

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 02. 3. 20 [技術情報室]

廃溶媒処理技術開発施設の設計と建設工事

Design and Construction of Solvent Waste Treatment Facility

1984年6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

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



配 布 限 定
PNC-SN841-84-38
1 9 8 4 年 6 月

廃溶媒処理技術開発施設の設計と建設工事

Design and Construction of Solvent Waste Treatment Facility

報告者 今 哲郎* , 大田垣隆夫**
岡野 義*

要 旨

動燃東海再処理工場から廃溶媒の発生ルートを調査するとともに廃溶媒の性状について推定した。廃溶媒処理技術に関し、燃焼法、蒸留法、化学分離法の各処理法の概要を紹介するとともに、PNC廃溶媒処理技術開発施設用プロセス選定の経緯を取りまとめた。さらに、WAK再処理工場の実廃溶媒による廃溶媒処理基礎試験結果とKfK廃溶媒処理施設の運転実績および運転に関する情報を取りまとめた。又、EUROWATTプラントの設備概要とユーロケミック再処理工場の実廃溶媒による溶媒処理試験の結果を紹介した。PNC廃溶媒処理技術開発施設に関しては、施設およびプロセス概要、さらに安全設計上の留意点および建設工事経験を取りまとめた他、今後の試運転計画についても紹介した。

* 再処理工場技術開発部建設室

** 現在 (株) 日本製鋼所勤務



目 次

1. 緒 言	1
2. 廃溶媒の発生ルートとその性状	2
2.1 廃溶媒発生ルート	2
2.2 廃溶媒の性状	6
2.2.1 WAKの廃溶媒の性状と第三相對策	6
2.2.2 動燃東海再処理工場の廃溶媒の性状(推定)	8
3. 世界における廃溶媒処理技術開発の現状	12
3.1 各処理法の概要	12
3.1.1 燃焼法～オクチル酸カルシウム法, 液中燃焼法, 流動床燃焼法	12
3.1.2 蒸留法	18
3.1.3 化学分離法～K f K法, ユーロワット法	18
3.1.4 PNC廃溶媒処理技術開発施設用プロセスの選定	31
3.2 K f Kにおける廃溶媒処理の実績	32
3.2.1 WAK実廃溶媒による廃溶媒処理基礎試験結果	32
3.2.2 K f K廃溶媒処理施設の運転実績	44
3.2.3 K f K廃溶媒処理施設の運転に関する情報	48
3.3 EUROWATTプラントの廃溶媒処理実績	52
3.3.1 EUROWATTプラントの設備概要	52
3.3.2 EUROWATTプラントの実廃溶媒処理試験結果	52
4. PNC廃溶媒処理技術開発施設	67
4.1 施設の概要	67
4.2 プロセス概要	79
4.3 安全設計上の留意点	88
4.3.1 火災・爆発防止対策	88
4.3.2 誤操作防止対策	90
4.3.3 保守性向上策	92
4.4 建設工事	95
4.5 試運転計画	111
5. 結 語	116
6. 謝 辞	117
7. 参考文献	118

1. 緒 言

使用済燃料の再処理の過程で発生する放射性廃棄物のうち二次的に発生する廃溶媒（約30% TBP+ドデカン）につき、昭和52年に廃棄物処理課が廃溶媒の処理および安定貯蔵の検討を開始し、昭和52年～53年にかけて廃溶媒処理技術開発施設のフェージビリティを把握するために設計研究が実施された。その結果、昭和54年にPNCの廃溶媒処理技術開発施設のプロセスとしては、KfK法の採用が決定された。

これを基に、将来廃棄物処理課の施設とするの一貫した位置付の本に廃溶媒処理技術開発施設の基本仕様が決められ、引続き建設室が詳細設計および建設工事を実施し、現在建設室において総合作動試験（いわゆるコールド試験）を開始したところである。今後引続き建設室にて総合作動試験とエポキシ固化試験装置の追加設置工事を行ない装置を完成させ、運転員の教育訓練、運転要領書等基準類の整備を行った後、試験運転第二課に引継ぎ、60年度にホット試験による性能確認試験を行なり予定である。

建設工事に一区切がついたのを機会に、廃溶媒処理技術開発プロジェクトの経緯、施設の概要、施設の設計および建設工事経験等について取りまとめ、各位の参考に供することとした。

なお、内容等につき、各位の切なる御叱責、御教授を乞いて止みません。

2. 廃溶媒発生ルートとその性状

2.1 廃溶媒発生ルート

動燃東海再処理工場はPurex法の溶媒抽出プロセスで設計され、ウラン、プルトニウムの抽出剤として耐放射線性に優れた30%TBP-70%n-ドデカンを使用している。再処理工場内の溶媒のフロー概要を図2.1に示す。

溶媒抽出工程の逆抽出部でウラン、プルトニウムを逆抽出した溶媒は、溶媒洗浄部で Na_2CO_3 、 NaOH および HNO_3 溶液で洗浄され、溶媒貯槽に貯蔵される。その後再び溶媒抽出工程の抽出部にリサイクルし再利用される。

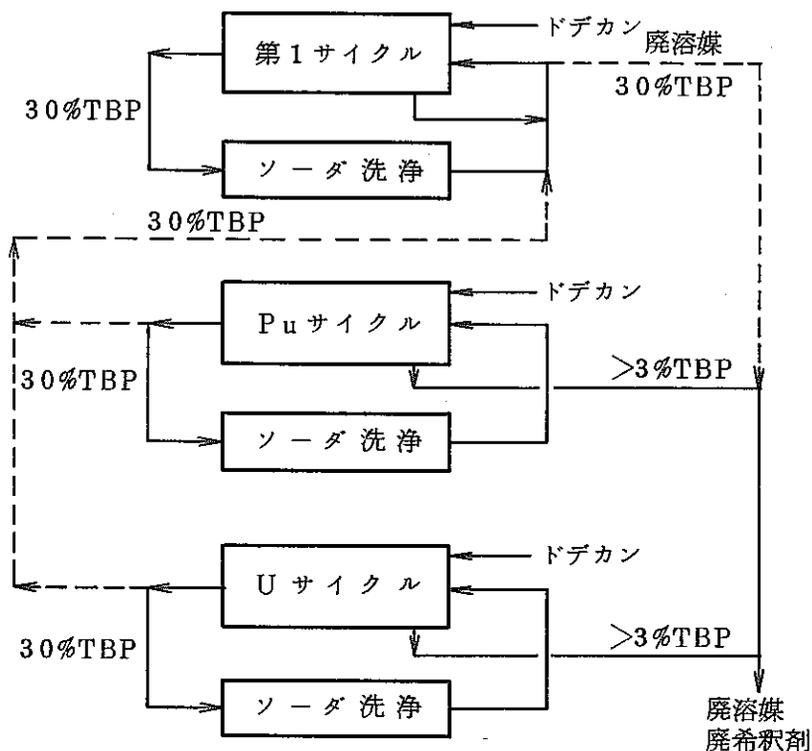
一方、ミキサ・セトラからの廃液を蒸発濃縮工程の蒸発缶で濃縮した際に廃液中に含まれるTBPがニトロ化し、ひいては爆発事故の恐れがある。それを防止するため、上記廃液は蒸発濃縮工程へ送液する前に、希釈剤洗浄部(DW)でドデカン洗浄し、含有TBPをドデカン中に抜出除去している。このドデカン(TBP濃度5~10%)も上記溶媒貯槽にもどされる。このドデカンリサイクルに伴い溶媒抽出工程内のTBPが低下するので、定期的にTBPおよびドデカンを追加補給している。この追加補給を行なうと工程内の溶媒の保持量が増加してくるが、所定の保持量(約13 m^3)を超える自然増加分はオーバーフロー方式により工程の溶媒ラインから抜出し、廃棄物処理場(AAF)へ送り廃溶媒として貯蔵する。なお、このようなりサイクル方式の追加により貯槽内での溶媒劣化物の蓄積防止も期待できるし、溶媒の比放射能も設計値(25 mCi/l)よりも低くなっている。反面、廃溶媒の発生量が設計値(34 l/日)の約5倍となっている。溶媒の滞留時間は工場が連続運転した場合、単純に保持量を追加補給量で割って約80~90日と推定される。

一方、酸回収蒸発処理対象廃液は蒸発処理前に溶媒洗浄部でドデカン洗浄されるが、これに伴う発生ドデカンは廃希釈剤(TBP濃度約10%以下)として取扱われ、一時貯蔵後AAFの焼却炉で焼却処分される。なお、焼却処分に当っては含有TBPの燃焼分解に伴い発生するリン酸分により炉材の腐食が避けられないので、廃希釈剤中にオクチル酸カルシウムを添加し、リン酸分をリン酸カルシウム粉末化することにより腐食を防止している。処理能力は0.13 $\text{m}^3/\text{日}$;約26 $\text{m}^3/\text{年}$ である。現在は廃希釈剤は紙、ウエス、酢酸ビニールなどの可燃性固体廃棄物と混合し焼却処分している。昭和59年4月現在までの焼却処分量は $\beta\gamma$ 可燃性固体廃棄物を約200 t 、廃希釈剤約50 m^3 の処分実績を有する¹⁾。

さて、最近の工場のキャンペーンデータによれば、廃溶媒・廃希釈剤の発生量は共に約120~150 l/日 である。工場の廃溶媒貯蔵能力は約140 m^3 (20 $\text{m}^3 \times 7$ 基)であり、満杯になるのは1986年夏頃と推定される。この他、廃希釈剤貯蔵能力は約20 m^3 (20 $\text{m}^3 \times 1$ 基)であり、その貯蔵能力を超えない様に配慮し焼却炉が運転されている。

なお、参考までにWAK再処理工場内の溶媒のフローの概要を図2.2に示す。WAK再処理工

場内の溶媒のフローは動燃東海再処理工場の場合と類似しているものの、プルトニウム精製工程およびウラン精製工程の溶媒の入替頻度がそれぞれ1回/年および2回/年という情報から判断すると、動燃東海再処理工場の様に定期的新溶媒を追加補給しオーバーフローさせたものを廃溶媒とするような設計は採用されていないと推定される。



注) …… は間欠的な流れを示す。
 Pu, Uサイクルの溶媒は全量第1サイクルへもどされる。
 溶媒の入れ替え頻度は、
 { Pu サイクル 1回/年
 { U サイクル 1回/2年

WAK 再処理工場：1970年より運転開始，Purex Process
 処理能力 40 tUO₂ /年～200kgUO₂ /日×200日
 燃料燃焼度 約35,000MWd/tまで

図 2.2 WAK 再処理工場内の溶媒のフローの概要

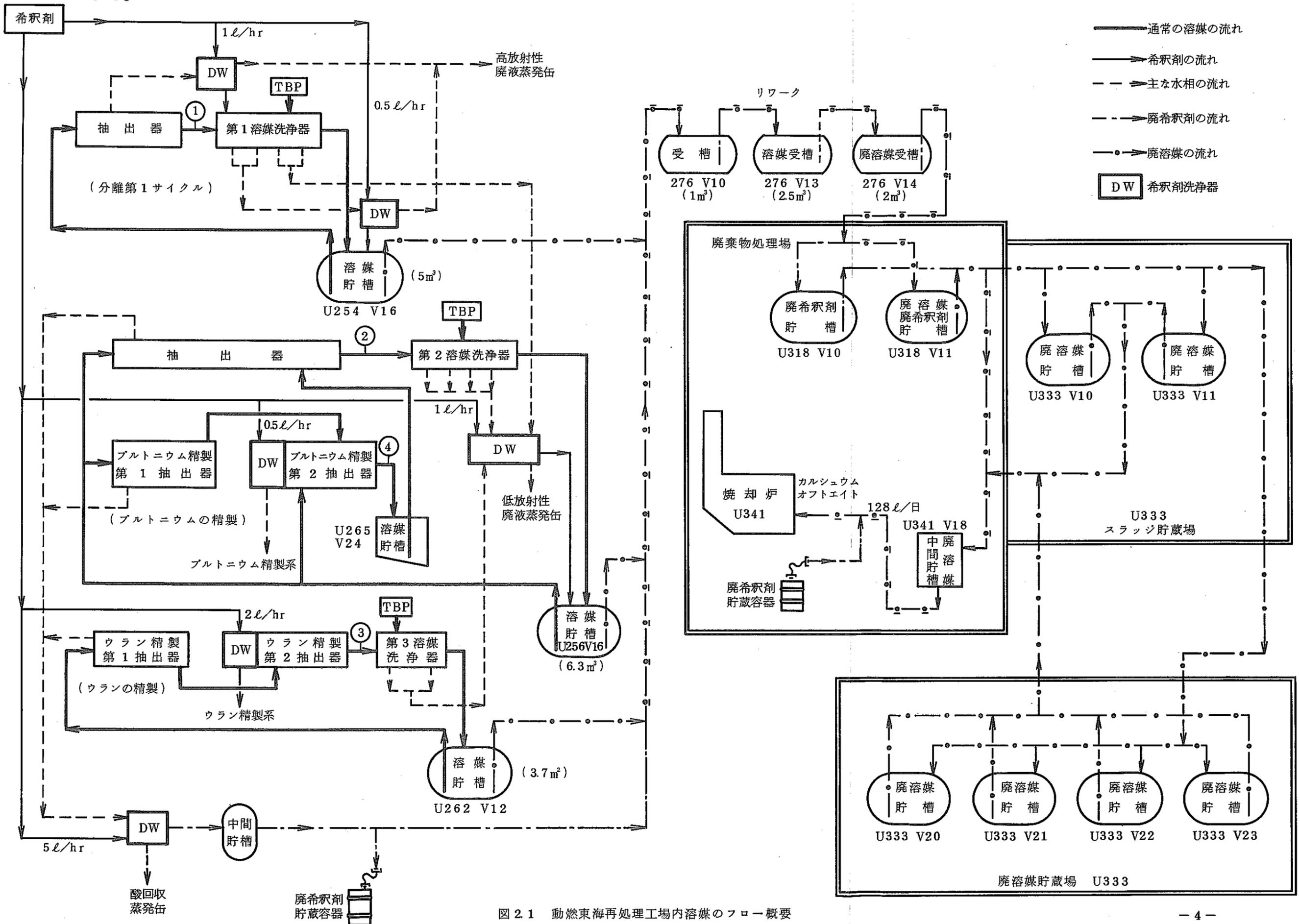


図 2.1 動燃東海再処理工場内溶媒のフロー概要

2.2 廃溶媒の性状

廃溶媒の性状は、溶媒としての使用履歴すなわち燃料の燃焼度、工程内の溶媒滞留時間、溶媒洗浄およびリサイクルシステムの設計、さらに貯槽内の貯留期間などによって大きく変動するが、詳細な研究報告はほとんど発表されていない。動燃東海再処理工場の廃溶媒貯槽に既に貯蔵中の廃溶媒についても、現状では設備的に廃溶媒貯槽から直接試料採取ができないため、廃溶媒処理技術開発施設が完成するまでは残念ながら廃溶媒の性状を確認できない。しかし、主工場(MP)からAAFへの廃溶媒送液時や廃希釈剤焼却時の分析値とMPの溶媒抽出工程の運転実績よりある程度廃溶媒の性状を推察しうる。

廃溶媒処理技術開発施設の詳細設計の一環として入手した資料から西独カールスルーエのWAK再処理工場の廃溶媒の性状²⁾と第三相対策および動燃東海再処理工場の廃溶媒の性状(推定)を以下に記す。

2.2.1 WAKの廃溶媒の性状と第三相対策

WAKの廃溶媒の発生量は4~5 m³/月で廃溶媒貯槽の容量も小さい(2 m³×2基)ので約1ヶ月貯蔵後に廃溶媒処理施設にタンクローリー(3 m³)輸送しすぐ処理している。KfKでの最長貯蔵の溶媒は4年間である。廃溶媒には色々な性状のものがある様だがその外観は(3.2の写真1参照)廃溶媒が劣化するほど黄色から褐色に着色を帯びるようになり、また、有機相および水相の界面間にどちらにも属さない“もやもやした雲海状の第三相(Crud)”が生成してくるようで、この第三相は“非常に高い放射能を有する固体・溶媒分解生成物・液相からなる分散相”といわれている。

KfKでも成分の解析を試みたようだが成功していない。この第三相の色相はその時の状態により千差万別で灰色が多いが黒・赤(?)もあるといわれている。なお、動燃東海再処理工場の小型試験設備(OTL)にて実施した廃溶媒処理試験でも同様な着色や微量の第三相が認められた。この場合、リン酸により三相分離したドデカン側には全然着色がみられず、TBP側に着色と一部第三相が認められた。このことから、この着色は廃溶媒中のTBP劣化生成物によるものと推定される³⁾。

さて、写真-1の各試料番号と直接対応するデータかどうが多少疑問があるが、WAK実廃溶媒の外観、第三相の有無と色、TBP濃度、含有放射能濃度をまとめて表2.1に示す。

KfKの廃溶媒処理施設の運転データは3.2.2で述べるが、受入廃溶媒のうち最大の放射能レベルは約400βCi/m³(約6αCi/m³)で通常は1~20βCi/m³程度である。なお、参考までにWAK再処理工場での処理した燃料の性状を表2.2に示したが、燃焼度のあまり高い燃料は処理されていない。また、2.1で述べたように、WAK再処理工場の場合、動燃東海再処理工場のように定常的に新溶媒を追加補給しオーバーフローさせたものを廃溶媒とする設計は採用されていないと推定される。

したがって、動燃東海再処理工場の場合より溶媒のWAK再処理工場内滞留時間が長く、溶

媒劣化が生じやすいと考えられる。動燃東海再処理工場の廃溶媒はWAK再処理工場の廃溶媒ほど汚れていないものと推定される。

表 2.1 相分離前のWAK再処理工場の使用済廃溶媒の特性と組成²⁾

試料No	外 観	Crud	密 度 (g/cm ³)	表面張力 (dyn・cm ⁻¹)	TBP濃度 (vol%)	含有放射能濃度 (Ci/m ³)	
						α	β
1	明黄色澄	少黒褐色	0.7684	26.5	16.5	5×10^{-3}	0.42
2	黄色澄	少灰褐色	0.7851	26	20.5	1.8×10^{-3}	0.16
3*	濃い黄褐色にごり	多黒褐色	0.822	26.5	25	7.2×10^{-3}	0.29
4	黄緑色	無	—	—	7.5	0.7	1.2
5	黒い黄色	無	—	—	5	0.16	3
6	黄色	黒灰色	—	—	21	3.2×10^{-2}	0.75

* No.3試料は精製、除染工程で生成する廃溶液および溶媒との混合物である。

表 2.2 WAK再処理工場での燃料の性状⁴⁾

年	原子炉名	平均燃焼度 (MWd/t)	回 収 量	
			ウラン (t)	プルトニウム (kg)
1971	FR-2	11,000	3.0	8.7
1971/72	VAK (I)	16,700	1.0	5.2
1972	KWO (I)	16,500	3.3	21.3
1972/73	MZFP	5,000	17.1	48.3
1974/75	HDR	400	7.1	0.9
1975	VAK (II)	15,500	1.5	7.5
1975	MZFR	6,000	6.0	19.6
1975	KWO (II)	24,500	1.4	10.9
計	—	—	40.4	122.4

なお、WAK再処理工場では次のような第三相對策を講じているという。

- ① 1972年のVAK(I)とKWO(I)のキャンペーン時に第1サイクルのミキサーセトラー内に第三相(不溶性化合物でZr-DBP錯体と考えられる)が沈澱し詰まったので、この沈澱物をエアリフトでHAW系へ流す様に改造したという⁴⁾。
- ② また、第三相が溶解残渣を吸収し高放射能を帯びるのを防止するため、第1サイクルのミキサーセトラーの前にポリプロピレン製ファイバーフィルターを追加設置したという⁵⁾。フィルターで汚過後の第三相はゼリー状でこれを再度フィルターで除去するのは難しいという。また、KfKではフィルター汚過前の廃溶媒を処理した実績があり、廃溶媒の放射能濃度は $\sim 700(\alpha + \beta) \text{Ci}/\text{m}^3$ を高く、第三相は黒色を呈していた。この第三相はソーダ洗浄により洗い落された。
- ③ KfKでは Na_2CO_3 洗浄で第三相を水相側へ抽出し蒸発工程(Asp固化処理)で分解している。

2.2.2 動燃東海再処理工場の廃溶媒の性状(推定)

前述した様に動燃東海再処理工場の廃溶媒については廃溶媒貯槽より直接試料採取する設備がないため、その性状を直接確認する方法がないが、次のデータより推察を試みた。

(1) 廃希釈剤の分析値

廃溶媒にオクチル酸カルシウムを添加し焼却処分することが試みられたが、オフガス系の目詰りが生じたりケロシンの希釈によりオクチル酸の粘性を低下させると共にTBP濃度も下げる必要があるなどの難点があるため、現在、廃溶媒の焼却処分は中止し、廃溶媒処理技術開発施設での処理に変更した。一方、TBP濃度の低い廃希釈剤は焼却処分されているが、焼却処分に先立ち廃溶媒中間貯槽(341V18)にてサンプリングし廃希釈剤に含有されるウランおよびプルトニウム量、全 γ 放射能、酸性度などを確認している。

(2) リサイクル溶媒に関する分析値

リサイクル溶媒は一部オーバーフローさせて廃溶媒とし、主工場(MP)の(276V14)からAAFの廃溶媒貯槽(318V11)に送液される。この送液に先立ちサンプリングをし、全 γ 放射能、核種組成、ウランおよびプルトニウム量、TBP量、密度、酸性度を確認しており、廃希釈剤も276V14から廃希釈剤貯槽(318V10)へ送液時にサンプリングし同様な確認をしている。

廃溶媒の性状は抽出に使用する燃料の燃焼度、溶媒の主として第1サイクルでの滞留時間に大きく依存するが、運転側の判断により非定常的にAAFへ送液したり、分析時の誤操作によっても影響を受ける。

工場が順調に稼動していれば、溶媒中の全 γ 放射能は約 $1\sim 10 \text{Ci}/\text{m}^3$ で、主要な放射性核種は ^{106}Ru であり、 $^{95}\text{Zr-Nb}$ はこれより約2桁程度低い。なお、工場内のリサイクル溶媒について溶媒貯槽(254V16, 265V24, 262V12)より試験的にサンプリング

しDBP含有量を確認しているが、平均するとほぼ検出限界値（20 ppm）のレベルという。

一般にDBPおよび希釈剤劣化物のうちヒドロオキサミック酸系のものが生成するとこれらは最も放射能の高い分離第1サイクルで主要な核種Zr-Nb, Ruと錯化合物を生成し、水相系に抽出除去されにくくなり、溶媒中に蓄積されてゆき、溶媒の使用期間が長くなるにつれ、特にZrに対するDFが低下してくると言われている⁷⁾。

PWRキャンペーン時に黒褐色の第三相が生成し、これが分離第1抽出器の界面指示計の電極に付着したため界面指示計が不整点灯し界面位置が不明になる現象が生じた。そこでOTLではDBP-Zr系における第三相生成確認試験（コールド試験）を実施し、DBP濃度が約2000mg/l以上と大量に存在しないと第三相は生成しないことが確認されており、一方、MPでの分離第1サイクルでのDBPの生成量は約10mg/lと微量であること、さらにPdやRuのコロイド状微粒子による試験で、DBPやZrが存在しなくても第三相の生成を確認されたことから、PWRキャンペーン時の第三相はDBPによる可能性は薄く、むしろ溶解液中に含まれるコロイド状微粒子（たとえば不溶性残渣¹⁰⁶Ru）が関与して生成したものと推定されている。さらに、第三相は抽出器内を1N NaOHで洗浄することにより効果的に除去されたという（表2.3）⁸⁾⁹⁾。

表2.3 第三相のアルカリ洗浄効果⁸⁾

核種	PWR燃料溶解液組成* (mCi/l)	第三相中のFPs組成 (mCi/l)	1N NaOHによるアルカリ 洗浄液中のFP組成 (mCi/l)
Ce-144	5.5×10^3	$< 1 \times 10^{-3}$	5.7×10^{-1}
Cs-137	1.1×10^4	5.5×10	4.7
Ru-106	2.3×10^4	1.2×10^4	2.2×10
Zr-95	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$
Nb-95	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$

* 燃焼度 28,000MWd/T, 冷却期間 約1,000日

なお、廃溶媒処理技術開発施設の詳細設計の一環として、模擬廃溶媒に多量のオキソ塩化ジルコニウムおよびDBPを添加し第三相を生成し、同施設運転時の界面計の界面性能についてもコールド試験したが、この場合、Na₂CO₃で洗浄すると模擬第三相は直ちに消滅し、ZrおよびDBPは水相系に移行することが確認されている¹⁰⁾。

したがってMP内でリサイクルされている溶媒中にはDBPはほぼ20 ppm程度しか含まれず、また、Zrの γ 放射能強度からみて溶液中に存在するZr濃度は極微量という点を合せ考えるとDF性能に悪影響およぼすほどのZr-DBPの錯塩が生成するとはとうてい考えら

れない。

これまでのMPの運転実績をみるとウラン、プルトニウムは共に高回収率をあげており、分離第1サイクルで抽出部より水相へ流出するウラン損失率は設計値0.15%以下およびプルトニウム損失率は設計値0.1%以下を満足していたという。

また、BWRキャンペーン時に多少⁹⁵Zr-NbのDFが設計値に近くなったものもあったというが、その他の核種に関しては設計値より約1~2桁以上も高いDFを示しており、FP核種も良好に除染されていた。

以上をまとめると

- ① 溶媒の滞留期間が推定約90日程度みられ、使用済燃料の燃焼度も平均約28,000 MWd/Tと低く、さらに定期的（ほぼ連続的）に新溶媒を工程に追加補給させて溶媒洗浄する設計が採用されていること。最も放射能が高く、したがって溶媒劣化の確率の高い分離第1サイクルの再生溶媒は上記洗浄後その一部がAAFへ送液され廃溶媒となる。なお、キャンペーンの終了時にはフラッシュアウト後、分離第1サイクルの抽出器および配管内の溶媒は一時溶媒貯槽（254V16：約5m³）に保管されるが、溶媒の抽出特性が気になる時には全て廃棄されるという。この様なプロセス設計および運転管理により溶媒劣化をできるだけ避けているので溶媒劣化の程度は低いものと考えられる。
- ② 溶媒洗浄もNa₂CO₃、HNO₃、NaOH、Na₂CO₃と4段の洗浄方式を採用しているので溶媒劣化物が生成しても効率良く除去されている。したがって良好に再生された溶媒がリサイクル使用されていると考えられる。
- ③ 廃溶媒処理技術開発施設で受入れる廃溶媒は、長いもので再処理工場のホット試験の開始から既に約7年間廃溶媒貯槽に貯蔵されたものもあるが、貯槽内で混合平均化されるため内蔵放射能強度はかなり低いものとみられ、貯槽内長期保管に伴い著しく溶媒劣化がさらに進行するとは考えにくい。したがって、廃溶媒処理技術開発施設の受入廃溶媒の性状は、276V14で試料採取し確認している分析値が多少劣化した程度と推定しうる。

なお、廃溶媒処理技術開発施設の受入廃溶媒の設計仕様を表2.4に示す。すなわち、廃溶媒の放射能は最大257Ci/m³；63.8βCi/m³とし、主様な核種は¹⁰⁶Ruとしている。なお、廃溶媒の核種組成はリサイクル溶媒に関する分析値とあまり一致していないが、これは廃溶媒の実測データが設備的に入手できなかったこと。そのため従来の再処理工場および廃溶媒貯蔵場増設等に係る安全審査の数値の見直し訂正ができなかったためである。廃溶媒処理技術開発施設が運転開始すれば廃溶媒の性状はいずれ明らかになる。同施設のホット運転が待たれる。

表 2.4 廃溶媒処理技術開発施設の受入廃溶媒の仕様 (設計仕様)

化学組成	廃溶媒	30%TBP-70%n-Dodecane 0.1N HNO ₃ 含有		
	廃希釈剤	10%TBP-90%n-Dodecane 0.1N HNO ₃ 含有		
放射能濃度	廃溶媒	63.2βCi/m ³ , 10gU/m ³ ,	25.0γCi/m ³ 0.1~1gPu/m ³	
	廃希釈剤	63.2βCi/m ³ , 10gU/m ³ ,	2.5γCi/m ³ 0.01~0.1gPu/m ³	
放射能組成			β Ci/m ³ γ Ci/m ³	
	Zr-Nb	10.5	$\begin{pmatrix} ^{95}\text{Zr} & 3.4 \\ ^{95}\text{Nb} & 7.1 \end{pmatrix}$ 10.4	
	Ru-Rh	24.4	$\begin{pmatrix} ^{103}\text{Ru} & 1.6 \\ ^{106}\text{Ru} & 11.4 \\ ^{106}\text{Rh} & 11.4 \end{pmatrix}$ 7.8	
	Cs	4.6	$\begin{pmatrix} ^{134}\text{Cs} & 2.3 \\ ^{137}\text{Cs} & 2.3 \end{pmatrix}$ 2.1	
	Ce-Pr	17.4	$\begin{pmatrix} ^{141}\text{Ce} & 0.3 \\ ^{144}\text{Ce} & 8.55 \\ ^{144}\text{Pr} & 8.55 \end{pmatrix}$ 4.7	
	Sr-Y	1.25	$\begin{pmatrix} ^{89}\text{Sr} & 0.53 \\ ^{90}\text{Sr} & 0.36 \\ ^{90}\text{Y} & 0.36 \end{pmatrix}$ 0.0015	
	その他	5.0	$\begin{pmatrix} ^{91}\text{Y} & 1.9 \\ ^{147}\text{Pm} & 3.1 \end{pmatrix}$ 0.03	
	合計	63.2		25.0

3. 世界における廃溶媒処理技術開発の現状

廃溶媒の処理法としては化学分離法、燃焼法や蒸留法が研究開発されてきており、この中ですでに実用化されているのがカールスルーエ(KfK)の開発した化学分離法だけで、パイロットプラントで実証試験中のものがユーロケミックの化学分離法である。

アメリカでは従来より燃焼法で処理しているようだが、詳細な研究報告は数少ない。イギリスでは北海に放流しているらしい。

その他の処理法はいずれも基礎試験から工学試験の開発レベルの域を脱していない。

動燃東海再処理工場では発生する廃溶媒を焼却処分する計画であったが、SGN社よりオクチル酸カルシウムを添加することにより炉材のリン酸腐食を防ぐ焼却方式の提案があり、51年度に試験的にその方式により焼却試験を実施した。その結果、オクチル酸カルシウムの粘度が高いため、廃溶媒をケロシン等で希釈しTBP濃度約10%以下に下げる必要があること。(したがって廃溶媒の処理能力が低くなってしまふ。)さらに生成したリン酸カルシウムの飛散によりオフガス系の目詰りが生ずる事が確認され、TBP濃度が約10%以下と低い廃溶媒(廃希釈剤とよぶ。)だけは焼却炉にて処理するが、廃溶媒自体は当面貯槽に保管貯蔵することとし、52年度よりPNCでも廃棄物処理課において廃溶媒処理技術開発が開始された。まず、廃溶媒処理技術開発施設に採用するプロセスをしぼり込むとともに、施設としての工業化の可能性をさぐるため、次の5つの処理法に関して設計研究が実施された。設計研究時の資料をもとに各処理法の概要を表3.1に取りまとめた。

3.1 各処理法の概要

3.1.1 燃 焼 法～オクチル酸カルシウム、液中燃焼法、流動床燃焼法

燃焼法自体は焼却に伴ない高い減容比が期待できるという訳で昔から研究開発が実施されてきた。米国サバンナーリバープラント(SRP)では平皿型燃焼床方式の焼却処理が行なわれており¹¹⁾、バーンウェル再処理工場(BNFP)用として約0.3m³/日の処理能力の強制対流式焼却炉2基の設計が行なわれた。¹³⁾

廃溶媒中に含まれるTBPは燃焼するとリン酸となるので、この生成リン酸による炉材等の

$$(C_4H_9O)_3PO + 18O_2 \rightarrow H_3PO_4 + 12CO_2 + 12H_2O$$

耐食性が大きな問題となる。その解決策としては、オクチル酸カルシウムやライムストーンを添加し、生成リン酸とカルシウムを化学的に反応させてカルシウム塩としてしまう方法や水中に生成リン酸ガスを導入し吸収させる方法が提案されてきた。

(1) オクチル酸カルシウム法

焼却炉バーナーへの送液に先立ち、廃溶媒にオクチル酸カルシウムを添加混合し焼却する。燃焼中に生成したリン酸はカルシウムと反応し、化学的な安定な粉末状カルシウム塩となるので、これにより焼却炉の炉材等の腐食を防ぐことができる。しかし、TBP濃度が高い場

表 3.1 廃溶媒処理プロセスの比較*

項目	ユーロワット法	K f K 法	減圧蒸留法	液中燃焼法	流動床燃焼法
概要					
特徴	リン酸の再利用	ドデカンの再利用, 常温常圧操作	ドデカン (TBP) の再利用	有機リンから無機リンへの交換	乾式, 無機物質粉末への転換
運転条件	分離: 常温 熱電解: 210℃~230℃	常温	ドデカン回収 15~20Torr, 105~135℃ TBP // 2~5Torr, 140~160℃	-800mmHg, 1200~1300℃ で燃焼, 液温~80℃	流動床 800~850℃
運転モード	三交代連続運転	日勤, バッチ運転	二交代, バッチ運転	二交代, バッチ運転	二交代, バッチ運転
開発状況 (1984年6月現在)	<ul style="list-style-type: none"> 0.6 m³/日の廃溶媒処理パイロットで, 1981年より Eurochemic 再処理工場の廃溶媒でホット試験中。 20 m³の処理実績あり 	<ul style="list-style-type: none"> 0.5 m³/日の廃溶媒処理パイロットプラントで, 1970年より WAK 再処理工場の廃溶媒を処理 1979年まで250 m³の処理実績あり, 回収ドデカンはリサイクル使用している。 PNC再処理工場の廃溶媒処理技術開発施設で総合作動試験 (コールド試験) 実施中 	<ul style="list-style-type: none"> PNCでコールドの工学試験実施中 	<ul style="list-style-type: none"> 一般工業分野で類似有機リン化合物を実規模 (約130kg/hr) プラントで稼動中 原子力分野では実績なし 	<ul style="list-style-type: none"> 実験室規模のコールド試験にとどまる。
特徴	<ul style="list-style-type: none"> TBP, リン酸の熱分解工程の最適化の確立 熱分解オフガス系のつまり防止対策の確立 熱分解炉の耐食性 (ハステロイB) 100% リン酸入手難 回収リン酸を再利用できる。 	<ul style="list-style-type: none"> 常温, 常圧操作 特殊薬品不要 回収TBPのPVC固化技術の開発必要 ドデカン精製工程があり再利用できる。 	<ul style="list-style-type: none"> 実廃溶媒による, 劣化物FPの挙動の解明 高粘性釜残, 初留分の処理処分法の開発 	<ul style="list-style-type: none"> 減圧下での燃焼の安定性確立 ぬれ壁の安定性確立 オフガス流量大きく, 揮発性Ru回収対策必要 	<ul style="list-style-type: none"> スケールアップ試験必要 流動床の安定性確立 リン酸カルシウム粉末のハンドリング, 処分法開発 オフガス流量大きく, 揮発性Ru回収対策必要

* 筆者が52年度に実施された設計研究の資料を見直し取りまとめたものである。

合、使用するオクチン酸カルシウムの量が増えるが、高粘性のため、TBP濃度が約8~10%となる様に予めクロシンで廃溶媒を希釈後に焼却している。廃溶媒1 m^3 焼却するのにオクチル酸カルシウムが約1.7 m^3 必要と言われている。一方、この様に廃溶媒をクロシンで希釈したのでは、焼却処分量が逆に増えてしまい焼却効率が上らなくなってしまう。又、オクチル酸カルシウムのコストも約60万円/ m^3 (1983年2月現在)と高価である。さらに燃焼で生成するリン酸カルシウムは微粉末で廃溶媒(30%TBP)1 m^3 に対し約180kgと推定されており、オフガス系全体に飛散し目詰りを生じさせ、したがって焼却炉の稼働率もあまり高くできないという難点がある。動燃東海再処理工場では本法を採用しているものの、廃溶媒の処理には使用せず、廃希釈剤と可燃性固体廃棄物に限定して使用している。それでも焼却炉の運転は、炉材の点検やスクラバーにたまったタールやススのかき出し等のオフガス系の点検整備を行なう必要があるため、20日間連続運転-10日間整備、3ヶ月に1回20日間整備という運転モードがとられている。

(2) 液中燃焼法

本法は、図3.1に示した様に三菱化成が自社技術により開発しているもので、いわゆる濡れ壁によって焼却に伴ない生成したリン酸が炉本体(材質:ハステロイ-F)と直接接触するのを防止するとともに炉本体が著しく高温になるのを防止している。又、燃焼ガスは水中に導入し、リン酸分を吸収除去している。これによりオフガス系の腐食対策の軽減化が期待できる。本法のプロセスフローの概要を図3.2に示す。放射性廃溶媒に関する処理実績は未だないものの一般工業分野では、リン酸エステルと芳香族パラフィンからなる廃溶媒を実規模(約130kg/時)で処理するプラントが三菱化成水島プラント稼働しているという。今後、ハステロイ、SUS316L等炉材の耐食性試験や揮発性RuおよびFP核種の生成量やそれらの吸着除去技術の開発が必要とみられている。

(3) 流動床燃焼法

米国のENERGY INCORPORATEが開発中の流動床燃焼法で、そのプロセスフローの概要を図3.3に示す。廃溶媒は流動床焼却炉(材質:インコネル625又はハステロイX, 1.0 $\text{m}^{\text{ID}} \times 3.8\text{m}^{\text{H}}$)の下部域に空気とともに供給され、生成した燃焼ガスのリン酸分は流動媒体(ライムストーン:CaCO₃)に含まれる酸化カルシウムと反応してリン酸カルシウムとなり化学的に安定化する。なお、ライム石の供給量はTBP1kg当たり3.2kg必要とみられている。ライム石の利用効率を高めるため炉内にジェットグライダーが設置され、流動媒体表面から反応生成するリン酸カルシウム塩を取除き、常に新しいCaCO₃の表面が露出する様に工夫されている。この方法ではオフガス系に極めて大きな負荷がかかり、スケールアップした流動床運転の安定性、流動床冷却方式(炉内冷却コイルの設置)の検討、さらに揮発性Ruの除去フィルターの開発等の残されたR&D項目も多く、全般的に実験室規模の基礎試験レベルの開発にとどまる。

