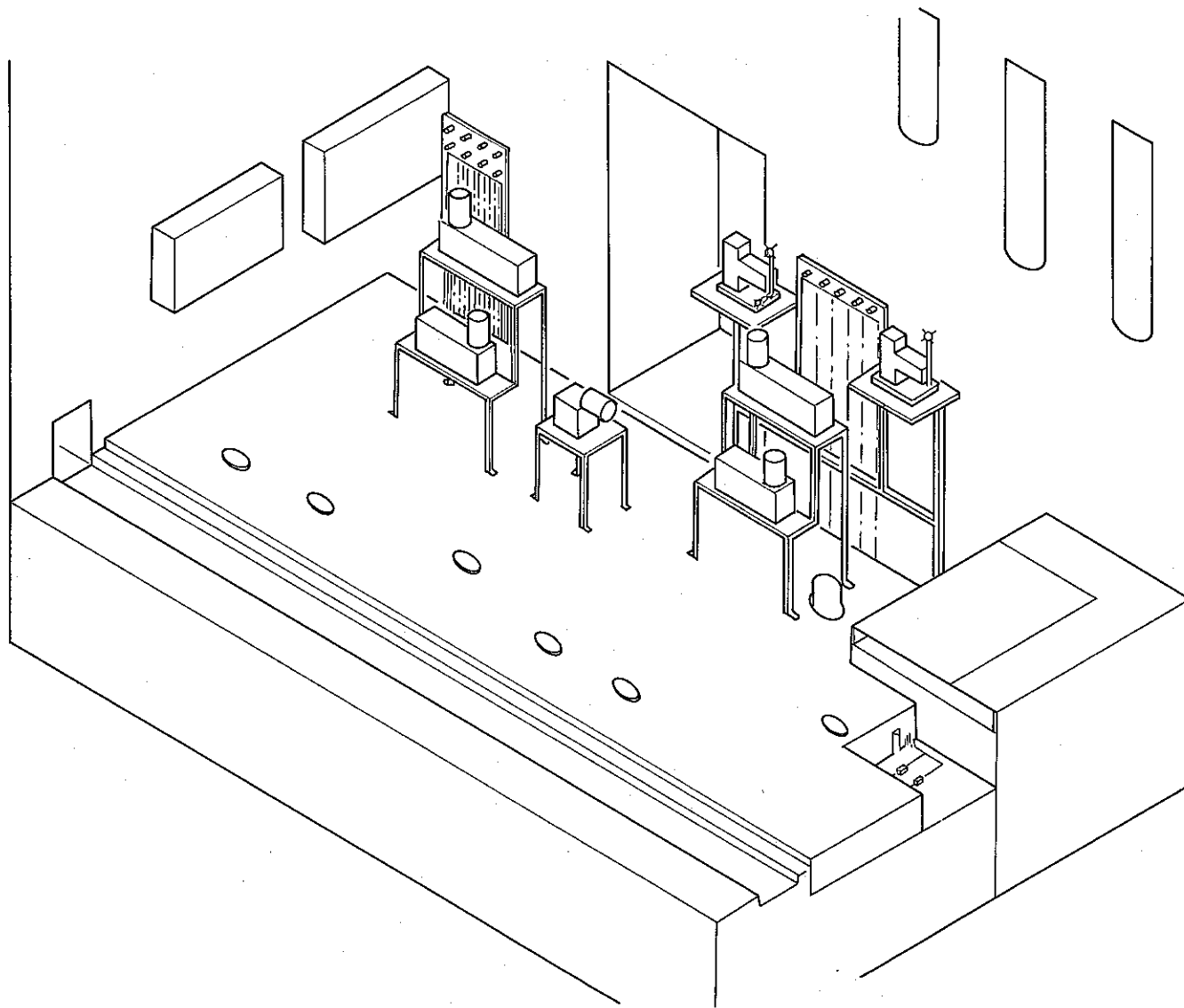


図-5 CA-4セル機器配管図

燃料ピンの剪断においては第一次で2ピン、二次で4ピン、三次で9ピンの剪断試験を実施した。これら剪断試験では剪断後の燃料片が確実にバスケットに装荷されることの確認、剪断カッターの状況観察並びに剪断に伴って発生する粉末の重量、粉径の測定を行なった。又溶解槽への挿入のためのセル間移送に伴う遠隔操作性を確認した。

溶解工程の試験は第一次、第二次試験で行った。まず、第一次試験では5モル硝酸を用い溶解終了時に200 g/lのウラン濃度になるよう条件を選定した。また第二次試験では5モル硝酸により400 g/lとなるよう条件を設定した。この溶解過程において溶解酸の調整、移送並びに目的とする酸濃度に調整できるかを確認した。溶解反応開始後においては、溶解液の昇温状況と反応によって溶解されるウラン濃度を求め、付設の密度計との対応を図り、溶解反応の終点を明らかとした。これらの関係を200 g/lと400 g/lの条件下で求めた。更に、付設の凝縮器の性能確認を行なうため、硝酸物資収支を求めた。合わせて溶解液の析出状況の観察等についても調べた。

溶解後の液移送に伴うハル洗浄操作では液量をパラメータとして洗浄効果を調べた。洗浄後はハルの乾燥と重量測定、並びに溶解槽内部の観察を実施し構材料の腐食解析を行なった。これら一連の作業を通し溶解操作に係る遠隔操作の習熟を図った。

調整工程に関しては第一次、第二次溶解試験で実施した。いずれも溶解反応終了時の溶解液と槽内洗浄液を受入れ、これを調整初液としている。したがって、これらは希釈された状態にあり、いずれも濃縮操作を調整作業で必要とする条件である。又、酸濃度、ウラン濃度の調整についても現状の設備で実施し、その有効性の確認を行なった。併せて調整操作の硝酸濃度から硝酸収支を求め、硝酸の飛散、蒸発状況を調べた。

抽出工程の試験については第1サイクルから第3サイクル及び溶媒洗浄の工程試験を第一次ウラン試験で実施し、ウランを使用することによっての影響（特に調整範囲等）把握を行なった。又この中で微量定量ポンプ供給安定性の確認を行ない、ホット時に十分対応できるかどうか調べた。

図-1に示すように第二次ウラン試験では剪断～調整の工程を対象としており、第三次ウラン試験では、第二次試験で得た調整液を用いて第2サイクルの抽出試験を実施した。

なお、第2サイクルを選定した理由は下記による。

- (1) 第2サイクルでは抽出器を3台用いており、抽出、分配、逆抽の各操作で構成され、他の工程（第1、第3サイクル）と共通している。
- (2) 本工程はCA-3セルからCA-4セルとまたがっており、他の工程に比し操作が難しい。
- (3) サンプリング方法、界面調整方法、連続試験時の監視方法が他の工程とほぼ同じであり、本工程の技術は他工程にも応用できる。

これらの理由により第三次ウラン試験では第2サイクルを対象とし、2F調整、抽出、分配、逆抽出の各試験を16時間の連続運転で2日間行なった。

なお、この連続運転はホット時を想定し交替勤務（変則2交替）体制で実施し、操作に必要な人数等も含め総合的に評価した。

図-1のフローに含まれていない燃料受入に関してはTN6-4型輸送容器を用いて、3月1日～3月8日に受入リハーサルを実施した。

又、これらの期間中共通オフガス系設備の連続運転を実施し、各工程に与える影響、手直し箇所の摘出等行なった。

3. 工 程 別

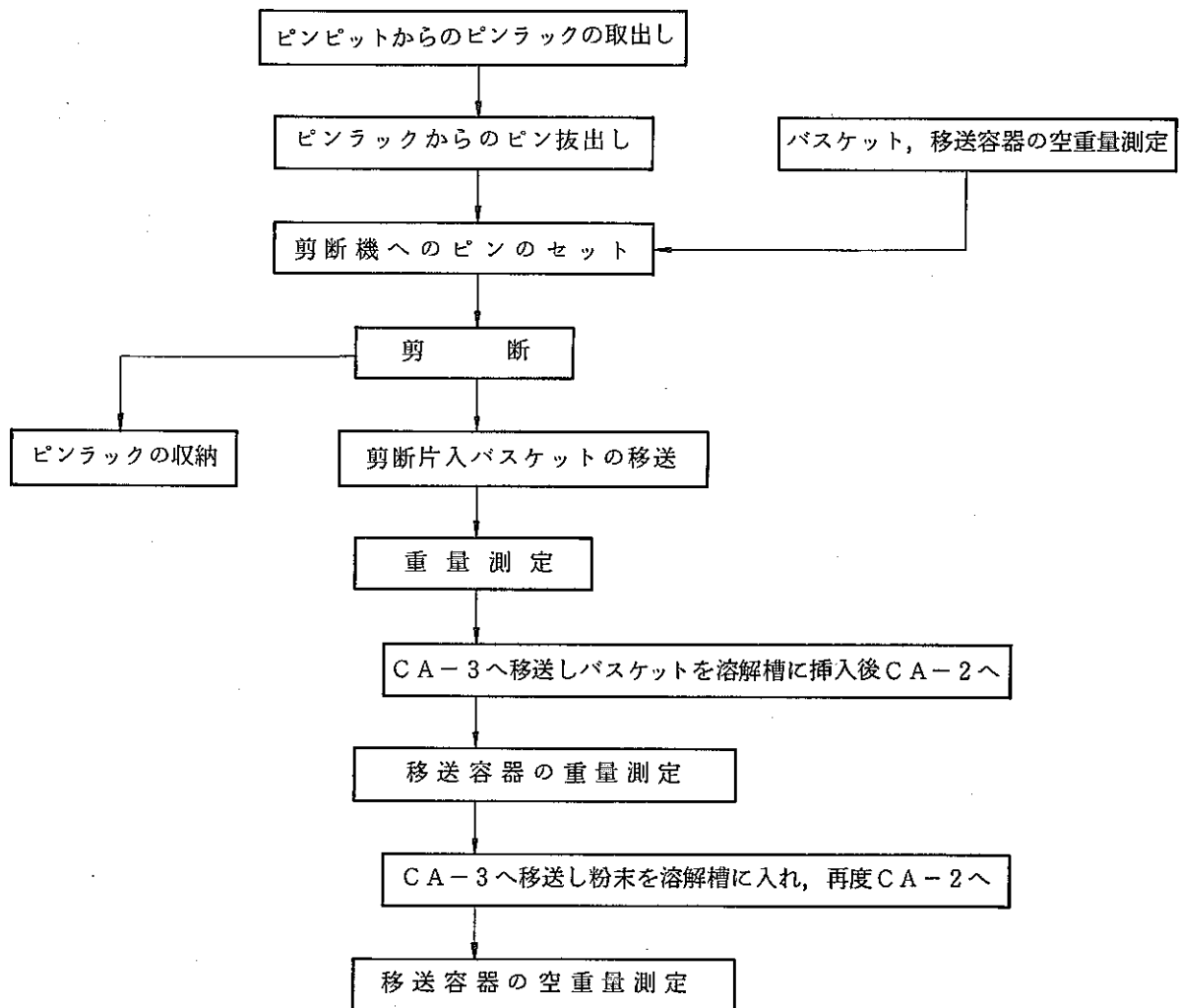
3.1 燃料ピン剪断工程

3.1.1 工程の概要及び試験項目

ホット試験で対象としている燃料ピンと類似の天然ウランペレット充填ピンを合計15本剪断した。

各試験で剪断した燃料ピン数及び剪断長並びに、燃料ピン剪断工程のフロー図を以下に示す。

試 験	剪断本数	剪断長 (cm)	カット/ピン
第一次ウラン試験	2	3	61
第二次ウラン試験	4	3	61
第三次ウラン試験	9	3 5	61 40



今回の剪断試験では必要な操作をすべて遠隔で実施し、必要治具の有効性確認、手直し箇所の摘出並びに操作マニュアルの確認を行なった。併せて第二次ウラン試験時には剪断時に発生した粉末の粒径分布測定を行なった。

3.1.2 燃料ピン剪断試験結果

1) ピンラックの取出し

合計4基あるピンラックを収納しているピンピットのしゃへい蓋（300 kg）をインセルクレーン（定格荷重2 t）で開いた後、図6に示す治具をインセルクレーンで吊り燃料ピンを収納しているしゃへい蓋の操作は何ら支障なく実施できた。

ピンラックの取出しについてはインセルテレビ、あるいはセル前面窓から確認できないため、ピンラック上部と治具に特殊な加工が施されている。この操作をインセルクレーンおよびマニプレーターで実施し、確実に治具がピンラックのフックにかかったことを確認しインセルクレーンでピン抜出しのためピンラックピットに移動した。本操作は全て遠隔で実施し、操作上何ら支障ないことが分った。なお操作マニュアルについても各ステップ単位で確認した。

2) ピンラックからのピン抜出し

ピンラックは図-6のような目皿カバーでピンの収納箇所が定められている。この目皿カバーの穴は26ヶ（うち2ヶは位置決め穴）ある。このラックに収納されているウラン燃料ピン（15本）を専用の治具（ピンチャック）を用いピンの抜取りを行なった。本操作においてもインセルクレーンおよびマニプレーターを用いて実施した。本治具は大洗（FMF）で考案されたものであり、使用実績もかなり有しているもので、当操作においても何ら支障なかった。

3) 剪断器への燃料ピンのセット

ピンの抜出し操作に引続き、燃料ピンを剪断機にセットした。本操作においてもインセルクレーン、マニプレーターを用いた。

4) バスケット及び移送容器の空重量測定

燃料ピンの剪断操作前には、剪断片の重量と燃料エレメントの実質重量を求めるため、必ずバスケット及び移送容器の空重量を求めておく必要がある。

CA-2セル内にはこの目的で重量測定用天秤があり、本試験においてもこれらの空重量測定を実施した。本測定では遠隔性の確認、セル前面窓からの読取り確認等の作業についても合わせて実施した。

天秤の仕様を次頁に記す。

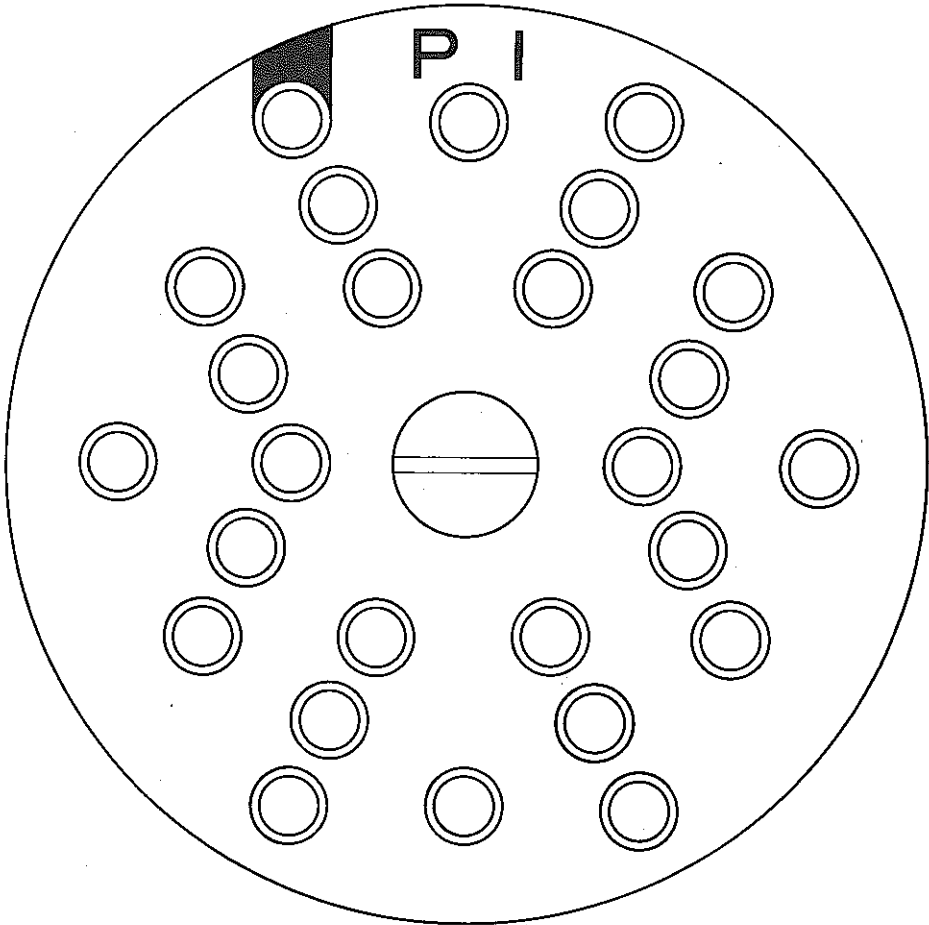


図-6 PINラック目皿外觀図

主 な 仕 様	メ ト ラ ー	PC 8000
読取限度	g	0.1
秤量範囲	g	0 ... 8000
風袋消去範囲 (差引き方式)	g	0 ... 3000
安定所要時間	s	$\Delta \approx 2$
積分時間	s	1.5/3
再現性 (標準偏差)	g	± 0.1
直線性	g	± 0.15
動作中許容周囲温度	℃	0 ... 40
感度ドリフト (10 ... 30℃)	/℃	$\pm 1 \times 10^{-3}$
天秤の傾き 1 : 1000 による秤量値の偏差	g	$< \pm 0.1$
メトラー 03 データ出力 メトラー取付け オプション 03 メトラー以外で取付け用キット	機種 No	PC 8000-03 41444
秤量台 (クローム, ニッケル製)	mm	170 × 210
天秤のハウジング (幅 × 奥行き × 高さ)	mm	187 × 301 × 95
正味重量	kg	7.8

マニプレーターによる遠隔操作で測定したバスケット及び移送容器の重量を次表に示す。

	容 器	重 量 (g)
一 次	バスケット	904.4
	移送容器	1148.8
	合計	2053.2
二 次	バスケット	915.0
	移送容器	1152.9
	合計	2067.9
三 次	バスケット	915.0
	移送容器	1153.1
	合計	2068.1

バスケット、移送容器はそれぞれ2基あるため、必ずしも同一重量とはならない。

秤量を確実にするためあらかじめ製作しておいた仮設のサポートで天秤秤量サポートの有効性確認後、本設用のサポートを製作した。

5) 剪 断

バスケット及び移送容器の空重量測定終了後剪断機にセットし、ピンを剪断した。

剪断作業は全て遠隔自動制御で行ない、セル内集音マイクで、剪断状況を把握するとともにピンの送り状況を窓から観察した。

その結果を次表にまとめた。

試 験	剪断長	1ピン当りの剪断回数	剪 断 所 要 時 間	1カット当りの時間
一 次	3	61	5分	} 5秒/1カット (送りも含む)
二 次	5	61	5分	
三 次	5	40		

なお三次試験では剪断カッターおよびピン送りローラの観察を行うため9ピンの剪断を実施した。

以上、全試験によって15ピンのウラン燃料を剪断した。この剪断操作に伴って発生する汚染範囲の把握、並びに剪断片が正常にバスケットに装荷されていることの確認、剪断機の状況などを調べた。

サーベイメータによる確認では汚染範囲は剪断カッター周辺（ボックス内）のみで、他には見出されなかった。又、各試験においても確実に、正常に剪断片はバスケットに装荷されていることを確認した。一方、剪断機の状況についてはピン送りローラがピンと同材質であったため、若干の摩耗が見られた。このため更に硬質（ステンレス）のローラに交換した。その他剪断機に関する異常は見出されなかった。

6) ピンラックの収納

燃料ピン剪断後、ピンラックのピンピットへの収納操作を遠隔で実施した。本操作は、1)のピンラックの取出しの逆操作である。

7) 剪断片入バスケットの移送

剪断終了後、剪断片の入ったバスケット移送容器を剪断機から取出し、セル間コンベアーで移送した。

マニプレーターによる遠隔操作が主であり何ら支障なく終えた。なお、バスケットの移送に伴う粉末の飛散を考慮し、移送容器専用の蓋を製作しより完全なものとした。

8) 重量測量

セル間コンベアーでCA-3セルへ移送する途中、剪断片重量を求めるため、バスケット及

び移送容器の重量を測定した。本操作においては特殊治具使用の必要もなく、一般的なマニプ
レター操作である。

本ウラン試験での測定値を次表にまとめた。

試 験	剪断ピン	重 量 (g)	容 器 重 量 (g) ^{*)}	剪断片重量(g)	1ピン当りの重量(g)
第一 次	2本	2951.7	2053.2	898.5	449.3
第二 次	4	3844.5	2067.9	1776.6	444.2
第三 次	2	2949.4	2068.1	881.3	440.7
”	3	3429.9	”	1361.8	453.9
”	2	2496.0	”	927.9	463.9
”	2	3022.4	”	954.3	477.2

*) バスケット及び移送容器の合計重量

燃料ピンの平均重量は454.9gであった。

本重量測定操作も遠隔操作で実施したが、何ら支障はないことが分った。

9) バスケット及び移送容器のCA-3セルへの移動

重量測定後溶解試験のため、剪断片入バスケット及び移送容器は、セル間コンベアーでCA-3セルに移送される。なお、溶解槽への挿入時の扱いについては、次項(溶解工程)で述べる。コンベアーはセル外のコンベアー操作ボックスで運転される。

10) 移送容器の重量測定

剪断片の入ったバスケットを溶解槽へ挿入したのち、移送容器に残った粉末の重量測定のため、移送容器のみ再びCA-2へもどす。

なお、試験の目的によっては粉末重量の測定が不必要な場合もある。この時は、粉末を溶解槽へ入れたのちにCA-2へもどし最終の空重量を測定すれば良い。

本試験によって発生した粉末の重量を下表に記す。

試 験	剪断ピン	剪断長さ	重 量 (g)	移送容器重量(g)	粉 末 重 量 (g)
第一 次	2本	3 cm	1164.0	1148.8	15.2
第二 次	4本	3 cm	1182.4	1152.9	29.5
第三 次	2本	5 cm	1170.3	1153.1	17.1
”	3	3	1198.7	”	45.6
”	2	3	1216.0	”	62.9
”	2	3	1236.6	”	83.5

この結果のように移送容器に残る粉末重量と剪断ピン数、剪断片長さとの関係は見出されなかった。この粉末はホット試験の際にはビーカ規模試験等に利用することも考えられる。

なお、粉末重量測定後移送容器を再度コンベアーによってCA-3へ移送し、粉末を溶解槽に入れた。その後最終的な容器空重量を測定し、溶解槽への全挿入量を求めた。

以上の操作を全てマニプレーターによる遠隔操作で実施したが、現状の設備で十分に行ない得ることが分った。参考のため第二次試験で得た粉末の粒度分布の測定を行なった。その結果を表-2に示す。

3.1.3 燃料ピン剪断試験のまとめ

燃料ピン剪断に係る全ての操作を遠隔で実施した結果剪断に係る設備、操作員の習熟度、操作マニュアル内容等ほぼ満足できることが確認された。

これまでに行なった改善及び手直箇所並びにホット時まで確認しなければならない項目を表に示す。

項 目	内 容
ピンピットの表示	セル前面窓から確認できるよう大文字でピット番号を明記した。
ピンラックの目皿表示	ピンの挿入箇所が明確となるようピンラック目皿に表示した。
ピンラック取出し治具の改善	治具をピット穴に入れる場合、中心が多少ずれていても確実に操作できるようにした。
ピンラック立てピットの改善	ピンを拔出するため一時ラックをラック立てピットに入れる。この時ラックが穴の開口部周囲にかかる恐れがあった。これを改善し確実なものとした。
剪断機ピン送りローラ交換	剪断機ピン送りローラをより摩耗の少ないステンレス材と交換した。
重量測定用天秤皿の改善	バスケット、移送容器、フィルター等に共用できるよう天秤皿を改善した。
剪断機フィルターの改善	フィルターをカートリッジタイプとしより遠隔性に優れたものとした。
移送容器からの粉末飛散対策	剪断片入バスケットの移送時に粉末が飛散することを防止する専用蓋を製作した。
封入缶吊り治具の改善	封入缶吊り治具のストッパー部（ツメ）の改善を図により確実なものとした。
剪断機フィルターの遠隔性確認	新フィルターが入荷し、着脱操作が確実なることを確認した。
封入缶、ピン吊り治具の予備品確保	封入缶、ピン吊り治具の予備品を確保するため手続きを行なった。

表-2 燃料ピン剪断時粉末粒径

	使用ピン数	剪断長さ	UO ₂ 重量	発生粉末重量	粒度分布	剪断状況
ウラン試験 (I)	2ピン	3 cm	644.7 g	15.2 g 発生率 2.36 %	—	良好
ウラン試験 (II)	4ピン	3 cm	1,289.4 g	27.9 g 発生率 2.1 %	<ul style="list-style-type: none"> • 840 μm (20 mesh) 61 % • 297 μm (48 mesh) 35.8 % • 149 μm (100 mesh) 30.1 % • 74 μm (200 mesh) 11.8 % • < 74 μm 16 % 	良好

3.2 溶解工程

3.2.1 工程の概要及び試験項目

(1) 燃料溶解

高速炉使用済燃料は軽水炉燃料型と異なり燃料中に含まれるプルトニウム (PuO₂) の含有量が高いため硝酸のみでの溶解が困難といわれている。これまでもMOX燃料の溶解試験が行なわれているが未だに高速炉燃料再処理技術を確立する迄の課題とされている。

動燃においても未照射MOX燃料並びに照射済燃料を用いた小規模溶解試験が行なわれたが溶解率の検討は未だ不十分である。

現時点でMOX燃料の溶解に対し、ほぼ傾向として明らかにされていることは

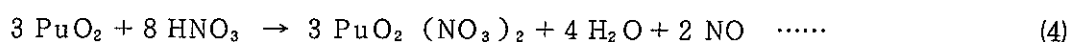
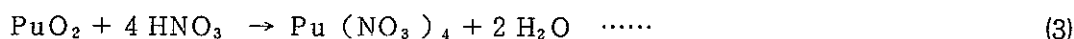
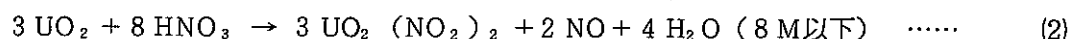
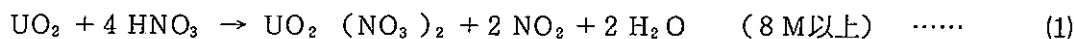
- (a) 硝酸濃度の関数であり、濃度が高いほど溶解速度が大きい
- (b) 溶解速度は燃料表面積の関数である。
- (c) 不溶解残渣はHNO₃-HF溶液でHFの触媒的作用により容易に溶解できる。
- (d) Ce(IV)-HNO₃系においてMOX燃料中のPuO₂はより溶け易い傾向があり、その効果の最大は4M HNO₃である。又Ce(IV)/Ce(III)の比もPuO₂の溶解速度を変えるようであ

る。

(e) 固溶体になっている $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$ は硝酸のみでも溶解易い。

(f) 燃料の製造によって異なる、すなわちペレット焼結温度については $1400 \sim 1700 \text{ }^\circ\text{C}$ の範囲では高い方が溶解易く、また共沈法 > ゼルゲル法 > 機械的混合法の傾向があり、そのうちでも機械的混合法が最も焼結温度に依存すると言われる。

などである。また UO_2 や PuO_2 の溶解反応は次式で示せることも明らかとされている。



つまり、 UO_2 や PuO_2 の溶解に関する基本的なことは、知られていると見て良い。しかしながら、MOX 燃料や PuO_2 の溶解系で不溶解残渣として残る Pu については未だ解明されていない。この残渣率は溶解条件により異なりまた、燃料の製造法、焼結温度、更には炉内での燃焼度などの燃料履歴にも依存すると言われており、数多くの因子が存在する。このため CPF における溶解試験の着目点、留意点を次のようにおき、これらに対処可能な設備としておく。

(a) 常陽燃料溶解時の不溶解残渣の量とその中に含まれる Pu 量を求める。

(b) 不溶解残渣中の Pu 量を燃焼度、核物質濃度、硝酸濃度をパラメーターに求める。

(c) 得られた不溶解残渣の性状、物性を調べると共に再溶解試験に供する。

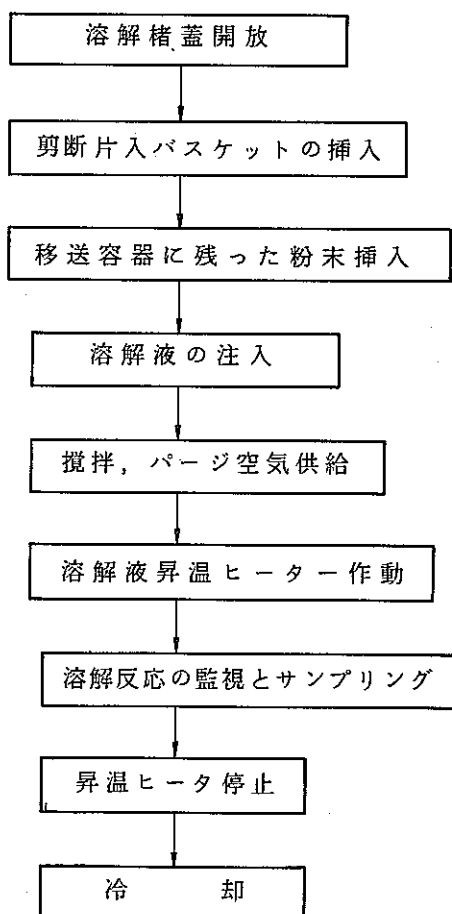
なお、現在、いくつかの再溶解法の候補が考えられているが、いずれも工程材料に与える腐食が大きいという点では共通している。

したがって、CPF ではまず第 1 に不溶解残渣中の含有 Pu (核物質質量) を求め、次いで得られた不溶解残渣の再溶解法に移行することが望ましい。

本ウラン試験では第一次で 2 ピン、第二次で 4 ピンを対象として計り 2 回実施した。又、ウラン試験の前に行なった化学試験においては空ピン及び硝酸を用いて密度計の対応昇温試験等一連の溶解操作に必要な作業を実施してきた。

本溶解試験の最初の目的は溶解槽の試験に係る操作が確実、安全にできるか、又溶解反応の監視が既設の設備でどこまでできるか、そして反応終了点を確実に見出す方法の確認付随する設備 (凝縮器、冷許、加熱系統) が十分に対応できるか、異常時においても安全装置が確実に作動するか、などを調べ、それが操作マニュアル上十分におさえられているか確認することである。

燃料溶解試験の操作フローを次頁に記す。



(2) 溶解液移送と溶解槽の洗浄

溶解反応終了後溶解液移送及び溶解槽の洗浄を実施した。洗浄液は濃度が高い場合、溶解液と混合し、また計量管理上あるいは臨界管理上無視できる程度の濃度であれば廃液として扱う。

図-7に溶解液移送及び溶解槽洗浄のフローを示した。まず真空ポンプPV-1201で吸引槽VE-1224を減圧しバルブVPF-12171を開とし、溶解液を吸引槽まで移送する。続いて、吸引槽内の減圧解除をバルブVPF-12035によって行なう。その後バルブVPF-12036を開とし調整槽に重力流で送る。一方廃液の場合はバルブVPF-12128を開とし廃液貯槽に送る。これらの操作を第一次及び第二次試験で行ない、吸引移送方法及び洗浄法の確立、フィルターの交換保守等を調べた。

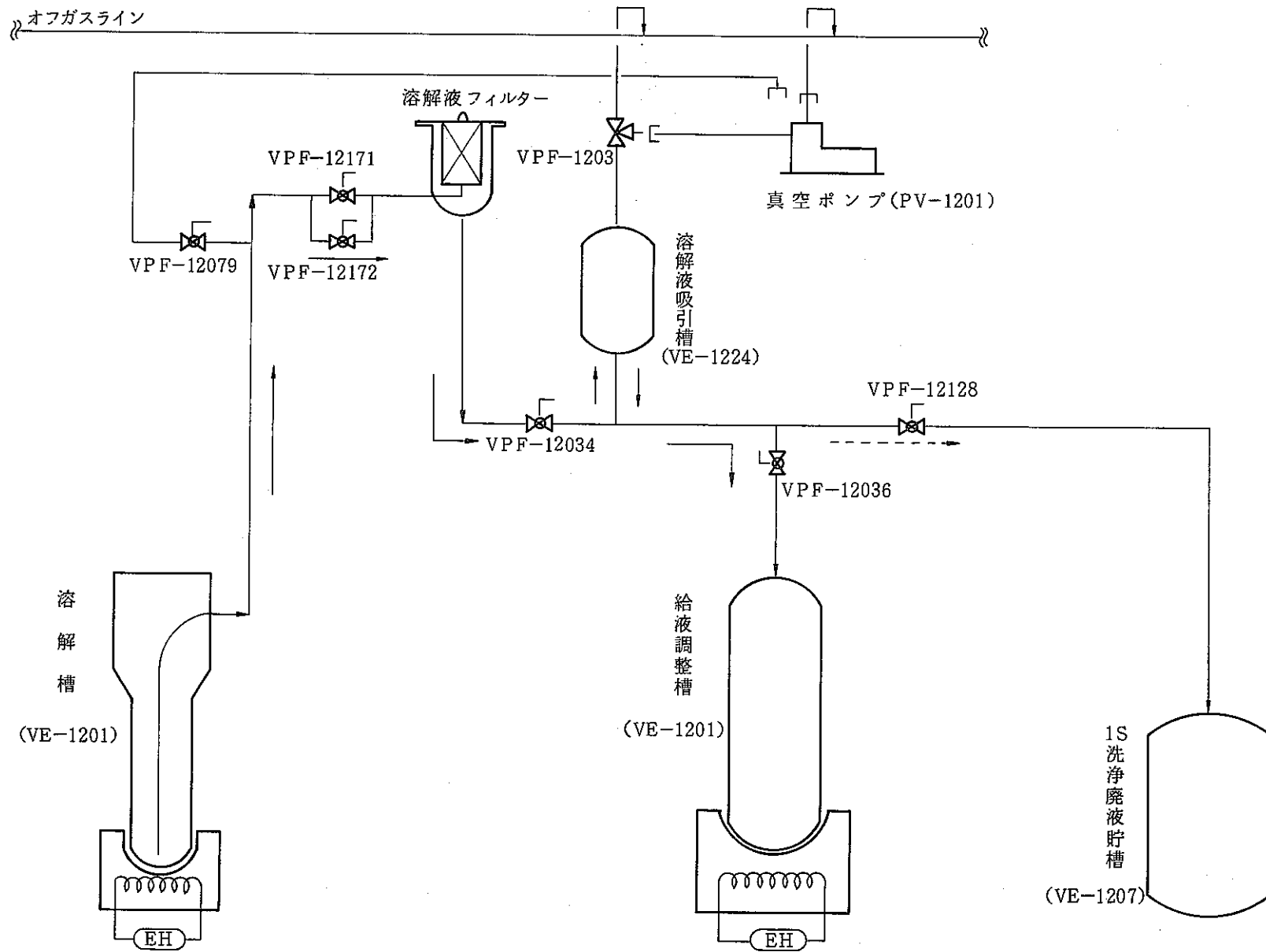


図-7 溶解液, 洗浄液移送ライン概略図

3.2.2(1) 溶解試験結果

1) 溶解槽蓋の開放

本溶解槽は図-8のような形状であり、上部に約 30 cmの蓋（約 5 kg）が付いておりこの蓋を開けることによって燃料ピン剪断片入バスケットの挿入、溶解後の取出しが行なわれる。開蓋は専用ラチェットを用い蓋の固定をはずす。この操作は通常のマニプレーター操作であり、何ら困難はない。これに引続き、3本掛けワイヤーを用い、パワーマニプレーターで開蓋操作を行なった。

蓋を開けると槽内負圧がセル内負圧と同じになるため、溶解槽負圧高警報が作動する。この警報作動点は $-55 \text{ mm H}_2\text{O}$ （セル内 $-20 \sim 40 \text{ mm H}_2\text{O}$ ）である。したがってバスケットの挿入、取出し時に伴う溶解槽の蓋開放時には必ず負圧高警報が作動するため、マニュアル上追記した。

パワーマニプレーターに吊り上げられた蓋の置く位置を決定し、その位置に確實、安全に置いた。本操作はマニプレーター、パワーマニプレーターの両遠隔機器で容易に行なえることを確認した。

2) 剪断片入バスケットの溶解槽への挿入

溶解槽の蓋を開けた後CA-2セルからコンベアで、移送されてきた剪断片入バスケットを挿入する。このバスケットには3 mmφの穴が多数（図-9）あり、溶解槽へ挿入までの過程で、その取扱い方法によってはバスケット内部に存在する3 mmφ以下の粒子を溶解槽外部へ飛散する恐れがある。このため本操作については特に注意し、マニュアル上もかなり細部まで触れることとした。この問題はあらかじめ予想されたことでもあり、既にこれを防止するためのバスケット移送専用治具（図-10）を製作しておき本試験でその有効性の確認を行なった。

専用治具を用い粒子飛散防止のため移送容器ごと溶解槽へパワーマニプレーターで移動し、マニプレーターによるサポートを受け確實に槽へ挿入できることを確認した。

一方、移送容器中に残った剪断粉末については再度CA-2へ移送、計量後、マニプレーター2基を用い溶解槽内へ入れた。これら一連の操作後再度パワーマニプレーターを用いて溶解槽蓋を閉じた。

以上、バスケットの挿入に関する操作について専用治具、並びにマニプレーター、パワーマニプレーターを用いることにより確實、安全にできることを確認した。

3) 溶解液の注入

溶解槽にバスケットをセットしたのち、硝酸を注入する。この硝酸の濃度量等については溶解試験のパラメータの1つでもあり、ウラン試験によって決定することはできない。

本試験では各種の条件にも対応できるよう、硝酸濃度と付設の密度計指示値との関係を求め容易に溶解初期の硝酸濃度を求められるようにした。

その関係を図-11に示す。又この結果から求めた関係式を次頁に示す。

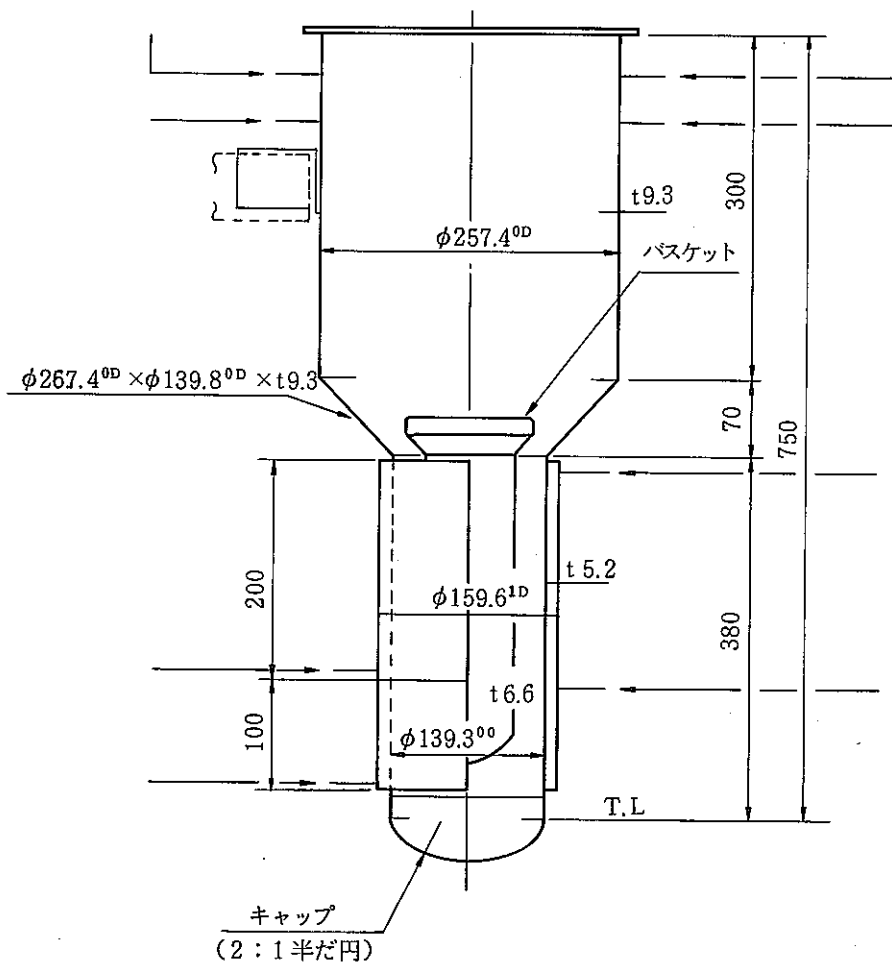


図-8 VE-1201 溶解槽形状図

設計仕様	
型式	竖型円筒式 (ジャケット付)
数量	1 基
主要寸法	
重量	22 ℓ
流体	冷却水/工業用水
最高使用圧力	6.8
最高使用温度	170 ℃
主要材質	SOS304 L
	胴側 ジャケット側

