



昭和47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,
放射性廃液処理等の定常ならびに開発業務

1973年9月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、限られた範囲の関係者に配布するものです。供覧、複製、転載、引用、レファランスおよびその他の利用には、事業団の承認が必要です。なお、開示制限が解除になった場合には、その旨通知します。

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所技術部研究管理課

昭和47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,
放射性廃液処理等の定常ならびに開発業務

実施責任者	小泉益通	(^{プルトニウム燃料部} 開発課)
報告者	柏明成木芳	(〃)
都所昭雄	三村平	(〃)
佐々木仁	細井信博	(〃)
本多淳	(現製造第1課)	

作成 1973年7月25日

期間 1973年4月1日～1973年3月31日

目的 47年度に実施したプル燃部、開発課試料係の湿式関係の定常ならびに開発業務をまとめ参考に資する。

本年度は業務内容をつきの各項目において実施した。

- (1) 開発課で製造する燃料ペレットからのウランおよびプルトニウムの精製回収。
- (2) 第1開発室で発生する各種廃液(分析廃液、イオン交換廃液、溶媒抽出廃液および中和廃液等)および技術部開発研究室で発生する廃液(分析廃液、イオン交換廃液)の処理。
- (3) 定常単位操作の方法および処理条件等の改良と開発研究。

各項目について前年度より残された問題の解決にも努め、その実績はつきの通りである。

- (1) DCA特殊燃料(PuO_2-ZrO_2 ペレット)用プルトニウム(7.5.3% fissile)を残留TCA燃料から精製回収して、ペレット製造グループに供した。
- (2) 第1開発室で発生した分析廃液(210ℓ), 湿式グループのイオン交換および溶媒抽出操作によって発生した廃液(243ℓ)および技術部開発研究室からの廃液(34ℓ)をそれぞれ処理した。
- (3)-1. 従来の廃液処理工程(中和→1次フロキュレーション→2次フロキュレーション)の省力化を計るため、中和処理後の1, 2次フロキュレーション処理を省略し、これに代る蒸発濃縮装置を新設してその目的を達した。(3)-2 溶媒抽出法に関する作業標準を作成した。
- (3)-3. 従来から未処理のままボックス内、フード内に保管されていた有機溶媒廃液の処理法を検討し、ゲル状固化法を開発した。

目 次

1. 試料係・湿式グループの47年度業務計画表	1
2. DCA特殊燃料(PuO_2-ZrO_2)用プルトニウムの回収 (イオン交換法—シユウ酸沈殿法)	2
2-1 回収計画と回収フローシート	2
2-2 溶解法(PuO_2-UO_2)	4
2-3 結果	5
2-4 被ばく量の計算と結果	8
3. 廃液処理	
3-1 中和処理	11
3-2 1次フロキュレーション	14
3-3 2次フロキュレーション	18
3-4 焼	22
4. 定常単位操作の方法および処理条件等の改良と開発研究	23
4-1 蒸発濃縮装置の新設とその稼動状況	23
4-2 溶媒抽出法作業標準の作成	29
4-3 有機溶媒廃液のゲル状固化法の開発と安全作業基準の作成	33
4-4 その他の作業	43
5. まとめ	47

第1表 47年度試料係湿式関係業務計画表

1. 試料係、湿式グループの47年度業務計画表

開発課、試料係湿式グループの47年度における業務計画表をつぎに示す。

項目 日 程	47年 度												48年 度		
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	4	5	6
46年度業務報告書作成															
新・旧装置等解体および設置作業 (含、局立合検査)															
DCA特殊燃料用Puの回収(I)															
II 廃液処理(含、中和、フロキュレーション)															
焙焼作業(中和殿物、フロック殿物等)															
蒸発濃縮装置運転															
有機溶媒グル化処理実験															
ラブソディーV関係業務(溶解、精製)共沈															

2. DCA特殊燃料 ($\text{PuO}_2 - \text{ZrO}_2$) 用プルトニウムの回収

(イオン交換法—シュウ酸沈殿法)

47年度当初、試料係乾式グループより大洗工学センターのDCA(重水臨界実験装置)において、 ^{240}Pu の核的特性(^{240}Pu の熱外領域における断面積)の測定を行なうために必要な $\text{PuO}_2 - \text{ZrO}_2$ ベレット燃料の製造を実施するに際して、プルトニウムの精製回収の依頼がなされた。

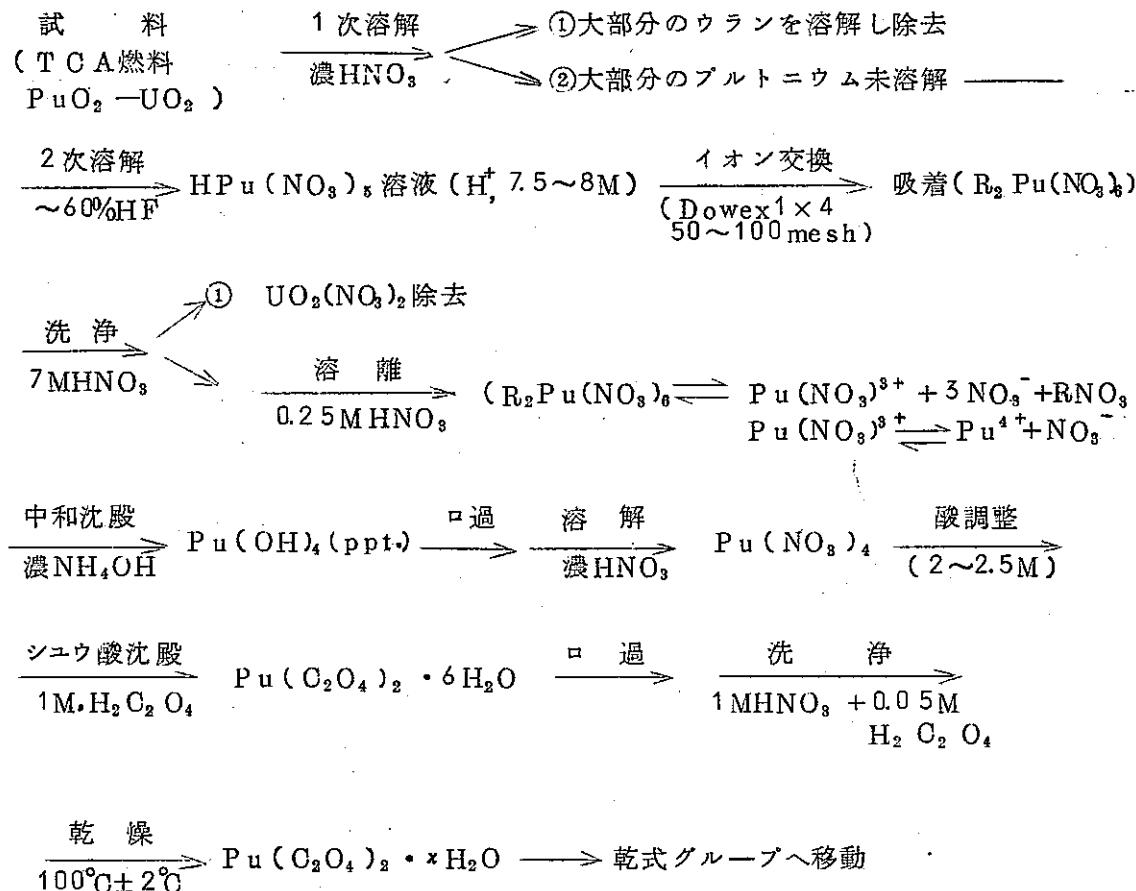
湿式グループは、残留 TCA 燃料からプルトニウム(75% fissile)を回収し、上記目的に応えるため、イオン交換法—シュウ酸沈殿法を実施した。

なお、本実験の遂行に際して、 ^{241}Am の挙動を追跡したので併せて報告する。

2-1 回収計画表および回収フローシート

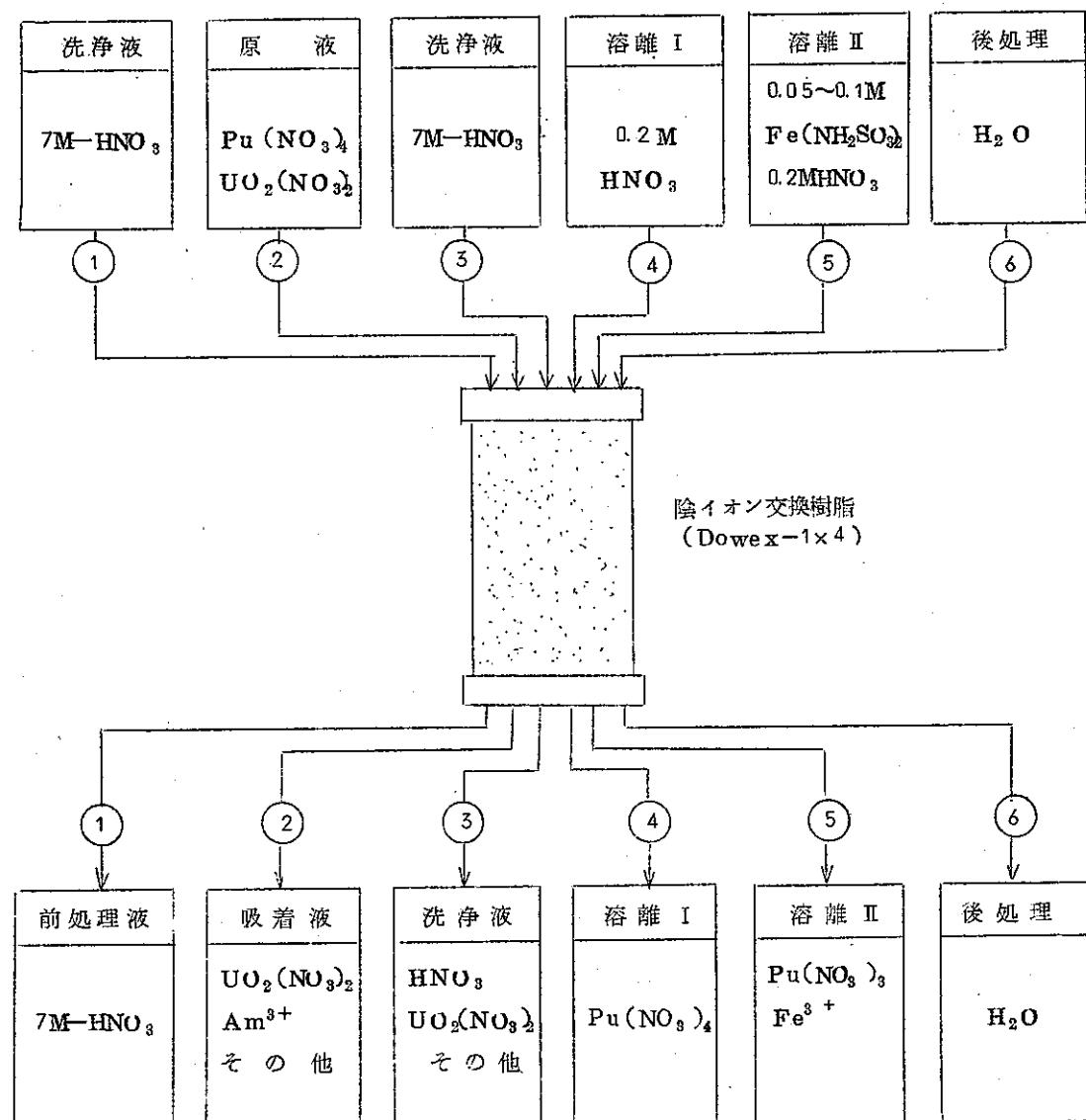
① 回収計画表

② 回収フローシート



③ イオン交換条件

イオン交換条件とフローシートを次頁にしめす。



第1図 イオン交換フローシート

第2表 回収計画表

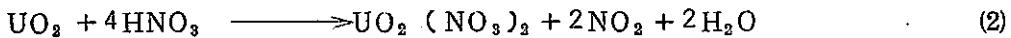
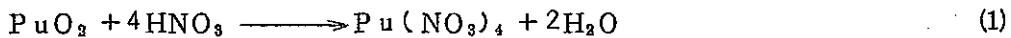
日 程 項 目 \	6月	7月	8月	9月
グローブ・ボックス 整備	(1)			
溶 解 (含原子価調整)	(1)		(2)	
イオン交換精製	(1)			(2)
NH ₄ OH沈殿, NH ₄ NO ₃ 溶解	(1)			(2)
シユウ酸沈殿		(1)		
乾燥		(1)		
培養		(1)		
廃液処理		(1)		
各種試薬調製	(1)			

(註) : (1), 1st Run

(2), 2nd Run

2-2 溶解法 ($\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$)

濃硝酸を使用した場合のプルトニウムおよびウランの溶解反応は下記のとおりである。



ところでプルトニウムの回収に使用した燃料は先述のごとく残留 TCA 燃料であり、ペレットあるいは粉末は、焼結されていないためにプルトニウムとウランが固溶体を形成していない。したがって、濃硝酸による沸煮だけでは、プルトニウムは、そのほとんどが溶解しない。

ここで、プルトニウムが溶解しにくいことを利用して以下に述べるようなプルトニウムの分別溶解法を試みた。

UO_2 と硝酸との反応は非常に激しいために加熱溶解を行なう前にポリエチレンビーカー内で室温にて溶解する。室温溶解したのち残ったものを、以後の加熱溶解の試料とした。加熱溶解は、あらかじめ溶解槽内に適量の濃硝酸を加えておき加熱を開始した後、硝酸温度が 80°C になった時上記試料を添加する。(添加中は 80°C に保持) 添加終了後 110°C まで昇温し同温度で 3 時間保持して溶解を行なう。溶解終了後、室温まで降温し上澄液を抜き取り、これをイオン交換精製の原料とする。受入れたペレット(および粉末)について上記サ