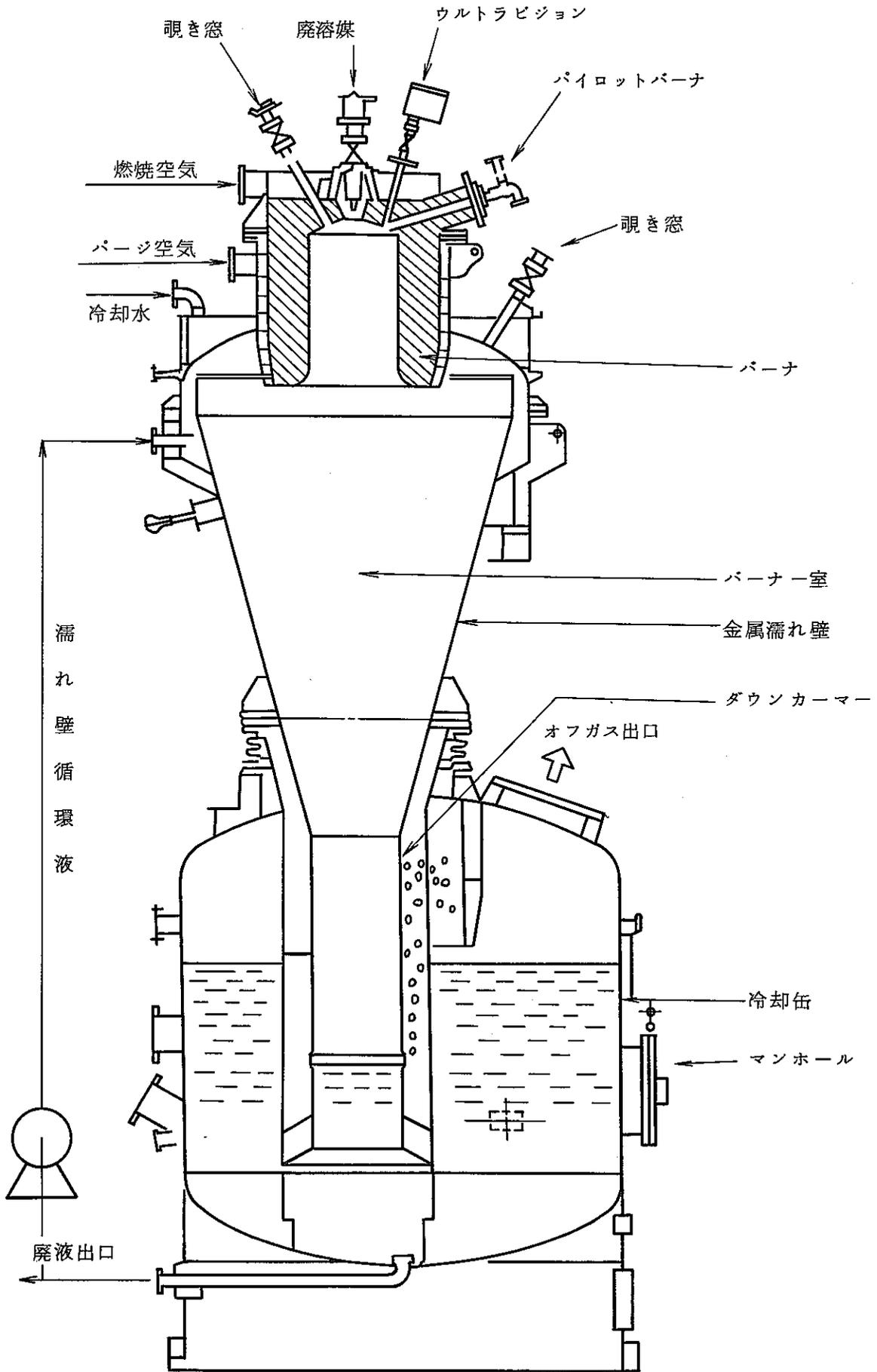


図 3.1 濡壁式液中燃焼炉

(注) ★ … 問題点や開発項目を示す

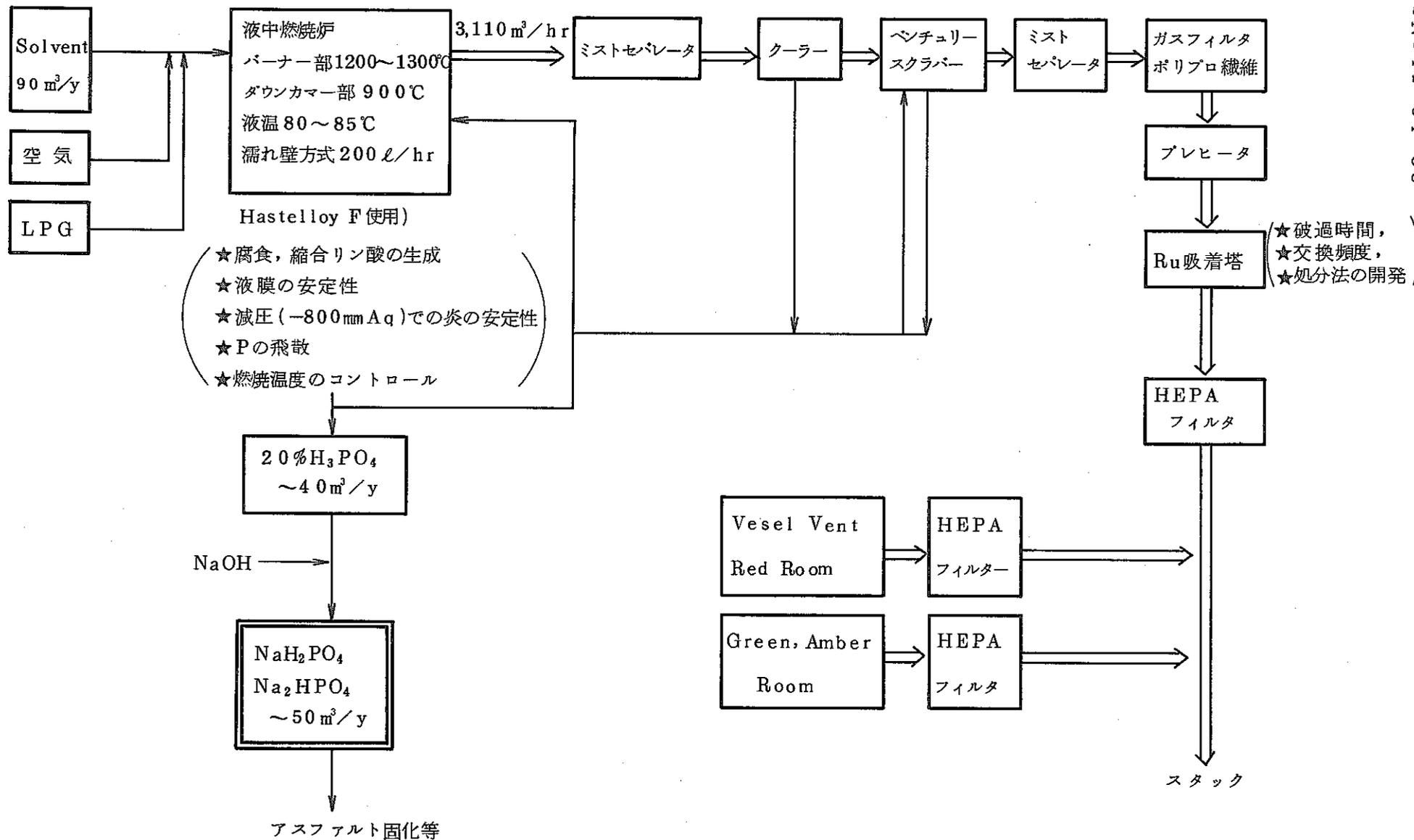


図 3.2 液中燃焼法のプロセスフローの概要

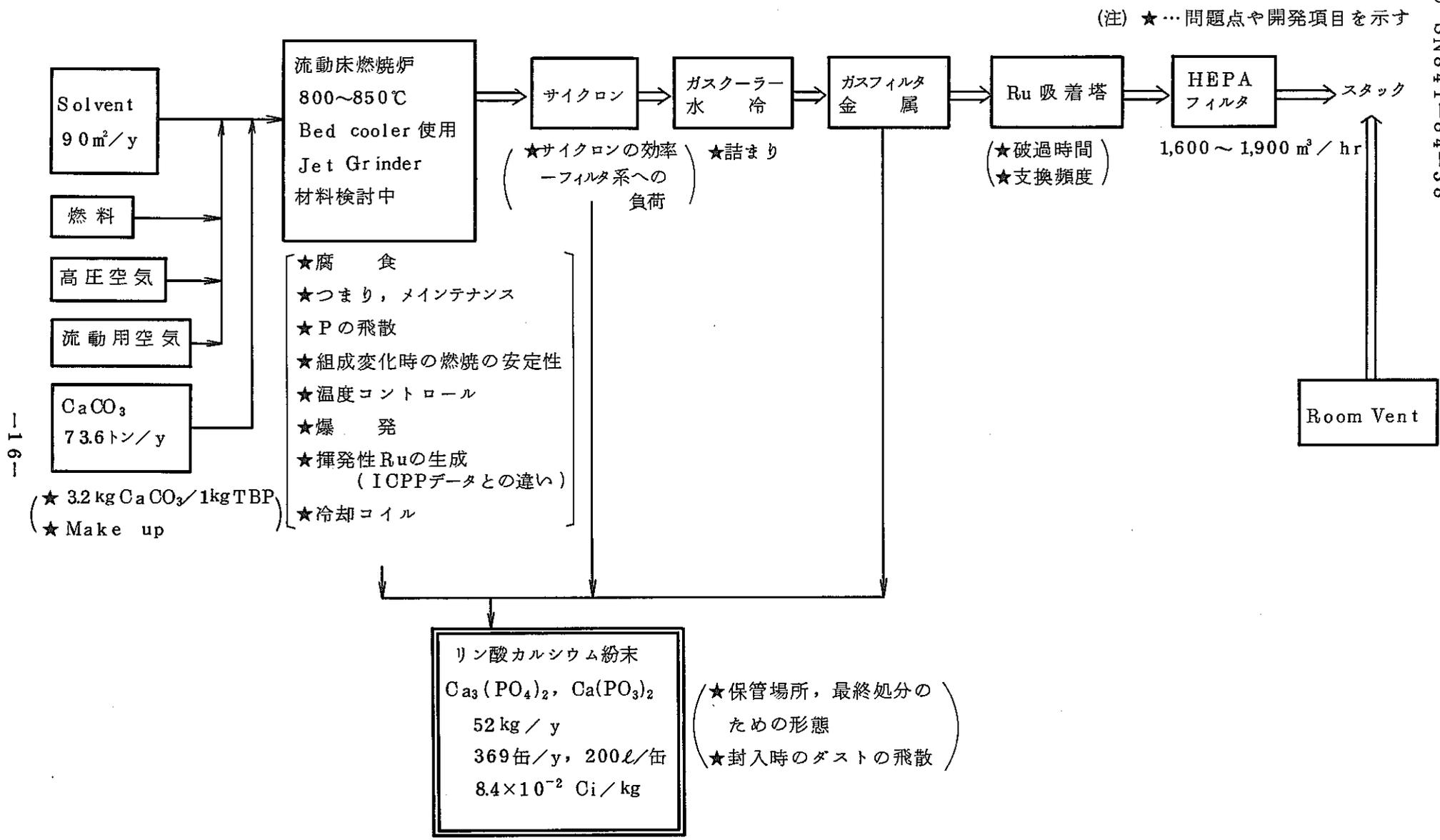


図 3.3 流動床燃焼法のプロセスフローの概要

3.1.2 蒸留法

TBPとドデカンの沸点差に着目し両者を分離する方法が蒸留法で、特に蒸留加熱に伴うTBPの分解を避けるとともに、TBP、ドデカンの沸点をも下げた減圧蒸留法が知られている。TBPおよびドデカンの蒸気圧曲線を図3.4に示す。設計研究は三菱金属(株)が実施した。蒸留法のプロセスフローの概要を図3.5に示す¹³⁾。まず第1塔でドデカンが回収され、その釜残を第2塔にかけ、TBPを回収する方式だが、第2塔の供給液中には第1塔で未回収のドデカンが5%含まれておりこのドデカンが初留時に流出するのでカットし、又供給液中に含まれた分解物DBP、MBPは、TBPと類似した物性を示すので釜残として約10%残す必要があり、TBPの回収率は80%程度に留まる。この減圧蒸留法に関しては、52年度の設計研究後に引続き58年度まで工学試験を東海事業所開発研究室で実施してきているが、実用化に踏切れるほど優れた成果は認められてない。大局的に言えば、TBPにがっちり固定化されたRuが減圧蒸留処理の様なマイルドな物理的方法で分離除去できるか疑問であり、又、廃溶媒は加熱蒸留によりさらに分解が進行する傾向を有し、実際に回収したTBPが再利用できるかどうかはホット試験結果が出なければ判別しにくい。再利用のメドが立つにはかなり長期にわたる試験検討が必要とみられる。TBPの回収率も低く又、処理困難な高粘性釜残液等の後処理のわずらしさもあり、TBPの再生利用を本格的に追求しなければ、化学分離の方が本法より優れると考えられる。

なお、仏では、マルクールで水蒸気蒸留試験をやったが材料腐食の問題が生じ試験が中止された。ラ・アグではドデカンの回収を主目的とした減圧蒸留法によるホットラポテストが1978年頃に行なわれ、その後100ℓ/hで廃溶媒を処理するプラントの基本設計が行なわれた¹⁴⁾。その後の情報は無い。

インドでは10kg/hの減圧蒸留装置でホット試験が1960年代に実施された。溶媒の放射線劣化程度にもよるが、TBPの回収率60~75%、ドデカンの回収率が90~100%で、β核種に対するDFは~10³位あった¹⁵⁾。

米国では、1960年代にサバンナーリバーおよびアイダホケミカルプロセッシングプラント(ICPP)で水蒸気蒸留法のラポ試験が実施された^{16,17)}。ICPPではその後まず廃溶媒(TBP~10%濃度)を水蒸気蒸留法にて除染(35ℓ/bで処理)してさらに回収した廃溶媒は一般家庭オイル焼却炉(20ℓ/h)で処理している¹⁷⁾。ORNLでは1960年代初めに50ℓ/h水蒸気蒸留プラントの設計研究を実施している¹⁹⁾。最近の現状に関する情報がほとんどないので、米国では国土も広く立地条件にも恵れていることを考えるとICPPに代表される様に専ら廃溶媒は焼却処分しているものと推定され、水蒸気蒸留法の研究はあまり行われていないであろう。

蒸気圧線図

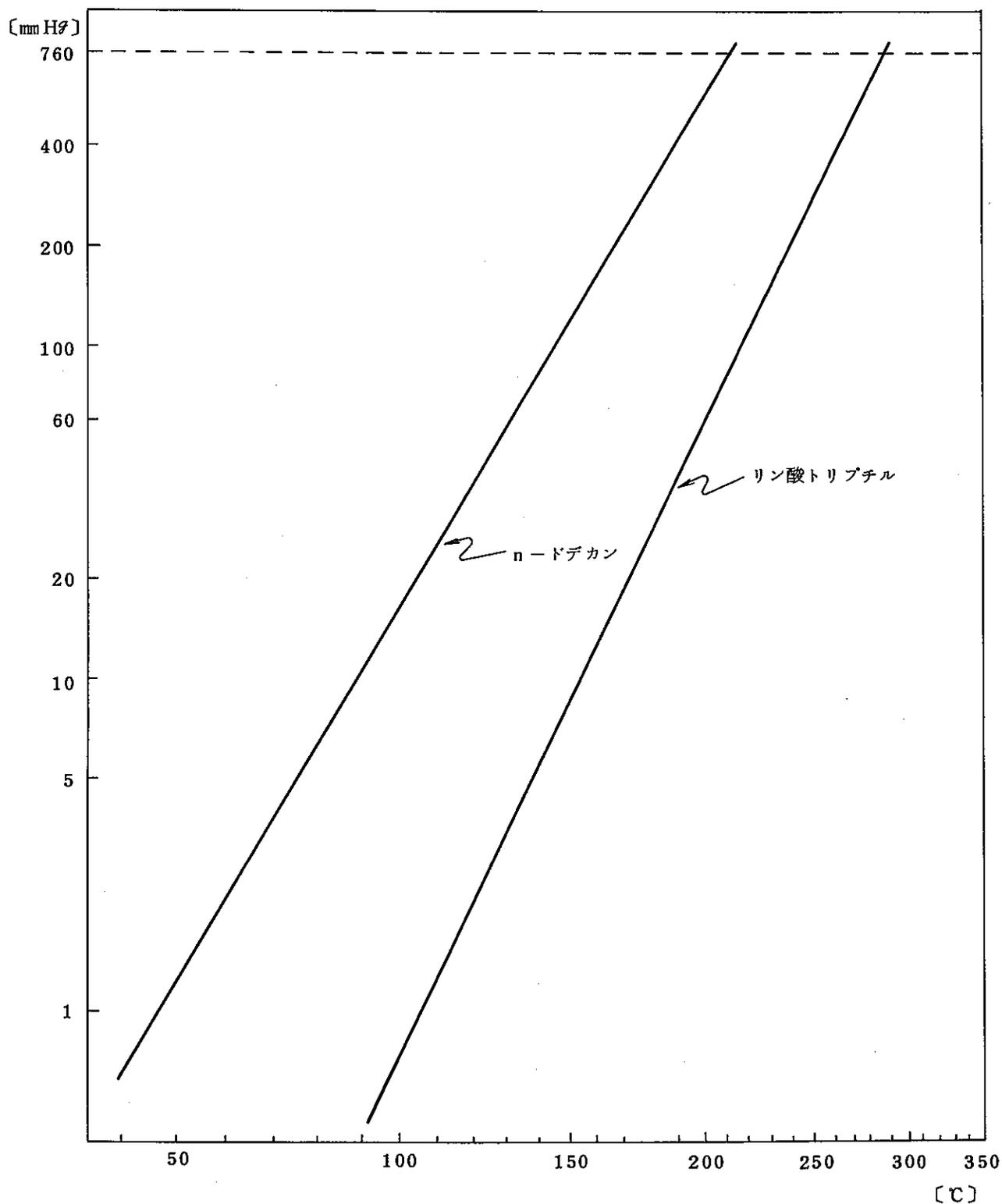


図 3.4 n-G₁₂H₂₆ および TBP の蒸気圧曲線

3.1.3. 化学分離法～K f K法, ユーロワット法

TBPとドデカンの混合溶媒にリン酸を加えると極性を有するTBPはリン酸とコンプレックス(付加体)を生成し、極性を持たないドデカン相から分離され、回収ドデカン中にはTBPはほとんど含まれないことが知られている。添加するリン酸濃度および回収TBPの処分法により、カールスルーエ法(以下K f K法と呼ぶ。)^{3, 20~24)}とユーロワット法^{26~32)}の二つに分類される。

次にこれらの方法の概要を示す。なお、これらの方法の詳細は3.2および3.3を参照されたい。

(1) K f K法^{3, 23)}

廃溶媒を85% H_3PO_4 で処理すると廃溶媒中のTBPをドデカン相から引抜く現象と同時にドデカン相残留TBPによるリン酸の抽出現象が生じ、その結果、ドデカン相、付加体相および希リン酸相の三相に分離される。この付加体というのは $TBP \cdot xH_3PO_4 \cdot yH_2O$ の組成を有しかつ若干の溶解ドデカンを含む会合体である。

使用するリン酸濃度が高くかつ廃溶媒含有TBP濃度が低いほど H_3PO_4 / TBP のモル比が低くても付加体生成が始まる。リン酸濃度が85%以上になると高粘性の付加体が生成し、又相分離に必要な静置時間が長くなる。さらに85%よりも高濃度の工業用リン酸は入手が難しく、高粘性のためハンドリングしにくい等の理由でK f K法では85%濃度リン酸を選定している。TBPのリン酸への溶解度の酸濃度依存性を図3.6に、 H_3PO_4 / TBP のモル比と各相TBP濃度との関係を図3.7におよび同モル比とTBP分離回収率の関係を図3.8に示す。図3.7よりTBPの大部分が付加体相に分配されるがドデカン相にも若干残っており、又図3.8より H_3PO_4 / TBP のモル比が2となるように処理すればTBPの約90%以上がドデカン相より相分離できることがわかる。なお、付加体の組成は廃溶媒中のTBP含有量によって、表3.1のように変化する。付加体を加水分解してTBPを回収するが、水/付加体の体積比とTBPの回収率との関係を図3.9に示す。付加体の4倍量の水で加水分解すると約95%以上のTBPが回収できることがわかる。

このように85% H_3PO_4 により付加体を生成しドデカン相と分離し、さらに付加体は加水分解しTBPと希リン酸溶液とする。さらに回収ドデカンはシリカゲルにて吸着精製し、回収TBPは熱可塑性樹脂であるポリ塩化ビニル(PVC)で固化するとともに希リン酸溶液は中和後、アスファルト固化処理施設で処理する。これらのプロセスを組合せたものがいわゆるK f K法と呼ばれるもので、そのプロセスフローの概要を図3.10に、物質収支・放射能収支図を図3.11に示す。

本法は常温常圧操作を主体とした安全性、安定性の優れたプロセスで、既にカールスルーエには0.5 m³/日の廃溶媒処理パイロットプラントがあり、1971年からそのプラントでWAK再処理工場からの実廃溶媒を処理しており、1979年までの8年間に実廃溶媒を約250 m³処理し、回収ドデカンもWAK再処理工場でリサイクル使用している。一方、回収

TBPの一部はPVC固化し、200ℓドラムで約200本をASSEII（岩塩廃坑）中に試験貯蔵していると聞く。

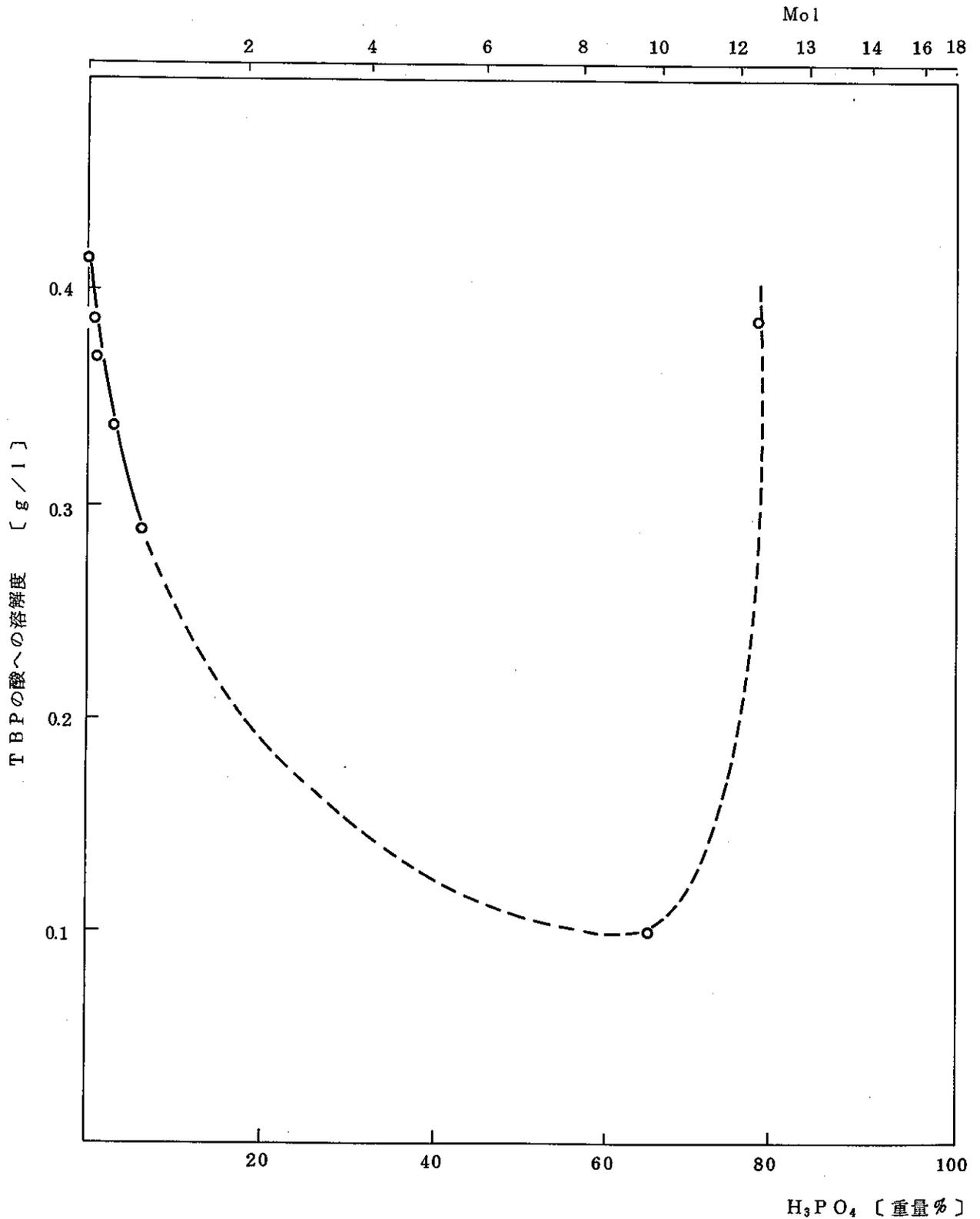


図 3.6 TBPのリン酸への溶解度の酸濃度依存(20℃)

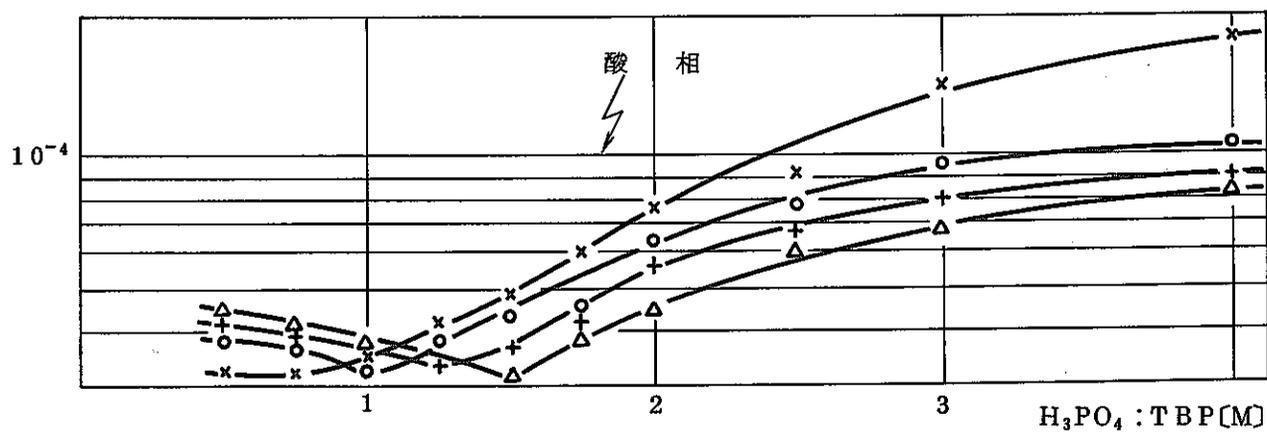
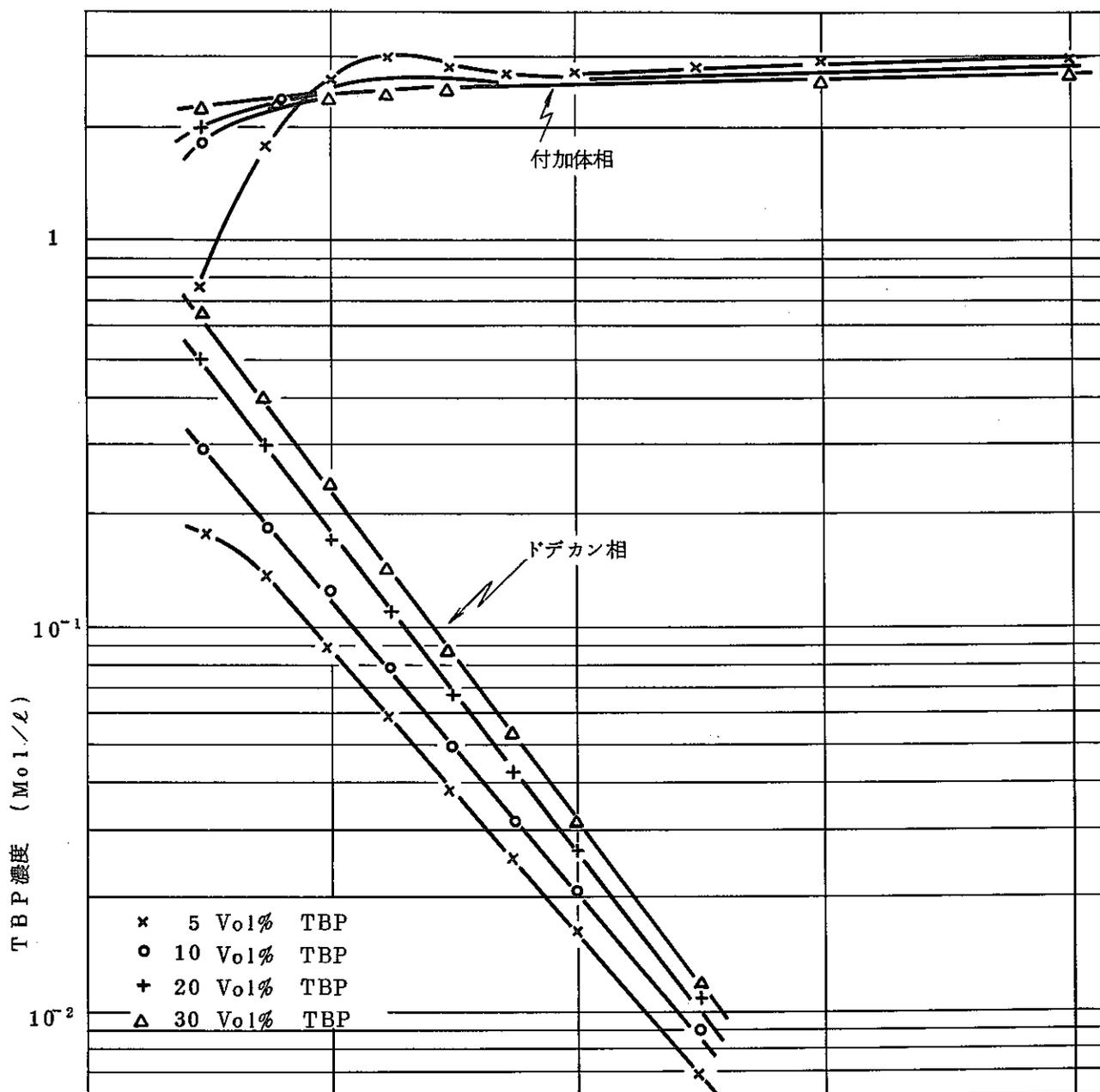


図 3.7 付加体生成時の TBP 濃度変化と H_3PO_4 / TBP モル比との関係

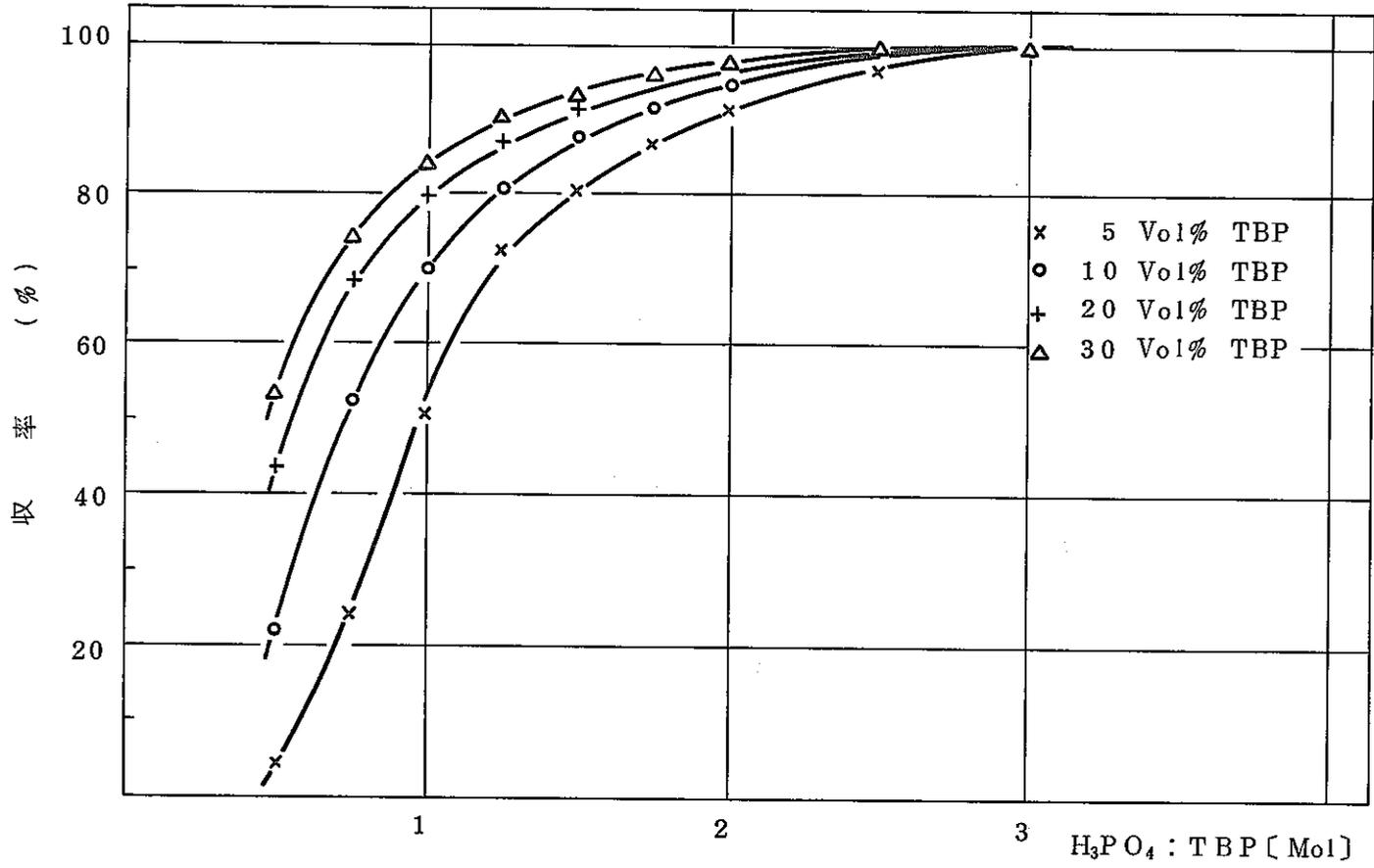


図 3.8 TBP-ドデカン溶液からTBPを分離する際の収率と H_3PO_4 /TBPモル比との関係

表 3.1 TBP含有量と生成付加体組成との関係

TBP含有量	付加体組成 (モル比)		
	TBP	H ₃ PO ₄	H ₂ O
5%	1	1.5	0.54
10%	1	1.4	0.76
20%	1	1.34	0.85
30%	1	1.3	1.0

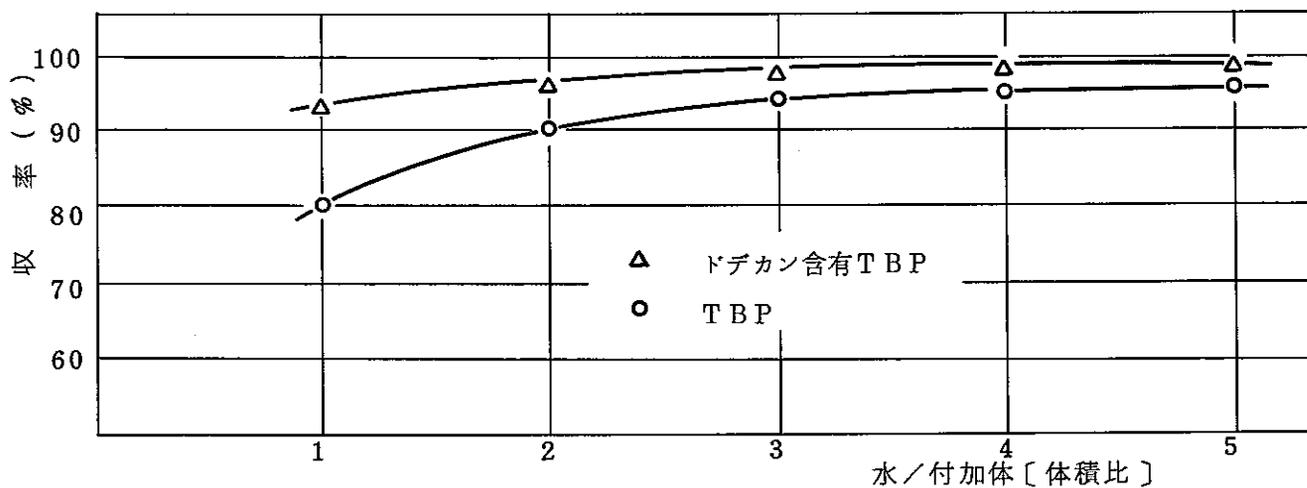


図 3.9 付加体からの酸除去収率と水/付加体 [体積比] との関係

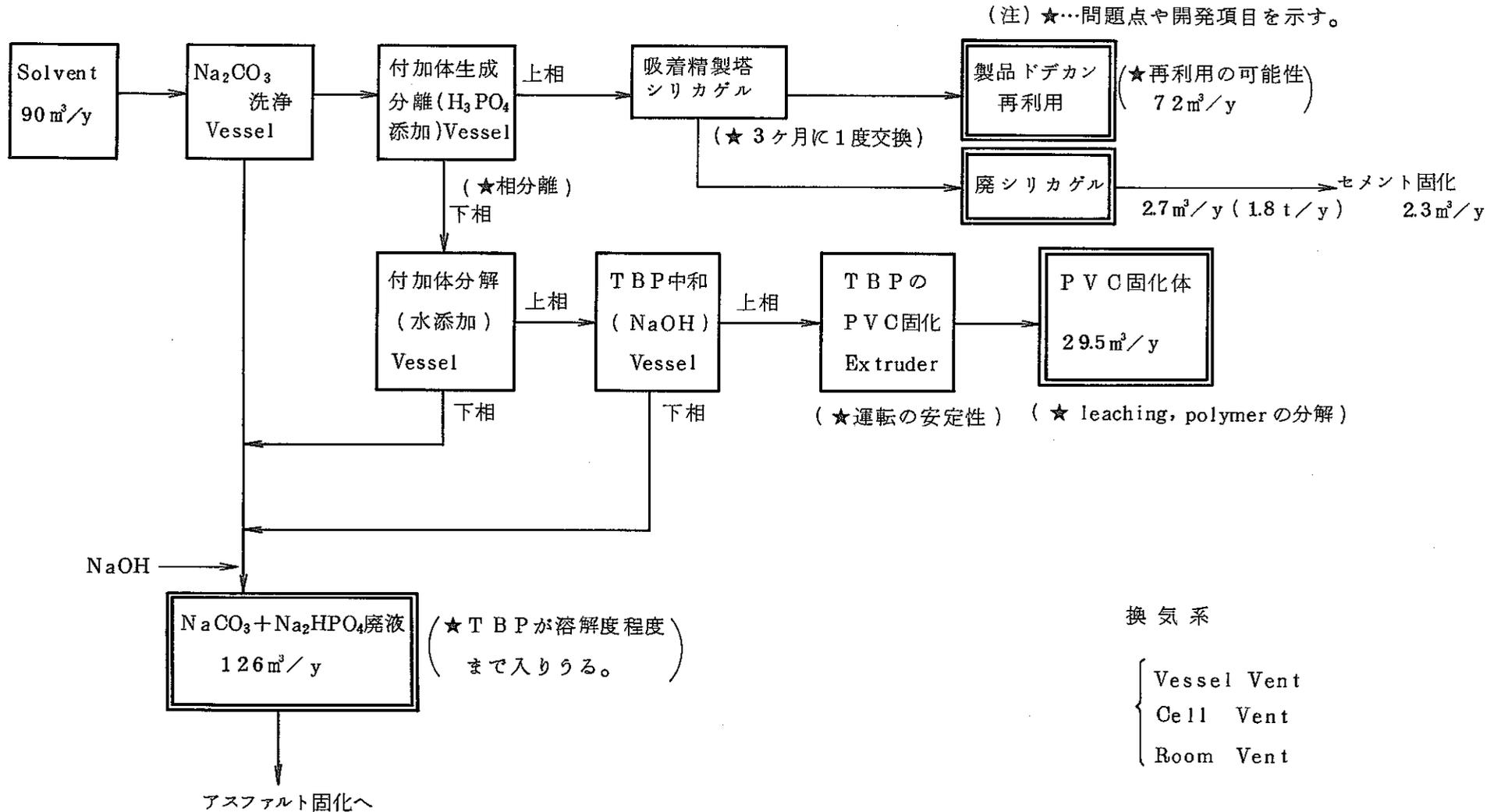


図 3.10 KfK法のプロセスフローの概要

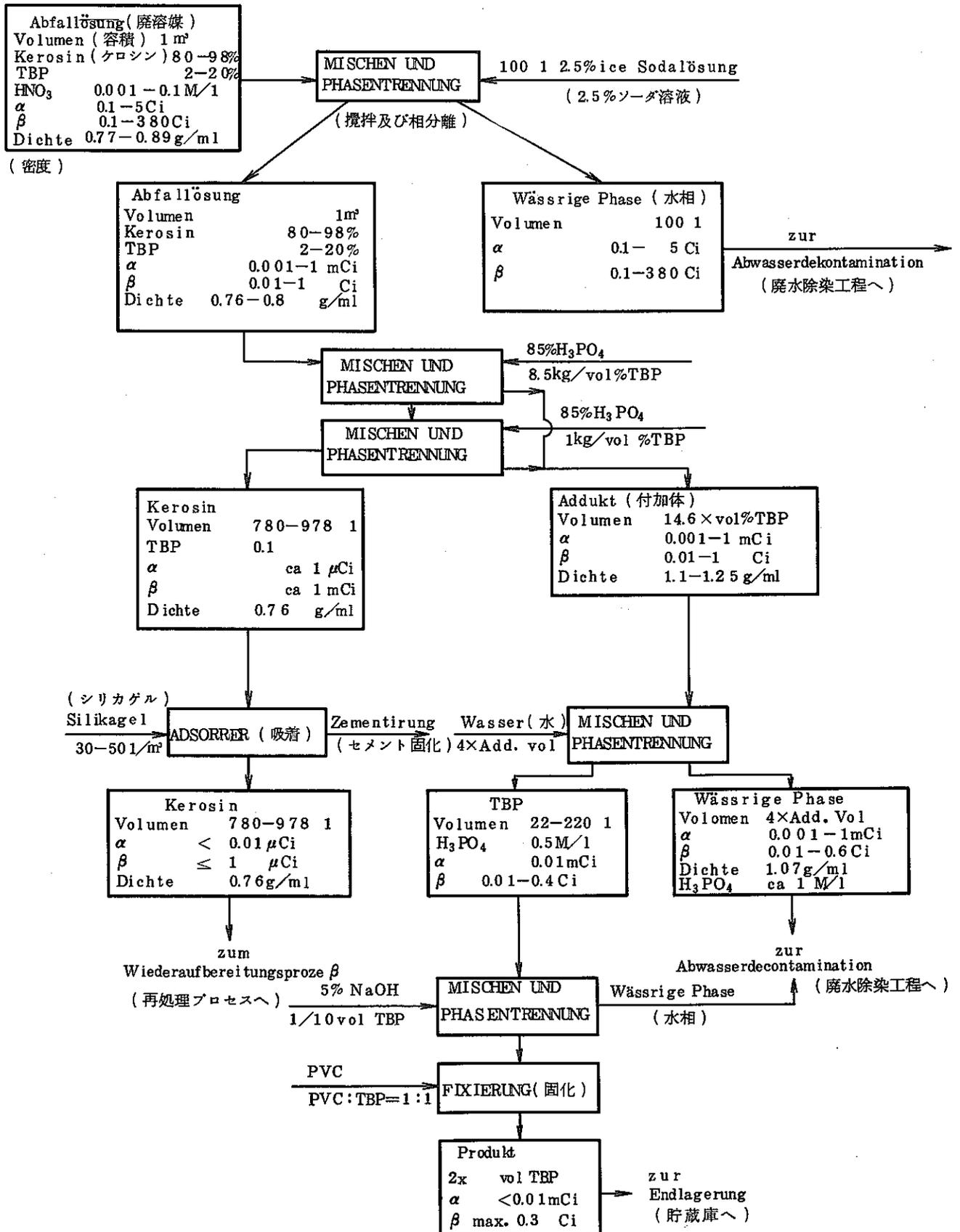
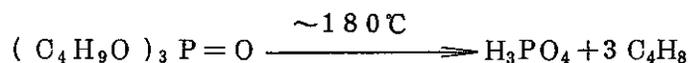


