

# 昭和46年度開発課試料係の湿式関係業務報告

プルトニウム燃料部第1開発室におけるU, Puの回収  
および放射性廃液処理

1972年10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

Inquires 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)  
2000

## 昭和46年度開発課試料係の湿式関係業務報告

### プルトニウム燃料部第1開発室における ウラン・プルトニウムの回収および放射性廃液処理

実施責任者 小泉益通  
報告者 成木芳  
本多淳  
三村平  
都所昭雄  
佐々木仁  
平山卓（現在大洗工学センター）

期間 1971年4月～1972年3月

要旨 本レポートは昭和46年度に実施したプル燃開発課試料係の湿式関係の仕事をまとめたものである。

当開発課は昭和46年2月に発足したばかりの新しい組織で、試料係内での湿式関係のグループは5名という人員で作業を行なわねばならなかった。それ故昭和46年度の仕事の目標は次の2つに重点がおかれた。

- (i) 旧製造課回収係から一般的な作業についての技術的引き継ぎを受けるとともに、不十分であると思われる点についての作業を行なって今までの技術をまとめる。
- (ii) 従来から蓄積され計量係に保管されていた廃液の処理を大幅に実施して、第1開発室の作業を円滑ならしめる。

結果はこの報告書に記述されたとおりであるが、関係各位の努力でこれらの目標は大体達成されたと思う。

なおこの報告書は単に昭和46年度の実績のまとめにとどまらず、総括的に各単位操作の方法、処理条件もかなり詳しく記述し、作業マニュアル、新人用のテキストとしても使用できるようにした。もちろんこれらの条件は最適化されたものではなく、今後の改良が必要であるが、一応現在のプル燃第1開発室の湿式関係の技術を示すものといえよう。

## 目 次

1. U, Puの回収	1
1.1 溶媒抽出	1
1.1.1 フローシート	1
1.1.2 抽出操作	2
1.1.3 46年度の結果	3
1.2 イオン交換	5
1.2.1 フローシート	7
1.2.2 交換操作	8
1.2.3 46年度の結果	9
2. 廃液処理	12
2.1 中和処理	12
2.1.1 46年度の実績	12
2.2 一次フロック	15
2.2.1 フローシート	15
2.2.2 処理条件	16
2.2.3 46年度の結果	16
2.3 二次フロック	20
2.3.1 フローシート	20
2.3.2 作業方法	21
2.3.3 46年度の結果	21
2.4 焙焼	24
まとめ	26
謝辞	26

## 1. U, Pu の回収

### 1.1 溶媒抽出

ウランの回収法の1つとして溶媒抽出法があり、プラント規模で実施されている抽出法はミキサセトラー法とパルスカラム法に分類される。両法とも有機溶媒としてはTributyl phosphate(T. B. P.)が一般的によく使用されている。

当係ではパルスカラム法により、TBPの希釈剤としてドデカン( $\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{10}-\text{CH}_3$ )を用い30%TBP・ドデカン-HNO<sub>3</sub>系でブルトニウムおよびウランの相互分離を目的としてウランの回収を行っている。

以下ウランの回収手順について説明する。

#### 1.1.1 フローシート

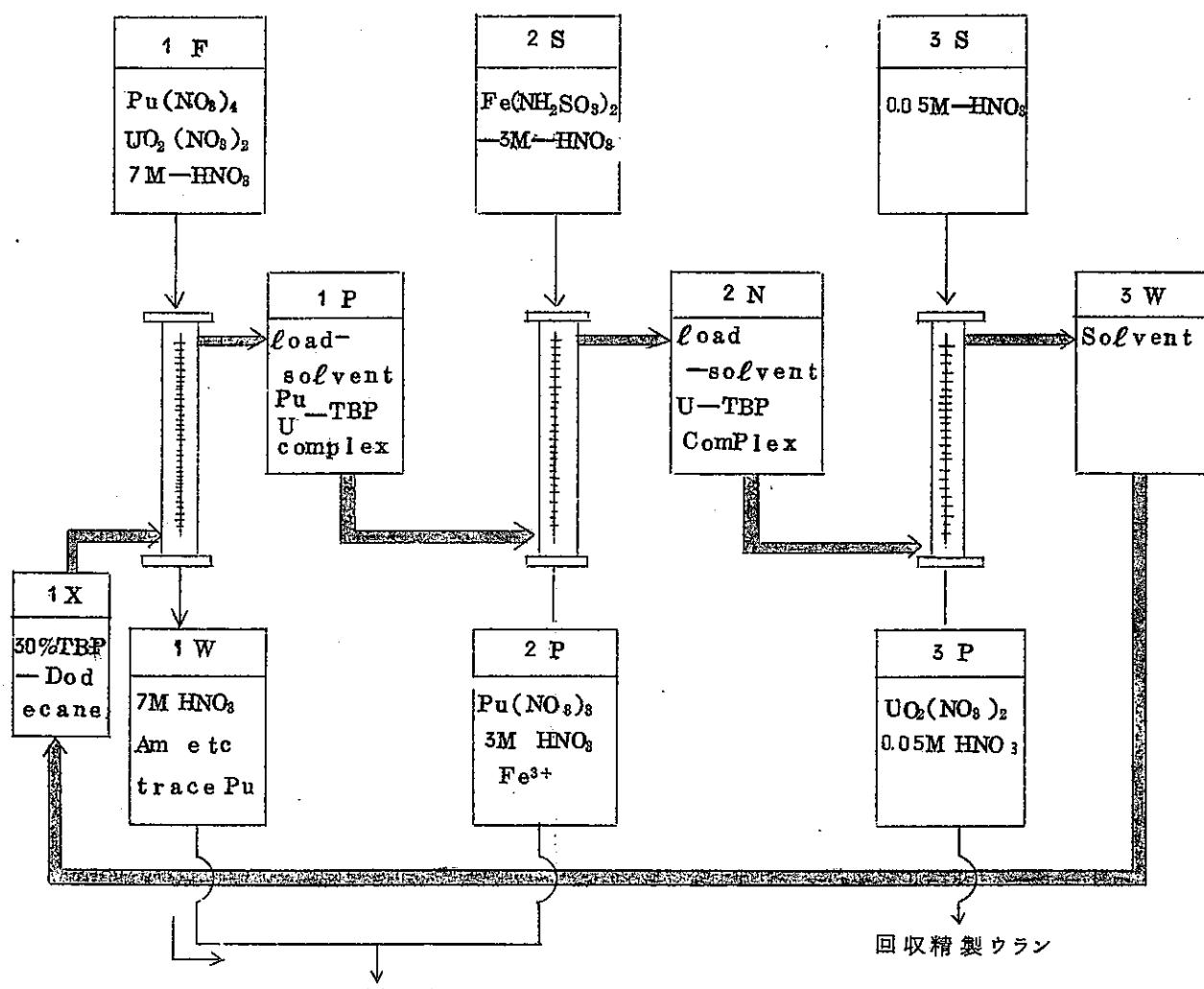


Fig 1 ウラン回収溶媒抽出フローシート

Solvent Extraction Flowsheet of Uranium Recovery

## 1.1.2 回収操作

## i) ウランおよびプルトニウムの共抽出

溶解液の酸濃度をウランおよびプルトニウムの抽出に適した 7 M-HNO<sub>3</sub>に調整 (Fig. 2 参照) したのち、水相と有機相の比重差を利用して供給水溶液を上から有機溶媒を下からカラム内に送る。

この際の流量比は抽出率をよくするために A : 0 = 1 : 2 としペレセーターは S = 3.0, r = 2.8 に設定した。

なおウランおよびプルトニウムの抽出反応は下式のとおりである。

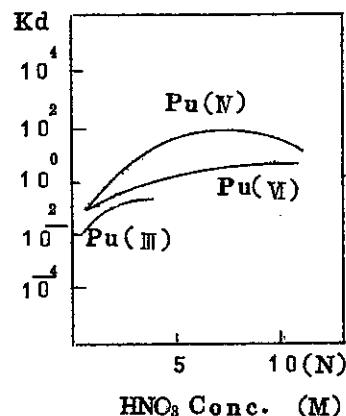
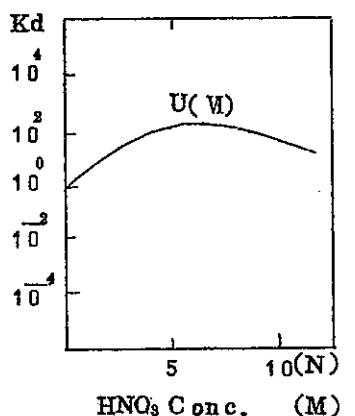
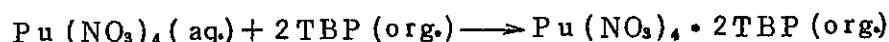
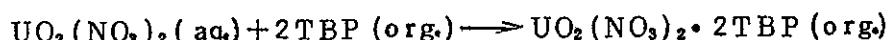
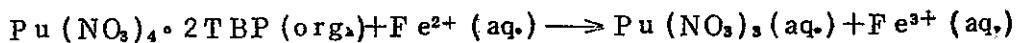