イクルをくり返し、全量について終了した後、溶解残査（受け入れたPuの大部分）に濃硝酸と濃フッ酸を添加してプルトニウムを溶解する。第3表に溶解工程における物質収支をまとめてしめした。

第3表 溶解工程における物質収支

工程	残留TCAペレット の受け入れ量		conc. HNO ₃ のみによる溶解			conc. HNO ₃ + conc. HFによる溶解		
	Pu(g)	U(g)	硝酸消費 量(l)	Pu(%)	U(%)	硝酸消費 量(l)	フッ酸消費 量(ml)	Pu(%)
1	64.17	2053.31	6.0	17.37 (27.1)	1317.80 (64.18)	3.0	4.0	51.30 (79.9)
2	61.54	1468.00	3.0	9.9 (16.1)	1101.00 (75.0)	1.3	4.0	58.36 (94.8)

プルトニウムについては硝酸のみによる場合、その溶解量は、25%以下であり、残りのものは硝酸—フッ酸の混酸でないと溶解せず、プルトニウムの分別溶解はかなりうまくいくことがわかつた。ただその後のプルトニウムとウランの分離回収工程を考えると、溶解工程でのプルトニウム中へのウラン混入量をできるだけ低くしておこることが大切であり、混入量を少なくするような対策を講ずる必要がある。溶解における物質収支はプルトニウムでは110%となっているが、これはアメリシウムの妨害による分析誤差によるものと思われ。受け入れたプルトニウムはほとんど損失なく溶解することができたと考えられる。

2-3 結 果

2-3-1 溶解—シユウ酸沈殿全工程における物質収支

・残留TCA燃料からシユウ酸プルトニウムとして回収するまでの全工程における物質収支を第4表にしめす。

[Pu]

第4表 全工程における物質収支

工程 ロット番号	Pu 受入量	製品 Pu 回収量	吸着廃液	溶離(I)	溶離(II)	溶離(III)	洗浄液	シユウ酸 沈殿ロ液	処理残量 計
1	R I - 7	g	g	2.29"	g	g	g	g	g
	R I - 8	64.17	46.74	8.48"	—"	—"	5.40"	2.16	0.87
2	R I - 9	g	g	2.54"	0.19"	—"	5.66"	2.11	0.38
	R I - 10	61.54	45.92	1.12"	0.15"	2.31"	0.95"	g	15.41

2-3-1 分析結果

イオン交換溶離液、シユウ酸プルトニウムならびに焙焼還元粉中のウラン含有量ならびに各種不純元素の分析結果を第5表にしめす。

第5表 分析結果

元素番号	R I - 7 ppm	R I - 9 ppm	シユウ酸プルトニウム ppm	焙焼還元粉 ppm
A g	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
A l	2.5	1.5	<1.0	<1.0
B	<0.4	<0.3	<0.3	1.0
C d	<1.0	<1.0	<1.0	<1.0
C n	<1.0	<1.0	<1.0	<1.0
C u	<1.0	<1.0	<1.0	1.0
F e	<1.0	<1.0	<4.0	<1.0
M g	<2.0	<2.0	<2.0	3.0
N i	<1.0	<1.0	<1.0	2.60
S i	<3.5	<1.0	<1.0	<1.0
V	<1.0	<1.0	<1.0	<1.0
Z n	<5.0	<5.0	<5.0	<5.0
U	—	—	—	① 1,800 ※ ② 1,200

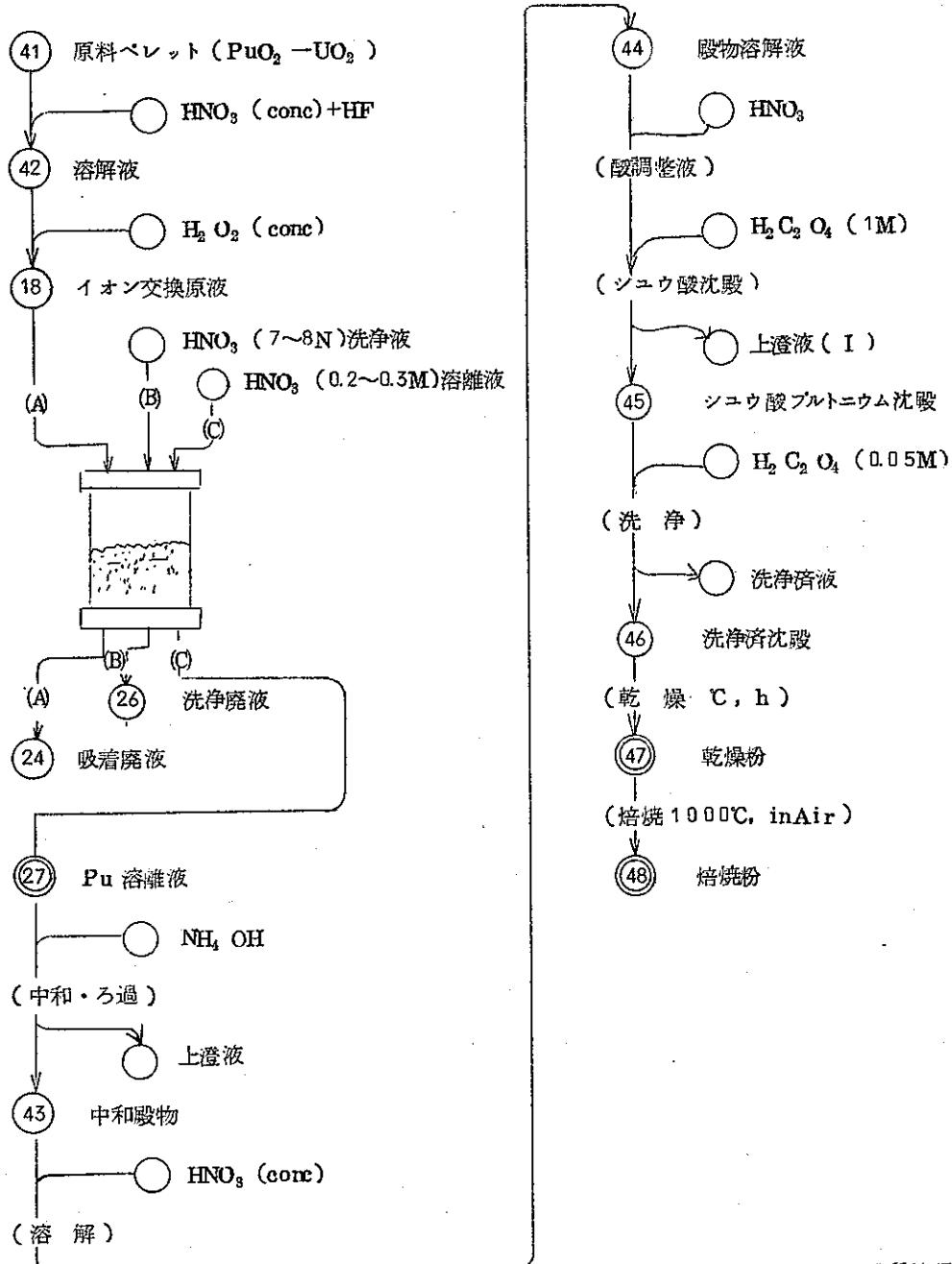
※ DCAスタンダードプルトニウムの分析値；1,500 ppm

なお、分析係で作成されたDCA用PuO₂回収工程における分析試料採取点を第6表にしめしておく。

第2図 DCA用PuO₂回収工程

分析試料採取点

依頼工程番号: WA, 課題番号: KAISYU-DCA



品質管理課 分析係提出

さらに分析結果からウランならびにアメリシウム-241の除染係数を計算した結果つ
ぎのような値が得られた。

(ウランについて)

RI-7 フィード $P_u/U = 0.26$ プロダクト $P_u/U = 517.0$

故に $DF(P_u) = 1.99 \times 10^3$

RI-9 フィード $P_u/U = 0.79$ プロダクト $P_u/U = 517.0$

故に $DF(P_u) = 2.52 \times 10^2$

(アメリシウム-241について)

RI-7 フィード $A_m/P_u = 1.24 \times 10^{-3}$ プロダクト $A_m/P_u = 2.35 \times 10^{-6}$

故に $DF(A_m) = 1.89 \times 10^3$

RI-9 フィード $A_m/P_u = 8.07 \times 10^{-5}$ プロダクト $A_m/P_u = 4.26 \times 10^{-6}$

故に $DF(A_m) = 5.28 \times 10^2$

2-4 被ばく量の計算と結果

ここでは、1例としてPu量 61.54%を扱った場合に受ける被ばく量を計算したものをしめす。

(被曝量の推定)

今回、追加する実験において受ける被曝量を下記の仮定のもとで推定してみる。

(仮定) ① 高次化(75% fissile), Pu 61.54%を対象として考える。

- ② 鉛板、鉛ガラス、鉛入りグローブによる遮蔽効果は考えない。
- ③ ボックス内におけるPuは通常作業者より 30 cm の距離に存在するものとする。
- ④ 全工程を通じての平均ボックス作業時間は 4 hrs/d とする。
- ⑤ 回収作業時間は 40 日とする。

(計算) r 線による被曝量

① 75% fissile Pu の表面線量率 D_s

Cutie pie による容器(アルミ製弁当箱)の表面線量率の実測値(5 cm の距離から)は 24 mR/hr である。ここでアルミ板による遮蔽効果を補正すると 72 mR/hr(約 3 倍)となる。

故に $D_s = 2\pi r^2 \times 72 / 45.6 \text{ cm}^2$

$= 1130.4 / 45.6 \text{ cm}^2$

$= 24.79 \text{ mR/hr.cm}^2$ (但し Cutie pie の表面積を 45.6 cm²とした)

② 空間線量率 DR

(i) Pu が通常 3 l のポリビンに溶液として入っているとした場合、

(3 l のポリビン断面積: 280 cm², 距離: 30 cm)

$DR(1) = D_s \times A / 2\pi r^2$

$24.79 \text{ mR/hr.cm}^2 \times 280 \text{ cm}^2 / 5652$

$$= 6941.2 / 5652$$

$$= 12.3 \text{ mrem/hr.}$$

これに作業日数および1日当たりの作業時間を考えると、

$$12.3 \times 160 = 1968 \text{ mrem}$$

(ii) Pu がイオン交換樹脂塔に吸着された場合

(塔の断面積: 240 cm^2 , 距離: 30 cm)

$$DR(2) = 247.9 \text{ mR/hr} \cdot \text{cm}^2 \times 240 \text{ cm}^2 / 2\pi r^2$$

$$= 5949.6 / 5652$$

$$= 10.5 \text{ mrem/hr}$$

これに作業日数および1日当たりの作業時間を考えると

$$10.5 \times 160 = 1680 \text{ mrem/hr.}$$

中性子線による被曝量

$$D_n (0.1928Pu^{238} + 0.005Pu^{231} + 0.0132Pu^{240} + 0.0188Pu^{241}) \times 10^{-2}$$

$$\times M / r^2 = 0.00041 \text{ mrem/hr}$$

これに作業日数および1日当たりの作業時間を考えると、

$$0.00041 \times 160 = 0.065 \text{ mrem}$$

以上の結果、75% fissile Pu 61.54% を回収するに際して受ける被曝線量は下記のとおりとなる。

$$DR(1) + DR(2) + D_n = 1968 \text{ mrem} + 1680 \text{ mrem} + 0.065 \text{ mrem}$$

$$= 3648.065 \text{ mrem}$$

(結論)

- ① 本推定計算においては、鉛板、鉛入りガラス、鉛入りグローブ等による一切の遮蔽効果を考慮に入れていない。
- ② 日常作業においては、全ボックスに 2 mm 厚の鉛板、鉛入りプロテクター、鉛入りガラスを取付けて実施する。
- ③ 燃料の溶解は、迅速に行い、不必要的接近を避ける。

さらに 2nd Run の Pu 使用料 64.17% による被ばく量は、約 4,000 mrem であるので、DOA 燃料用プルトニウムの回収によって受ける被ばく全量は、約 7,650 mrem / 5 人となつた。

(結果)

上記のように、この計算値は、遮蔽効果を一切考えない場合の値であるので、全ボックスに 2 mm 厚の鉛板、鉛入りプロテクター、鉛入りガラス等を取付けて作業した場合、1/10 に減少するものと考えると、765 mrem / 5 人 (153 mrem / 人) となる。

ところで、3ヶ月間の作業員の平均実被ばく量は、

局部被ばく、110 mrem/人 (max. 240 mrem)

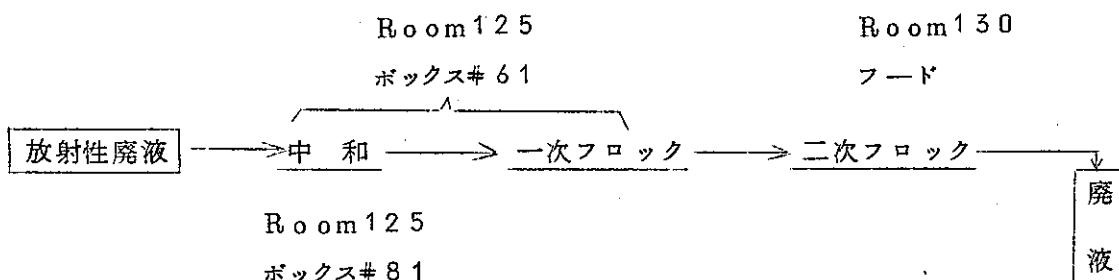
身体被ばく、116 " (" 200 mrem)

であった。

これらの値から実被ばく量は、外部被ばく量について計算値の約76%という結果を得た。

3. 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—フロキューレーション法は工程が比較的簡単で除染係数も比較的高い特長がある。プル燃第1開発室のこの廃液処理のプロセスは、場所的にみてつぎのように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

3-1 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を水酸化物として除去回収するために行なうものである。