ノズル仕様		
番号	名称	口径
N-1	プロセス出口	1/2"
2	プロセス出口	3/8 ^B
3	空気入口	3/8"
4	計装用ノズル	
5	試薬入口	3/8"
6	計装用ノズル	
7	計装用ノズル	
8	計装用ノズル	
9	水出口	3/8"
10	プロセス出口	1 ^B
11	冷却水入口	3/8"
12	試薬入口	3/8"
13	空気入口	3/8"
14	計装用ノズル	
15	プロセス入口	1/2 ^B
16	冷却水出口	3/8"
17	水入口	3/8"

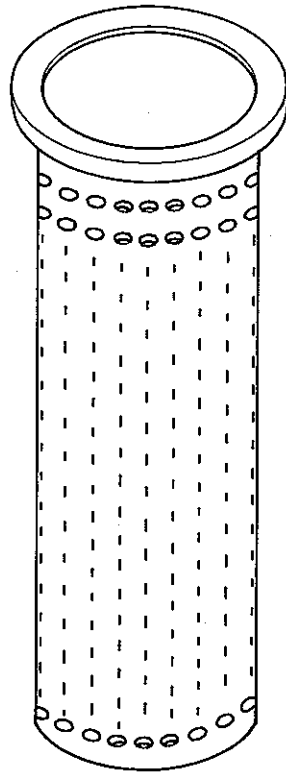


図-9 燃料ピン剪断片バスケット

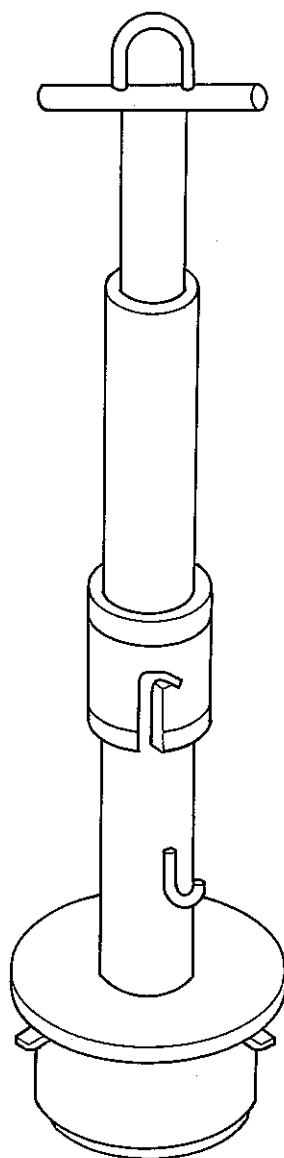


図-10 バスケット移送専用治具

$$\text{硝酸濃度}(c) = 35.0 (\rho - 1.01)$$

ρ : 密度 (g/cm³)

c : 硝酸濃度 (mol/l)

本溶解試験では硝酸濃度を 5 mol/l とし、液量を 3 l に選定し、実施した。この条件に基づき試薬供給室（実験室 A）から 13 mol/l と 0.1 mol/l の硝酸を所定量溶解室からの移送は 10 l の計算シリンダーで計算後重力流で行なった。まず初めに 0.1 mol/l の希硝酸を注入し、次いで 13 mol/l の硝酸を注入した。注入時点で目的とする溶解酸濃度になるようそれぞれを算出し注入した結果、溶解槽内でほぼ目的とする濃度に調整できることを確認した。なおこの注入操作の際配管内部でエアロック現象が生じ、スムーズに硝酸を注入できない場合もあった。このため、一部手直しを図りエア抜きの改善処置を実施し、その有効性確認を行なった。

次表には注入前の目標濃度と付設の密度計指示値から求めた濃度、分析値を示す。

	目標濃度	密度計指示	密度指示値から算出した濃度	分析値	ウラン濃度
化学	8 mol/l	1.24	8.05 mol/l	8.31 mol/l	—
第一次	5 mol/l	1.13	4.02* mol/l	3.64 mol/l	4.9 g/l
第二次	5 mol/l	1.14	4.00* mol/l	3.79 mol/l	15.7 g/l

* 溶解したウランを考慮した値

なおこの結果は溶解液を注入したのち、液の攪拌を実施した時の値である。したがって常温ではあるがウランの溶解が若干進行しており、注入した硝酸のうち一部は既にこのウランの溶解反応に消費されていると判断できる。

なお、硝酸-ウラン系での密度の関係は次式で求められることが判っている。

$$\rho = 1.028 + 0.001256 [U] (\text{g/l}) + 0.02748 [H^+] (\text{mol/l}) \dots\dots\dots (2)$$

この式より第一次、二次ウラン試験の攪拌後の密度計指示値の妥当性を検討し溶解酸の初濃度を推定する。

試験	密度	推定初濃度
第一次	1.13	3.82 mol/l
第二次	1.15	4.01 mol/l

以上のように、攪拌後の密度計指示値はその時までに溶解したウランを考慮すると極めて妥当な値であることが判る。

一方、溶解反応開始時における溶解液濃度の確定はそれまでに溶解したウラン濃度を考慮す

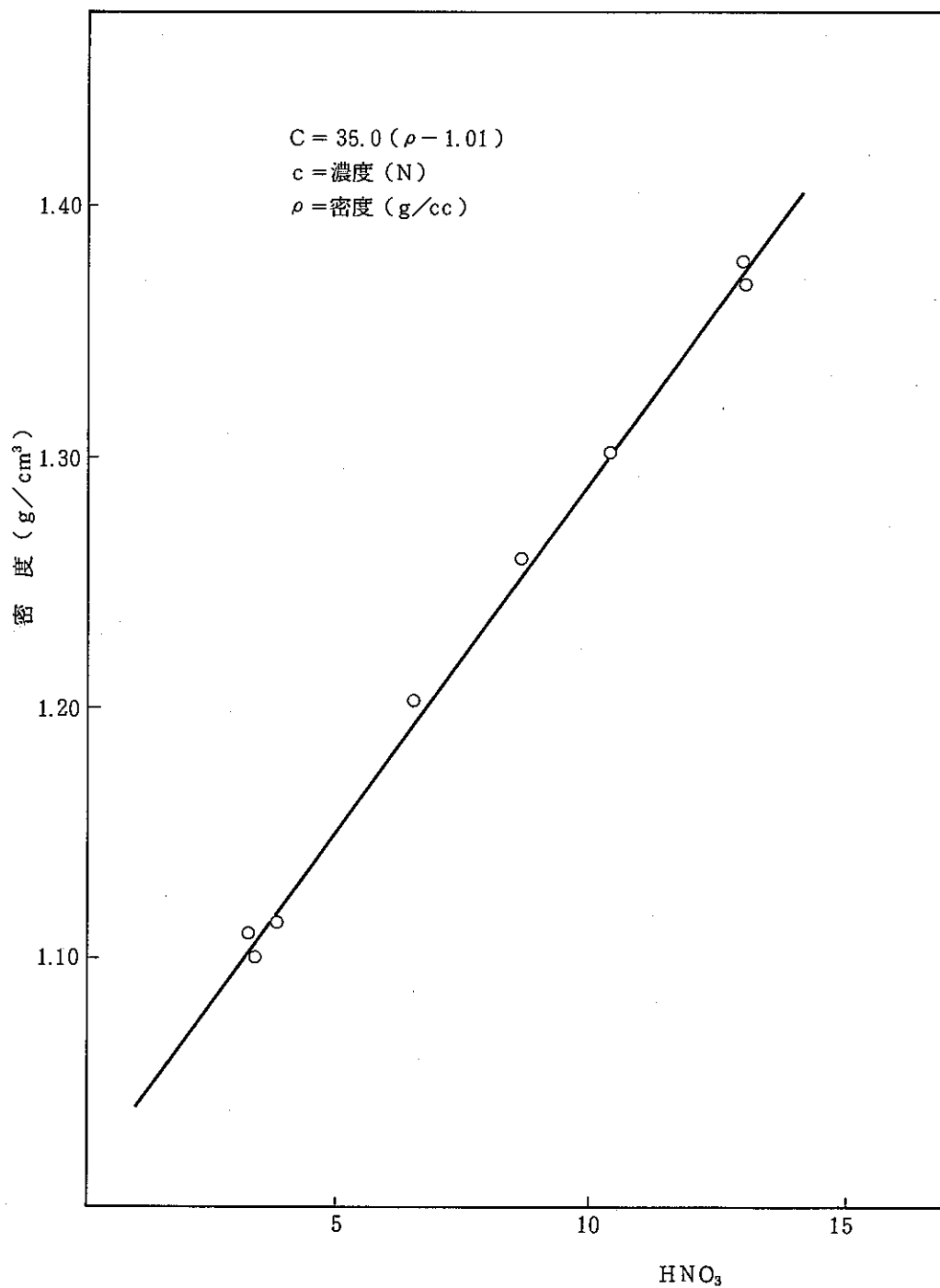


図-11 VE-1201密度補正グラフ

れば±5%以下の精度で求まる。しかしながらこのためにはウラン等の分析が必要である。実際にはこれまでに微かに溶解したウランも含めたものの密度を知ることになり、この値から初期硝酸濃度を求めることになる。(正確には分析する)

これを今回のウラン試験で実施した結果、10%~15%程度高く硝酸濃度が出ることが判った。したがって溶解初濃度を監視計器で求めるためには(1)式の補正式である次式を用いれば良い。

$$\text{硝酸濃度}(c) = 31.1 (\rho - 1.01) \quad [\text{mol}/\ell] \quad \dots\dots\dots (3)$$

なお、他の(3)式は化学分析を行なう前の槽内濃度の推定式であると共に溶解反応開始前(昇温前)に微かに溶解したウランが存在する系と限定した範囲で用いるようにした。(3)式によって求めた値が目標値とほぼ一致させるようにすることが溶解反応開始前の作業である。しかしながら正確な値を知るには調整後分析する必要がある。

4) 攪拌空気、バージ空気の供給

攪拌空気については溶解酸を注入したのち溶解液の混合のため、あらかじめ供給しておいた。これらの空気の供給はセル外にある監視パネルにその供給バルブスイッチが付いており、そのスイッチ操作によって供給開始、停止ができる。又これらの空気量の調整はセル背面サービスエリア上部にある調整バルブで行なった。

これらの空気供給目的は溶解反応中の溶解液攪拌とそれに伴って発生したガスの希釈であり、次の考え方のもとに設定された。

(必要な空気量)

- | | | |
|---------------------|-------|-------------------------|
| (1) 水の放射線分解時の希釈空気 | | 38 Nm ³ /hr |
| (2) 可溶性内張純鉄の溶解反応 | | 900 Nm ³ /hr |
| (3) 同伴するナトリウムと硝酸の反応 | | 475 Nm ³ /hr |

つまり、水の放射線分解、純鉄バスケットの溶解、同伴ナトリウムの溶解、これらの反応で生じた水素を爆発限界以下に希釈するため、バージ空気が1.5 Nm³/hr、攪拌空気が0.5 Nm³/hr、攪拌空気が0.5 Nm³/hrの合計2 Nm³/hrを供給するように設定されているしかしながら、現状の設備ではステンレス製バスケットが採用されており、純鉄(セルメット)バスケットの溶解は考慮する必要がない。又ナトリウムについても燃料搬出側でほとんど処理しており実質的には考慮する必要がないと判断される。しかしながら付着ナトリウムを定量的に推定することが困難でもあり、安全を見積って上記の希釈空気を供給することとした。

よって、必要な希釈空気量は上記のうち(1)と(3)のみとする。

合計 513 Nm³/hr となり、安全上この2倍とし、合計 1 Nm³/h とした。これによって溶解槽攪拌空気、バージ空気を以下のように変更した。

攪拌空気	0.5 Nm ³ /hr	(従来 0.5 Nm ³ /hr)
バージ空気	0.5 Nm ³ /hr	(従来 1.5 Nm ³ /hr)

パージ空気を供給する場合、特に槽内溶解液が沸とう状態となっている時には供給した瞬間槽内負圧が「高」(−55 mmH₂O)に達する場合もある。したがってパージ空気の供給は槽内負圧が安定になっている時に行なうようにする。例えば「高」に達し警報を発したとしても何ら問題はない。再度攪拌空気、パージ空気の順で入れれば良い(警報はリセットしておく)

5) 溶解液昇温用ヒータ作動と溶解反応

溶解槽に関する周辺設備(オフガス、酸回収系)を図-12に示す。

この中でオフガス系(TW-1401以降)の結果については別項で述べる。

溶解反応時におけるオフガス、蒸気、凝縮水の挙動を図-12で説明する。

溶解槽内溶解液が昇温し発生した蒸気、オフガスはオフガス凝縮器に送られて、ここでほとんどの蒸気は凝縮され、酸回収ライン送られる。又、オフガス更に残った蒸気は酸回収塔へ引き続き送られほぼ完全に酸回収ラインに回収される。その後オフガスについてはノックアウトポットを経由し、オフガス洗浄塔に送られ処理される。

通常の溶解反応は蒸発による硝酸のロスと液量の減少を防ぐため全置流方式で操作する。このため図-12に示しているバルブ(VPF-12028)を閉とし、凝縮器の冷却水を80ℓ/hrの流管で流し、凝縮器内温度を12℃とした。よって凝縮水は再び溶解槽にもどされる。(液ミナレ部は約200mℓであった)

なお、この凝縮器内温度が25℃以下に達していない時には安全回路が作動し、溶解槽冷却ジャケットの冷却水入口弁が開、並びに槽内負圧保護のため攪拌、パージ空気入口弁が閉、ヒータの電源回路が断となり溶解操作が行なえない。したがって凝縮器温度は極めて重要な意味を持つ。

これらの確認を行なったのち、溶解槽の昇温ヒーターを作動させ溶解反応を開始した。図-13にヒータの昇温、溶解液の昇温状況をまとめた。

ヒーターの印加電圧については自動、手動任意に選択できるが、これまでの試験の結果昇温初期は手動(50%)で行ない、ほぼ目標とする温度に達したのちは自動に切替える方式が最も良いことが確認され、本試験によっても同様の操作で実施した。図-14には溶解反応初期からの溶解分析結果を示した。

この結果によると、第一次試験の場合、ウラン濃度変化から、開始後約6時間で溶解反応が終了したと推定される。一方硝酸濃度についても同時間ではほぼ一定となっている。

この関係を操作パネル上の密度計を監視することによってどこまで把握できるか調べるため同図には合わせて、密度計指示値をプロットした。この指示値は、液温が沸点に近いため絶対的な値ではない。

又、サンプルから実測した密度値もプロットしており、計器指示値との差が大きく表われている。しかしながら、計器指示値より得られた値でも溶解反応終了を示すプラトーサが約6時間後に得られ、十分に反応終了を確認することができた。

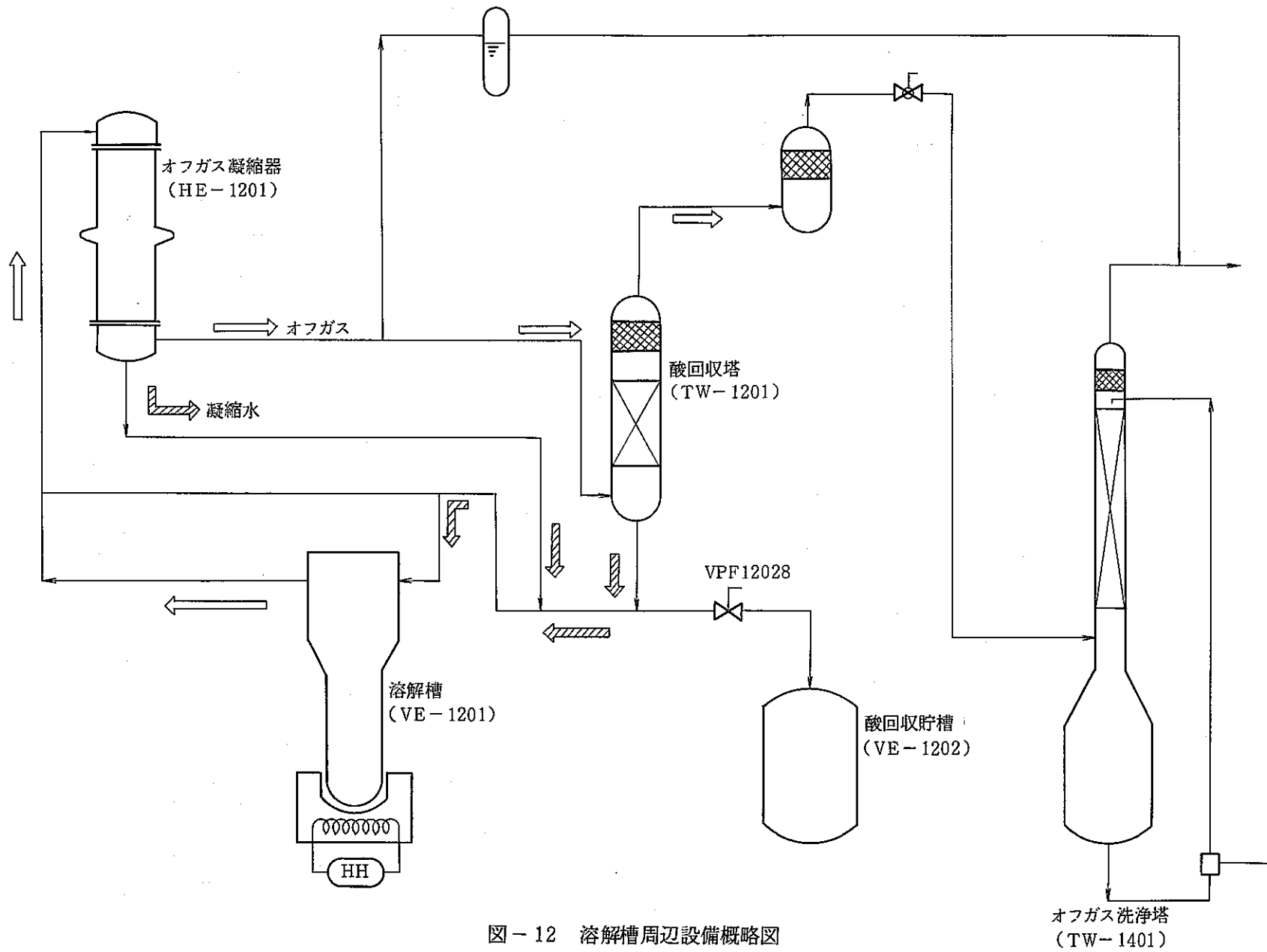


図-12 溶解槽周辺設備概略図

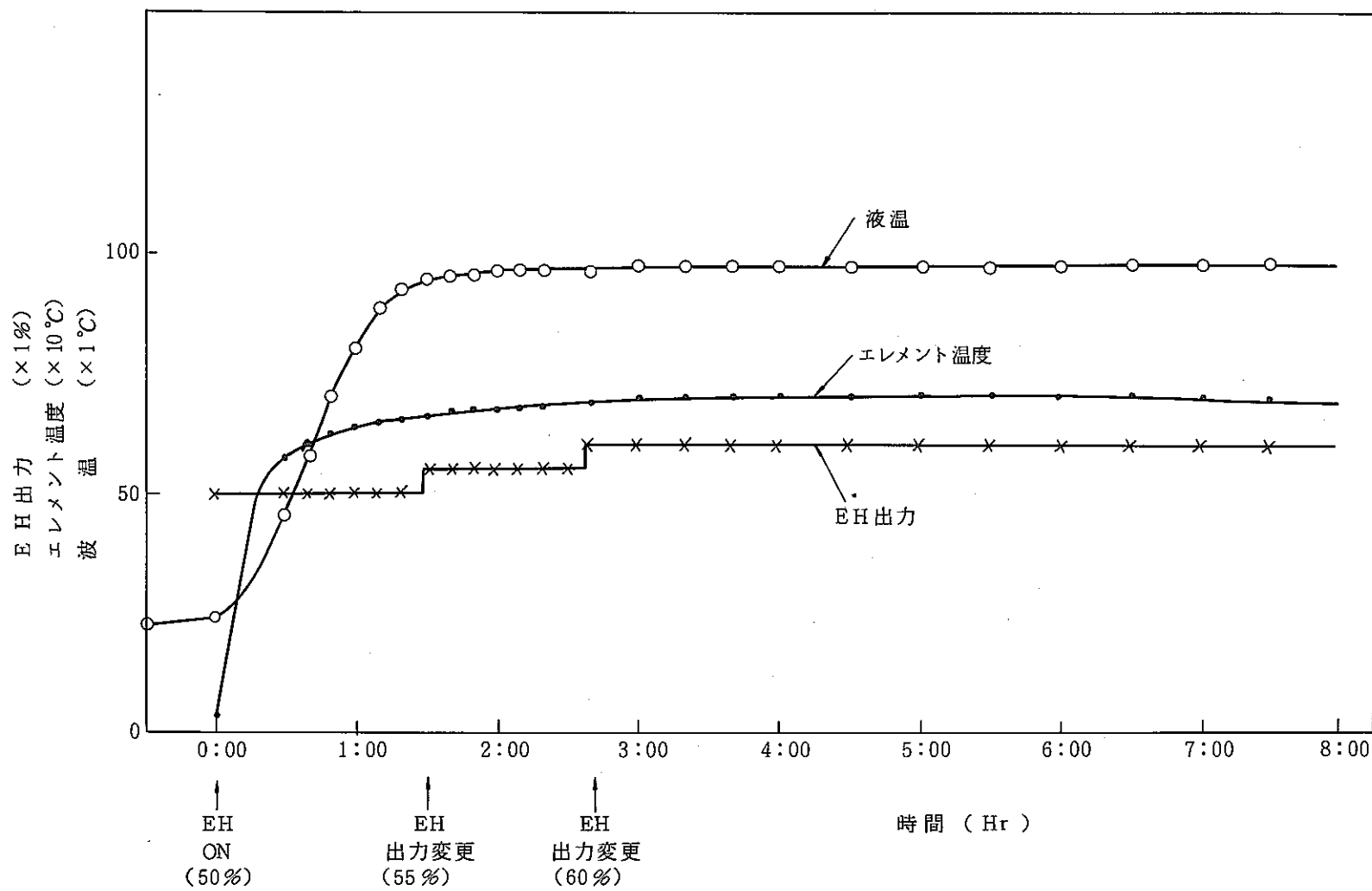


図-13 ウラン溶解試験

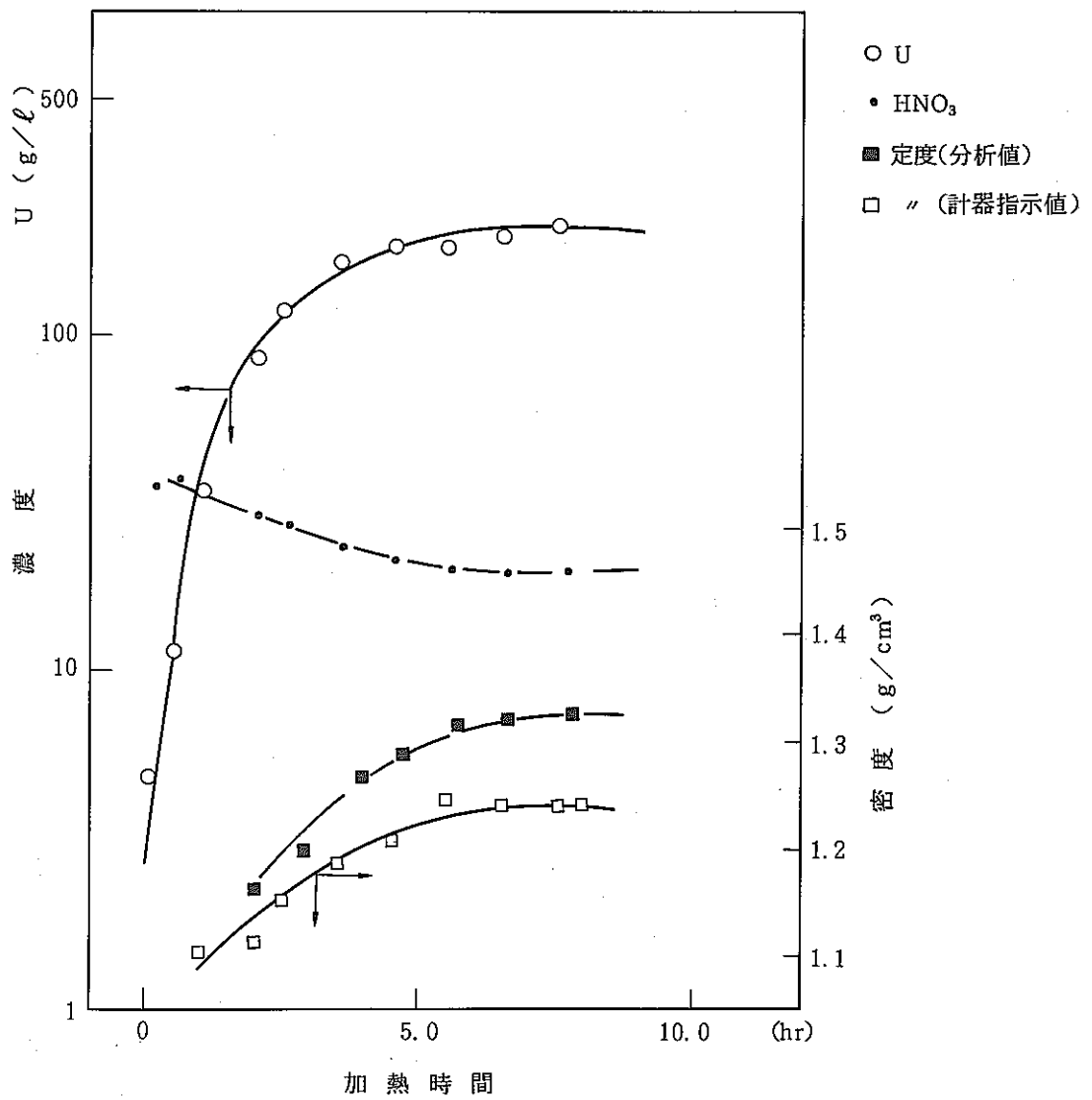


図-14 溶解液濃度経時変化 (UT-I)

一方、図-15には第二次試験での前記内容をまとめた。この場合、溶解燃料を4ピン（溶解終了時400 g/ℓ）としており、第一次試験の2倍量のウランを用いている。

本二次試験の結果においても、開始後約6時間でウラン濃度が一定となっており、計器指示による密度の関係からも第一次同様、溶解終了の推定が行なえることが分った。

なお、実際のホット時においては、溶解の経時変化等調べるため、サンプリングを行ないその分析結果と比較しつつ進めるため、より確実に終了時間をおさえられる。

参考のため硝酸-ウラン系での密度温度補正式を次式に示す。

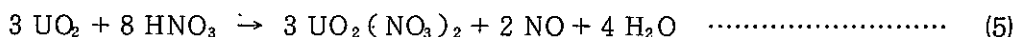
$$\rho_t = \rho_{25} (1.0125 - 0.0005 t) + 0.000145 t - 0.0036 \quad \dots\dots\dots (4)$$

図-16, 17には溶解反応中の硝酸収支並びに凝縮器、酸回収塔の性能を調べるために硝酸根の総量変化を示した。

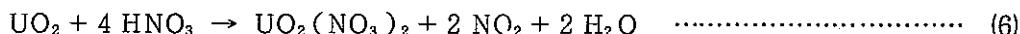
なお、この硝酸根の算出には次式による考え方を用いた。

UO₂の硝酸による溶解反応

硝酸濃度8 mol/ℓ以下の場合



硝酸濃度8 mol/ℓ以上の場合



本試験での溶解酸濃度は8 mol/ℓ以下であるから、上反応式のうち(6)式が支配的である。

したがって、1 molのUO₂を溶解するには2.67 molの硝酸が反応し、消費されることになる。

このため、硝酸根総量の算出には、残留硝酸と反応のみによって消費されたものの和で表わした。よってこの和が減少する場合、系外へ硝酸が出ていることを示す。

$$\text{硝酸根総量 (mol)} = ([\text{HNO}_3] + 2.67 [\text{U}]) V \quad \dots\dots\dots (7)$$

[HNO₃] : 残留硝酸濃度 (mol/ℓ)

[U] : 溶解液中のウラン濃度 (mol/ℓ)

V : 溶解液量 (ℓ)

以上(7)式によって算出した硝酸総量は図-16, 17のように溶解反応中一定であり、ほとんど系外には漏れていないことが分る。

すなわち、溶解槽から蒸発した硝酸は凝縮器、酸回収塔で全て回収され、それが全量溶解槽に置流されていることを示す。これはピン数を2本、4本とした場合でも同じである。一方、硝酸のみによる溶解槽での濃縮効果を調べた結果を図-18に示す。

この場合図-12の置流バルブ(VPF-12028)を開として、凝縮水は全て酸回収貯槽へ送るようにした。初期硝酸濃度が約3 mol/ℓから約8.5 mol/ℓまでの濃縮を実施した。図-18には、硝酸濃度と液量の積である総硝酸量も示したが、この範囲では一定であり、硝酸の蒸発ロスがほとんど見出されていない。

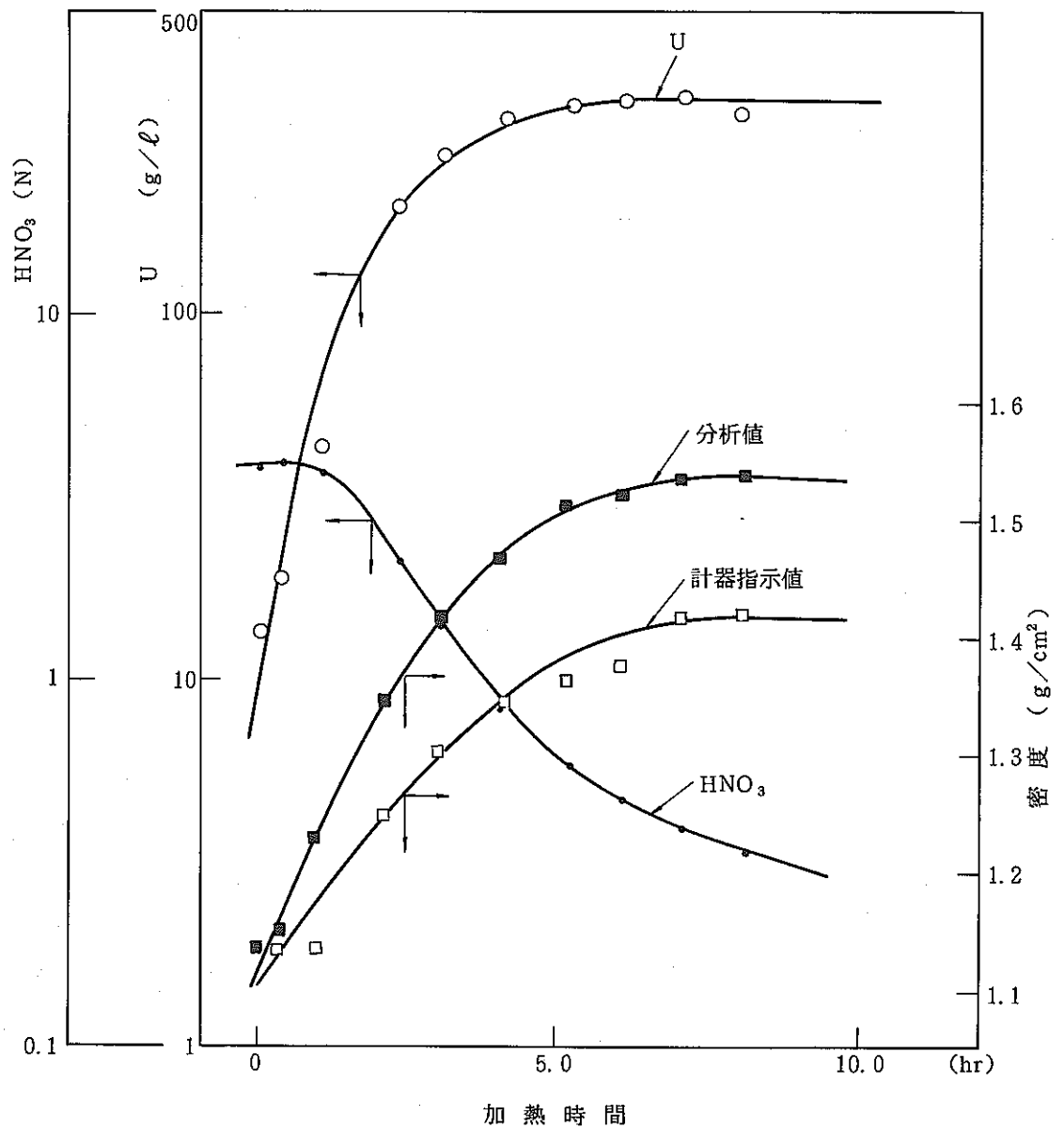
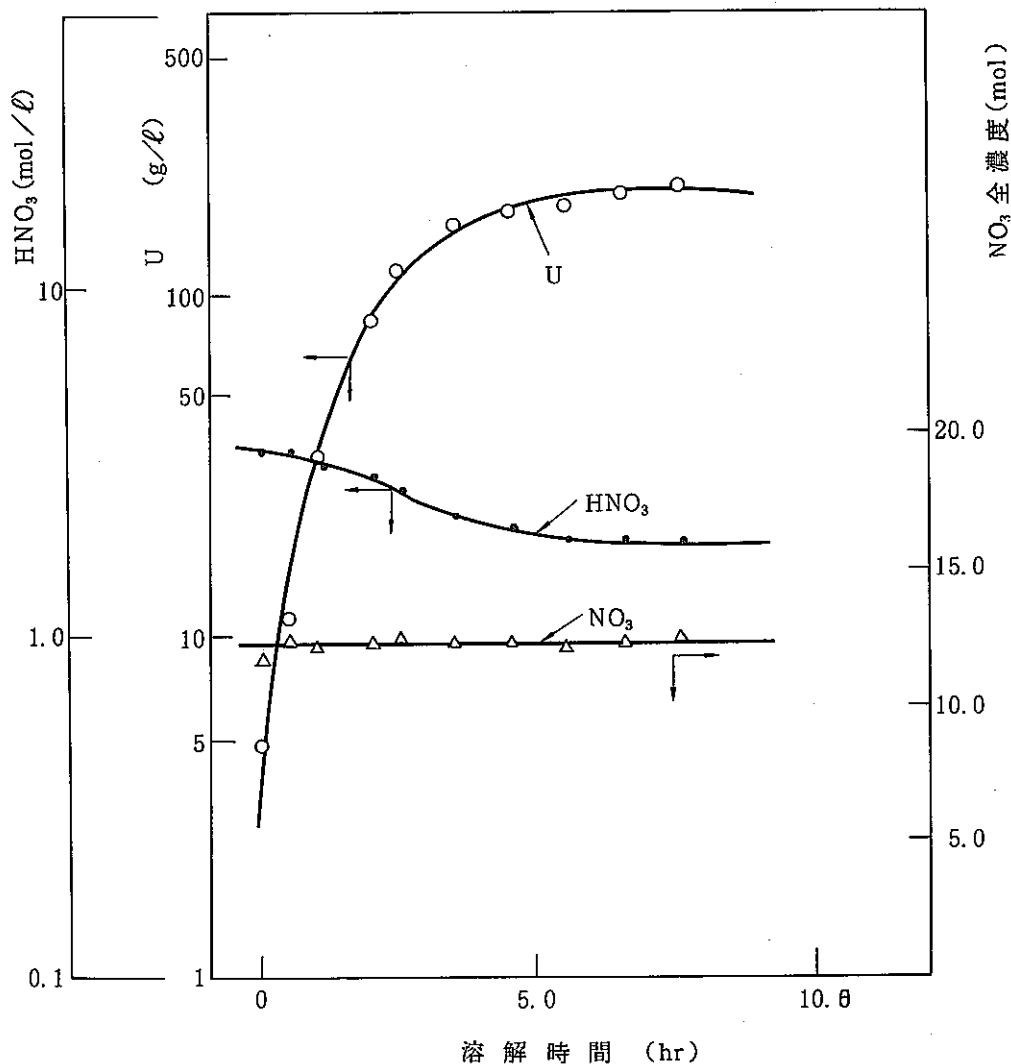


圖-15 溶解液濃度經時變化 (UT-II)



$$NO_3 = [(HNO_3) + 2.67 (U)] V$$

HNO₃ : 硝酸溶液 (mol/l)

U : ウラン溶液 (mol/l)

V : 液量 (l)

図-16 溶解反応中の硝酸収支 (UT-I)

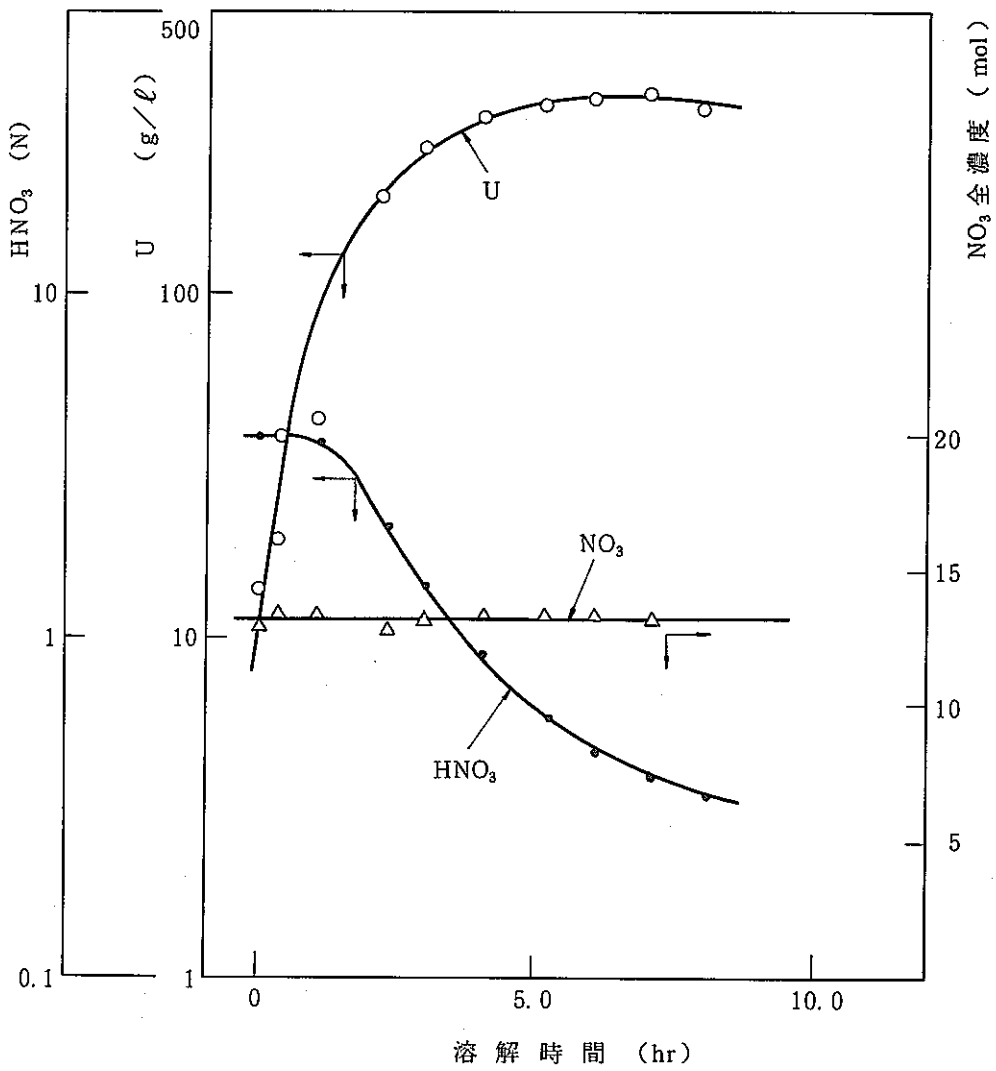


図-17 溶解反応中の硝酸収支 (UT-II)