Fig. 2 30% TBP/dodecane Extraction of U and Pu with Nitric acid system

## ii) ウランとプルトニウムの分離

有機相に抽出されているプルトニウムのほとんどは Pu(IV) および Pu(VI) であり, Pu(III) は抽出され難い。この点を利用して、プルトニウムを下式のように分別還元することにより水相へ逆抽出する。



還元分離する場合酸濃度が低すぎるとウランも水相に逆抽出されるので注意する必要がある。

分離条件は A : 0 = 1 : 1, S = 3.0, r = 2.8 および 3 M-HNO<sub>3</sub>とした。

## iii) ウラン逆抽出

プルトニウムを還元分離したのち、ウランを水相へ逆抽出する。この時低酸濃度の溶液を使用する。  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 2 \text{TBP (org)} \longrightarrow \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \text{ (aq)} + \text{TBP (org)}$

逆抽出条件は A : 0 = 4 : 1.75, S = 3.0, r = 2.8 および 0.05 M-HNO<sub>3</sub>とした。

## 1.1.3 46年度の回収結果

46年度に於てはPE001系の原料(イオン交換洗浄濃縮液, 中和廃物)を使用して, U, Puの回収をおこないながらパルスカラム抽出操作の最適条件を求めて作業をおこなった。

Table 1に回収の物質収支を示めした。

Table 1 物質収支

Lot No.	実施月日	原 料 名	原 料 液		抽 出 廃 液		Pu 逆 抽 出 液		U 逆 抽 出 液		合 計	
			U(g)	Pu(g)	U(g)	Pu(g)	U(g)	Pu(g)	U(g)	Pu(g)	U(g)	Pu(g)
RS-1	5-11, 12	RI-45, 46 洗浄濃縮液	50.93	5.51	1.50 2.9	1.06 19.2	3.06 6.0	0.86 15.6	34.15 67.1	0.12 2.2	76.0	37.0
" - 2	8-25, 26	"	50.93	5.51	7.39 14.5	1.49 27.0	1.39 2.7	3.44 6.24	33.54 65.6	0.08 1.4	82.8	90.8
" - 3	8-30, 31	"	50.93	5.51	7.33 14.4	1.46 26.5	2.04 4.0	3.40 6.17	27.56 54.1	0.22 4.0	72.5	88.6
" - 4	10- 6, 7	"	50.93	5.51	1.57 3.1	0.64 11.6	1.60 3.1	4.56 8.27	40.24 79.0	0.20 3.6	85.2	97.9
" - 5	10- 8, 9	"	57.66	6.24	1.72 3.0	0.98 15.7	1.72 3.0	8.47 13.57	46.40 80.5	0.39 6.3	86.5	154.7
" - 6	10-18, 19	RI-1,2 濃縮液 RI-37 RI-55 RI-50 吸・廃	63.44	4.35	2.33 3.7	0.90 20.7	3.62 5.7	4.16 9.56	52.21 82.3	0.23 5.3	91.7	121.6
" - 7	10-20, 21	"	63.44	4.35	3.43 5.4	1.03 23.7	2.89 4.6	3.98 9.15	45.76 72.1	0.25 5.7	82.1	120.9
" - 8	10-29, 30	"	68.51	4.70	2.02 2.9	0.70 14.9	3.17 4.6	5.22 11.10	55.35 80.8	0.26 3.5	88.3	139.4
" - 9	11- 4, 5	"	66.60	4.57	2.76 4.1	1.07 23.4	2.64 3.9	4.90 10.72	56.09 84.2	0.40 8.7	92.2	139.3
" - 10	11-29, 30	ペレット 中和廃物	105.18	4.20	7.76 7.2	1.40 33.0	8.43 8.0	2.24 53.3	61.15 58.1	0.03 0.7	73.3	87.0
" - 11	12- 2, 3	"	90.61	3.63	9.11 10.0	1.52 41.9	25.42 28.1	2.00 55.1	46.57 51.4	0.55 15.2	89.5	112.2
" - 12	12- 7, 8	"	86.08	3.45	7.92 9.0	1.60 46.4	27.85 32.3	2.46 71.3	66.03 76.7	0.70 20.3	118.2	138.0

ウランの物質収支については、収率も 80 ~ 90 % となっており、なおかつ抽出もれやプルトニウム逆抽出液への混入なども数パーセントで比較的良好な結果が得られた。

ただし RS-11 および 12 についてはプルトニウム逆抽出液へのウランの混入率が高かったが、これは水相の酸濃度調整がうまくいっておらず、酸濃度が低くすぎたために一部のウランが水相へ逆抽出されてしまったのではないかと考える。

次にプルトニウムの物質収支については収率が非常にばらついており、特に 100 % 以上というのが多く問題がある。これらは抽出廃液およびプルトニウム逆抽出液の高含量に起因するものであり、原因としては分析誤差が考えられる。

たとえば抽出廃液については  $\alpha$ -計測であるためアメリシウムの影響で正の誤差を生じやすく、プルトニウム逆抽出液については過剰に入っている  $\text{Fe}^{2+}$  がプルトニウムの滴定において正の誤差を与える。

Table 2 は回収したウラン中のプルトニウムの含有量を示したものである。この結果より回収した U 中にはほぼ 0.6 % の Pu が含まれていることが判る。

Table 2 ウラン回収量

Lot No.	U (g)	Contamination of Pu (g)	Pu/U
RS - 1	3 4.15	0.12	$3.5 \times 10^{-3}$
	3 3.54	0.08	$2.4 \times 10^{-3}$
	2 7.56	0.22	$8.0 \times 10^{-3}$
	4 0.24	0.20	$5.0 \times 10^{-3}$
	4 6.40	0.39	$8.4 \times 10^{-3}$
	5 2.21	0.23	$4.4 \times 10^{-3}$
	4 5.76	0.25	$5.5 \times 10^{-3}$
	5 5.35	0.26	$4.7 \times 10^{-3}$
	5 6.09	0.40	$7.1 \times 10^{-3}$
	6 1.15	0.03	$4.9 \times 10^{-4}$
	4 6.57	0.55	$1.2 \times 10^{-3}$
	6 6.03	0.70	$1.1 \times 10^{-2}$
5 6 5.0 5 ①)		3.43	$6.0 \times 10^{-3}$

1) 112.5 g<sup>235</sup>U を含む。

回収したウランについては、その都度分光分析により不純物含量を調べたが、その1例をSaxtonのペレット仕様と対比させてTable 3に示す。

Table 3 分光分析結果

Element	原液 ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	U逆抽出液 ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	Saxton spec. (ppm)
Ag	1.5	< 0.2	—
Al	< 1.0	< 1.0	300
B	6.0	< 0.3	1.5
Cd	< 1.0	< 1.0	1.0
Cr	< 3.0	< 1.0	500
Cu	2	< 1	50
Fe	750 <sup>a</sup>	3.5	500
Mg	< 2	< 2	50
Mn	< 6	< 6	10
Ni	< 1.0	< 1.0	300
Si	100	1.5	500
V	< 1.0	< 1.0	1.0
Zn	< 5.0	< 5.0	20
Co	< 1.0	< 1.0	6.0

< Xは分光分析による分析限界以下を意味する。

- 1) ここで用いた原液は比較的鉄含量の少ないものである。しかし通常用いる原液(分析廃中和殿物等)はもっと多量に鉄を含んでいる。ところがU逆抽出液中の鉄含量は全ての場合において< 50  $\mu\text{g}/\text{ml}$ であった。

Table 3に示めしたように、筆者らが実施した溶媒抽出法による回収ウラン中の不純物の含有量は、Saxton spec.を十分満足できるものであった。

## 1.2 イオン交換

ウラン、その他の不純物を含むプルトニウム溶液からプルトニウムを精製回収するのに陰イオン交換法を採用している。

イオン交換樹脂：Dowex—1×4 50～100メッシュ

イオン交換塔：バイレックスガラス製 6cmφ×100cm

イオン交換塔1本には1ℓの樹脂が装荷され，3本の塔が並置されており，3本の塔を直列的にも並列的にも連ねて使用出来る。

プルトニウム吸着量：一般に下記の様に定められるが，簡単には30～50g Pu/ℓ(樹脂)と考えて良い。すなわち1本の塔の吸着量は約40gである。

1) ウランを含まない場合

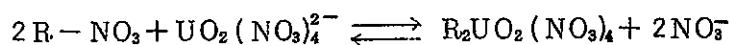
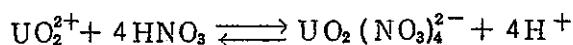
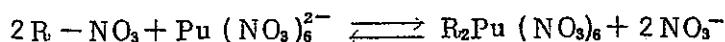
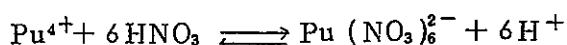
$$Pu(g) = 0.8 \times \text{樹脂量}(\ell) \times 50 g/\ell (\text{樹脂}) = 40 \times \text{樹脂量}$$