中和剤としては沪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逐々に添加する。

中和の終点はpH試験紙で判定するが通常pH 9.6である。

3-1-1 47年度の実績

47年度に行なった中和処理実績は、第7.8表および第3図にしめす通りである。

4. 5月はBox 81・82の乾燥器、脱水炉の解体、据付け等で中和処理を行なわなかつた。また2、3月はラブソディーVに全員でとりくんだため、中和すべき廃液はBox 81, 61等に保管し48年度にもちこした。

分析廃液および計量からの廃液については今年度もまた多種少量でまとめて一度に中和処理ができないという問題があったが、9、10月に計量および分析から大量に受入れ、これを処理したため計量、分析の廃液在庫はほぼゼロとなった。

またB棟廃液については、11月に全量受入れ、これを処理した。

第7表 中和処理の内訳

1. 試料係回収工程廃液(イオン交換 etc)

Lot No.	処理量	Pu含有量	EU含有量	NU含有量	備考
Pu-001 EU-001	90.98ℓ	116.86g	47.65g	- g	RI-5, 6 処理液 RI-3, 4 洗・濃 etc
Pu-102 NU-001	149.11	29.90	-	4379.99	DCA
Pu-001 EU-003	2.50	0.03	0.00	-	中和3液
Pu-001 EU-004	0.65	1.65	5.52	-	
total	243.24ℓ	148.44g	53.17g	4379.99g	

2. 分析廃液

Lot No.	処理量	Pu含有量	EU含有量	NU含有量	備考
Pu-101 NU-001	19.50ℓ	17.20g	- g	22.81g	
Pu-103	2.00	9.92	-	-	
Pu-004 EU-009	10.40	16.27	42.53	-	RAPSODIE-2
Pu-001 EU-001	47.50	6.03	7.02	-	
Pu-005 NU-001	14.00	8.47	-	57.18	
Pu-008	1.00	1.21	-	-	
Pu-001 EU-003	4.00	5.27	14.36	-	
Pu-004	1.00	3.49	-	-	
Pu-102 NU-001	16.10	3.45	-	58.19	
Pu-003	9.00	0.02	-	-	
Nu-102	1.00	-	-	26.70	
Pu-005 Du-001	4.00	1.15	-	DU(14.79)	
Pu-001 EU-004	1.00	0.32	1.14	-	
total	130.50ℓ	72.80g	64.85 g	164.88(14.79)g	

3. B棟廃液

Lot No.	処理量	Pu含有量	EU含有量	NU含有量	
Pu-001 NU-001	33.50ℓ	0.39 g	- g	574.00 g	イオン交換処理液
total	33.50ℓ	0.39 g	-	574.00 g	

4. 計量廃液

Lot No	処理量	Pu含有量	EU含有量	NU含有量	備考
Pu-102 NU-001	12.50 ℥	4.32 g	—	68.06 g	
Pu-101	3.00	2.79	—	—	
Pu-003	3.00	8.81	—	—	
Pu-005 NU-001	3.00	1.34	—	44.79	
Pu-004	21.00	9.83	—	—	
Pu-006	1.00	1.26	—	—	
Pu-001 NU-001	20.10	18.88	—	2087.49	
Pu-001 EU-001	12.00	1.28	1.44	—	
Pu-001	3.00	36.66	—	—	
total	78.60 ℥	85.17 g	1.44 g	220034 g	

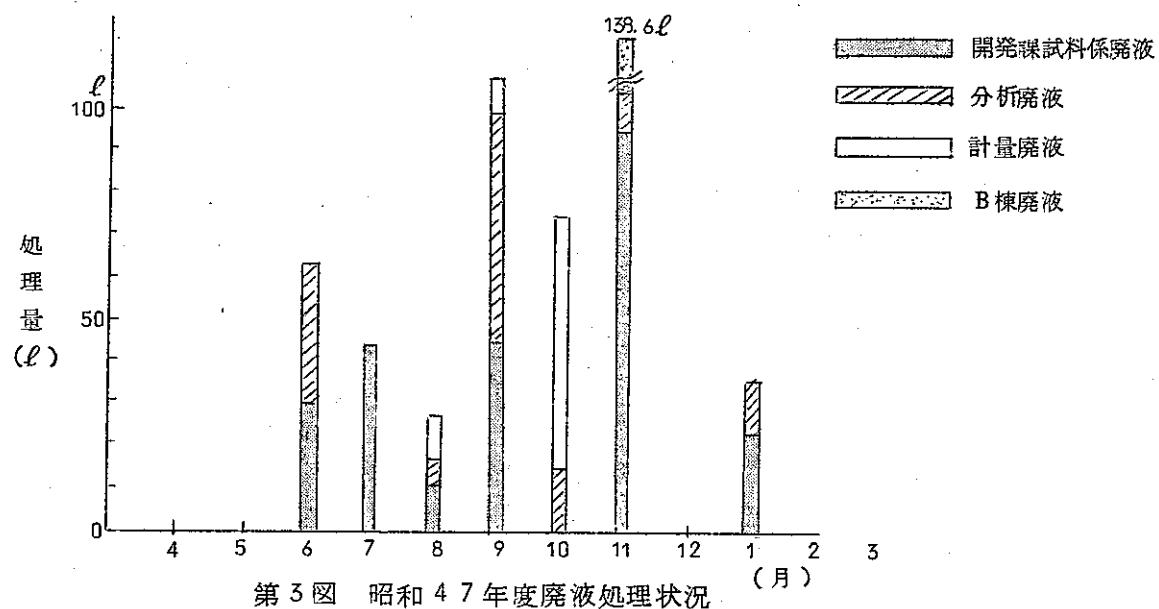
第8表 月別廃液処理状況(中和沈殿)

月	6	7	8	9	10	11	12	1	計	月平均
受入量	62 ℥	42 ℥	27.65 ℥	106.5 ℥	73.6 ℥	138.6 ℥	—	35.49 ℥	485.84 ℥	69.41 ℥
内訳										
分析廃液	32	—"	5 "	53.5	16.5 "	11.1 "	—	12.4 "	130.50 "	18.64 "
計量廃液	—	—"	12.5 "	9	57.1 "	—"	—	—"	78.60 "	11.23 "
B棟廃液	—	—"	"	—	—"	33.5 "	—	—"	33.50 "	4.79 "
試料係廃液	30	42 "	10.15 "	44	— "	94.0 "	—	23.09 "	243.24 "	34.75 "
Pu	107.37 g	187.7 g	9.59 g	28.92 g	71.70 g	27.59 g	—	42.36 g	306.80 g	43.83 g
U ²³⁵	20.21 "	— "	— "	— "	5.41 "	16.70 "	—	77.14 "	119.46 "	17.07 "
U ²³⁸	57.53 "	130.50 "	1130.68 "	772.23 "	2087.49 "	834.17 "	—	1132.11 "	7319.21 "	1045.60 "
DU	— "	— "	— "	14.79 "	—	—	—	— "	14.79 "	— "

※ 4, 5, 12, 2 および 3 月は中和処理を実施していない。

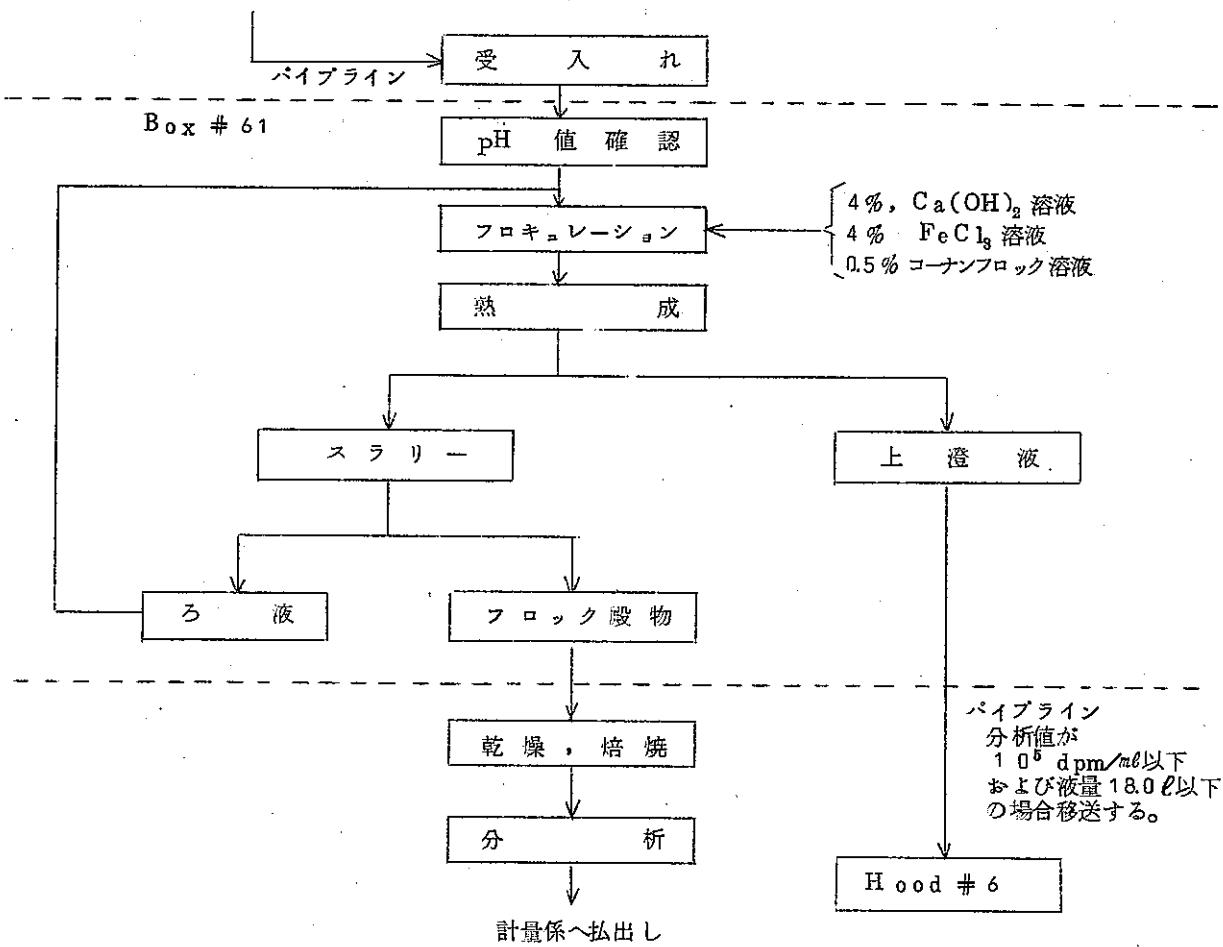
また受入れ全量は、485.84 ℥であるが中和処理後のろ液は約1.3倍となっており、これは1次Flocc.

工程へ移送した。



3-2 1次フロキュレーション

フローシートを第4図にしめす。



第4図 1次フロキュレーションフローシート

(処理条件)

(1) 原料・副原料

放射性廃液

アンモニア水(濃)

塩化第二鉄

消石灰

ポリ塩化アルミニウム

高分子凝集剤(コーナンフロック)

(2) 作業方法

受入れ

中和沈殿沪液のみを受入れる。原則として $1\text{ g Pu}, 235\text{ U}/\ell$ 以下のもの。

PH試験紙(T. B.)でPH9.6になることを確認する。

フロキュレーション

試薬添加

1) Ca(OH) ₂	4% Ca(OH) ₂ 溶液を廃液 1 ℓ当り	2.2 ml
FeCl ₃	4% FeCl ₃	" 8.0 ml
2) PAC	1% PAC	" 2.5 ml
FeCl ₃	1% FeCl ₃	" 2.5 ml

コーナンフロック(0.5%溶液)を廃液 1 ℓにつき 1 ml 添加する。攪拌速度は約 70 rpm. で 10 ~ 20 分間行なう。

熟成

攪拌速度は約 30 rpm. で 20 ~ 30 分間行なう。

熟成は 1 時間以上行なう。

サンプリング(α計測用)

5 ml / lot.