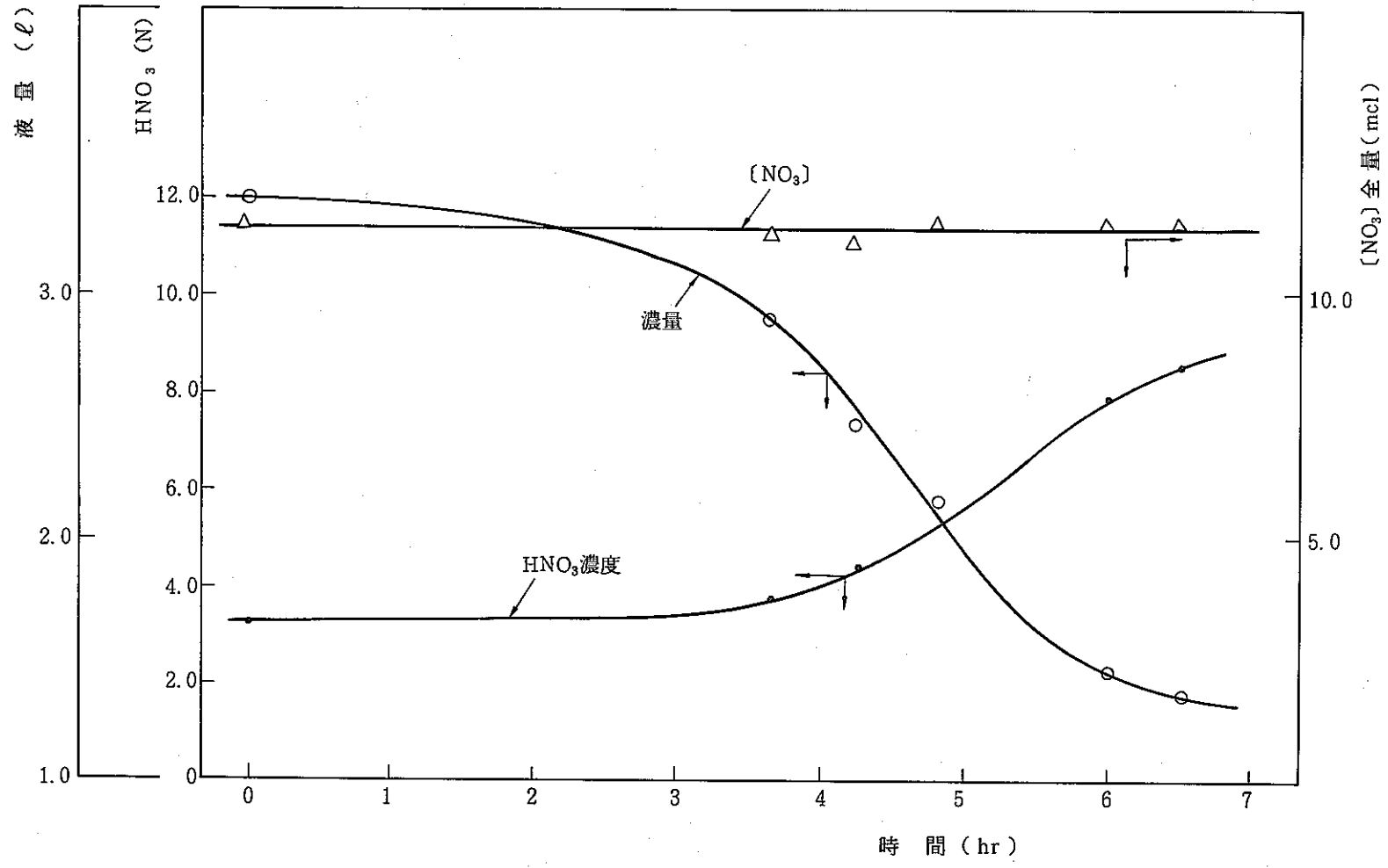


図-18 溶解槽蒸発濃縮試験

以上の結果から溶解槽及び凝縮器、酸回収塔の硝酸回収性能が極めて優れていると判断される。

以上、溶解反応中の監視及び溶解液のサンプリングを実施してきた。が操作上は何ら支障なく行なえることが判明した。

サンプリングについても 200 g/ℓ、400 g/ℓの方においてもニードル内での結晶化による閉塞なども見られず正常であった。しかし、サンプリング針先の問題で減圧サンプルピンに吸引できない場合もあった。これに関しては針先を研ぐことによって解決した。現在針の改良型備品を用意し取替えを完了した。

6) ヒーターの停止と冷却

溶解反応終了に伴ない、溶解槽昇温ヒーターを手動操作で下げ最終的に操作点のスイッチを切った。(約 5 分程度)

その後、溶解槽冷却ジャケットに冷水を送り、冷却を開始した。冷水の流量は 40 ℓ/hr である。冷却の効果はジャケット冷水出口温度、及び槽内液温の監視を行なうことにより調べた。100 ℃から 50 ℃までの冷却には約 30 分要した。

50 ℃以下に達したのち冷却水の供給を停止し自然冷却を実施した。

3. 2. 2.(2) 溶解液移送及び溶解槽洗浄試験結果

1) 溶解液吸引～バスケット乾燥

溶解液および溶解槽洗浄液移送ラインの概略を図-19に示す。

溶解液の吸引には、関係バルブを全て閉とし三方バルブ VPF-12035 を溶解液給液槽 VE-1224 のラインとして、真空ポンプによる減圧を行なう。

槽内圧力計を監視し約 60 cm Hg の負圧に達した時点(約 10 分間)でポンプの電源を切り溶解液の吸引に移った。

溶解液の吸引はまず UPF-12171 又は 12172 のどちらかを開とし、次いで UPF-12034 を開とし昇温した(60 ℃)溶解液の吸引を実施した。この操作を行なうと、溶解液フィルター中の空気による減圧低下(-45 cmHg に低下)が起る。引続いて溶解液が吸引され始める。これは槽内液面計を監視することによって、吸引の割合を見ることができる。

初期液量の 1/2 ~ 1/3 減少した時点で吸引バルブ VPF-1217 又は 12172 を閉とし吸引を停止する。この状態を約 10 分間保ち、溶解液をフィルタ経由で吸引槽 VE-1224 に移す。その後三方バルブ VPF-12035 をオフガスライン側とし減圧の解除を行ない、VPF-12036 を通過させ給液調整槽に移送する。

この操作を数回実施し、溶解液を全て移送する。吸引する際ろ過速度が濃度によってかなり遅くなるため、フィルター中にしばらくの間残る。

続いて、溶解液注入ラインを用いて洗浄液の供給を行なった。第一次試験では、燃料ピンが 2 ピンであるため、1 ℓの洗浄液(0.1 N硝酸)を用い3回洗浄した。

なお第二次試験では3ℓの同洗浄液を用いて3回洗浄し、ウランの濃度から洗浄効果を調べた。

図-20に第一次、第二次ウラン試験で得られた洗浄効果をまとめた。

図-20に示す第一次では1ℓ2回洗浄後約200g/ℓの濃度が約1g/ℓとなった。

一方、3回目の洗浄には同硝酸を3ℓ用いた結果、0.1g/ℓに低下した。また、図-20に示した第二次試験では初期量を4ℓ使い合計3回実施した。

この結果によると、3回目の洗浄では400g/ℓの濃度が、0.02g/ℓに洗浄されていることが分る。

洗浄回数 (回)	洗浄数量 (ℓ)	濃 度		硝 酸 濃 度		Pu 濃度 (推定 g/ℓ)	備 考
		U (g/ℓ)	残留率 (%)	(N)			
0	—	220.18	—	2.18		8	
1	1.0	9.91	1.50	3.31		0.360	
2	1.0	0.79	0.12	0.43		0.0288	
3	3.0	1.13	1.54	0.13		0.369	
0	—	400	—			16	
1	4.0	6.28	2.28			0.547	
2	3.0	0.84	0.228			0.0730	
3	3.0	0.02	0.000543			0.00174	

以上洗浄液を1ℓとした場合、溶解槽内でウラン等が付着している部分まで洗浄を期待することはできない。これは、3回目に洗浄液を1ℓから3ℓまで増加した時の濃度によって明らかとなった。更にバスケットを乾燥後、槽内及びバスケットを観察した結果でも硝酸ウラニル結晶付着の状況から容易に判断できた。

一方、第二次試験では、一回目の洗浄液量を4ℓとした。この理由は4ピン分が完全に洗浄液に浸される液量は3ℓで十分であったが、付着の程度が多いバスケットを完全に浸すためには4ℓの液量が必要であったためである。更に、槽内各点に濃度の高い溶解液を付着させこれらの洗浄の効果も調べた。

洗浄方式は第一次の結果もふまえ、攪拌並びに加熱（沸とう）方式を用いることとした。槽内液を沸とうさせ、約一時間それを保持し蒸気置流による洗浄を併用した。

冷却、移送後槽内の観察を行なった結果、付着したウラン及びバスケット内部は極めて良好に洗浄されていた。

2回、3回目は3ℓの洗浄液を用いて攪拌操作のみによる洗浄を行なった。その結果、ウラン濃度で0.02g/ℓ、Pu推定濃度で1.7mg/ℓとなり十分洗浄が行なえることが分った。こ

れは乾燥実施後目視にて監察した結果でも明らかであった。

また、フィルターについてはウランの場合ほぼ全量溶解されたためフィルターへのろ過物は観察されなかったが、その乾燥方法を調べた。通常のラインを用いてポンプ吸引のみによる乾燥では数時間（10時間実施した結果良好）を要す。又、パワーマニプレーターによる吊り上げ方式では約1時間で十分であった。

ハルの乾燥は槽内に1日放置しておくことにより、かなり乾燥される。又、それを出し、セル内での自然乾燥を更に1日実施することによってより完全に行なうことができた。

2) 溶解液移送ラインの目詰り対策

本溶解槽には吸引ノズルが1本のみで、予備ノズルはその形状、大きさ等から備えていない。不溶解残渣が多いとされる高速炉使用済燃料を溶解する場合この吸引ノズルが万一目詰り等によって、使用不能となった場合を想定し次のような対策をとり、その試験を行なった。

(1) VPF-12079 から吸引ノズルを加圧し、詰りを除去する。(図-21)

(2) サンプリング口からテフロン管を入れ、VPF-12079 のラインを用いて吸引する。

(図-22)

(1)については遠隔で操作ができることを確認し、槽内部を観察し良好であることを確認した。なおこの場合、加圧の状況によっては問題となるため、槽の蓋を開放し、液飛散の防止を図ったうえで実施することが望ましい。

(2)については予備ライン的なものであり、6mmφのテフロンを用いることにより現状の吸引ノズルとほぼ同程度吸引できることを目視にて観察した。遠隔操作上も確認した。

3) 不溶解残渣の抜き取り

不溶解残渣の除去法として真空ビンによる減圧吸引法を選定し、ステンレス微粒子を対象にして仮設ラインで試験した。この結果、溶液中に存在する粒子については十分に吸引できることが分った。

4) 溶解したウランの天秤による計量

溶解試験後、バスケットおよびハルを乾燥し、セル内天秤を用いて重量測定を行ない、溶解槽内へ挿入したウランの実質量を求めた。

試 験	溶解前重量	溶解後重量	容器重量	UO ₂ 重量	ハル重量
第 一 次	2951.7 (g)	2300.5 (g)	2053.2 (g)	651.2 (g)	247.3 (g)
第 二 次	3844.5 (g)	2617.8 (g)	2067.9 (g)	1226.7 (g)	549.9 (g)

これらの測定の際ハルの観察（目視）を行なった結果洗浄効果の良好な第二次試験ではウランの付着はまったく見出されなかったが、一次試験ではバスケット内およびハルの部分にウラン付着が確認された。

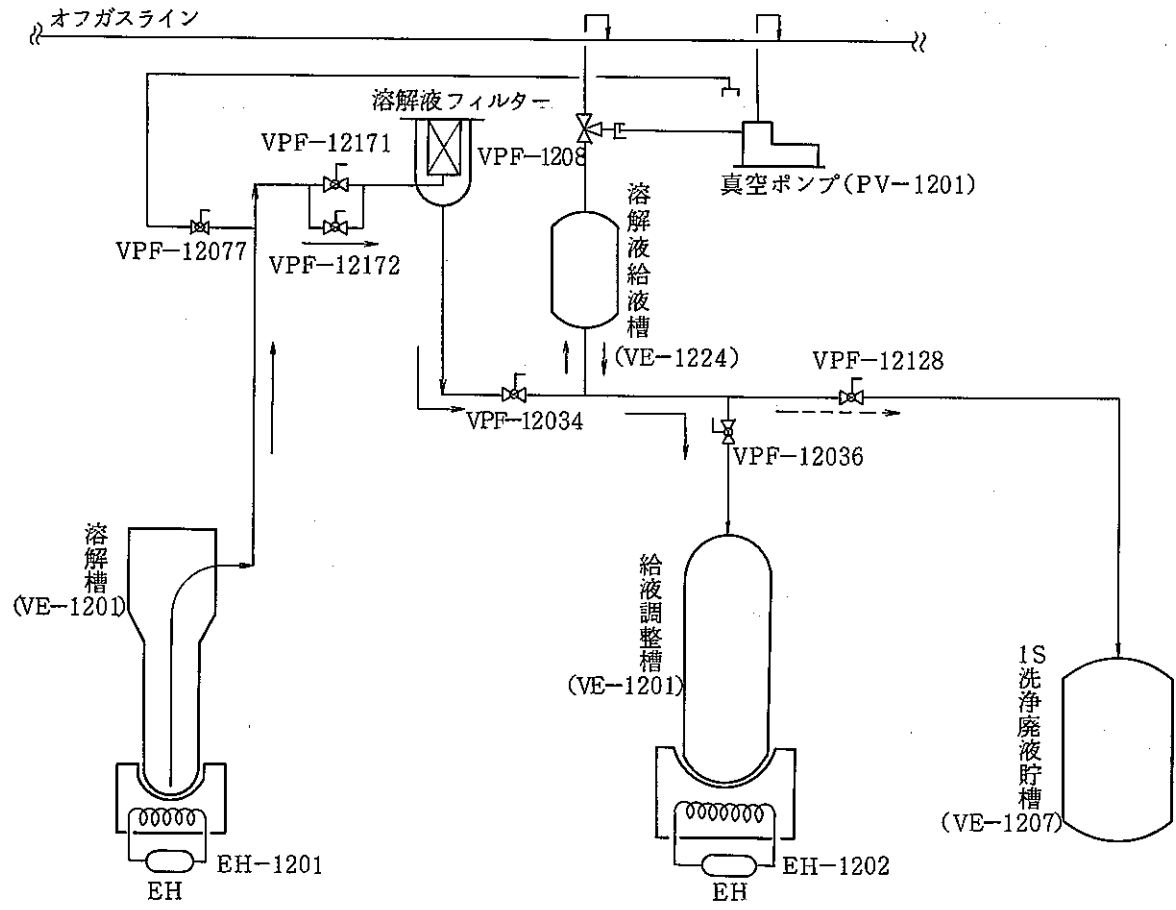


図-19 溶解液, 洗浄液移送ライン

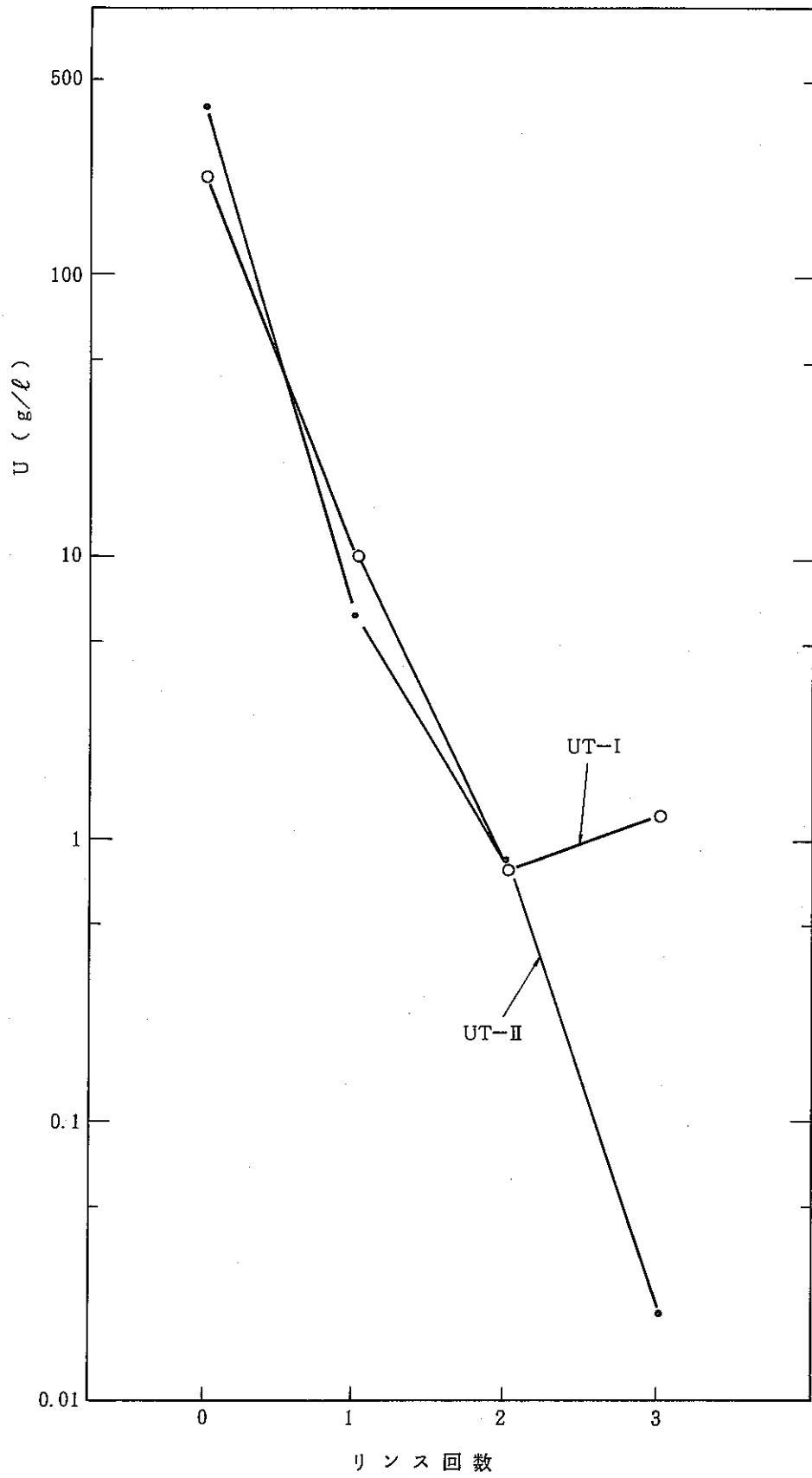


図-20 溶解槽内洗浄効果 (UT-I, UT-II)

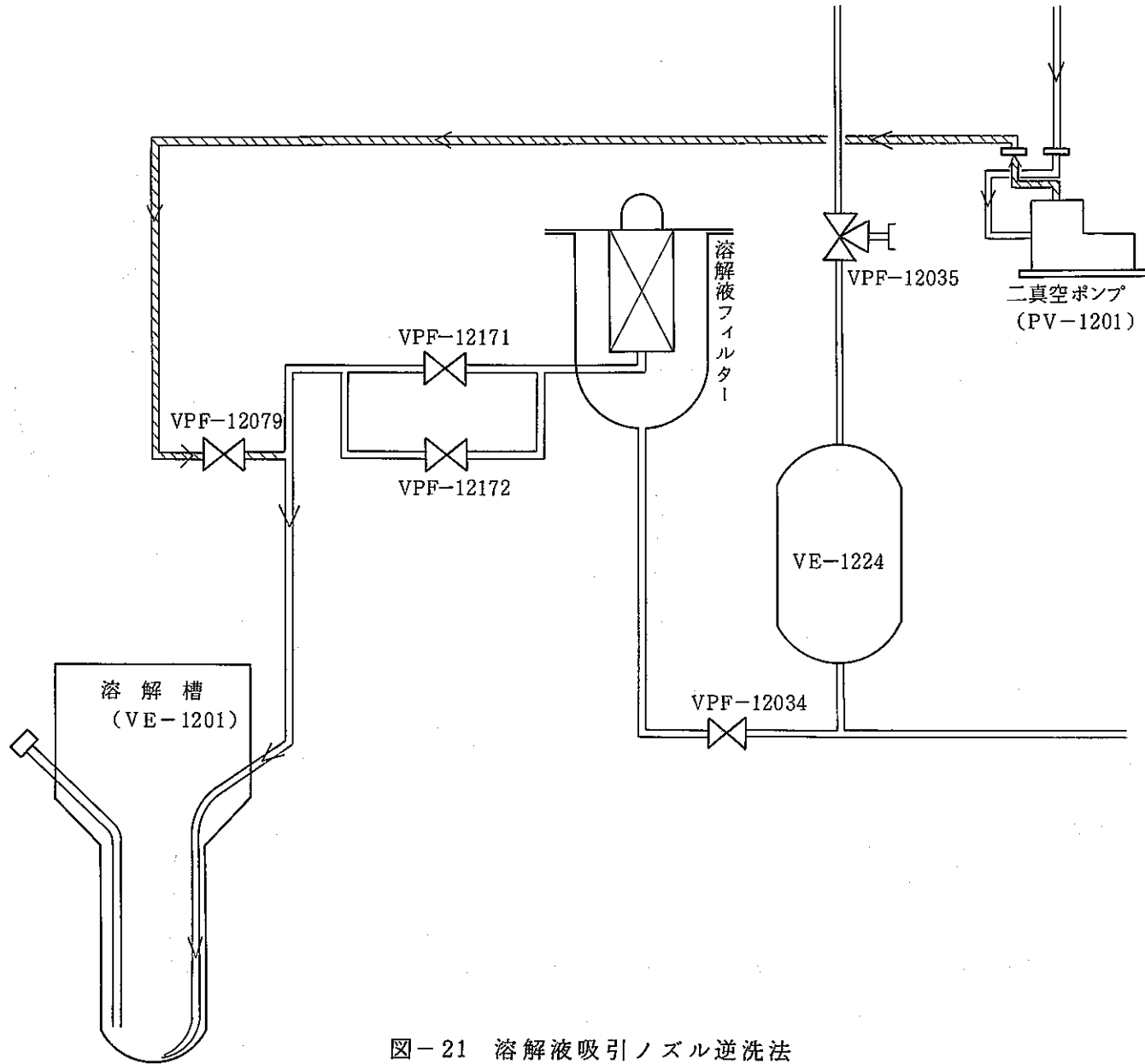


図-21 溶解液吸引ノズル逆洗法

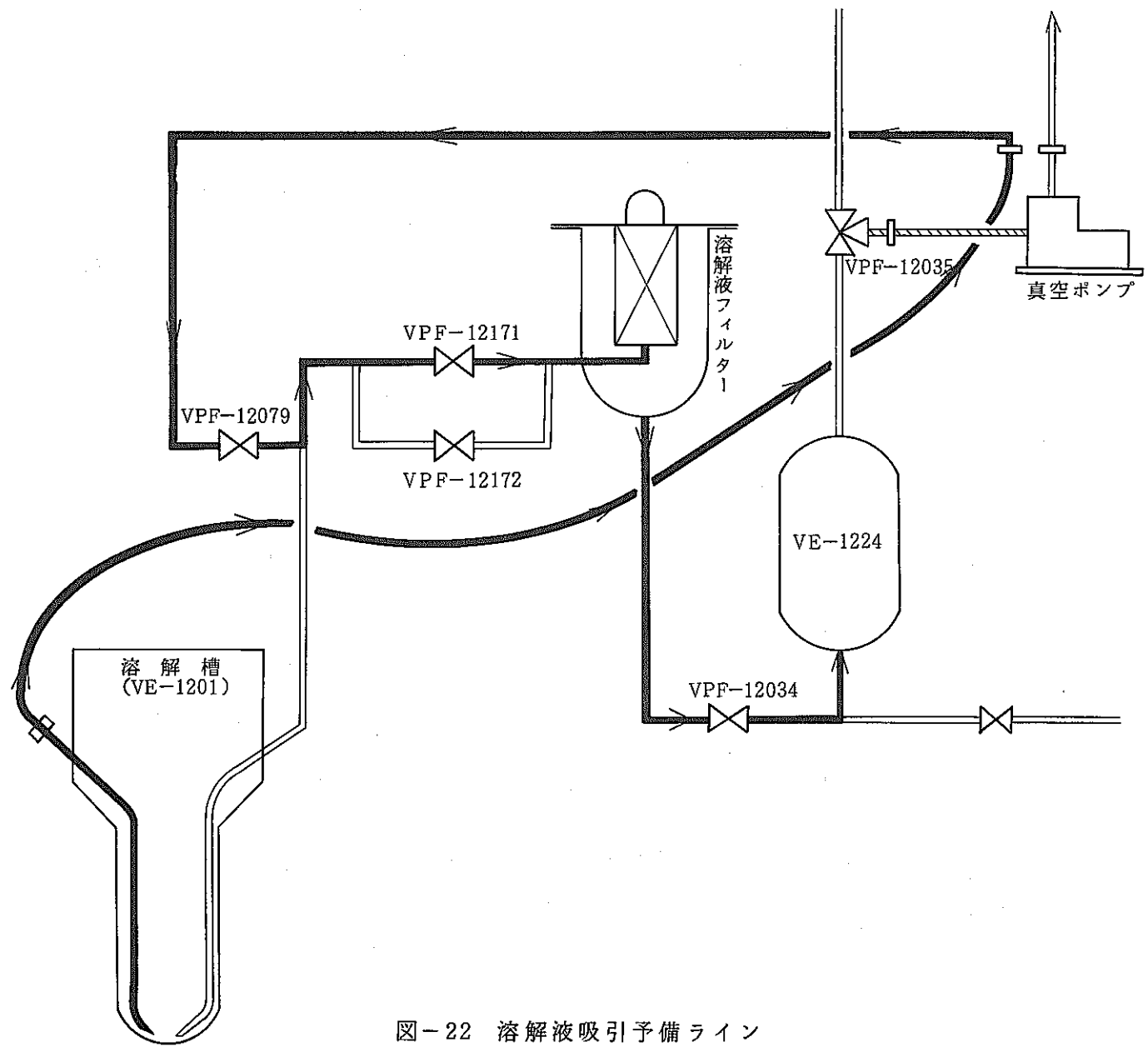


図-22 溶解液吸引予備ライン

3.2.3. 溶解試験まとめ

1) 燃料溶解試験のまとめ

第一次試験で2ピン、第二次試験で4ピンの剪断燃料を対象に約5 mol/lの硝酸による溶解試験を実施し、関連機器の性能、付設の計器による工程監視範囲の把握、更にはマニプレーターパワーマニプレーターを用いた遠隔操作の習熟を図った。

溶解反応の終了ポイントの確認については布設の密度計指示によってほぼ明らかとした。なおこの値は温度が沸とう点に近い場合直接ウラン濃度等を求めることはできないと共に変動を伴う。しかしながらホット移行時においても本溶解試験は今回実施した。ウラン溶解試験と同じ手法で行なうと判断される。このため溶解液の酸、ウラン等の分析を実施しつつ進めるため、より確実なものとする事ができる。その他、警報関係の作動確認も本試験中に実施し、正常であることを確認してきた。

項 目	内 容
溶解酸供給ラインの空気抜き	溶解酸供給ラインに空気抜きバルブを取り付け重力流で確実に注入できるようにした。
密度計による酸濃度決定	硝酸温度対密度計指示値との対応を図った。又ウランが微量に存在する系（溶解初期）での密度補正を行ない分析前の硝酸濃度を求める式を決定した。
溶解液のサンプリング	常温から沸点までの範囲において減圧法による溶解液サンプリングを実施した。温度、濃度（～200 g/l, ～400 g/l）による影響なし、ただし、針先の影響大であった。改良型サンプリング針を購入し取替えを完了した。
加熱方式の再確認	槽内温度を上げるため初期には手動でほぼ目的とする温度に達したのちは自動コントロールで行なった。
ヒーターの監視	通電中のヒーターの監視はその時の温度変化を読むことによって行なわれるが、これを供給電流値を読むよう改善したい。
ヒーターコンセントの互換性	万一コンセント部の接触不良が生じた場合の対策として、調整槽用ヒーター回路も利用できることを図面上確認した。
溶解液の結晶化	200 t/l, 400 t/lのウラン溶解液は常温まで冷却しても、サンプリング針あるいは槽内で結晶化することが無かった。
使用治具の有効性確認	本試験に必要な治具は2点ある。これらを遠隔操作に主をおき用いた結果必要な操作をスムーズに進めることができ有効であった。
反応中の監視	反応中は密度、圧力、液面、温度と付随設備の温度が監視できる。これらのうち、密度、圧力についてはある変動を共なう場合によっては、圧力高（-55 mmH ₂ O）のレベルに達し、安全回路が作動する場合も

項 目	内 容
緊急冷却試験	ある。このため更に槽内負圧を深くするため抽出工程側に対策をとった(次頁で述べる) 実験室Aの貯槽に純水を張り、バルブスイッチを押した後溶解槽内に冷却用純水が満たされ槽内温度が40℃以下になったためその効果が確認できた。

2) 溶解液移送, 洗浄のまとめ

移送については現在のラインで十分であり、200 g/l, 400 g/lの溶解液についても何ら支障は無かった。

ただ液の物性によりフィルター通過速度の差から生ずる多少の時間ずれが生じた。しかしながらこのずれは他の操作と比較し大きな問題となるような値では無かった。

洗浄液量とその回数については、ウラン試験の結果では4 l, 3 l×2の合計3回実施すれば十分である。なお実際の場合、分析によって濃度を確認しつつ行なうことになる。

次表にこれまで実施した対策とホットまでに確認しなければならない項目をまとめた。

項 目	内 容
溶解液吸引バルブの追加と目詰り対策	VPF-12171, 12172 および 12079 のバルブとそのラインを追加し、吸引ノズルの目詰り除去用とした。
溶解液フィルターの改善	フィルター吸引側を改善し、ろ過物等がライン中に逆流しないよう改善した。
真空ラインの新設	現在の真空ポンプ(PV-1201)が使用不能となった場合を想定し、CA-4共通の真空ラインを新設する(ホットまでに)。

3.3 調整工程

3.3.1 工程の概要及び試験項目

溶解工程と同様調整工程においてもPu濃度は軽水炉再処理と比べかなり高い。調整の主目的は次工程である抽出工程への最適抽出条件の提供であり、酸濃度、核物質濃度、原子価調整が主である。

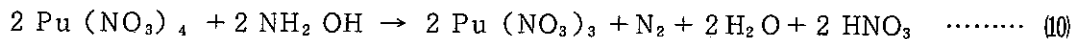
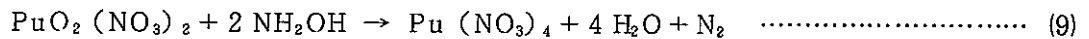
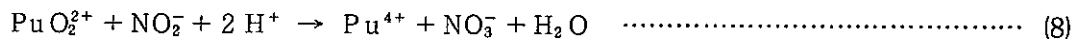
まず、濃度調整においては溶解条件との関係で軽水炉型で十分実績のある硝酸濃度(3M)と核物質濃度(200 g/l)の関係に調整することが困難となる場合が考えられる。このような時にはどちらかをこの濃度に調整することになる。

また原子価調整では前出したPuの溶解反応で生ずるPuO₂²⁺をPu⁴⁺に還元することが主目的

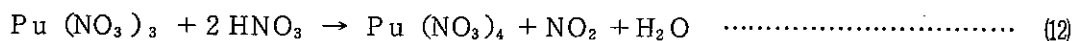
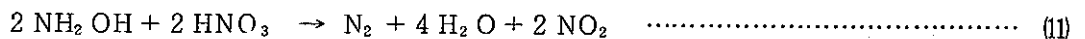
となる。軽水炉に比べ PuO_2^{2+} もかなり多くなると見積られ、溶解時の PuO_2^{2+} の挙動を調べることも極めて重要であると共に Pu^{4+} に動半的に還元する方法を確立することも重要な項目である。

現時点では亜硝酸イオンによる調整法が第一候補とされ、そのように設備も組まれている。この他エクソンではHANによる調整法が提案されており注目すべき点がある。

亜硝酸イオンおよびHANによる原子価調整を次式に示す。



上記反応で(9)は非常に速く又(10)式は極めて遅く進行する。この溶液を $50 \sim 60^\circ\text{C}$ に加熱すると未反応のHAN及び(10)式によって生成した微かな Pu^{3+} は硝酸と次のように反応し、 Pu^{4+} に統一される。



調整工程については調整槽には溶解液及び溶解槽内洗浄液が送られるため溶解液は洗浄液によって希釈される。その希釈割合はその時の濃度によって異なるが、いずれにしても初液に比べ $1/2 \sim 1/3$ になると思われる。本ウラン試験の場合でも洗浄液を廃液として扱うレベルまで洗浄するには約7ℓの洗浄液が必要であった。

このため本工程では蒸発濃縮操作と酸、ウラン（ウルトニウム）の濃度、原子価調整が必要な操作となる。

これらはいずれもセル外からの遠隔自動制御が主であり、マニプレータによる遠隔操作はサンプリングのみであった。

図-23に調整工程に関するフロー図を示した。まず調整槽の濃縮操作で発生した蒸気成分は、オフガスノックアットポットZV-1218を経由してオフガス凝縮器HE-1401へ送られる。ここで凝縮した成分は酸回収貯槽へ又、オフガスについては洗浄塔TW-1404にそれぞれ送られる。

本試験では、濃縮操作も含む調整作業が現状の監視計器で十分対応できるか、又関連設備の性能は十分かなどを調べると共に調整操作の訓練と理解度を深めた。

3.3.2 調整試験結果

1) 蒸発濃縮試験

第一次試験では初濃度 $144\text{g}/\ell$ から第1サイクル給液濃度である。 $200\text{g}/\ell$ 以上まで濃縮を行なった。この濃縮に伴って硝酸収支を分析結果から求めた。

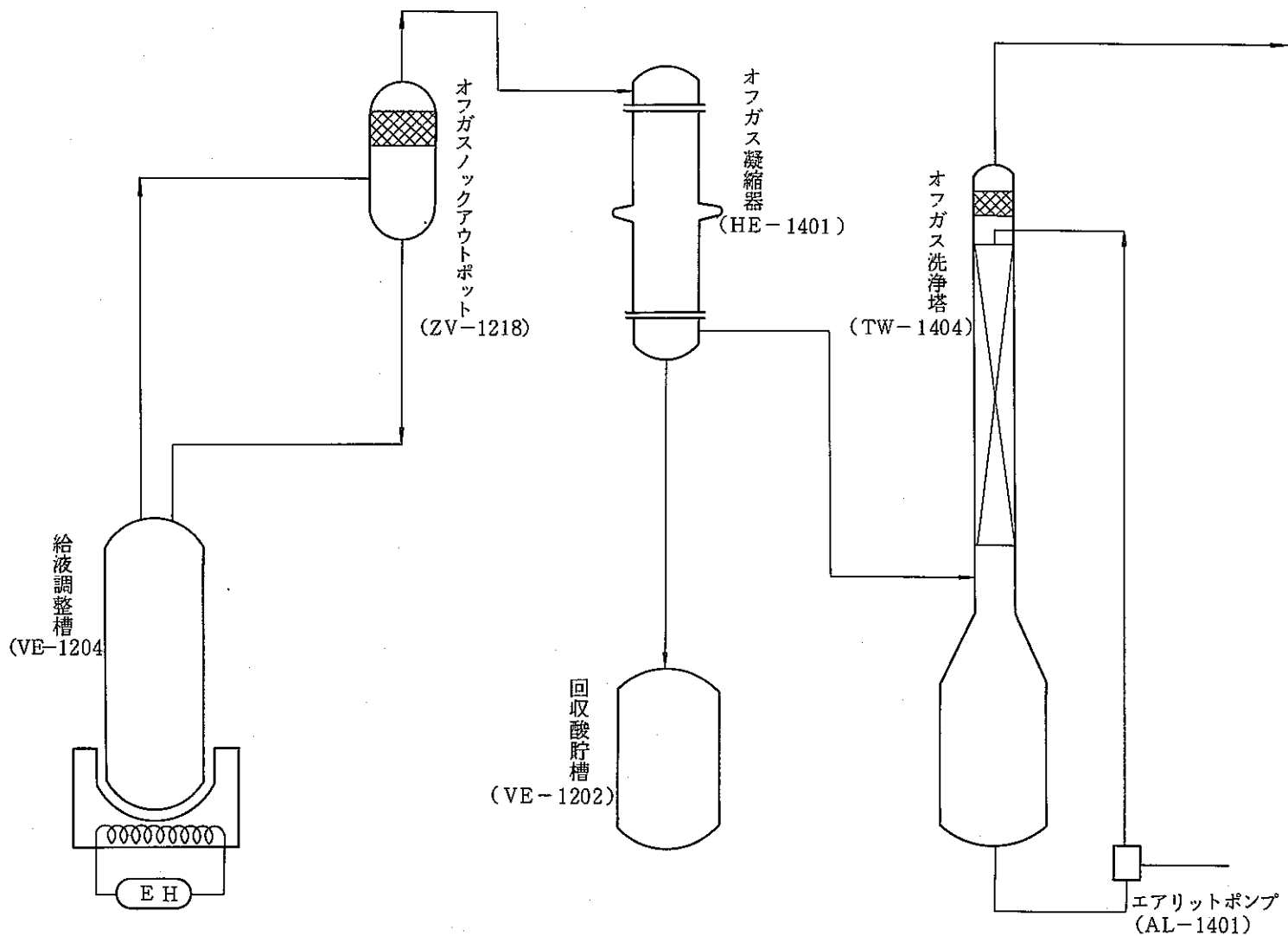


図-23 調整工程フロー

硝酸総量と液量、濃度の変化を図-24に示す。この結果から本調整槽においては硝酸の総量が一定であり、硝酸の全てがオフガスノックアウトポットで還流されていることが分った。又、蒸発した水分は収支から全て凝縮され、酸回収塔に送られていることが確認できた。この傾向は第二次試験でも同じであり、酸の蒸発によるロスは考える必要がないと判断される。一方、槽内液の各度計については、濃縮が進行し4.7ℓ以下に達するとパージ管が液面から離れ密度の測定ができない。通常の操作の場合（4・ピン分）6ℓが限界直であり濃縮中全て密度監視はできる。しかし溶解工程でも述べたように沸とう状態での密度指示値は変動を伴う。又その値から直接濃度に換算できない。したがって濃縮中は液面変化から濃縮度を求めることとした。正確には分析する必要がある。

原子価調整に関しては、NO_xによる調整ラインがあり、今回の場合、空気のみ供給した。本調整についてもプルトニウムの原子価分析を併用しながら、調整を進めることとなる。

2) 材料腐食試験

溶解槽や調整槽では、ヒータによる加熱、昇温、濃縮などが行われるため、溶解、調整時に起こる材料腐食を評価しなければならない。

上記2槽のうち溶解槽については燃料、被ふく材並びに構成材による影響が考えられるため、調整槽を対象として材料腐食の検討を行なった。なお調整槽と溶解槽は同一材料(SUS304L)を用いており、かつ溶解時と同様な加熱操作を必要とするとともに加熱部、接液部等が溶解槽より著しく大きい。