図 3.11 K f K 法の物質収支・放射収支図 (設計研究)

(2) ユーロワット法^{26~32)}

ユーロワット (EUROWATT) 法はユーロケミック再処理工場で開発されたプロセスで Eurochemic Organic Waste Treatment の略称である。このプロセスでは廃溶媒を Na_2CO_3 洗浄後、無水リン酸 (100%濃度) を添加し、TBP・リン酸付加体を生成させ、ミキサーセトラによりドデカン相から相分離する。回収ドデカンは焼却処分するか再利用を計る。なお、KfK法ではTBPは付加体分解後にPVC固化体とするのに対し、ユーロワット法では付加体を熱分解し、生成ブテンは焼却処分し、生成リン酸は、一部リサイクルして付加体生成用試薬として再利用する他、中和後不溶解性の塩とシアスファルト固化するが、さらにHLW-LOTESプロセス用試薬 (HAW溶液をリン酸化合物の結晶に転換しリン酸ガラス固化に発展させるプロセス) としても再利用するという。



このプロセスフローの概要を図 3.12 に、物質収支図を図 3.13 に示す。

さて、PNCの設計研究の時点では本プロセスは未だ実験室規模の開発レベルにとどまっていたが、その後、研究開発が進展し、1979年までに0.6m³/日のパイロットプラントが建設され、1980年11月より稼働開始している。1981年3月までに約20m³の廃溶媒を処理した実績を有する。このプラントのホット試験の内容および結果については3.3を参照されたい²⁶⁾。

なお、100%リン酸は、無色透明の斜方柱状で潮解性の強い結晶で、比重は1.88、融点は42.4℃、粘度は約220CP (20℃) と高粘性を有し、液移送が困難となるだけでなくリン酸添加により生成した付加体も300CP以上という高粘度を有するので、液の流動性を考慮すると、これらの貯槽や配管の保温が避けられないだろう。さらに重要なことは、わが国では工業的に製造されるリン酸は最大89%であるため100%リン酸の工業的入手も難しい状況である。

(注) ★…問題点や開発項目を示す。

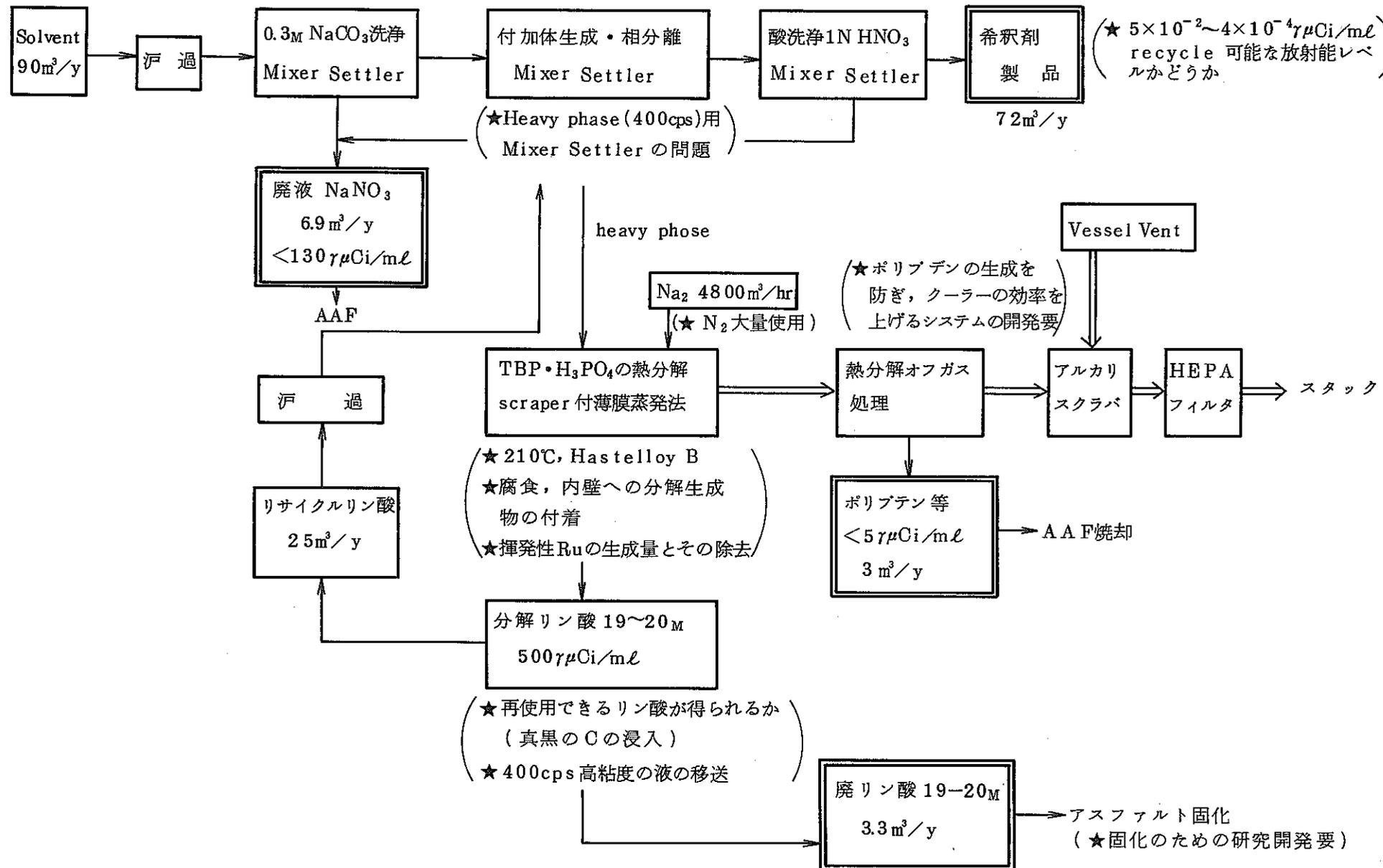


図 3.1 2 ユーロワット法のプロセスフローの概要

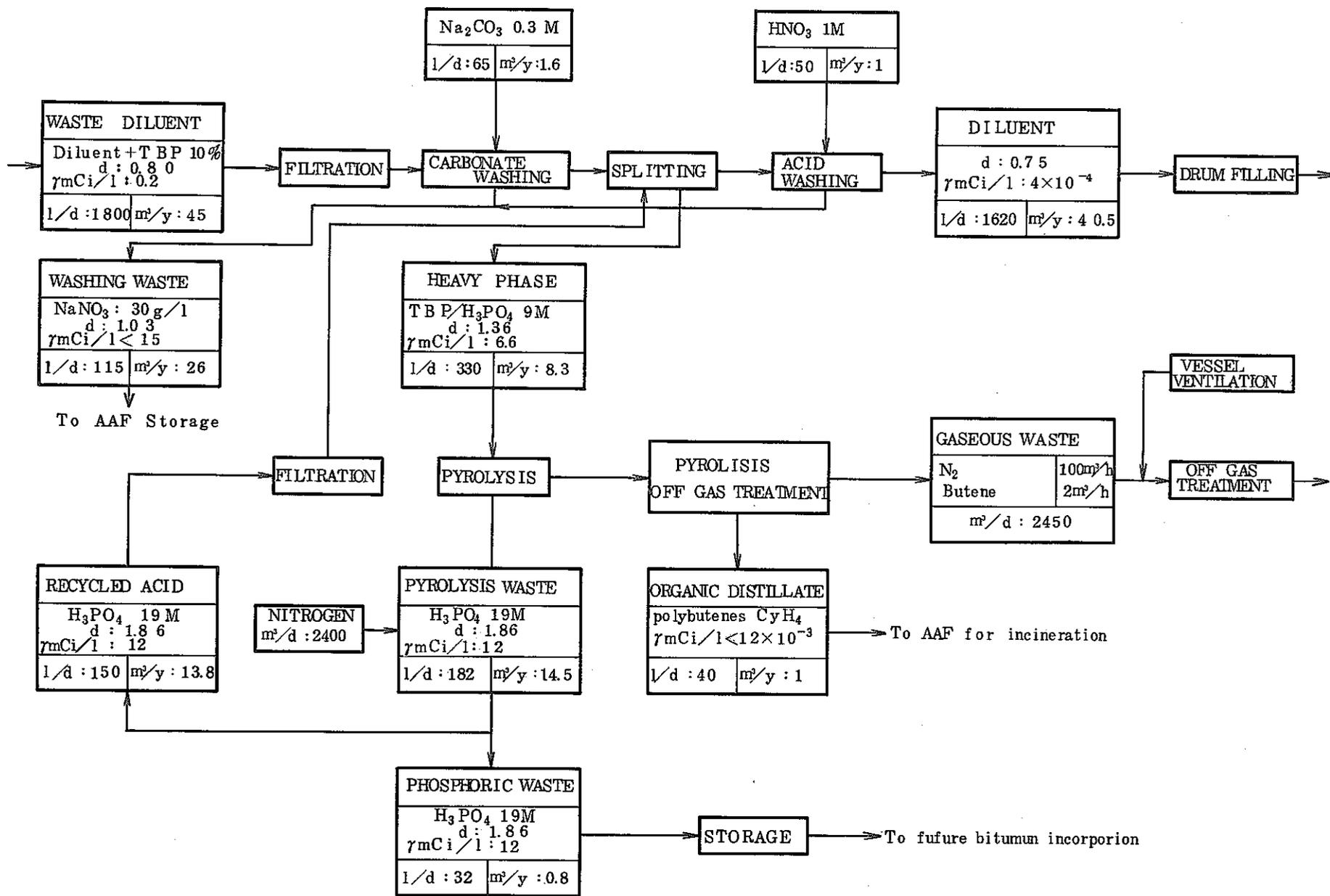


図3.13 ユーロワット法の物質収支図 (設計研究)

3.1.4 PNC廃溶媒処理技術開発施設用プロセスの選定

以上説明した5種の廃溶媒処理プロセスを有する技術開発施設のフィージビリティを把握するために、設計研究が52年～53年度にかけて実施された。廃溶媒処理プロセスの比較表を表3.1に示した。

設計研究の結果を十分に検討し、PNC廃溶媒処理技術開発施設のプロセスとしては次のような理由によりKfK法が選定された(54年7月)。

- (1) 廃溶媒貯蔵計画がうまくゆかないと再処理工場の運転にも支障が生じうる。廃溶媒貯槽の増設はサイト上の制限もあり難しいので、早急に廃溶媒処理技術開発施設を建設し廃溶媒を処理してゆかねばならなかった。(注)
- (2) 当時において再処理施設の実廃溶媒をパイロットプラント規模で処理した実績を有するプロセスはKfK法のみであり、他の処理法は未だ開発途上にあった。又、他の処理法の技術レベルが、パイロットプラント規模に達するにはさらに数年以上の開発期間が必要とみられた。
- (3) KfK法は前述したように常温・常圧操作を主体としたシンプルなプロセスで安全性の確保が容易と考えられる。回収ドデカンも十分精製されており再利用が期待できる。二次廃棄物としてのリン酸塩もアスファルト固化処理施設で処理でき、かつPNCでもアスファルト固化処理施設の建設計画を先行実施しているため、二次廃棄物の処理設備が不要となる。

プロセス選定後、カールスルーエ原研から技術導入した東レ・エンジニアリング(株)が廃溶媒処理技術開発施設の詳細設計を実施した。本施設の建設工事は57年4月に現地着工開始し、59年4月末に竣工した。現在、本施設の総合作動試験を実施中である。本施設の詳細については4.を参照のこと。

(注) プロセス選定時の54年7月時点では、再処理工場の溶解槽の故障は未だ発生していない時期なので、当時の計画では再処理工場の順調な運転を想定し、既設廃溶媒貯槽の満杯時期は59年4月と推定し、この時期までに廃溶媒処理技術開発施設の建設を完成させねばならないスケジュールであった。なお、現時点で推定している既設廃溶媒貯槽の満杯の時期は、61年8月頃である。

3.2 K f Kにおける廃溶媒処理の実績

この節ではPNC廃溶媒処理技術開発施設のプロセス設計のベースとなったWAK実廃溶媒によるK f K法基礎試験の結果と、K f K廃溶媒処理施設（処理能力 $0.5 \text{ m}^3/\text{日}$ ）の運転実績について述べる。

3.2.1 WAK実廃溶媒による廃溶媒処理基礎試験結果

- (1) WAKの廃溶媒の性状に関しては、2.2.1で述べたが、汚れた廃溶媒の有機相および水相の両界面に挟れたもやもやとした雲状の物質（以下第三相と呼ぶ）があるとその挙動が廃溶媒処理技術開発施設のプロセス設計上非常に気になる所である。K f K法の各プロセスステップに従ってWAKの実廃溶媒を処理し、各ステップ毎に外観や相分離状況を観察し撮影した写真と実験記録を入手したので紹介する³⁾。

まず廃溶媒の写真を写真・1に、その特性および組成を表3.2に示す。廃溶媒は汚れるほど濃黄褐色をおびるようになり、黒色の第三相の量も増える傾向が認められる。なお、この写真の廃溶媒の放射能濃度レベルは $\sim 1 \text{ Ci}/\text{m}^3$ であり、WAK廃溶媒の中ではそれほど高いレベルのものではない。試料No.3は除染剤のような表面活性剤を含んだものという。次にこれらの廃溶媒を炭酸ソーダ溶液で洗浄したものの写真を写真・2に、その特性および組成を表3.3に示す。TBPの分解生成物は水相へ移行するだけでなく、ウラン、プルトニウムは水溶性の炭酸塩コンプレックスを生成し水相中へ除去される。しかし、これらの除染係数はあまり高くない。なお、相分離には1～40時間かかっており、汚れた廃溶媒の場合、水相に多少濁りが見られるものもある。85% H_3PO_4 を添加し付加体を生成させたものの写真を写真・3に、その特性および組成を表3.4に示す。この写真より上層から順にトデカン相、付加体相、リン酸相の三相に廃溶媒が相分離されているのが明確に確認される。ドデカン相は付加体相より約10分位で相分離し、ドデカン相含有放射能濃度も $\sim 10^{-2} \text{ Ci}/\text{m}^3$ と低い。一方、付加体相が酸相より相分離するには1～4時間を要す。汚れた廃溶媒の処理の場合には、炭酸ソーダ洗浄でも除去されなかったと見られる第三相は付加体相に含まれ、多量になると付加体相と酸相との境界面に集合するようである。ドデカン相にはほとんど着色が見られず、付加体相に褐色の着色が認められることから、この着色は廃溶媒中のTBPに由来するものと考えられる。付加体を加水分離した時の写真を写真・4に、その特性および組成を表3.5に示す。TBP相とリン酸相との相分離には約20～40分、TBP相の澄清には約5～6時間かかった。汚れた廃溶媒処理の場合には、TBP相とリン酸相との界面に第三相が集まることがわかる。これにより炭酸ソーダ洗浄でも除染されずに残る第三相は

写真. 1 相分離前のWAK再処理工場の使用済廃溶媒

試料No. 1.

上相：淡黄色の有機相
 中相：“Crud”
 下相：沈殿を含む水相

試料No. 2.

非常に汚れた廃溶媒
 上相：黄色～褐色の有機相
 中相：大量の“Crud”
 下相：沈殿を含む水相

試料No. 3.

□ 過1年経過後の廃溶媒
 上相：黄色の有機相，長期保管のために“Crud”が少量生成している。

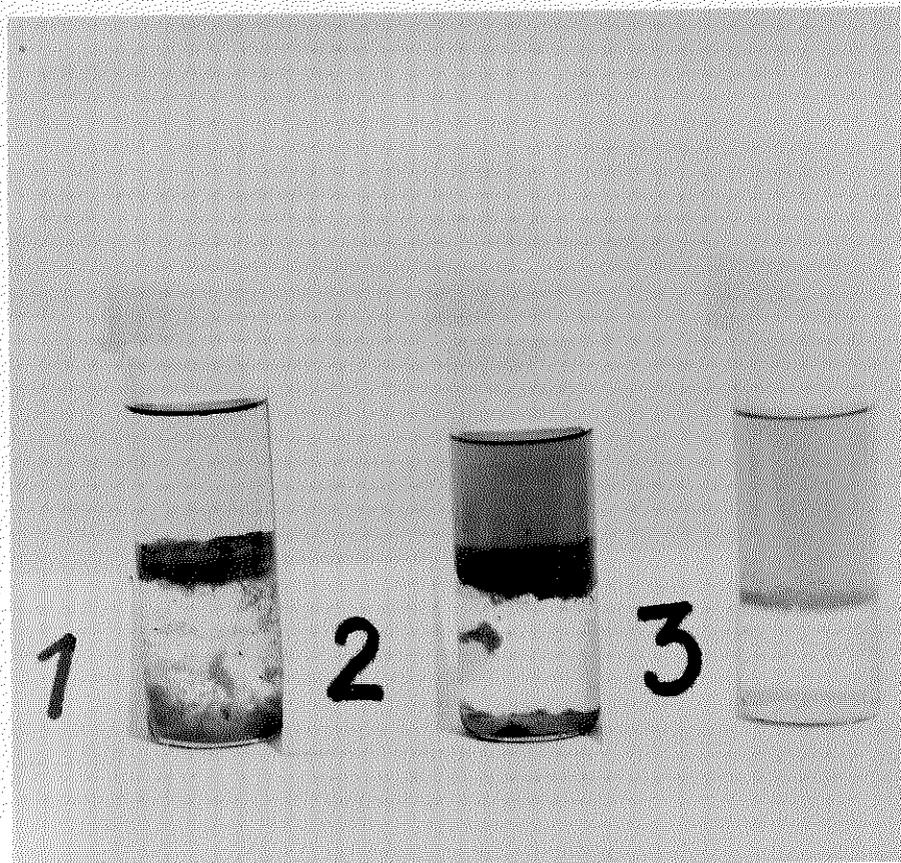


写真. 2 5% Na₂CO₃ 溶液で洗浄後の廃溶媒

試料No. 1.

“Crud”の無い廃溶媒
 上相：有機相
 下相：Na₂CO₃ 水相

試料No. 2.

Na₂CO₃ 洗浄後多量の“Crud”が生成した廃溶媒
 上相：有機相，黄褐色
 中相：“Crud”分散相（有機相および水相）
 下相：油状縞のあるNa₂CO₃ 水相

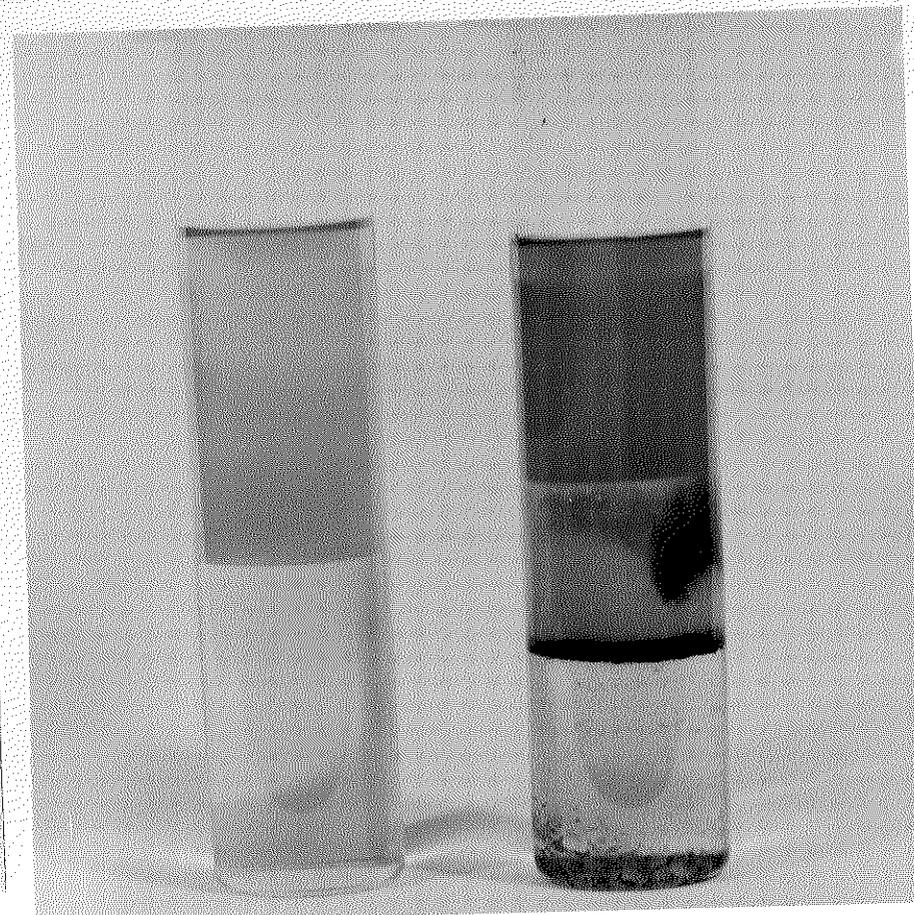


表 3.2 廃溶媒の特性と組成

試料 №	年月日	外 観	Crud	密 度 g / cm ³	表面張力 dyn • cm ⁻¹	vol %TBP	Ci / m ³	
							α	β
1	1975年 9月5日	明黄色 清 澄	少 量 黒 褐 色	0.7684	16.5	16.5	5×10^{-3}	0.42
2	1975年 7月18日	黄 色 清 澄	少 量 灰 色	0.7851	26	20.5	1.8×10^{-3}	0.16
3*	1975年 1月25日	濃い黄褐色 に ご り	多 量 黒 色	0.822	26.5	25	7.2×10^{-3}	0.29
4	1973年 1月15日	黄 緑 色	無	—	—	7.5	0.7	12
5	1971年 9月	黒い黄色	無	—	—	5	0.16	3
6	1972年 8月	黄 色	黒 灰 色	—	—	21	3.2×10^{-2}	0.75

* №3 試料は精製，除染工程で生成する廃溶液および溶媒との混合物である。

表 3.3 廃溶媒のNa₂CO₃洗浄処理

試料 No	1	2	3	4	5	6
有機相	にごり 黄	にごり 黄	2日後乳化	ややにごりあり	ややにごり	清澄 黄色
水相	清澄 うすい黄	清澄 黄	ややにごりあり 強い黄	黄緑 清澄	清澄 うすい黄色	清澄 黄色
相分離時間	1時間	40分	40時間	2時間	1時間	1時間
界面張力 dyn・cm ⁻¹	1	0.3	5.5	—	—	0.5
有機相表面張力 dyn・cm ⁻¹	26.5	27	25.5	—	—	26.5
有機相活性 α Ci/m ³	3.4×10^{-6}	1.8×10^{-5}	3.3×10^{-3}	7.2×10^{-3}	8.8×10^{-3}	1.8×10^{-3}
有機相活性 β Ci/m ³	4.2×10^{-2}	6.7×10^{-2}	3×10^{-1}	0.42	5.2×10^{-2}	1.7×10^{-1}
DF α	1470	10	2	97	18	17
DF β	10	2	1	28	57	4
Crud	灰	褐色～灰色	黒	無	無	黒褐色

写真. 3 リン酸で付加体を生成させた廃溶媒

試料№1.
"Crud"のない廃液
上相：ドデカン，ほぼ無色
中相：付加体，黄色
下相：余剰リン酸

試料№2.
"Crud"の多い廃液
上相：ドデカン，黄色
中相：付加体，褐色で油状斑点あり
下相：汚れたリン酸

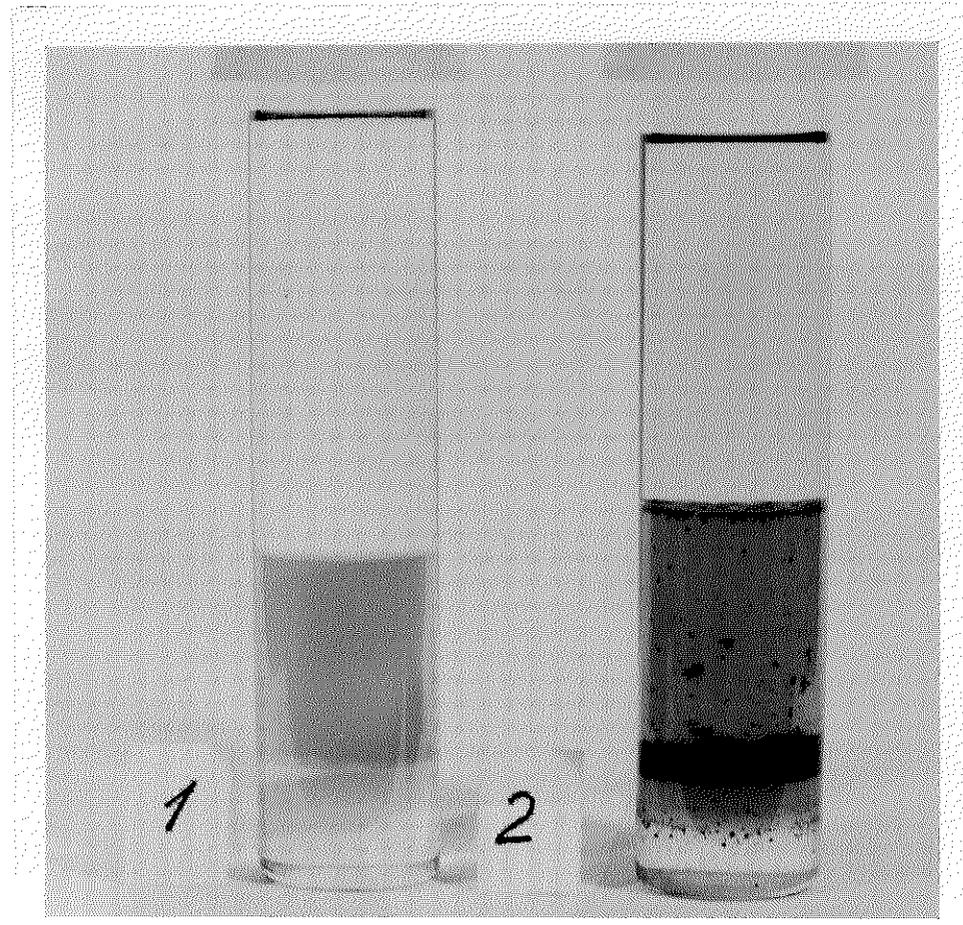


写真 4 水洗浄で付加体分解後の廃溶媒

試料№1.
"Crud"のない廃液
上相：TBP，黄色
下相：希釈リン酸

試料№2.
"Crud"の多い廃液
上相：TBP，暗褐色の油状縞
中相："Crud"，暗褐色
下相：希釈リン酸

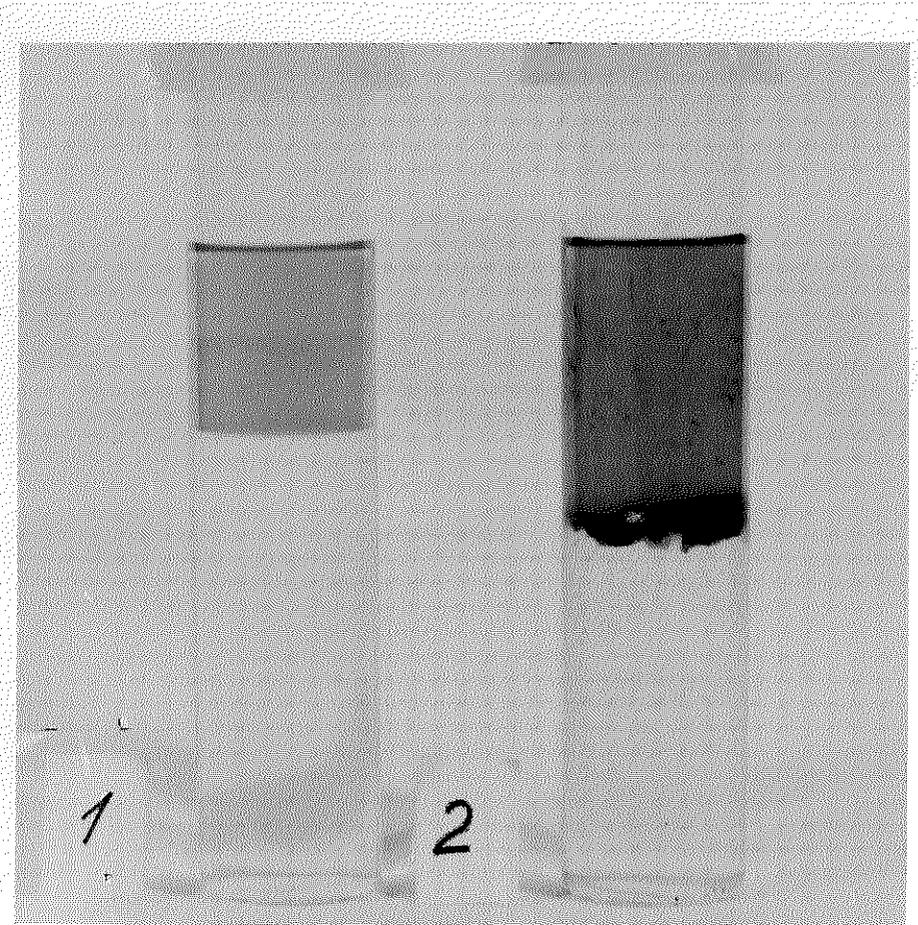


表3.4 付加体生成後の各相の化学・物理特性，外観，放射能

	試料 №					
	1	2	3	4	5	6
<u>処理前の廃溶媒</u>						
容 積 ml	100	100	100	100	100	100
外 観	明黄色 清 澄	黄 色 清 澄	黄褐色 にごり	黄緑色	淡黄色	濃黄色
TBP含有量 %	16.5	20.5	25	7.5	5	21
<u>ドデカン相 DF β</u>						
相分離時間 (ドデカン/廃液)	1 分	2 分	10分	5 分	3 分	10分
容 積 ml	81	76	70	91	94	74
外 観	淡黄色	無 色	濃黄色	淡黄色	淡黄色	黄
密 度 g/cm ³	0.743	0.743	0.744	0.74	—	0.743
相界面張力 dyn·cm ⁻¹ (ドデカン/廃液)	2	1.5	0.5	—	—	0.5
α Ci/m ³	5×10 ⁻⁸	1.6×10 ⁻⁶	2.6×10 ⁻³	2×10 ⁻⁶	3×10 ⁻⁶	2.1×10 ⁻⁶
β Ci/m ³	1.5×10 ⁻³	2.9×10 ⁻³	3.7×10 ⁻²	2.1×10 ⁻²	1.1×10 ⁻²	6×10 ⁻³
<u>付加体相</u>						
相分離時間 (付加体/酸相)	40分	1時間	4時間	1時間	1時間	1.1時間
容 積 ml	21.6	27.1	29	9.7	6.5	27
外 観	黄褐色	黄 色	褐 色	明黄色	黄褐色	濃黄色
密 度 g/cm ³	1.156	1.09	1.07	1.19	—	1.09
粘 度 cp	95	70	64	100	—	85
Crud	黒っぽい, 少量	無 し	灰 色	無 し	褐 色	黒 色
α Ci/m ³	1×10 ⁻⁸	1×10 ⁻⁷	3.8×10 ⁻³	2×10 ⁻²	—	4.2×10 ⁻²
β Ci/m ³	0.12	0.19	7×10 ¹	3.6	—	0.15
<u>酸 相</u>						
外 観	無 色	無 色	黄褐色	無 色	無 色	無 色
容 積 ml	4.6	7.9	10	2	2	10
密 度 g/cm ³	1.6	1.523	1.49	1.6	—	1.5
H ₃ PO ₄ Mol/l	12.5	10.6	8.8	12.5	—	10.3
α Ci/m ³	7×10 ⁻⁴	2.4×10 ⁻⁴	3.8×10 ⁻³	0.2	—	8×10 ⁻³
β Ci/m ³	4.7×10 ⁻²	1.1×10 ⁻¹	7×10 ⁻¹	2.4	—	1.25

表 3.5 TBP/希リン酸相分離後の主要特性データ

	試料 No.					
	1	2	3	4	5	6
<u>TBP相</u>						
外 観	黄色澄	黄色澄	黒褐色	黄色	黄色	黄色
容 積 ml	19	24	30	9	6	26
相分離時間	20分	40分	10分	30分	30分	20分
清澄するまでの時間	6時間	6時間	清澄せず	5時間	5時間	5時間
界面張力 dyn・cm ⁻¹	8	7	5.5	—	—	7
表面張力 dyn・cm ⁻¹	28.5	29	25	26	—	26.5
密 度 g・cm ⁻³	—	0.927	0.97	—	—	0.92
粘 度 cp	4.8	4.1	7	4.1	—	4
Dデカン vol%	13	14	10.6	16	16	12
α Ci/m ³	1×10^{-8}	1×10^{-7}	3.8×10^{-3}	2×10^{-4}	2×10^{-4}	2×10^{-4}
β Ci/m ³	0.12	0.19	0.7	3.6	4×10^{-2}	0.4
酸 Mol/l	0.05	0.04	0.08	0.03	0.05	0.05
<u>酸 性</u>						
外 観	濁	濁	濁	濁	濁	濁
容 積 ml	134	160	206	57	38	173
酸 Mol/l	0.99	1.03	1.03	1.06	1.06	0.93
α Ci/m ³	2.5×10^{-6}	1.1×10^{-5}	1.7×10^{-4}	9.5×10^{-3}	2.3×10^{-2}	1×10^{-3}
β Ci/m ³	1.4×10^{-2}	1.2×10^{-2}	2.6×10^{-2}	1.3×10^{-1}	0.1	3.5×10^{-2}

TBP相と同一挙動をするものと考えられる。

上記各ステップ毎の各相の容積および放射能をまとめて表 3.6 に示す。回収ドデカンの放射能濃度レベルは $10^{-2} \sim 10^{-3} \text{ Ci/m}^3$ であるのに対し、回収TBP自体の放射能濃度レベルは、廃溶媒のそれよりも若干低いものの $1 \sim 0.1 \text{ Ci/m}^3$ でかなり高いレベルに留まっていることがわかる。したがって、この回収TBPは蒸留精製するよりはむしろ固化等により処分を考えるべきであることがわかる。

(2) 次に付加体生成により分離回収したドデカンの吸着精製試験について述べる³⁾。

回収ドデカンの放射能濃度レベルは $10^{-2} \sim 10^{-3} \beta \text{ Ci/m}^3$ で主要な核種は $^{106} \text{Ru}$ で、この他 $^{95} \text{Zr}$, $^{144} \text{Ce}$, $^{137} \text{Cs}$, $^{125} \text{Sb}$ が検出された。淡黄色のドデカンは放射性核種以外に微量の H_3PO_4 , 0.1 vol% のTBP等を含んでいる。各種のドデカン精製法に関するスクリーニング試験の結果、シリカゲル吸着法が選定され、シリカゲル銘柄をしぼり込むため次の様な試験が実施された。

① Kieselgel E-Blaugel, Silogel BLEの吸着性能比較試験

吸着剤 10ml のカラムに回収ドデカンを $1 \text{ ml/cm}^2 \cdot \text{mm}$ で通液した。ドデカン通液量とシリカゲル吸着精製DFとの関係を図 3.14 に示す。

Silogel BLE に関してなぜ他のシリカゲルよりも、吸着性能が良好で、DF曲線が異ったのか具体的な説明がないのは残念である。

回収ドデカン(粗ドデカン)の放射能濃度 $10^{-2} \sim 10^{-3} \beta \text{ Ci/m}^3$ ($10^{-6} \sim 5 \times 10^{-8} \alpha \text{ Ci/m}^3$) に対し精製ドデカンの放射能濃度 $3 \times 10^{-6} \beta \text{ Ci/m}^3$ ($< 1 \times 10^{-8} \alpha \text{ Ci/m}^3$) が得られた。放射性核種は外の含有された微量のTBP, リン酸, 臭気, 着色物質も良く除去された。使用した吸着剤の性状を表 3.7 に示したが, SiO_2 含有量 99.7% 以上で小孔径 (25 Å) のコバルトインディケーター入りの吸着剤 Silogel-BLE が最も高性能であった。