2) ウランを含む場合

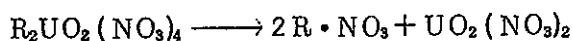
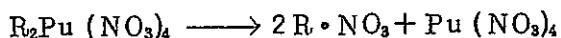
$$Pu(g) = 25 \times \text{樹脂量}(\ell)$$

硝酸系陰イオン交換樹脂へのプルトニウム，ウランの吸着・溶離反応は下記の通りである。

吸着反応



溶離反応



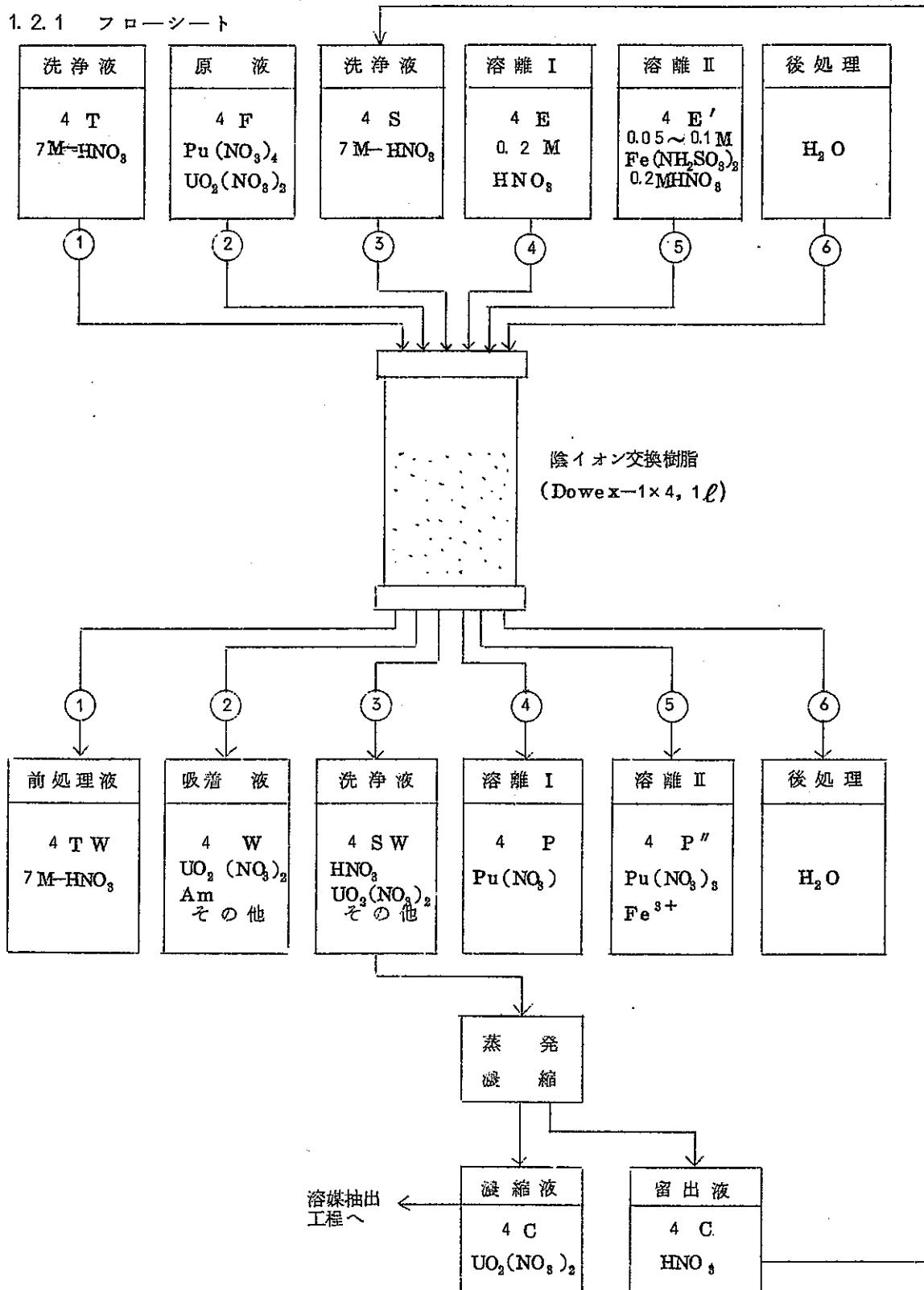


Fig. 3 (イオン交換フローシート)

Ion-Exchange Flowsheet

## 1.2.2 交換操作

## i) 原料液調製

中和殻物、不良  $\text{PuO}_2-\text{UO}_2$  ベレットを硝酸で加熱溶解し、不溶残渣を沪過分離する。溶解液は不均化反応等によって  $\text{Pu(III)}$ ,  $\text{Pu(VI)}$  を含有していることが考えられるので過酸化水素水（30% 濃度）を添加し原子価調整をおこなう。過酸化水素水の添加は40°C以下の低温で除々に攪拌しながらおこない、添加量は 5 ml/g Pu である。

原子価調整をおこなった液は未反応の  $\text{H}_2\text{O}_2$  を分解除去するため 90°Cで、ゆっくり攪拌しながら発泡が起らなくなるまで加熱する（約 20 分）。

原子価調整を終えた溶液は酸濃度が調整されていないので、プルトニウムの選択吸着により 7M  $\text{HNO}_3$  濃度に調整する。（Fig. 4 参照）

ウラン、プルトニウム、吸着分配係数

- 硝酸系で吸着しない元素：

$\text{Li}$ ,  $\text{Be}$ ,  $\text{B(III)}$ ,  $\text{Na}$ ,  $\text{Mg}$ ,  $\text{Al(III)}$ ,  $\text{P(V)}$ ,  $\text{K}$ ,  $\text{Ca}$ ,  $\text{Sc(III)}$ ,  $\text{Ti(IV)}$ ,  $\text{V(V)}$ ,  $\text{Cr(III)}$ ,  $\text{Mn(II)}$ ,  $\text{Fe(III)}$ ,  $\text{Co(II)}$ ,  $\text{Ni(II)}$ ,  $\text{Cu(II)}$ ,  $\text{Zn(II)}$ ,  $\text{Ga(III)}$ ,  $\text{As(V)}$ ,  $\text{Rb}$ ,  $\text{Sr}$ ,  $\text{Y(III)}$ ,  $\text{Nb(V)}$ ,  $\text{Ag(I)}$ ,  $\text{Cd(II)}$ ,  $\text{In(III)}$ ,  $\text{Sb(V)}$ ,  $\text{Te(IV)}$ ,  $\text{Cs}$ ,  $\text{Ba}$ ,  $\text{Ir(III)}$ ,  $\text{Ra}$ ,  $\text{Pm(III)}$ ,  $\text{Sm(III)}$ ,  $\text{Ev(III)}$ ,  $\text{Gd(III)}$ ,  $\text{Tb(III)}$ ,  $\text{Dy(III)}$ ,  $\text{Ho(III)}$ ,  $\text{Er(III)}$ ,  $\text{Tm(III)}$ ,  $\text{Yb(III)}$ ,  $\text{Lu(III)}$ ,  $\text{Ac}$ ,  $\text{Pu(III)}$ ,  $\text{Am(III)}$ ,  $\text{Cm(III)}$

- $\text{U(VI)}$ ,  $\text{Np(IV)}$ ,  $\text{Pu(IV)}$  の吸着曲線：

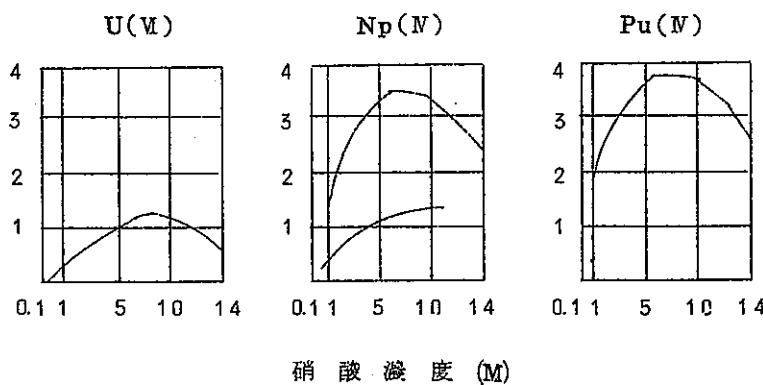


Fig. 4  $\text{U(VI)}$ ,  $\text{Np(IV)}$ ,  $\text{Pu(IV)}$  の吸着曲線

## ii) 前処理

$\text{NO}_3$  形の樹脂を充填した塔の下部より純水を約 2 ℥ 流す。これはカラム内に気泡が発生したりしていると吸着能力が低下するので、この気泡を除去するためである。