したがって調整槽による評価結果は溶解槽にも適用できると判断した。

調整工程の試験において、ステンレス成分の分析を合わせて行なった。その結果を次に示す。

	Fe	Cr	Ni	条 件
初 濃 度 (mg/ℓ)	61	12	96	槽内液温 100℃ にて 12 時間の 濃縮操作
液 量 (ℓ)	12.3	12.3	12.3	
全 量 (mg)	750	148	1181	
調整後濃度 (mg/ℓ)	200	37	310	
液 量 (ℓ)	3.66	3.66	3.66	
全 量 (mg)	732	135	1135	
濃度増加量 (mg)	—	—	—	

以上の結果から調整操作中（濃縮）にFe、Cr、Niの増加は見られず、本条件のもとでは材料腐食が検出されなかった。

更に今回実施した条件は12時間の操作であり、溶解槽の運転もほぼこれに近い。化学試験では溶解槽から調整工程までの一連の操作の中での最終温度を求めたが、Fe、Crについては

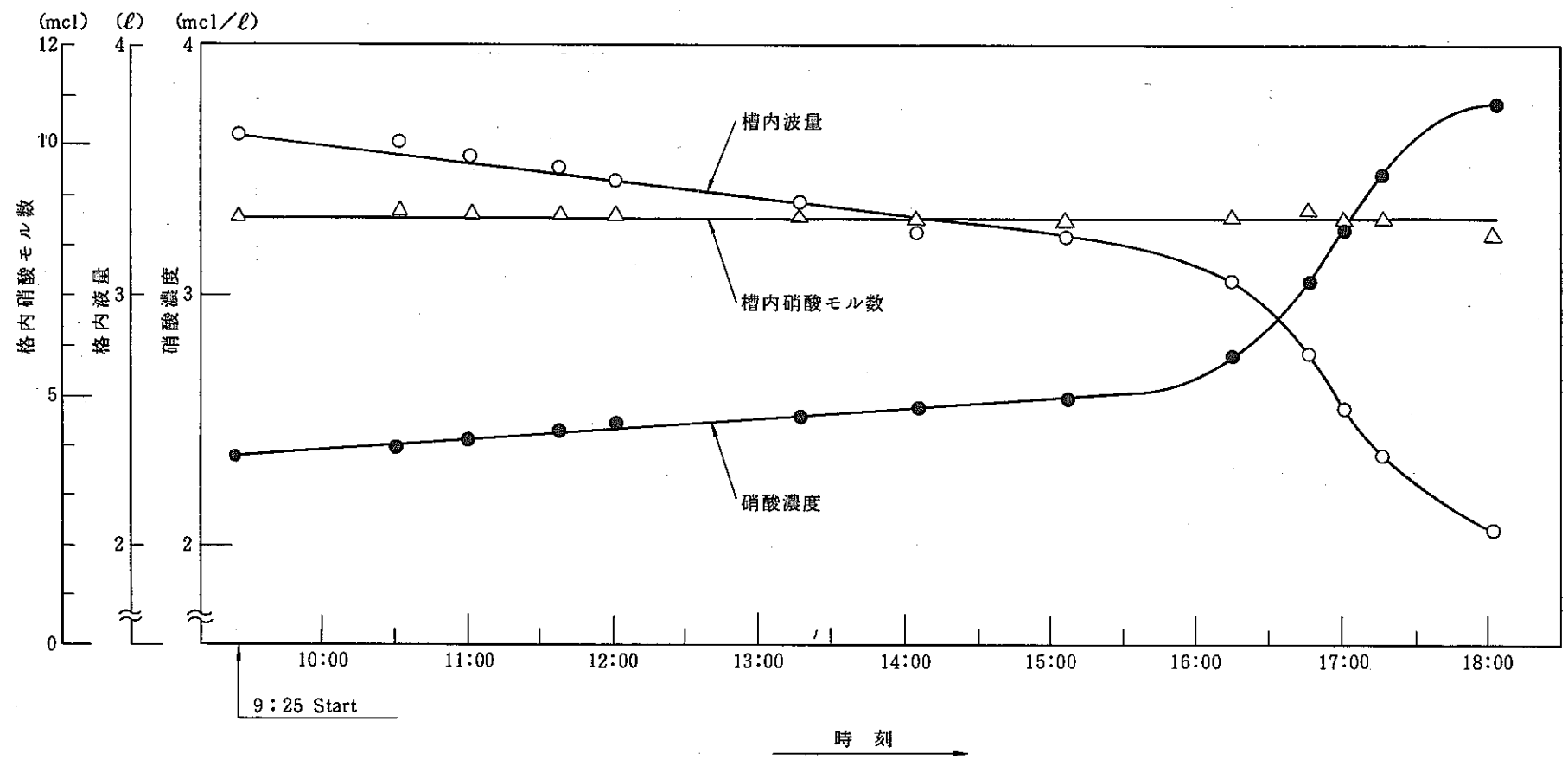


図-24 給液調整槽蒸発濃縮試験

ほぼ本試験と同濃度になった。Crについては逆に低くなり、空ピンとの差が生じたようである。

今回の試験では硝酸濃度 1 N から 9.66 N まで(化学試験も含む)実施したが材料の溶解に関する顕著な結果は出なかった。

3.3.3 調整試験まとめ

次表に本試験までに明らかとなった項目、手直し、改善した内容更にはホットまでに実施しなければならぬ事項をまとめた。

項 目	内 容
密度測定範囲	調整槽の密度計用パージ管は最低液量 4.7 ℓ となっており、それ以下の場合密度指示ができない。(注意事項)
調整液の供給方法	調整液(酸、純水)の必要量が 3 ℓ 以上の場合、既設のラインでも十分調整できるが、それ以下の場合、液シールの点で誤差が生じる。このため少量の液を供給する治具を試作し試みた。その結果極めて精度が良く効果的に調整できることが分った。(現在準備中)
サンプリング	既設のサンプリングシステムで十分対応できる。
槽内負圧、温度	蒸発濃縮を効果的に行なうには温度を沸点まで上げる必要がある。(80 ℃ との比較の結果)。又沸点で行なっている場合、オフガス系に変動が生じ -55 mmH ₂ O 以上に達すると、安全回路が作動し、濃縮操作が停止する。再起動するには槽内負圧が安定になったのち実施する。
NO _x ラインの改善	試薬供給室にある NO _x ラインの改善を図り明確化した。

3.4 抽出工程

3.4.1 工程の概要及び試験項目

A 系列の抽出工程は第 1 サイクル (MS-1201, 1202), 第 2 サイクル (MS-1204, 1205, 1206) 並びに第 3 サイクル (MS-1208, 1209) から成り、合計 7 台の抽出器で構成される。

第 1 サイクルの抽出器及び第 2 サイクルの MS-1204 は CA-3 セル内に、残る第 2 サイクルの抽出器と第 3 サイクルについては CA-4 セルに設置されている。

これらの抽出器は全流量 200 ~ 800 ml/hr で再処理工場と比べ約 1/2000 の規模であり、1 段当りセトラが 17 ml, ミキサーが 6 ml の容量で 16 段用と 19 段用の抽出器が用いられている。各サイクルの試験について特に次の点に着目した。

- (a) 抽出工程の運転前準備をどのような方法で行なうか。
- (b) 各種試薬供給ポンプの安定性は十分か

- (c) 運転中の界面の安定性及び調整法の確認
- (d) 運転中の抽出器監視法
- (e) 抽出器からのサンプリング法
- (f) サンプルの分離法（水相／有機相）
- (g) 抽出器内洗浄法
- (h) 段数変更は遠隔で容易に行なえるか
- (i) 操作マニュアル上十分か

抽出フローシートは基本的に軽水炉型であり、図-25のように第1, 2, 3サイクルから成る。この中でウラン試験に先立ち、各ミキサセトラへの供給液の名称を図-26のように統一した。

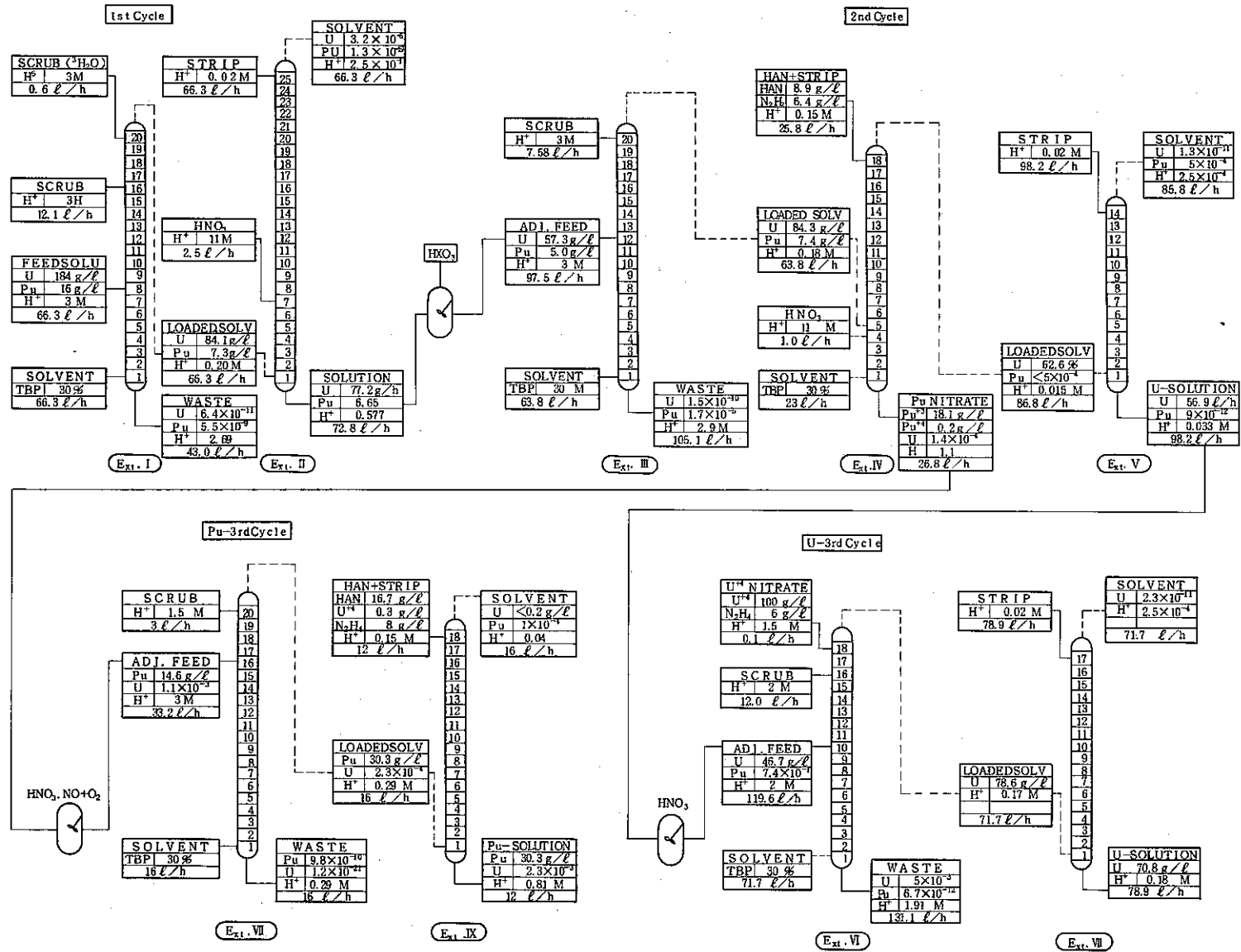


図-25 抽出工程フローシート

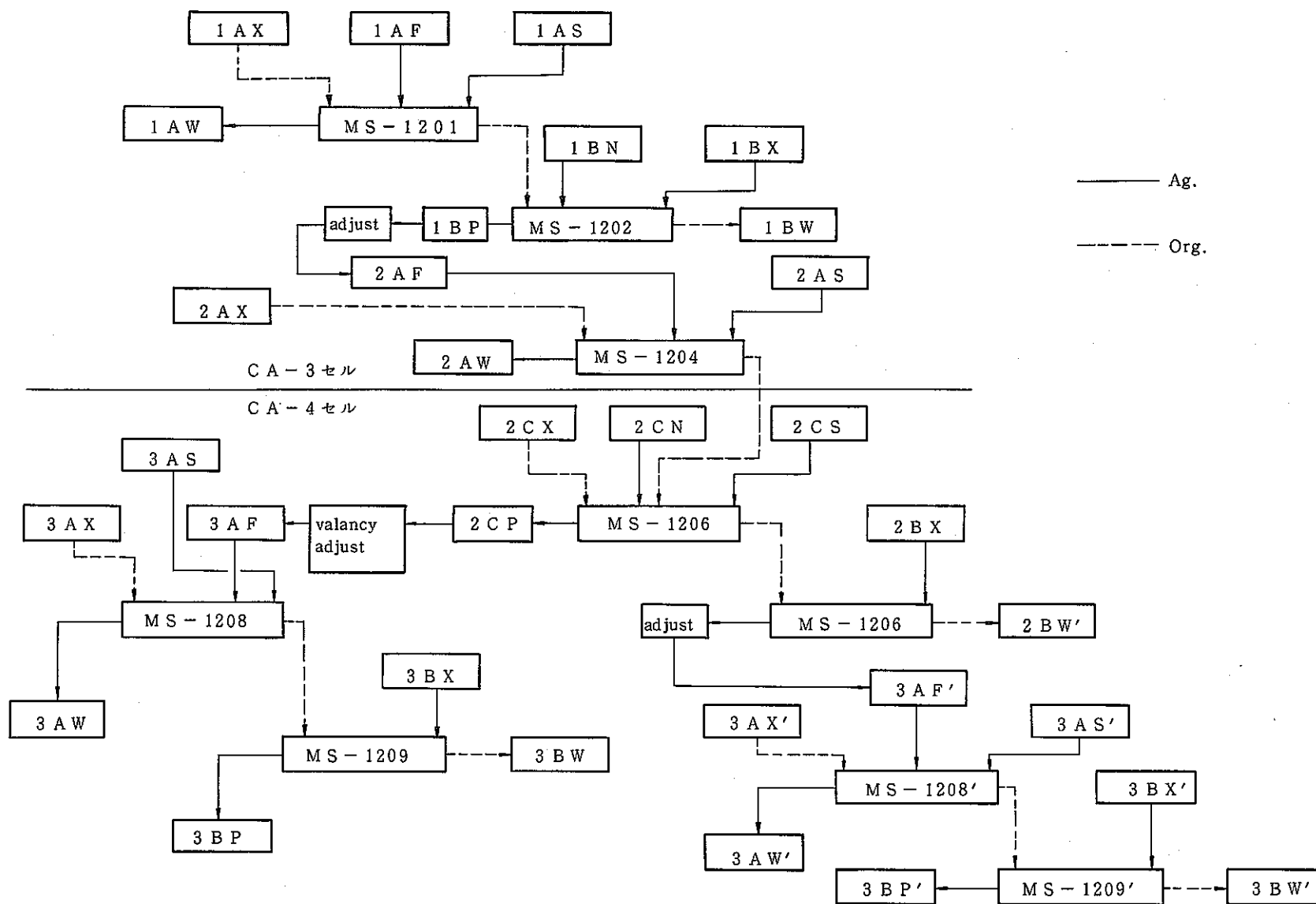


図-26 供給液名称

3.4.2 抽出試験結果

1) 運転準備

第一次ウラン試験では、運転準備の一項目である抽出器内液張りを3種選定し、第1サイクル、第2サイクル、第3サイクルをそれぞれ試みた。

まず第1サイクルでは有機相、水相の既設ポンプ及びそのラインを用いて、抽出機各段にそれぞれ約10mlずつ液張りを実施した。又、第2サイクルでは有機相、水相の既設ポンプの全てを作動させ所定の段（フローシート条件）から供給し、液張りを行った。

一方、第3サイクルでは、あらかじめ抽出試験に用いる試薬をセル内の試薬ビン（洗浄ビン）に入れておき、専用の注入治具を用いて各段に有機相、水相を注入した。

これらの3者を第一次試験で試み比較検討した。

その結果を下表に示す。

試 験	結 果 及 び 内 容
第 1 サイクル	MS-1201には1AS (3NHNO ₃) をポンプ流量100%にて注入、1段に約10cc張ったのちポンプを停止し、次の段に移った。有機相についても1AX (30% TBP) を同方法で、MS-1202についても1BX (0.02NHNO ₃) を同方法で注入した。この場合、ポンプを停止しても供給は停止せず液の飛散が生じた。
第 2 サイクル	MS1204, 1205, 1206 に関係するポンプをフローシート条件に従い注入した。当初抽出器内液が無い場合、水相給液段付近は水相のみ、有機相給液段は有機相のみが充満し、水相出口から有機相、有機相出口から水相が流出することになった。
第 3 サイクル	NS1208, 1209 を対象に洗浄ビンによる注入方式で実施、なお注入箇所には別途製作しておいた注入治具を用いた。本法はマンプレターによる遠隔操作が主となるが、注入液量、注入速度などから最も効果的であった。操作性についても特に支障がなかった。

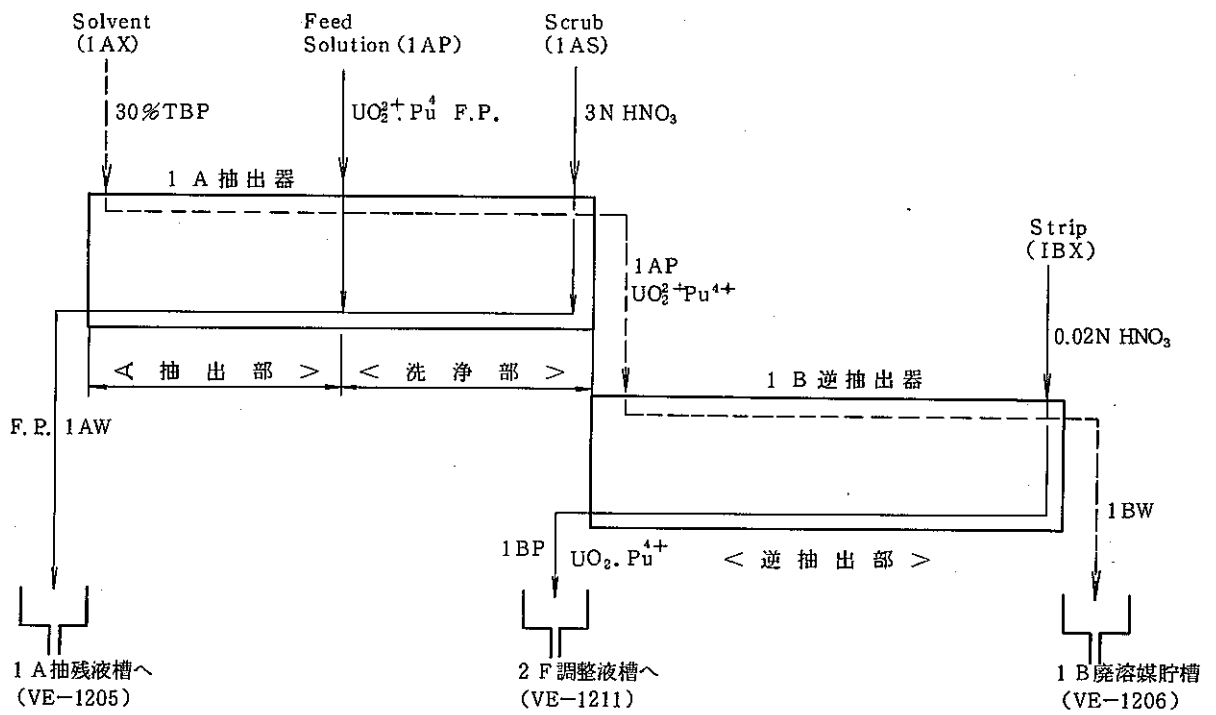
2) 第1抽出サイクル試験

本工程の試験は第一次試験で実施した。フローシート条件を図-27に示す。

抽出器の液張り後、ウラン調整液の替りにセル内の仮設タンクにウラン調整液と同濃度硝酸を入れ、これを供給しMS-1201, 1202の抽出器を作動した。合せて、第1サイクルに関する全てのポンプをセル内供給方式に初換えた。

この運転は酸平衡ランである。この運転中セル内供給ラインに変更したポンプの流量安定性、抽出器内界面の安定性、調整等を実施した。この酸平衡ランを実施中、抽出器出口からのサンプリング方法の確認と訓練を行った。

図-28には、ウランを供給したのち抽出器出口中のウラン濃度、酸濃度の経時変化を示した。供給したウランは抽出剤(TBP)に抽出され、1APから流出する。



- (1) $UO_2^{2+} + 2 NO_3^- + 2 TBP \rightleftharpoons UO_2(NO_3)_2 \cdot 2 TBP$
- (2) $Pu^{4+} + 4 NO_3^- + 2 TBP \rightleftharpoons Pu(NO_3)_4 \cdot 2 TBP$
- (3) $F.P.^{n+} + n NO_3^- + m TBP \rightleftharpoons FP(NO_3)_n \cdot m TBP$

図27 抽出第1サイクルフローシート条件

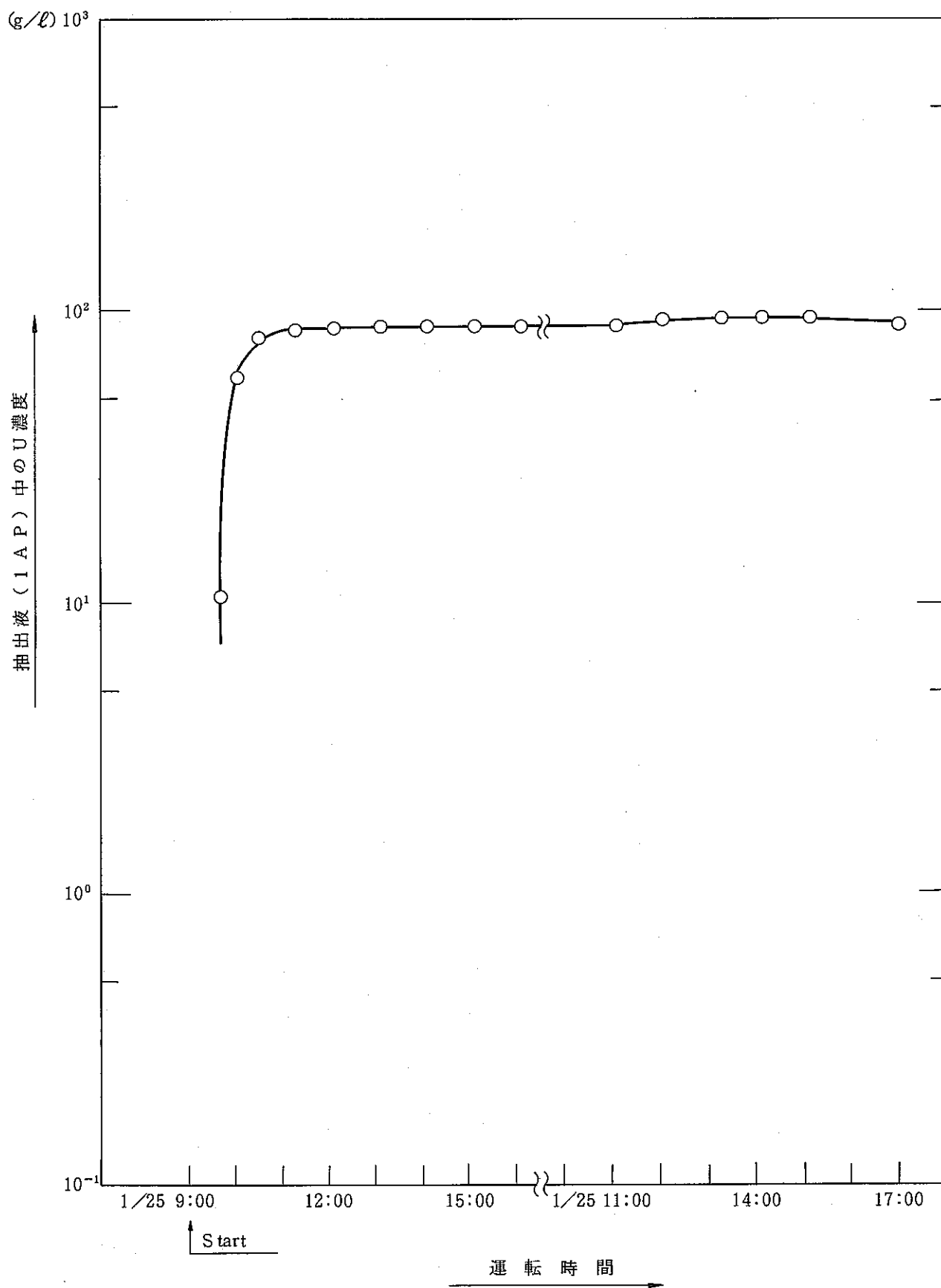
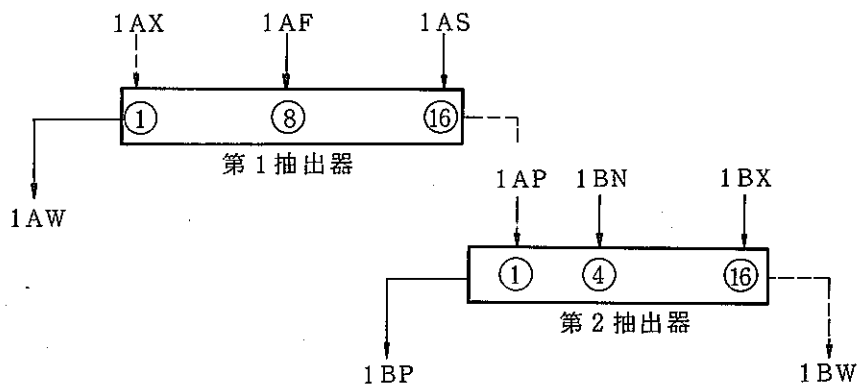


図-28 MS-1201 (抽出第1サイクル) の平衡到達時間の測定

出口（1AP）中のウラン濃度から、供給開始後 1.5～2.0 時間で一定に達することが分った。又、図-29 については約 2 時間以降で一定となり始める。

これらの物質収支を次にまとめた。



抽出第1サイクルにおけるウランの物質収支

	1AF	1AW	1AP	1BP	1BW
濃度 (g/l)	194	-	92.24	67.1	-
流量 (ml/hr)	101.9	142.7	223.2	286.8	223.2
濃度×流量 (mg/hr)	19768.6	-	20587.9	19244.3	-
物質収支 OUT/IN	1	-	1.04	0.993	-

以上の結果から、第1抽出器に供給されたウランは1AX（30%TBP）に抽出され第2抽出器に送られる。ここでウランは1AX（0.02NHNO₃）で逆抽出されて1BPから流出する。

これらの濃度、および流量から供給全量（mg/hr）と、吐出全量（mg/hr）とを求め、ウランの物質収支を得た。第1抽出器では供給全量に対し1AP側への1.04であり、又、第2抽出器では0.973となり、供給ウランのほとんどがTBPに抽出され、かつストリンブ硝酸で水相に逆抽出されている結果となった。

この確認は、1AW、1AP、1BP、1BWのサンプリングを運転中約1時間おきに遠隔で行い分析したことにより得られたものである。

図-30には、第1抽出器、図-31には第2抽出器のウラン濃度分布を示す。

以上、第1サイクルの運転で明らかとなった事項、ホットまでに改善すべき事項を次表にまとめた。

項 目	内 容
微量ポンプの安定性	特に1時間30 cc以下の流量を必要とするポンプの安定性が悪く抽出器内のウラン挙動に与える影響が大であった。このため、セル内供給方式に切換える必要がある。 (次試験で確認する) 確認の結果有効であることが分った。
運転中の監視とサンプリング	抽出器内の界面およびウランの色についてはセル外の窓、ペリスコープ等での観察は極めて困難であった。特に色についてはまったく判断できない。このため、これらの監視が行えるようファイバースコープを準備中である。一方、抽出器出口のサンプリングについては運転中全て遠隔で実施した。
ポンプ運転モード	抽出試験中はセル内供給方式に、又一時抽出試験を停止停止(バッチ式)する場合はリサイクル方式に切換えポンプの運転を停止しない方式が良い。
平衡データ採取用サンプリング	抽出平衡を確認したのち、抽出器運転を停止し、各段から有機相、水相を減圧法にてサンプリングした。本操作についても遠隔で実施し、各段からサンプリングできることを確認した。
有機相、水相の分離	抽出器から採取した試料は有機相、水相が混合しており、分析サンプルとするにはこれらと分離する必要がある。本試験では市販器具を用い、液相分離3紙による分離を試みた。その結果1サンプル当り約10分で分離が完了し、分離性、遠隔性も極めて優れていることが判った。現在、本設のためステンレス材による治具を製作中である。

3) 第2抽出サイクルの試験

本工程の試験は第一次および第三次試験で実施した。

なお、第三次試験では、前回の試験で抽出された改善箇所の確認とホット時を想定し、交替勤務体制(変則2交替)で実施し、総合的な評価を行った。

運転前準備については第一次試験で比較検討を行った方法のうち、最も有効であった方法をあげ再確認を行った。

第2サイクルの操作フローを次に示す。なお、本フローは第一次、三次共通である。

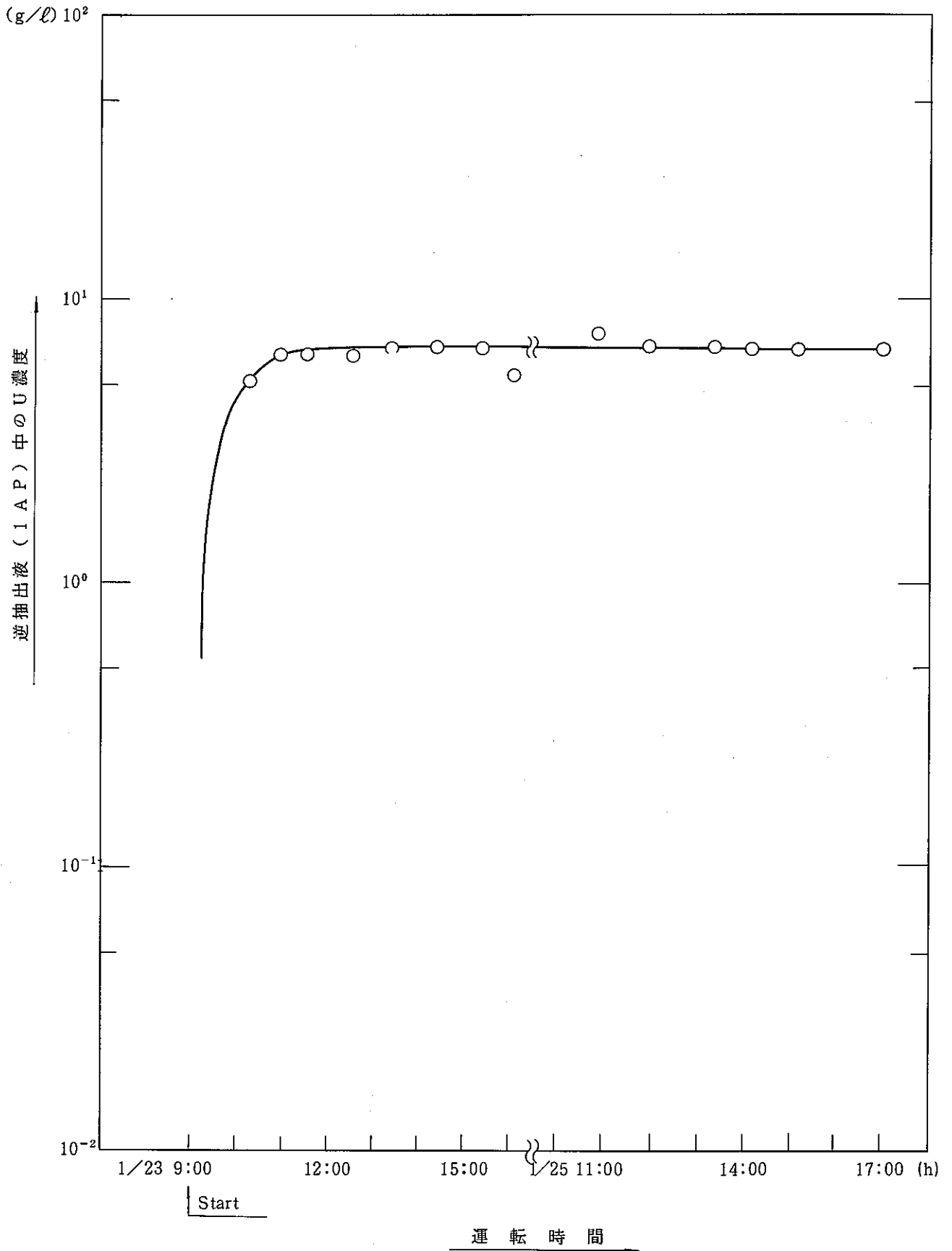


図-29 MS-1202 (抽出第1サイクル) の平衡到達時間の測定

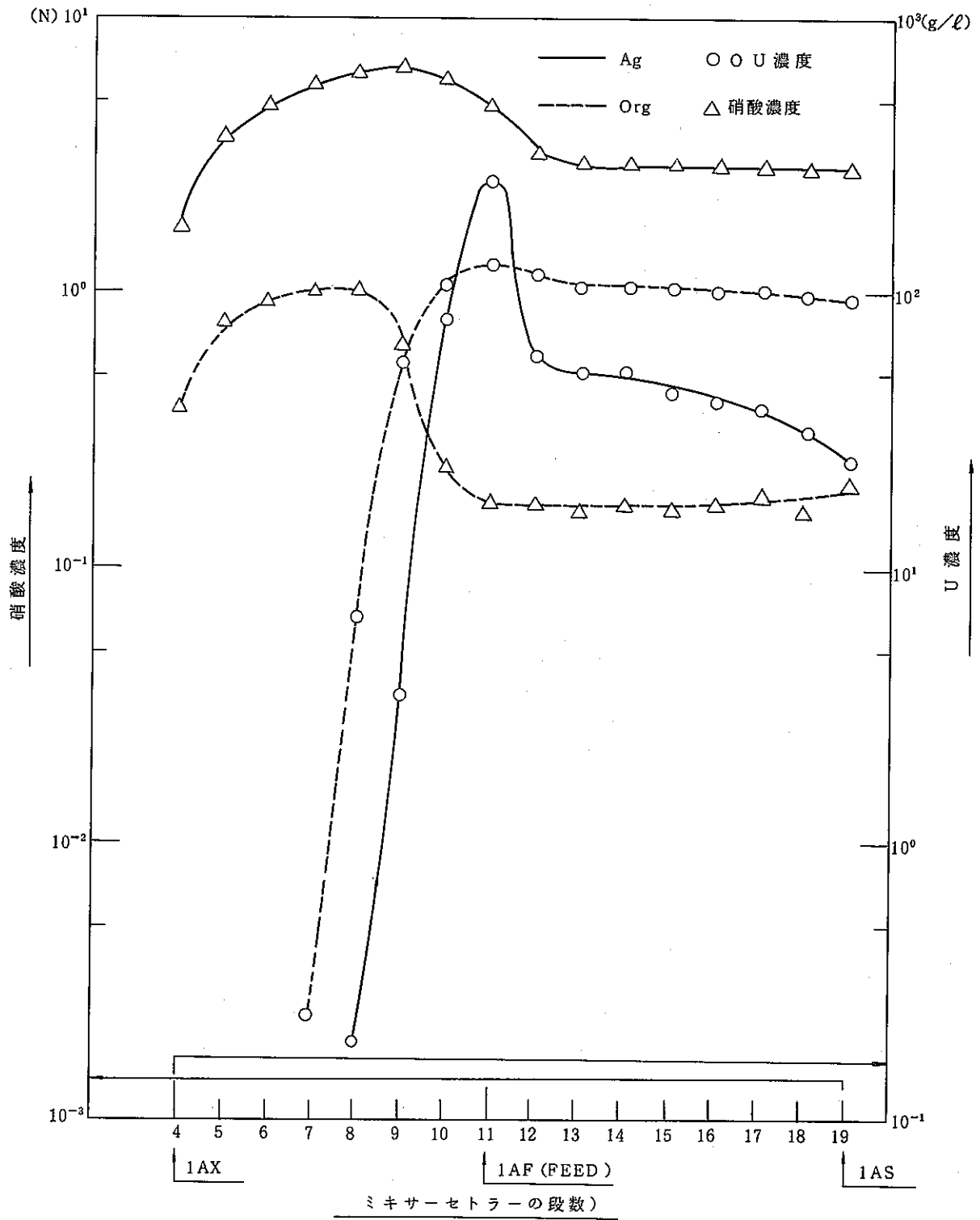


図-30 MS-1201 (抽出第1サイクル) のU濃度及び硝酸濃度プロフィール

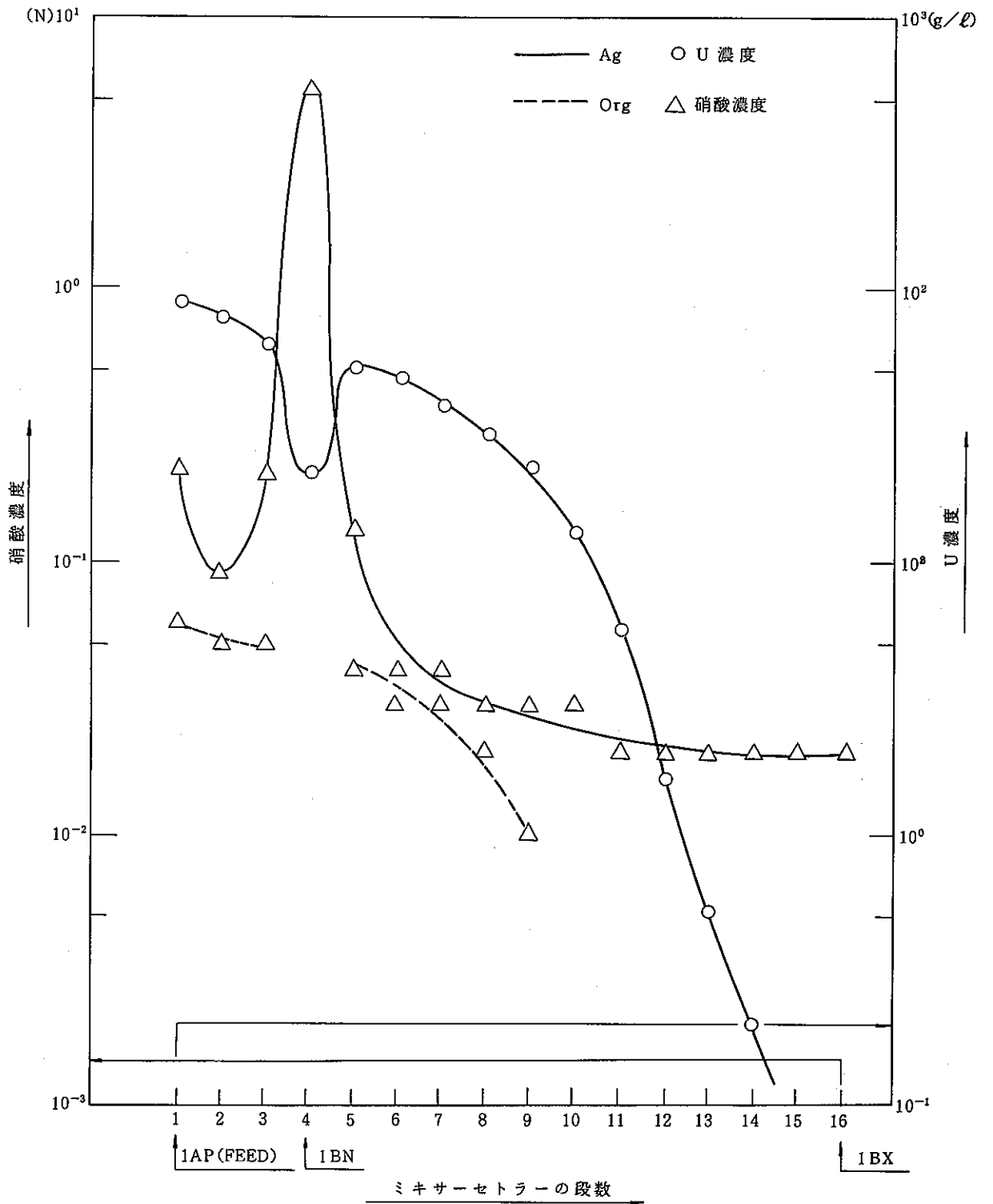
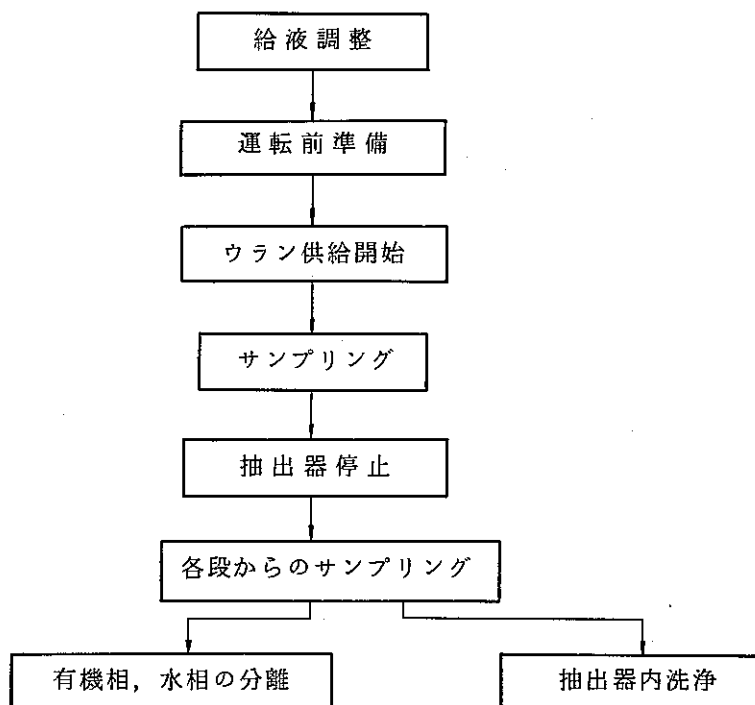