処理液輸送

分析値が $10^5 \text{ dpm}/\text{ml}$ 以下の場合、2次フロキュレーションのため Hood へ移送する。

3-2-1 47年度の実績

47年度に行なった処理実績を第9表および第5, 6図にそれぞれしめした。47年度に処理した廃液は多種多様であった。

なお、作業の能率をあげるために真空ポンプの増基と廃液タンクの増設を行なったので、フロキュレーションと廃物の戻過、戻液の受入れ等が別々に行なえ廃液処理が比較的容易

にしかも多量を短期間に実施することができた。

一方フロック試薬としてPAC(ポリ塩化アルミニウム)を使用したが、1次フロキュレーションでは、大きな効果はみられなかつた。

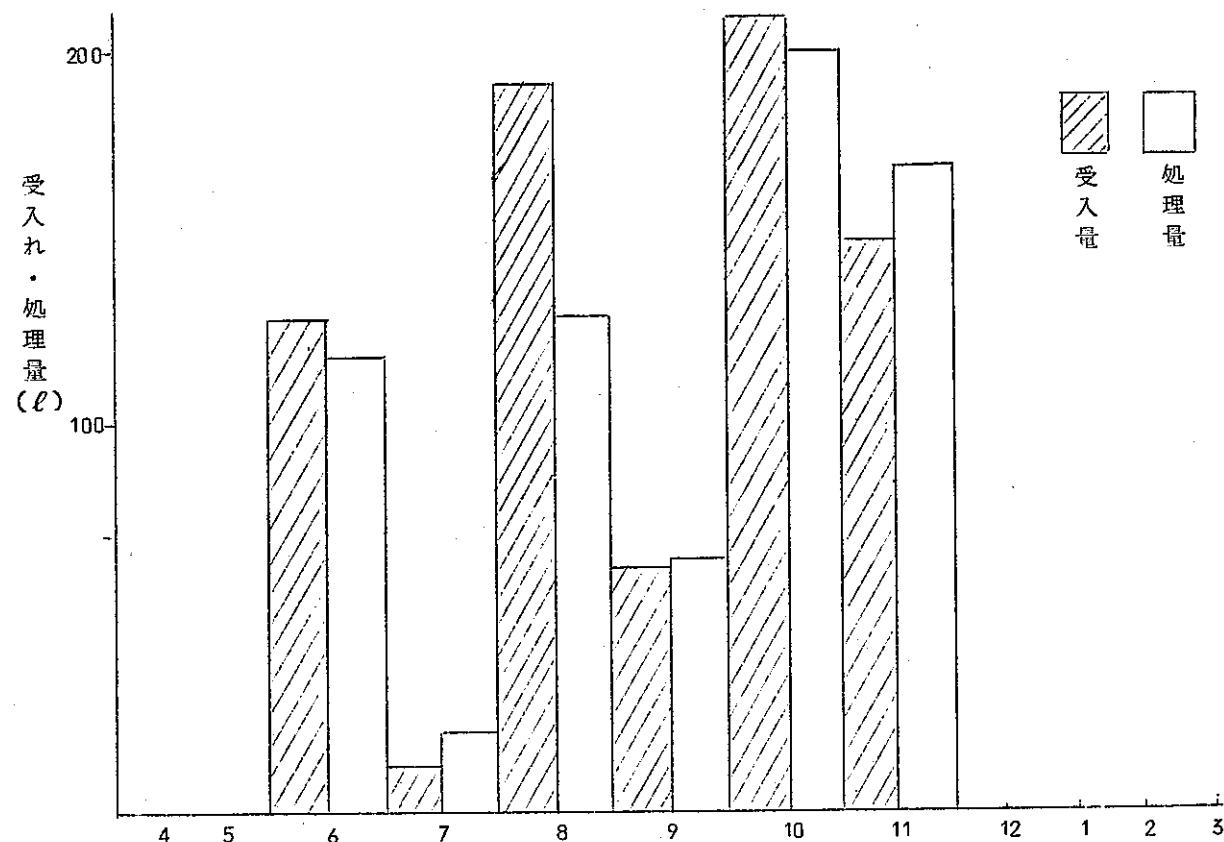
また昨年来、大きな問題として残されていた使用済ポリエチレンビン(廃液移送用)は、発生元に返却することとし、これによって、作業能率が大巾に増加したし、さらに固体廃棄物量が激減した。

今後の問題としては、電磁弁の防錆方法が考えられねばならない。

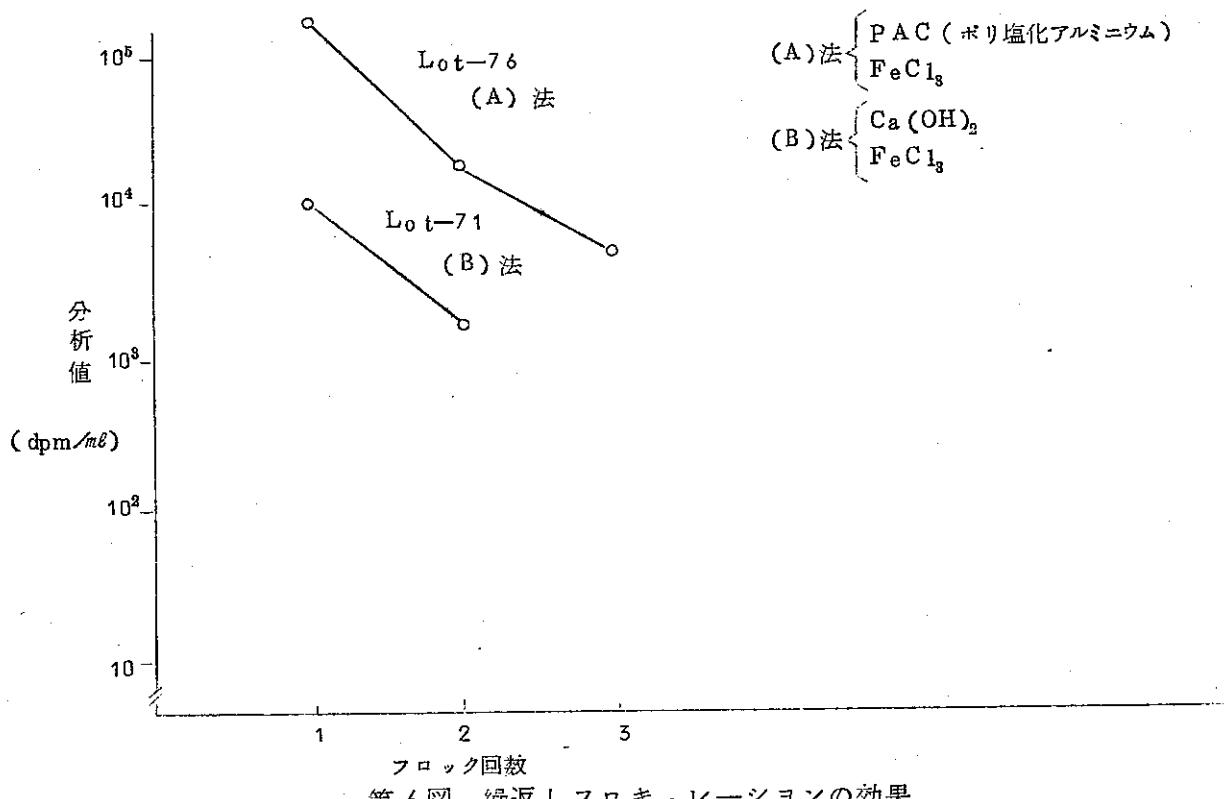
第9表 昭和47年度月別廃液処理実績(1次フロキュレーション)

分類		4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	計	平均
受入量(ℓ)	—	—	130	11	186	64	209	150	—	—	—	—	750	125	
処理量(ℓ)	—	—	120	20	130	66	200	170	—	—	—	—	706	118	
内訳	中和ろ液	GP-1(ℓ)	—	—	130	11	146	53	209	139	—	—	—	688	115
	GP-2(ℓ)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	11	11
	その他(ℓ)	—	—	—	—	—	11	—	—	—	—	—	—	11	11
分析廃液(ℓ)	—	—	—	—	—	40	—	—	—	—	—	—	—	40	40
処理バッチ数	—	—	6	1	6	3	9	8	—	—	—	—	—	33	6
Hoodへの移動量(ℓ)	17	—	109	56	140	52	200	200	—	—	—	—	—	774	111
処理液平均濃度 dpm/ml	2.7×10^3	—	9.84×10^3	3.6×10^3	4.3×10^3	1.6×10^4	4.5×10^4	9.1×10^3	—	—	—	—	—	9.0×10^4	1.3×10^4
処理液中のP量 (μg)	3.7×10^2	—	9.4×10^3	2.3×10^2	1.8×10^3	3.4×10^3	2.9×10^4	4.9×10^3	—	—	—	—	—	4.9×10^4	7.0×10^3

- (註) · 受入量はすべて中和ろ過後のろ液である。
 · その他の廃液とは、シュウ酸沈殿ろ液である。
 · GP-3からの廃液は、スクラバー廃液である。



第5図 47年度月別廃液受入量および処理量



第6図 繰返しフロキュレーションの効果

3-3 2次フロキュレーション

フローシートを第7図にしめす。

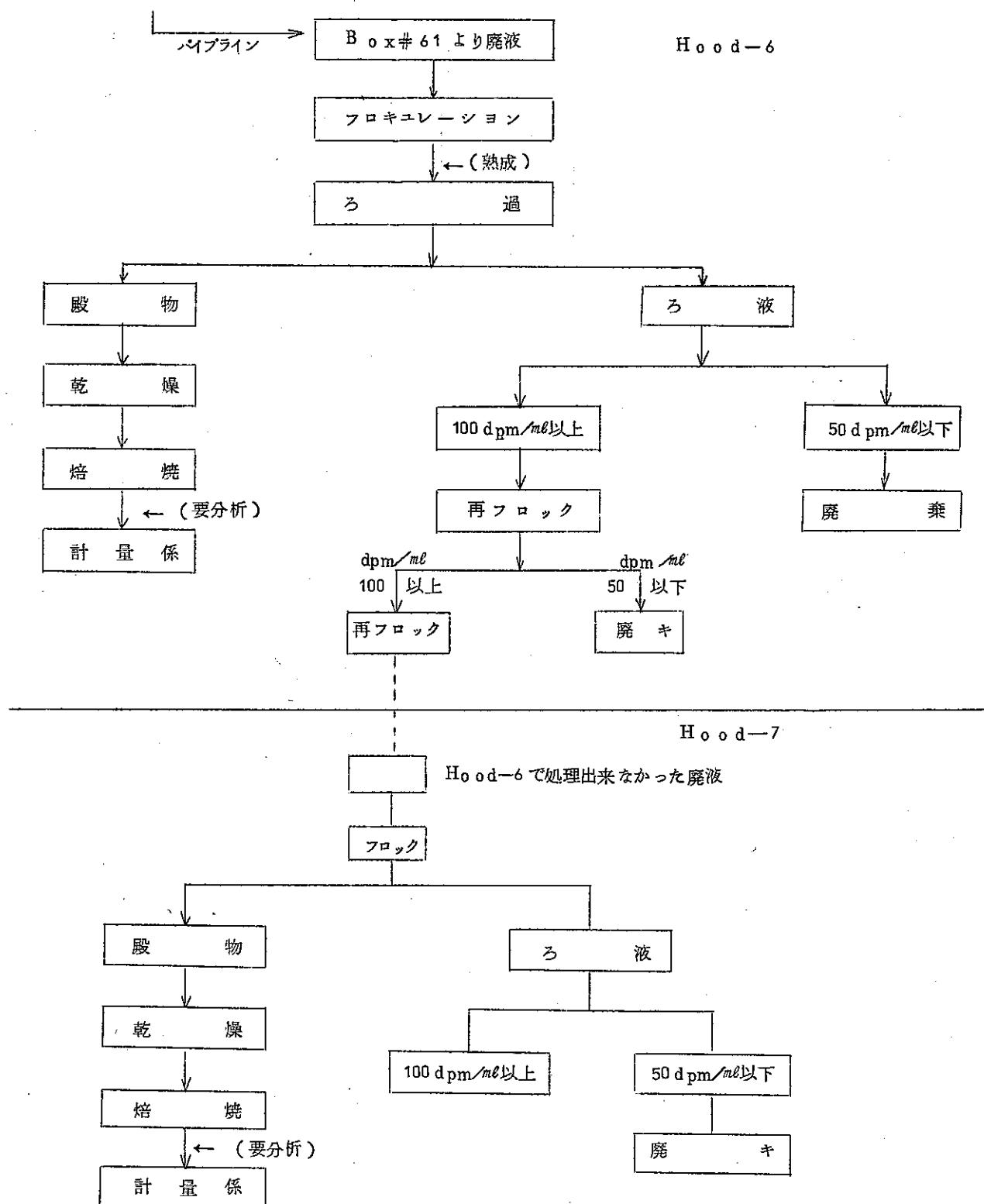


図7 2次フロキュレーション工程フローシート

3-3-1 作業方法

H o o d - 6

(1) 廃液の受入れ

廃液を受入れる場合は、容量が 18 ℥以下で、しかも分析値が 10^5 dpm/ml 以下であることを確認する。

Box #61 (GP-2) から受入れる場合は、パイプラインにより、また分析係から受入れる場合（ガス分析廃液は常に 10^5 dpm/ml 以下である）は直接受入れる。