表 3.6 廃溶媒の K f K 法処理による各液相の容積および放射能

	試 料 №					
	1	2	3	4	5	6
<u>処理前の廃溶媒</u>						
容 積 mℓ	100	100	100	100	100	100
vol %TBP	1.65	2.05	25	7.5	5	21
α Ci/m ³	5×10^{-3}	1.8×10^{-3}	7.2×10^{-3}	0.7	0.16	3.2×10^{-2}
β Ci/m ³	0.42	0.16	0.29	12	3	0.75
<u>炭酸ソーダ処理後の廃溶媒</u>						
α Ci/m ³	3.4×10^{-4}	1.8×10^{-5}	3.3×10^{-3}	7.2×10^{-3}	8.8×10^{-3}	1.8×10^{-3}
β Ci/m ³	4.2×10^{-2}	6.7×10^{-2}	2.9×10^{-1}	0.42	5.2×10^{-2}	1.7×10^{-1}
<u>洗浄後の炭酸ソーダ溶液</u>						
容 積 mℓ	20	20	20	20	20	20
α Ci/m ³	2×10^{-2}	8.9×10^{-3}	1.9×10^{-2}	3.46	1.8	0.15
β Ci/m ³	1.89	0.46	5×10^{-5}	3.9	14.7	2.9
<u>ドデカン</u>						
容 積 mℓ	81	76	70	91	94	74
α Ci/m ³	5×10^{-6}	1.6×10^{-6}	2.6×10^{-3}	3.1×10^{-6}	3.1×10^{-6}	2.1×10^{-6}
β Ci/m ³	1.5×10^{-3}	2.9×10^{-3}	3.7×10^{-2}	2.1×10^{-2}	1.1×10^{-2}	6×10^{-3}
<u>T B P</u>						
容 積 mℓ	19	24	30	9	6	26
ドデカン vol %	13	14	10.6	16	16	12
酸 Mol/ℓ	0.05	0.04	0.08	0.03	0.05	0.05
α Ci/m ³	1×10^{-8}	1×10^{-7}	3.8×10^{-3}	2×10^{-2}	2×10^{-4}	2×10^{-4}
β Ci/m ³	0.12	0.19	0.7	3.6	4×10^{-2}	0.4
<u>酸</u>						
容 積 mℓ	134	160	206	57	38	173
酸 Mol/ℓ	0.99	1.03	1.03	1.06	1.06	0.98
α Ci/m ³	2.5×10^{-6}	1.1×10^{-5}	1.7×10^{-4}	9.5×10^{-3}	2.3×10^{-2}	1×10^{-3}
β Ci/m ³	1.4×10^{-2}	1.2×10^{-2}	2.6×10^{-2}	1.3×10^{-1}	0.1	3.5×10^{-2}

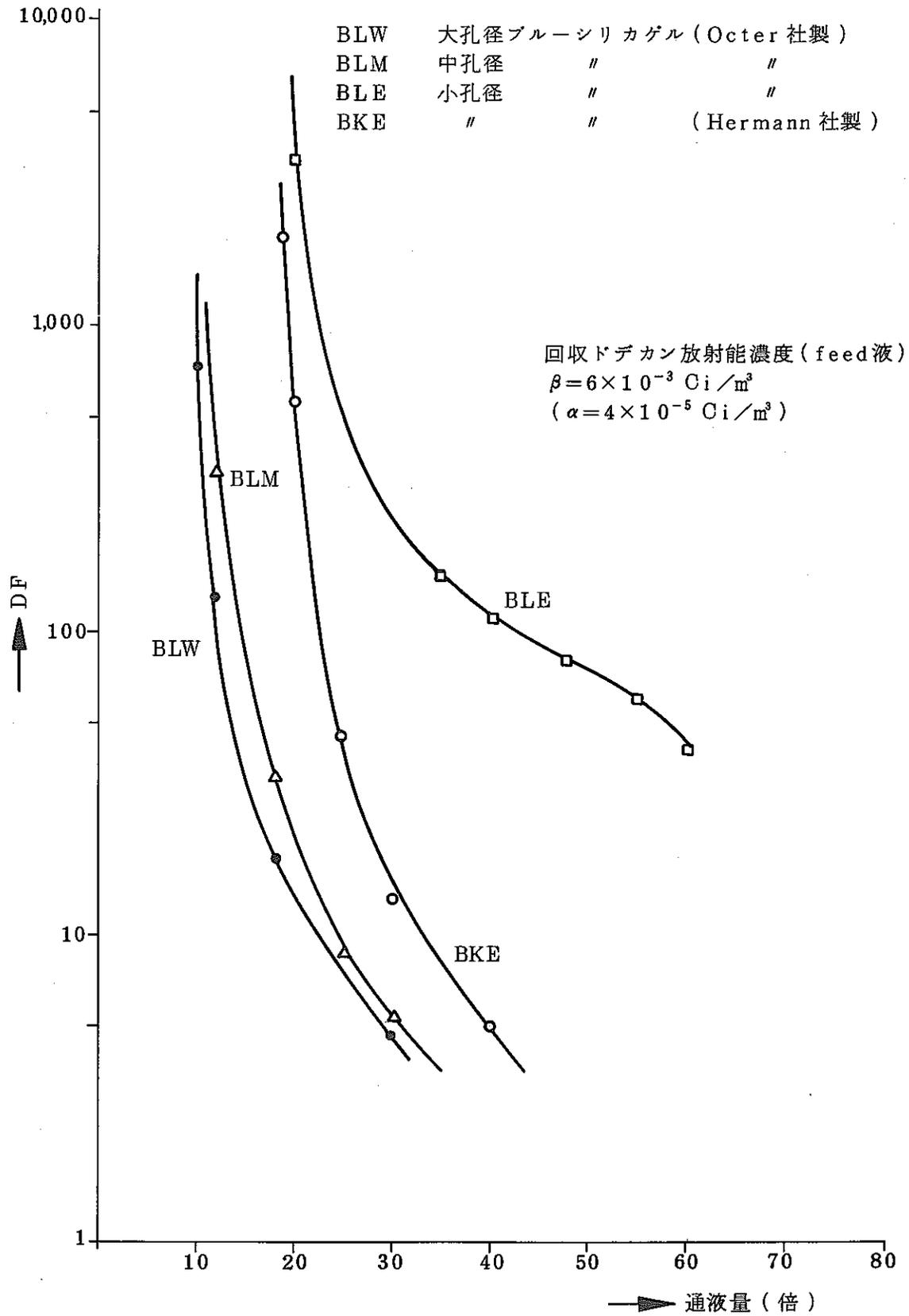


図 3.14 ドデカン通液量とシリカゲル吸着精製 DF との関係

② Silogel-BLEによる吸着容量確認試験

吸着剤 8.8 cmのカラムに回収ドデカンを 1 ℓ/cm²・mmで通液した。

その結果,

- 放射性物質の動的分配係数 257
- 理論分離係数 68
- 分離段の高さ 0.13cm
- 使用済吸着剤の平均放射能 0.7 mCi/g
- 吸着容量 1 mMol TBP/g 吸着剤,
4 mMol H₃PO₄/g 吸着剤

界面活性剤や他の有機性不純物を含むサンプル(表3.2のNo.3の試料)を精製したが、1倍量の通液で吸着剤は破過してしまい、精製効果は非常に低かった。回収ドデカン $3.7 \times 10^{-2} \beta \text{Ci}/\text{m}^3$ ($2.6 \times 10^{-3} \alpha \text{Ci}/\text{m}^3$) に対し、精製ドデカン $2.4 \times 10^{-2} \beta \text{Ci}/\text{m}^3$ ($1.8 \times 10^{-5} \alpha \text{Ci}/\text{m}^3$) であった。ドデカンは強い黄色で強い臭気がありかつ泡立っていた。又廃溶媒を炭酸ソーダ洗浄せずに水洗浄したら、回収ドデカン中に比較的多量の分解生成物が含まれており、吸着剤は早く破過した。Blaugelは性能が低下すると青から黒に変色した。

表 3.7 吸着剤の性状

項目	シリカゲルの種類	Kieselgel	Silogel BLE	備考
		E-Blaugel, G. Hemann Köln-Ehrenfeld社	Chem. Fabriken Oker, Braunschweig社	類似国産シリカゲル 富士デビソン製 Micro Bead Silicagel 3A
SiO ₂ 含量 %		93	99.7	99.90
水 含 量 %		7	—	—
活性表面 m ² /g		800	800	650
平均孔径 Å		25	25	25
孔 容 積 m ³ /g		0.43	—	—
インジケータ		CoCl ₂	Co	—

3.2.2 K f K 廃溶媒処理施設の運転実績

WAK再処理工場（処理能力 $40 \text{ t UO}_2 / \text{y}$ ）は1970年より稼働開始した。これと同時にWAKの実廃溶媒をバッチ処理する廃溶媒処理施設（処理能力 $0.5 \text{ m}^3 / \text{日}$ ）が運転開始している。1979年まで8年間に実廃溶媒を約 250 m^3 処理し、回収ドデカンはWAK再処理工場で再使用している。回収TBPに関しては一部PVC固化しASSEII（岩塩廃鉱）に試験貯蔵した。

ここではWAK廃溶媒処理施設の概要と運転データ、さらに関連した運転情報を紹介する。

(1) WAK 廃溶媒処理施設の概要

1970～1973年にTechnical Plant（界面観察用サイドガラス付 12 m^3 スチール製タンク）で廃溶媒を約 98 m^3 処理し、1974年にエンジニアリングデータが取れる様にPilot Plant（ 0.6 m^3 ガラス製タンク）に改造し、1975年より現在まで運転中である。1975年の運転で十分な実証データがえられたのでその後はルーチン業務とし運転データは、集めていないという。このPilot Plant についてその施設の概要を説明する²³⁾。

本施設のフローシートを図3.15に示す。

全体装置は分離装置収納部（ $4.5 \text{ m} \times 9 \text{ m} \times 6 \text{ m}^{\text{H}}$ ）とTBP固化装置および配電盤の収納部（ $4.5 \text{ m} \times 4.5 \text{ m} \times 3.5 \text{ m}^{\text{H}}$ ）の2つからなり、精製ドデカン槽は建屋外にある。主要な機器は廃溶媒貯蔵槽1基（ 2.7 m^3 ステンレス製）、処理槽6基（ 0.6 m^3 ガラス製）、その他6基（ $10 \text{ m}^3 / \text{h} \times 1.2 \text{ m}^{\text{H}}$ ）、TBP 固化装置1基、シリカゲル吸着槽3基（ 60 l ）、精製ドデカン槽1基（ 3 m^3 ステンレス製）から構成されている。処理槽間の液移送配管はガラス製フランジ継手方式である。各処理槽は2基毎1つのセル内に、同様にポンプも2基毎1つのセル内に収納されている（図3.16）。

各処理槽における界面検知は、セル壁取付シャヘイ窓からの目視観察により行っている（図3.17）。エンジニアリングデータを取るだけでなく第三相の挙動を明確に把握するには界面の目視観察が重要なステップとも考えられるし、ベルギーのEurochemic再処理工場の廃溶媒処理施設（EUROWATT）も同様のガラス製容器を採用している。

全電気設備は防爆式のもので採用されており、又、本施設の火災事故対策として CO_2 自動消火装置が設置されている。本施設は熟練した運転者1名の他補助運転員1名により運転されているという。本施設の装置工事は約100万DM（～約1億円：1974年現在）だったという。

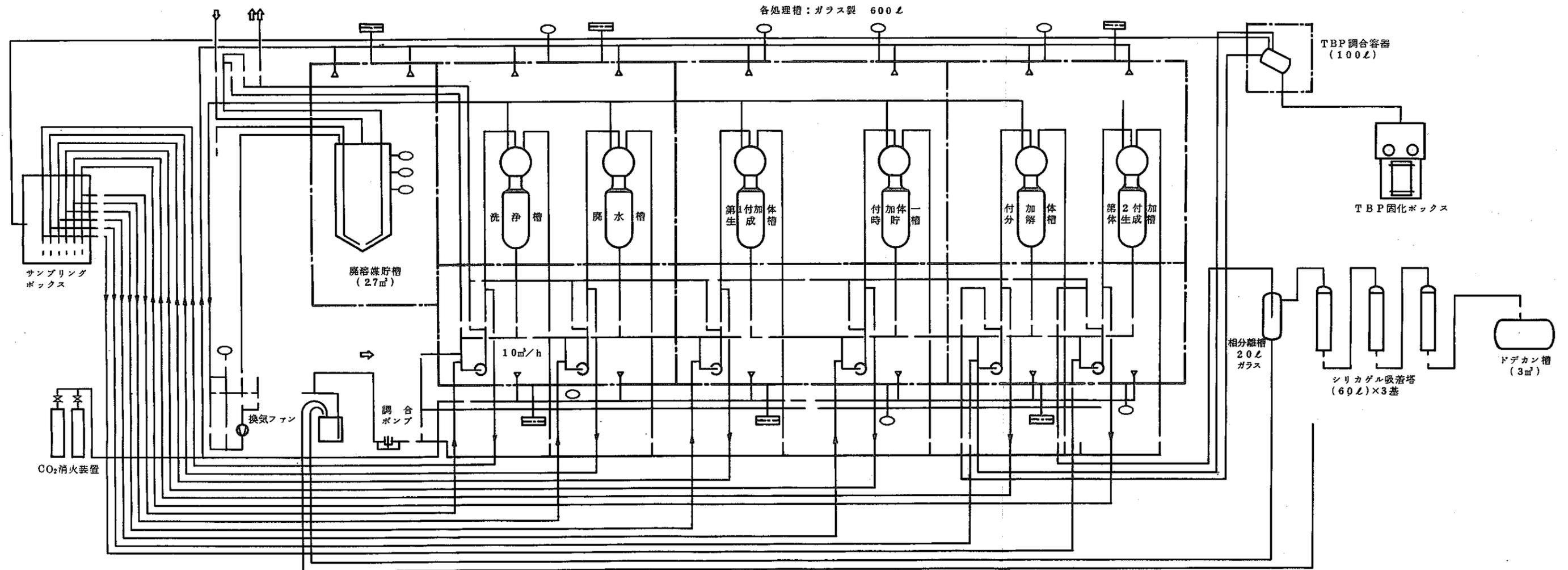


図 3.15 K f K 廃溶媒処理施設のプロセスフローの概要

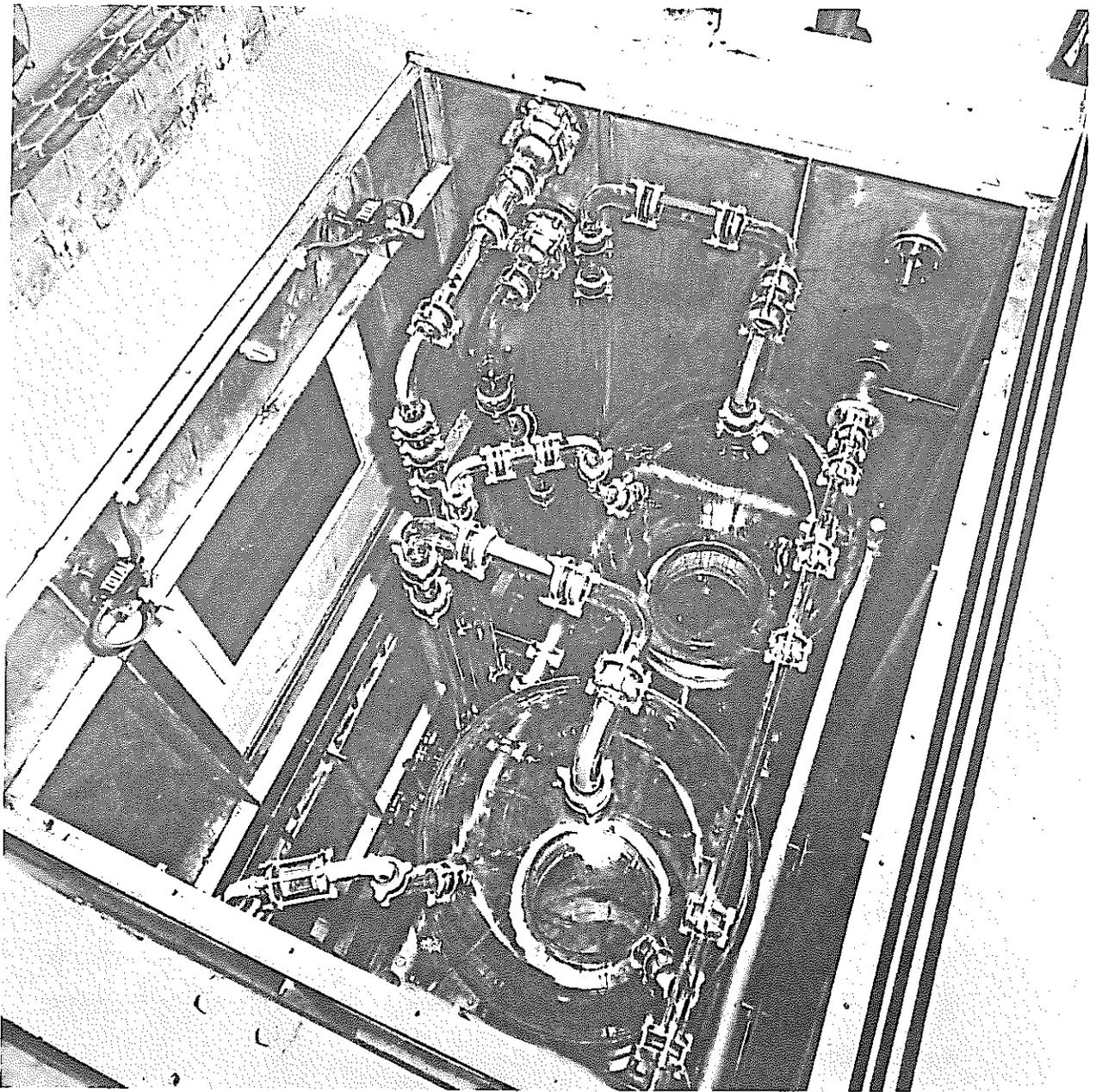


図 3.16 廃溶媒処理槽とセル

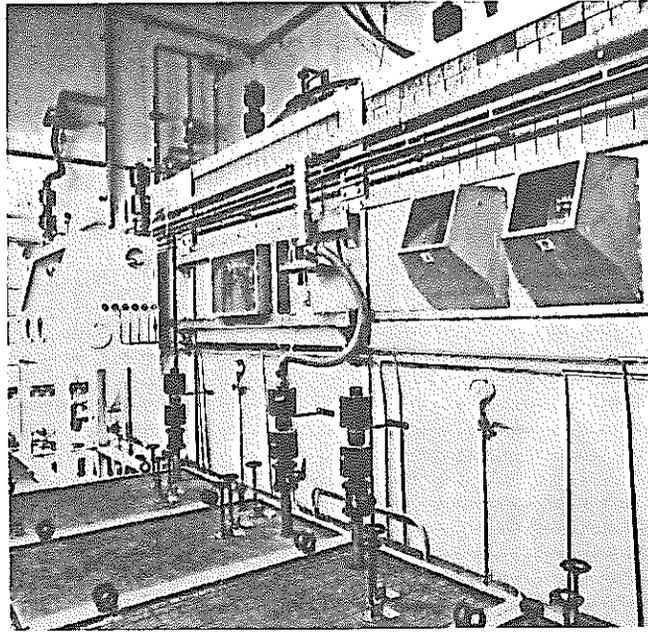


図 3.17 廃溶媒処理セルと操作区域
(ポンプセル上面にて遮蔽窓を通して各処理槽内界面を見ながら操作する。)

(2) WAK 廃溶媒処理施設の運転データ

本施設の1970年から1975年までの運転実績データを表3.8に示す。

本施設の処理能力は $0.6 \text{ m}^3/\text{バッチ}$ であり、運転実績データの数値は約5～10バッチ処理した生データの平均値である。各バッチ処理時の操作の安定性やサンプリング代表性、使用分析機器・分析法の信頼性さらに分析作業員の技量により運転データはかなり変動することは言うまでもないが、運転実績データはこれらの要素が平坦化されたものと考えられ、貴重なデータである。そこでこのデータより、各操作ステップ毎のDF等の性状に関し大局的な傾向を解析してみた。

- ① 供給廃溶媒中の放射能濃度がオーダーで $1 \sim 100 \beta \text{ Ci}/\text{m}^3$ ($0.1 \sim 1 \alpha \text{ Ci}/\text{m}^3$)と変動しても、パイロットプラントの運転により回収された精製ドデカンの放射能濃度はほぼ一定、すなわち $10^{-6} \beta \text{ Ci}/\text{m}^3$ ($10^{-8} \alpha \text{ Ci}/\text{m}^3$)のものがえられている。したがって数 $10 \beta \text{ Ci}/\text{m}^3$ ($0.1 \alpha \text{ Ci}/\text{m}^3$)の廃溶媒を処理した場合精製ドデカンに関する全除染係数 $DF_{\beta, \alpha} = 10^7$ が期待できることがわかる。
- ② 回収されたTBPの放射能濃度は $0.1 \sim 1 \beta \text{ Ci}/\text{m}^3$ ($10^{-4} \sim 10^{-6} \alpha \text{ Ci}/\text{m}^3$)のオーダーのものがえられている。したがって数 $10 \beta \text{ Ci}/\text{m}^3$ ($0.1 \alpha \text{ Ci}/\text{m}^3$)の廃溶媒を処理した場合、TBP回収に関する全除染係数としては $DF_{\beta} = 10 \sim 10^2$, $DF_{\alpha} = 10^2 \sim 10^4$ が期待できることがわかる。

表3.8 K f K廃溶媒処理施設の運転実績データ

Year	Spent Solvent					Scrubbing				Kerosine				TBP		Remarks
	Volume m ³	TBP Vol. %	H ⁺ mol/l	Activity		Water	Na ₂ CO ₃ -sol.	Activity of org. solution after scrubbing		Activity after second adduct formation		Activity after final purification		Activity after adduct decomposition		
				α Ci/m ³	β Ci/m ³			α Ci/m ³	β Ci/m ³	α Ci/m ³	β Ci/m ³	α Ci/m ³	β Ci/m ³			
1970	0.2	30	0.02	1.3E-3	1.7E-3	-	+	3.5E-4	2.5E-4	2.6E-6	3.7E-5	-	-	2.8E-8	5.8E-4	kerosine burnt TBP fixed with PVC.
1971	2.7	23	0.05	1.4E-3	4.2E-4	+	-	3.5E-5	1.5E-4	1.4E-6	1 E-4	-	-	7 E-8	3 E-5	in 1971:
	4.4	20	0.06	3.7E-3	6 E-4	+	-	4.5E-4	3.6E-4	1.4E-6	1.9E-5	-	-	2.8E-7	8.1E-5	~ 18 m ³ kerosine
	6	18.5	0.02	1.1E-4	4.1E-4	+	-	2.3E-6	1.1E-4	9 E-8	4.6E-5	-	-	1.2E-6	1 E-4	burnt.
	2.7	16	0.01	1.2E-4	3.2E-4	+	-	3.7E-6	8 E-5	6.7E-7	4.6E-5	-	-	2 E-6	5.1E-5	~ 19 m ³ recycled
	6	1.6	0.03	0.5E-4	5.5E-2	+	-	1.2E-5	3.8E-3	1.3E-6	4 E-4	-	-	3.6E-7	1.3E-3	to the PUREX process.
	4.8	2.5	0.02	1.5E-2	2.6E-2	+	-	2.5E-4	7 E-3	2.3E-6	1.4E-4	<1 E-8	<1 E-8	3.1E-6	2.7E-3	TBP fixed with PVC.
	6	1.5	0.05	2.3E-3	3 E-2	+	-	1 E-4	3.2E-3	3.4E-6	3 E-4	1.2E-8	2 E-7	4.3E-7	4.7E-3	
6	5	0.1	0.16	3	-	+	9 E-3	6 E-2	3 E-6	1.1E-2	<1 E-8	1 E-6	2 E-4	4 E-2		
1972	3.8	4	0.4	0.21	6.2	-	+	4.9E-6	2.6E-2	3 E-6	3.1E-3	<1 E-8	2.3E-6	3.3E-7	1.1E-3	in 1972:
	3.5	21	0.3	3.2E-2	0.75	-	+	1.9E-3	0.18	2.1E-6	6 E-3	2 E-8	2 E-6	2.2E-4	0.4	all kerosine
	3.5	5	0.4	0.71	18	-	+	2 E-3	1.1	2.7E-7	4.2E-3	<1 E-8	1.1E-6	3.7E-5	0.1	recycled to the
	6	7	0.1	0.36	31	-	+	2.5E-4	0.7	9 E-6	9.5E-3	4 E-8	1 E-6	2 E-5	0.15	PUREX process.
	4.5	3.5	0.1	0.1	17	+	+	8 E-4	1.6	1 E-6	5 E-4	2 E-8	9 E-7	1 E-5	0.5	TBP fixed with PVC.
	5	4	0.08	0.8	65	+	+	2.2E-3	2.8	1.2E-5	7 E-4	<1 E-8	3 E-6	7 E-6	0.8	
	5	6	0.5	5.6	230	+	+	6 E-3	10	3.8E-5	3.7E-3	3 E-8	2 E-6	3 E-5	1.9	
3.7	4.1	0.3	1.1	56	+	+	7.2E-4	3.3	1.3E-4	2.8E-3	<1 E-6	1 E-6	8 E-6	0.4		
1973	6	7.5	0.15	0.7	12	+	+	7.2E-3	0.42	2 E-6	2.1E-2	<1 E-8	2 E-7	2 E-4	3.6	in 1973:
	4	6.7	0.3	3.8	380	+	+	6 E-2	1.4	2.2E-4	5.4E-2	5 E-8	1.3E-6	1 E-4	4.1	all kerosine
	2.5	17	0.2	2.7	320	+	+	0.34	5.8	7 E-5	1.8E-2	2 E-8	9 E-7	3 E-5	2.2	recycled to the
	3	8	0.2	0.6	31	+	+	0.03	1.3	4 E-5	5.8E-2	<1 E-8	2 E-6	2.8E-4	0.9	PUREX process.
	3.5	4.3	0.1	1.1	72	+	+	0.16	3	2.2E-4	8.2E-2	3 E-8	2.5E-6	3 E-4	1	TBP fixed with PVC.
4	8	0.1	4.6	94	+	+	0.5	7	7.7E-5	5.3E-2	4 E-8	1 E-6	3 E-4	1.2		
1974	No treatment of spent solvent for reasons of reconstruction of the facility															
1975	6.5	16.5	0.02	5 E-2	1.96	+	-	3 E-3	1.8	8.8E-5	0.2E-1	1.8E-5	2.4E-2*	2.6E-3	2.4	in 1975:
	3	6	0.05	4.3E-2	0.17	+	-	3.6E-2	0.14	7.7E-4	1.6E-2	<10 ⁻⁷	3 E-6	8.4E-3	0.52	Kerosine recycled
	3	12	0.08	0.29	3.2	+	-	3 E-2	3.1	4.4E-4	5.1E-2	1.8E-7	3.3E-6	8.4E-3	0.52	to PUREX process.
	3	4	-	1.06	4.8	+	-	0.2	3.5	2.6E-5	1.3E-3	2 E-7	3 E-6	8.4E-3	0.52	* ~ 4.5 m ³ burnt
	3	7	-	0.29	3.2	+	-	8.2E-3	0.52	2.6E-5	1.7E-3	1.3E-7	3.5E-6	7.7E-6	0.58	for reasons of high
3	16.5	-	5.1E-3	0.43	+	-	2.3E-4	2.7E-4	3 E-6	1.2E-3	6.7E-7	6.8E-6	7.7E-4	0.58	content of organic	
																impurities.

- ③ なお炭酸ソーダおよび水洗浄後の廃溶媒の放射能濃度は供給溶媒の放射能濃度より1ケタ程度低減化しており、したがって数 $10\beta\text{Ci}/\text{m}^3$ ($0.1\alpha\text{Ci}/\text{m}^3$)の廃溶媒を処理した場合、洗浄に関する除染係数としては、 $DF_{\beta, \alpha}=10$ が期待できることがわかる。

3.2.3 K f K 廃溶媒処理施設の運転に関する情報

PNC 廃溶媒処理技術開発施設の詳細設計の一環として設計者がK f Kより入手したK f K 廃溶媒処理施設の運転に関する情報を紹介する。PNC施設の場合、詳細設計者と施工業者が異なってしまったために、施設の運転に関する性能保証のない施設となっているので、K f Kより入手した情報のうち有益と思われるものをできるだけ紹介することとする²⁴⁾。

- ① K f Kでは廃溶媒と廃希釈剤を混合してから廃溶媒処理しており、両者を特に区別していない。
- ② 運転データのうちDFの非常に低いデータは、有機性不純物（シリコンオイル等）を含んだ廃溶媒を処理したためである。
- ③ タンクからサンプリングするのは充分均一にすることが難しく、データバラツキの原因とも考えられる。
- ④ K f Kの付加体分解後のTBPの仕様は、 $10\text{ vol}\% \text{ TBP}$ 、 $0.05\text{ mol H}_3\text{PO}_4$ 。
K f Kでは、付加体の加水分解後のNaOHによる中和洗浄工程を省略していた。なお最近になりPVC固化体収納ドラム（材質ST-37）が腐蝕し、それが原因で固化体が燃え出す事故が発生したという未確認情報もあり、その後中和処理をしている²⁵⁾。
- ⑤ リン酸添加により相分離させ回収した粗ドデカン中には、 $0.08\sim 0.1\text{ vol}\% \text{ TBP}$ が含まれており、このTBP含有量は廃溶媒中のTBP濃度と関係なく一定である。このTBPは付加体を形成しているため、 H_3PO_4 、 H_2O も次の比率で含まれている。

$$\text{TBP}:\text{H}_3\text{PO}_4:\text{H}_2\text{O}=1:1:1\text{ (mol 比)}$$

$$\text{TBP}\sim 0.1\text{ vol}\%:\text{H}_3\text{PO}_4\sim 0.025\text{ vol}\%:\text{H}_2\text{O}\sim 0.0005\text{ vol}\%$$

- ⑥ K f Kでは精製ドデカンをWAK再処理工場にリサイクル使用しており、特に問題なかった。精製ドデカン中に不純物はほとんどなく購入品より優れているという。表3.9にWAKおよび動燃東海再処理工場で使用しているドデカンの仕様を比較して示した。WAKリサイクル使用のための回収ドデカンの仕様は、含有放射能レベルのみで、 $10^{-6}\beta\text{Ci}/\text{m}^3$ 以下、 $10^{-8}\alpha\text{Ci}/\text{m}^3$ 以下であるという。K f Kでは吸着塔出口のドデカンの γ 線測定により破過を検知している。ドデカン中のTBPはガスクロ法でも検出できないからチェックしていない。しかし、放射能の破過がTBPの破過より早いとK f Kでは考えている。

表 3.9 WAK, 動燃東海再処理工場使用ドデカンの仕様比較

W A K 再 処 理 工 場		動燃東海再処理工場
回収ドデカン (1 例)	新ドデカン (購入SPEC)	新ドデカン (購入例) ~ 日 鉦 油 化 製
<ul style="list-style-type: none"> ○ n-Paraffine <ul style="list-style-type: none"> n-C₁₀ 2.8 n-C₁₁ 3.5.3 n-C₁₂ 4.5.6 n-C₁₃ 1.5.8 n-C₁₄ 0.5 (ガスクロ分析精度 ± 5 %) ○ Aroma, Olefine, Napthene-減少 ○ Y P-増加 	<ul style="list-style-type: none"> ○ n-Paraffine Min. 98 wt % <ul style="list-style-type: none"> n-C₁₀ 3~10 n-C₁₁ 40~50 n-C₁₂ 32~40 n-C₁₃ 10~15 ○ Aroma Max. 0.1 wt % ○ その他 Max. 2.0 wt % <ul style="list-style-type: none"> iso-Paraffine, Olefine, Napthene 	<ul style="list-style-type: none"> ○ n-Dodecane 98.3 % <ul style="list-style-type: none"> n-C₁₂ 97.6 { i-C₁₂ 0.5 n-C₁₃ 0.5 { i-C₁₃ 1.1 n-C₁₄ 0.2 { i-C₁₄ 0.1 ○ 購入SPEC <ul style="list-style-type: none"> 比重 0.750~0.760 引火点 75℃以上 臭素価 ≤ 0.5 界面張力 ドデカン-水 40~46 dyne/cm 流動点 -5℃以下 粘 度 1.2~1.4 cp (25℃) 屈折率 1.42~1.43
<p>K f Kでは1971年より廃溶媒処理して回収した精製ドデカンをWAK再処理工場にリサイクル使用しており, 特に問題はないという。WAKで再使用するための回収ドデカンの仕様は, 放射能レベルのみで, 10⁻⁶ βCi/m³以下, 10⁻⁸ αCi/m³以下である。</p>		

ドデカン中の放射性核種は ^{106}Ru である。なお、Ruの化学型等に関しては分析法がないので不明である。

- ⑦ ドデカン精製用吸着塔の通液速度は $0.1\text{cm}/\text{min}$ で運転した。粗ドデカンのシリカゲルに対する通液倍率はTechnical Plantまでは 33kg シリカ/ m^3 粗ドデカン で実施したが、Pilot Plantの場合には吸着塔周辺の放射能バックグラウンドが高いため吸着塔出口で γ 線検出が出きなかったので安全サイドにとり、Technical Plantの3倍の通液倍率で運転した（すなわち、ドデカンの通液量が $1/3$ で交換した）。シリカゲル吸着能力に関するPilot Plantのデータはない。又、微粉状（ $\phi 1\sim 1.5\text{mm}$ ）のシリカゲルの他に大口径（ $\phi 3\sim 5\text{mm}$ ）のシリカゲルを使用する目的は、粗ドデカン中に含まれる黄色・褐色のゲル状物質を除去するとともに、吸着時における液のチャンネルリングの発生を防止するためである。
- ⑧ K f Kの吸着塔はカートリッジ式に取りはずしの出きるポリエチレン容器に約 60L のシリカゲルが充てんされており、使用済のシリカゲルはポリエチレン容器ごと2ヶまとめてドラム缶に入れセメント固化するという。K f Kで経験した廃シリカゲルの最大表面線量率は $5\sim 7\text{mR}/\text{h}$ であった。
- ⑨ Na_2CO_3 廃水は希リン酸廃水とは別に処理し排出している。希リン酸廃液は他工程（他施設）から発生する硝酸系廃液と共に処理している。廃液は、 $\text{pH}=9$ に調整し、遊離酸がない様にしてから蒸発濃縮する。

Na_2HPO_4 はある程度まで溶解（ $\sim 140\text{g}/\text{L}$ ）すると晶析するので、 Na_2HPO_4 の溶解量の多い廃液は蒸発処理をしないで濃縮液と直接まぜて固化処理している。なお蒸発缶の材質はSUS304Lを使用し、今のところ腐食問題は生じていない⁷⁾。

- ⑩ 回収TBP中のドデカン含有量は、ラボテストでは $12\sim 16\%$ と高かったが、量的に非常に少ないため実験誤差が大きく出た。PNCの設計では 5% でよいだろう。ドデカン含有の生ずる原因については、よくわからないが付加体分離の際のDBPあるいはクラッド（第三相）によるものかもしれない。クラッドがTBP相へ移行しやすいものの、廃溶媒中よりもTBP相でクラッドが濃縮されるかどうかはわからない。
- ⑪ K f KにおけるPVC固化作業

前もってPVC粉末を充てんしたドラムの入った鉛・鉄含有コンクリートキャスクを搬入し、グローブボックス（GB）を上からかぶせシールする。GB内でドラムのフタをはずし、TBPをドラムに注入する。なお攪拌はしない。ドラムのキャッピング後GBを取りはずす。次にコンクリートキャスクのフタ閉めを行ない系外を搬出する。この時ドラム表面線量率 $< 200\text{mR}/\text{h}$ ，キャスク表面線量率 $< 20\text{mR}/\text{h}$ であった。

（注：TBP投入後、攪拌および加熱していないので固まったり固まらなかつたりしたという。コンクリートキャスクはリサイクル使用しているかどうか不明）

⑫ 回収TBPの回化処理用のPVCのSPECは、K値80、分子量120,000 見掛比重0.35g/cc、Emulsion-PVC。Suspension-PVCではドデカン含有量が10%以上入ると固まり具合が悪くなる。又、TBP含有率が限定されてくる。Suspension-PVC/回収TBP(10%ドデカン含有)50/50wt%の固化体にはクラックが入る。ペレットタイプのPVCは機械的強度が保てず、ペレット内に濃度勾配、放射能濃度勾配が出来Leachingが生じやすく、ペレット表面に付着したActivity ParticleがLeachingで外に流れるので好ましくない。均質な固化体をうるには攪拌が必要であり、加熱は固化スピードを加速するために必要である。KfKでは攪拌後1hr 放置しており、脱気は不要と考えている。

(なお、1980年の時点では、KfKでの固化体特性評価データや加熱・攪拌に関するエンジニアリングデータはなかったし、その後KfKではPVC固化法の開発を中止したという。これに対し、わが国の方が詳細設計の一環としてこれらの技術開発を積極的に進めていたこともあり、今日では当方がKfKより技術的には先行している。)

⑬ その他

KfKでは密度計、超音波式界面計、静電容量式伝導計を使用しているが、ドデカン/水の相で超音波式界面計を使用している。超音波式は開発中の方法だが非極性流体に良く、ドデカン/付加体の相に使える。なお、クラッドがあると乱れるが信頼性は高い。静電容量式は水等の極性流体に良く、有機/水の相に使える。分析法に関しては、U→Xrayスペクトロメーター、Pu→ α スペクトロメーター、 γ →Ge-Liディテクター、水分→カールフィッシャー法、ドデカン中のTBPおよびTBP中のドデカン→ガスクロ法を使用している。

3.3 EUROWATTプラントの廃溶媒処理実績

Eurochemic再処理工場の実廃溶媒を $0.6\text{m}^3/\text{日}$ で処理するEUROWATTプラントが1980年11月より稼動開始した。1981年3月まで8週間(5日/週)で 20m^3 の廃溶媒を処理したという。この際の処理試験内容に関して取りまとめた運転報告書(ETR-312²⁹等)より、プラントの設備内容および実廃溶媒処理試験結果を以下に紹介する²⁹⁻³²。

3.3.1 EUROWATTプラントの設備概要

本プラントのプロセスフローの概要を図3.18に、又上記運転時の各ステップにおける流量、密度を表3.10(物質収支表)に示す。廃溶媒の洗浄系、付加体生成系の相分離には4段のミキサーセトラ(全内容積 150L)を使用し、導電率式界面検知器を取付ている。又これらの相分離前後の各相の一時貯槽としては界面と界面に浮ぶ第三相を目視できる様に 200L のガラス製球状容器を使用している(図3.19)。クロシンと相分離した付加体は $220\sim 240^\circ\text{C}$ に加熱したパイロライザーで熱分解されブテンとリン酸となる。このパイロライザーは図3.20に示すような構造をした Hastelloy B2 製の円筒状薄層蒸発缶で、上端内壁にそって付加体が $14\text{L}/\text{h}$ でフィードされ、落下途中外壁から加熱され熱分解し、生成したリン酸は下部に流下するが、一方生成ブタン($0.6\text{m}^3/\text{h}$)は下部からの N_2 ガスによりオフガス系に排出される。なお、パイロライザー内部ではフィード液がラセン状に降下し効率よく伝熱面に接触するようにワイパー付ドラムが約 70rpm で回転している。回収リン酸濃度は $98\sim 100\%$ である。