図-31 MS-1202 (抽出第1サイクル)のU濃度及び硝酸濃度プロフィール



本第2サイクルの給液は第1サイクルのプロダクトである1BPの調整液である。

第一次試験では第1サイクルの運転によって得られたプロダクトを対象として調整作業を行なった。また第二試験では溶解調整液（第1サイクル給液）を用い、第2サイクルの調整操作を行なった。

第2サイクルは3台の抽出器で構成され、CA-3とCA-4の両セルにまたがっている。

図-32に従い、抽出調整液はセル内供給ポンプで第3抽出器（MS-1204）へ供給され、含まれるウランはTBPに抽出されCA-4へ送られる。CA-4ではこのウランを抽出した、TBPが第4抽出器（MS-1205）に供給され、ウランとプルトニウムの分離が行なわれる（本試験ではプルトニウムは含まれていない）。更にウランを抽出しているTBPは第5抽出器（MS-1206）で希硝酸によって水相に逆抽出される。

本試験では上記一連の流れの中で確実に関連機器が正常に作動するか、遠隔操作性は十分か、などを調べ、マニュアルとの調整を図った。

給液調整については、1BP（第一次試験では、U：62.9 g/ℓ H^T：0.41N）を目標濃度になるよう硝酸、純水量を算出し、所定のラインから供給して行った。1BP濃度及び調整後濃度を次表に示す。

試 験	調整回数	濃 度		調整目標濃度
		ウラン濃度 (g/l)	硝酸濃度 (N)	
一 次	初 濃 度	62.9	0.41	U : 50 g/l HNO ₃ : 3N
	1	50.3	2.76	
三 次	初 濃 度	262.2	1.16	U : 60 g/l HNO ₃ : 3N
	1	82.1	3.25	
	2	56.7	3.01	

現状の設備を用いた調整作業の結果、第一次では初濃度が目標濃度に近いこともあり、1回の調整で、第三次試験では2回の調整操作でほぼ目標とする濃度に調整できた。

また、抽出器への液張りについては第一次試験の結果選定した方法を用いた。

その結果遠隔操作性、確実性共に良好であり、操作マニュアルに反映させた。

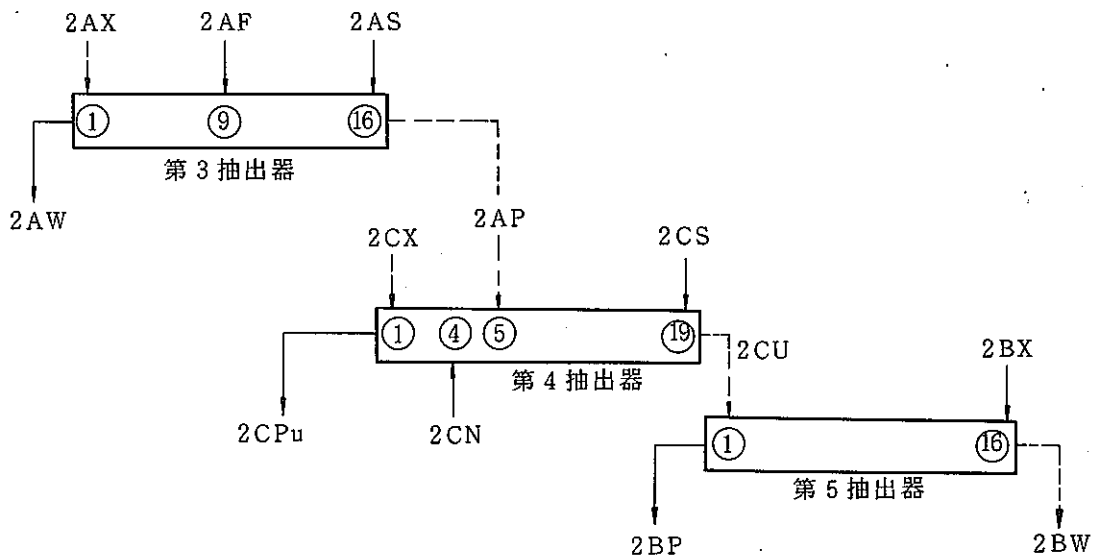
一方、微量定量ポンプの安定性を改善するため移送ラインを短くし、セル内供給方式に変更したものを採用し試みた。

本法は、セル内に計量シリンダーを設け、このシリンダーにセル外から従来のラインで供給液を補給し、計量シリンダー内の液をセル内微量定量ポンプで抽出器に供給するものである。流量の測定は計量シリンダー内液の減少速度から求めた。

従来のラインによる流量と本法の流量経時変化を図-33に示す。この結果、本法が極めて優れていることが判った。

ウランの供給開始に先立ち、同濃度の硝酸溶液を用いて流量の確認を行ないつつ、酸平衡運転を実施した。本工程の運転はセル内のプロセス液を移送するため、ポンプを用いている。このため、本ポンプの作動確認は極めて重要である。

第2サイクルのフローシートと本試験得たウラン物質収支を次表にまとめた。



抽出第2サイクルにおけるウランの物質収支

	2AF	2AW	2AP	2CPu	2CU	2BP	2BW	
濃度 (g/l)	50.3	—	95.2	0.3	71.2	76.2	—	一次試験
流量 (ml/hr)	261		145	78.3	181.6	182		
濃度×流量 (mg/hr)	13128.3	—	13804	23.5	12929.9	13868.4	—	
物質収支 OUT/IN	1		1.05	0	987	1.06		
濃度 (g/l)	56.7	—	64.6	—	46.5	46.3	—	三次試験
流量 (ml/hr)	220		189		257	291		
濃度×流量 (mg/hr)	12474	—	12209	—	11951	13473	—	
物質収支 OUT/IN	1		0.979		0.958	1.08		

TBPに対する飽和度を上げた第一次試験ではウラン収支は第3抽出器で1.05, 第4抽出器で0.987, 第5抽出器で1.06となり, 極めて良好であった。

一方, 飽和度を下げた第三次試験でも0.979, 0.958, 1.08の収支結果となり, 第一次試験同様良好であった。

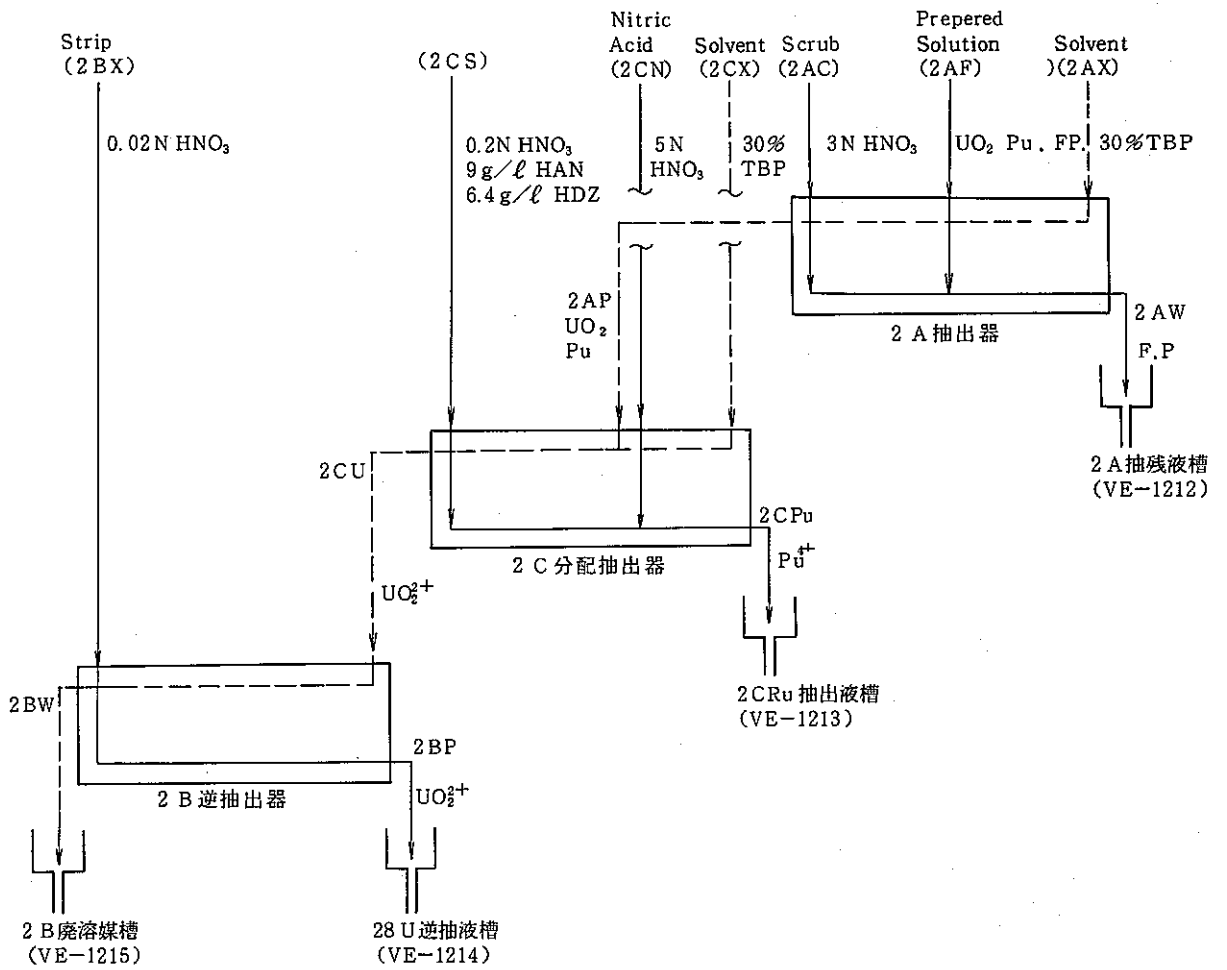
抽出器を停止したのち各段から有機相, 水相のサンプリングを実施し, 第一次試験で実証した分離法を用い有機相, 水相の分離を行ない分析試料とした。

その分析結果から求めた各抽出器内の濃度分布を図-34, 35, 36に示す。

一連の操作の終了に伴ない, 抽出器を化学損傷時から保護するため, 抽出器の洗浄を実施した。本洗浄法は第一次試験で各工程に用いたものであり, ホット移行のち, のみならず溶媒酸を用いた試験で微かに抽出器内部に残った溶媒を除去する目的で確立した方法である。抽出器バンクはアクリル製であり, 特に有機溶媒による化学損傷に対し注意する必要がある。なお, 本抽出器は通常の使用では1年~2年の寿命である。

上記洗浄法について説明する。まず, 希硝酸を抽出器の最上部より流量最大(500 cc/hr)で注入した。この注入時は抽出器のインペラを回転させない。これは抽出部に残っているTBPをセトラ一部に移すのに効果的であったためである。約1時間供給を続けることにより抽出器内には洗浄液が充満する。

その後洗浄液の供給を停止し, 抽出器を作動させ攪拌を行なうことにより抽出器内の洗浄が行なわれる。約1時間攪拌させたのち抽出器を停止し, サンプリング口からセル内に準備した減圧システムで洗浄液を抜き出した。この洗浄を2回行なうことにより抽出器内には有機相がほとんど見出されなかった。又, 同抽出器を用いた酸平衡試験においてもウランが検出されず極めて良好に洗浄の効果が現われていることが明らかとなった。



主な反応式

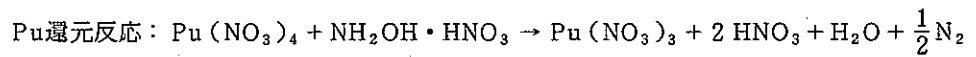
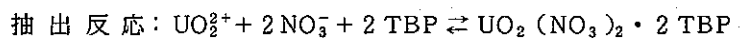


図-32 抽出第2サイクルフロー図

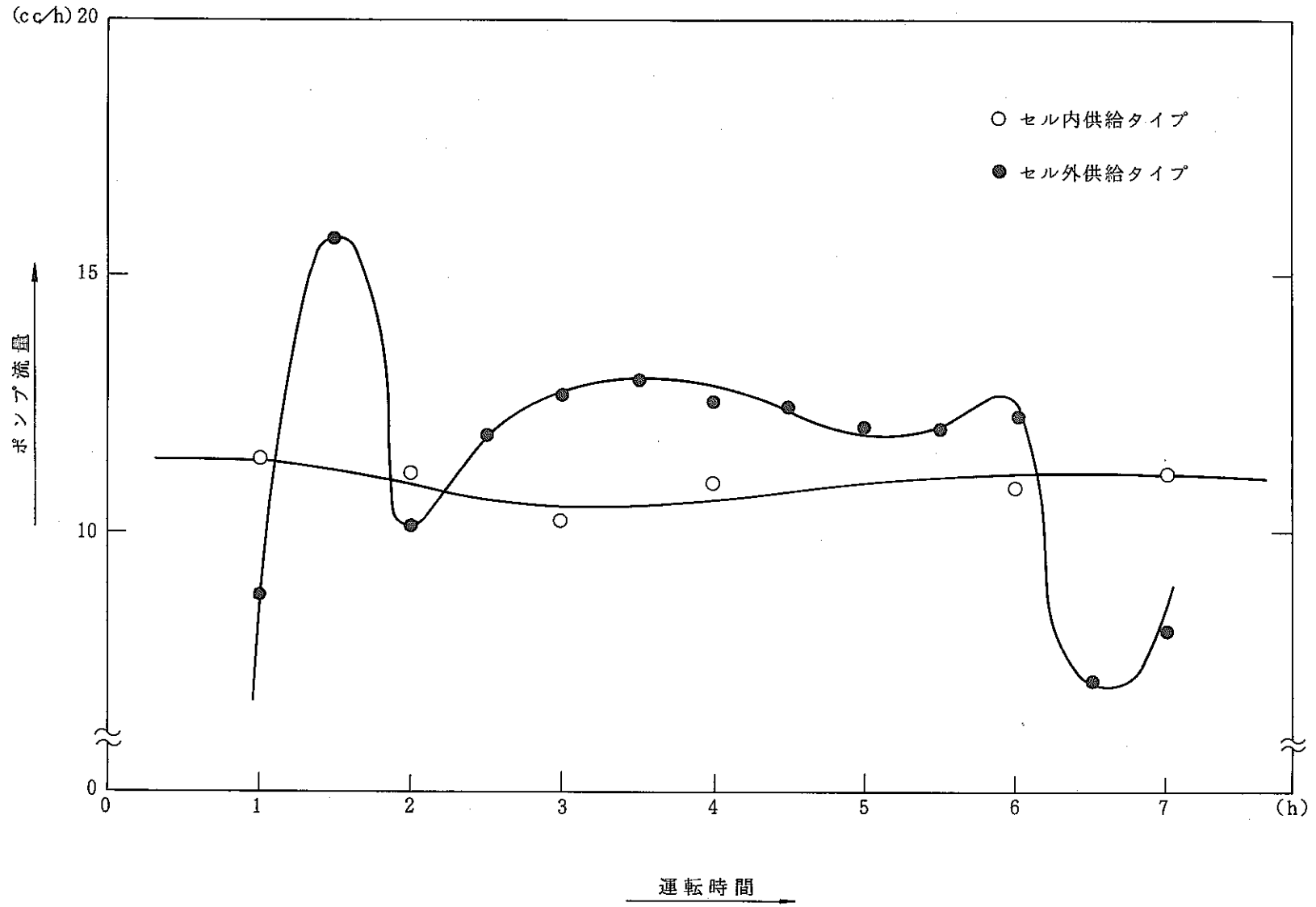


図-33 供給法の改善による流量安定性比較

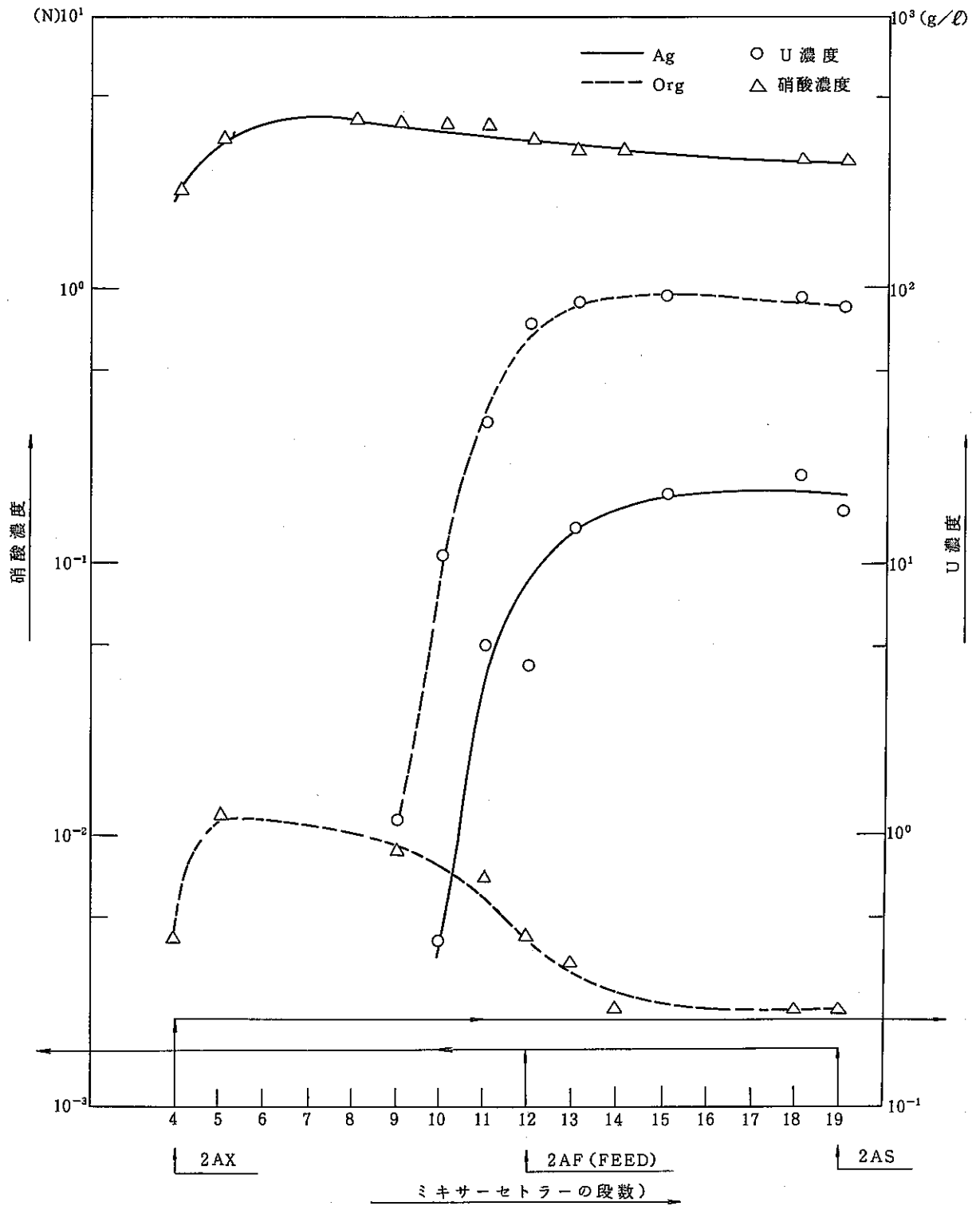


図-34 MS-1204 (抽出第2サイクル) のU濃度及び硝酸濃度プロフィール

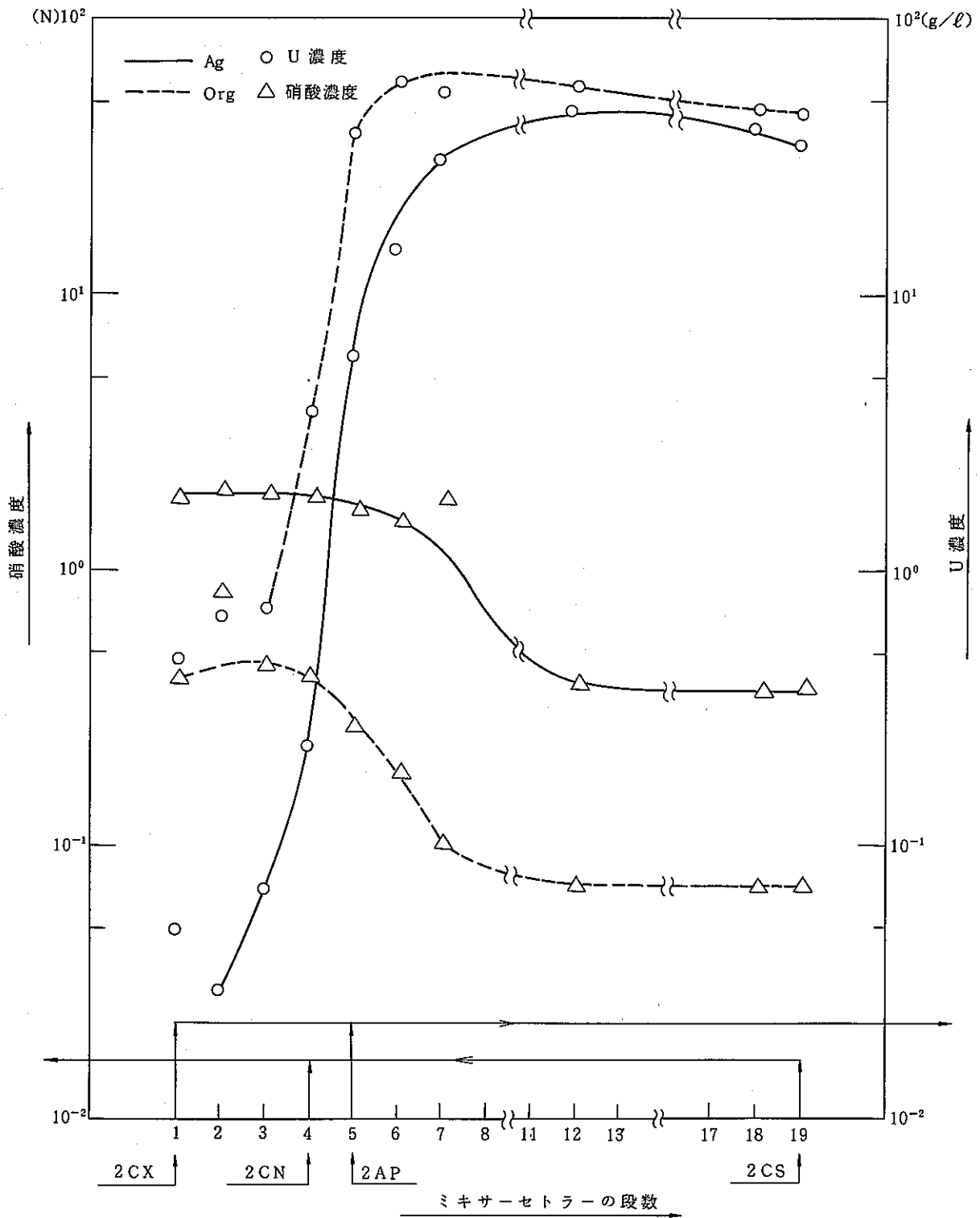


図-35 MS-1205 (抽出第2サイクル) のU濃度及び硝酸濃度プロフィール

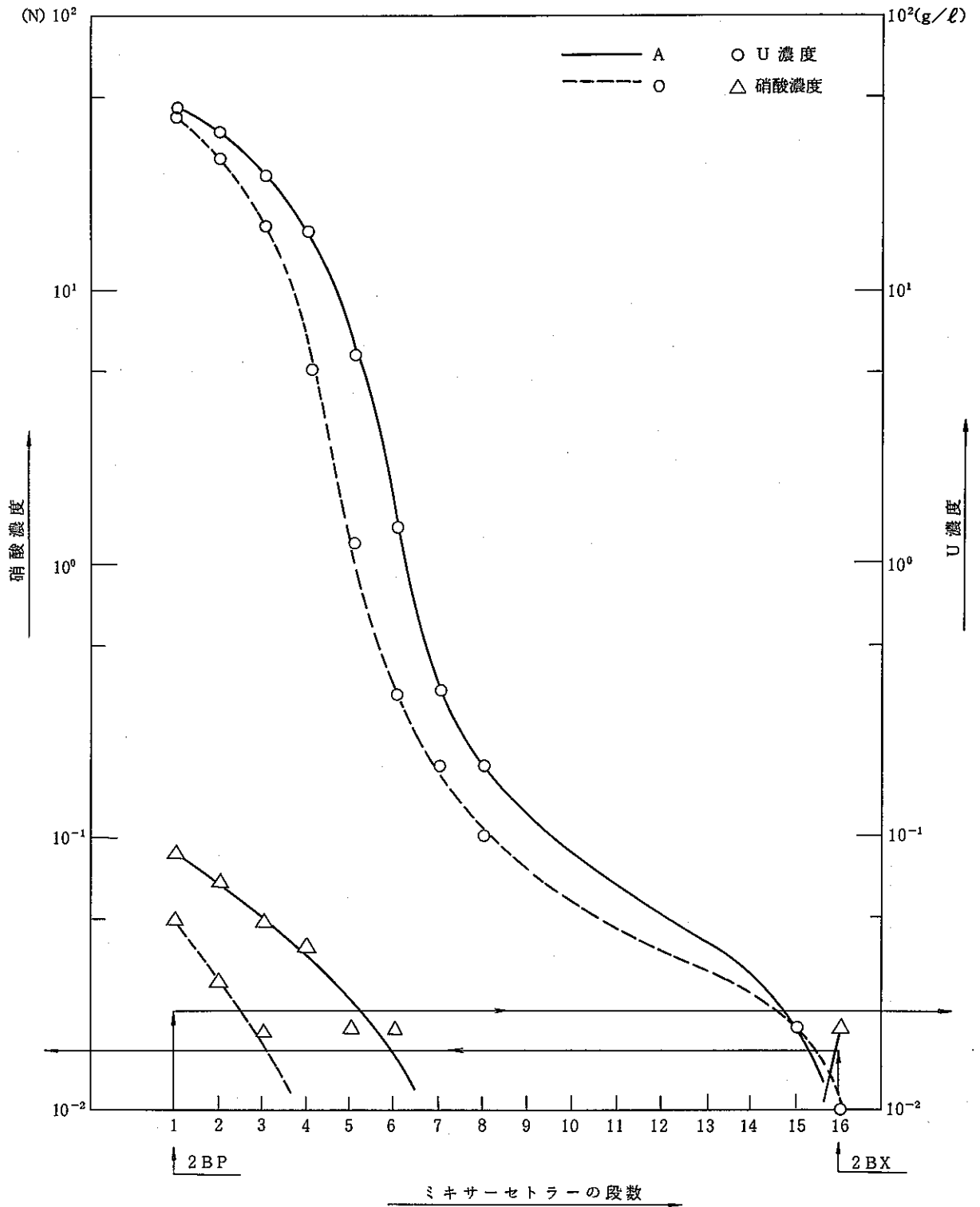


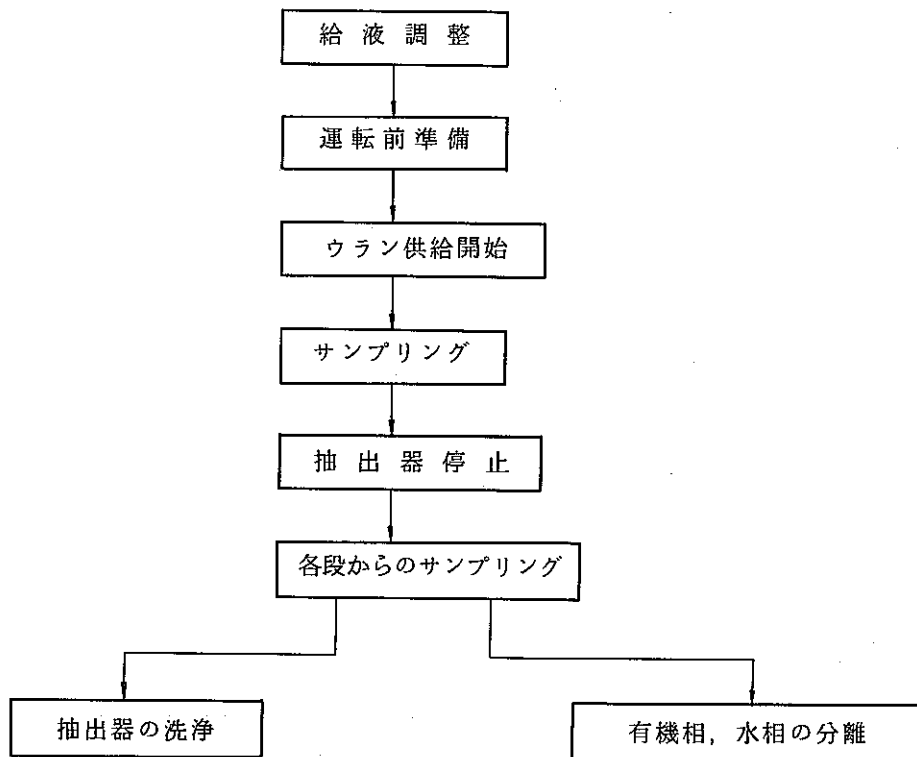
図-36 MS-1206 (抽出第2サイクル) のU濃度及び硝酸濃度プロファイル

4) 第3サイクルの抽出試験

本工程はCA-4セル内にあり2台の抽出器（MS-1208, 1209）で構成される。

又、対象となるプロセス液は第2サイクルで分離されたプルトニウム液である。しかしながら本試験ではウランのみを用いているため、第3サイクルで対象とする貯槽（VE-1213）には、硝酸のみが回収されたため、本工程試験ではプルトニウムの代りとしてウランを用いて実施した。したがって調整槽はVE-1214のウラン貯槽である。

第3サイクルの試験に必要な操作フローを以下に示す。



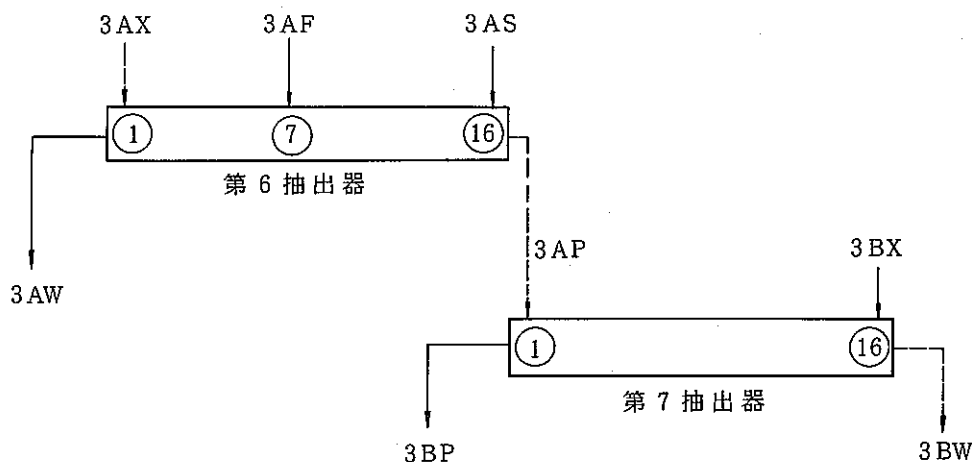
第2サイクルの試験で回収されたウランプロダクトを対象として調整作業を行なった。このプロダクトは次表のとおりウランで77.4 g/l, HNO₃で0.1Nとなっており、実際のプルトニウムプロダクトとは異なる濃度である。これを現在考慮されているフローシート条件に適するよう既設の設備で調整した。

調整回数	濃度		目標濃度
	ウラン濃度 (g/l)	酸濃度 (N)	
初濃度	77.36	0.1	酸：3N ウラン：15 g/l
1	17.26	2.64	
2	13.7	2.97	

以上、本調整操作では2回の作業ではば目的とする濃度に調整でき、既設の供給ラインで十分対応できることが分った。

運転前準備である抽出器への液張りについては前項で述べたとおりである。

本工程のフローシート及び分析結果から算出したウランの物質収支を次に示す。



抽出第3サイクルにおけるウランの物質収支

	3AF	3AW	3AP	3BP	3BW
濃度 (g/l)	13.7	—	28.56	8.67	20.5
流量 (ml/hr)	316.5	—	154.4	115.8	154.4
濃度×流量 (ml/hr)	4336.1	—	4409.6	1003.9	3165.2
物質収支 OUT/IN	1	—	1.017	0.945	

ウランをプルトニウムの代りとして行なった。本試験では、プルトニウム側に 8.67 g/l のウランが漏れ、給液の 23% に相当する量がプルトニウム製品側に流出することが分った。

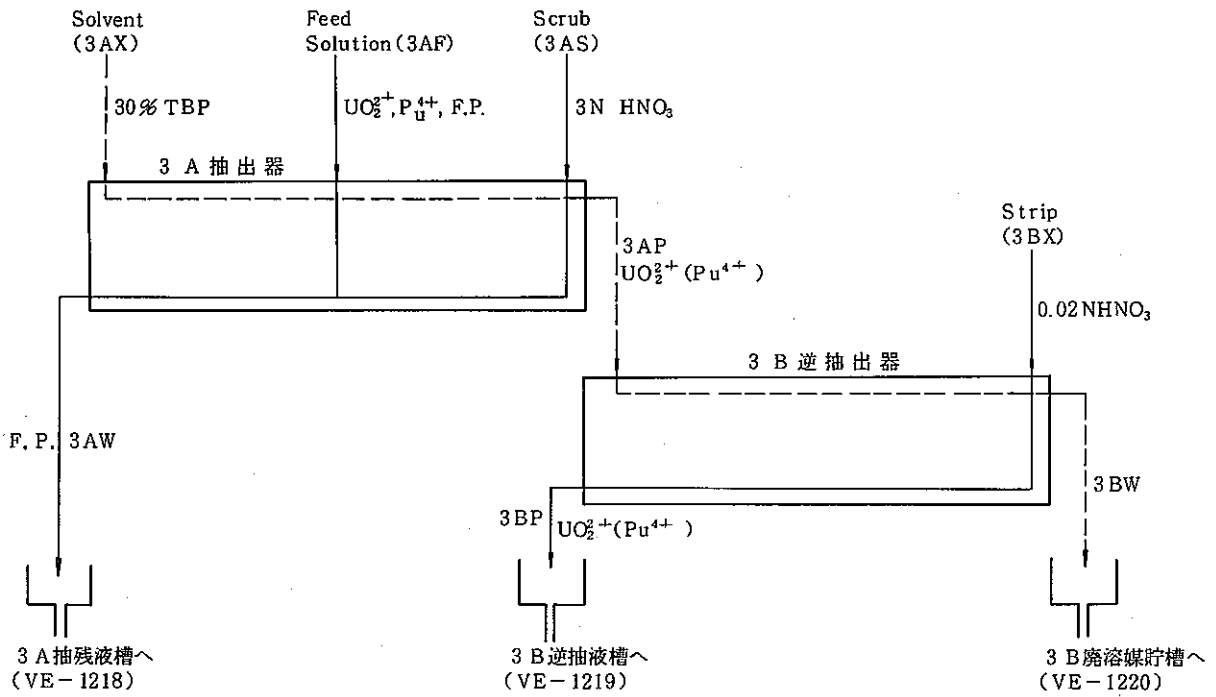
しかしながら、前工程でのプルトニウム側へのウラン漏れは約 1 g/l 相当であるため、実際の場合 0.6 g/l 相当になると見込まれる。

本設備では第7抽出器のプロセス液供給段が固定されており、プルトニウム側へのウランのリーク量を極力減らすには限界があり、試験の条件等がかぎられてしまう。

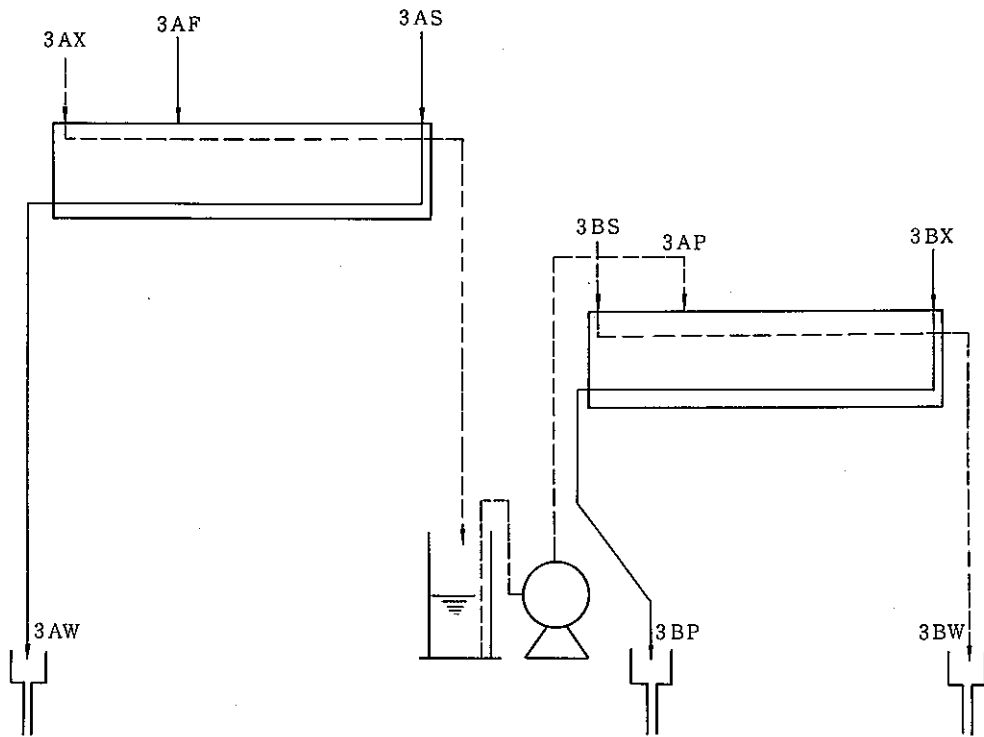
このため、本試験の結果をもとに図-37に示したように、供給段を任意に選定できるよう改善した。