次に樹脂層をプルトニウム吸着率の良い 7M  $\text{HNO}_3$  に酸調整する。これは 7M  $\text{HNO}_3$  を 130 ml/min の速度で 3 ~ 4 GV 流しておこなう。

III) 吸 着

ポンプ CV II型を使用し塔上部に注入する。吸着廃液の流出速度は 20~30 ml/min で、樹脂内に気泡が発生する場合は塔上部より S U S 棒を挿入してゆっくり樹脂をかきまぜて気泡を抜いてやる。

IV) 洗 清

7 M HNO<sub>3</sub>濃度調整された硝酸（主として蒸発留出液）をペローズポンプを用いて塔上部より注入、残存ウランを洗清除去する。

洗清速度は最初の 1 CV は吸着帯の変動を避けるために 30 ml/min とし（洗清 0），次いで 130 ml/min に切りかえて（洗清 1）おこなう。なお洗清の終了は流出液の色が無色になることにより判定する。

V) 溶 離

ウランの洗清除去を終えた樹脂からのプルトニウム溶離は次の条件でおこなつた。

・溶離 I

溶離剤： 0.2 M HNO<sub>3</sub>

流 速： 20~30 ml/min

流 量： 約 4 CV

・溶離 II

溶離剤： 0.2 M HNO<sub>3</sub>—0.05 M Fe (NH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>

流 速： 20~30 ml/min

流 量： 約 2 CV

溶離剤はボックス上部より流入する。溶離廃液は 3 l のポリビンで受け、流出液がプルトニウムで茶色に着色した時点で容器を別容器に切り替え流出液が透明になるまでおこなう。溶離 II では樹脂に残っていたプルトニウムは Fe (II) により還元され Pu (III) となり、流出液は青色になる。この流出液が無色になるまで溶離をつづける。

VI) 後処理

プルトニウムの溶離を終えた樹脂は次のイオン交換操作まで保存するため、ボックス上部より純水を流入し洗清する。1~2 CV の量を 30 ml/min で行なう。

1.2.3 46 年度の回収結果

イオン交換の原料としては溶媒抽出のフローシートで示した様な抽出廃液 (IW), Pu 逆出液 (2P) をまとめて使用した。しかし実際には溶媒抽出の各 Run 每に抽出廃液、Pu 逆抽出液は中和処理され、その数 Run 分の中和廃物が一緒にされ、それを溶解してイオン交換の原料液とした。

なおその他、高レベル可燃物（主としてテッジュベーパ）の焼却灰溶解液を原料液とし

て調製して使用した Run もある。

結果を Table 2, Table 3 にまとめて示す。

Table 2 の結果は残念ながら回収結果は実験としては意味が少ないものになった。最大の原因は使用した原料が不純物を多く含んでいるために原料液中の Pu, U 含量の値が正確に分析されていなかったことによる。吸着廃液中の Pu 量も多い様であるが、これも分析値が正確でないと思われるので何とも言えない。正確な物質収支を出すには分析を防害するような不純物元素を含まない U, Puだけを含んでいるペレット溶解液などを原料として使用すべきだと思う。

Table 3 の分光分析結果は得られたプルトニウムが極めて純なものであることを示すが、ただ U の分析をおこなわなかつたのでその点は不明である。

しかしいずれにせよ 46 年度は 120.4 g のプルトニウムを精製回収出来た。

Table 2 イオン交換物質 Pu 収支

年月日	Run No.	原料液の Pu, U 含有量		吸着廃 Pu	洗浄廃 Pu	溶離 I			溶離 II	収率 %	出量計	備考 使用塔数
		Pu g	U g			0	1	2				
46— 6-11	RI —1	31.29	86.94	18.55	19.75	—	11.67	—	0.59	—	50.56	溶離(I)は分光 分析しなかつたため RI —6 で回収し なおした。
46— 7-9	RI —2	24.51	127.34	4.93	4.06	—	2.68	—	0.61	—	12.28	
47— 2-17	RI —3	44.03	75.39	11.78	29.63	0.77	24.38	—	1.48	—	68.04	
47— 3-3	RI —4	47.15	253.69	2.06	—	—	33.03	12.13	3.2	—		
47— 3-17	RI —5	39.79	157.06	—	—	0.46	4.02	—	0.69	—		
47— 4-11	RI —6	90.27	180.81	11.97	—	0.53	31.04	—	3.57	—	47.11	
計及び 平均							120.71	g	10.4			

### 蒸 發 濃 縮

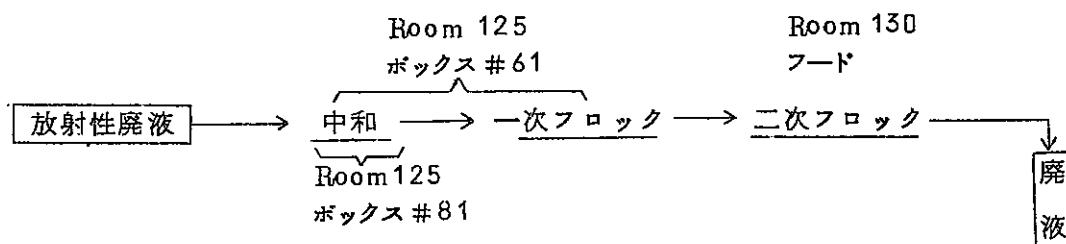
RI-No.	処理液量	留出量	濃縮液量	備考
RI-1	18.00 ℥	14.0 ℥	4.00 ℥	
〃 -2	16.50 ℥	12.5 ℥	3.95 ℥	
〃 -3	25.50 ℥	21.0 ℥	4.30 ℥	
〃 -4	38.00 ℥	33.5 ℥	4.08 ℥	
〃 -5	33.00 ℥	28.0 ℥	4.65 ℥	
〃 -6	39.00 ℥			
計				

Table 3 分光分析結果

分析成分	分析值 ( $\mu g/m\ell$ )
Ag	0.2
Al	< 1.0
B	0.4
Cd	< 1.0
Co	< 1.0
Cr	< 1.0
Cu	< 1.0
Fe	1.5
Mg	< 2.0
Mn	< 6.0
Ni	< 1.0
Si	< 1.0
V	< 1.0
Zn	< 5.0

## 2. 廃液処理

ウラン、プルトニウムを含む放射性廃液の処理方法の中で中和一フロキュレーション法は工程が簡単で除染係数も比較的高い特徴がある。プル燃第1開発室のこの廃液処理のプロセスは場所的に見て下記の様に2~3段の工程になっている。



放射性廃液 : (1)溶媒抽出、イオン交換工程よりの中和廃液

(2)分析廃液

(3)B棟実験室よりのボックス廃液

### 2.1 中和処理

放射性廃液の前処理としての中和処理は廃液中に存在するPu, Uを水和物として除去回収するとともに、鉄フロック生成のために液をアルカリ性にするためにおこなうものである。

中和沈殿剤としては渋液発生の少ないよう濃アンモニア水を使用し、その添加は急激な発熱を起さないように徐々に添加する。

中和の終点はpH試験紙で判定し pH 9.6 である。

#### 2.1.1 46年度の実績

46年度は溶媒抽出、イオン交換等で多量のPu, Uを回収した。それに伴い発生するPu, U溶液、廃液等の中和処理液、あるいは分析課で発生する廃液、計量係に一時保管されていた廃液の中和処理をおこなった。その内訳をTable 4に示した。

Table 4 中和処理液の内訳

## 溶媒抽出処理液

Lot No	液量(l)	Pu含有量(g)	$U^{235}$ 含有量(g <sub>r</sub> )	NU含有量(g <sub>r</sub> )
RS-1	15.09	2.04	—	38.71
2	14.96	5.01	—	15.46
3	14.12	5.08	—	36.93
4	14.22	5.40	—	43.41
5	15.89	9.84	—	49.84
6	16.62	5.29	—	58.16
7	13.81	5.26	—	52.08
8	15.46	6.18	—	60.54
9	15.16	6.37	—	61.49
10	14.29	3.67	—	77.34
11	14.26	4.07	—	81.10
12	14.73	4.26	—	101.80
total	178.61	62.97	—	676.86