オフガス系のブテンはリン酸を張ったスクラパーで洗浄後、凝縮器と円筒状ガラスウール製フィルターで除染される。本プラントのコントロールパネルおよびパイロライザー内部を図3.21および図3.22に示す。

ブテンに対し次のような安全対策を講じている。すなわち、ブテンの空気中での爆発範囲は $1.6\sim 9.7\text{vol}\%$ であるので、パイロライザーとそのオフガス系は N_2 パージで不活性雰囲気とし、建家換気は排気ファン入口で空気追加により希釈し、排気中のブテン濃度が常に $0.1\text{Vol}\%$ 以下となるように制御している。なお、ブテン濃度が爆発下限値の 40% に達した場合および追加希釈用空気の供給流量が設定値($600\text{m}^3/\text{h}$)を下廻った場合にはパイロライザーへの付加体供給用ポンプが停止するようなインターロックが組込れている。

3.3.2 EUROWATTプラントの実廃溶媒処理試験結果

- (1) TBP濃度が約 25% 、平均放射能濃度レベルが $10^{-8}\text{Ci}/\text{m}^3$ の廃溶媒を計 20m^3 処理し、平均放射能濃度レベル $10^{-5}\text{Ci}/\text{m}^3$ のクロシンを約 15m^3 回収し、ユーロケミック原研(SCK/CEN)

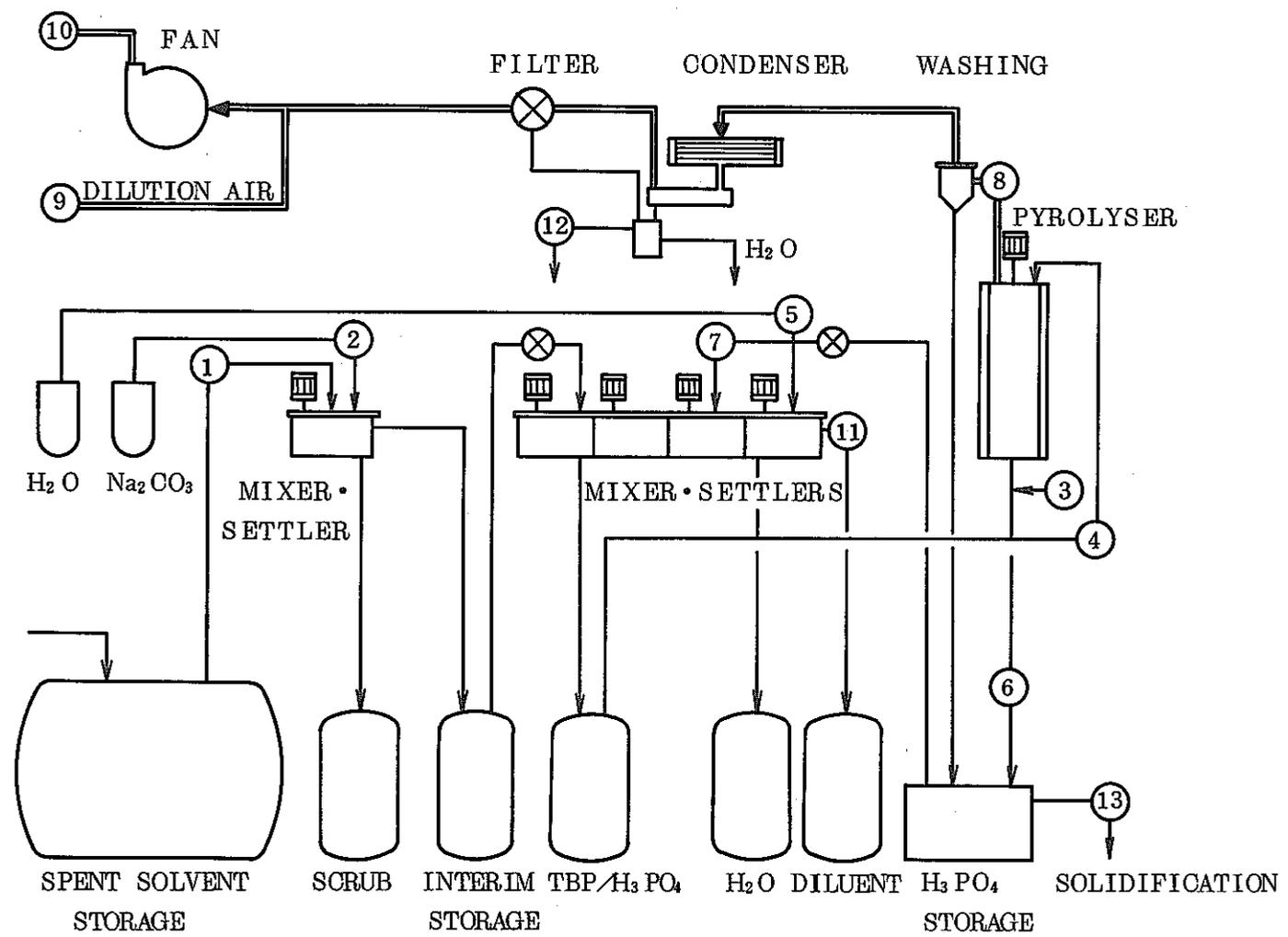


図 3.18 EUROWATT のプロセスフローの概要

表3.10 EUROWATTの物質収支表

		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	
		廃 溶 媒	洗 淨 液	排 出 N ₂	ピ ロ ラ イ ザ ー 供 給	洗 淨 水	出 ロ ラ イ ザ ー 酸	リ サ イ ク ル リ ン 酸	オ フ ガ ス N ₂ 十 ブ テ ン	希 釈 エ ア ー	N ₂ 十 エ ア ー 十 ブ テ ン	ケ ロ シ ン	凝 縮 炭 化 水 素	リ ソ ン 固 化 用 酸	
TBP-kerosene 30%	流 量 l/h 密 度 g/cm ³ 粘 度 cP	25 0.82 1.72													
Na ₂ CO ₃ sol. 7.5%	流 量 l/h		3-5												
N ₂	流 量 m ³ /h			6-12											
TBP-H ₃ PO ₄ (付加体)	流 量 l/h 濃 度 M 密 度 g/cm ³ 粘 度 cP				15 9 1.37 411										
H ₂ O	流 量 l/h					3									
H ₃ PO ₄	流 量 l/h 濃 度 M 密 度 g/cm ³ 粘 度 cP						7.6 19-20 1.86 200	6.25 19-20 1.86 200						1.35 19-20 1.86 200	
Butene	流 量 m ³ /h								0.6		} 610				
N ₂	流 量 m ³ /h								6-12						
Air	流 量 m ³ /h									600					
kerosene	流 量 m ³ /h 密 度 g/cm ³ 粘 度 cP											1.75 0.754 1.39			
Polybutene	流 量 l/h												1-1.5		

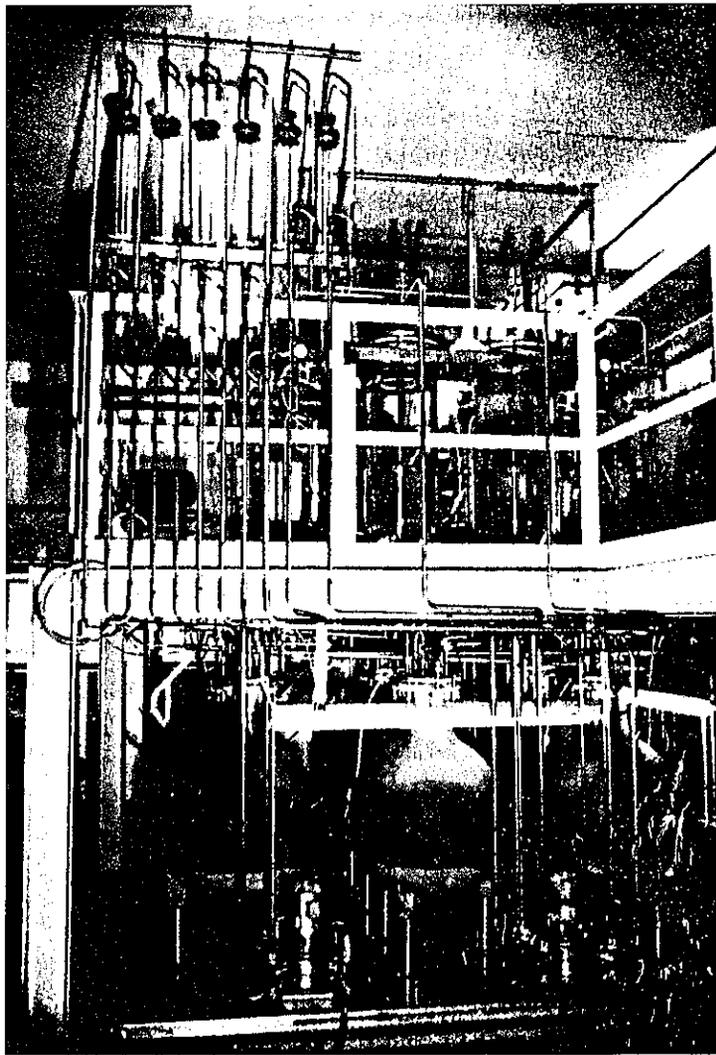
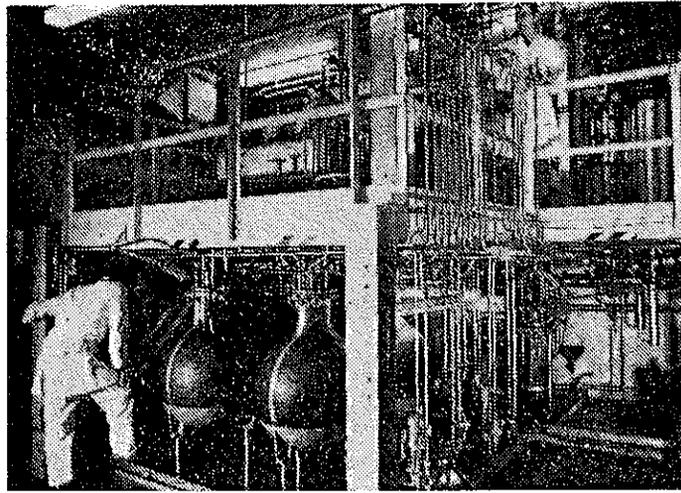
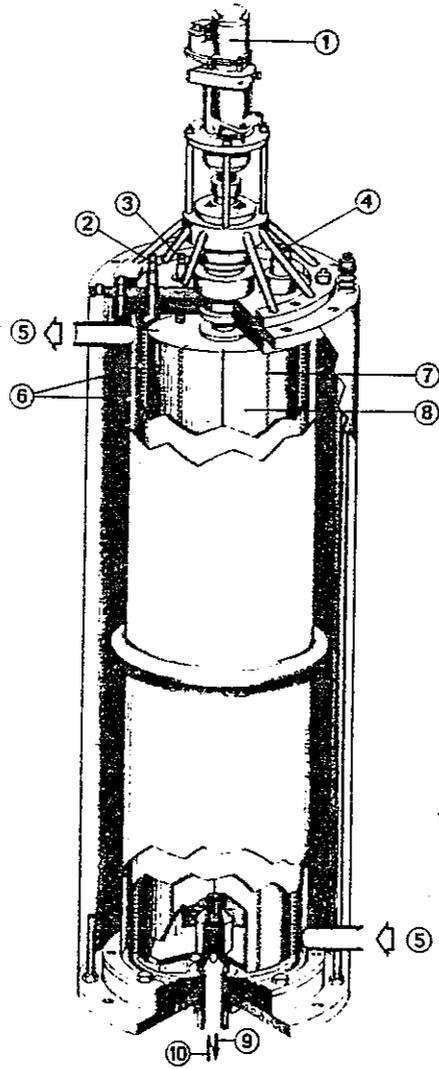


図3.19 EUROWATTの外観 30, 31)



PYROLYSER

- 1 Motor
- 2 Feed
- 3 Spray-nozzle
- 4 Off-gas
- 5 Thermofluid
- 6 Heating-jacket
- 7 Wiper
- 8 Rotor
- 9 Phosphoric acids
- 10 Sweeping gas

- 55 -

図 3.20 TBPのバイロライザー²⁸⁾



図 3.22 TBPバイロライザーの内筒外観³⁰⁾

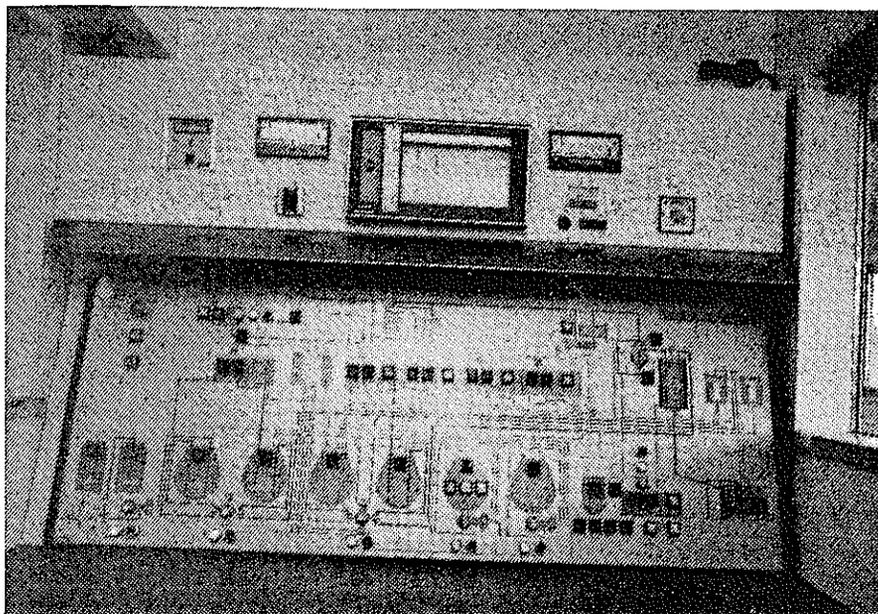


図 3.2 1 EUROWATTのコントロールパネル外観³⁾

へ送り焼却処分した。平均放射能濃度レベルが $10^{-2}\text{Ci}/\text{m}^3$ で計 1m^3 のリン酸を回収し、約 3.5m^3 の廃 Na_2CO_3 溶液が発生した。

(2) 処理した実廃溶媒は表3.1 1の様な組成を持ち、放射能濃度レベルが $10^{-3}\text{Ci}/\text{m}^3$ とかなり低くTBP濃度が約25%のものが処理されている。なお、核種組成でみると ^{106}Ru 、 ^{125}Sb 、 ^{137}Cs 、 ^{241}Am が認められるがその組成比は各バッチによりかなり変動しており、一定の傾向はつかめない。廃溶媒の発生ルートや発生履歴に関しては全く説明がないためこれ以上立入った議論はできないが、PNCの廃溶媒に比較し ^{241}Am の量が多い特徴が認められる。なお溶媒は全く透明か黄茶色を帯びており、常時界面に大量の浮遊物が認められたという。これらの浮遊物に関する写真とかなり詳細な観察記録の報告がないのが極めて残念に思われる。

(3) 回収したクロシン 15m^3 の放射能濃度を表3.1 2に示す。 β 、 γ 放射能レベルは $10^{-4}\sim 10^{-5}\text{Ci}/\text{m}^3$ を主として ^{125}Sb とそれよりも若干少ない ^{106}Ru の寄与による。なお α 放射能レベルは $10^{-5}\text{Ci}/\text{m}^3$ でその約40%が ^{238}Pu の寄与によるものであった。これらの放射能濃度レベルに関し、WAK廃溶媒処理施設の運転実績データと対比すると β 放射能に関してはほぼ同様の放射能濃度レベルのクロシンが回収されていることがわかる。なお、回収クロシンの放射能濃度レベルは廃溶媒の放射能濃度レベルが高くてもそれに直接比例して高くならず比較的一定と報告されているが、WAKの場合でもシリカゲル吸着精製後のドデカンの放射能レベルについて言えばこれと同様を関係が認められる。(ただし、付加体生成時の回収ドデカンの放射能濃度に関してはEUROWATTとは逆に廃溶媒の放射能濃度レベル

表3.11 EUROWATTプラントで処理した廃溶媒の組成²⁹⁾

Lot No	Volume l	TBP Vol. %	106 Ru		125 Sb		137 Cs		241 Am		Activity $\mu\text{Ci}/\text{l}$	Total Activity μCi
			$\mu\text{Ci}/\text{l}$	%	$\mu\text{Ci}/\text{l}$	%	$\mu\text{Ci}/\text{l}$	%	$\mu\text{Ci}/\text{l}$	%		
S 1	2,200	31	1.93	54.6	0.236	6.6	0.733	20.7	0.637	18	3.5	7,700
S 2	2,020	25	2.25	31.3	1.3	18.1	0.794	11	2.75	38.3	7.2	14,500
S 3	1,940	25	2.22	13.8	1.82	11.3	1.07	6.6	10.15	63	16.5	32,000
S 4	2,050	25	0.797	33.2	0.659	27.4	0.204	8.5	0.729	30.4	2.4	4,900
S 5	1,850	25	0.889	31.7	0.805	28.7	0.59	21	0.521	18.6	2.8	5,200
S 6	2,020	25	0.861	29.5	0.808	27.7	0.525	18	0.724	24.8	2.9	5,900
S 7	1,960	25	0.803	35	0.785	34.2	0.242	10.5	0.465	20.3	2.3	4,500
S 8	2,330	25	0.963	20.8	0.737	15.9	1.21	26.1	1.68	36.2	4.64	10,800
S 9	2,200	9	0.172	12.5	0.153	11.2	0.334	24.4	0.676	49.3	1.37	3,000
S 10	1,180	9	0.342	7.4	0.286	6.2	2.23	48.4	1.65	35.9	4.6	5,400
Total	19,750											93,900

表3.12 回収クロソンの放射能濃度

Lot No.	Volume l	106 Ru		125 Sb		Activity $\mu\text{Ci}/\text{l}$	Total Activity μCi
		$\mu\text{Ci}/\text{l}$	%	$\mu\text{Ci}/\text{l}$	%		
K 1	2,000	9.1×10^{-3}	46.2	1.06×10^{-2}	53.8	1.97×10^{-2}	39.4
K 2	2,240	1.24×10^{-2}	30.5	2.83×10^{-2}	69.5	4.07×10^{-2}	91.2
K 3	2,280	7.8×10^{-3}	25.5	2.27×10^{-2}	74.5	3.05×10^{-2}	69.5
K 4	2,200	7.8×10^{-3}	27.5	2.06×10^{-2}	72.5	2.84×10^{-2}	62.5
K 5	2,020	7.3×10^{-3}	23.5	2.37×10^{-2}	76.5	3.1×10^{-2}	62.6
K 6	2,280	3.9×10^{-3}	22.9	1.3×10^{-2}	76.5	1.7×10^{-2}	38.8
K 7	2,260	1.8×10^{-3}	12.3	9.8×10^{-3}	67.1	1.46×10^{-2}	33.0
Total	15,280						397

に比例して高くなる関係が認められる。) 今後、どうしてこの様な関係が成立するのか学術的な検討がなされる。回収クロソン中のTBP濃度は常に0.01%以下であった。この回収クロソンはCEN/SCKに運搬され焼却処分された。

- (4) 廃溶媒に対する炭酸ソーダのDFは約10で、廃炭酸ソーダ溶液中にはウラン、プルトニウムの他に溶媒中に検出されないRI (^{144}Ce , ^{95}Nb , ^{95}Zr , ^{60}Co)も検出された。なお、ミキサセトラ出口のクロソン等を0.2M Na_2CO_3 + 0.1M HNO_3 で洗浄すると約DF~2がえられた。
- (5) 回収クロソンの抽出性状をみるために抽出前後における有機相残留 ^{95}Zr を測定したZ試験値を表3.13に示す。ミキサセトラ出口のクロソン単独および30%TBP含有クロソンは、市販品のものよりZ試験値は小さいもののポリブテンと混合されたものはZ試験値が市販品のものより大きくなり品質が劣化していることがわかる。ただし、この数値のレベルがどの程度ならば再利用上どの様な障害となるかについては記述されていない。回収クロソンでは市販品のものより相分離に長時間を要したと特記されている。
- (6) パイロライザーより約 1m^3 のリン酸を回収したがその濃度は通常20Mすなわち100%濃度と高く又、黒色粘物であり、 H_3PO_4 , $\text{H}_4\text{P}_2\text{O}_7$ および $\text{H}_5\text{P}_3\text{O}_{10}$ の混合物であった。回収リン酸の放射能濃度は受入溶媒の放射能濃度が1ケタ変動しても、表3.14に示した様に約 $5 \times 10^{-2}\text{Ci}/\text{m}^3$ とほぼ一定値となった。リン酸中の主要な核種は ^{106}Ru 、次に ^{125}Sb , ^{241}Am であった。

表 3.13 ケロシンの Z 試験値

	ミキサーセトラ出口のケロシン		Kerosene+Polybutene		Kerosene commercial	
	(1)	(2)	(1)	(2)	(1)	(2)
E sans traitement (処理前 E)	0.043	0.031	0.568	0.286	0.327	0.152
E apres lavage (洗浄後 E)	0.048	0.017	0.156	0.144	0.001	0.094

(1) Kerosene seul. (2) Solution a 30% de TBP dans le kerosene

$$E = \frac{{}^{95}\text{Zr dans la phase organique}}{\text{{}^{95}\text{Zr dans ph. org. + ph. aqueuse}}}$$

. Lavage avec Na_2CO_3 0.25M,
Puis HNO_3 0.1M
puis HNO_3 0.1M

回収リン酸は移送前に多少の水により希釈し粘性を下げてから移送容器につめかえ、アスファルト固化処理プラントへ送った。アスファルト固化処理プラント内では水酸化カルシウムを添加しリン酸を中和後、エクストルーダにかけた。なお、初期トラブルはなかったが後日エクストルーダスクリー部にさびが認められたので検討の結果これはパイロライザー運転中に200℃では気化しないブテン重合化合物がリン酸に同伴したため生じたと考えられ、再使用リン酸用フィルターによる口過処理が追加された。

(7) これらの廃溶媒処理に伴い発生した洗浄廃液は、表 3.15 に示した様に計 3.5 m³ になり、炭酸ソーダ溶液が 1.5 m³、ケロシン洗浄廃液が 1.9 m³ であった。又、廃炭酸ソーダ溶液の放射能濃度レベルは 10⁻² ~ 2 × 10⁻¹ Ci / m³ となった。

(8) 明らかになった問題点および今後の改良項目²⁹⁾

① ミキサーセトラ関係では、ケロシン相に度々粘調な泡状のものが浮かび、これらがミキサーセトラの出口を閉塞したので、今後は底部堆積物をジェット水で洗浄せる様な噴霧管穴を設けるとともに排出しやすい様に出口配管径を太くする必要があった。導電率式界面計では導電率のあまり差のない界面の検出感度が鈍くミキサーの回転や温度によっても影響を受け、零点の調整も難かかった。付加体相の循環ラインにある流量調整弁はしばしば閉塞しミキサーセトラの運転が悪影響を受けた。運転終了時にフラッシュアウトするがこの際ケロシンの洗浄部底に黒色の泥が認められた。この泥は非常にチクソトロピックな性状で β , γ 放射能は 8×10^{-3} Ci / m³ だが α 放射能は 0.28 Ci / m³ と高かった。このうち 44% が ²³⁸Pu によるものと推定されている。今後ミキサーセトラ界面検出システムの見直し改良を計ること、付加体相の循環ラインの調整弁の改良が指摘されている。

表 3.1 4 回収リン酸の放射能濃度と核種組成

Lot No	Volume l	106 Ru		125 Sb		137 Cs		241 Am		Activity $\mu\text{Ci}/\text{l}$	Total Activity μCi
		$\mu\text{Ci}/\text{l}$	%	$\mu\text{Ci}/\text{l}$	%	$\mu\text{Ci}/\text{l}$	%	$\mu\text{Ci}/\text{l}$	%		
A 1	160	22	49.7	9.4	21.2	3.11	7	9.79	22.1	44.3	7,080
A 2	90	18.67	39.6	10.47	22.2	3.12	6.6	14.93	31.6	47.1	4,240
A 3	160	20.13	38.9	12.71	24.6	3.46	6.7	15.4	29.8	51.7	8,280
A 4	157	19.39	39.1	14.2	28.6	4.71	9.5	11.27	22.7	49.6	7,790
A 5	162	14.86	40.2	11.69	31.6	3.24	8.8	7.16	19.4	36.9	5,980
A 6	157	20.62	36.8	14.16	25.3	8.29	14.8	12.93	23	56	8,790
A 7	211	8.05	16.5	7.4	15.4	13.88	28.9	17.47	36.4	48	10,130
Total	1,097										52,290

表 3.15 洗浄廃液の発生量と放射能濃度²⁹⁾

	容 量 l	放射能濃度 $\mu\text{Ci}/\text{l}$	Total Activity μCi
75g/l Na_2CO_3	1,536	10 a 200	44,100
ケロシン洗浄廃液	1,865	3×10^{-2}	56
凝 縮 水	161	2×10^{-3}	0.32
合 計	3,562		44,200

なお、東海の廃溶媒処理技術開発施設では実溶媒を使用しエアパーシ式および超音波式界面計の性能確認試験を行ない、動燃東海再処理工場の使用実績があり保守性の優れたエアパーシ式界面計を主要槽類にダブルに取付けた設計を採用している。2.2.2でのべたように動燃東海再処理工場の実溶媒はそれほど界面生成物を含まないものと推定されるし、仮に界面生成物を含んだ場合でもエアパーシ式界面計を採用しているので導電率式界面計の様な相分離上の懸念は少ない。EUROWATTプラントの運転報告書は粘性の高い100%リン酸を使用し界面生成物を含んだためか予想外にケロシン相と付加体相の相分離がうまくゆかず、界面検出システムの設計にも問題があるなど廃溶媒処理技術開発施設の運転を考えるに当たって参考となる興味深い報告書である。

- ② パイロライザー出口に取付けてあるオフガス用リン酸スクラバーには黒色の脂肪質の垢がこびり付き堆積しガス出口や回収物流出口をたびたび閉塞させ、結果的に低負荷運転となりスクラバー内のリン酸が空になったりした。この垢はブテンの重合物と考えられている。パイロライザーのドラムと内壁を洗浄するための除染用ノズルの取付位置の見直しが必要であった。オフガス凝縮液の一時貯蔵液を排出するためのポンプ用プレフィルターが含有される泥状脂肪酸によりかなりの頻度で閉塞した。分解点検が容易に行なえるプレフィルターの開発が必要。この他次の項目が指摘されている。

すなわちオフガスフィルターで捕集されたポリブテンの自動排出機構の取付、付加体移送用配管の再加熱化、粘調な付加体相からの分析試料の標準時間内でのサンプリングが難しかったので、パイロライザー用供給ポンプ近くにサンプリング場所の変更、オフガス中のブテン量測定の開発、パイロライザーの加熱容量アップ化。

追記：

仏のラ・アーク再処理工場の廃溶媒処理にEUROWATT法が適用できるかを検討する目的で1982年にラ・アーク再処理工場の実廃溶媒約2ℓを使用し基礎試験が実施された。

その結果、プロセス的には特に問題なく適用できることが明らかになった。処理結果の一例を表3.16に示す。³⁹⁾

表3.16 ラ・アーク再処理工場実廃溶媒のEUROWATT法による処理試験結果(基礎試験)

	106 Ru	125 Sb	241 Am	95 Nb	α
Original solvent	1.54	2.06×10^{-2}	7.7×10^{-3}	1×10^{-3}	0.15
Solvent treated with Na ₂ CO ₃ (75g/l)	0.77	1.34×10^{-2}			
Solvent treated with NaOH 2 M	0.5	1.2×10^{-2}			
Solvent treated with NaOH, Na ₂ CO ₃ and H ₃ PO ₄ ; diluent obtained	9.6×10^{-3}	1.5×10^{-3}			2.2×10^{-3}

(単位：mCi/ℓ)

この表より、ラ・アーク再処理工場の廃溶媒には、 $\sim 1 \text{ Ci/m}^3$ の¹⁰⁶Ruに対し $\sim 10^{-2} \text{ Ci/m}^3$ の¹²⁵Sbが含まれている点は動燃東海再処理工場の廃溶媒とほぼ同様な傾向を示しているが、後者の場合⁹⁵Nbはほとんど含まれていない場合が多い点が異なる。又、ラ・アークの再処理工場の放射能濃度 $\sim 10 \text{ Ci/m}^3$ の廃溶媒を100%リン酸で処理すると、放射能濃度レベル 10^{-2} Ci/m^3 のドデカンが回収されている。このリン酸処理時の除染係数は約100であったが、KfK廃溶媒処理施設の運転実績データや、OTLにおける動燃東海再処理工場の実廃溶媒処理基礎試験のデータと対比してみるとほぼ同様な傾向が認められた。すなわちEUROWATT法でもKfK法でも、回収されるドデカンはほぼ同様な放射能濃度レベルのものが得られている。なお、EUROWATTプラントでは遮蔽性能を向上させ(約1cmの鉛厚の補強が必要)ないと、ラ・アーク再処理工場の実溶媒処理試験ができないという。

4. PNC廃溶媒処理技術開発施設

本施設はK f Kが開発し、W A K再処理工場の実廃溶媒処理により実証されたプロセスを技術導入するとともに、遮へい設計・放射線被曝管理および耐震性に関しては動燃東海再処理工場の建設および運転経験を反映させ、さらにわが国の化学工業におけるプロセス計測制御技術を中心としたプラントエンジニアリングの経験を発展させて東レ・エンジニアリング（株）が詳細設計を実施した技術開発施設である。装置建設工事は原子炉メーカー三菱重工が、建家工事は鹿島大成共同企業体（K T G）が実施した。本施設の建設工事は59年4月末に竣工し現在総合作動試験（ワールド試験）中である。

詳細設計期間は55年12月より約14.5ヶ月、設計費は約1.8億円・建設工事期間は57年4月現地着工後約25ヶ月、建設工事費は約40億円（建家関係約11億円、装置関係約30億円）を要した。

以下に本施設の概要を紹介する。

4.1 施設の概要

本施設は再処理工場敷地内の廃棄物処理場および廃溶媒貯蔵場に隣接して設置され、地下2階地上3階建の鉄筋コンクリート造で、延床面積2400㎡の施設である。本施設は廃溶媒貯蔵場等より廃溶媒を受入れ、3.1.3に示したK f K法にて廃溶媒を処理し、回収T B Pはプラスチック固化するとともに回収ドデカンは精製後リサイクル使用をめざす技術開発施設である。

本施設と関連施設との関係および廃棄物の形態、本施設のプロセスフローの概要と物質収支および放射能収支、さらに本施設内主要貯槽の容量をまとめて図4.1に示す。

- (1) 受入廃溶媒の放射能の90%は炭酸ソーダ洗浄により除去され廃炭酸ソーダ溶液に移行し、リン酸濃縮廃液とともに、アスファルト固化処理施設に送液され、再処理工場の他工程からの硝酸廃液とともにアスファルト固化処理される。
- (2) 炭酸洗浄後の廃溶媒中に残った大部分の放射能はリン酸添加により付加体中に移行し、ドデカン中にはほとんど残留しない。付加体と相分離したドデカンはシリカゲル吸着塔で吸着精製される。この精製ドデカン（回収ドデカン）は分離精製工場でのリサイクル使用が期待される。なお、リサイクル使用が難しい場合には、吸着精製せずにそのまま廃棄物処理場へ送り焼却処分する。
- (3) 付加体の加水分解により分離回収したT B P中に残留廃溶媒中の放射能（受入廃溶媒放射能の約10%）が移行する。このT B Pは一時貯留されるが、その一部はプラスチック固化される。このプラスチック固化技術は世界的にも未だ開発途上にあり、本施設の中でも最も技術開発の必要なパートである。T B Pのプラスチック固化体は、アスファルト固化体貯蔵施設へ輸送し貯蔵される。

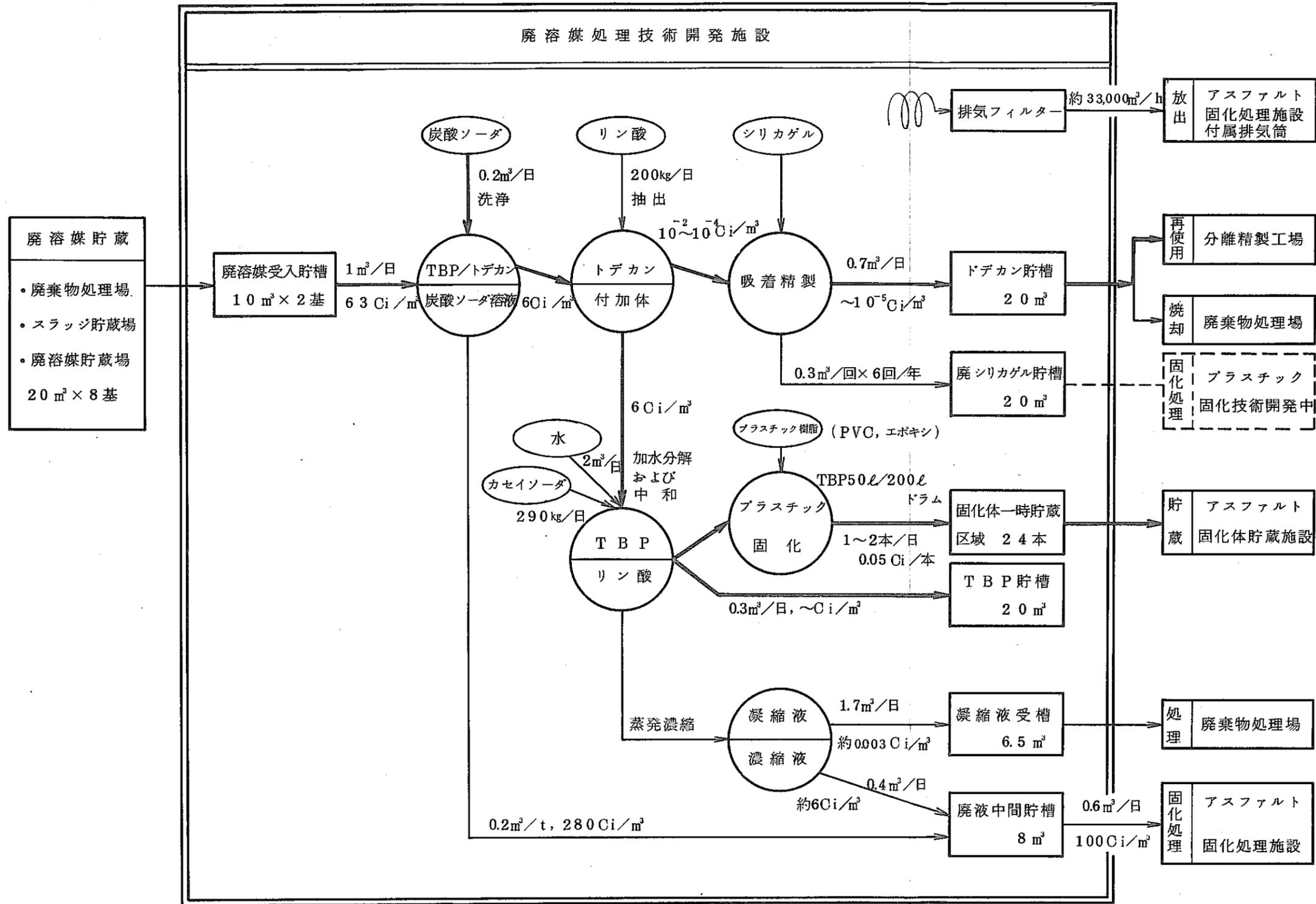


図 4.1 廃溶媒処理技術開発施設の物質収支および放射能収支図

(4) リン酸廃液は蒸発濃縮され、蒸発凝縮液は廃棄物処理場へ送り、再処理工場の他工程からの低放射性廃液とともに処理される。

(5) 本施設の槽類換気系および建家排気は排気フィルターで処理後アスファルト固化処理施設付属排気筒より大気放出される。

本施設は、図 4.2 に示したように廃溶媒の受入工程、洗浄・抽出分離工程、ドデカン精製工程 TBP プラスチック固化工程、廃棄物処理工程等から構成されており、各工程の詳細は 4.2 を参照のこと。

次に本施設の処理能力、性能保証内容および勤務態様についてのべる。

(1) 本施設の廃溶媒処理能力（洗浄・抽出能力）は、 $1 \text{ m}^3/\text{日}$ である。本施設は年間 100 日稼働で年間処理量としては廃溶媒 $55 \text{ m}^3/\text{y}$ 、廃希釈剤 $45 \text{ m}^3/\text{y}$ 計 $100 \text{ m}^3/\text{y}$ で設計されている。もちろん廃溶媒と廃希釈剤を混合後処理することも可能である。再処理工場からの廃溶媒と廃希釈剤の発生量計約 $300 \text{ l}/\text{日}$ （～約 $60 \text{ m}^3/\text{y}$ ）に対し既設廃溶媒貯槽内貯留分もあわせて処理する様に配慮し廃溶媒処理能力に若干に余裕をもたせた設計となっている。

(2) 回収 TBP の固化処理能力は、ドラム 1～2 本/日動（TBP 溶液 $50\sim 100 \text{ l}/\text{日動}$ ）で設計されている。なお、TBP を固化しない場合には、廃溶媒貯蔵場等の既設空貯槽へもどし貯蔵する設計となっている。

(3) 本施設の詳細設計で保証している内容は

- | | |
|------------------|---|
| ① 廃溶媒処理能力 | $1 \text{ m}^3 / \text{バッチ} / \text{日}$ |
| ② 回収ドデカンの放射能レベル | $\leq 10^{-4} \beta \text{Ci} / \text{m}^3, \leq 10^{-5} \alpha \text{Ci} / \text{m}^3$ |
| ③ 回収 TBP の放射能レベル | $\leq 2.5 \gamma \text{Ci} / \text{m}^3, \leq 10^{-2} \alpha \text{Ci} / \text{m}^3$ |

である。

(4) 本施設は日勤運転を原則とし、年間 100 日稼働を考えている。本施設では溶媒処理の各ステップで静置時間が必要なためバッチ運転方式となり、日勤中に分離操作を行ない、夜間静置させる勤務態様となっている。本施設のオペレーターは 1 班 8 名を考えている。なお、PVC 固化法の場合はかなり長時間（～8 時間）にわたる加熱操作が不可欠とみられるので、溶媒処理工程の運転に伴う回収 TBP 量の増加と TBP 貯蔵計画とをバランスさせるため、必要に応じて固化処理工程における 1.2 直の交替勤務態様も考えられる。

次に本施設建屋の構成と各階における機器配置についてのべる。

本施設の地下2階には廃溶媒の受入・処理系・TBP貯蔵系：廃液処理系の塔槽類を収納したレッドセル（7個）を，地下1階には配管分岐室（レッド区域）を，中地階にはこれらのバルブ等操作のための保守区域（アンバー区域）およびシリカゲル吸着塔室（レッド区域）を配置している。さらに1階には回収TBPの固化処理室（レッド区域）と固化体ドラムや試薬類搬出入のための保守区域，トラックエアロックを配置し，2階には制御室，試薬調整室（グリーン区域），安全管理分室および排気室（アンバー区域）を配置し，3階には給気室，ユーティリティ室，電気室を配置している。なお地下1階に設けた連絡管路で廃棄物処理場および廃溶媒貯蔵場と接続し，本施設への人の出入はMPから廃棄物処理場を経て廃棄物処理場2階との連絡通路による。本施設の排気ダクトは廃棄物処理場・E施設・Z施設・アスファルト固化処理施設の外壁又は屋上を経てアスファルト固化処理施設付属排気筒に接属される。