(2) 廃液の PH の確認

(3) 試薬の添加

Ⓐ 4% Ca(OH)₂ を廃液 1 ℥当り 2.2 ml を添加する。

4% FeCl₃ を廃液 1 ℥当り 8.0 ml を添加する。

Ⓑ 1% PAC を廃液 1 ℥当り 2.5 ml を添加する。

1% FeCl₃ を廃液 1 ℥当り 2.5 ml を添加する。

Ⓐ, Ⓑ 法ともに 70 rpm の攪拌速度で行なう。

(4) 試薬の添加が終了したら攪拌速度を 30 rpm. に落して 30 分間行なう。

(5) 熟成を終了した廃液は、ヌッヂエで渾過する。

(6) 渣液について α 計測を依頼する。

分析値 : 50 dpm/ml 以下 LLD タンクに流す

50~100 dpm/ml 希釀したのち LLD に流す

100 dpm/ml 再処理

H o o d - 7

(1) Hood-6 で除染困難な廃液を 3 ℥受入れる。

(2) 廃液を硝酸で酸性領域にもどす。

(3) 試薬添加

4% Ca(OH)₂ を廃液 1 ℥当り 2.2 ml, 4% FeCl₃ を 8 ml 添加し、マグネットイック・スタラーで攪拌する。

(4) 試薬添加後、20 分間攪拌し、30 分間熟成する。

(5) ヌッヂエで渾過する。

(6) 渣液について α 計測を依頼する。

分析値によって Hood-6 と同じ処置をとる。

3-3-2 47 年度の実績

計量係に保管されていた廃液、また分析係に保管されていた廃液を短期間で処理し、昨年とほぼ同量の液量を処理した。

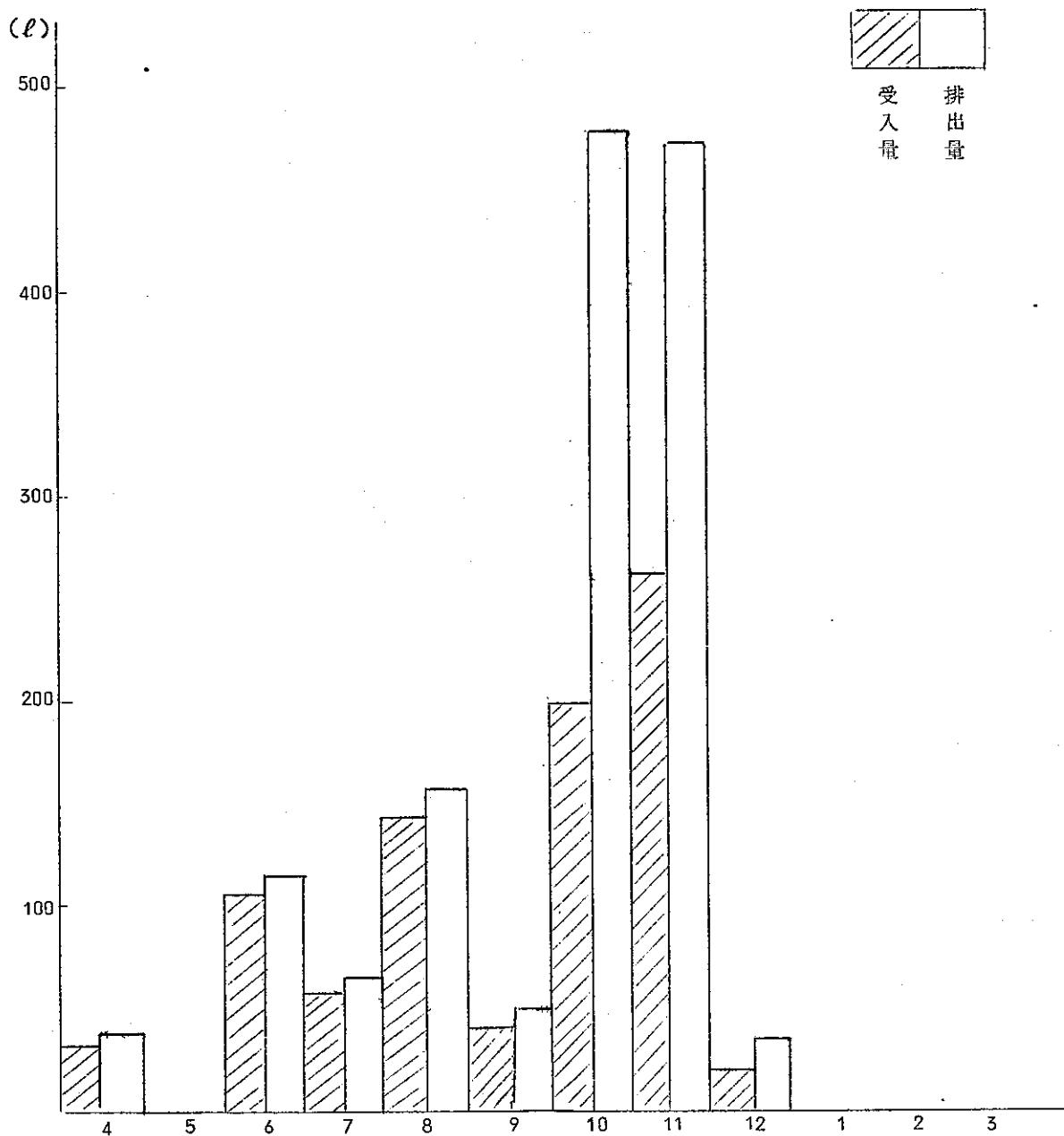
一方、排水放射線量基準も 50 dpm/ml 以下とかなり低い値となつたために、PAC(ポリ塩化アルミニウム)などを使用してこれにつとめた。その他、廃液移送ポンプの交換を行ない時間的には 40 分程度、スピードアップすることができた。また濁物との分離には、ラジオライト、活性炭等を使用して済過効率の向上と、DFの向上にもつとめた。

以下、第10表、第8図に月別廃液処理実績をしめした。

すなわち総量として約 1.4 t の処理済み廃液を地下に放出し、その廃液中の全プルトニウム量は 0.55 mg であった。これを平均すると廃液濃度で $0.45 \mu\text{g Pu/l}$ (56 dpm/ml) であった。

第10表 月別廃液処理実績

月別	受入量(l)	ロット数	floc 数	廃棄量(l)	Pu 廃棄量(μg)	平均放射線量(dpm/ml)	概算工数(日)
4	32	2	4	37	8.80	48	6
5	—	—	—	—	—	—	—
6	109	6	9	114	64.42	72	8
7	56	3	10	58	29.50	64	10
8	140	8	11	157	81.05	65	13
9	52	3	6	59	21.63	46	15
10	200	11	15	480	152.16	52	13
11	261	14	23	470	176.42	50	21
12	18	1	—	36	14.40	50	2
1	—	—	—	—	—	—	—
2	—	—	—	—	—	—	—
3	—	—	—	—	—	—	—
計	868	48	78	1,411	548.38	447	88



第8図 47年度月別廃液処理量

3-4 焙 烧

前年度は焙焼を乾式グループの GP-11 をかりておこなってきたが、47年度は Box 82 の脱水炉を解体した後に新らしい湿式グループ専用の焙焼炉を据付け 8月後半から本格的に焙焼作業を開始した。

8月後半から 8ヶ月間 65回焙焼をおこなったがトラブルは 1度もながった。

問題点としては現在使用しているスクラバーでは焙焼のさいのガスを完全に吸収させる事ができない事である。

第11表に47年度に実施した焙焼処理実績をしめす。

第11表 47年度焙焼処理実績

月	Lot No.	処理数	推定Pu量(g)	推定EU量(g)	推定NU量(g)	備考
8	PN-001	7	49.59	—	2,163.35	
9	"	12	85.00	—	3,708.60	
"	PN-102	6	13.09	—	2,050.72	
10	PN-001	11	120.14	—	3,842.29	
11	PE-001	1	65.50	54.06	—	
12	"	3	196.48	162.16	—	
"	PN-001	5	24.51	—	2,977.05	
"	Pu-001	1	195.92	—	—	
1	PE-001	2	31.11	24.85	—	
"	Pu-001	6	0.00	—	—	Floc.
"	PN-001	1	4.90	—	595.41	
"	PN-004	1	10.85	—	43.18	開発係
2	PN-102	3	5.35	—	1,513.40	
"	PE-001	1	47.33	48.51	—	
"	Pu-001	1	0.00	—	—	Floc.
"	PE-004	1	3.26	16.22	—	
"	PE-007	1	19.76	39.61	—	
3	PE-003	1	5.30	14.36	—	
"	Pu-999	1	0.00	—	—	
total		65	878.09	359.77	16,894.00	
月平均(8ヶ月)		8	109.76 g	44.97 g	2,111.00 g	

4. 定常単位操作の方法および処理条件等の改良

4-1 蒸発濃縮装置の新設とその稼動状況

4-1-1 蒸発濃縮装置の概要

プル燃部第1開発室から発生する廃液（分析廃液および回収工程廃液）およびB棟分析廃液の処理に関して、処理能力の向上、除染係数（D.F.）の向上および省力化を計るため昭和47年12月を運転開始目標として蒸発濃縮装置を発注した。

本装置は最大15kWの電気容量を持ち、留出液の1部をもう一度蒸発缶上部へもどすことでよりD.F.の向上をはかるシステムをとっており、通常の蒸発能力は13ℓ/hrである。また本装置の運転によってえられるD.F.は $n \times 10^4 \sim 5$ が期待される。写真1に装置の全体図をしめし、さらに第9図にフローシートをしめした。

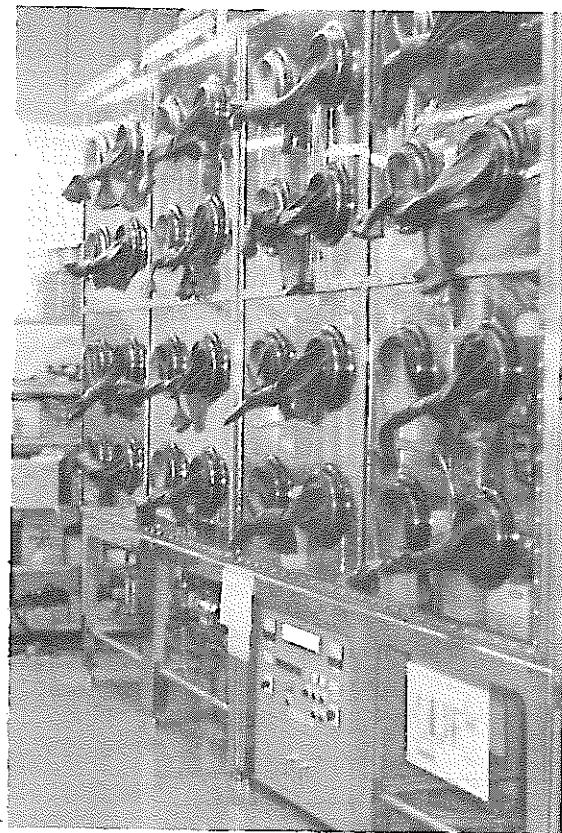
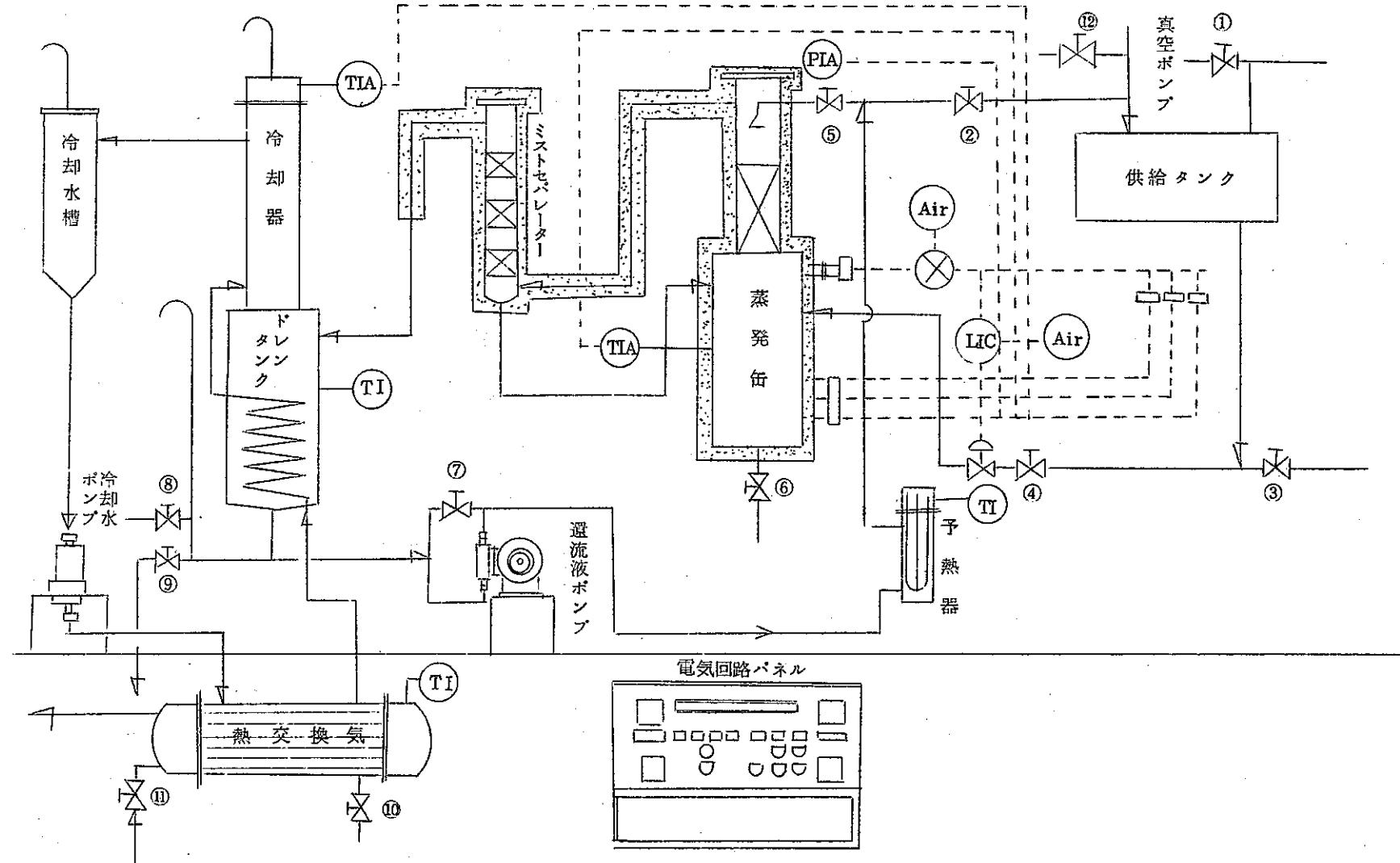