## イオン交換処理液

Lot No	液量(l)	Pu含有量(g)	$U^{235}$ 含有量(g <sub>r</sub> )	NU含有量(g <sub>r</sub> )
RI-1	11.95	40.49	—	29.82
2	13.34	10.64	—	27.22
3	19.42	38.41	—	5.60
4	26.95	50.43	—	9.29
5	15.44	1.10	—	180.72
total	87.10	141.07	—	252.65

## 分析廃液

名称	液量(l)	Pu含有量(g <sub>r</sub> )	$U^{235}$ 含有量(g <sub>r</sub> )	NU含有量(g <sub>r</sub> )
B棟廃液	54.0	1.60	—	205.40
"	9.0	0.07	—	0.54
"	36.0	0.57	—	126.90
"	27.0	0.12	—	292.93
EDTA廃液	4.0	0.00	0.00	—
沈殿廃液	24.0	0.00	0.00	—
Box内廃液	12.0	0.00	0.00	—
"	6.0	0.00	0.00	—
"	6.0	0.00	0.00	—
"	6.0	0.00	0.00	—
90%EU廃液	1.0	0.16	0.00	—
分析廃液	24.0	3.41	0.00	—
"	7.0	0.37	0.00	7.02

名称	液量(ℓ)	Pu含有量(g r)	$^{235}\text{U}$ 含有量(g r)	NU含有量(g r)
分析廃液	24.0	0.00	—	60.45
"	6.0	0.01	—	0.79
"	12.0	0.18	—	3.50
"	1.0	0.04	—	—
"	12.0	0.00	—	0.00
分析廃液不明品	16.0	0.00	0.00	—
"	6.0	0.00	0.00	—
SAXTON廃液	3.0	0.80	—	15.09
TCA廃液	3.0	0.49	—	—
TCA混合試料	3.0	0.36	—	13.12
F分析廃液	4.0	0.00	0.00	—
N分析廃液	3.0	—	8.00	—
90%EU廃液	3.0	0.31	2.25	—
"	0.5	0.30	1.79	—
Total	312.5	8.79	19.68	725.74

## 計量係からの廃液

Lot No	液量(ℓ)	Pu含有量(g r)	$^{235}\text{U}$ 含有量(g r)	NU含有量(g r)
PN-901	116.7	5.35	—	220.36
PU-902	7.0	5.63	—	—
" -903	17.0	32.75	—	—
PE-904	6.0	1.58	2.03 (20%系)	—
" -905	18.0	3.87	10.58 (60%系)	—
" -906	14.2	3.87	16.28 (90%系)	—
Total	178.9	53.01	28.89	220.36

合計 容量 757.11 (ℓ)

Pu量 265.84 (g r),  $^{235}\text{U}$ 量 48.57 (g r)

NU量 1875.61 (g r)

## 2.2 一次フロック

## 2.2.1 一次フロックシート

計量係・その他

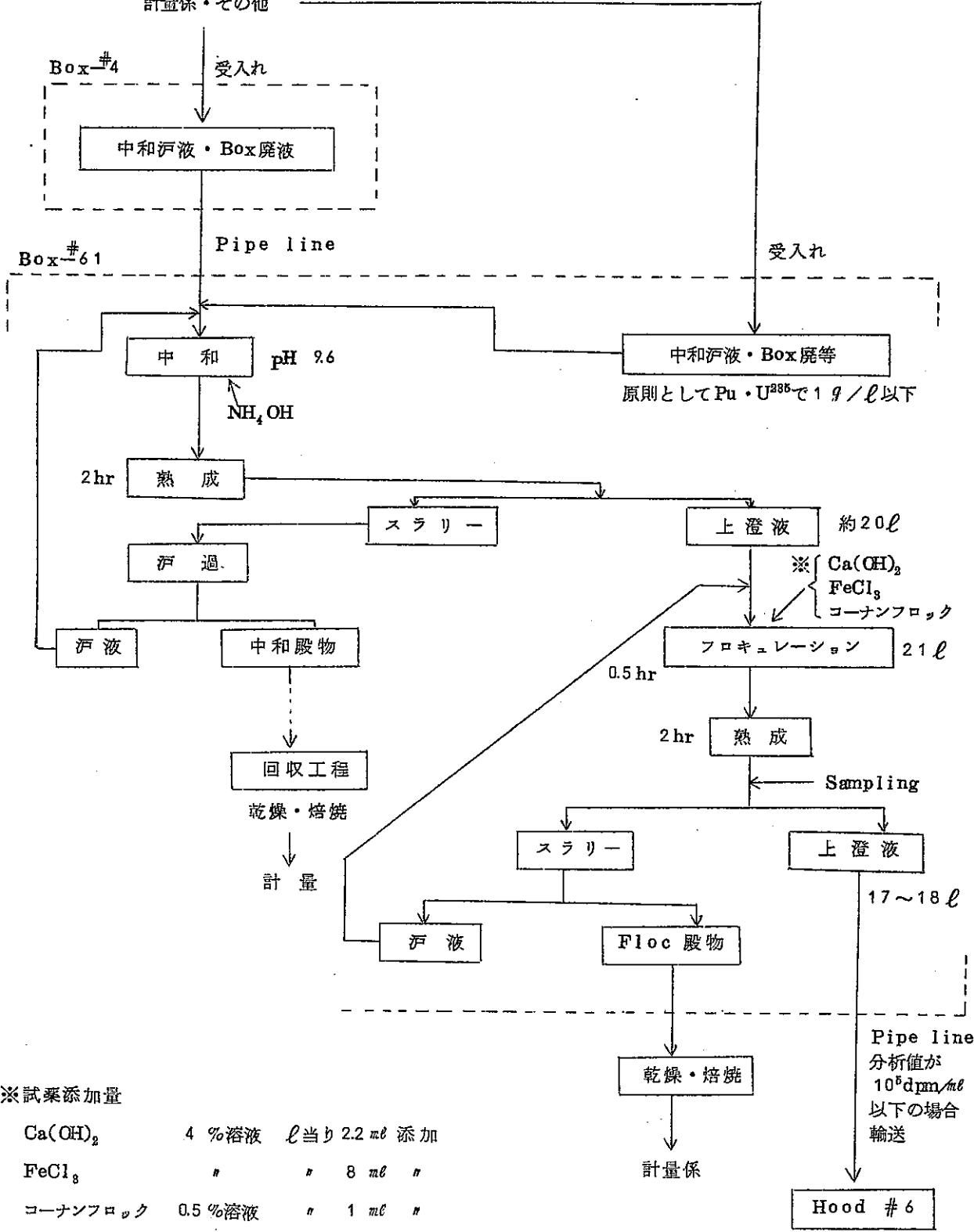


Fig. 5 一次フロックフローシート

二次 Floc.

## 2.2.2 処理条件

### (1) 原料・副原料

- 放射性廃液
- アンモニア水
- 塩化第二鉄
- 消石灰
- 高分子凝集剤(コーナンロック)

### (2) 作業方法

#### 受入

原則として  $1\text{g Pu-U}^{235}/\ell$  の溶液を受入れる。

※ 現在は中和ろ液のみ受入れている。

#### 中和

pH試験紙(T.B.)で pH 9.6

※ 現在は Box # 6 1 で中和工程を行なっていない。

#### Floc

##### 試薬添加

$\text{Ca(OH)}_2$  : 4%  $\text{Ca(OH)}_2$  溶液を廃液  $1\ell$  当り  $2.2\text{ ml}$

$\text{FeCl}_3$  : 4%  $\text{FeCl}_3$  溶液 // //  $8\text{ ml}$

コーナンロック :  $5\sim 1\text{g}/\ell$  コーナンロック // //  $1\text{ ml}$

攪拌速度 約  $70\text{ rpm}$  -  $10\text{ 分}$

※ 試薬量は多少違っていてもかまわない。

#### 熟成

攪拌速度 約  $30\text{ rpm}$  で  $20\text{ 分}$

$2\sim 4\text{ hr}$  熟成

#### Sampling (α計測用)

$10\text{ ml}/11\text{ lot}$

#### 処理液輸送

分析値が  $10^5\text{dpm/ml}$  以下なら二次フロックのフードへ輸送

※ 現在は  $5\times 10^3\text{dpm/ml}$  以上なら再Floc.する。

## 2.2.3 46年度の結果

46年度に処理した廃液はTable 5, およびFig. 6の通りである。

昨年度後半から46年度にかけてでてくる廃液は多種少量でBox # 6 1の中和タンクでの中和処理では、そのたびにTank; Pipe line等の洗浄を行なわなければならず、

9月以降からはそれらを考え、他のBox (#6, #81)で中和処理し、その中和ろ液をBox #6 1でFloc処理した。

なお装置上のトラブルとしては、真空ポンプの翼の交換、Box #4—Box #6 1間のPipe lineの硝酸アンモニウムラしきものでのつまりのみで他にTank・電磁弁等のトラブルは生じなかった。一回のトラブルで3～5回の日数が費いやされた。