本施設の各階の平面図を図4.3～図4.8に，断面図を図4.9に示す。

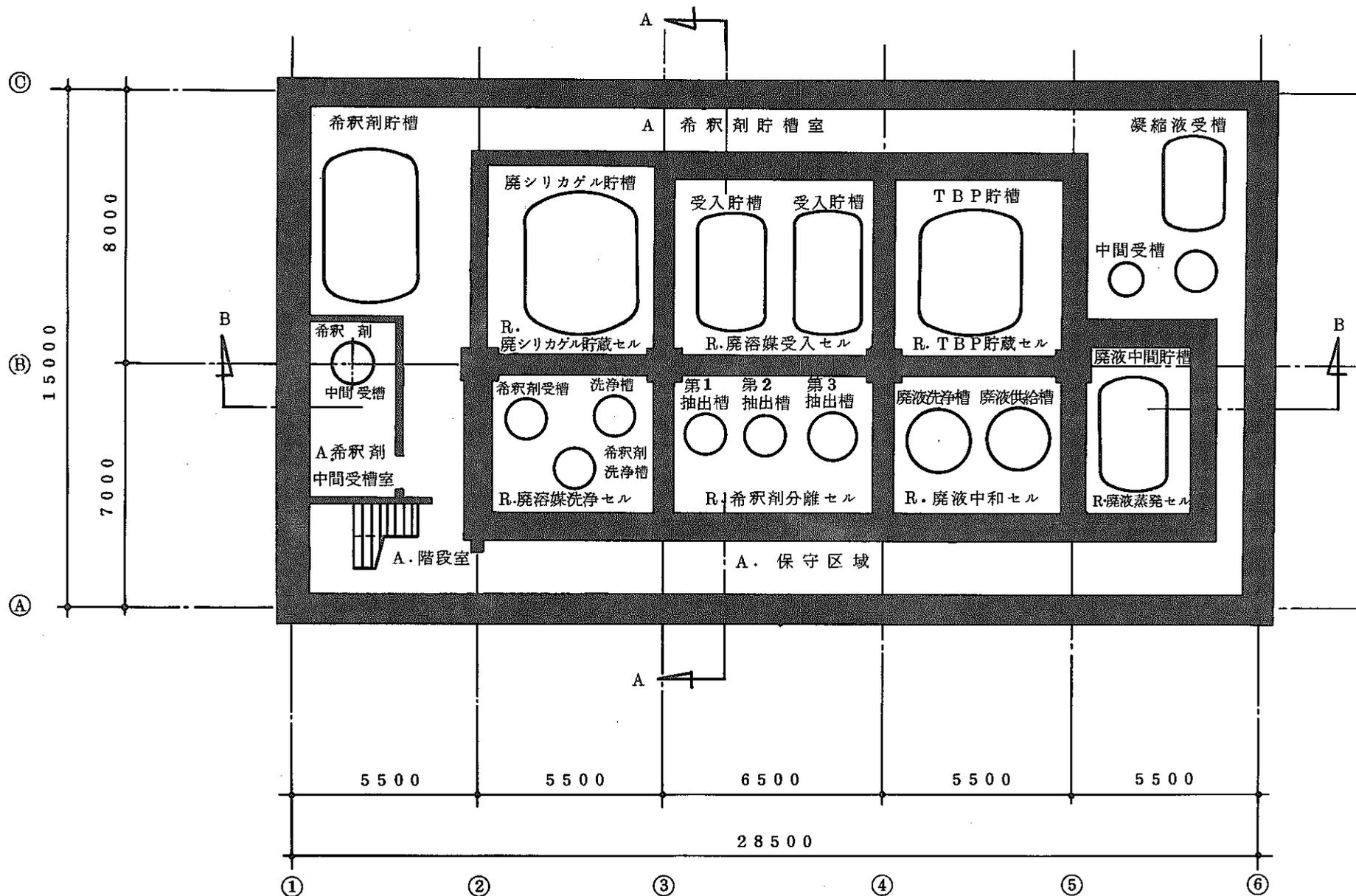


図 4.3 B 2 階平面図

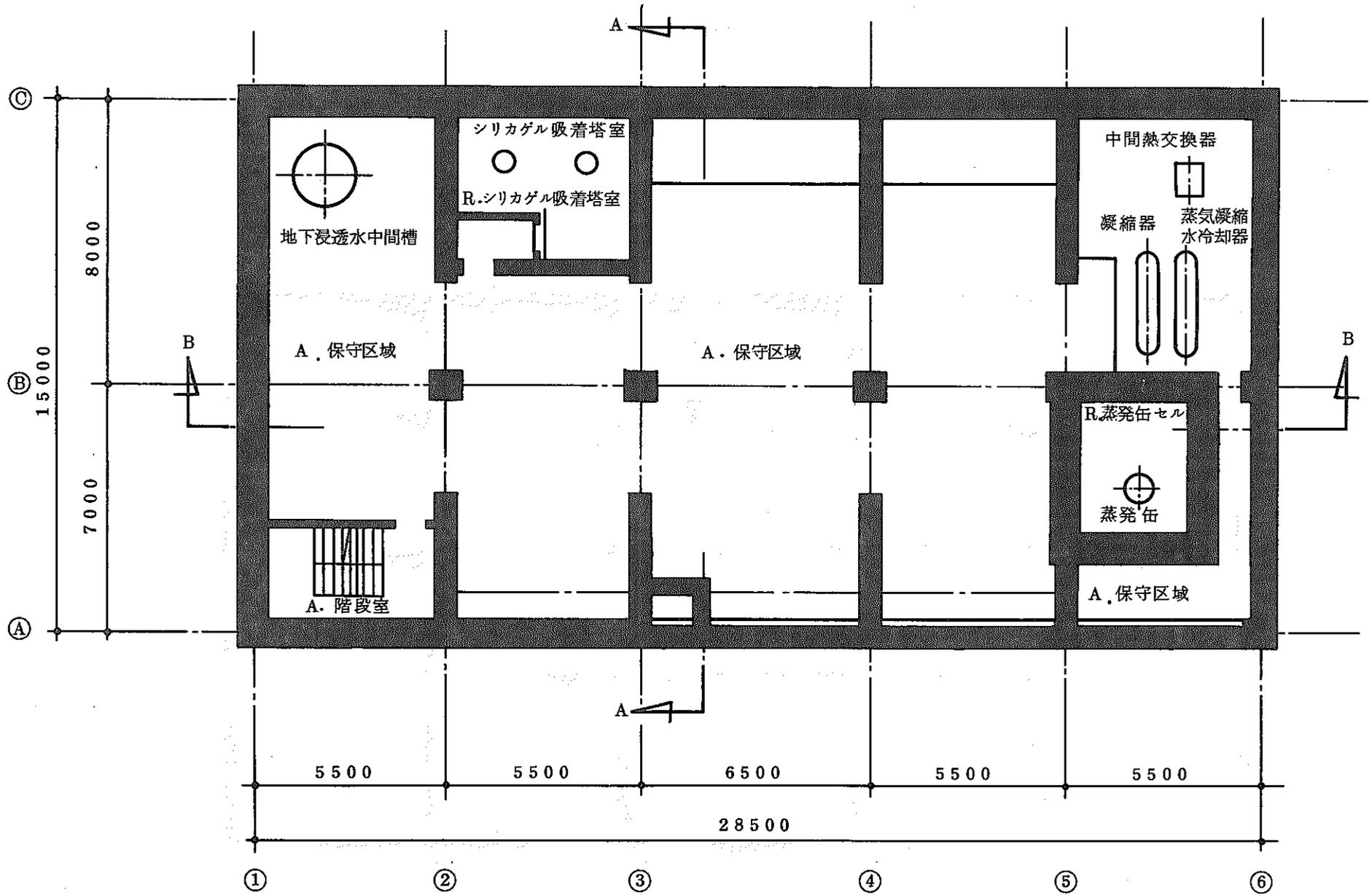


図 4.5 MB 1 階平面図

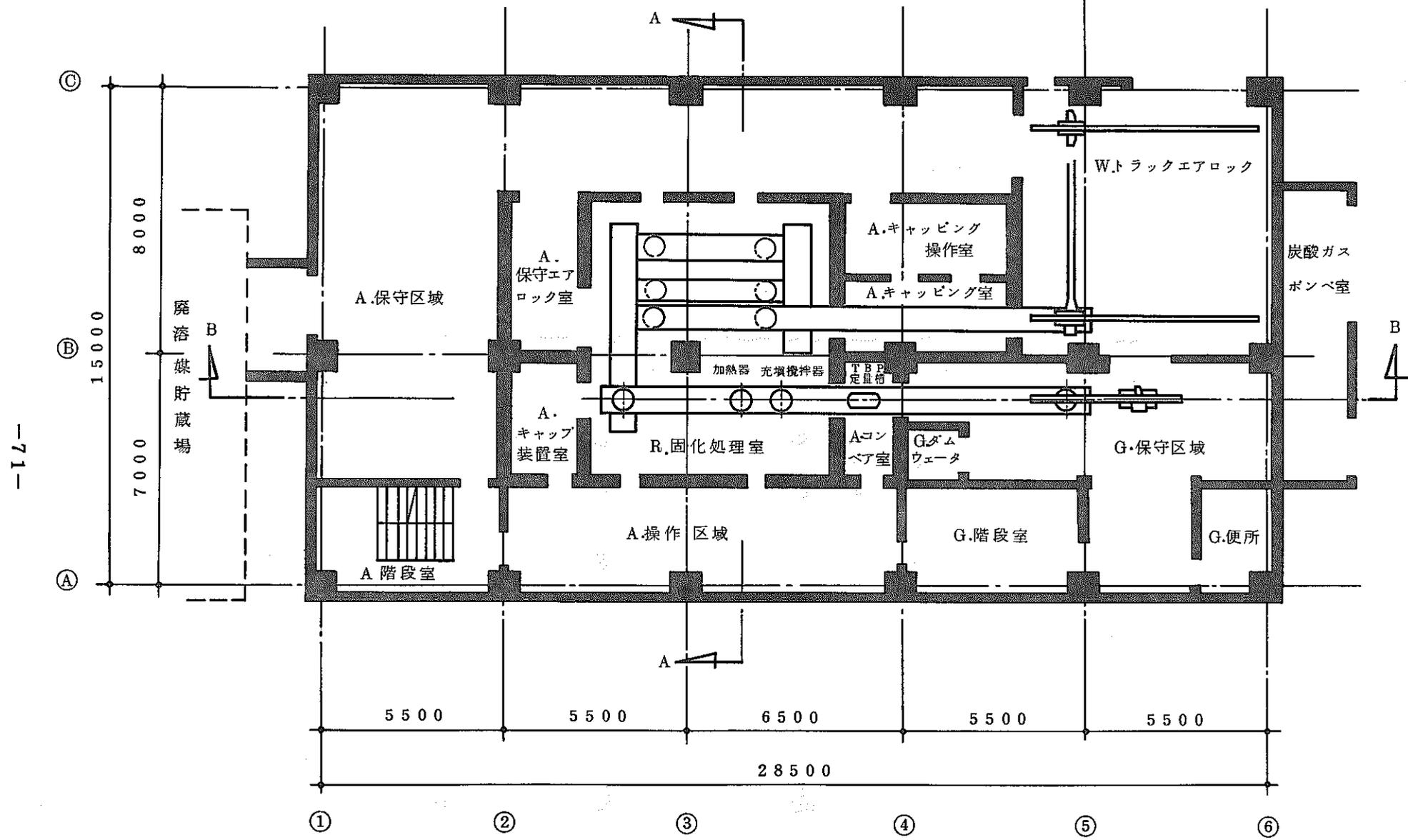


図 4.6 1 階平面図

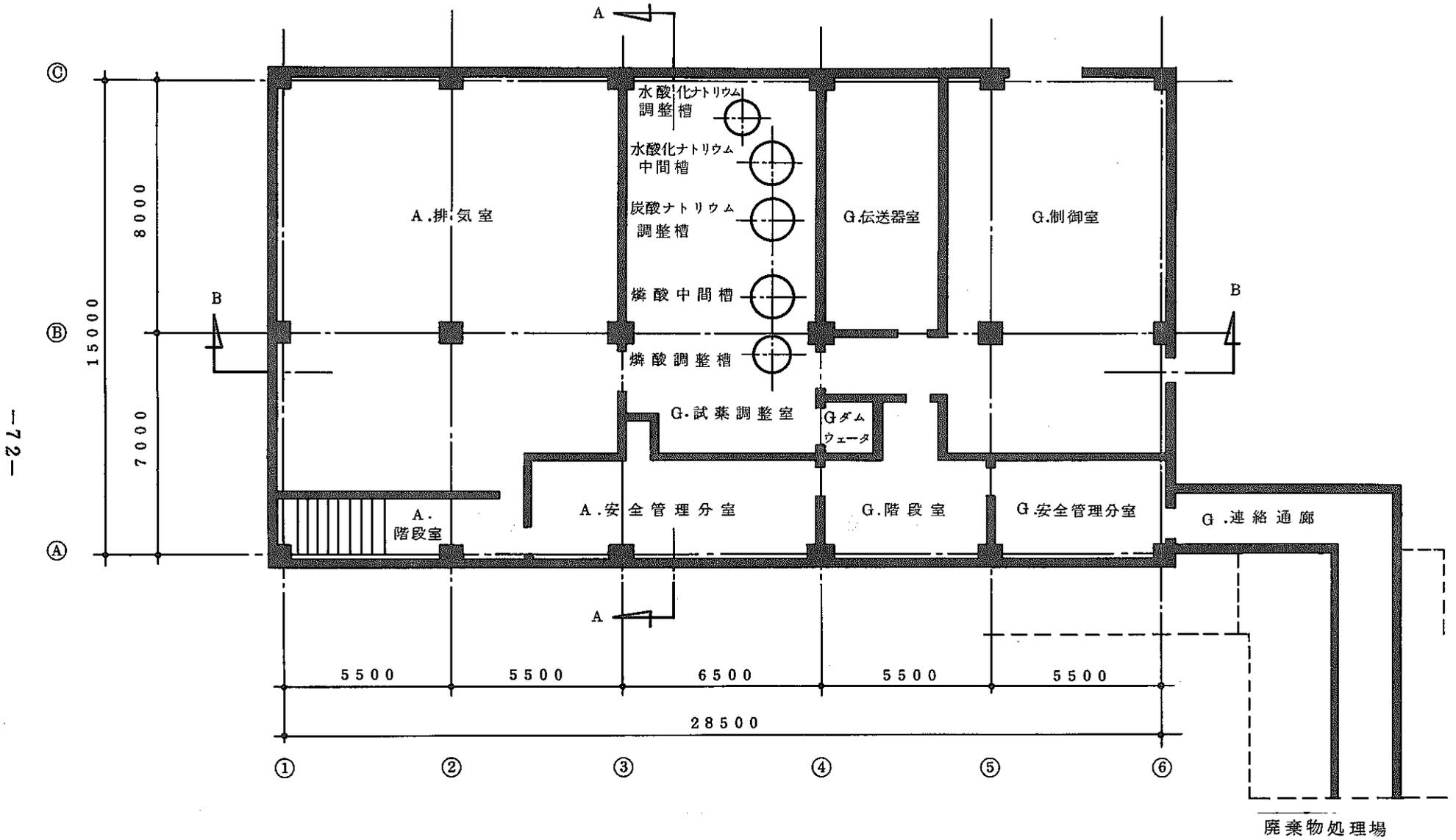


図 4.7 2階平面図

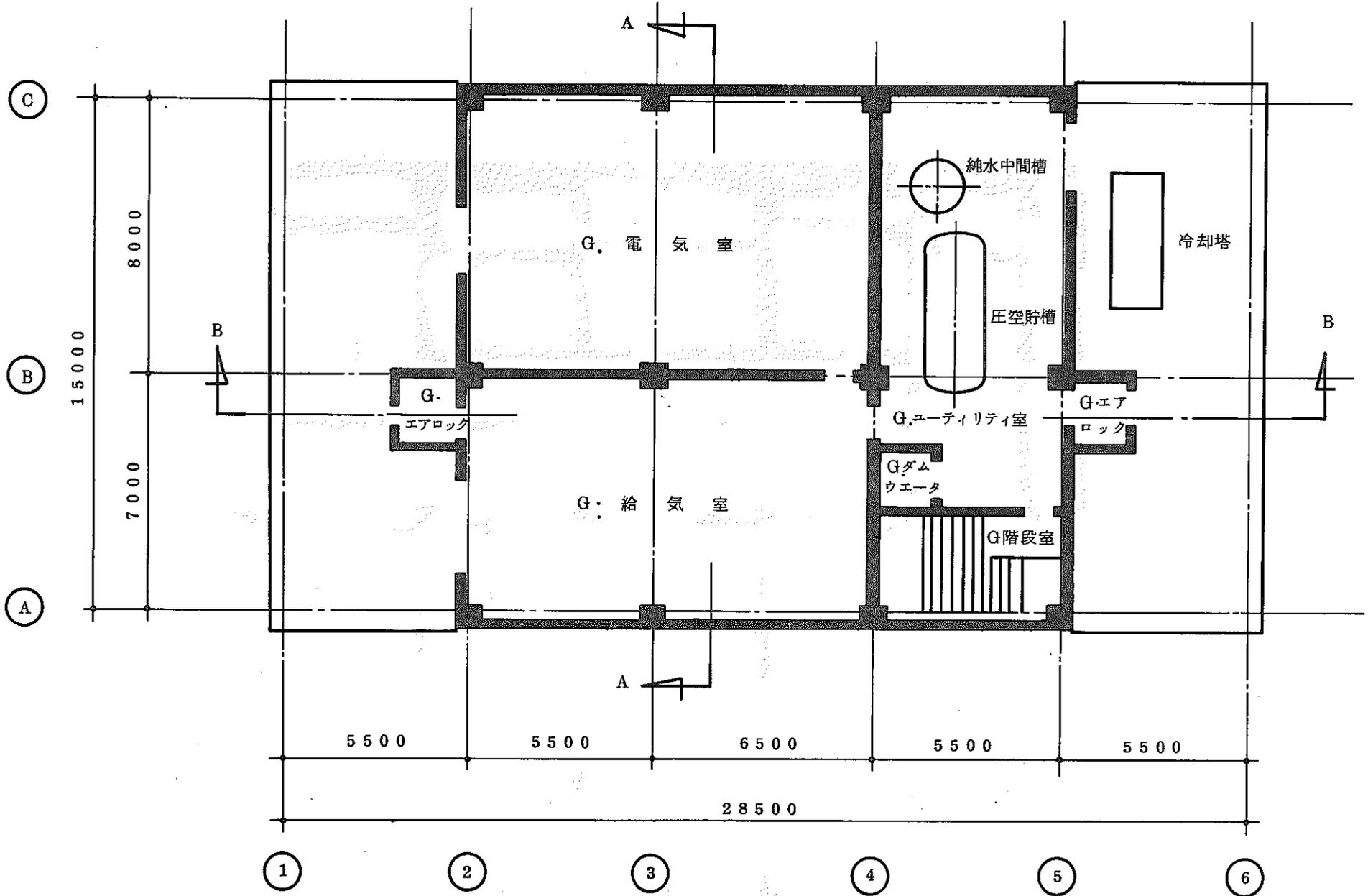


図 4. 8 3 階 平 面 図

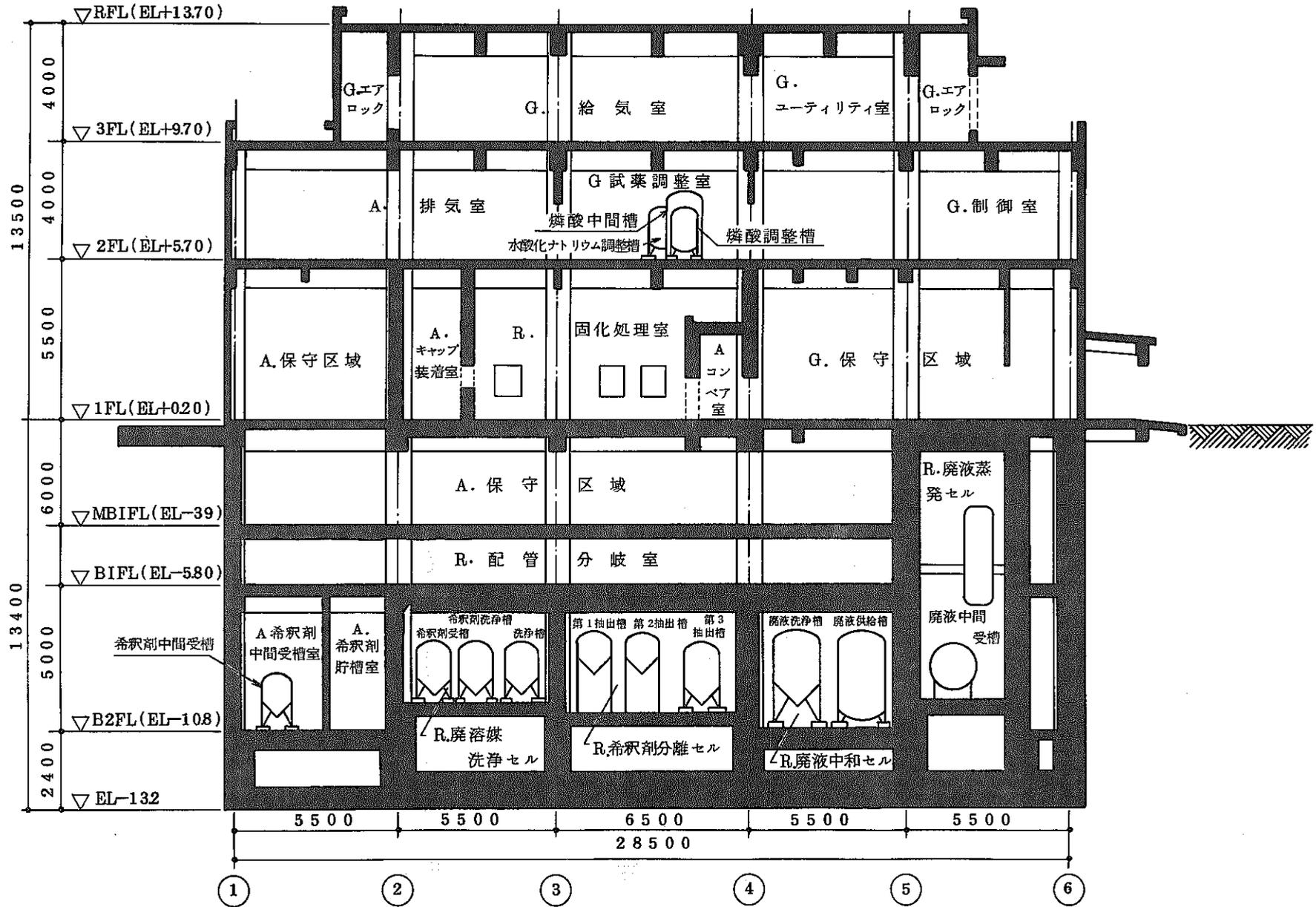


図 4.9 B - B 断面図

4.2 プロセス概要

- (1) 廃溶媒は廃棄物処理場およびスラッジ貯蔵場からスチームジェットで、又は廃溶媒貯蔵場からポンプで本開発施設の受入貯槽（ $10\text{m}^3 \times 2$ 基）に回分式に受入れる。受入貯槽では密度計により密度を測定し、受入廃溶媒中のTBP・ドデカンの割合を推定する。（図4.10）
- (2) 廃溶媒は受入貯槽から回分式（ 1m^3 /バッチ/日）で洗浄槽に受入れ、5% Na_2CO_3 溶液にて洗浄し、廃溶媒中の放射性物質や溶媒劣化物等を除去するとともに硝酸分を中和する。（図4.11）
- (3) 洗浄廃溶媒中の含有TBP 1モルに対し2モルの割合で85%リン酸を添加し付加体を生成させる。本開発施設においては、付加体生成後のドデカンを再度リン酸で洗浄し、ドデカン中の溶解付加体をさらに除去するとともに使用済のリン酸を再度リサイクルし新しい廃溶媒の処理に利用している。すなわち、一番最初の廃溶媒処理時は第1抽出槽からリン酸を添加するが、それ以降の運転では第2抽出槽からのリン酸相・付加体相をリサイクルさせる設計となっている。

以下廃溶媒処理のプリンスプルを示した図4.12を参照のこと。

- ① 第1抽出槽では洗浄槽からの有機相（炭酸ソーダ洗浄済廃溶媒）と第2抽出相からのリサイクルリン酸相（付加体含む）を受入れ攪拌静置（約4.5時間）すると、ドデカン相、付加体相、リン酸相に分離する。付加体相およびリン酸相は第3抽出槽へ送り、ドデカン相は第2抽出槽へ送る。
- ② 第2抽出槽では受入れドデカン相に85%リン酸を加え攪拌静置すると、ドデカン相、付加体相、リン酸相の三相に分離する。付加体相およびリン酸相は第1抽出槽へ送り、ドデカン相は希釈剤受槽へ送る。
- ③ 第3抽出槽では第1抽出槽からの付加体相およびリン酸相を受入れ、4倍当量の純水を加え攪拌静置するとTBP相と希リン酸相に分離する。希リン酸相は廃液洗浄槽へ送る。TBP相にはTBPの中和洗浄のため5% NaOH 溶液を加え混合攪拌静置し、TBP相とリン酸塩相に分離する。TBP相はTBP貯槽（ $30\text{m}^3 \times 1$ 基）へ、リン酸塩相は廃液洗浄槽へ送る。
- (4) 希釈剤受槽では、受入ドデカンの一部をサンプリングし、TBPおよび放射能濃度を測定し、抽出分離系での分離状態を確認する。その後シリカゲル吸着塔（ $300\text{l} \times 2$ 塔）へ供給し、ドデカン中の放射性核種および化学的不純物を除去する。精製ドデカンは希釈剤受槽をへて、希釈剤貯槽（ $20\text{m}^3 \times 1$ 基）へ送り貯蔵する。使用済のシリカゲルはドデカン浸漬状態のまま希

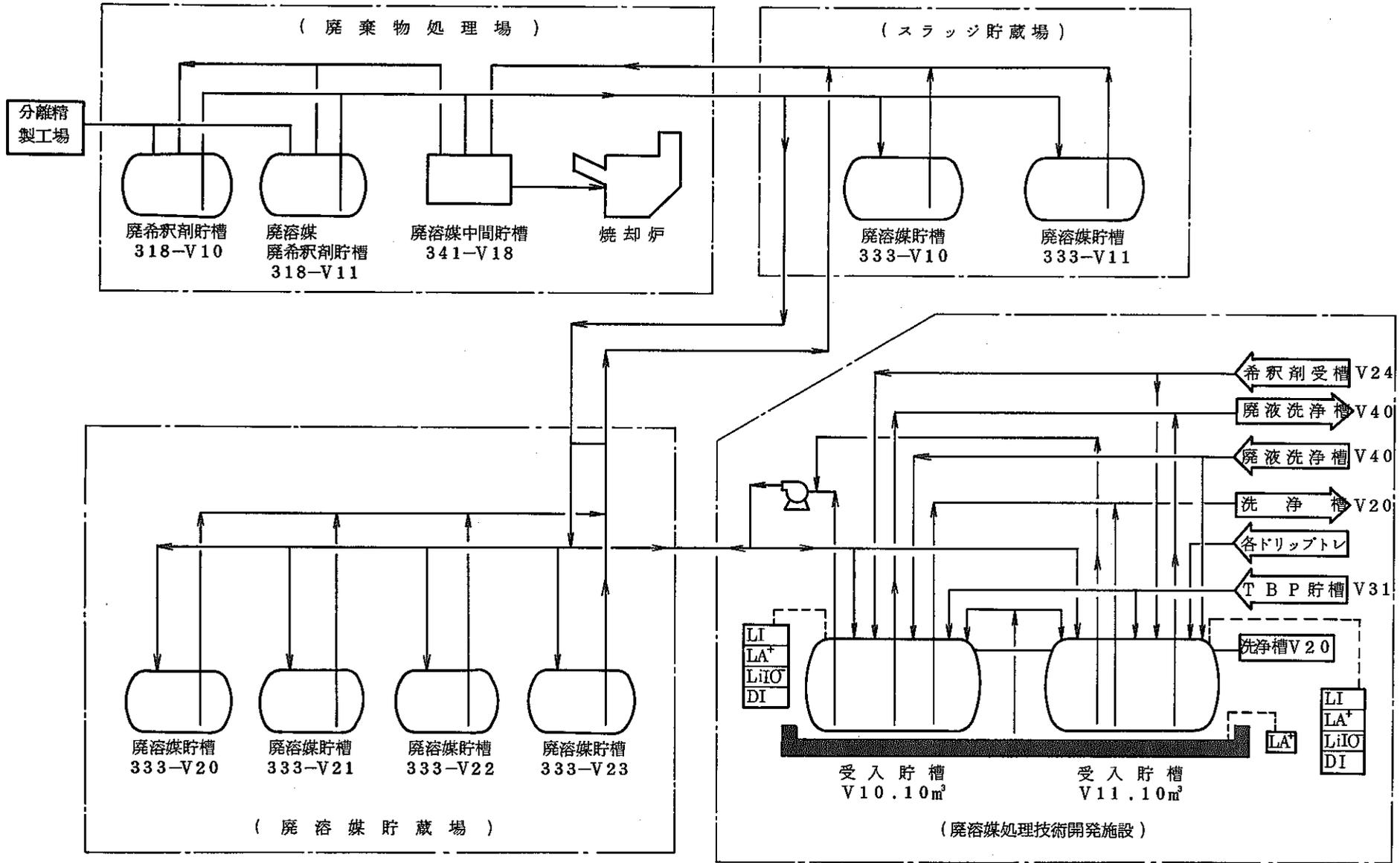


図4.10 受入れ系工程概略図

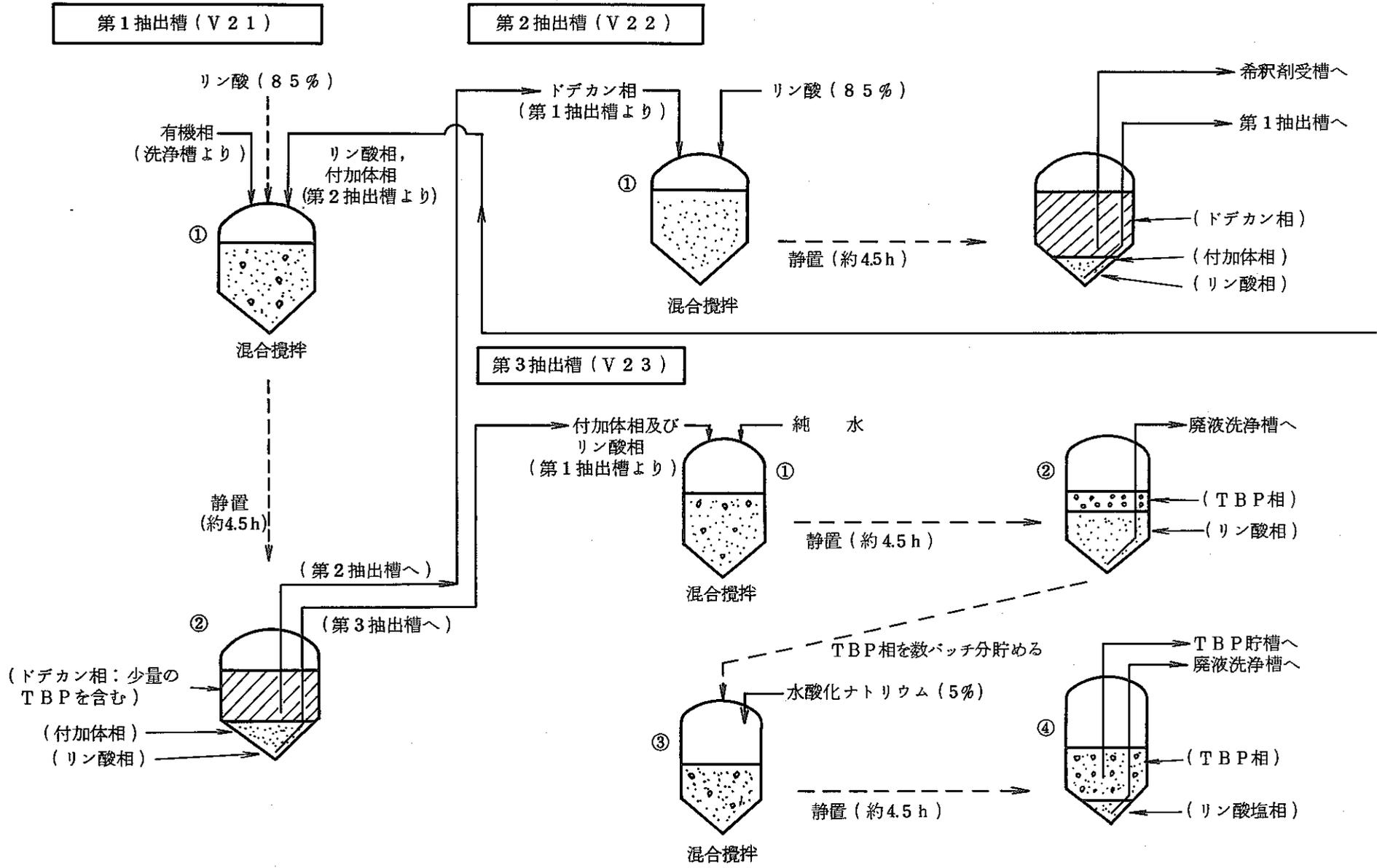


図 4.12 廃溶媒処理のプリンシプル

積剤貯槽（ $20\text{ m}^3 \times 1$ 基）に保管貯槽される。これは、シリカゲルを水漬すると“かゆ”状になってしまうのに対しドデカン中では安定であることと、吸着塔から抽出す際に抽出し易い様にドデカンでシリカゲルのスラリー濃度を下げて抽出す方式を採用したためである。（図4.13）

(5) TBPは、TBP自体の可塑剤としての性質に着目し一般工業分野で実績のある塩化ビニール製品製造技術を応用して、まずTBPをPVC粉末に吸収させゲル化し、さらに加熱処理により熱可塑性の固化体（消しゴム状）とする。（図4.14）

- ① TBP貯槽からTBP定量槽（ 50 l ）を経て、TBPを1階の固化処理室の充てん・攪拌装置（インドラムミキサー）にセットした 100 l 特注ドラム缶に入れる。次にこのドラム缶にPVC粉末を混合攪拌しながら供給し、ペースト状とする。
- ② 攪拌後、コンベア上を移動し、電磁誘導式加熱器で約 $80\text{ }^\circ\text{C}$ で約7時間程度加熱し、PVC固化体とする。
- ③ 次に再びコンベア上を移動し、キャッピング装置によりキャッピング後、充てんドラムストレージコンベア上に一時保管する。（最大貯蔵容量は約18本である）
- ④ 一時保管後、固化体輸送計画に従って4本ずつ固化体をコンベアで取出し 200 l ドラム缶に充てんし、 200 l ドラム缶をキャッピング装置によりキャッピングし表面汚染のないことを確認後トラックエアロックに送り、さらに4本詰めフレームに収納し、トラックによりアスファルト固化体貯蔵施設へ送る。

(6) 廃液処理系のプロセス概要を図4.15に示す。

- ① 本開発施設では、廃溶媒中に含まれる第三相は炭酸ソーダ洗浄廃液に移行するものと考えられる。この廃液はアスファルト固化処理施設で処理されるため、廃液中のTBP濃度を 200 ppm 以下に下げる必要がある。したがってこの廃液をドデカンで洗浄しTBPと一部の第三相を除去する。この洗浄済ドデカンは、数バッチ分繰返し使用後、廃棄物処理場へ送り焼却処分する。
- ② 第3抽出槽からの希リン酸相をそのまま蒸発濃縮するのは蒸発缶の材質の耐蝕性およびTBPのニトロ化による曝発防止対策上望ましくないので、まず、ドデカンの張った廃液洗浄槽でTBPを抽出除去する。静置後の水相は廃液供給槽へ送り 30% NaOHにて $\text{pH} \sim 4.5$ に中和したのち蒸発缶に送る。
- ③ 蒸発缶濃縮液は、炭酸ソーダ廃液とともに廃液中間貯槽に保管後、アスファルト固化処理施設へ送る。蒸発缶凝縮液は凝縮液受槽をへて廃棄物処理場の低放射性廃液貯槽へ送る、加熱蒸気の凝縮水は、蒸気凝縮水受槽でモニタリングし、放射能汚染がなければ既設の還水タンクへもどすが、汚染があった場合には凝縮液受槽へ送る。

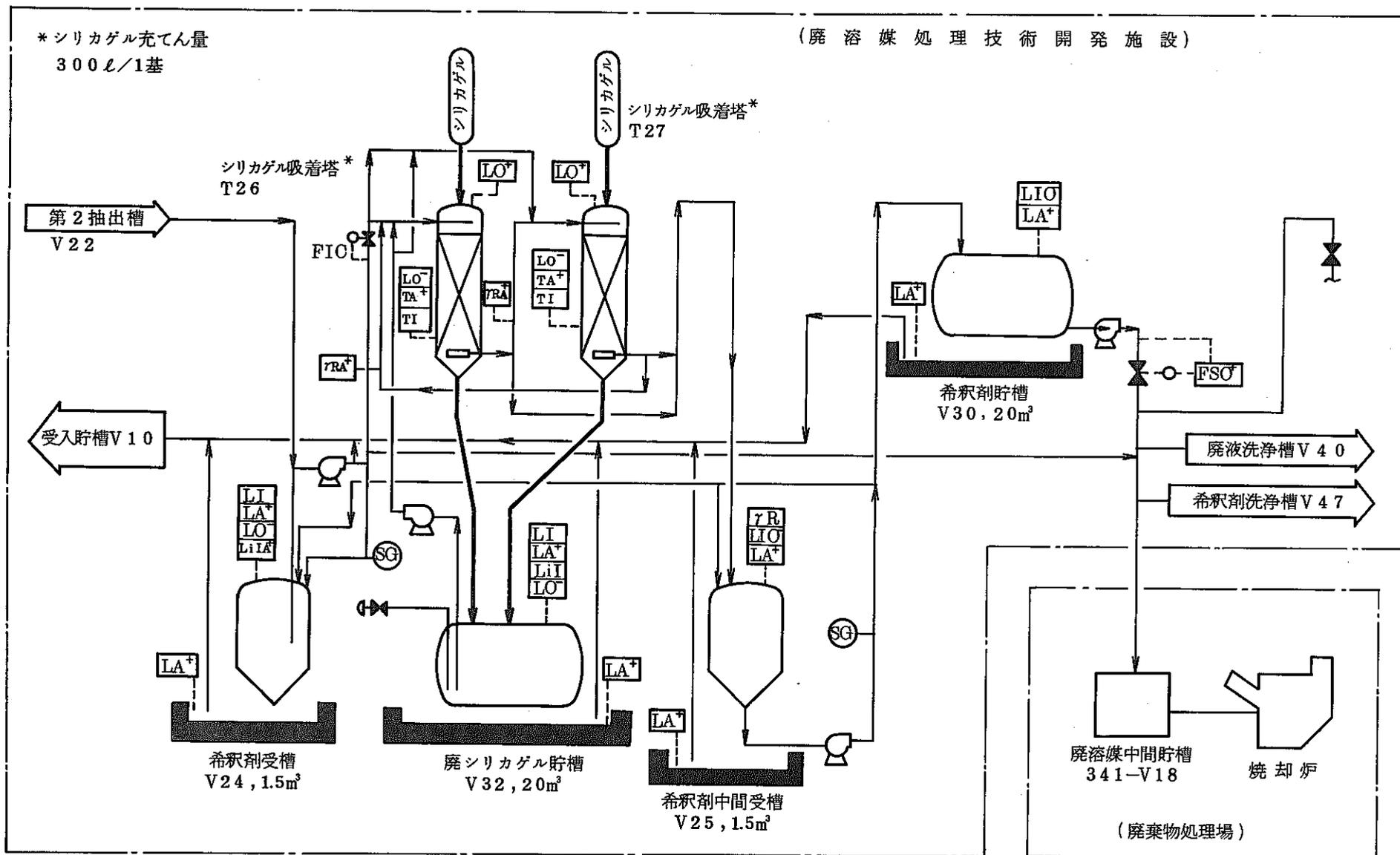


図 4.13 処理系工程概略図 (精製)