写真1 蒸発濃縮装置全体図

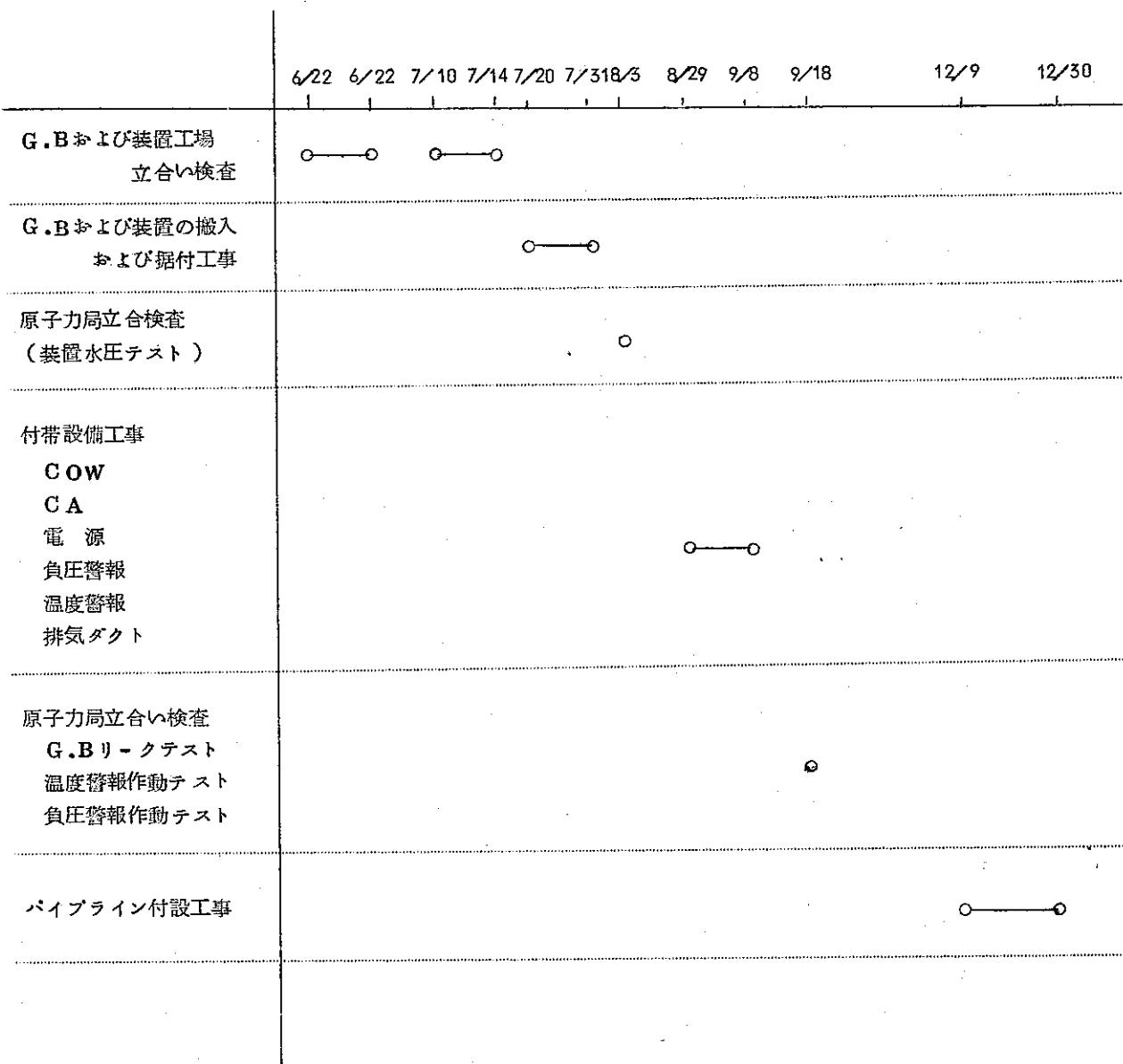
第9図 蒸発濃縮装置およびフローシート



4-1-2 据付工事

据付および関係工事はタイムスケジュール表にしめした通り、3工期にわたって行い、2回に分けて原子力局の施設検査を受けた。その結果10月19日付をもって原子力局の使用許可がおりた。しかしながら当初目標をしていた12月運転開始はパイプライン付設工事が大幅に遅れたために、結局目標より約2ヶ月遅れた2月中旬より運転を始めることとなつた。

第12表 蒸発濃縮装置関係工事のタイムスケジュール



4-1-3 蒸発濃縮装置による廃液処理作業に関する標準

1. 目的

ウランおよびプルトニウムを含む放射性廃液を蒸発濃縮し、ウランおよびプルトニウムを除去し、(MPC)W 以下の留出液として廃液する。

2. 対象

回収工程および分析工程より発生した中和済廃液を蒸発濃縮し、(MPC)W 以下の留出廃液として地下タンクへ廃棄するまでの工程

3. 原料および副原料

廃液(中和済、 $\text{pH} \approx 9.5$)

硝酸(試薬1級、比重1.38, 13.7 M)

4. 装置

蒸発缶 (SUS-32, 300mm ϕ × 700mm H 電気容量 15 kW)

予熱器 (SUS-27, 電気容量 2 kW)

真空ポンプ (イワキK.K KR-10型)

定量ポンプ (ケミカルポンプK.K CM-2型)

循環ポンプ (松下電気産業K.K キャンシールポンプ HP-085)

5. 作業方法

(1) 廃液の受け入れ

廃液を受け入れる場合は第9図におけるバルブ#1, 2, 3, 4 および#12が閉じていることを確認した上で真空ポンプを作動させ、パイプラインCあるいはDにより受け入れる。

受け入れる廃液はPuおよび ^{235}U で、 $1\text{g}/\ell$ 以下の中和済廃液とし、1回の受け入れ量は 50ℓ 以下とする。

(2) 蒸発濃縮装置の運転前点検

イ) 一次冷却水量が十分(赤線内)あることを確認する。

ロ) バルブの開閉を確認する。

#1, 5,開

#2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 11,閉

ハ) 電気容量15kWで蒸発濃縮する場合は、LICの液面設定を400mmC, また10kWで蒸発濃縮する場合は300mmC設定する。

(3) 蒸発濃縮

イ) 圧縮空気(CA)を $1.5\text{kg}/\text{cm}^2\text{C}$ 設定する。

ロ) 100Wを循環させる(バルブ#11開)。

- ハ) 一次冷却水ポンプを作動させる。
 - ニ) バルブ No.4 を開き原液を供給タンクから蒸発缶へ供給する。
 - ホ) 蒸発缶ヒーターを ON にする。
 - ヘ) 蒸発缶内温度が 80°C になつたら還流液ポンプおよび予熱器ヒーターを作動させる。
- その時のポンプ目盛りは下記のようく設定する。

電気容量	ポンプ目盛
5 kW	20
10 kW	30
15 kW	50

ト) 濃縮液は液温が十分下がつてから 3 リボリビンに抜きとり、別途処理する。(抜きとりは普通翌日におこなう)

(4) 運転終了時の処理

- イ) 蒸発缶ヒーター(5 倍)が切れたら還流液ポンプを停止する。
- ロ) 蒸発缶上部温度が 80°C 以下になつたら冷却水ポンプを停止する。
- ハ) 圧縮空気(CA)バルブを閉じる。
- ニ) バルブ No.4, 11 を閉じる。

(5) 分析

留出液は α -計測を依頼する(依頼番号 KCA)。

分析値にもとづき下記のようく処置する。

分析値 100 dpm/ml 以下 そのまま地下タンクへ排棄する。

101~300 dpm/ml 地下タンクへ排棄した後すぐに 2 倍量の水道水を
流す。

301 dpm/ml 以上 再処理する。

(6) 再処理

分析結果が 301 dpm/ml 以上の場合は、バルブ No.5 を閉じ No.1, 2 を開いた上で還流液ポンプ(目盛 Max)により留出液を供給タンクへ戻し、再び蒸発濃縮をおこなう。

(7) 排棄

留出液を地下タンクへ排棄する場合は、液体廃液物通知表に記入し、担当者に連絡した後、バルブ No.9 から地下タンクへ廃棄する。

(8) 蒸発濃縮装置異常時の処置および予想原因

1) 異常時の処置

1, 異常時態発生の場合は、警報ランプが点灯し、ブザーが鳴るので、ブザースイッチを切った上で速やかに原因を調査する。異常時にはヒーターはリレーで切れるが、

ポンプは作動しているので予熱器過熱異常以外の場合は還流ポンプを停止させる。

ロ) 原因を発見し、適切な処置を行った後の再運転は操作回路スイッチを一旦切った後再開する。

ii) 温度異常予想原因

温度異常原因としては下記のことが考えられる。

イ. COW (バルブ No. 11)が閉じている。

ロ. 一次冷却水又は排水部の閉塞による水量不足。

ハ. 一次冷却水ポンプの故障

ニ. 一次冷却水洩れによる水量不足。

ホ. その他計器または操作回路の故障。

iii) 圧力異常予想原因

圧力異常原因としては、下記のことが考えられる。

イ. 蒸発系統の閉塞

ロ. その他計器または操作回路の故障

iv) 予熱器過熱予想原因

予熱器過熱原因としては、下記のことが考えられる。

イ. 視流器の流れを確認せずにヒーターをONさせた場合

ロ. バイパス弁 (バルブ No. 7) が開の場合

ハ. 還流液ポンプの故障による送液停止の場合

ニ. その他計器または操作回路の故障

v) 蒸発缶過熱の原因としては、下記のことが考えられる。

イ. 液面調節用圧力スイッチの故障または設定間違い。

ロ. 異常圧力発生による沸点上昇

ハ. 缶内濃縮液の濃度過大による沸点上昇

ニ. その他計器または操作回路の故障

4-1-4 稼動実績

蒸発濃縮装置の運転は、1バッチ50ℓ以下、各バッチとも約1日で処理している。運転を何回か繰返しているうちに留出液の分析値が放出基準より高くなつた場合は、留出液を供給タンクへもどした上で蒸溜をくり返した。また運転を何回か実施したのち、D.Fが上らなくなつた場合は、希硝酸 (0.1M) で系全体を2日間にわたつて洗浄したのち蒸発濃縮を行なつた。

昭和47年度における処理実績は、第13表にしめすとおりである。

第13表 蒸発濃縮装置稼動実績

原液名	処理月日	溜出液濃度(dpm/ml)	処理液量(l)	希釈率(%)	希釈液濃度(dpm/ml)	排出液量(l)	原液濃度(dpm/ml)	D.F. ²⁾
中和廃液 ¹⁾	2/19	<50	50	—	—	47	2.2×10^5	5.5×10^8
"	2/21	<90	50	—	—	45	9.57×10^4	1.1×10^8
"	2/26	86	50	—	—	47	5.69×10^4	6.6×10^8
"	3/1	140	50	200	70	84	4.52×10^5	3.2×10^8

1) 分析廃液の中和ろ液および回収工程からなる廃液の中和ろ液の混合廃液である。

2) 硝酸鉛によるテストでは、 3.5×10^5 をえている。

以上の結果から、当初期待したDF($n \times 10^4 \sim 5$)より1桁低い値であることが実証された。この原因解明については今後の課題である。しかし設置目的の処理能力の向上と省力化については十分満足できるものであった。

今後に残された課題としては、(1)DFの向上対策、(2)濃縮後の残液(硝酸アンモニウム結晶を多量ふくむ)の処理対策があげられる。

4-2 溶媒抽出法作業標準の作成

湿式グループでは、従来多量のウランの精製回収に関してパルス・カラムによる溶媒抽出法を実施してきた。しかし作業標準は作成されていなかったので、今回その作成にとりかかり、つぎのような標準をえた。

1. 目的

プルトニウムおよび他の不純物を含む硝酸溶液からウランを精製回収する。

2. 対象

プルトニウムおよび他の不純物を含む硝酸溶液からのウランの回収工程全般。

3. 原料および副原料

Pu, U および不純物を含む硝酸溶液

有機溶媒(30v/oTBP-dodecane)

硝酸(試葉特級、比重1.38, 13.7M)

還元鉄(試葉1級), スルファミン酸(試葉1級)

4. 装置

抽出塔(1)(パイレックス, $30\text{mm} \phi \times 1.000\text{mmH}$)

" (" $40\text{mm} \phi \times 1.000\text{mmH}$)

" (" $50\text{mm} \phi \times 1.000\text{mmH}$)

バルセーター(多摩精器, DUR-1S134型)

定量ポンプ(東京科学精器, CV-2型)

5. 作業方法

5.-1 有機溶媒の調製(ボックス外)

市販のTBP(Tri-n-butylphosphate)をドデカンで30v/o, TBPとなるよう混合調製する。

5.-2 有機溶媒のボックス内への搬入

上記5-1に従い調製した溶媒はボックス天井に既設のバルブにより、ボックス内へ注入し、溶媒用ポリビンに受ける。

溶媒の受け入れ量は3ℓ以下とする。

5.-3 原料溶液の調製

1回の溶媒抽出処理で回収するウラン量は次のように定める。U(g) = 0.8 × 溶媒量(ℓ) × 135g

ただし5-6, イ)の工程を考えて原料液の液量はできるだけ少なくしておく必要がある。

5.-4 原液酸濃度調整

原液はウランの抽出率がもっともよい6M-HNO₃に調整する。使用する硝酸は試薬特級である。また使用する水はイオン交換水である。

イ) 原液酸濃度が6M以上の場合

$$\text{水添加量} = \frac{1}{6} \times \text{原液量} (\text{原液酸濃度} - 6)$$

ロ) 原液酸濃度が6M以下の場合

$$\text{硝酸添加量} = \frac{1}{7.7} \times \text{原液量} (6 - \text{原液酸濃度})$$

5.-5 スルファミン酸第1鉄溶液の調製(ボックス外)

使用するスルファミン酸第1鉄はプルトニウム含量の15%量とし、1~2M-HNO₃ 2~3ℓを加熱しながら、一定量のスルファミン酸および還元鉄を少量ずつ添加し溶解する。

溶解終了後3M-HNO₃溶液となるよう酸濃度を調整しプルトニウム逆抽出工程(5-6, ロ)の供給液とする。

5.-6 溶媒抽出操作

イ) 共抽出

酸濃度の調整を終えた原料液をパルスカラムに供給し、有機溶媒(30v/oTBP-ドデカン)でプルトニウムおよびウランを共抽出する。原液および有機溶媒の流量比は抽出率を良くするためにA:O=1:2とする。

(注、A:水溶液, O:有機溶媒の略)その際のパルセーターの回転数およびストロ

ークの長さは操作状態図を参照するものとする。(図-3-7)

ロ) プルトニウム逆抽出

共抽出溶媒中のプルトニウムの原子価は4価と微量の6価であり、ウランは6価であるため下記操作により、まずプルトニウムのみを3価に還元して水相へ逆抽出する(図-1参照)

上記5-5で調製したスルファミン酸第1鉄溶液と共に抽出溶媒を流量比A:O=1:1でパルスカラムに供給し、Pu(IV)およびPu(VI)をPu(III)に還元し、プルトニウムのみを水相へ逆抽出する。

その際のバルセーターの回転数およびストロークの長さは操作状態図を参照するものとする(図-3~7)