またグローブボックス間及びグローブボックス→フード間の送液用 Pipe line も1～2カ月に1回表面直接サーベイ法によりその汚染等をチェックしたがこれにも各回とも異常は認められなかった。

廃液の種類によって処理の容易なものと、そうでないものがあり、B棟廃液等は再Flocの回数が多い。

再FlocしてもD・Fが低い液は現在使用している凝集沈殿法では限界がみられる。そのような液はFloc法をやめ、カラム等を使用して、なんらかに吸着させる方法で処理した方が良かろう。

その他廃液処理工程に付随する作業及びその問題点として使用済ポリビンの処理がある。これはハサミ等により切断し廃棄したが、この方法にも種々問題点（ハサミによるグローブの破損）がある。

なおこの作業における処理能力としてはポリビンを原型のまま廃棄すると200ℓ収納ドラム缶1ヶにつき24本入るが、切断処理後収納すると96本となり4倍となる。しかし前述の問題点や処理効率からしても決して十分とはいはず早急に改善しなければならず付随作業として最大の問題点ではないかと思われる。ちなみに46年度処理したポリビンは約160本である。

Fig.7は一回のフロックでの除染効率が悪くフロック処理を繰返した場合の除染の状態を図示したものである。液の種類や放射能濃度によって異なるが、平均のD・Fは50～3程度で特に再フロックでのD・Fは10以下の場合が多い。

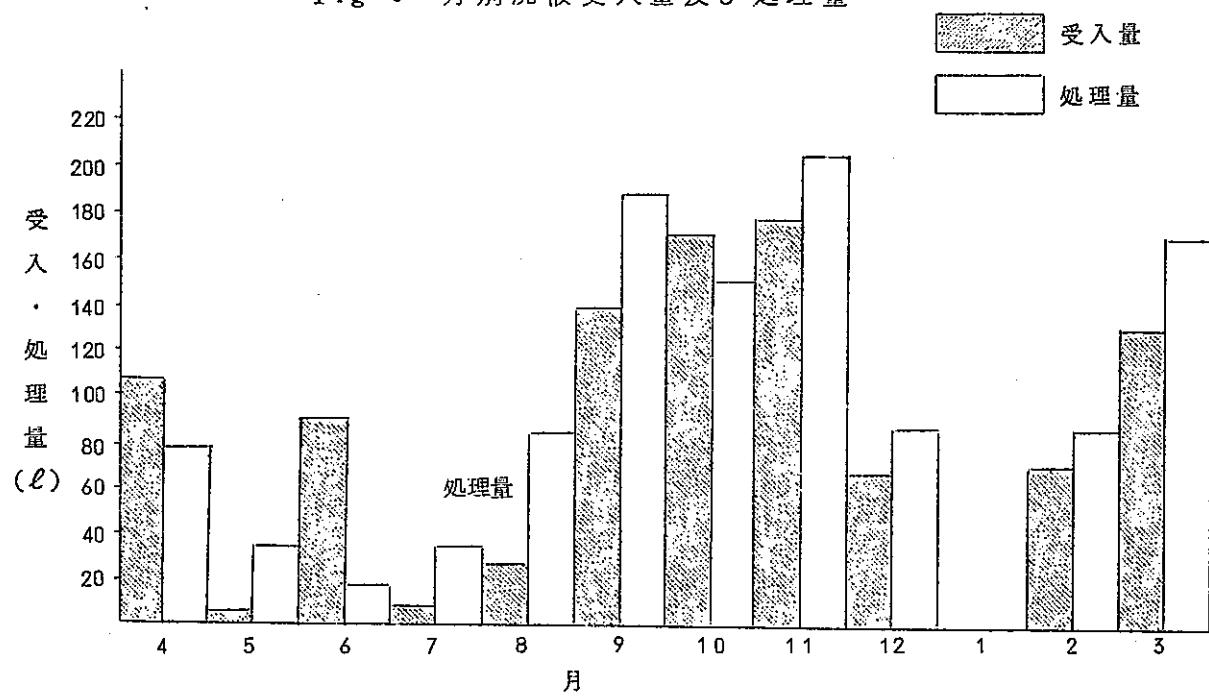
なお、1回のフロック後でも放射能度が高い場合は液を酸性に1度戻してからフロックをしなおすと効果がある。

Table 5 昭和46年度月別廃液処理状況(一次フロック)

分類	月	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	計	平均
処理量 ℥		68	34	17	34	85	187	153	204	85	0	85	170	1122	93.5
受入量 ℥		*103	*6	*90	*7	*24	138	171	178	63	0	70	132	982	81.8
内訳	Gp-01, 10, 29	16	6	54	7		138	171	88	42	0	36	75	633	52.8
	中和済液 その他Gp-04	24							90	21	0	24	57	216	18
	B棟廃液 *	63		36							0			99	8.3
	分析廃液 *					24					0			24	2
処理バッチ数		4	(1) 2	1	2	5	(1) 11	(6) 9	12	(1) 5	0	5	(2) 10	(11) 66	(0.9) 5.5
Hoodへの移動量 ℥		17	34	51	68	51	153	153	187	102	0	119	119	1054	87.83
処理液中のPu量 (μg)		9221	547.4	290.7	710.6	6056	31341.2	28029.6	12648	2813.5	—	5125	16626	113409	9450.75
処理液平均濃度 dpm/ml		4236	1005	2134	1309	1781.2	1904.9	645.4	645.4	828	—	1507.6	1224		1680.2

- 注)
- \*中和する前の原液での受入量で、したがって4~8月に受入れた液の1.5倍が処理液となっている。
  - 処理バッチ数の( )内に記入されている数字はその月におこなった再Flucの数である。
  - 3/31現在Box 61内にある処理液は4 Lot 分で 4 Lot + Hood 移動量=処理量となる。
  - 1 Lot は約17 ℥である。
  - 1月はTCA応援のため廃液処理は中断された。