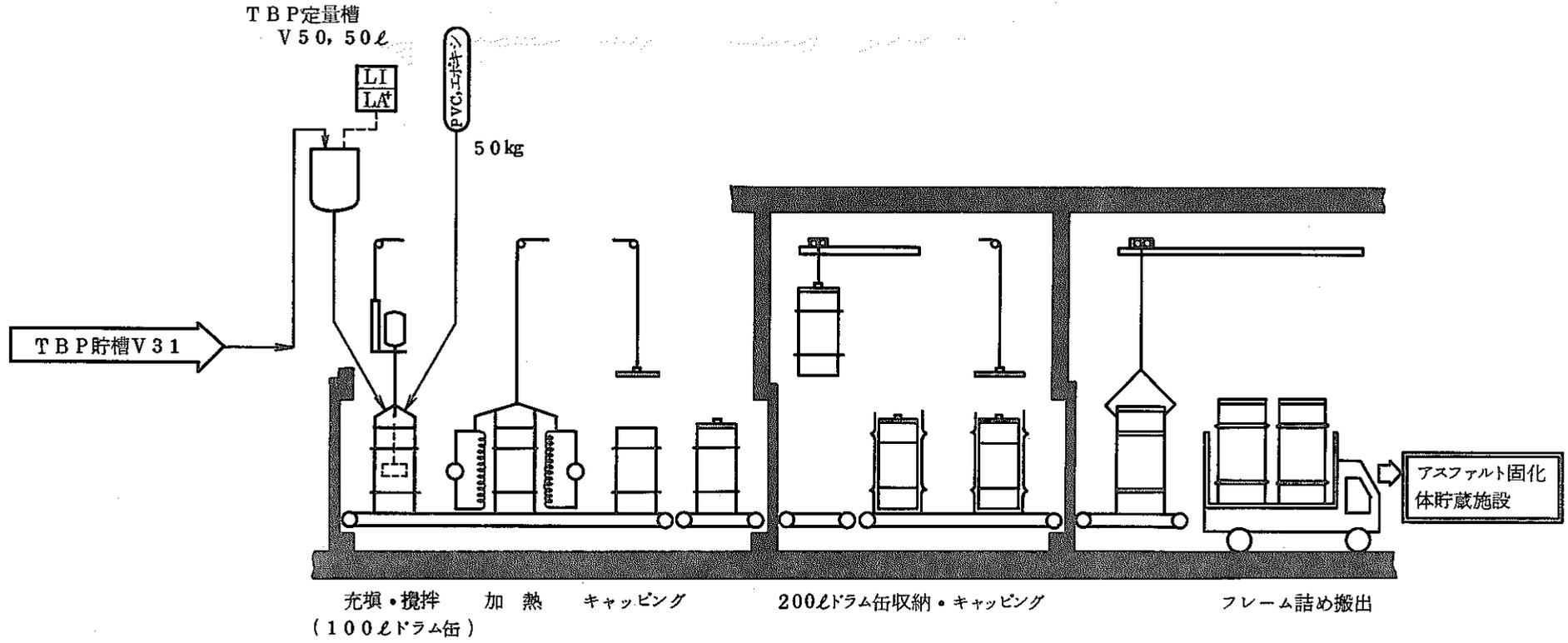


図4.14 固化系工程概略図

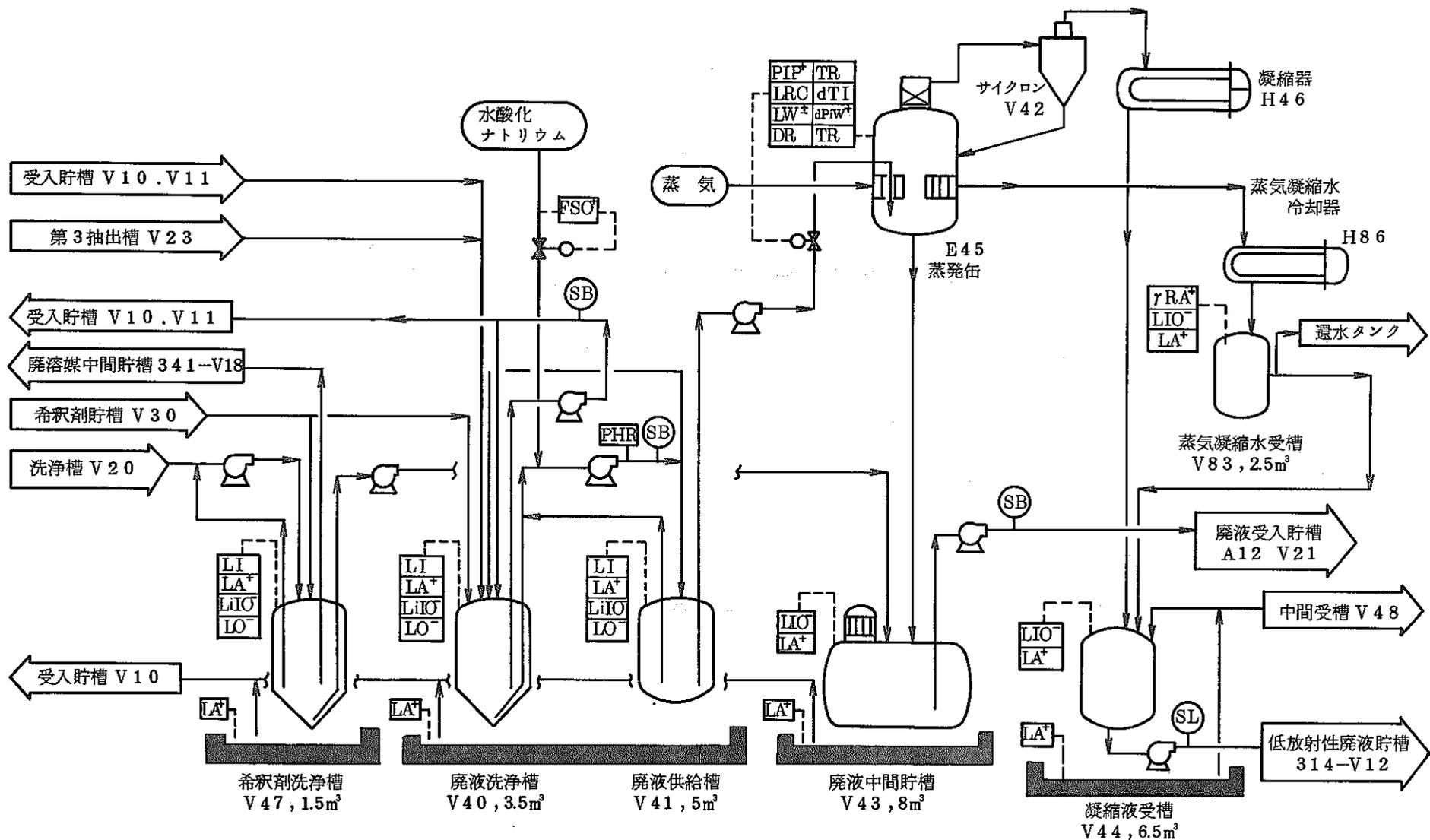


図 4.15 廃液処理系工程概略図

(7) 排気処理系

固化処理系の混合攪拌装置の排気はバグフィルタで汚過し、又加熱装置の排気はベントコンデンサーで冷却後他の槽類からの排気とともにセル換気系へ送る。

(8) 試薬調整系に関しては、30%NaOHは薬品貯蔵所から廃棄物処理場を経由して受入れる。Na₂CO₃溶液は紙袋入りで粉体を受入れ開袋機でコンテナにつめ、さらにスネークフィーダーで貯槽に投入し調整する。85%リン酸はタンクローリーから圧送し受入れる。除染用試薬はNaOHやリン酸を希釈して調整する。PVC粉末は紙袋で受入、コンテナにつめ換え後ロータリーフィーダーにて固化処理系のドラム缶へ供給する。シリカゲルは紙袋で受入、コンテナにつめ換え後吸着塔へ供給する。

(9) 分析系では、比較的放射能の高い分析試料は中地階のサンプリングベンチで試料ビンに採取し、気送管により既設分析所に送る。低放射性の分析試料はグローブボックス内で採取し、既設分析所に手運搬し分析する。

4.3 安全設計上の留意点

本施設の設計に当ってはPNC再処理工場の建設運転経験を反映させて取りまとめたが、特に留意した火災・爆発防止対策、誤操作防止対策および保守性向上策にしぼって本報では紹介する。

4.3.1 火災・爆発防止対策

本施設で取扱うTBP、ドデカン（したがってこれらの混合物である廃溶媒も）は消防法で規制する危険物でもあり、火災・爆発防止対策を最も重要な安全対策として位置づけ、次の様な考え方で設計した。

- ① 機器類には接地を行う。
- ② 電気・計装設備の必要個所には防爆構造のものを使用する。
- ③ セル換気系の給排気口には流量調整ダンパ、逆上弁および防止スクリーンを設置して、万一の火災に際して火災の伝播を防止する。
- ④ B2階セルおよび吸着塔室には水噴霧消火設備を設け、セル換気系排気ダクトに設けた温度検知器（FDT）により排気温度の異常を検知し遠隔手動で消火できる様にする。
- ⑤ 廃溶媒、ドデカンおよびTBPを取扱う槽類には炭酸ガス供給ラインを設け、それぞれの槽類ベントラインに設けた温度記録上限緊急操作（TRP⁺）により排気温度の異常をすばやく検出し、設定値（50℃）を起こると自動的に炭酸ガスを供給し消火する。
- ⑥ 必要な個所の天井には火災感知器を設ける。
- ⑦ 1階の固化処理室は、TBPをオーブンドラム缶に投入し攪拌したり、又PVCでゲル化後加熱固化処理をする所であり本施設でも最も火災発生の懸念のある所だけに、次の様に十分な防止策をほどこしている。（図4-16参照）

——加熱装置には温度記録調節（TRC）、温度上限警報（TA⁺）、温度上限緊急操作（TP⁺（1）、TP⁺（2））を設けドラム缶缶壁温度を管理する。缶壁温度が設定値に達すると、TP⁺（1）により自動的に加熱電源の供給を停止し、TP⁺（2）により加熱電源の停止と同時に自動的にフードカバー内に炭酸ガスを供給する。

——ドラム缶上部のフードカバーベントラインにはTRP⁺を設け、排気温度の異常を検知したら、自動的にフードカバーに炭酸ガスを供給する。

——固化処理室排気ダクトにはFDTを設け、排気温度の異常を検出し、遠隔手動で固化処理室内に炭酸ガスを供給できる。

——加熱装置には電気設備としての安全対策を行なり、すなわち漏電リレー、ノンヒューズブレーカー、サイリスタ保護用ヒューズ、コイル温度上限保護用サーモスタット、過電流緊急停止装置を設け、自動的に加熱電源の供給を停止する。

説 明

- ① モーター, 加熱装置, 充填・攪拌装置, コンベア: 接 地
- ② 充填・攪拌装置モーター (攪拌, 昇降用) : 安全増防爆
- ③ 加熱装置 : 特殊防爆
- ④ 同上用モーター (昇降用) : 安全増防爆
- ⑤ 照明器具 : 安全増防爆
- ⑥ 火災感知器 : 耐圧防爆
- ⑦ リミットスイッチ : 耐圧防爆
- ⑧ 光電スイッチ : 本質安全防爆
- ⑨ 検出端 (温度) : 本質安全防爆

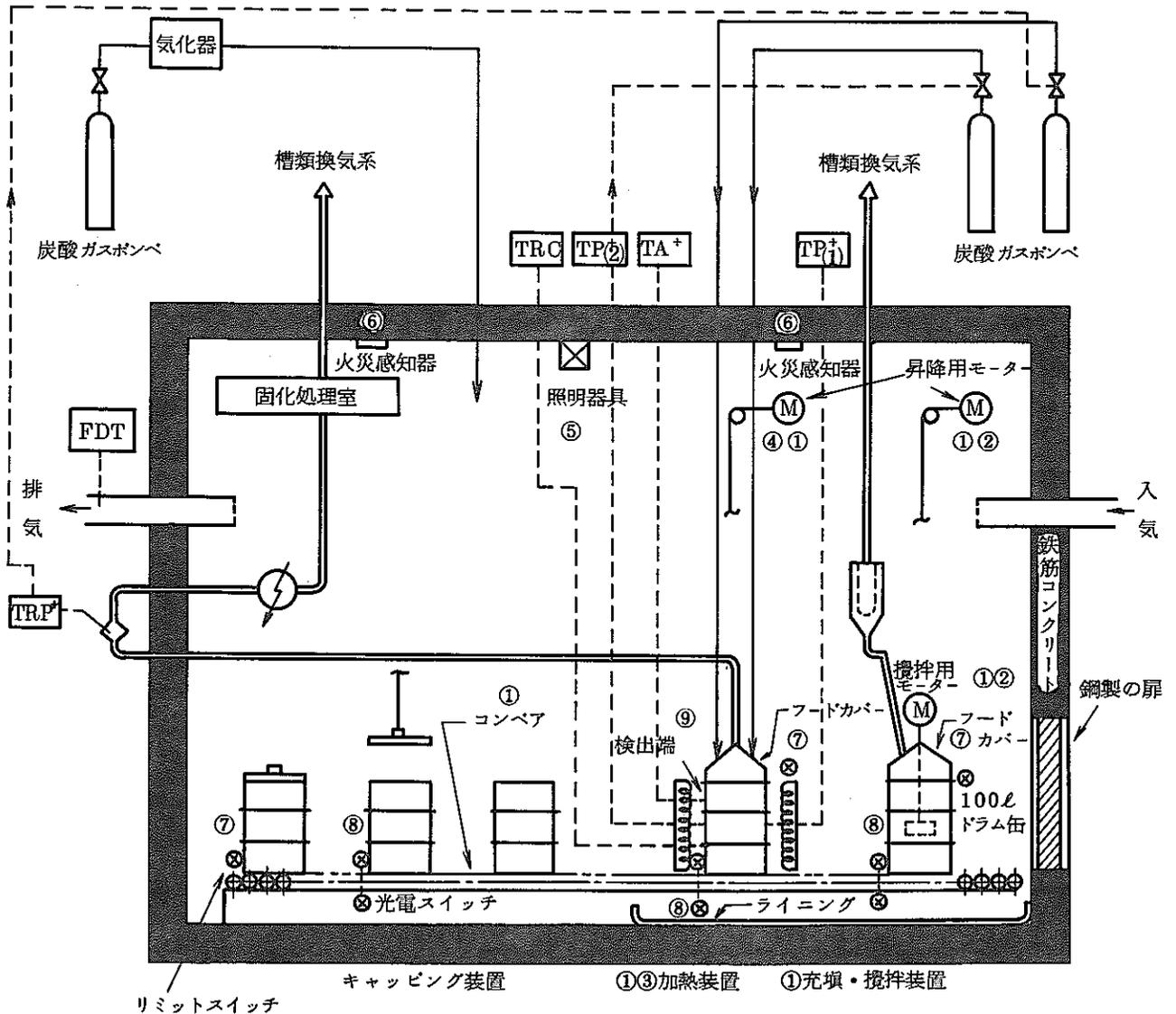


図 4.16 固化処理室における火災防止対策

4.3.2 誤操作防止対策

(1) 本施設ではTBPの固化処理系以外の運転に際し、各工程の運転データによっては再び前工程へのリサイクルできる様にプロセス設計してあり、したがって配管、バルブ類の数も多く廃棄物処理場並と言われている。

そこで、本施設では確実な配管選択操作ができるように、必要に応じて定常操作で使用する配管にはリミットスイッチ付バルブを、又、そうでない配管には必要に応じて錠付バルブを設置し、リミットスイッチ付バルブは制御室のグラフィックパネルに開閉表示する。

(2) 下相拔出し時の上相の巻き込みおよび上相拔出し時の下相巻き込みにより槽によっては処理性能が著しく下ったり、安全確保の上で問題となるものがある。すなわち、

- ① 洗浄槽で上相拔出し時に下相（廃炭酸ソーダ溶液）を巻き込むと、安全上問題はないが炭酸ソーダによる除染性能が低下してしまう。
- ② 第1抽出槽で、下相抽出し時に上相（ドデカン）を巻き込むと、ドデカン相は第3抽出槽で上相（TBP）に加わり、さらにTBP貯槽をへて、PVC固化にまわされる。PVC固化時に、TBP中のドデカン濃度が上昇し、したがって、TBP-ドデカン-PVC系の引火点が若干下ってくるので加熱時の火災防止対策上懸念されるとともに固化体硬度が若干低下してくるものと考えられる。
- ③ 第2抽出槽で上相拔出し時に下相（付加体・リン酸）を巻き込むと、希釈剤受槽に送られ、回収ドデカンを精製する場合はシリカゲル吸着塔に送られるので、付加体・リン酸・水等の不純物によりシリカゲル吸着精製能力が低下してしまう。
- ④ 第3抽出槽で下相拔出し時に上相（TBP）を巻き込むと、廃液洗浄槽で上相（ドデカン）に加わり、TBP濃度が上昇するので、廃液洗浄槽でバッチ使用するドデカン（上相）の交換頻度が増加することになる。なお、このドデカンは交換時に拔出し受入貯槽へもどされる。
- ⑤ 廃液洗浄槽の下相拔出し時に上相（ドデカン）を巻き込むとドデカンは廃液供給槽をへて蒸発缶へ送られる。第3抽出槽の下相抜き時に上相を巻き込むと、この廃液洗浄槽のTBP濃度が高くなっていく。蒸発濃縮時にTBPのニトロ化による爆発事故を防止するためには、この廃液洗浄槽から廃液供給槽以降へ一切ドデカン（TBP含む）を送ってはならない。
- ⑥ 希釈剤洗浄槽の下相拔出し時に上相（ドデカン）を巻き込むとドデカンは廃液中間貯槽へ送られ、さらにアスファルト固化処理施設に送られる。廃液媒中にも第三相があれば、結局、洗浄槽、希釈剤洗浄槽をへて、混入ドデカンに含まれた第三相がアスファルト固化処理施設のエクストルーダ（約200℃）にかけられることになる。アスファルト固化処理施設

設側でのトラブルを防止するためには、この希釈剤洗浄槽から廃液中間槽以降にドデカンを送ってはならない。

そこで、上記の各槽（計5基）には次の様な巻込防止対策を講じた。

- ① 各槽にエアページ式界面計による界面指示記録下限操作（LiIRO⁻）を2セット設け、いずれか一方の操作信号によって下相抜き出しのポンプは自動停止するようにする。
 - ② 各槽の下相抜き出し終了時の界面位置（LiIRO⁻の設定）は、下相抜き出しノズル端より十分離れた位置とする。
 - ③ ポンプ出口側の攪拌用バルブが閉じていなければ下相抜き出しできない様なインターロックを設け、下相抜き出し時の流量制限を確実に行なう。
 - ④ 各槽の上相抜き出しノズル端をLiIRO⁻のバージ管よりも上に設置することにより、バージ管を常時液浸させて、界面計の精度を向上させる。
 - ⑤ 廃液洗浄槽の廃液供給槽、希釈剤洗浄槽では上述した様に下相抜き出し時に上相を巻込むと安全対策上望ましくないので、下相抜き出し時にも下相の半分を常時残留させる。
- (3) その他ドラム缶搬出入とシャッタの開閉等必要な個所にインターロックを設けている。
- (4) なお、施設間の廃溶媒や廃液の受渡しに伴う誤操作を防止するために次の様な処置を講じた。
- ① 廃棄物処理場、スラッジ貯蔵場および廃溶媒貯蔵場から、本施設への廃溶媒送液操作において、送液過剰とならないように、受入貯槽の液面を廃棄物処理場の廃溶媒貯蔵場主制御盤に指示する。
 - ② 本施設から廃棄物処理場への洗浄希釈剤および精製希釈剤の送液操作において、送液過剰とならないように、廃棄物処理場の焼却炉受槽（341V18）の液面を本施設の主制御盤に指示する。又、送液ポンプ（p472, 301）の運転の有無を廃棄物処理場の焼却炉現場制御盤に表示する。
 - ③ アスファルト固化処理施設での本施設からの蒸発缶濃縮液の受入操作において、送液の状態を確認するために、送液ポンプ（p431）の運転の有無アスファルト固化処理施設の主制御盤に表示する。

4.3.3 保守性向上策

本施設では主要な機器類のうち特に放射能レベルの高いものを取扱う機器類は、セル内に設置し、これに付属するユーティリティなどの供給設備はセル外の保守区域、操作区域などに設けた。

セル内に設置する機器類は、原則として故障の生じにくい構造とするとともに、これらの材質は耐食性の優れたステンレス鋼とし、又、必要な除染が行なえるような構造とした。この他定期的に部品・部材の交換を必要とする機器については容易に保守ができるような構造設計とした。

- (1) 特に塔槽類や配管でリン酸およびリン酸塩と接液するものは耐蝕性の優れたSUS316Lで製作し、リン酸およびリン酸塩と接液しなくとも放射性廃液と接するものは、SUS304Lで製作している。
- (2) 万一、セル内塔槽類からもれた廃溶媒や廃液はライニングに受け、さらにサンプリングにより放射性濃度等を確認され、受入貯槽へリサイクルされる。
- (3) 万一、蒸発缶故障時にはつり出し交換できるように、蒸発缶収納セル天井はプラグ構造とした。
- (4) 又、蒸発缶のチューブの看板の溶接部の健全性について将来確認したい場合に容易に実施できる様に配慮しTVやファイバースコープを挿入しうる様な予備ノズルを蒸発缶に追加設置した。

これは再処理工場の酸回収蒸発缶や溶解槽の故障発生を教訓としたもので、本施設の蒸発缶は既に工場製作中であったが、これらの故障発生を契機にもう一度SUS316L材のリン酸およびリン酸ソーダに対する耐蝕性を見直しを行なった。その結果、

- ① ST施設内では材料の使用環境からみて母材の腐食は考えられない。
- ② なお、繰返し熱サイクルのかかる蒸発缶では、リン酸ソーダにより溶接部での粒界腐食の生じうる懸念もないわけでないが、実際の使用環境～使用温度・塩濃度・運転管理法さらに溶接施工法からみて総合的に評価すると、その心配はない。
- ③ しかし本施設はわが国では再処理分野で始めて85%と高濃度のリン酸を大量に使用する施設であり、蒸発缶加熱用に約600本のチューブが缶内にあり、一般工業分野で実績のあるSUS316L材を使用しているとは言え、これらのチューブと管板との溶接部の健全性の

経年変化が運転側としては、気になる所である。したがって必要時に容易にTV等を挿入し内部観察ができる様な予備的措置をしておくことが望ましい。

ということで、予備ノズルを追加設置することにしたものである。

【参考；リン酸ソーダに対するSUS316Lの耐食性実験結果¹⁰】

NaH₂PO₄ 650g/lの溶液にSUS316Lの試験片を100℃で96hr浸漬した。試験片の一部は、650℃で2hr加熱し、空冷したものも使用。全試験片（気相部、界面部、液面部）の耐食性は 0.001~0.007mm/yと非常に優れていた。

なお、蒸発缶のチューブから蒸発系統へのリークがあった場合には蒸発凝縮水受槽に設けたγ線測定器（γRA⁺）により検出できる。

- (5) セル内塔槽類およびライニング溶接部の健全性の確認する際に人が容易に立入れる様に、地下2階のレッドセル（7セル）に引戸式コンクリート遮蔽ドアを追加設置するとともに、セル壁にはセル外からセル内線量率を測定したい場合に測定器検出部をインサートできる様なインターベンションチューブ（約100mmφ）を取付けた。

これは、従来再処理工場ではレッドセル内には人間が直接立入らず、もしその心要があるものはバルジ等に収納するなどメンテナンスフリーの思想で設けられてきたのに対し、原子力発電所の場合は高線量率でもメンテナンスができる様に設計されており、酸回収蒸発缶の故障等が再処理工場で発生したのを契機に、国の規制当局から再処理工場もライニング等の溶接部健全性を確認できる様にすべきであると強い行政指導を受けたことによる。さらに、本施設の場合には高放射性のものを取扱っていないのでセル内塔槽類の点検補修が避けられない場合には、塔槽類収納物を他の塔槽類に移送するなどのセル内線量率の低減下処置ができ、その処置後人がセル内立入点検等の頻度が少くとも、あらかじめセル壁に遮蔽ドアを追加設置しておけば、必要時にセル壁を解体することなく容易にセル内に立入り点検ができる。そこで、建家躯体工事中であったが遮蔽ドアを追加設置することとし、この処置により本施設の保守性がさらに向上した。

- (6) この他、蒸発缶濃縮液の廃液中間槽への送液配管に取付けたバルブは、セル外でメンテナンスができる様にバルジに収納した。
- (7) 本施設の廃溶媒や廃液移送用ポンプは、ポンプ室（Red区域）内に収納されているが補修必要時に容易に真上からつり出せる様にポンプ室の天井はプラグ構造とし、さらにポンプ室の上階にはホイストとレールを設けた。

- (8) ドデカン吸着精製用に使用された廃シリカゲルは、廃シリカゲル貯槽（20m³）に貯蔵されるが、将来廃シリカゲルの固化処理計画が具体化した際に容易に廃シリカゲルを貯槽から拔出せる様に設計を見直した。すなわち、現行設計ではまず、貯槽下部に設けた散水管よりドデカンをシャワー状に噴出させることにより沈積したシリカゲルを攪拌分散させ最適スラリー濃度に調整する。その後、エダクターにより拔出すが、エダクターが閉塞することも考えられるので、閉塞解除用としてエダクター吐出側配管にドデカンによる逆洗浄用配管を追加設置するとともに、必要ならば将来真空ポンプの配管接続による吸引拔出ができるように廃シリカゲル貯槽内底部まで届く配管ノズルを追加設置した。
- (9) さらに将来、他施設の廃溶媒（FBR再処理試験済の廃溶媒や原研再処理特研の廃溶媒）の受入れができるように配慮し、本施設1階に廃溶媒輸送容器（サンドリオン）搬入ルートとサンドリオンからの拔出作業スペースを確保するとともに、予備的な措置として配管分岐室（レッド区域）から保守区域（アンバー区域）まで廃溶媒貯槽への受入用分岐配管を敷設するとともに、縁切バルブを追加設置した。
- (10) 将来、3階屋外（2階屋上）にオペレーターの休憩室が設置できるように配慮し、3階屋外に設置する予定の純水貯槽および純水ポンプを3階屋上に移設した。

4.4 建設工事

- (1) 本施設の装置工事の施工業者は、三菱重工業、神戸製鋼所、新潟鉄工、住友重機および東レ・エンジニアリング 5社の指名競争入札の結果、三菱重工業（MHI）が受注した。再処理施設の建設工事のうち、本格的な処理プロセスを有する施設で設計者と施工者が異なる施設は本技術開発施設が最初である。設計者と施工者が異なったため、詳細設計の性能保証は、ソフト面だけに限定されることになり、本施設の施工業者が設計図面通り工事しかつPNCが運転しても設計通りの性能が出ない場合、設計者は図面の訂正だけ義務しか有せず、PNCは自己資金負担により設備の改造を行わなければならないという契約関係となった。本施設の建設工事および運転に際し、設計者のサポートがない点はやり難い面もあったし、又今後もやり難い面があるものと考えられるが、PNCが主体的に取組み力量をつけ、問題点は設計者に頼らず解決していくことに決心した。しかし、一方ではこの様な競争入札方式は、装置建設工事費の節減に大きな効果をもたらした。（設計者の見積額の約半額で落札したという） 装置工事は契約27ヶ月（途中、蒸発缶内容接部健全性確認用予備ノズルの追加取付等により3ヶ月納期延長した）の工期で、工事費は約30億弱である。

- (2) 本施設装置工事の全体工事工程表を表4.1に、実施体制を図4.17に示す。

MHIは原子炉を手がけている神戸造船所が主体となり、全体の取りまとめを行ない、機器設備・PVC固化設備・配管工事・計装設備工事およびプロセス電気工事はMHIの子会社である新菱冷熱工業㈱が製作・施工した。本施設の工事に当たり、再処理関係の工事が始めてという業者が大部分だったため、業者も勉強しながら取組んだ。現地工事が開始される前までは、MHI側でも内作よりも外注での工事実施という体制をとっていたため、原子炉の設計や工事との関係のうすい機械部が中心で、品質管理だけは原子炉関係品質部門での経験者を集めるとともにその支援を受けて工事が実施された。工事の途上、原子炉の設計・建設の経験がうまく反映できる様に見直し、機械部中心から原子力設計部中心に組織が強化された。

- (3) 本施設装置工事におけるMHI側の品質保証体制を図4.18に、品質保証体系図を図4.19に示す。

本施設の品質保証は、まず工事開始に先立ち、MHIに品質保証計画書（図4.19体系図参照）を承認申請させるとともに、製作工場における品質管理の実態調査とその技術レベルの評価を行ない、又、不具合事項が発生した場合には品質保証計画書に基づき再発防止対策を含

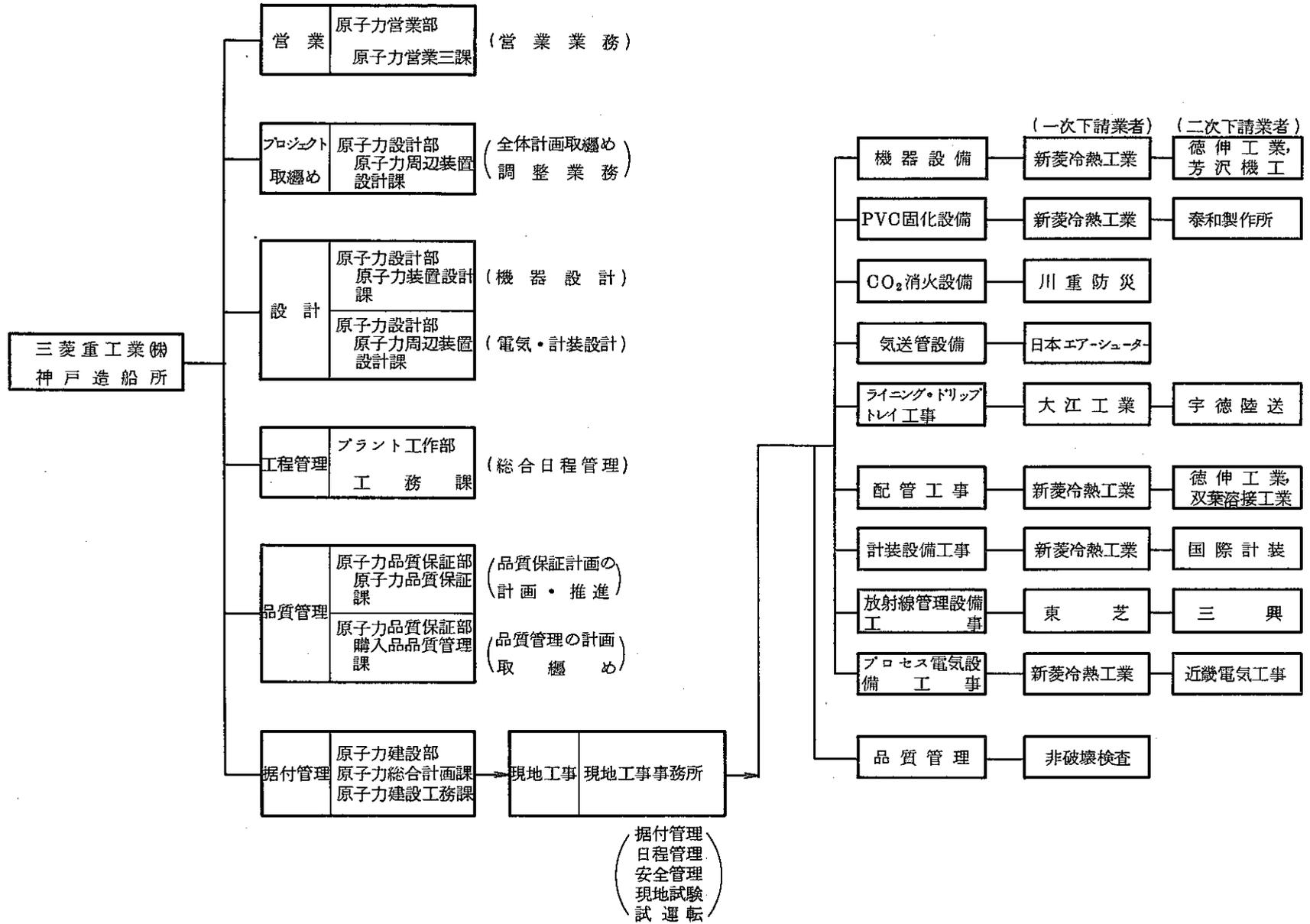


図 4.17 装置建設工事実施体制 (現地工事開始後の体制)

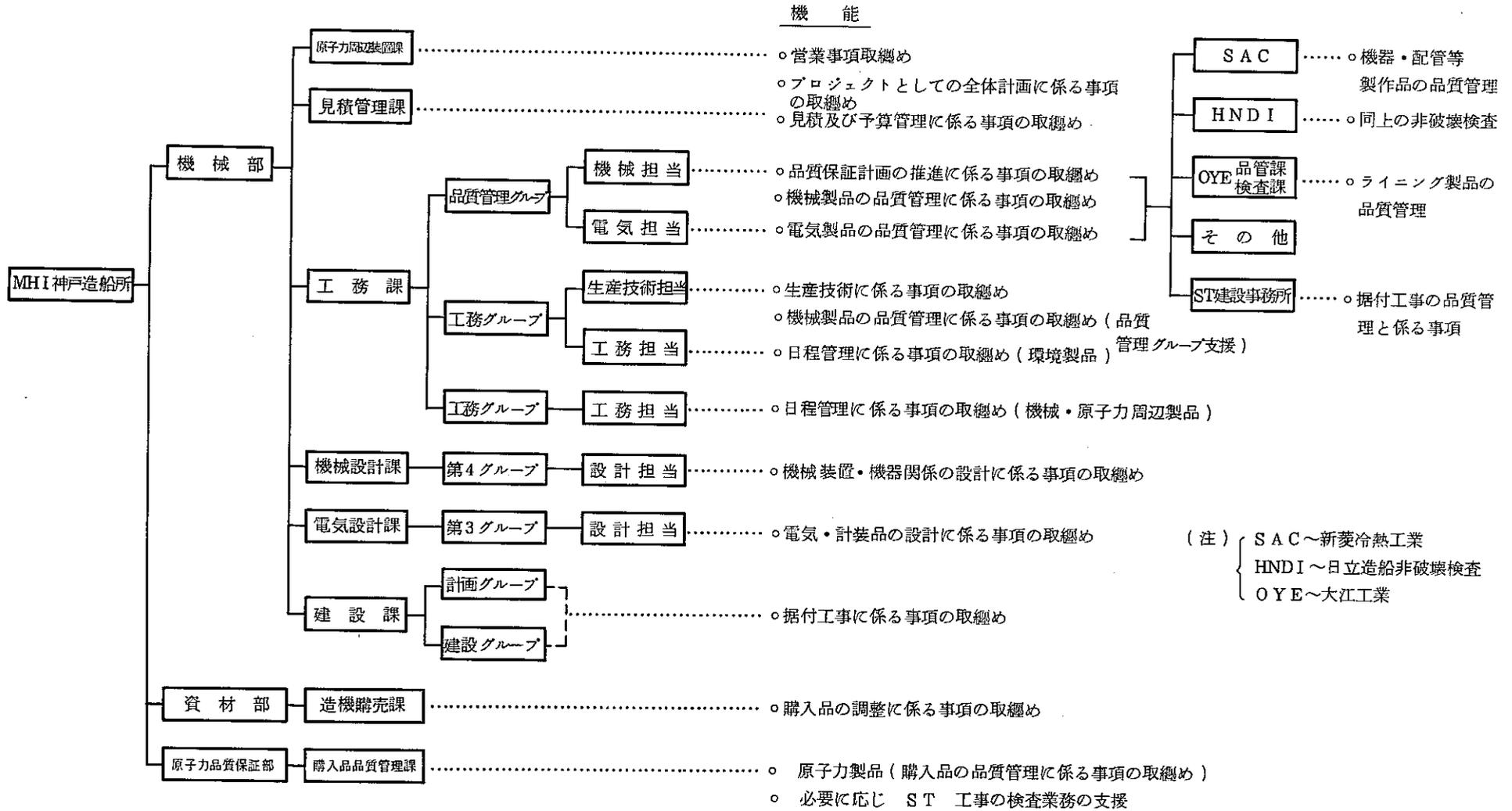
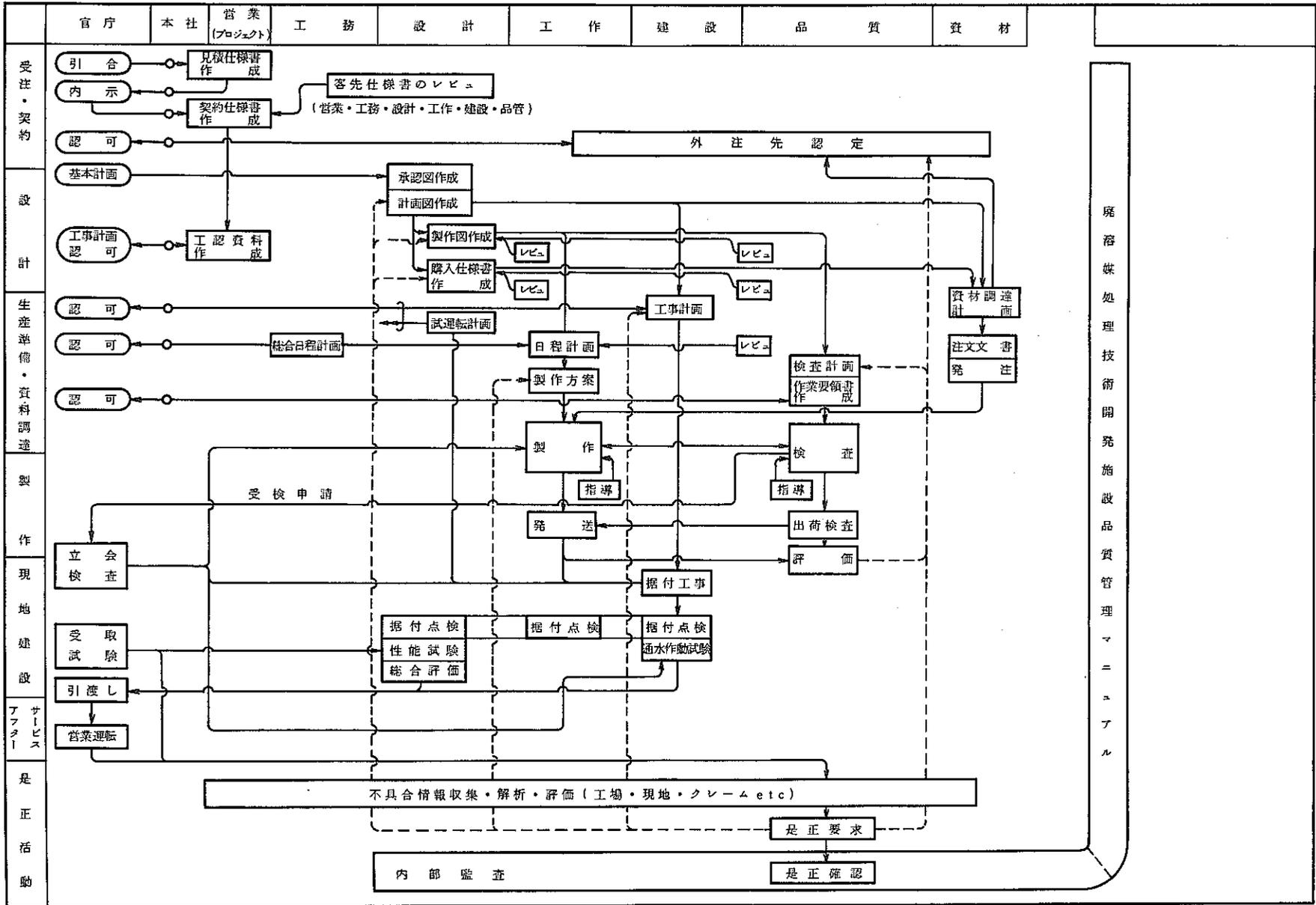