抽出平衡確認後抽出器を停止し、各段から試料を採取し、所定の分離法を用いて有機相、水相を分離し分析試料とした。

これらの分析結果から抽出器内のウラン濃度分布を図-38、39にまとめた。



(a) 変更前



(b) 変更後

図-37 抽出第3サイクルフローの変更

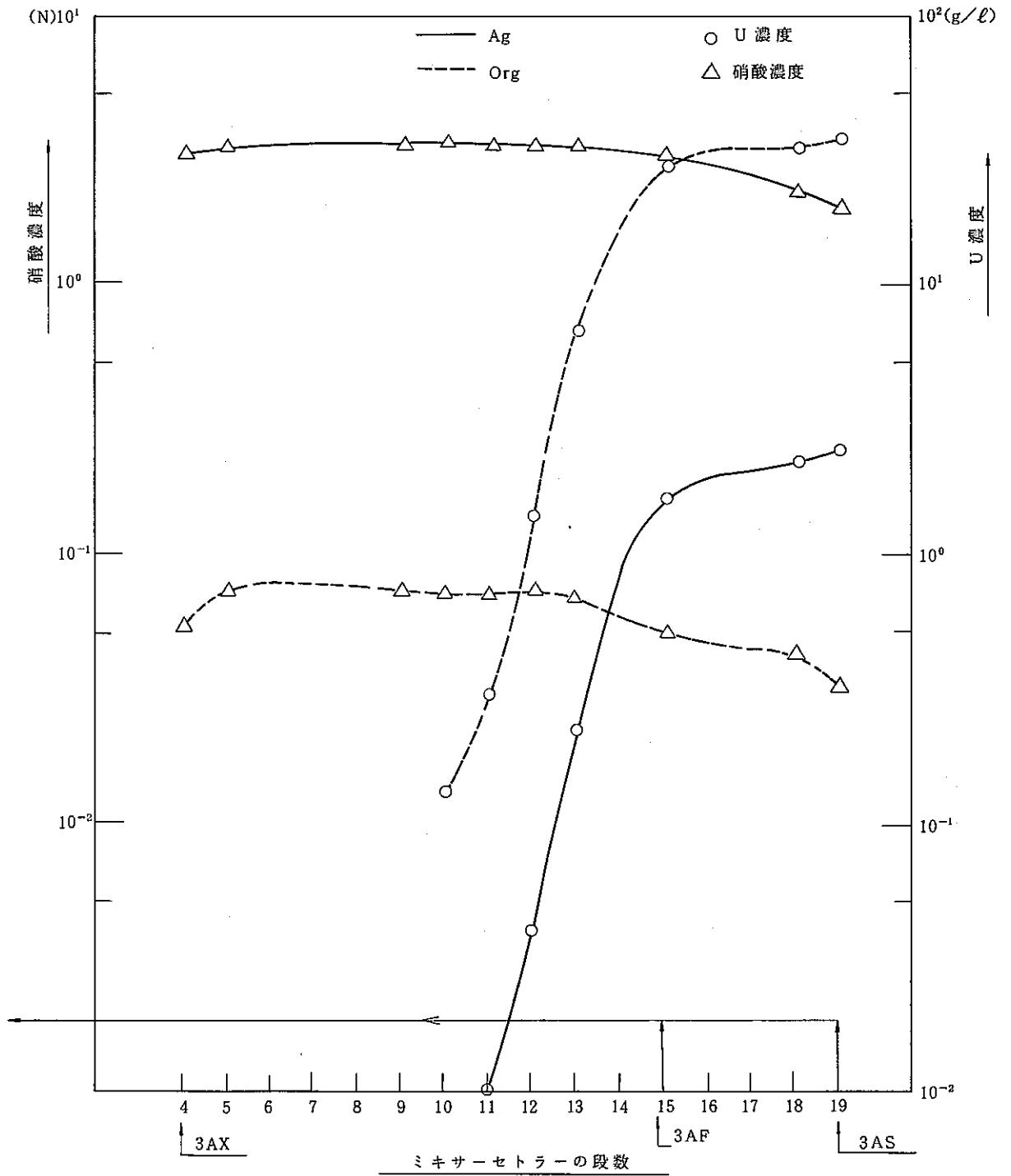


図-38 MS-1208 (抽出第3サイクル) のU濃度及び硝酸濃度プロフィール

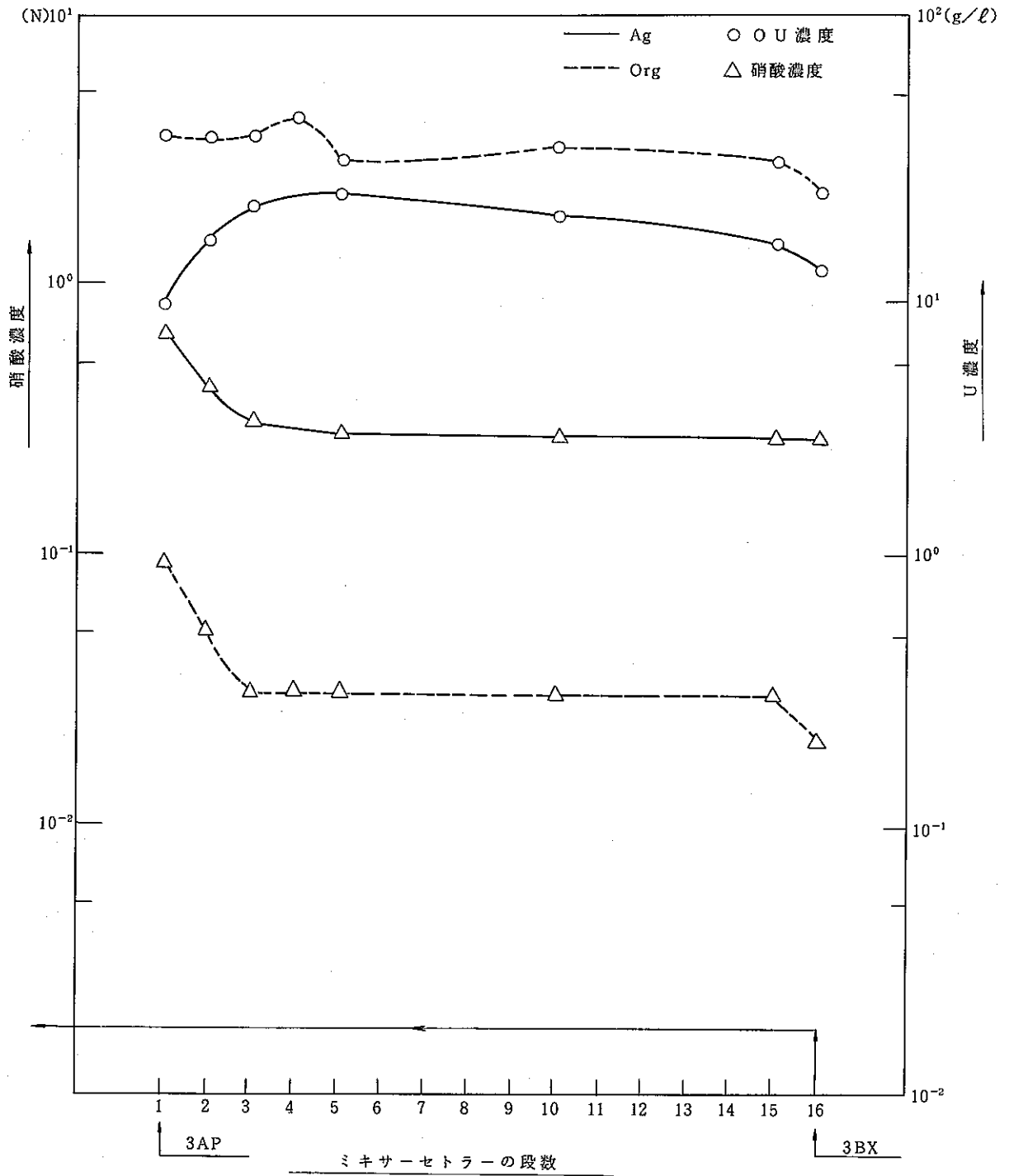


図-39 MS-1209 (抽出第3サイクル) のU濃度及び硝酸濃度プロフィール

3.4.3 抽出試験のまとめ

1) 運転準備試験

以上の結果から次回の試験では第3サイクルを実施した方式を用いることとした。

また、対象となる試薬供給ポンプについては、その流量調整と安定度確認のため、セル内へは供給せず、吐出流を再度試薬貯槽にもどすライン、つまりリサイクルラインを使用して、これらの調整を行なった。代表的な例を上げセル内供給ラインとリサイクルラインを図-40、41に示した。このリサイクル方式による運転前準備はセル内供給に移る2日前に実施することが良い。これと併行して、セル内供給ポンプの流量確認を行なった。

セル内供給ポンプはセル外から流量調整が行なえるものであり、セル内ではその流量確認のみ実施した。

2) 第1抽出サイクル試験

項 目	内 容
微量ポンプの安定性	特に1時間30cc以下の流量を必要とするポンプの安定性が悪く、抽出器内のウラン挙動に与える影響が大であった。このため、セル内供給方式に切替える必要がある。(次試験で確認する) 確認の結果有効であることが分った。
運転中の監視とサンプリング	抽出器内の界面およびウランの色についてはセル外の窓、ペリスコープ等での観察は極めて困難であった。特に色についてはまったく判断できない。このため、これらの監視が行なえるようファイバースコープを準備中である。一方、抽出器出口のサンプリングについては運転中全て遠隔で実施した。
ポンプ運転モード	抽出試験中はセル内供給方式に、又一時抽出試験を停止(バッチ式)する場合はリサイクル方式に切替えポンプの運転を停止しない方式が良い。
平衡データ採取用サンプリング	抽出平衡を確認したのち、抽出器運転を停止し、各段から有機相、水相を減圧法にてサンプリングした。本操作についても遠隔で実施し各段からサンプリングできることを確認した。
有機相、水相の分離	抽出器から採取した試料は有機相、水相が混合しており、分析サンプルとするには、これらを分離する必要がある。本試験では市販器具を用い、液相分離ろ紙による分離を試みた。その結果1サンプル当たり約10分で分離が完了し、分離性、遠隔性も極めて優れていることが判った。現在、本設のためステンレス材による治具を製作中である。

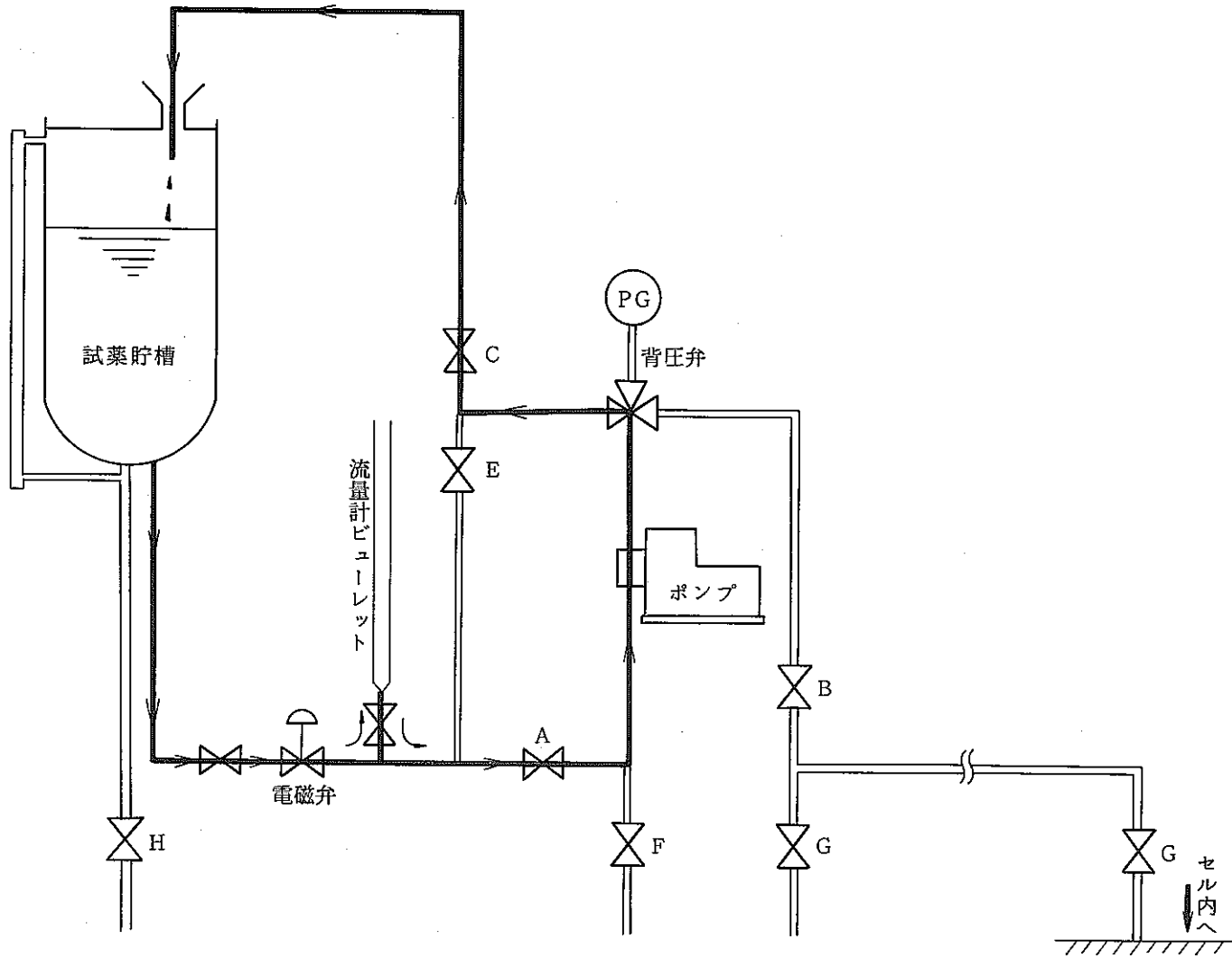


図-40 試薬供給系概要図 (リサイクルライン)

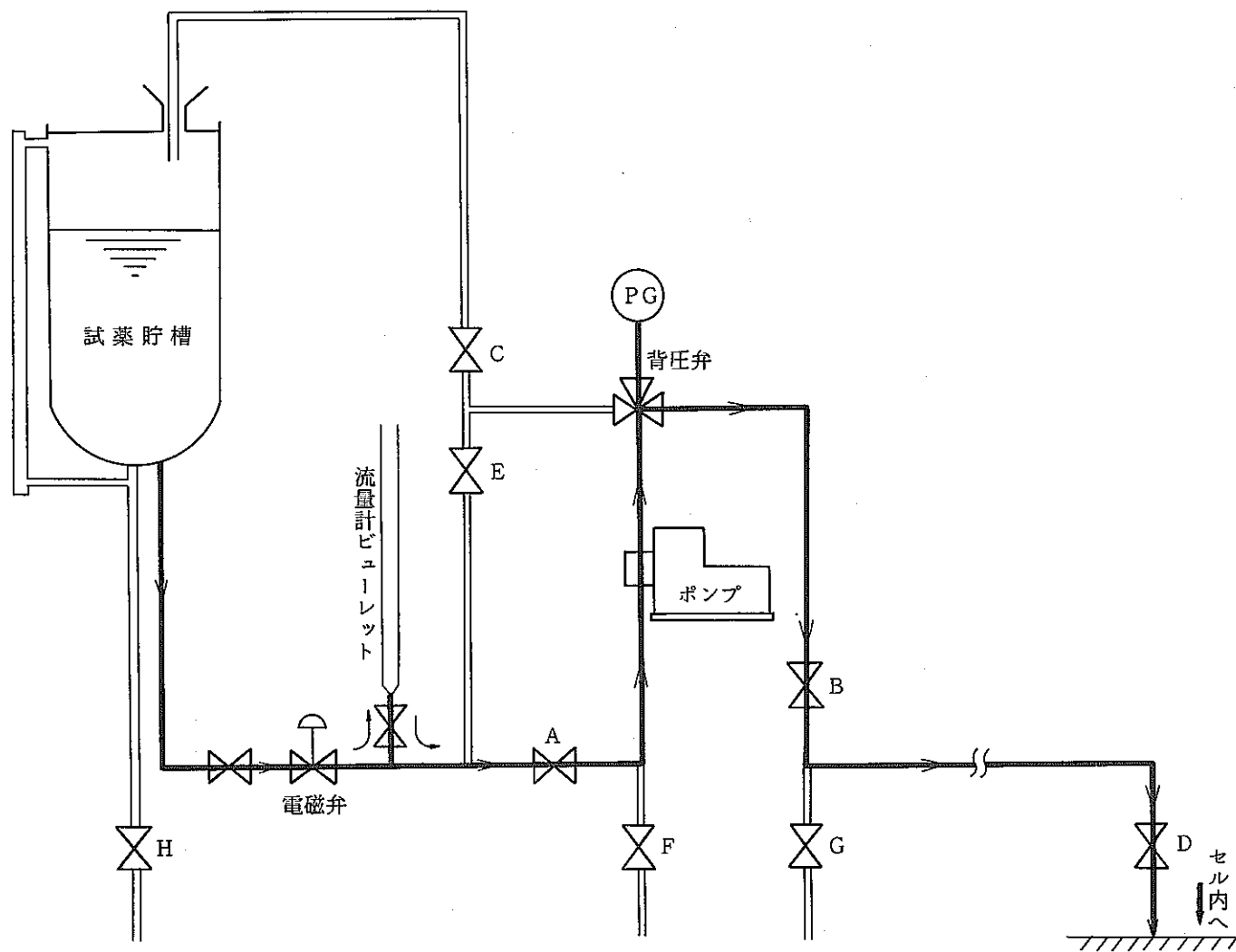


図-41 試薬供給系概要図 (セル内供給ライン)

3) 第2サイクル試験

項 目	内 容
抽出器への液張り	第一次試験で決定した液張り法で液量，遠隔操作共に確実であり，十分にホット時も使用できることが判った。なお現在，本設のため器具を準備中である。
監視とサンプリング	第一次試験と同。 ただし，サンプリングノズルの先を若干短かくした方がよりスムーズであった。
平衡データ採取用サンプリング	抽出器上部のサンプリング口を加工し，より確実に操作を行なえるようにした。
有機相，水相の分離	第一次試験と同。
微量定量ポンプの改善	セル内供給式とした結果，極めて良好な安定性が得られた。

4) 第3抽出サイクル試験

項 目	内 容
前運転給液	3AFの供給を開始する前の酸 feed の時にはセル内に設置した時受槽から同濃度硝酸を供給する。
段数の任意化	プルトニウム逆抽出工程の feed の段を任意に選べるよう，仮設受槽経由で同抽出器にポンプで feed できるようにした。
その他	第1，2サイクルと同じ。

3.5 オフガス処理工程

3.5.1 工程の概要及び試験項目

(1) 工程概要

A系列プロセスオフガス処理工程を図-42に示す。

a) 溶解工程オフガス処理

溶解工程運転時の溶解槽VE-1201からのオフガスはオフガス凝縮器HE-1201，酸回収塔TW-1201，並びに溶解オフガスロックアウトポットZV-1201において凝縮成分，同伴ミストを除去した後，オフガス洗浄塔(1)TW-1401でアルカリ(NaOH)溶液で洗浄してNO_xガス，ヨウ素等を除去する。

さらに，電気ヒータEH-1401で予熱した後，オフガス吸着塔TW-1402A/Bを通過させヨウ素の除去を行う。

また，本工程には洗浄塔等における目詰り及び燃料溶解時の異常反応時における溶解槽内圧の上昇を防止するため，差圧調整ポットによる圧力放出ラインが設けられている。

b) 給液調整工程オフガス処理及び槽類ベントオフガス処理

給液調整工程運転時の給液調整槽 VE-1204 からのオフガスは、オフガス凝縮器 HE-1401 で、凝縮成分を除去回収後、セル内貯槽類からのベントオフガスと合流し、オフガス洗浄塔(3)TW-1404 を経て、アルカリ (NaOH) 溶液で洗浄することにより、NO_x ガス、ヨウ素等を除去した後、溶解工程のオフガスと合流し電気ヒータ EH-1401 に送られる。

また貯槽類のベントオフガスラインには、溶解工程及び給液調整工程運転時に溶解槽 VE-1201 及び給液調整槽 VE-1204 内の負圧を保持するために使用する制限オリフィス RO-1401 が設けられている。

a) および b) にて処理されたオフガスは、流量測定用オリフィス (FR-1401) および負圧調整用の圧力調整弁 PIC-1408 を経て、さらに剪断工程からのオフガスと合流した後、剪断工程オフガスフィルタ FT-3401 A/B を経て、セル外の試験装置オフガス処理系へ排出される。

試験装置オフガス処理系では、さらに B 系列試験装置オフガス、A 系列および B 系列の高レベル廃液貯槽のベントオフガス、および低レベル廃液貯槽・蒸発缶オフガスと合流した後、オフガス中に含有されるミスト、粉塵等をオフガスフィルタ(1)FT-3403 A/B で除去した後排気ブロウ(2)BL-3402 A/B によりスタックを通じて、大気へ放出される。

(2) 処理能力

処理風量：8 Nm³/hr

(3) 主な試験項目

a) オフガス処理系安定性試験

溶解工程、給液調整工程、および抽出工程の一連の工程に渡ってオフガス処理系の連続運転を行い、オフガス風量、系内の負圧バランス、洗浄塔の液面・液温、洗浄塔充填物・吸着塔充填物・フィルタ等の出入口差圧、電気ヒータ出口ガス温度などの連続監視により所定の運転条件におけるオフガス処理系の安定性をチェックした。

b) オフガス処理系運転モードの確立

a) の結果より、運転条件の見直し、及び若干の改造等を行い、ホット試験に向けて、オフガス処理系運転モードの確立を計った。

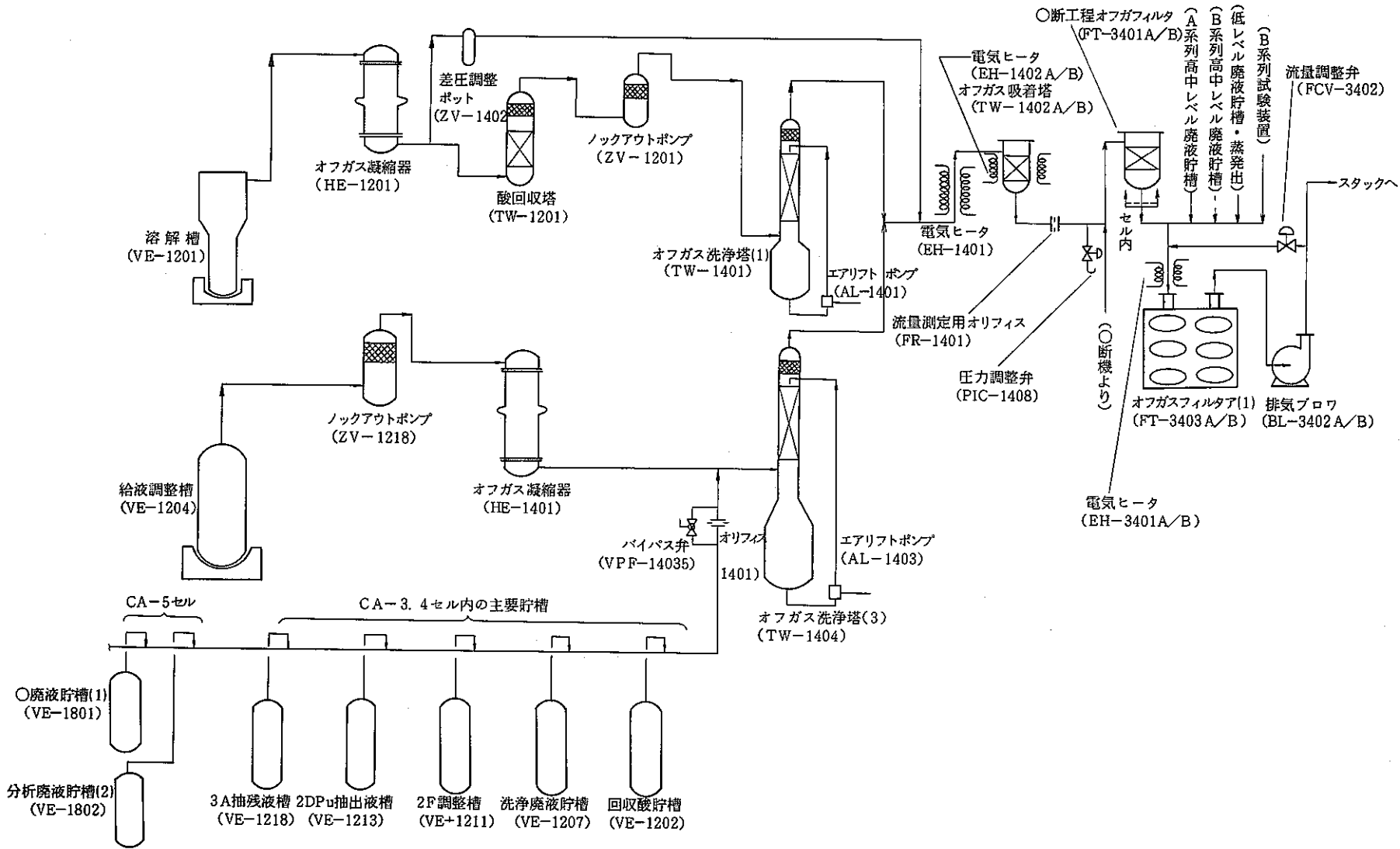


図-42 A系列プロセスオフガス処理系

(4) 運転条件

運転期間及びユーティリティ・各機器等の運転条件を表3に示す。

表3 運転条件

項目	ウラン試験Ⅰ	ウラン試験Ⅱ	ウラン試験Ⅲ	
運転期間	57.1.11～57.1.22	57.2.22～57.3.2	57.3.8～57.3.18	
工程操作	溶解～清澄～調整～分離～精製の一連の工程RUN	溶解～清澄～調整までの連続操作	抽出第2サイクル連続操作時の保持運転	
運	冷水(cc)系	前半：バッチ運転(夜間・休日は自然循環) 後半：連続運転(冷凍機OFFのまま強制循環による温度上昇)	連続運転 (冷凍機は順調に作動)	
	排気ブロウ (BL-3402A/B)	連続運転 容量：130 Nm ³ /hr (定格), 風量一定自動制御(FCV-3402)		
転	制限オリフィス (RO-1401)	使用(前半の一部でバイパスライン使用)	使用(後半TW-1402B差圧増大のため元弁絞り)	使用
	貯槽類攪拌空気	VE-1202: 0.5 Nm ³ /hr VE-1207: 0.5 Nm ³ /hr VE-1211: 0.5 Nm ³ /hr (VE-1211は, 抽出第2サイクル運転時のみ供給)	VE-1202: 0.5 Nm ³ /hr VE-1207: 0.5 Nm ³ /hr (後半, TW-1402B差圧増大のため供給停止)	VE-1207: 0.5 Nm ³ /hr VE-1214: 0.5 Nm ³ /hr (VE-1214は, 3/11正圧となり, 2BP回収不能のため供給停止)
条	オフガス洗浄塔(1) (TW-1401)	AL-1401は連続運転, 冷却ジャケットcc: 120ℓ/hr 駆動用LA: 200Nℓ/hr 洗浄液循環量: 25ℓ/hr (AL性能曲線より) 洗浄液: 1.5N-NaOH, ~13.5ℓ(初期) 充填物: DIXON. 3m/m, 充填高さ650H		
		冷却ジャケット: ccバッチ運転	冷却ジャケット: cc連続運転	
	件	オフガス洗浄塔(3) (TW-1404)	AL-1403は連続運転, 冷却ジャケットcc: 120ℓ/hr 駆動用LA: 400～500Nℓ/hr 洗浄液循環量: ~30ℓ/hr (AL性能曲線より) 充填物: DIXON, 6m/m, 充填高さ750H	
洗浄液: 1.5-NaOH, ~26.0ℓ(初期)			洗浄液: H ₂ O, ~26ℓ(初期)	
		冷却ジャケット: ccバッチ運転	冷却ジャケット: cc連続運転	

項 目	ウラン試験Ⅰ	ウラン試験Ⅱ	ウラン試験Ⅲ
運 転 条 件	オフガス吸着塔 (TW-1402A/B)	プレフィルタ+銀ゼオライト充填物 運転温度：90℃	
	電気ヒータ (EH-1401)	TW-1402A/B入口オフガス予熱用 容量：0.8 kW 出口ガス温度：90℃	
	電気ヒータ (EH-1402A/B)	TW-1402A/B充填物保温用 容量：0.4 kW ガス温度：90℃	
	剪断工程オフガス フィルタ (FI-3401A/B)	プレフィルタ+HEIAフィルタ+銀ゼオライトフィルタ+HEPAフィルタ	
	電気ヒータ (EH-3401A/B)	FT-3403A/B入口オフガス予熱用 容量：4 kW ガス温度：40℃	
	オフガスフィルタ(1) (FT-3403A/B)	プレフィルタ+HEPAフィルタ+銀ゼオライト+プレフィルタ+HEPAフィルタ +HEPAフィルタ	
	圧力調整弁 (PIC-1408)	系内圧力調整用 設定値：-350mmAg	

3.5.2 運転結果

(1) 負圧バランス

オフガス系の負圧バランスの変動に与える影響が大きいと考えられる、溶解～給液清澄～給液調整の各工程操作時における系内の負圧変動の様子を下記に示す。

- | | |
|---|------|
| ① 溶解工程操作時（非照射VO ₂ 燃料ピン4本溶解時） | 図-43 |
| ② 給液清澄工程操作時（溶解液移送、清澄、及びリンス操作） | 図-44 |
| ③ 給液調整工程操作時（蒸発濃縮） | 図-45 |
| ④ 制限オリフィスライン～バイパスライン切替時 | 図-46 |

図-43より、溶解操作においても溶解槽内の負圧は-80～-100 mmAgの間ではほぼ一定に保持されることが確認された。

また、溶解槽の蓋を開放した場合（燃料バスケット装荷・取出し時等）には、溶解槽がセル内雰囲気開放となるので、オフガス風量が6.0 Nm³/hrから7.0 Nm³/hrに増大するとともに、

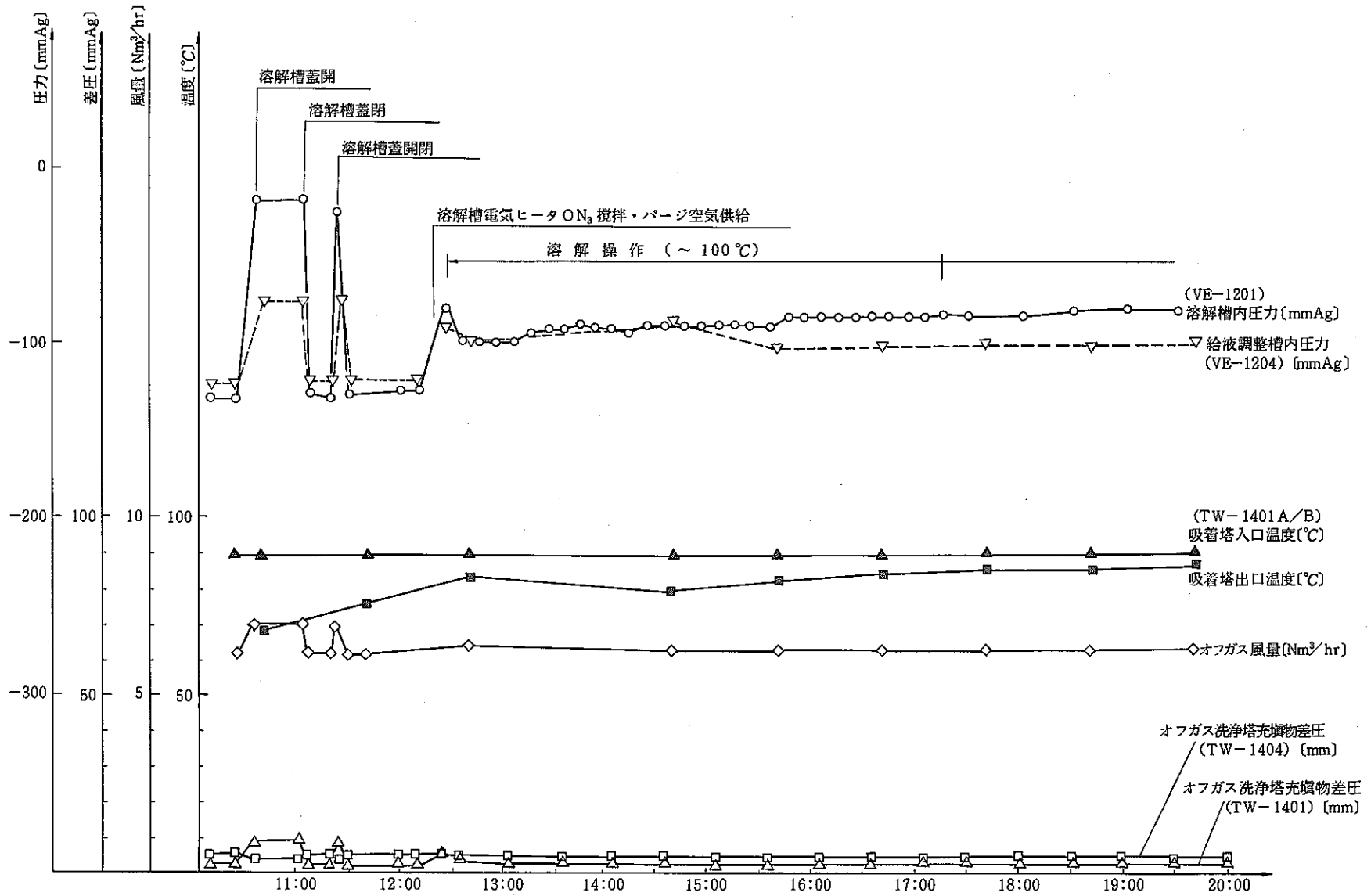


図-43 溶解工程操作時オフガス系内変動 (制限オリフィスライン使用)

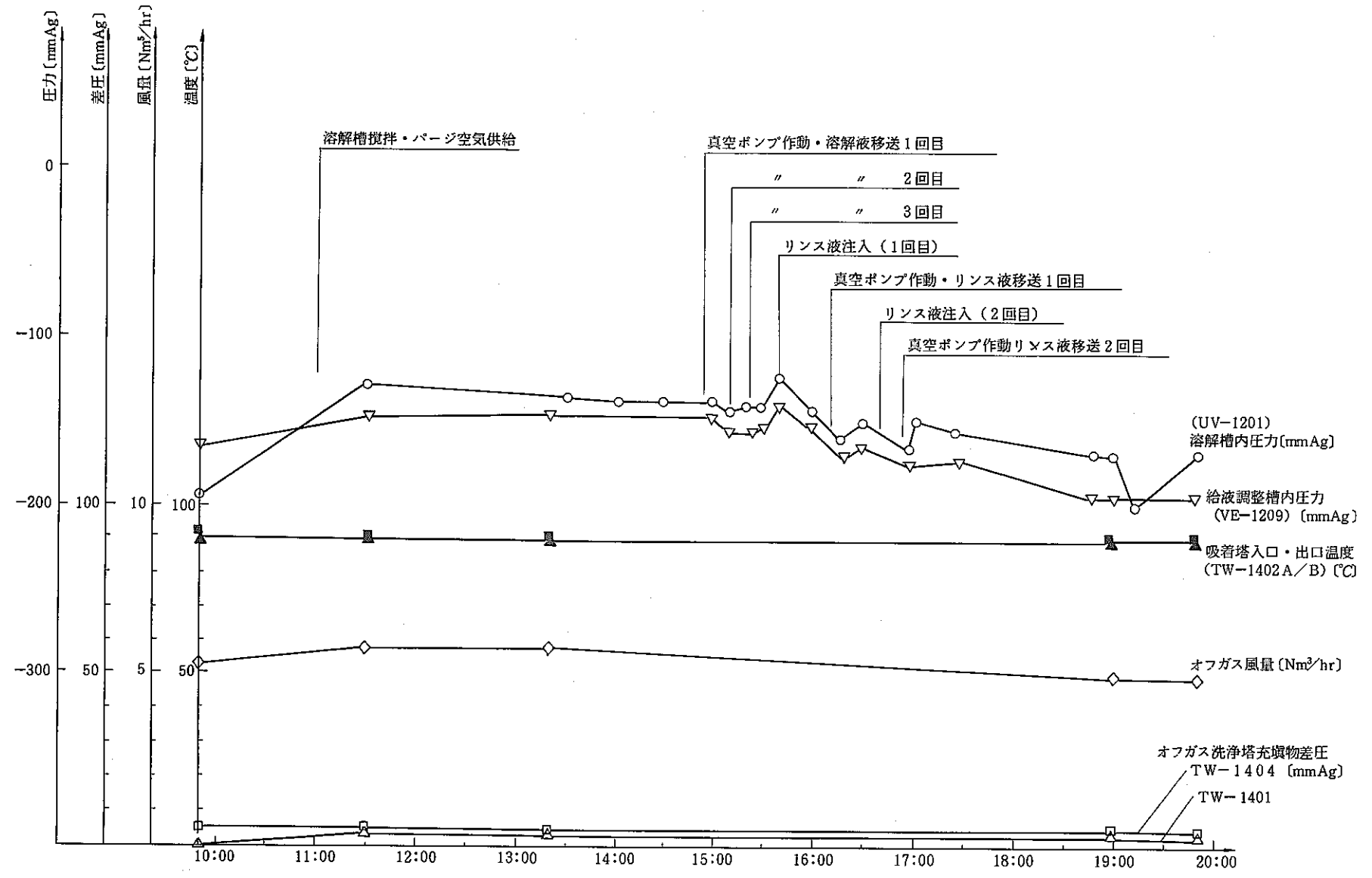


図-44 給液清澄工程操作時オフガス系内変動 (制限オリフィスライン使用)