Fig 6 月別廃液受入量及び処理量



○ 9月からは計量廃液 etc をBox #8 1と#6で中和し  
中和ろ液のみを処理したため受入及び処理量が増えている。

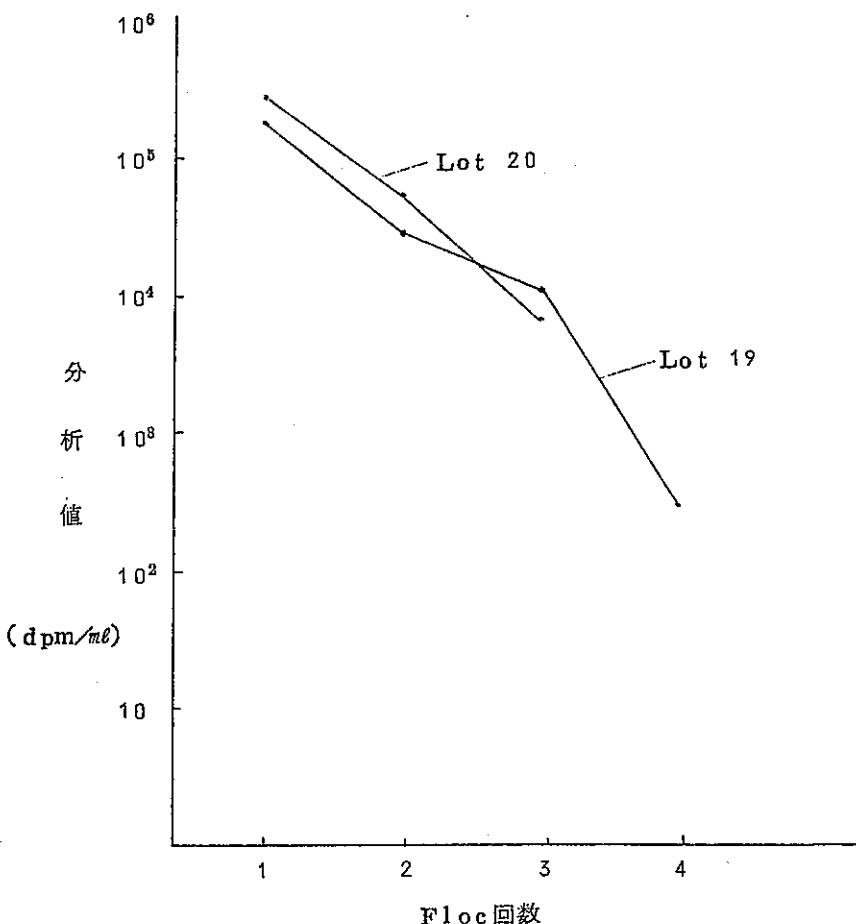


Fig 7 繰返しフロックの効果

## 2.3 二次フロック

## 2.3.1 フローシート

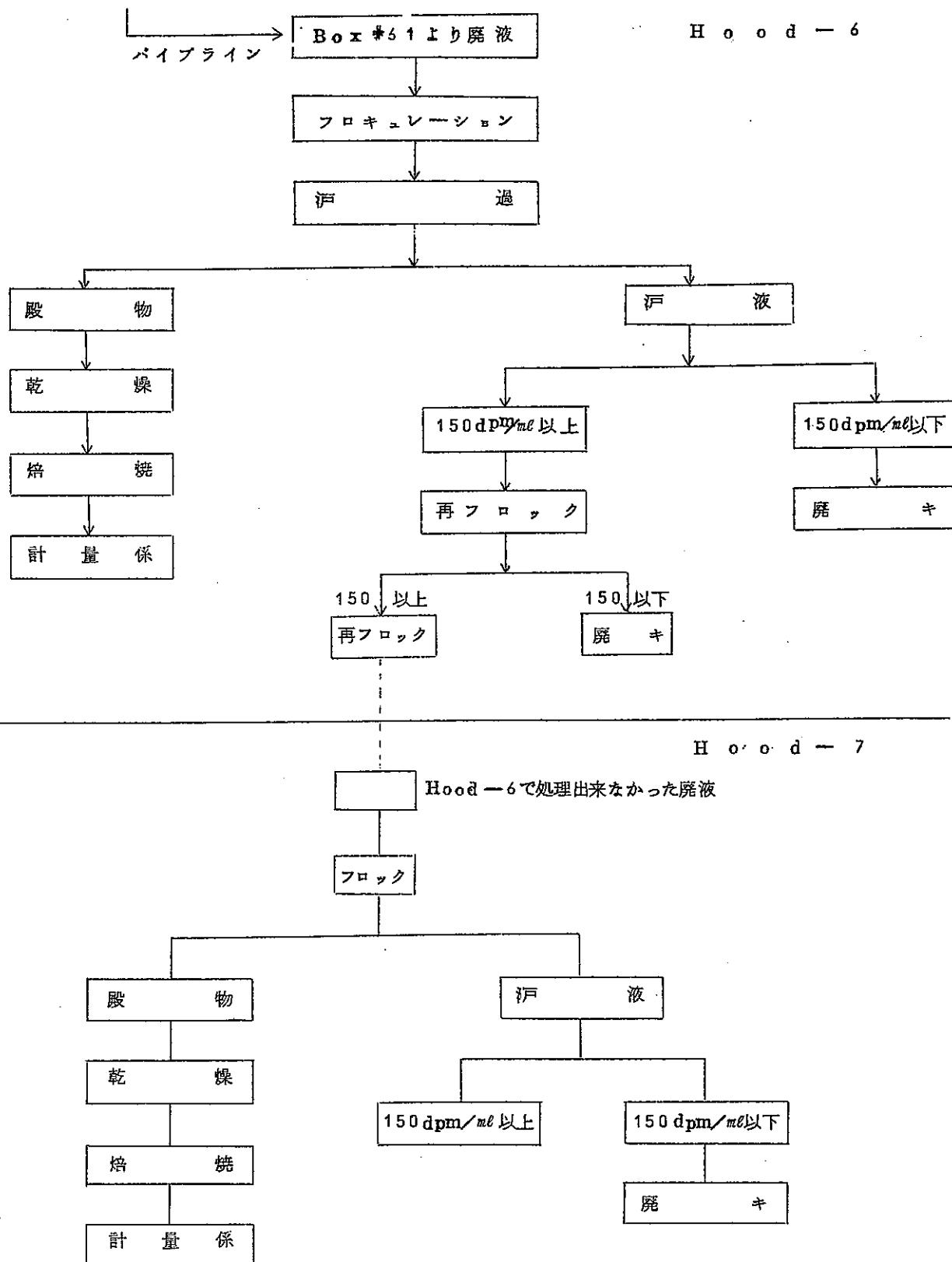


Fig. 8 二次フロック工程フローシート

### 2.3.2 作業方法

#### 1. Hood - 6

##### 1-1 廃液の受入れ

廃液の受入れは輸送廃液量が 18 ℥以下で分析値が  $10^5 \text{ dpm}/\text{ml}$  以下である事を確かめ Box #6 1 担当者と打合せてパイプラインにより受入れる。

1-2 ラジオライト約 50 g (18 ℥) を添加し攪拌する。

1-3 4% Ca(OH)<sub>2</sub>を廃液 1 ℥当り 2.2 ml を添加する。

添加は廃液を約 70 rpm で攪拌しながらおこなう。

1-4 4% FeCl<sub>3</sub>を廃液 1 ℥当り 8 ml とする。

1-5 高分子凝集補助剤スミフロック (1 g/ℓ) を廃液 1 ℥当り 0.8 ml とする。

1-6 試薬の添加が終ったら攪拌速度を約 30 rpm 程度に下げ約 30 分おこなう。

1-7 熟成を終了した廃液はヌッチャで戻過する。

1-8 汚液は  $\alpha$  計測を依頼する。

分析値  $150 \text{ dpm}/\text{ml}$  以下 ストレージタンクに流す。

$150 \text{ dpm}/\text{ml}$  以上 再処理する。

#### 2. Hood - 7

2-1 フード 6 で除染しにくい廃液を 3 ℥で受入れる。

2-2 廃液を硝酸で酸性領域にもどす。

2-3 ラジオライト約 10 g を加える。

2-4 4% Ca(OH)<sub>2</sub>, 1 ℥当り 2.2 ml, 4% FeCl<sub>3</sub>, 1 ℥当り 8 ml を添加する (マグネチック スタラーを使用する)。

2-5 1 g/ℓ スミフロック 1 ℥当り 1 ml 添加する。

2-6 試薬添加終了後攪拌 20 分, 熟成 20 分おこなう。

2-7 ヌッチャは用いて戻過する。

2-8 汚液を  $\alpha$  計測してもらう。

分析値  $150 \text{ dpm}/\text{ml}$  以下 廃棄する

$150 \text{ dpm}/\text{ml}$  以上 再処理する

### 2.3.3 46 年度の結果

計量係の貯蔵庫の整理, 手持廃液の増加等により廃液処理の必要を強くせまられ処理量を増大させるため 46 年 9 月 20 日以降プルトニウムの廃棄濃度を  $50 \text{ dpm}/\text{ml}$  以下から,  $150 \text{ dpm}/\text{ml}$  以下とした。

また作業工程に於いても攪拌時間を 30 分短縮させた。沈降促進剤としてコーナンフロックを使用していたけれどもスミフロックを使用し沈降速度が早くなり, 沈殿粒子も大き

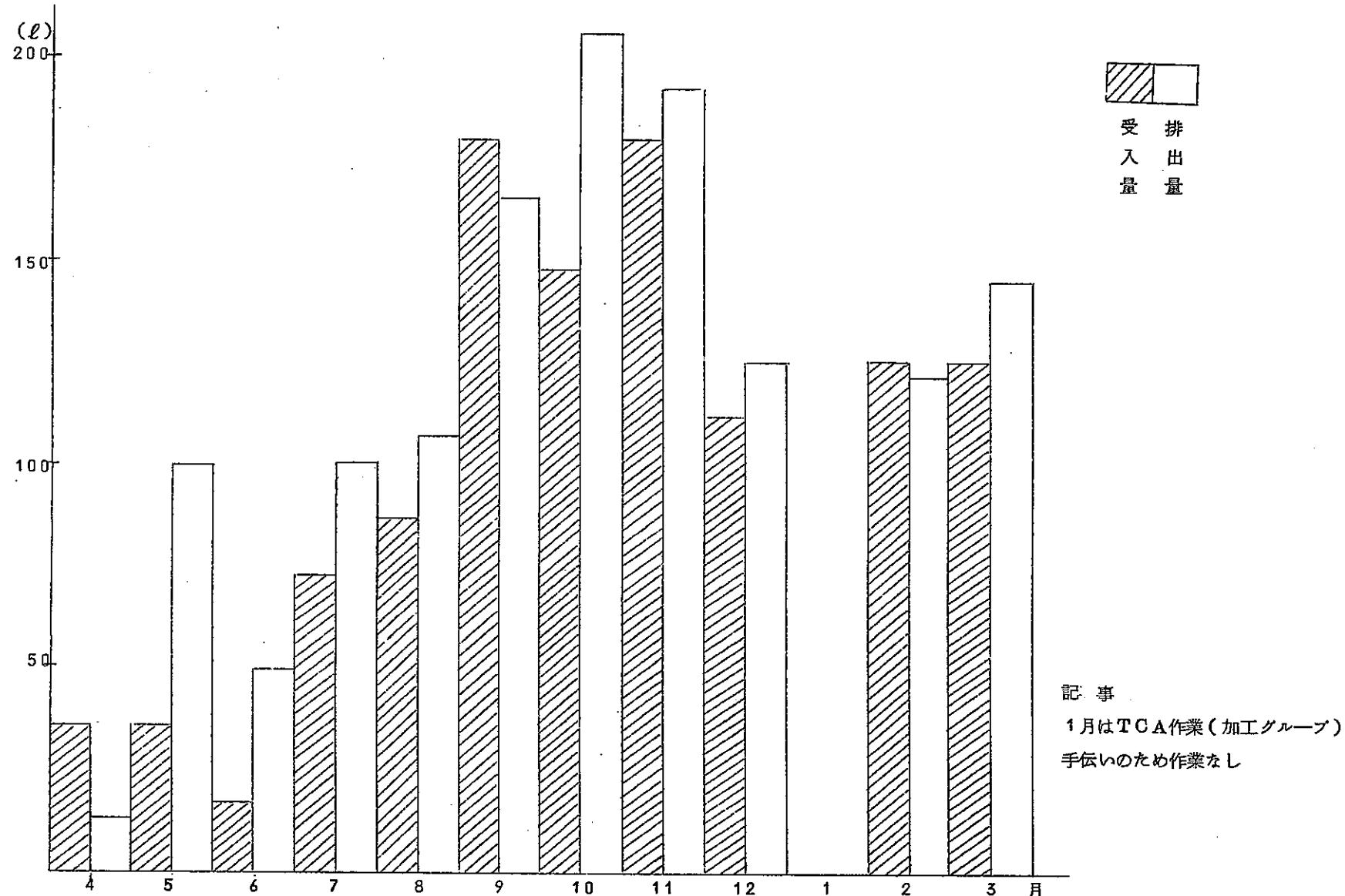
く済過時間の短縮に役立った。済過工程に於いては済過助剤としてラジオライトを添加して済過に要した時間は今までの約1/3の30分位で終了するようになり廃液処理作業工程上の時間の短縮、処理量の増大に役立つ事が出来た。