図 4.18 装置工事の品質保証体制 (工場における機器類製作時の体制)



廃浴媒処理技術開発施設品質管理マニュアル

図4.19 品質保証体系図

めた是正計画書を提出させる等の指導により対処してきた。

溶接工事は、PNCの溶接士技能試験に合格した溶接士が指定され、かつ試験片溶接で確認された溶接施工法に従って施工した。工事検査は、事前に検査要領書を承認申請させ、承認後これに従って実施した。

なお、溶接基準等に関しては建設工事の途上で見直し、SGNスペックからはずしてJISスペックでも十分かどうか検討したが、当時すでに安全審査は終了しており、又、SGNスペックベースで工事契約も成立しており、さらに本施設は再処理では始めて大量にリン酸を使用したプロセスを有する施設でもあり、耐蝕性確保の点からもSGNスペックの方がはるかに厳しく、運転側としても安心できるということで、現設計通りSGNスペックにて施工した。

(4) 本施設装置工事の規模の概要は次の様になる。なお、各工事毎の詳細は表4.2参照のこと。

- 塔槽類、溶接機器 ————— 約45基
 - 製作クラス1級 : 1基(蒸発缶)
 - 2級 : 27基
 - 3級以下 : 17基
- 配管工事 ————— 約6,700m
 - 製作クラス1級 : 約4m (蒸発缶関係のみ)
 - 2級 : 約3,300m(SUS316L, 304L)
 - 3級 : 約2,300m(SUS316L, 304L)
 - 4級以下 : 約1,100m
- ライニング工事
 - B型ライニング : 7セル(B2Fセル)
 - C型ライニング : 17基(ドリフトレイ類)
- その他の機器
 - ポンプ類 : 31台(キャンド型27台)
 - スチームジェット : 11台
- PVC固化設備工事
 - コンベア類 : 11基
 - その他 : インドラムミキサ1基, 加熱器(電磁誘導式)1基, キャッピングマシン2台等

表 4.2 装置工事の規模の概要

〔1〕 機器類 (溶接機器)

記号	名称	材質	仕様	基数
•V10, 11	廃溶媒・廃希釈剤受入貯槽	SUS304L	10 m ³	2基
•V20	洗浄槽	SUS304L	1.4 m ³	1基
•V21	第1抽出槽	SUS316L	1.5 m ³	1基
•V22	第2抽出槽	SUS316L	1.1 m ³	1基
•V23	第3抽出槽	SUS316L	2.7 m ³	1基
•V24	希釈剤受槽	SUS316L	1.5 m ³	1基
•V25	希釈剤中間受槽	SUS304L	1.5 m ³	1基
•T26, 27	シリカゲル吸着塔	SUS316L	550φ×1700H, 0.42m ³	2基
•V30	希釈剤貯槽	SUS304L	20 m ³	1基
•V31	TBP貯槽	SUS316L	20 m ³	1基
•V32	廃シリカゲル貯槽	SUS316L	20 m ³	1基
•V40	廃液洗浄槽	SUS316L	3.7 m ³	1基
•V41	廃液供給槽	SUS316L	4.2 m ³	1基
•V42	サイクロン	SUS316L	—	1基
•V43	廃液中間貯槽	SUS316L	8 m ³	1基
•V44	凝縮液受槽	SUS304L	5.5 m ³	1基
•E45	蒸発缶	SUS316L	伝熱面積 2.628m ²	1基
•H46	凝縮器	SUS316L	伝熱面積 16m ²	1基
•V47	希釈剤洗浄槽	SUS304L	1.4 m ³	1基
•V48	中間受槽	SUS304L	2 m ³	1基
•V50	TBP定量槽	SUS316L	50 ℓ	1基
•H51	加熱缶ベントコンデンサ	SUS316L	伝熱面積 1 m ²	1基
•V61	リン酸中間槽	SUS316L	3 m ³	1基
•V62	炭酸ナトリウム調整槽	SUS304	2 m ³	1基
•V63	水酸化ナトリウム中間槽	SUS304	2 m ³	1基
•V64	水酸化ナトリウム調整槽	SUS304	1 m ³	1基
•V65	リン酸調整槽	SUS316L	1 m ³	1基
•V80	純水貯槽	SUS304	10 m ³	1基
•V81	純水中間槽	SUS304	3.5 m ³	1基
•V83	蒸気凝縮水受槽	SUS304	2.5 m ³	1基
•V84, 88	中間冷却水槽	SUS304	100 ℓ	2基
•H86	蒸気凝縮水冷却器	SUS304	伝熱面積 14m ²	1基
•V91	地下浸透水中間槽	SUS304	3.5 m ³	1基
•V261, 271	γ線検出器用ポット	SUS316L	—	2基
•V231, 411	PHポット	SUS316L	—	2基
•V661~664	PVCコンテナ	SUS304	250 ℓ	4基
•V671, 672	シリカゲルコンテナ	SUS304	150 ℓ	2基

〔2〕 その他機器類

記号	名称	材質, 仕様	基数
•P101~P911	ポンプ	SCS13, SCS14, SCS16 内訳 キャンド 27台 遠心渦巻 3台 堅形 1台 流量×揚程 1m ³ /H×15m~60m ³ /H×20m	31台
•J101~J441	スチームジェット	SUS316L, 4m ³ /H, 製作クラス2級	11台
•F371, 372	槽類換気フィルタユニット	SCS304L	2式
•K381, 382	槽類換気ブロワ(ルーツ)	SCS13, 120Nm ³ /H×500mmAq	2基
• H85	中間熱交換器	SUS304, 伝熱面積30m ²	1基
• H87	冷却塔(K873冷却塔ファン, P872冷却塔散水ポンプ含)		1基
•K821, 822	空気圧縮機	FC20, 複動型125m ³ /H×7kg/cm ² G	2基
•H823, 824	圧空冷却器	多管式, 伝熱面積0.77m ²	2基
• V82	圧空貯槽	SS41 積型4m ³	1基
• D825	除湿器	ヒートレス型125m ³ /H, STP438, SB42	1式
• F826	IAフィルタ	75m ³ /H	1基
• F827	BAフィルタ	活性炭カートリッジ式50m ³ /H	1基
• V828	ミストセパレータ	円筒堅型13.8ℓ	1基
• M92	サンプリングベンチ	接液部SUS316L	1基
• M93	グローブボックス	接液部SUS316L	1基
• M621	炭酸ナトリウム調整槽攪拌機	接液部SUS304	1基
• M666	PVCコンテナ用ホイスト	SS41 吊上荷重500kg	1基
• IS064	鉄遮蔽体	SS41 PHポットV231, 441用 (合設置台)	1基
• IS121	鉄遮蔽体	SS41 自動弁W125用	1基
• LS261	鉛遮蔽体	硬鉛 γ線検出器用ポットV261, 271用	1基

[3] ライニング/ドリフトレイ類

記号	名称	材質	仕様	基数
ライニング •U001~005, 007	セル用ライニング	SUS316L	Bタイプ	6セル
•U006	廃溶媒受入セルライニング	SUS304L	Bタイプ	1セル
ドリフトレイ •U046, 121	自動弁用ドリフトレイ	SUS304	Cタイプ	2基
U064 a, b	PHポット用ドリフトレイ	SUS304	Cタイプ	2基
***室用, トレンチ用, 通路用ドリフトレイ		SUS304L	Cタイプ(ポンプ室のみBタイプ)	16基
****槽用ドリフトレイ	SUS304 (TBP定量槽のみSUS304L)		Bタイプ	5基
•U012b, U010a	希釈剤ポンプ用, 凝縮器用 ドリフトレイ	SUS304	Bタイプ	2基
•U110	希釈剤取出口用ドリフトレイ	SUS304	Cタイプ	1基
•U010c-e	サービスステーション用ドリフトレイ	SUS304	Cタイプ	3基
•U010f-h	流量計用ドリフトレイ	SUS304	Cタイプ	3基

計41式

*** 内訳

- U051~055 ポンプ室用ドリフトレイ SUS304L Bタイプ 5基
- U057 制御弁室用ドリフトレイ SUS304L Cタイプ 1基
- U902 連絡配管通路用ドリフトレイ SUS304L Cタイプ 1基
- U903 連絡配管トレンチ用ドリフトレイ SUS304L Cタイプ 1基
- U021 シリカゲル吸着塔室用ドリフトレイ SUS304L Cタイプ 1基
- U020 a~g 配管分岐室用ドリフトレイ SUS304L Cタイプ 7基

**** 内訳

- U120b TBP定量槽用
- U013 希釈剤貯槽用
- U012a 希釈剤中間受槽用
- U008 凝縮液受槽用
- U010g 地下浸透水中間貯槽用

〔4〕PVC固化設備工事

記号	名称	材質, 仕様	基数
•M521	空ドラム用ホイスト	SS41 吊上荷重500kg	1基
•M522, 523	空ドラム搬送コンベヤ	SS41 (ローラSUS304)	2基
•M524	充填コンベヤ	SS41 (ローラSUS304)	1基
•M525, 526	加熱コンベヤ	SS41 (ローラSUS304)	2基
•M527~529	充填ドラムストレージコンベヤ	SS41 (ローラSUS304)	3基
•M530, 531, 533~535	充填ドラム搬送コンベヤ	SS41 (ローラSUS304)	5基
•M532	ドラム移載装置	SS41	1基
•M536	クレーン	SS41 吊上荷重2000kg	1基
•M541, 542	ドラムドーリー	SS41 (ローラSUS304)	2基
•M543	ターンテーブル	SS41	1基
•M551	インドラムミキサ	SS41 (接液部SUS304相当)	1基
•M552	加熱器	—	1基
•M561, 562	キャッピングマシン	SS41	2基
•M571~575	シャッタ	SS41	5基
•M581~584	遮蔽窓	鉛ガラス(西独SHOTT製)	4基
—	100ℓドラム缶		10缶
—	200ℓドラム缶		4缶
•M94	自動開袋機	接液部 SUS304	1基
•M665	PVCフィーダ	接液部 SCS13, SUS304	1基
—	制御盤		4面
—	動力盤		2面
—	デスク操作盤		2面
—	操作BOX		3面
—	エアパネル		2面

〔5〕配管工事

配管							
製作 クラス	配管 クラス	材質	口径	フランジ レーティング	長さ (重量)	適用流体	
1	P11	SUS316L	40 ^A	JIS10k	4mm (13.5kg)	放射性エリア内 非放射性流体 放射性流体	
	P21		8~150 ^A		約1750mm (約5480kg)		
2	P22	SUS304L	8~125 ^A		約1560mm (約7050kg)		極低放射性廃液
	R22				約180mm (約450kg)	低放射性 非放射性 エリア内	
	L22						
3	L31				SUS316L	15~40 ^A	約2080mm (約6060kg)
	L33	SUS304	8~125 ^A		非放射性廃液, 純水 浄水, 冷却水, CO ₂ 水		
	F3						
4	J4	STPG38	15, 50 ^A		JIS20k	約90m (約490kg)	凝縮液, CO ₂ 13k蒸気
5	D5	SGP	8~80 ^A		JIS10k	約690m (約2480kg)	浄水, 圧縮空気, 蒸気 (13k以外)
	D5G	SGP-W	15~50 ^A	約310m (約970kg)		計装用空気 飲料水	

(注) 取合工事を含む (総計) 約6660mm (約2335 ton)

配管継手類	
エルボ(90°, 45°), ティー, レデュース, キャップ, ボス, フランジ, ガasket, ユニオン, ニップル	
弁類	約760個
ボール弁 PBLF, PBMF, PBNF, VBLF, VBLW VBMW, VBNF	
グローブ弁 VGAF, VGCF, VGFF, VGNF, VGCRZ VGSHZ	
ゲート弁 VTAF, VTCF, VTFF, VTNF, PTCF	
スライドゲート弁 VCNF	
スクリーンストレーナ弁 PFLF	
スウィングチェック弁 PSNF	
弁 VTCRZ	
エクステンションシステム	
エクステンションシステムボックス鉄遮蔽体	
アクセサリ	約380個
サーモウェルポット	
オリフィス, ストレーナ	
フレームアレスタ, スチームトラップ, フロアファンネル	
クイックコネクタ, フレキジョイント, フレキホース, 伸縮	
継手	
スプレイング	
減圧弁, 逆止弁, 安全弁	
ライニングドリフトレイ盲栓	
スリーブ SUS304TP Sch5° 80~200 ^A 全長約120m	
配管遮蔽体 硬鉛 t=10mm, 70mm	
配管支持材 SUS304, SS41	
架台材料	

[6] 炭酸ガス消火設備

—	R120室用気化器ユニット		1式
—	R120室用CO ₂ 容器ユニット	CO ₂ 45kg-12本 [㊤] +12本 [㊦]	1式
—	危険物貯蔵タンク用CO ₂ ユニット	CO ₂ 15kg-8本	2組
	危険物貯蔵タンク用CO ₂ ユニット	CO ₂ 3.3kg-14本 [㊤]	1式
	危険物貯蔵タンク用CO ₂ ユニット	CO ₂ 3.3kg-1本 [㊤] +13本 [㊦]	1式
	危険物貯蔵タンク用CO ₂ ユニット	CO ₂ 3.3kg-2本 [㊦]	1式
—	換気扇		2組
—	制御盤		1面
—	操作盤		3面
—	表示盤		2面
—	端子盤		5面

[7] 気送管設備

M902	気送管設備試料用(φ30mm)	1式
	気送管設備伝票用(φ60mm)	1式
—	制御盤	1面
—	操作盤	1面
—	補助継電器盤	4面

[8] 計装設備工事

パ ネ ル	・受入処理工程制御盤	1面
	・希釈剤精製制御盤	1面
	・廃液処理工程制御盤	1面
	・換気系制御盤	1面
	・ユーティリティ系制御盤	1面
	・共通警報表示盤	1面
	・配電箱	1面
	・薬調系操作盤	1面
	・空調系操作盤	1面
	・トランスミッタラック	
	・ST-T-G21	1台
	・ST-T-G22	1台
	・ST-T-G23	1台
・ST-T-G24	1台	
・電磁弁BOX		
・ST-S-AB11	1台	

パ ネ ル 以 外 の 電 装 品	・圧力計	26台	・可動式液面スイッチ	4台
	・記録計	15台	・抵抗式液面スイッチ	4台
	・指示計	62台	・圧力スイッチ	1台
	・差圧指示計	17台	・差圧スイッチ	74台
	・記録調節計	3台	・調節弁	15台
	・指示調節計	9台	・LS付手動弁	48台
	・交流電流計	25台	・電磁弁	80台
	・電空変換器	1台	・バッチングカウンタ	9台
	・pH伝送器	2台	・オリフィス	1台
	・圧力伝送器	6台	・ロータメータ	6台
	・差圧伝送器	61台	・検出端	9台
	・演算器	4台	・γ線モニタ	4台
	・温度警報設定器	17台	・ロードセル	1台
	・温度変換器	31台	・熱電対	3台
	・火災報知器	8台	・測温抵抗体	28台
	・V/I変換器	1台	・パーセント	219台
	・γ線検出器	4台	・パーセントメータ	77台
	・警報設定器	7台	・容量式流量計	9台

[9] プロセス電気設備工事

パ ネ ル	・コントロールセンタ	1式(9面)
	・直流電源装置	1面
	・無停電々源装置	2面
	・配線ダクト盤	4面
	・溶接器主幹盤	1面
	・照明主幹盤	1面
	・溶接器開閉器箱	9面
	・シャッタ分電盤	1面
	・シャッタ開閉表示灯箱	3面
	・ホイスト電源箱	1面
	・冷却塔ヒータ制御盤	1面
	・操作開閉器	
	・屋内用耐圧防爆壁掛形	3台
	・屋外用普通壁掛形	6台
・屋内用普通壁掛形	40台	

[10] 放射線管理設備工事

パ ネ ル	・ γ 線エリアモニタ制御盤	1面
	・ β 線ダストモニタ制御盤	1面
	・排気モニタ制御盤	2面
	・分電盤	1面
	・エアスニファフロア制御盤	1面
	・ドア警報表示盤	1面
パ ネ ル 以 外 の 電 装 品	・ γ 線エリアモニタ	1式
	・ β 線ダストモニタ	1式
	・排気モニタ	1式
	・ハンドフットクロスモニタ	1式
	・ドアモニタ	1式
	・OMライン	1式
	・エアスニファ・システム	1式
	・サンプリングヘッド	1式
	・インタホーン	3台
	・TVモニタ	
	・カメラ	2台
・モニタ	1台	

(5) 全体工事工程表(表4.1)に示す。

この表の様に、B1F床以外はほぼ1ヶ月毎に上階床コンクリート打設の工程で進んだが、B2F床のコンクリート打設後にB2Fライニング工事および塔槽類据付工事の装置側工事が入るので、B1F床コンクリート打設は、本工事でも約4ヶ月後であった。本工事の場合、このライニング工事が全体工事工程の重大なクリティカルパスとなるので、建設工事および装置工事両者の工事工程を十分に調整するとともに、できるだけ両者の工程が入りくまず工事期間短縮化が計れる施工法にて実施した。表4.3にB2Fライニング工事工程表を、図4.20にライニング施工法と施工手順を示した。

まず、埋込金物、パッドプレートおよびアングルメッシュをプレキャスト鋼板に溶接し、次にアングルメッシュ上面まで床コンクリートを1回で打設する施工法を採用した。工事期間中の降雨による作業中断を避けるため各セル天井には防水テントを張り作業を実施した。これらにより他のライニング施工法に較べて、約2週間工期の短縮化が計れた。なお、これに伴ない塔槽類の工場製作工程を約1ヶ月程度繰上げる必要が生じた。なお、再処理施設建設工事のうち、本格的なプロセスを有する施設としては本工事が始めて建家工事と装置工事を分離発注する施設となった。従来は工程管理の調整は施工業者にまかせっぱなしでよかったが、今回からはPNC建設室プロジェクトグループもかなり関与しなければならなかった。しかしながら、建家工事の受注者が再処理施設建設工事経験の豊かな鹿島・大成共同企業体(KTG)であったので、比較的スムーズに工程調整ができたと考える。

(6) 建設工事と平行して、回収TBPのPVC固化法に代わる新プラスチック固化法の技術開発を進めた。その結果、PVC固化体よりも機械的強度等の優れた実ドラムサイズ(100ℓ)のエポキシ固化体の開発に成功し、その後本施設固化設備へ追加設置するエポキシ固化試験装置の詳細設計を実施し、59年1月に完了している。現在、同装置の追加設置に関する国の安全審査の申請中である。

なお、本施設の建設工事に対しては、将来エポキシ固化法の実証試験が容易にできる様に配慮し、試薬調整室のレイアウトを変更し、タンクやポンプ設置用スペースの確保とタンク架台等の基礎の設置や、固化処理室貫通スリーブの設置等の予備的措置工事をあわせ実施した。

これらの回収TBPの固化処理技術開発に関する詳細内容は本報では省略し別報にゆずるので別報を参照されたい。

4.5 試運転計画

- (1) 既設廃溶媒貯蔵能力（ $20\text{m}^3 \times 7\text{基} = 140\text{m}^3$ ）が満杯となるのは、ST施設建設工事の完成後2年の昭和61年8月と見込れているので、本施設ではこの間に十分な総合作動試験計画（いわゆるコールド試験：約1年2ヶ月）およびホット試験（約9ヶ月）を計画している。総合作動試験のスケジュールを表4.4に、試験項目と試験内容を表4.5に示す。

総合作動試験のスケジュールの要点を以下に示す。

- ① 59年度当初は再処理工場の運転停止との絡みで十分な運転要員の確保が難しいので、溶媒処理系の運転完了後に固化処理系の運転を開始する。この間、日勤運転を主体とした運転を行なう。
 - ② 59年10月頃に運転委託要員の追加補充が行なわれるので、新人の教育と運転員の技術向上をめざし二交替制による運転訓練を行なうとともに、この間、回収TBPのエポキシ固化試験装置のST施設固化処理設備への追加設置現地工事を実施する。
 - ③ 60年度初めに全工程の組合運転特性試験や、エポキシ固化総合作動試験を行なう他、ホット化（7月）のための教育訓練および訓練運転を行なう。60年度当初からは十分な運転要員の確保が期待できるので二交替制によるフル運転を行なう。
- (2) 当面の総合作動試験の実施体制は、総合作動試験およびエポキシ固化試験装置の追加設置工事が完了するまでは、建設室が担当し業務を推進している。
- これは、次の様に考えられたからである。
- ① 設計および建設工事業者が異なったため、本施設の性能保証がないこと、そのため、アスファルト固化処理施設の様に一貫した設計・建設工事業者による性能保証を行なう試運転契約が成立し得なかった。又、これに代る適切な第三者が見当らなかったこと。
 - ② 本施設の様な設備規模であれば、過去の分離精製工場以来の運転経験に基づきPNC自力による開発努力の積み重ねで最も早く装置を自分のものとして早く動かしてゆけるし、又そうすべきであること。
 - ③ さらに、エポキシ固化試験装置の追加設置工事も総合作動試験期間中に平行して実施する必要があり、建設室は本施設およびエポキシ固化試験装置の設計および工事に精通しており、工事担当のセクションでもあること。

表 4.4 廃溶媒処理技術開発施設の総合作動試験スケジュール

No	項目	年 月	59年度										60年度			備考 ▽ホット化		
			4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	4		5	6
1	溶媒処理系 抽出特性試験		定常運転特性		非常常運転特性			保守点検			訓練運転			組合連続運転特性			教育訓練	
2	固化処理系 PVC固化特性 試験					PVC固化試験			改質PVC固化試験			保守点検			改質PVC 固化訓練運転			
	エポキシ固化試験 装置追加設置工事		契約・交渉			材料手配・工場製作			現地工事			エポキシ固化試験			教育訓練			
3	吸着処理系 吸着特性試験		吸着特性試験(I)						保守点検			訓練運転			吸着特性試験(II)			教育訓練
	廃シリカゲル 抜出試験					抜出試験												
4	廃液処理系 蒸発特性試験		蒸発特性試験						保守点検			訓練運転			組合連続運転			教育訓練
	廃液洗浄確認試験		確認試験						同上			同上			同上			同上
5	訓練運転		導入教育					導入教育		同上						エポキシ固化 訓練運転		
6	マニュアル類見直し 作成		保安規定, 安全作業基準, 運転要領書関係									エポキシ固化関係						
7	総合作動試験報告書 作成		溶媒処理, PVC固化, 吸着処理, 廃液処理関係									エポキシ固化関係						
8	R&D・改質PVC 固化 ・廃シリカ 固化		工学試験															
			基礎試験															
9	手直改造工事(予定)								(工事作動試験)									

表 4.5 廃溶媒処理技術開発施設の総合作動試験の試験項目と試験内容

試験項目		試験内容
1. 溶媒処理系 抽出特性試験	定常・非定常 運転特性	* 界面計検知性能確認 * TBP濃度変動追従性確認 * リン酸濃度変動追従性確認 * 攪拌, 静置時間変動の相分離性能への影響把握
	組合連続運転 特性	* 全系統を組合せた組合試験
2. 固化処理系 PVC固化 特性試験	PVC固化 試験	* 加熱時間, 加熱温度と固化状況の関係
	改質PVC 固化試験	* TBP減容比変動と固化体物性との関係
エポキシ固化 試験装置 追加設置工事	工 事	* 安審, 設工認, 工事監督
	エポキシ固化 試験	* 内部温度と固化状況の関係 * TBP減容比変動と固化体物性との関係
3. 吸着処理系 吸着特性試験	吸着特性試験 (I)	* 飽和吸着容量確認
	吸着特性試験 (II)	* 不純物TBP, H ₂ O, リン酸含有量の吸着に与える影響把握
廃シリカゲル抜き出し試験		* 抜き出しスラリー濃度の確認
4. 廃液処理系 蒸発特性試験	蒸発特性試験	* 蒸発能力の確認
	組合連続運転 特性	* 全系統を組合せた組合試験
廃液洗浄確認 試験	確認試験	* ドデガン洗浄等によるTBPの除去性能確認, 洗浄回数と廃液中のTBP蓄積量との関係
	組合連続運転 特性	* 全系統を組合せた組合試験
5. 訓練運転		* 総合作動試験, ホット試験のための訓練運転 * ホット試験, 試験運転に係る計画立案, 調整業務 * 運転要員の教育訓練 * 試験に係る庶務業務(物品発注, 資材業務, 庶務 管理等)
6. マニュアル類見直し作成		* 保安規定, 安全作業基準等の作成とそれらの改定 業務 * 運転要領書の改定業務
7. 報告書の作成		* 総合作動試験結果の報告書の作成
8. 研究開発(委託研究) ・廃シリカ固化技術開発 ・改質PVC固化技術開発		* 廃シリカのエポキシ固化基礎試験 * 改質PVCペーストの粘性と攪拌性能との関係

(3) ホット試験以降の廃溶媒処理計画について

廃溶媒処理量増大に伴う回収TBP貯蔵量および回収ドデカン貯蔵量の増大と、廃溶媒貯蔵量の減少と既設廃溶媒貯槽の使用状況を図4.2.2に示す。

廃溶媒処理量は、徐々に処理量を増やし、60年以降はほぼ60m³/年程度の処理（使用済燃料年間平均140ton処理時の発生量に相当）を計画している。これは廃溶媒処理量の設計値は100m³/年であるが、

- ① 廃溶媒処理に伴ない発生する回収ドデカンの再利用がうまくゆかなければ、回収ドデカン貯蔵量が急速に増大するのに対し、第2焼却炉（処理能力67m³/年）が完成するまでは第1焼却炉の処分能力（27m³/年）が小さいため処分量も少なく、したがって空になった既設廃溶媒貯槽だけでは貯蔵能力がたりなくなる恐れがあること。
- ② 特に60～61年度は再処理工場の新溶解槽設置工事やオーバーホールに伴ない発生する可燃性固体廃棄物の発生量が多いと予想されるため、回収ドデカンの焼却処分は62年度にならないと開始できない。したがって61～62年度に利用しうる既設廃溶媒貯槽がほとんどなくなってくるので、回収ドデカンの再利用計画が明確化するまでは廃溶媒の処理量を60m³/年以上に増大させるのは得策でない。
- ③ 今後の使用済燃料の再処理計画が、当面の計画では140tonを上廻らないと見込れていること。

などにより廃溶媒処理量を約60m³/年と計画したのである。

なお、ホット試験以降に廃溶媒処理実績と廃溶媒貯槽の利用状況等をみながら、具体的な処理計画が固まってゆくものと思われる。

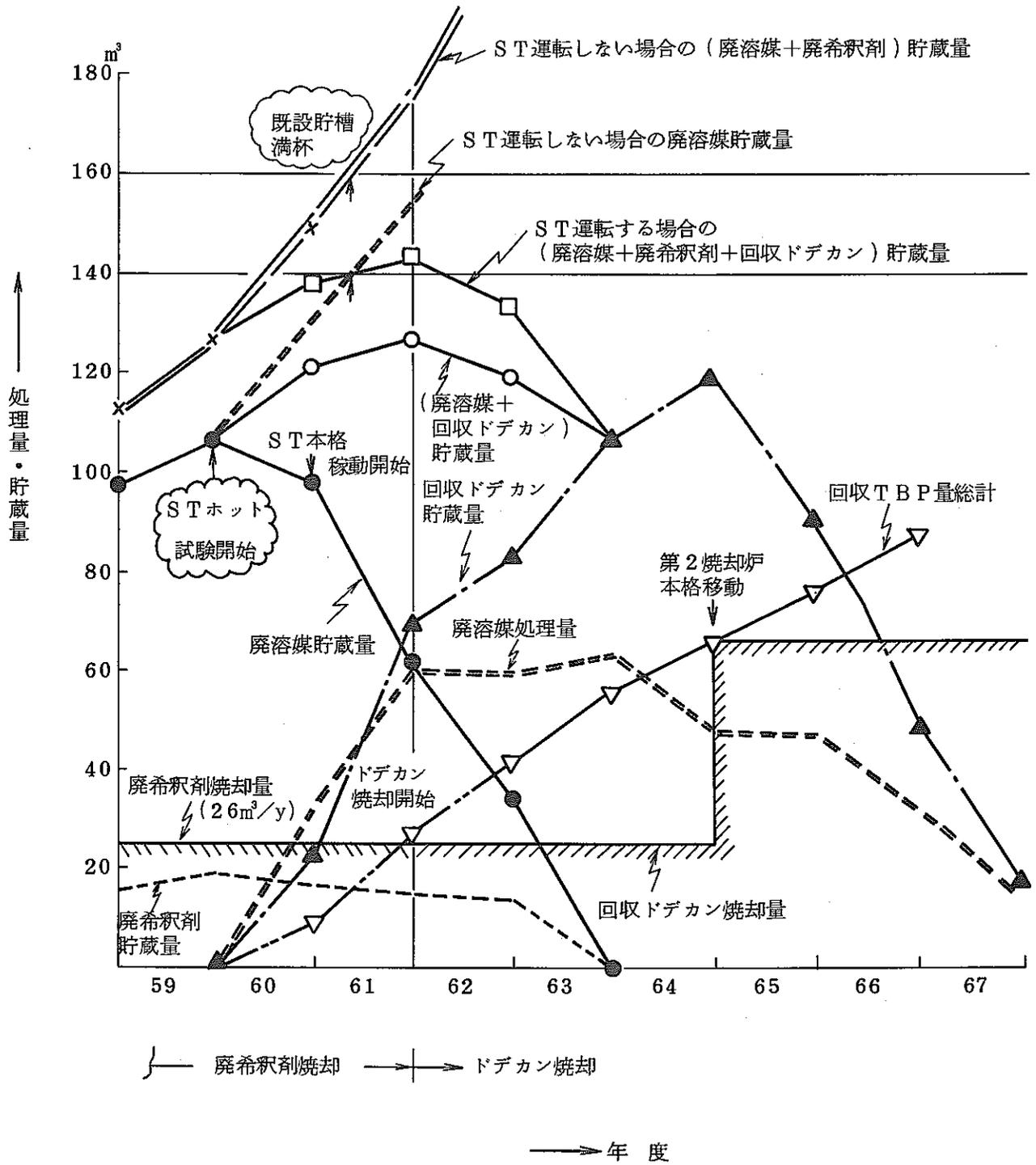


図 4.22 廃溶媒処理量と回収ドデカン貯蔵量との関係

5. 結 語

廃溶媒処理技術開発施設は59年4月に建設工事を完了し、現在総合作動試験を開始したところである。本施設の総合作動試験は建設室にて実施し、ホット試験以降は試験運転第二課が担当することになった。なお、本施設の運転要員は運転委託契約にて確保している。本文でも述べた様に、本施設は設計者と建設工事施工業者が別になったことから契約上は、運転を含めた性能保証のない施設である。しかしながらPNC自体が総合作動試験およびホット試験をじっくり実施することにより、運転試験を積み習熟してゆくものと考えられるし、又本報で報告したKfKにおける廃溶媒処理実績およびPNC廃溶媒処理技術開発施設の安全設計の留意点等を十分理解すれば、運転に際する技術的不安はなくなると考える。

PNCの廃溶媒は本報で推定した様にWAKのものほど汚れた性状とは考えられない。仮に廃溶媒中に第三相が存在し、本施設で受入れたとしても、各抽出槽にサイドグラスがついているわけではないので見えない。又、サンプリングベンチで捕集しようとしても循環ラインからポンプにより抜出すため、第三相はその操作時に攪拌分散化されるので、試料ビン程度の容器中には捕集できないであろう。さらに、本施設ではエアページ式の界面検知器を使用しているため、仮にある程度の層厚の第三相が存在しても、ディップチューブ2本の上下間の位置の差があり、かつ両端からエアブローする方式なので第三相により界面が検知できなくなるとは考えられない。重要な抽出槽には、50mm高ほど位置をずらしてエアページ式界面検知器を2基設置している。第三相に関しては十分な対策が取られたと考えている。

いずれ本施設の試運転が軌道に乗れば、具体的なデータも出てくるであろうし、十分な試験の実施により長期安定運転の確立を期待する。

6. 謝 辞

廃溶媒処理技術開発施設の詳細設計および建設工事の実施に当たり、当建設室をはじめ、再処理工場内の廃棄物処理課，化学処理第一課，化学処理第二課，保守課，分析課，試験課等関係課各位の御指導と御協力，本社再処理部計画課等関係各位の御指導ありがとうございました。深く感謝致します。

なお，本施設の詳細設計および建設工事の実施に当り，全体取りまとめに当った建設室廃溶媒処理プロジェクトグループ（プロセス，工程管理，予算管理，R&D，その他全体調整等担当）関係者を下記に示す。

詳細設計時：横 田 満(54.12～55. 7)
甲 賀 裕 基(54.12～55. 9)
今 哲 郎(55. 7～56. 3)
菊 地 和 彦(55. 7～56. 4)

建設工事時：今 哲 郎(56. 4～現 在)
菊 地 和 彦(56. 4～56. 5)
大田垣 隆 夫(56. 6～59. 3)
里 子 博 幸(57. 5～58.10)
新 沢 幸 一(59. 1～現 在)

7. 参考文献

- [1] 動燃社内報 “とうかい” №219 昭和59年6月1日
参考：宮原顕治，本多 淳等
“再処理工場における低放射性固体廃棄物の焼却処理の実績”
日本原子力学会昭和57年秋の分科会予稿集：J47，p.147，1982
- [2] W.Bähr, S.Drobnik, W.Ruth
“Karlsruhe 再処理施設で発生するTBP含有有機廃溶液処理に関する知見”
KfK Internal Bericht, PWA-Bericht 9/77
- [3] 今 哲郎，林 一，安 正三，根本 剛，権田浩三
“廃溶媒処理試験”
PNC ZN841-83-60，1983
- [4] K.L.Huppert
“Operating Experiences in the Reprocessing of LWR Fuels in the WAK”，Collection of lectures presented at first status report of the project on reprocessing and waste, 1975
KfK-2255 (ORNL-Tr-4511)
- [5] K.L.Huppert, K.P.Schulze, H.Wiese
“The Reprocessing of Irradiated Nuclear Fuels on a Semi-industrial Scale”
Kerntechnik 18(6), p.262, 1976
- [6] 廃液媒処理技術開発施設詳細設計図書参考資料
- [7] 若松 稔
“Purex 希釈剤の安定性”
1963-資-5-2-1 原子燃料試験所再処理研究班資料，1963
- [8] 安 正三，根本 剛，菊地美夫，西川 修，小林洋和
“抽出器界面における第三相の生成について”
ZN 843-80-10，再処理建設所業務報告会要旨集-ホット試験報告-，1980
- [9] 岡 紘一郎，市原信行，向井克彦
“Purex プロセスにおける金属微粒子の挙動-パラジウム微粒子による界面の第三相形成について-”
ZN 841-81-04，1981
- [10] 東レ・エンジニアリング(株)，動燃委託研究
“廃溶媒処理技術開発-界面検知器(1)およびリン酸塩含有混合廃液に対する材料の耐食性

確認試験”

- SJ 199 81-24, 1981
- [11] O.W.Tharin
“Burning of Radioactive Process Solvent” DP-942, Savannah River Laboratory, Aiken SC, 1965
- [12] “Final Safety Analysis Report: Barnwell Nuclear Fuel Plant, Separations Facility”
Docket 50 332-41, Allied-Gulf Nuclear Services, Barnwell, SC, p.4-74 ~ 4-79, 1973
- [13] 三菱金属㈱
“再処理廃溶媒処理施設設計研究(蒸留法)” 1978年9月
- [14] Private Communication from K.NAKAJIMA (SGN letter)
- [15] K.T.Thomas, K.Balu, A.A.Khan
“Waste Management at Trombay : Operational Experience”
IAEA-SM-137/38, p.581, 1970
- [16] H.J.Clark, G.S.Nichols
“Purification of Radioactive Solvent with a Flash Vaporizer”
DP-849, April, 1965
- [17] C.R.Ford, H.V.Chamberlain
“Steam Stripping TBP-AMSCO solutions from Non-Volatile Containments”
IDO-14546, May, 1961
- [18] H.S.Cole
“Disposal of Radioactive Liquid Organic Wastes at the ICPP”
ICP-1007, March, 1972
- [19] W.Davis, Jr
“Purification of Degradated Tributyl Phosphate-Hydrocarbon Diluent Solutions by Distillation : Status Summary”
ORNL-3203
- [20] W.Bähr, S.Drobnik, W.Ruth
“トリブチルホスフェート含有有機廃溶液処理のためのリン酸付加体の挙動の解明, 第1部, 非放射性物質での実験室研究”
KfK Internal Bericht, PWA-Bericht 1/76
- [21] W.Bähr, W.Hild, S.Drobnik, L.Kahl, M.Kelrn, W.Kluger,

H.Krause, W.Finstenwalder, W.Ruth

"Recent Experiments on the Treatment of Medium Level Wastes
and Spent Solvent and On Fixation into Bitumen"

IAEA-SM-207/81 p.137

[22] G.Höhlein

"Treatment of Low and Intermediate Level Wastes"

KfK-2633, p.14

[23] 東レ・エンジニアリング㈱

"放射性廃有機溶媒処理施設の設計研究 (Karlsruhe法)"

昭和53年7月

[24] 廃溶媒処理技術開発施設詳細設計参考図書

RST-A05-Q1-0001,

RST-A01-Q1-0009

[25] Private Communication from M. OZAWA

[26] L.Salomon, H.E.Schrich, L.Humblet, G.Willeborts, L.D.Mertens

"Studies on the Treatment of Organic Wastes Part I Phase
Splitting of Tributyl Phosphate-Kerosene Solvent Mixtures"

ETR-283, July, 1974

[27] L.Salomon, H.Eschrich, L.Humblet

"Treatment and Disposal of Tributyl Phosphates-Kerosene
Wastes by The EUROWATT Process",

Progress in Nuclear Energy-Nuclear Energy Maturity, Vol.8,
Pergamon Press, 1976, p.224-236

[28] H.Eschrich, L.Humblet, J.van Geel

"Studies on the Treatment of Organic Wastes Part V
The EUROWATT Process Treatment and Disposal of Spent
Organic Solvent from the Purex Process"

ISEC '80, Sep. 1980

[29] L.Humblet, J.van Geel

"Application du procédé EUROWATT aux solvants organiques
usés dans une installations pilote"

ETR-312, Nov. 1981

[30] E.Delande, W.Drent

"Activity Report 1979"

ETR-301, 1979

- [31] E.Delande, W.Drent.
"Activity Report 1980"
ETR-309, 1980
- [32] E.Delande, W.Drent
"Activity Report 1981"
ETR-313 1981
- [33] W.Drent, E.Delande
"Activity Report 1982"
ETR-316