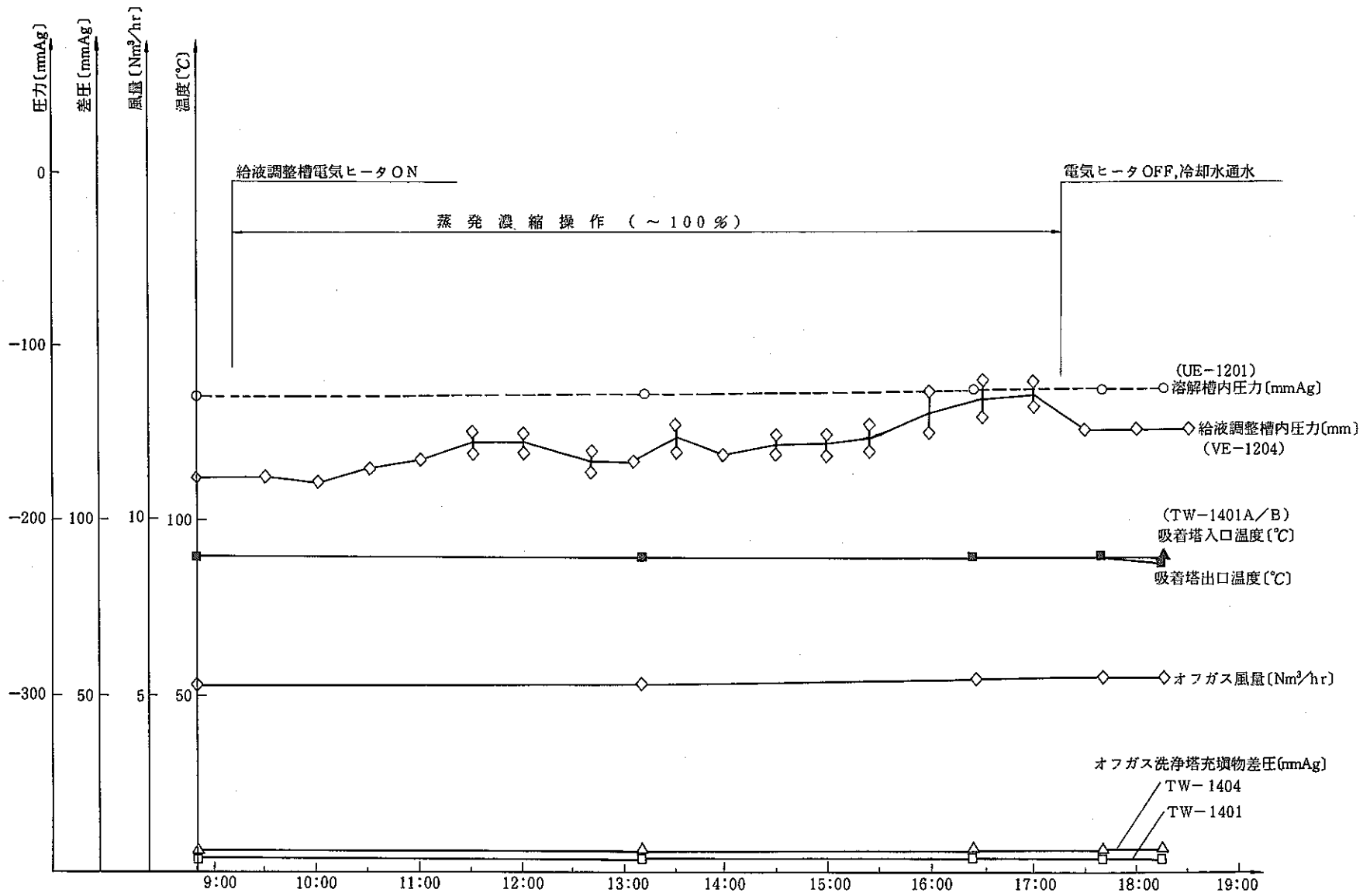


図-45 給液調整工程操作時オフガス系内変動 (制限オリフィスライン使用)

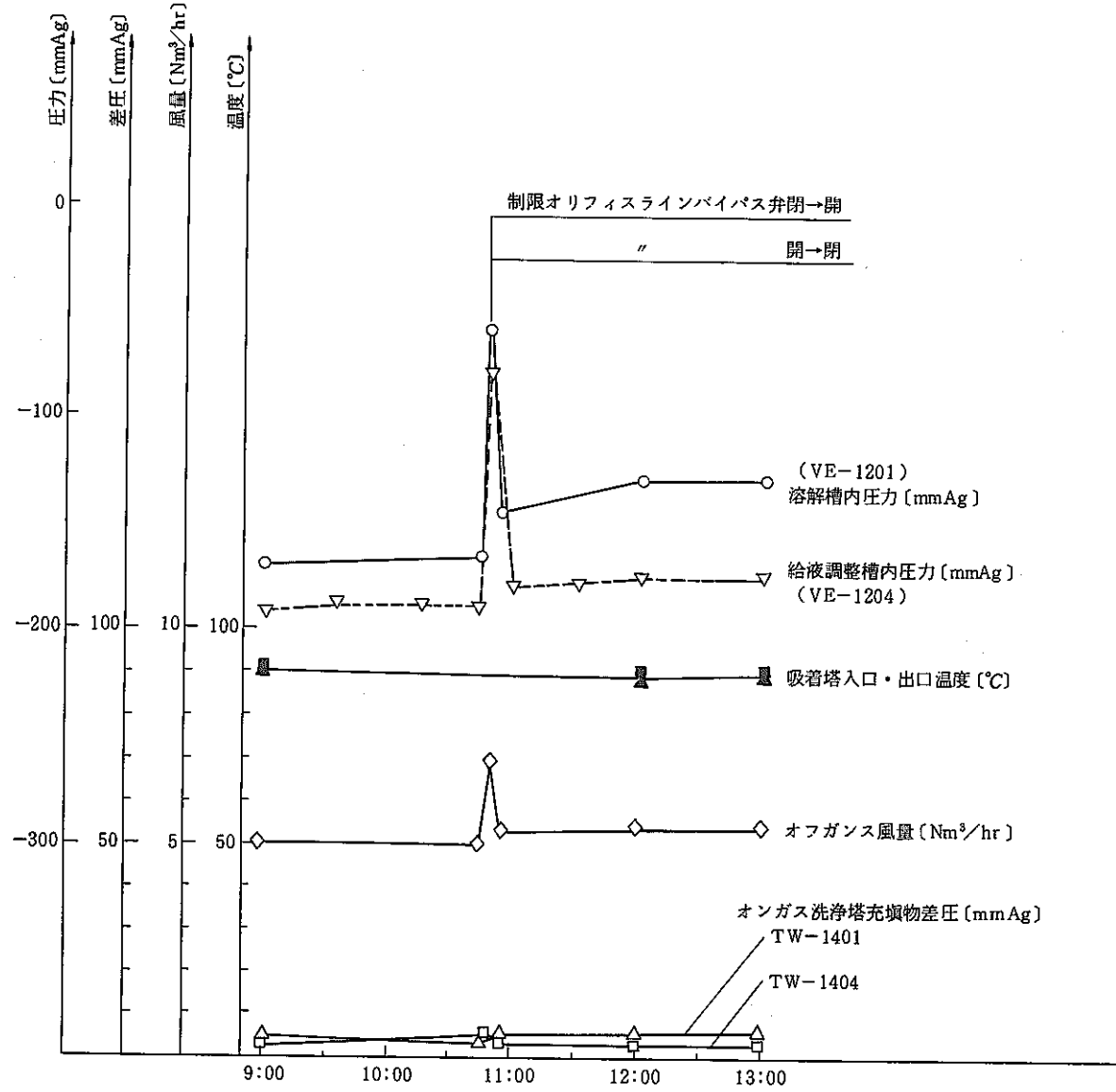


図-46 制限オリフィスライン切換時オフガス系内変動

溶解槽内負圧が -20mmAq 程度まで上昇し溶解槽内圧力高が作動することが分った。

さらに、溶解槽へ攪拌・パージ空気を供給(約 $1.0\text{Nm}^3/\text{hr}$)した場合には、溶解槽内負圧が -130mmAq から -80mmAq まで一時的に上昇し、その後 -100mmAq 程度に落ち着くことが分った。

給液調整槽についても、オフガス系は異なるものの、溶解槽における蓋開放、攪拌・パージ空気の供給による影響として槽内負圧が -120mmAq から -80mmA 程度まで上昇することが分ったが、槽内圧力高が作動するレベルまで(-55mmAq)上昇することはなかった。

図-44より、溶解液の移送及びリンス操作において真空ポンプの作動、真空吸引移送等によっても、溶解槽及び給液調整槽内の負圧は -100mmAq 以下で、ほぼ一定になることが確認された。

図-45より、給液調整槽における蒸発濃縮操作時においても、槽内圧は多少変動するが、 -100mmAq 以下の負圧に保持されることが確認された。また、本操作中において溶解工程への影響は全くなく溶解槽内の負圧は $-130\sim-120\text{mmAq}$ に保持されることが分った。

図-46より、制限オリフィスライン切換時において、バイパス弁(VPF-14035)の開閉操作による槽類ベントオフガスの流量変化($5.0\rightarrow 7.0\text{Nm}^3/\text{hr}$ に増加)に基因する圧力変動により、溶解槽及び給液調整槽内の圧力が $\sim 100\text{mmAq}$ 程度上昇するが、圧力高の警報レベル以下であることが分った。但しこの場合、オフガス洗浄塔(3)(TW-1404)の液面低警報が一時作動し、その後、自然に回復したが、これはバイパス弁の開閉に伴う圧力パルスの発生が原因と思われる。

図-43～46に示す結果より、各工程操作に共通して次のことが確認された。

- i) オフガス吸着塔(TW-1402A/B)の入口・出口温度はほぼ 90°C 一定に保持され、電気ヒータのコントローラが正常に作動していることが確認された。
- ii) オフガス風量は通常 $5.0\sim 6.0\text{Nm}^3/\text{hr}$ 前後で一定に保持されることが確認された。但し、溶解槽蓋開放時及び制限オリフィスラインバイパス時には $\sim 7.0\text{Nm}^3/\text{hr}$ 程度にまで増大することが分った。
- iii) オフガス洗浄塔充填物($3\text{m}/\text{m}$, $6\text{m}/\text{m}$ DIXON Packing)の差圧は、ほぼ一定であり、炭酸ナトリウムの生成等による充填物の差圧増大は認められなかった。
- iv) 溶解工程および給液清澄・調整工程操作時には制限オリフィスラインを使用し、各槽内の負圧を下げる必要のあることが確認された。また抽出工程操作時及び保持状態においても、(2)に述べる洗浄液の減少量を抑制させるため、制限オリフィスラインを使用しオフガス風量を低減させる必要のあることが明らかとなった。

(2) 洗浄塔の液面低下率

オフガス洗浄塔はエアリフトポンプにより、洗浄液を循環し、充填物部分(DIXON Backing)にて洗浄液とオフガスを向流接触させ、オフガスの洗浄を行う。この場合、オフガス

(主として空気)は、洗浄液との接触部分における洗浄液からオフガス中の水分の移行(蒸発)が起こり、オフガスは洗浄塔の出口において湿り空気となって上流側へ流れる。

従って、オフガス洗浄塔をエアリフトポンプにより連続運転した場合、洗浄液の蒸発により洗浄塔の液面が低下するが、その割合は次の因子により左右される。

① オフガスの洗浄塔出口温度

洗浄塔出口のオフガスの湿り度は温度に比例する。そして洗浄塔出口ガス温度は、洗浄液の温度によって決まるので、洗浄液を冷却ジャケットにより冷却している冷水(cc)の温度条件が因子となる。

② オフガス風量

洗浄液の蒸発量は、洗浄塔を通過するオフガス風量に比例する。

従って、槽類ベントオフガスラインの制限オリフィスの使用、攪拌空気供給の有無、系内へのリーフの有無等によるオフガス風量の増減が因子となる。

ここで①についての運転結果を図-47～48に示す。

図-47に示す結果より、冷水系統が正常に作動している場合の洗浄液の減少量は下表に示す通り、オフガスが洗浄塔出口において、12℃の飽和湿り空気とした場合の洗浄液の蒸発量とほぼ一致することが分った。

洗浄塔 No.	通過風量	減少量(測定値)	蒸発量(計算値)
TW-1401	0.5 Nm ³ /hr *1	0.12 l/day	0.128 l/day *3
TW-1404	4.3 Nm ³ /hr *2	0.72 l/day	1.10 l/day *3

*1 溶解槽パーシ空気量

*2 全風量 - (溶解槽パーシ空気量 + エアリフト駆動空気量) = 5.5 - (0.5 + 0.7)
= 4.3 [Nm³/hr]

*3 (12℃飽和湿り空気中の絶対湿度 [kg/kg]) *
× (湿り空気比重 [kg/m³]) *
× (オフガス風量 [m³/hr]) × 24 [hr]

これより、洗浄液の減少は、オフガス中への洗浄液の蒸発によることが確認された。

また、図-48に示す結果より、冷水系統において冷凍機が停止したままポンプで強制循環させた場合には、洗浄液温度が～13℃から～35℃まで急激に減少し、洗浄液の減少量も4～5倍に増加することが確認された。

よって、洗浄液の減少(蒸発)を抑えるためには冷水による冷却の確保が絶対に必要であることが確認された。また、これより本試験中においてTW-1404へのCC供給量設定値を40 l/hrより120 l/hrに変更した。

さらに②についての運転結果を図-49～50に示す。

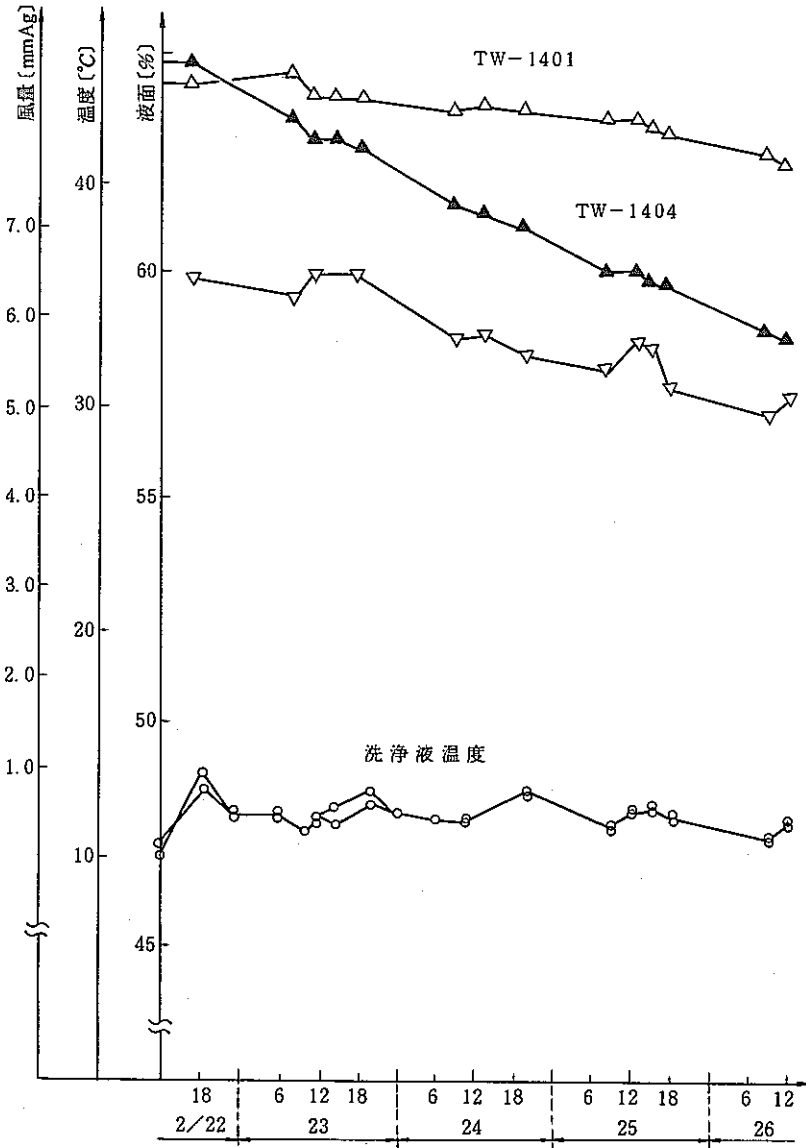


図-47 洗浄塔の液面低下 (CC系正常運転)

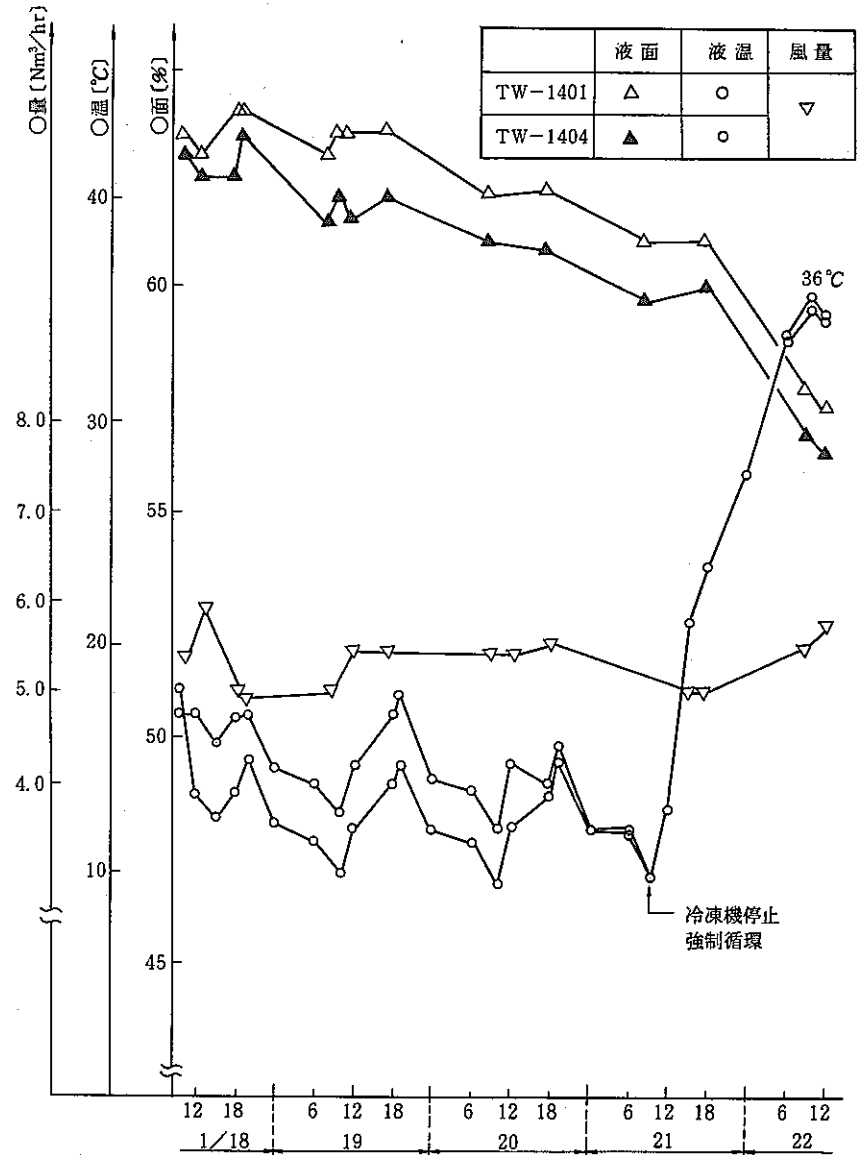


図-48 洗浄塔の液面低下 (CC系不正常運転)

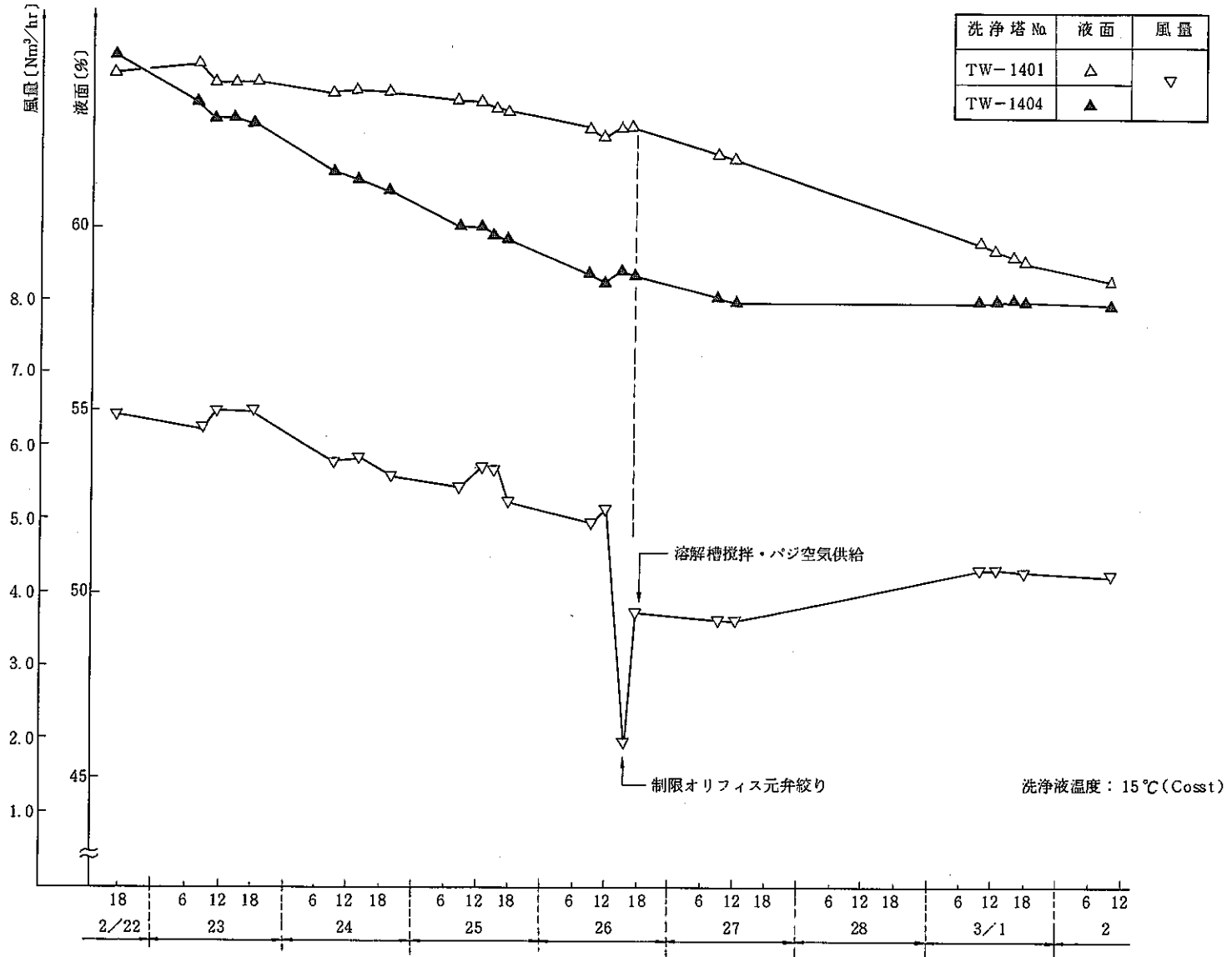


図-49 オフガス風量の影響

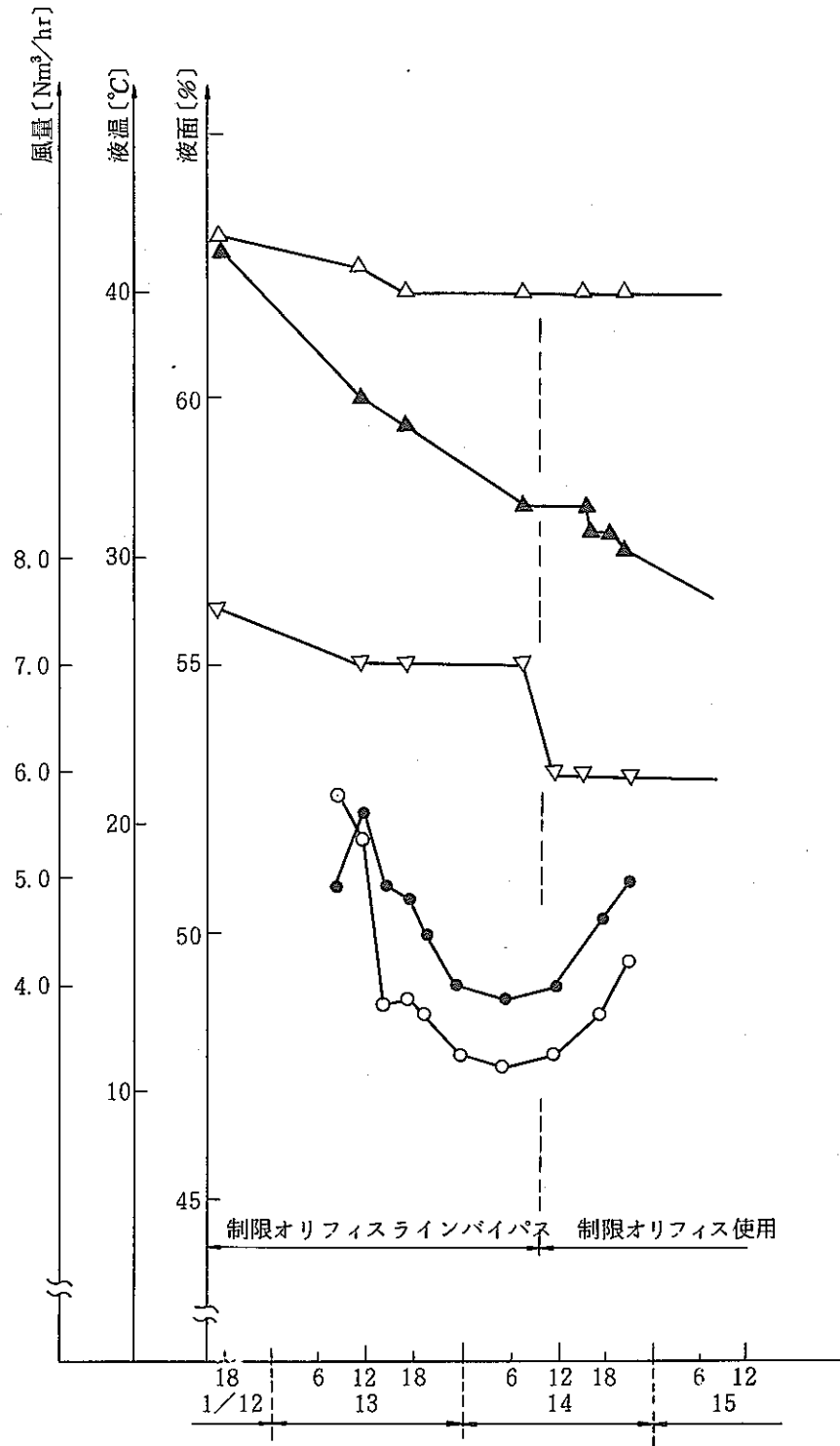


図-50 オフガス風量の影響

図-45に示す結果より、制限オリフィスラインの元弁を絞り、TW-1404の通過風量を減らし、さらに溶解槽については攪拌パージ空気(1.0Nm³/hr)を供給してTW-1401の通過風量を増加させた場合には次表に示す通り風量にほぼ比例して洗浄液が減少(蒸発)することが確認された。

洗浄塔 No.	通過風量	減少量(測定値)
TW-1401	1.0 Nm ³ /hr *1	0.23 ℓ/day
TW-1404	1.8 Nm ³ /hr *2	0.10 ℓ/day

*1 溶解槽攪拌空気+パージ空気

$$\begin{aligned} *2 \text{ 全風量} - (*1 + \text{エアリフト駆動空気量}) &= 3.5 - (1.0 + 0.7) \\ &= 1.8 \text{ [Nm}^3/\text{hr]} \end{aligned}$$

また、図-50に示す結果より、制限オリフィスラインを使用させた場合には、それをバイパスさせる場合に比べ、貯槽類からのベントオフガスおよび系内のリーク(主としてミキサセトラードレインカップ部から)によるオフガスを絞ることにより、全風量を7.5Nm³/hr→6.0Nm³/hr程度に低減させることができ、それに伴って洗浄液の減少量が少なくなることが確認された。

よって、洗浄液の減少量(蒸発量)を低減させるためには、通常保持時におけるオフガス風量を可能な限り低く抑える必要があり、そのためには攪拌・パージ空気量は必要最小限に抑えかつ系内のリークを抑えることが重要であることが分った。

(3) 洗浄液の減少によるオフガス処理系への影響

洗浄液の蒸発により、オフガス処理系の上流側へ移行した水分は、洗浄塔出口部において、オフガスが12℃の湿り飽和空気のみとすれば、それよりも上流側はセル内雰囲気温度(25℃)以上となっているので結露して、ドレンすることは考えられないが、本試験中において次のような影響が生じた。

- ① オフガス吸着塔(TW-1402 A/B)の差圧増大(図-51参照)
- ② 剪断工程オフガスフィルタ(FT-3401 A/B)の湿りと差圧増大(図-52参照)
- ③ 洗浄塔出口～吸着塔入口部のポケット配管部でのドレン発生
- ④ FT-3401 A/B出口ポケット配管部でのドレン発生

①および③については、洗浄塔出口部分において洗浄液の蒸発とともに若干のミストが発生し、それがTW-1402 A/Bポケット配管部にドレンし、さらに吸着塔充填物入口目皿部に、Na₂CO₃として晶出し、目詰りを起こしたものと考えられる。図-51にTW-1402 A/Bの差圧増大の様子を示す。

また、②および④については、洗浄液とともに発生したミストが、吸着塔入口部のオフガス

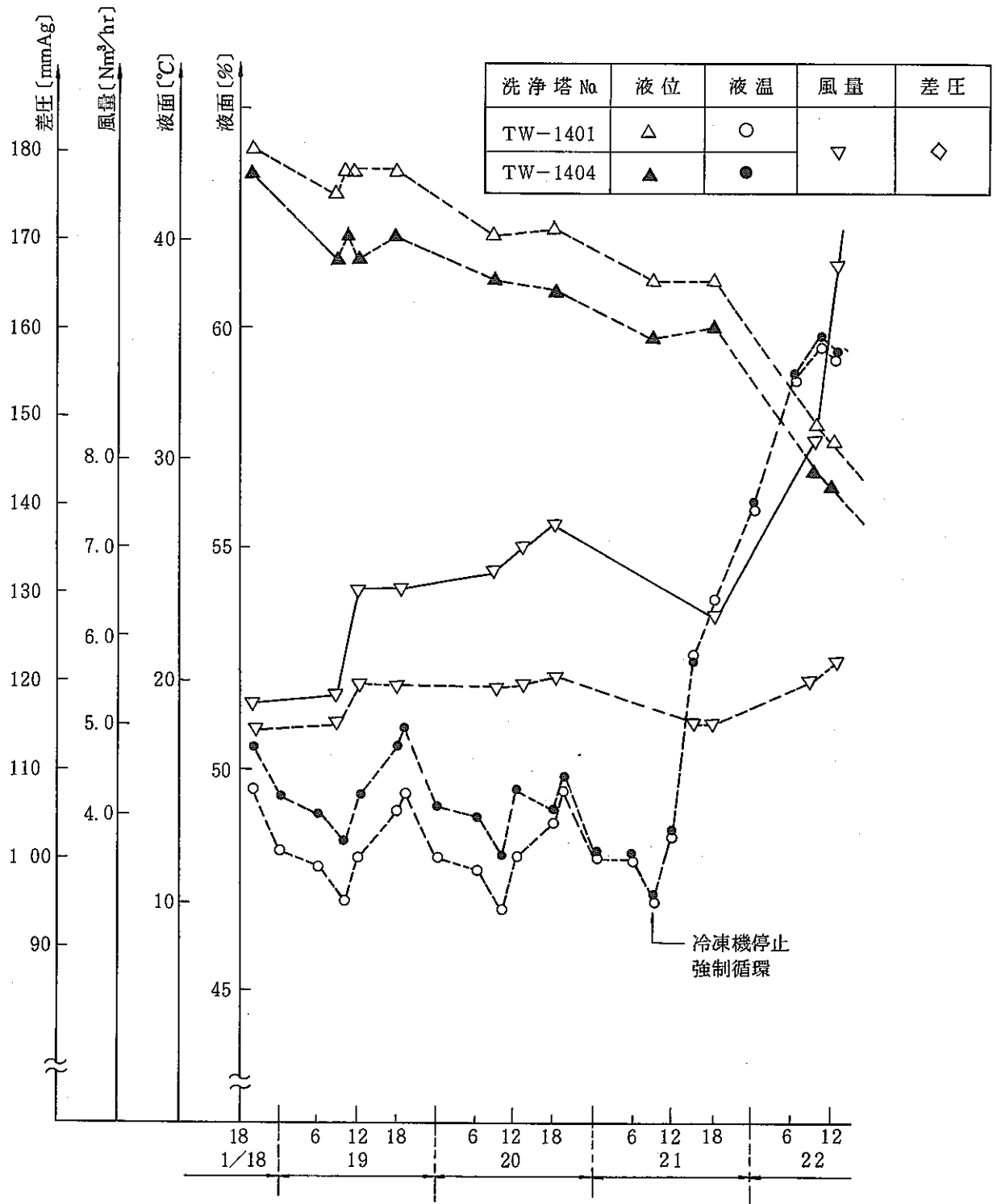


図-51 吸着塔の差圧増大

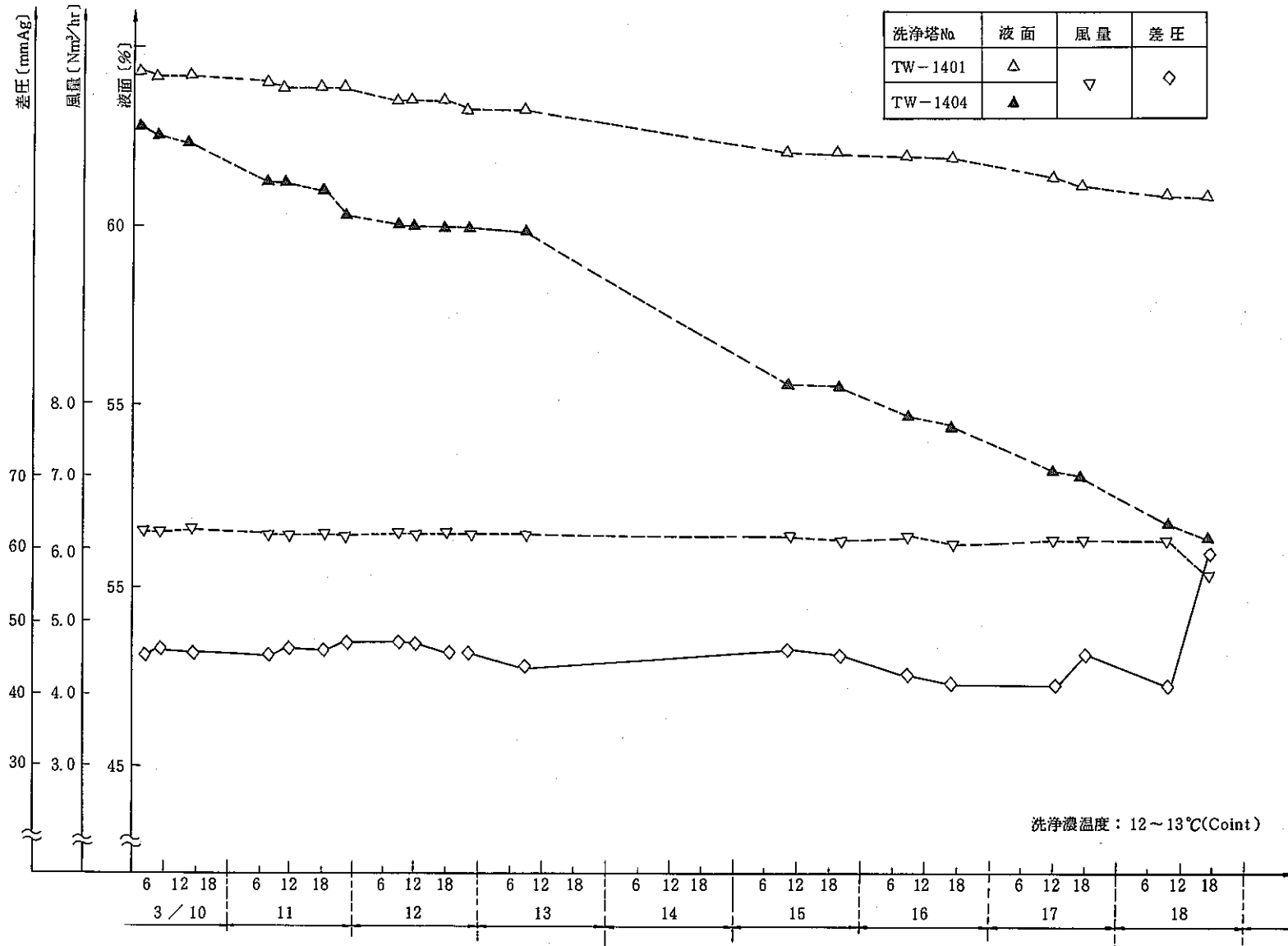


図-52 剪断工程オフガスフィルタ差圧増大

予熱ヒータ（EH-1401）及び吸着塔充填物の保温ヒータ（EH-1402A/B）の加熱によって蒸発後、セル内雰囲気温度（25℃）以上の温度における飽和湿り空気となって、下流側へ移行し、切断工程オフガスフィルタ部分で結露することにより生ずるものと考えられる。ここで相対的に洗浄後の減少量の大きい、TW-1404の洗浄液を変えた場合のFT-3401A/Bの差圧増大の様子を図-52に示す。

図-52に示す結果は、ウラン試験Iのものであるが、これは表-3にも示す通り、オフガス洗浄塔を冷却する冷水系統が

- i) 前半・バッチ運転であり、冷水系統停止時（冷凍機停止、自然循環）においても排気ブロワー、エアリフトポンプを連続運転とした。
- ii) 後半・連続運転としたが、冷凍機の点検調整のため冷凍機を停止させたまま冷水を強制循環した際に冷水温度が～35℃まで上昇し、この状態においても排気ブロワー、エアリフトポンプを連続運転した。

ことにより、洗浄液の蒸発量と、それに伴うミストの飛散量は、加速された結果となっており、このウラン試験Iの結果、減少した洗浄液量は

洗浄塔 No	洗浄液の種類	洗浄液の減少量
TW-1401	1.5N-NaOH	2.25 ℓ
TW-1404	"	10.5 ℓ

であり、これらの影響として①～④に示すような不具合が認められた。

この場合、③、④については冷水系統が正常に作動していて、洗浄液の減少量が加速されなければ、ドレンの発生量と蒸発量とのバランスにより発生は抑制されるものと考えられるが、①、②については洗浄液の蒸発とともに発生するミストの影響が蓄積して生ずるものであり、これらについては何らかの対策が必要である。

これらについての処置・対策を次に示す。

a) オフガス風量の低減化

図-47～52に示す結果より、オフガス風量は通常6Nm³/hr前後であり、これには、計器パージ、エジェクタパージ、攪拌空気、エアリフトポンプ、駆動用空気等プロセス操作上必要な空気の他に、系内へのリークする空気量が加算されている。通水作動試験の結果よりこのリーク量の大半がミキサセトラからのプロダクト液、廃液、廃溶媒等をセル内貯槽へ回収するカップ部分から吸込まれる空気であることが分っている。

よって、まずこのカップ部分に、Oリングシールを有するキャップを取付け、密封構造とすることにより、オフガス風量の低減化を計り、洗浄液の蒸発量と、これに伴うミストの飛散を抑制するものとする。

この処置を施すことにより、TW-1404の通過風量は通水作動試験の結果より4~5 Nm³/hr位まで低減させることが可能であり、この場合には、図-49に示す結果(制限オリフィスラインの元弁を絞り、人工的にTW-1404の通過風量を減じた場合)から判断して、洗浄液の減少量は、大きく抑制されるものと考えられる。

また、TW-1401については、エアリフトポンプの作動を溶解、操作、液移送、リンス操作時のみ、すなわちVE-1201内に液が入っている時のみ行うものとし、それ以外の場合は洗浄液の循環は行わないものとして洗浄液の減少を抑制する。

b) 電気ヒータの設置

②、④については、洗浄液の蒸発に伴伴するミストが、下流側に設置された電気ヒータ、(EH-1401, EH-1402A/B)により加熱され、オフガス中の空気の湿度が、一旦増加し、さらに下流側でセル内雰囲気温度まで冷却されることにより、過飽和分の水分が結露して起こるものと考えられる。従って、剪断工程オフガスフィルタ(FT-3401A/B)入口部分に電気ヒータを設置して、オフガスを予熱することにより、FT-3401A/Bフィルタ部及びFT-3401A/B出口ポケット配管部での結露の発生を防止する。

(4) 槽類ベントオフガス系の負圧維持

図-53に示すオフガス処理系の連続運転時に簡易水マンオメータを用いて、ミキサセトラーからのプロダクト液、廃液、廃溶媒を各貯槽に回収するカップ部より、各貯槽内の負圧を実測した。その結果を図中に示す。

この結果より各貯槽内の圧力は、セル内圧力を基準として微負圧に維持されることが確認されたが、2BV逆抽液槽(VE-1214)については0.5 Nm³/hrの攪拌空気を供給していたため、槽内圧力が+102 mmAqの正圧となり、ミキサセトラーからの液を重力流にて回収することが困難となり、攪拌空気の供給を停止した。