また、この工程で使用するスルファミン酸第1鉄硝酸溶液の酸濃度が低すぎるとウランも同時に逆抽出されるので、酸濃度は3Mでなければならない。

ハ) ウラン逆抽出

ウラン逆抽出をプルトニウム逆抽出工程と同一カラムで行う場合は、あらかじめ水でカラムおよびフィードポンプ内を十分洗浄したのち、ウランを含む溶媒と0.05M-HNO₃を流量比A:O=3:1でパルスカラムに供給し、ウランを水相へ逆抽出する。その際のバルセーターの回転数およびストロークの長さは操作状態図を参照するものとする(図-3~7)

5-7 溶媒の洗浄

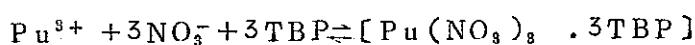
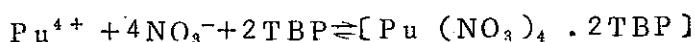
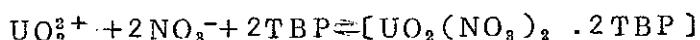
抽出を5回繰り返した有機溶媒は、0.5M-Na₂CO₃で洗浄したのち再使用する。ただし5回未満でも抽出率が悪くなったら、その時点で洗浄をおこなう。

Na₂CO₃による洗浄をおこなっても抽出率が回復しなくなった溶媒は廃棄処分とし、ボリビンに入れてボックス内に保管しておくものとする。

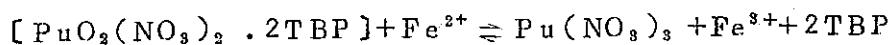
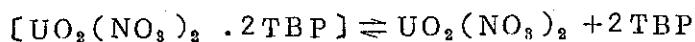
6. 参考事項

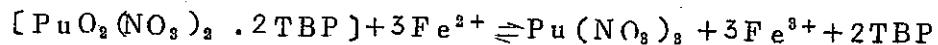
6-1 ウランおよびプルトニウムのTBPによる抽出反応¹⁾

イ) 抽出反応式

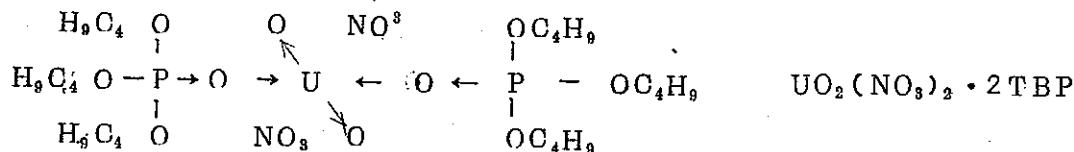
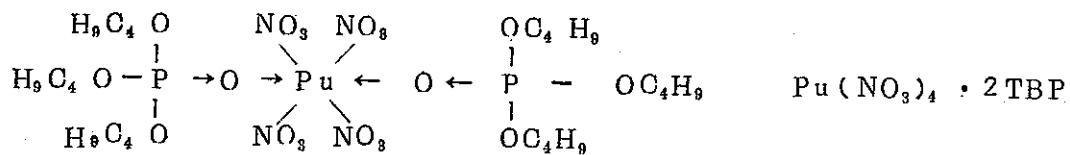


ロ) 逆抽出反応式





ハ) 抽出錯体の構造式



6-2 抽出曲線

ウランおよびプルトニウムの分配係数は図-1に示したとおりであり、また100% TBP-HNO₃系での種々の元素の分配系数も図-2に示した。

6-3 パルセーター操作状態図

抽出塔(1), (2)および(3)における操作状態図は図-3, 4, 5, 6, および7に示すとおりである。

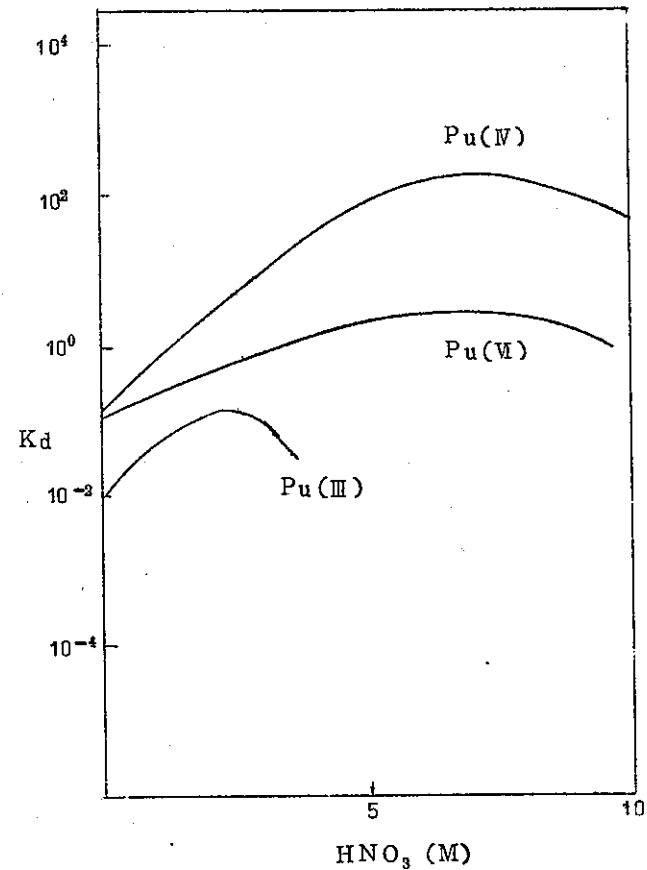
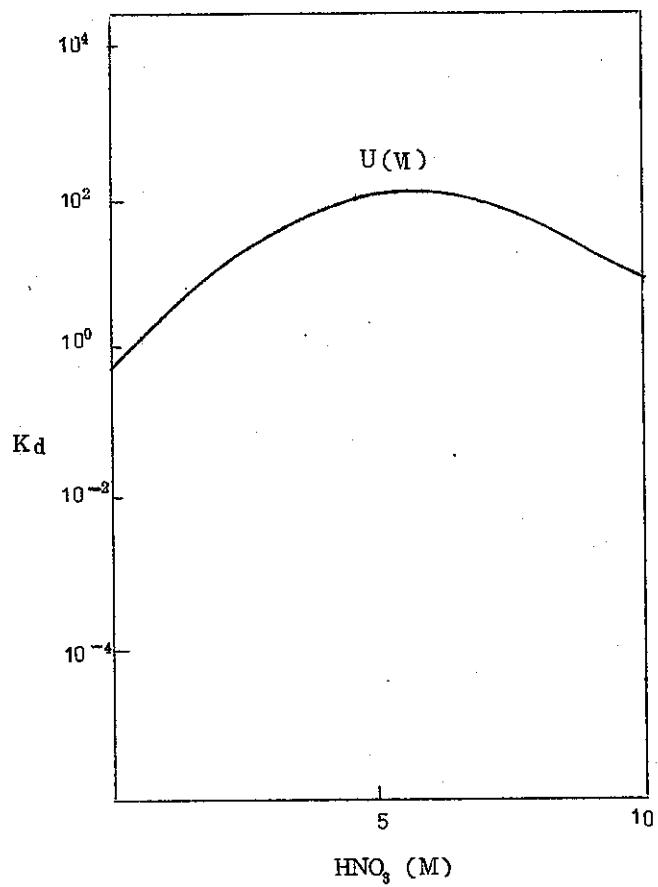


Fig.1. Distribution coefficients for the extraction of U and Pu
with 30v/o TBP/dodecane- HNO_3 system²⁾

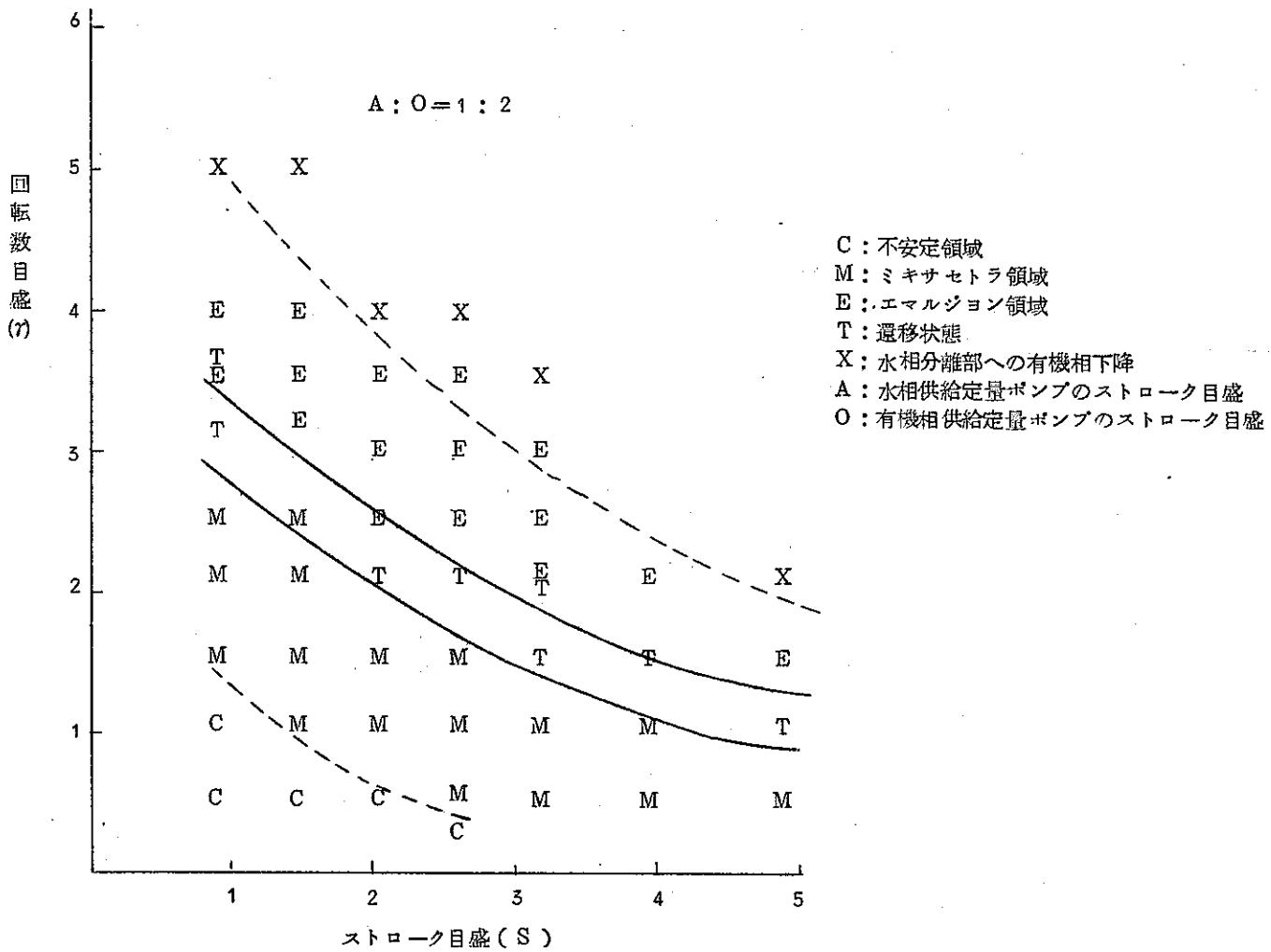


Fig.3. An operation diagram of the No.1 Column with
30v/o TBP/dodecane- H_2O system