Table 6; Fig 9 に月別の処理量等を示す。

すなわち総量として約1.3tの処理済み廃液を地下に放出し、その廃液は0.8mgのプルトニウムを含んでいた。これを平均すると廃液濃度で $0.64\mu g\text{ pu}/\ell$  ( $\equiv 80\text{ dpm}/\text{ml}$ )であった。

Table 6 月別廃液処理結果

月	受入量( $\ell$ )	ロット数	floc数	廃棄量( $\ell$ )	廃棄量(Pu) $\mu g$	概算工数(日)
4	36	2	11	13.5	6.96	19
5	36	2	7	96.6	33.76	15
6	18	1	6	48.6	27.36	11
7	72	4	10	101.3	58.08	19
8	88	5	5	107.0	64.00	9
9	180	10	13	165.9	86.4	17
10	148	8	15	206.7	149.92	19
11	180	10	17	191.7	128.48	18
12	112	6	13	125.4	105.92	14
2	126	7	7	121.0	57.92	12
3	126	7	7	145.0	124.0	14
計	1,122	58	111	1,322.7	842.80	167



## 後記

- 同室作業者が1名になる時があり安全作業上作業がしばしば止ぎれる事があった。
- 47年1月中はTCA作業（加工グループ）手伝いのため廃液処理は出来なかった。
- ラジオライトを試薬添加前に加えて攪拌を10分位する事はラジオライトにPuを吸着させるため、その結果二回以上のフロック（大半は一度で済り）をすることがなかったのは効果があったのではないか。（前には二、三回のフロックはあった。）
- 廃液の種類によって処理の容易なものとそうでないものがありこの処理の解決が次の課題である。
- 装置の老朽化
  - 真空ポンプ
  - アングルの鏽
  - 攪拌機の回転

## 2.4. 焙焼

廃液処理工程で生成する中和廃物、フロック廃物は単に乾燥しただけでは保管中にガスが発生し、廃物容器をつつんでいるポリ袋がふくれたりする現象が認められ、安全上問題があることが指摘された。それ故今年度からこれらを計量保に移動する際には高温で焙焼することが要求された。なおこの焙焼は廃物容量減少化の効果もある。

46年に実施した焙焼の記録はTable 7に示す様である。中和廃物についてはPu—20%EU, Pu—60%EU, Pu—90%EUの作業から蓄積していった種々な廃物を処理してしまい、フロック廃物ではドラム罐1本分を処理した。

なお焙焼は当初700°C, 1 hrで実施したが、400°C, 1 hrでも十分であると判断して途中からこれに切りかえた。理由はNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> (B. P. 210°C)は400°Cで十分除去出来ることと、低温焙焼物の方がU, Puの回収処理にまわした時溶解されやすいことである。

Table 7 焙焼記録

Lot No.	焙焼月日	種別	焙焼前重量	焙焼後重量	焙焼温度
12	4—2	ADUケーキ 90%EU		192.4 g	700°C
13	4—7	RI-52,53吸廃 20%EU	248.60 g		"
14	4—8	RI-47中和廃物 "	208.50 g		"
15	6—23	分析廃中和廃物 "	500.00 g	589.20 g	"
16	6—24	" "	500.00 g		

Lot No.	焙燒月日	種 别	焙燒前重量	焙燒後重量	焙燒溫度
17	6—28	分析廐中和殿物 NU	791.00 g	480.00 g	700°C
18	6—30	分析廐中和殿物 20% EU	145.10 g		"
19	7—2	中 和 殿 物 NU			"
20	8—18	"			400°C
21	8—19	"			"
22	9—22	フ ロ ッ ク 殿 物	400.00 g	100.00 g	"
23	9—23	"	"	"	"
24	9—25	"	"	"	"
25	"	"	"	"	"
26	9—28	"	"	"	"
27	9—29	"	"	"	"
28	9—30	"	"	"	"
29	"	"	"	"	"
30	10—1	"	"	"	"
31	"	"	"	"	"
32	10—4	"	"	"	"
33	12—15	"	"	"	"
34	12—16	"	"	"	"
35	12—17	"	"	"	"
36	"	"	"	"	"
37	12—18	"	"	"	"
38	10—28	中 和 殿 物 NU系	—	450.61 g	
39	11—2	中 和 殿 物		121.14 g	
40	11—8	"		15.54 g	
41	11—9	"			
42	"	"			
43	11—12	"		79.63 g	
計 32 Lot					

## ま　　と　　め

46年度は発足したばかりの新しい組織で、人員も少なかったので色々な困難にぶつかったが皆の努力で大体初期の目標を達成出来たと思う。ここに具体的な成果等をまとめて記す。

[I] U, Puの回収では PE 001系( Puは Standard 級, Uは20%濃縮 )の中和殷物, テイシム焼却灰等を処理して下記の結果を得た。

(i) 溶媒抽出で 565g のウランを回収し、その純度は極めて良好であった。ただしこのウランは平均 0.6% の Pu を含有していた。

そして抽出効率は 80 ~ 90% であった。

(ii) イオン交換で約 120g のプルトニウムを精製回収した。

(iii) 回収での物質取扱いは分析等の問題もあって必ずしもはっきりとしたものが得られなかった。これは今後の問題として残った。

[II] 廃液処理は従来の方法に準拠しておこない、下記のような結果であった。

(i) 約 1,000ℓ の廃液（工程廃液と分析廃液）を中和、一次フロック、二次フロックのプロセスで処理し、最終的に約 1,300ℓ の処理済み廃液を地下の LLDタンクに放出した。

これにより従来より計量係に保管蓄積されていた廃液の約 2/3 を処理してしまった。

(ii) 地下の LLDに放出された廃液中の Pu 総量は放射能より計算すると約 0.8mg であり、その放出廃液の平均濃度は  $0.64 \mu\text{g Pu}/\ell (= 80 \text{ dpm}/\text{ml})$  であった。

(iii) 廃液の種類によっては除染が非常に困難なものがあり、このようなものには何回もの繰返しフロック処理が必要であった。（注 DF; 50 ~ 3）これに対しては特別な処理対等を考えないと作業能率を非常に低下せしめる。

(iv) 副次的なことであるが作業効率を低下させる他の事項として、廃液容器のポリビンの処理にかかりの時間と労働を費した。この 1 年間に切断廃棄処分したポリビンの数は約 160 本にも達した。この点も今後に残された問題である。

[III] その他

(i) TCA 用燃料棒の加工作業に約 1ヶ月間従事した。

(ii) これまで蓄積していたフロック殷物（ドラム缶 1 本）を焙焼処理し、計量係に引渡した。

## 謝　　辞

本作業を実施するにあたり御援助いただいた品質管理課の方々、製造第 1 課の伊藤課長(代)、本レポートをまとめるに当りアドバイスをいただいた 桟副主研の諸氏に感謝の意を表する。