これは、(3)-a)で述べたように、ミキサセトラーからの液を貯槽に回収するためのカップ部分が開放となっているために、貯槽の密封状態が保持されないことに起因するものと考えられる。従って、これらについては(3)-a)と同様にカップ部分にOリングシールを有するキャップを取付け、貯槽類の密封性を確保することとした。

また、攪拌空気の供給については、できる限りバッチ操作とし、給液調整時やサンプリング時のみに限定することとした。

(5) 洗浄液の濃度変化

溶解(UO₂燃料ピン4本分)~液移送~給液調整(蒸発濃縮)の一連のI程RUNにおいてオフガス洗浄塔の洗浄液を一定時間毎にサンプリングし、そのアルカリ濃度(NaOH)及びウラン濃度を分析した結果を表-4及び図-54に示す。

この結果より、溶解時に発生するNO_xガスの吸収により、TW-1401の洗浄液のアルカリ濃度は、わずかに減少するが、その他、液移送及び給液調整時においては、TW-1401及び

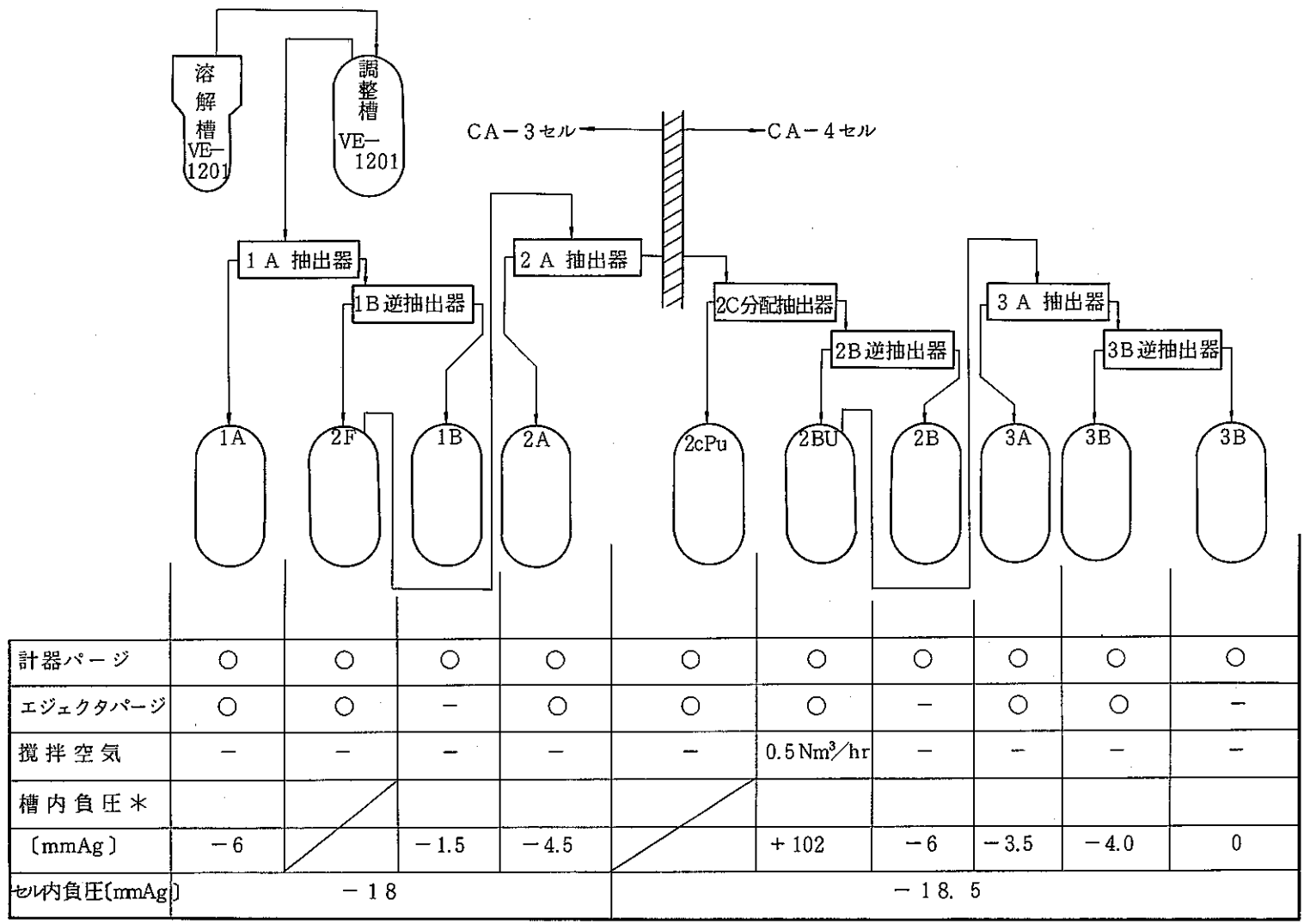


図-53 貯槽内負圧維持

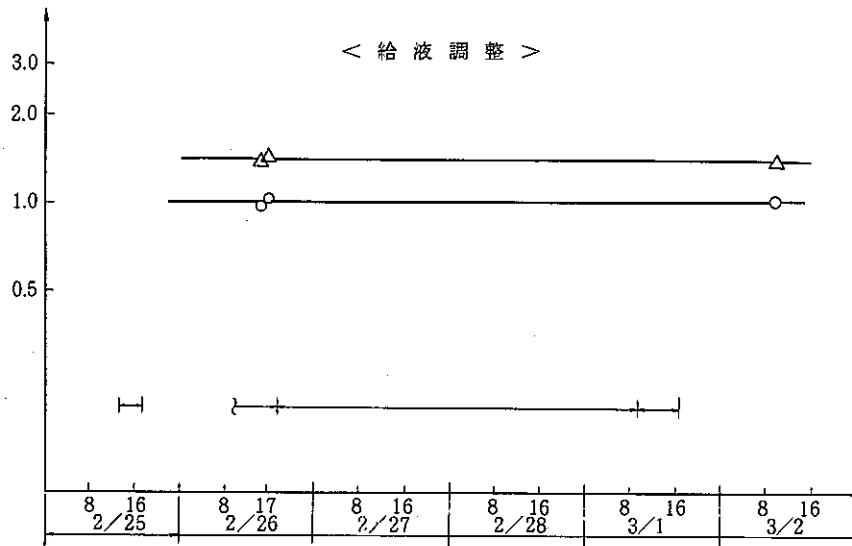
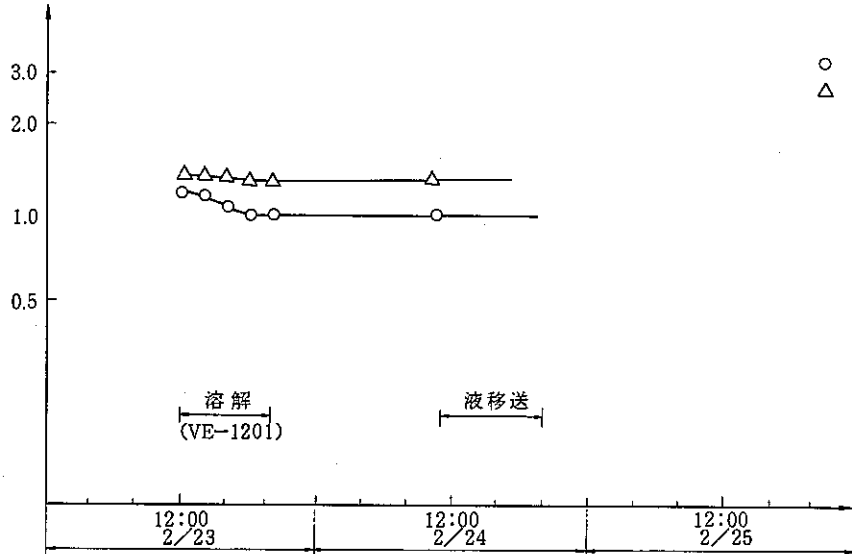


図-54 オフガス処理系洗浄液濃度変化

No	時刻	TW-1401		TW-1402		備考
		OH (N)	V (g/l)	OH (N)	V (g/l)	
	2/23					
1	11:50~12:15	1.18	<0.01	1.33	0.01	
2	14:05	1.14	<0.01	1.33	<0.01	
3	16:05	1.05	0.01	1.31	0.01	
4	17:59	0.98	0.01	1.28	0.01	
5	19:57	0.99	0.01	1.29	<0.01	
	2/24					
6	10:20	0.98	0.01	1.32	<0.01	
	2/26					
7	14:50~14:52	0.97	0.02	1.40	0.01	
8	15:50	1.02	<0.01	1.48	0.01	
	3/2					
9	9:30	1.03	<0.01	1.40	0.01	

注) 洗浄液のNaOHの濃度が、初期濃度の1.5Nより低いのは、1次試験の終了後に洗浄塔充填物を0.1N-HNO₃により洗浄したためである。

オフガス洗浄塔洗浄液分析結果

TW-1404 とともに、洗浄液の濃度はほとんど一定となることが分った。

また、洗浄液中のウラン濃度は、TW-1401 及び TW-1404 とともに、検出限界(0.01 g/ℓ)程度か、それ以下の値であり、これによってオフガス処理系へのウランのリークはほとんどないことが確認された。

(6) 排気ブローア廻りの運転条件

1-(1)でも示した通り、A系列試験装置のオフガスは、地階排風機室の排気ブローア(1)(BL-3402 A/B)により吸引され、B系列試験装置、A系列高中レベル廃液貯槽、B系列高レベル廃液貯槽、及び低レベル廃液貯槽・蒸発缶からのオフガスと合流した後、オフガスフィルタ(1)(FT-3403 A/B)にて処理された後スタックより放出される。(図-55 参照)ここで、各系統からのオフガス風量の増減によらず、FT-3401 A/Bの通過風量を一定に保持するため、流量計(FIC-3402)にて検出されたオフガス風量に応じてバイパス弁(FCV-3402)の開度を調整し、バイパス流量を制御するシステムとなっている。

ここで、一例として溶解工程運転時におけるオフガス処理系の圧力レベルを図-55 に示す。この結果、BL-3402 A/B廻りに要求される運転条件として、明らかになった数値を次表に示す。

項 目	計 器 No.	条 件
オフガス流量	FIC-3402	110 Nm ³ /hr
排気ブローア入口圧力	PG-3403	-880 mmAq
バイパスライン圧力	PG-3402	-420 mmAq

しかしながら、この条件は、総合試運転において各系統との同時運転を行い、再度確認する必要がある。

3.5.3 運転モードの確立

(1) オフガス洗浄塔の運転条件

① エアリフトポンプ

オフガス洗浄塔の洗浄液を循環させるエアリフトポンプの運転条件は、洗浄塔を通過するオフガス風量(気相)と、充填物部分を循環する洗浄液量(液相)とによって決まる。ここで、オフガス洗浄塔の運転条件を決定するために、次の表に示す再処理工場での運転条件を参考とした。

洗浄塔の種類	溶解オフガス処理用	槽類ベントオフガス処理用
オフガス風量	100 m ³ /hr	1000 m ³ /hr
洗浄液循環量	500 ℓ/hr	500 ℓ/hr

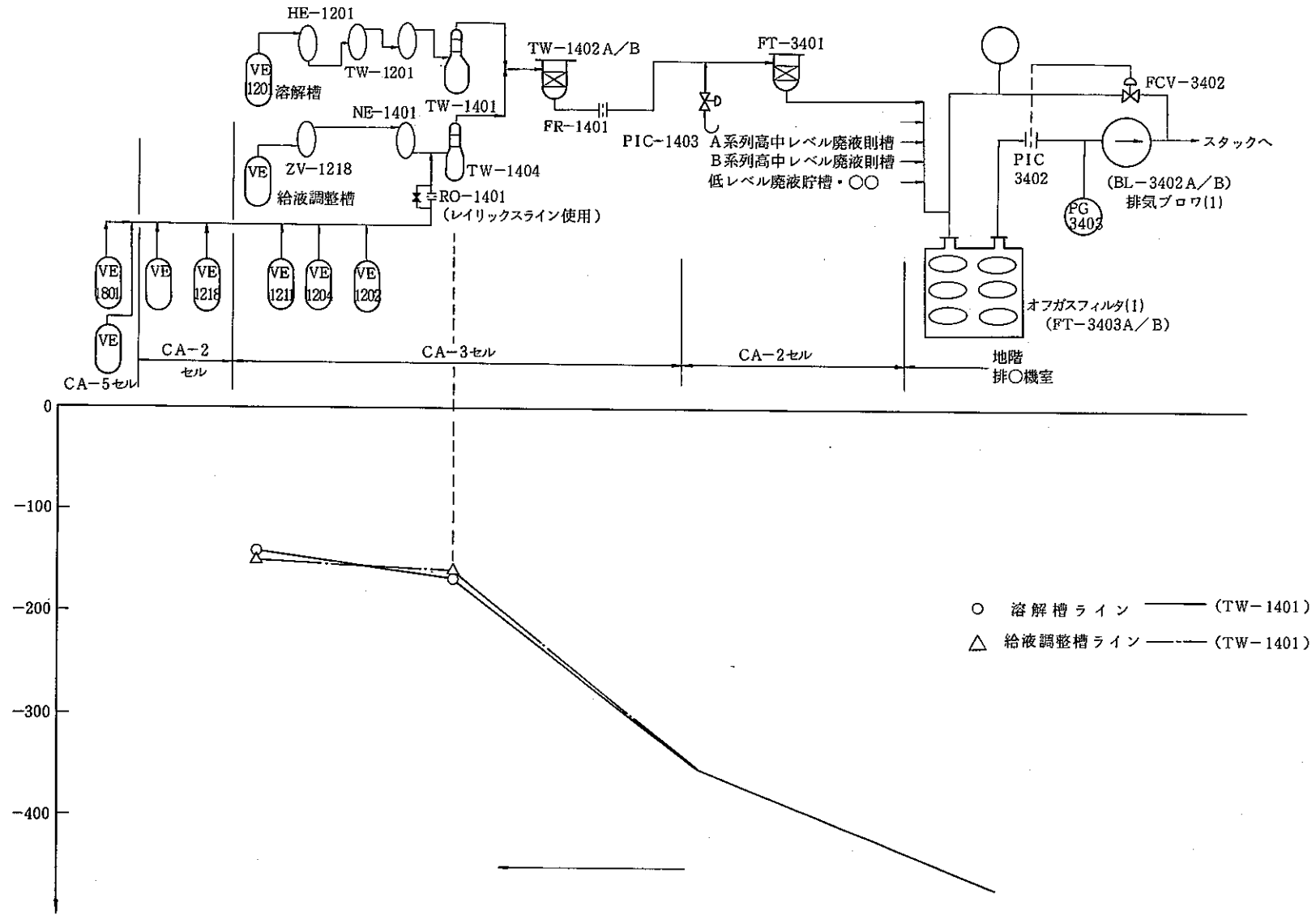


図-55 A系列プロセスオフガス処理系圧力レベル-溶解工程運転時

これより、CPF・A系列のオフガス洗浄塔の運転条件（詳細設計時検討）

洗 浄 塔 No.	TW-1401	TW-1404
オフガス風量	MAX. 1.2m ³ /hr	MAX. 5.0m ³ /hr
洗浄液循環量	MAX. 80 ℓ/hr	MAX. 250 ℓ/hr

を見直すと、再処理工場における気相・液相の流量比とCPFのそれは、はるかに大きくなっている。

ここで、洗浄塔の運転条件は、バックデータとして採取した洗浄液の循環量をパラメータとしてオフガス風量～充填物差圧との関係（図-56, 57 参照）も参考として下表のように定める。

洗 浄 塔 No.	TW-1401	TW-1404
オフガス風量	～1.0 Nm ³ /hr	～5 Nm ³ /hr
洗浄液循環量	25 ℓ/hr	30 ℓ/hr
AL 駆動空気量	200 Nℓ/hr	500 Nℓ/hr

② 洗浄液の交換頻度

オフガス洗浄塔の洗浄液の交換については、そのアルカリ濃度、放射性物質濃度（特にヨウ素）によって判断する。すなわち、1RUN終了後にその都度、オフガス洗浄塔より洗浄液のサンプリングを行い、アルカリ濃度、放射性物質濃度を分析し、交換の要否を決定する。

目安値としては次の値を用いるものとし、アルカリ濃度については、下記の値以下、また放射性物質濃度については下記の値以上となった場合には洗浄液を交換するものとする。

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{アルカリ濃度：NaOH } 1.0 \text{ mol}/\ell \\ \text{放射性物質濃度：} 10^3 \text{ } \mu\text{ci}/\text{cc (Total)} \end{array} \right.$$

アルカリ濃度については、図-54に示す結果より溶解工程操作時に若干減少するが、その他の工程操作時は、TW-1401, 1404ともに、ほぼ不変なので、少なくとも1RUN終了する度に、洗浄液を交換する必要性はないものと考えられる。

また、洗浄液の組成等については試験のパラメータであり、種々の洗浄液を用いることも試験上必要であり、使用前又は交換の際には十分考慮する必要がある。

(2) 洗浄液の蒸発及びミスト飛散の抑制と対策

① 洗浄塔冷却ジャケットへの冷水供給条件

3の(2)－①において述べたように洗浄液の蒸発と、それに伴うミストの飛散を抑制するためには、冷水システムを正常に運転するとともに、洗浄塔の冷却ジャケットへ所定量の冷水を供

TW-1401

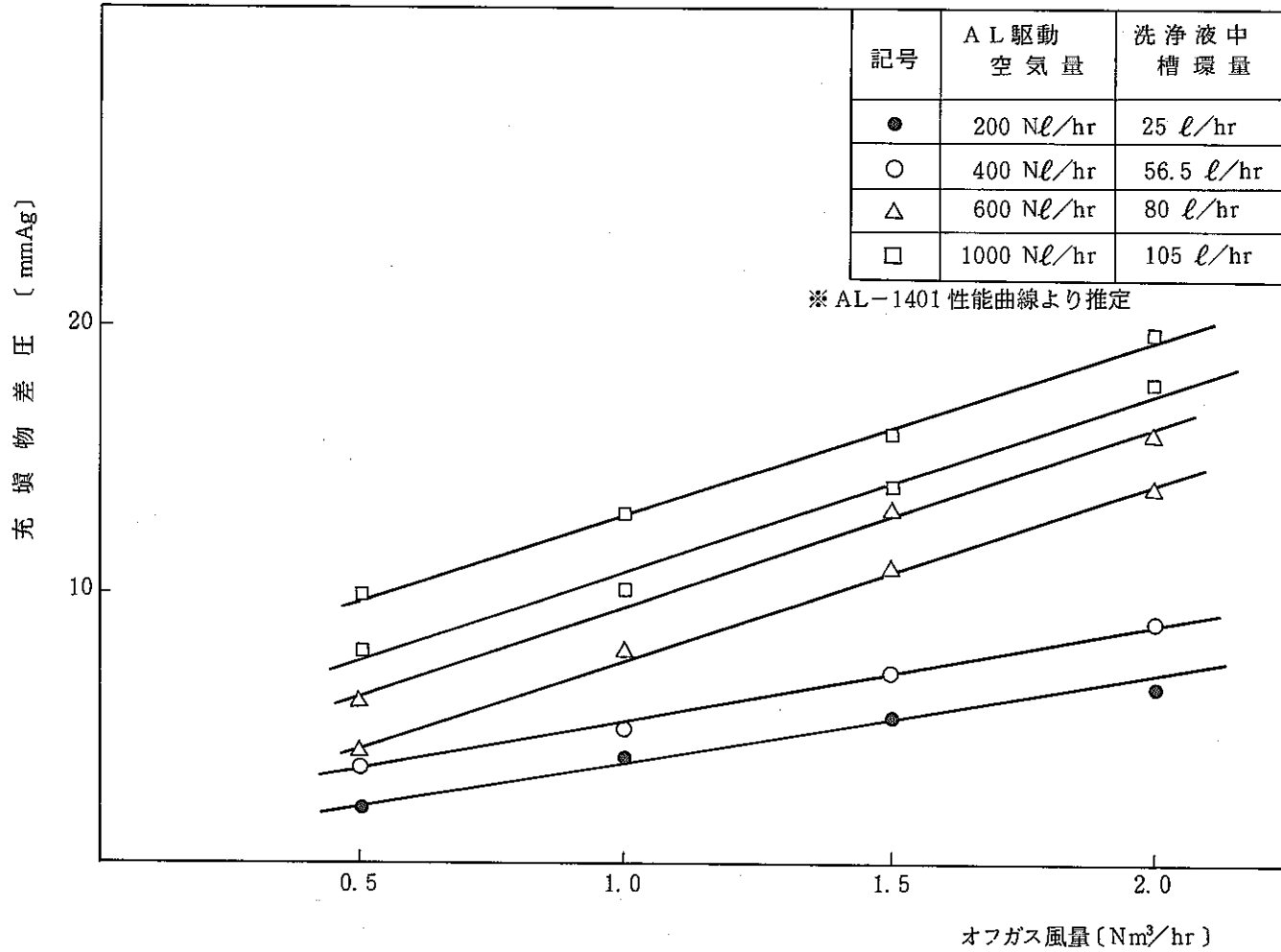


図-56 TW-1401における風量と差圧の特性

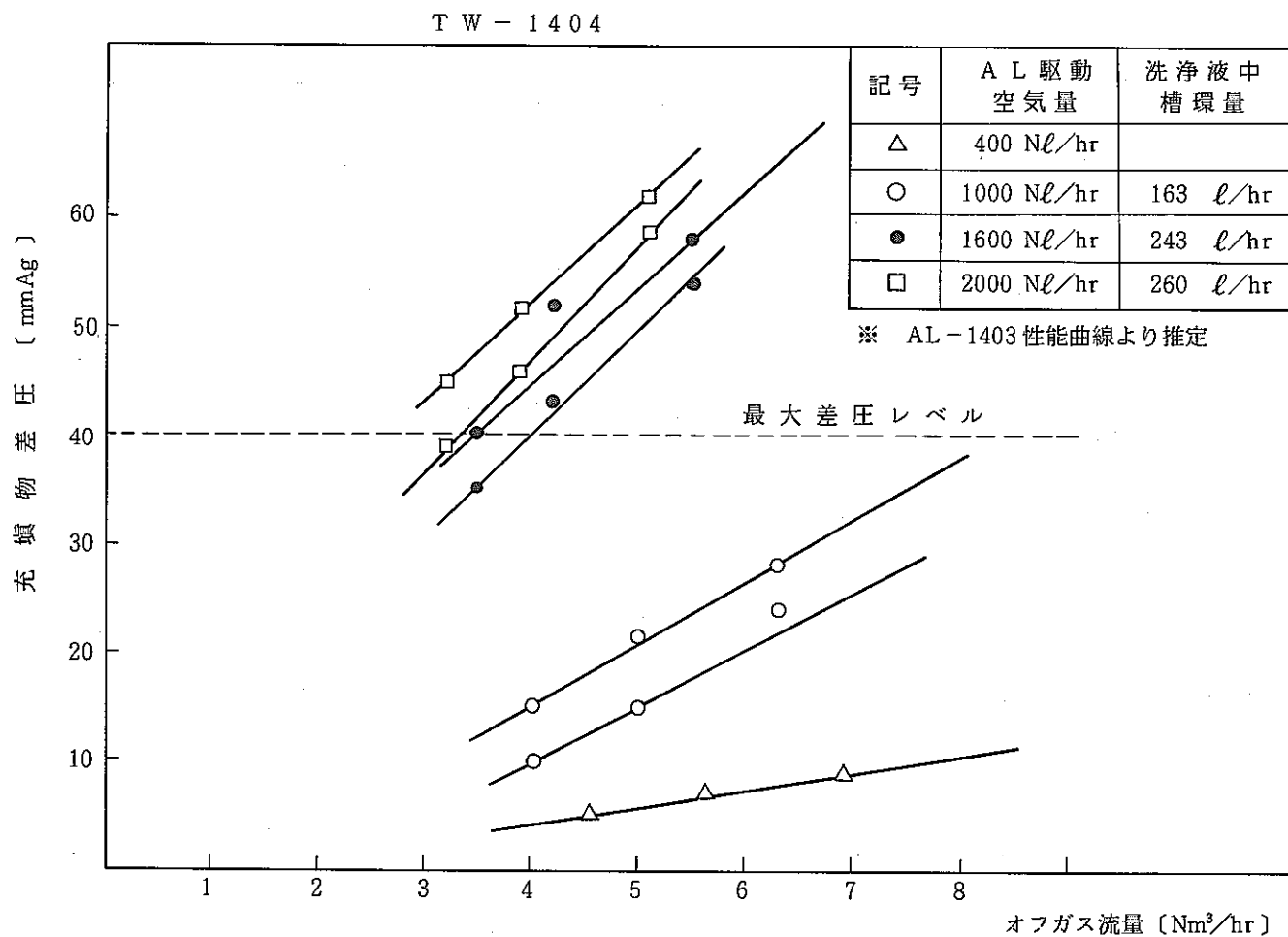


図-57 TW-1404 における風量と差圧の特性

給し洗浄液の冷却を十分に行う必要がある。ここで、3の(2)-①に示す結果より洗浄塔の冷却条件を次のように定める。

洗 浄 塔 No.	TW-1401	TW-1404
冷水供給量	120 ℓ/hr	120 ℓ/hr
洗浄液温度	~12℃	~12℃

運転中は、洗浄液温度を常に監視し、~12℃より上昇する場合には冷水供給量を適宜増やすものとする。

図-51に示す結果より、冷凍機が正常に作動していれば、洗浄液温度がほぼ~12℃前後で、一定に保持されることが確認された。

② オフガス風量の低減化

3の(2)-②において述べたように、洗浄液の蒸発と、それに伴うミストの飛散は洗浄塔を通過するオフガス風量の増大とともに増加する。

(図-49, 50) 従って3の(3)-a)に示す通り、次の諸対策を実施し、オフガス風量の低減化を計る。

- i) 系内リーク量の大半を占めるミキサセトラーからの液回収カップ部分に、Oリングシールを有するキャップを取付け密封構造とする。
- ii) 抽出工程操作及び通常保持時においても、制限オリフィス(RO-1401)ラインを使用するものとし、オフガス風量を相対的に減ずる。
- iii) 溶解工程オフガス系において、TW-1401の洗浄液の循環は、溶解操作、液移送、及びリンス操作時のみ行うものとし、その他の場合、すなわち溶解槽内に液が入っていない場合には洗浄液の循環(すなわちエアリフトポンプ)を停止する。
- iv) 槽類への攪拌・パージ空気は可能な限りバッチ供給とし、オフガスの風量レベルを相対的に下げる。

以上の対策により、オフガス風量を減少させ、通常保持時におけるオフガス風量としては次の値を目標とする。

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{TW-1401 通過風量} : \sim 0 \text{ Nm}^3/\text{hr} \text{ (溶解槽空)} \\ \text{TW-1404} \quad \quad \quad : \sim 2.0 \text{ Nm}^3/\text{hr} \text{ (密封処置後)} \\ \text{系内全風量} \quad \quad \quad : \sim 3.0 \text{ Nm}^3/\text{hr} \text{ (FR-1401 指示)} \end{array} \right.$$

通水作動試験時に、ミキサセトラーの液回収カップ部にガムテープを張り、密封した状態での測定結果より、オフガス風量は低減することが確認されており、さらに図-49に示す結果より、オフガス風量が低減された場合には洗浄液の減少量が顕著に低下することが確認された。

③ CA-2セル側への電気ヒータの設置

3の(3)-b) 参照

④ オフガス洗浄塔出口部にミストセパレータの設置

3の(3)-c) 参照

(3) オフガス処理系の監視

オフガス処理系に限らず、A系列試験装置の連続運転時には、AP盤チェックシートに基づき、一定時間毎に監視を行っているが、特にオフガス処理系については次の項目についてNOR.値にあることを常時チェックする。

個所*	項目	流量 [Nm ³ /hr]	負圧 [mmAq]	差圧 [mmAq]	液位 [%]	液温 [α]	ガス温度 [°C]
VE-1201		-	-160~-170	-	-	-	-
VE-1204		-	-140~-150	-	-	-	-
TW-1401		-	-160~-170	1.0	~60%	~12°C	-
TW-1404		-	-150~-160	6.0~7.0	~60%	~12°C	-
TW-1402 A/B		-	-	~140	-	-	~90°C (入口/出口)
FR-1401		~6.0	-	-	-	-	-
PIC-1408		-	-350	-	-	-	-
FT-3401 A/B		-	-	40~45	-	-	-
FIC-3402		110	-	-	-	-	-
BL-3402 A/B ^{入口}		-	-880	-	-	-	-
BL-3402 A/B バイパスライン		-	-420	-	-	-	-

上表においてNOR.値については、通常保持時において制限オリフィスラインを使用した場合の値を示しており、若干のバラツキはあるものの、本試験の結果、得られた値をベースとしている。

(4) 異常時の処置について

オフガス処理系の連続運転時において、特に考えられる異常に対して、次のような処置を講ずるものとする。

① 充填物・フィルタ部の差圧増大

i) オフガス洗浄塔充填物部分について (TW-1401, 1404)

本試験の結果より、この部分の差圧は、運転時間の蓄積によっても、ほぼ一定であることが確認されたが、万が一差圧が増大した場合は、洗浄塔の上部に設けられた除染液の供

給ラインより、0.1 N程度のHNO₃を注入し充填物部分の酸洗いを行う。

ii) オフガス吸着塔充填物部分について (TW-1402 A/B)

本試験の結果得られた、この部分における差圧上昇 (図-51 参照) は、冷凍機停止後のCC系強制循環による洗浄液温度の上昇が原因となって洗浄液の蒸発と、それに伴うミストの飛散が加速された結果、充填物入口目皿部にNaCO₃の白色粉末が付着したためと考えられる。従って、CC系の正常運転が補償され、かつ②-②に示すオフガス風量の低減化対策を実施すれば充填物 (銀ゼオライト) の寿命期間程度は、差圧の増大を抑制できるものと考えられる。しかしながら、万が一充填物の差圧が増大した場合は直ちに予備ラインに切換え、目詰りした充填物は、予備品と交換した後、固体廃棄物として処分する。

iii) 剪断工程オフガスフィルタ部分について (FT-3401 A/B)

洗浄塔より、液の蒸発分に同伴して、飛散したミストは、CA-2セル間のFT-3401 A/Bフィルタ部分で結露し、差圧の増大をもたらすことが明らかとなった。(図-参照) これについては、3の(3)-b) に述べたように、FT-3401 A/B入口部に電気ヒータを設置しオフガスを再熱することにより防止できるものと考えられるが、万が一、フィルタ部の差圧が増大した場合には直ちに予備ラインに切換え、湿気を吸ったフィルタは、予備品と交換後、取出しセル内にて乾燥する。

② 配管ポケット部におけるドレン発生

本試験の結果、ドレンの発生、又は発生の可能性がある配管ポケット部は次の通り。

- a) TW-1401, 1401 出口~TW-1402 A/B 入口
- b) TW-1402 A/B 出口~FR-1401 入口
- c) FR-1401 出口~CA-2 側壁貫通部
- d) FT-3401 A/B 出口~CA-2 床貫通部

このドレンの発生については、①-ii) に述べた通り、CC系の正常運転が補償され、かつオフガス風量の低減化対策及びCA-2セル側への電気ヒータの設置が実施されれば、かなり抑制されることが考えられるが、万が一、ドレンが発生した場合には、次の方法により対処する。

a), b) については、ドレン弁 (それぞれVPF-14026, VPF-14010) を開とし、ドレン抜き操作を行う。

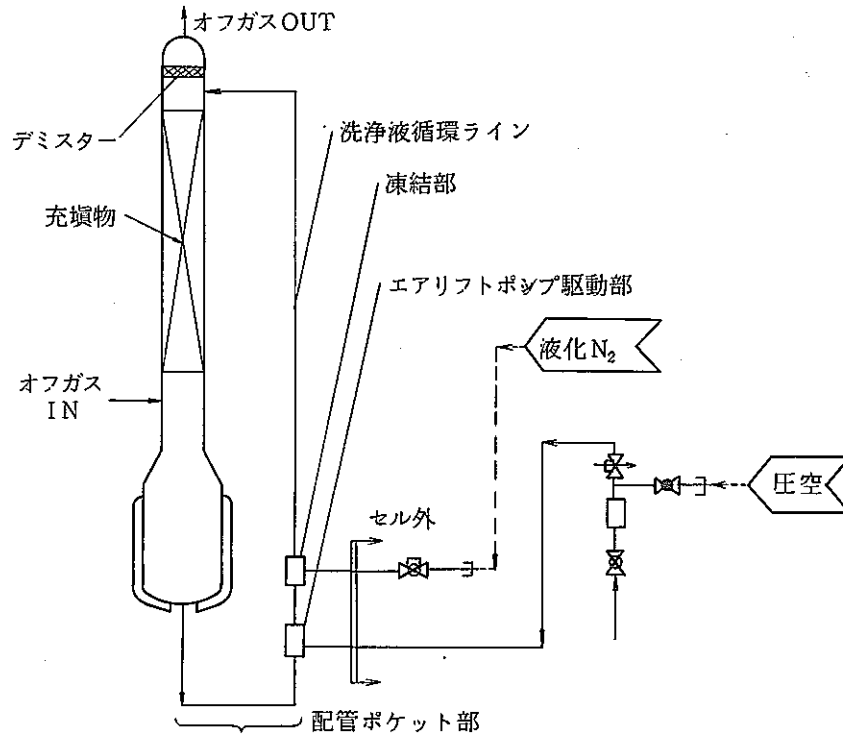
c) については、TW-1402 A/B 出口~FR-1401~CA-2セル間壁貫通部の配管ポケット部全体に洗浄液 (純水) を張り込んだ後、ドレイン弁 (VPF-14010) を開として洗浄液をドレインさせる。この操作を繰り返した後、ドレイン操作によって抜けないc) 部分のNaOH濃度を下げ、残留液は蒸発させることにより処置する。

d) については、FT-3401 A/Bの差圧を監視し、①-iii) に示すような対処をすればまずドレインの発生はあり得ないが、万が一、発生した場合にはFT-3401 A/Bの蓋を開

放し、フィルタを取出し、ドレイン排出治具によりドレイン抜き操作を行う。

③ エアリフトポンプ逆洗ラインの設置

オフガス洗浄塔において、エアリフトポンプを作動させ、洗浄液の連続循環を行うと、洗浄塔下部～エアリフトポンプ駆動部間の配管ポケット部にスラッジが推積し、洗浄液の循環ラインが閉塞する可能性が考えられる。この場合を想定して、下記に示すような逆洗ラインを設置した。本ラインについてはセル外より、実際に液化N₂を供給し、洗浄液供給ラインが凍結できることを確認した。



3.5.4 オフガス処理試験まとめ

本試験により確認された項目、次の結果までに行う改良、及び次の試験で確認すべき項目を次にまとめる。

項 目	内 容
運転結果 (a) 負圧バランス	溶解～清澄～調整の各工程操作時において、系内負圧はほぼ一定に保持されることが確認された。 抽出工程操作時及び通常保持時においても、制限オリフィスラインを使用し、風量を～6 Nm ³ /hr 程度に抑えることを確認した。 オフガス予熱・保温ヒータは正常に作動することを確認した。 オフガス洗浄塔充填物差圧はほぼ一定であった。

項 目	内 容
(b) オフガス洗浄塔の液面低下	<p>オフガス洗浄液の蒸発と、それに伴うミストの飛散を抑える為に</p> <ul style="list-style-type: none"> i) 洗浄液を冷却する冷水システムの正常運転 ii) オフガス風量の低減化 <p>が必要であることが分った。</p> <p>また、これによる加速試験の結果、オフガス処理系へ及ぼす影響として</p> <ul style="list-style-type: none"> i) 吸着塔充填物・フィルタ部分の差圧増大 ii) 配管ポケット部のドレン発生 <p>が確認された。</p>
(c) 槽類ベントオフガス系の負圧維持	<p>通常保持時において制限オリフィスラインを使用（オフガス風量～6.0Nm³/hr）した場合</p> <ul style="list-style-type: none"> i) 貯槽内圧は、セル内圧力に対して微負圧に維持することが確認された。 ii) 攪拌空気供給時は、セル内圧力に対して正圧となることが分った。
(d) 洗浄液の濃度	<p>溶解～清澄～調整の一連の工程RUNにおいて、次のことが確認された。</p> <ul style="list-style-type: none"> i) 洗浄液のアルカリ濃度は溶解工程操作時を除き、ほとんど一定であった。 ii) 洗浄液中のウラン濃度は検出限界程度か、それ以下であり、オフガス系へのウランのリークはほとんどないことが分った。
運転モードの確立	
(a) 運転監視上の通常値	<p>オフガス処理系運転監視上の値として、プロセス側及び排気ブローヤ廻りの温度・圧力・風量等のNOR. 値を定めた。</p>
(b) オフガス洗浄塔の運転条件	<p>エアリフトポンプの作動条件、洗浄液の交換頻度を定めた。</p>
(c) 運転結果からの改良点	<p>洗浄液の蒸発と、それに伴うミストの飛散防止</p> <ul style="list-style-type: none"> i) 洗浄塔冷却ジャケットへの冷水供給条件確立 ii) オフガス風量の低減化 <ul style="list-style-type: none"> 各貯槽のミキサセトラー液回収カップの密封構造化 制限オリフィスラインの常時使用 溶解工程オフガス系洗浄塔のバッチ運転 貯槽類攪拌空気のバッチ供給 iii) CA-2セル側への電気ヒータ設置 <p>〔ミストセパレータの設置〕</p> <p>貯槽内の負圧低下及び攪拌空気供給時の正圧防止</p> <ul style="list-style-type: none"> i) 各貯槽のミキサセトラー液回収カップの密封構造化 <p>これらによる確認試験と運転条件の再確認を次の試験で行う。</p>
(d) 異常時の処置	<p>加速試験の結果得られた充填物・フィルタの差圧増大及び配管ポケット部のドレン発生時の対策として、とるべき処置・方法を明らかにした。</p>

項 目	内 容
	洗浄液循環ライン閉塞時の対策として、エリアポンプ逆洗ラインを設置した。

4. 結 論

CPFでは57年1月6日に管理区域を設定し、その翌日にウラン燃料ピン15本を搬入し、再処理系列のウラン試験を開始した。

本ウラン試験は第一次、第二次、第三次の3回から成り、約3ヶ月をもって無事終了した。

第一次試験ではウラン燃料2ピンを用い、燃料せん断工程から抽出第3サイクルの全工程の試験を遠隔操作に主をおき進めてきた。また、各種治具、遠隔操作時の確実性、有効性などを直接セル内で確認しつつ進めてきた。

その結果、治具手直し、方法の改善、セル外における工程運転監視の方法などを決定した。また、これらの運転に必要な操作マニュアルの見直し、修正を図り、次試験に備した。

第二次試験では、工程上最も重要で、かつ監視計器による運転が主となる工程、すなわち溶解、調整工程の試験を実施した。

本試験は運転上最大の取扱い量である4ピンを対象とし、せん断工程から溶解、調整までの一連の操作を行ない、第一次試験の再確認並びに改善した治具、箇所の確認等を行なった。又、溶解槽内液濃度が予定通りの高濃度（400 g/l）となった場合の相異などを明らかにした。

又、せん断時に発生するウラン酸化物の粉末について、その粒径分布の測定などを行ない、ホット時に備えた。

以上、2回に亘るウラン試験と、これまでに実施してきた各種操作訓練、化学試験等でほぼ工程に関する特性把握と操作員の訓練の習熟を図った。

今後、ホット移行に向けてこれまでに摘出された改善箇所の手直しと、工程試験に必要な遠隔操作具（マニプレーター、パワーマニフイルター、インセルクレーン等）の保守対策に着目した整備を行なう予定である。

5. 謝 辞

関係各位の協力があり、十分目的を達成し得た。

核燃料部、再処理工場、大洗FMF、その他各部門の方々の御協力に感謝します。

更に、ウラン試料の分析を担当した技術部分析課、並びにユーティリティを担当したCPF運転保守グループの方々には重ねて御礼申し上げます。