-35-

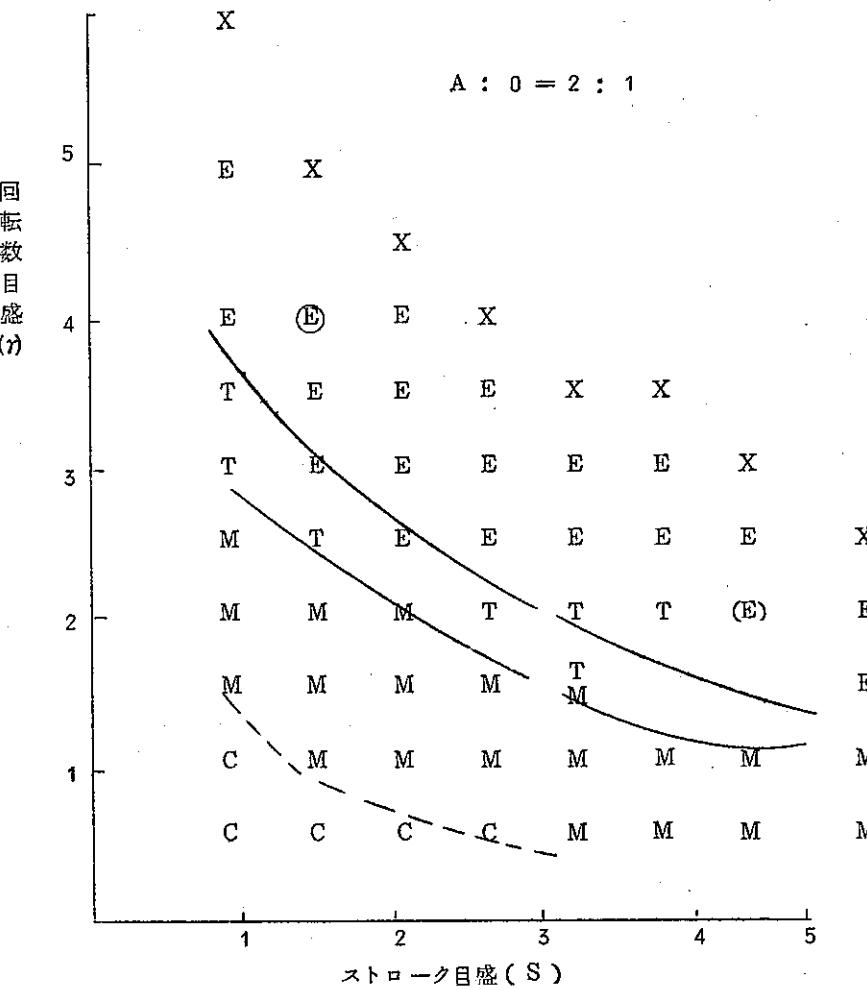
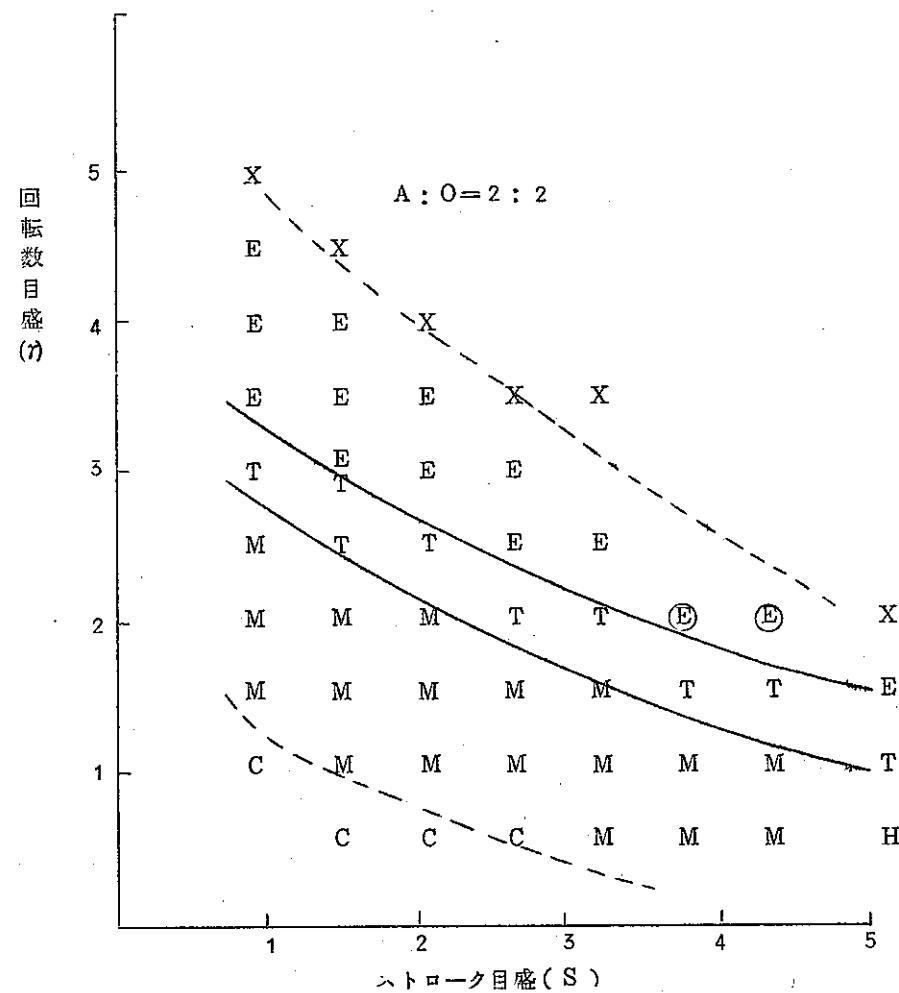


Fig. 4. An operation diagram of the No. 1 column with 30v/o TBP/dodecane-H₂O system

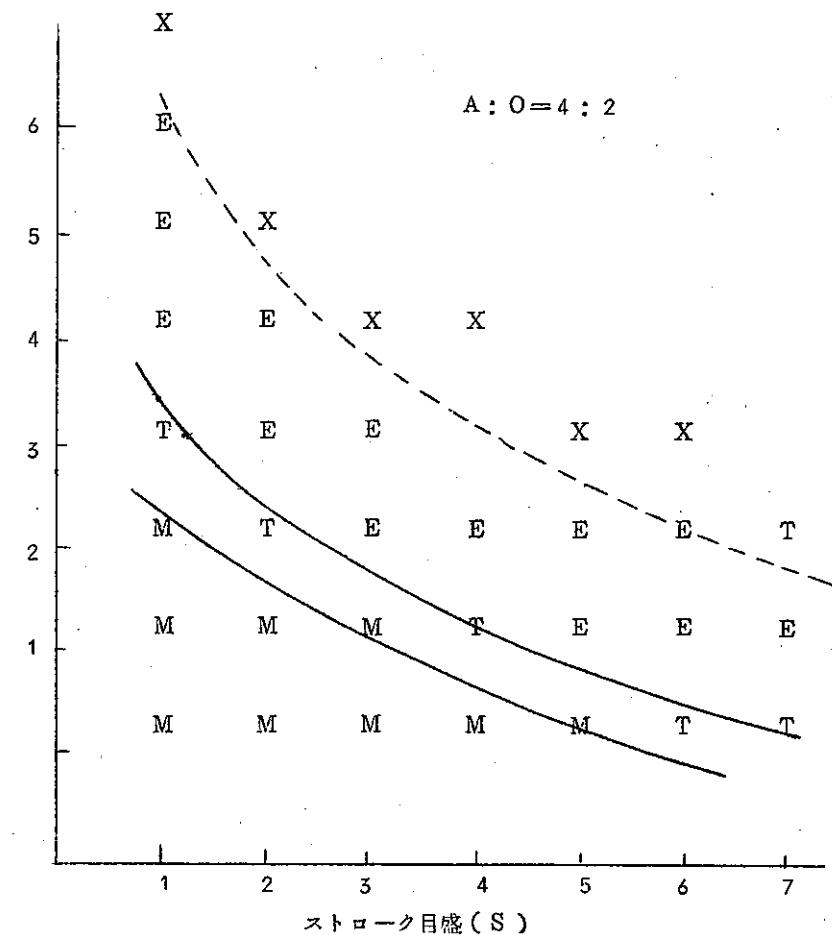
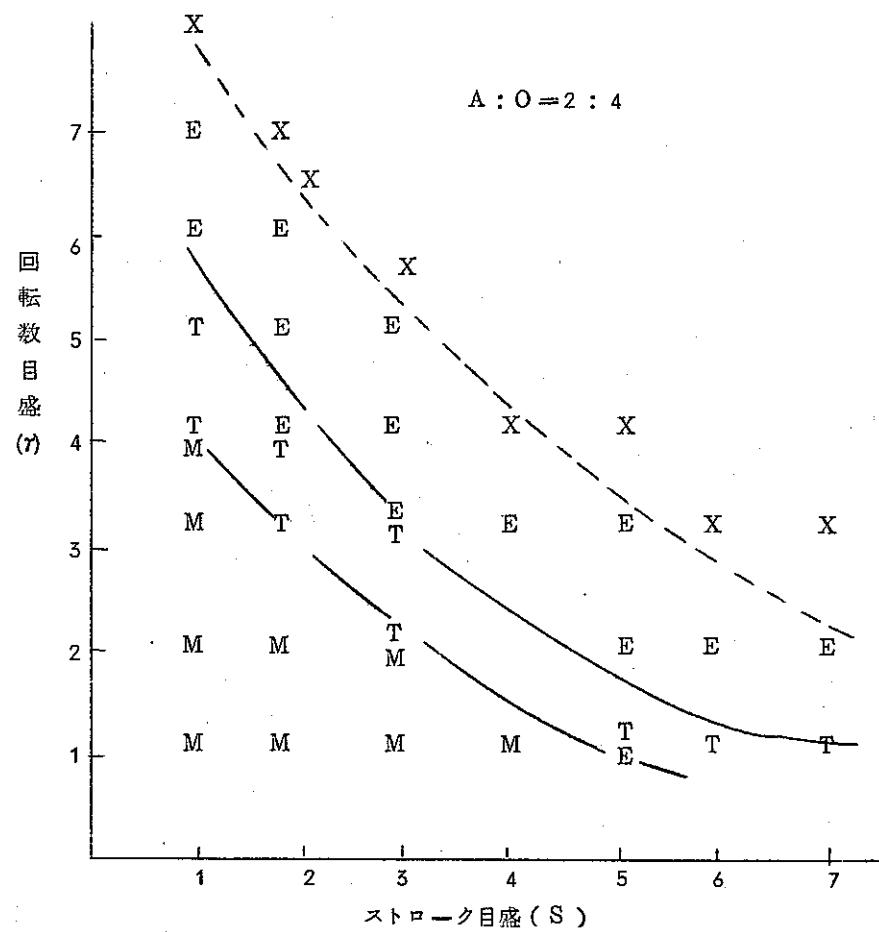


Fig. 5. An operation diagram of the No.2 column with 30 v/o TBP/dodecane-H₂O system.

- 37 -

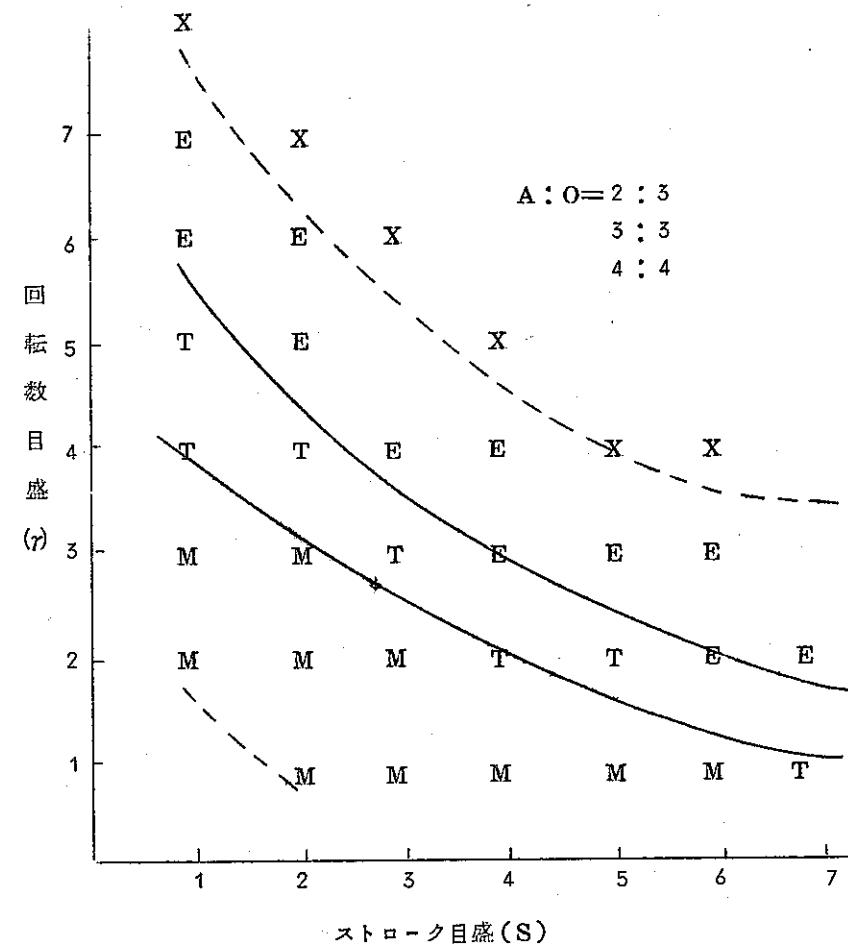
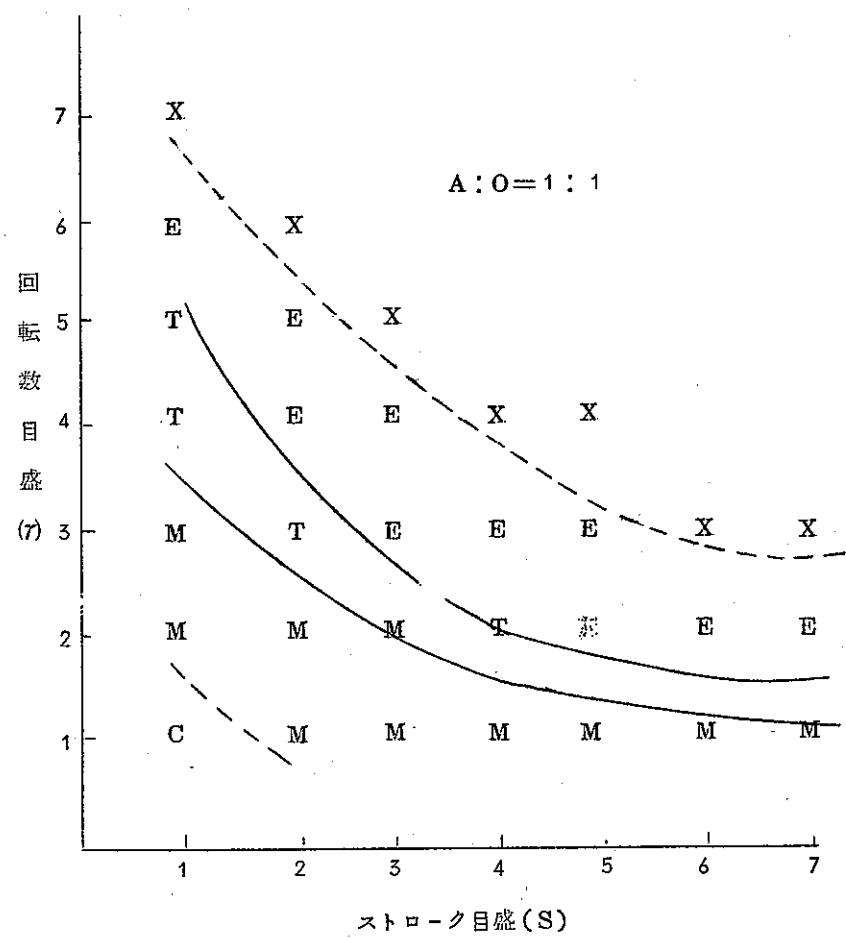


Fig.6 An operation diagram of the No.2 column with 30v/v TBP/dodecane- H₂O system

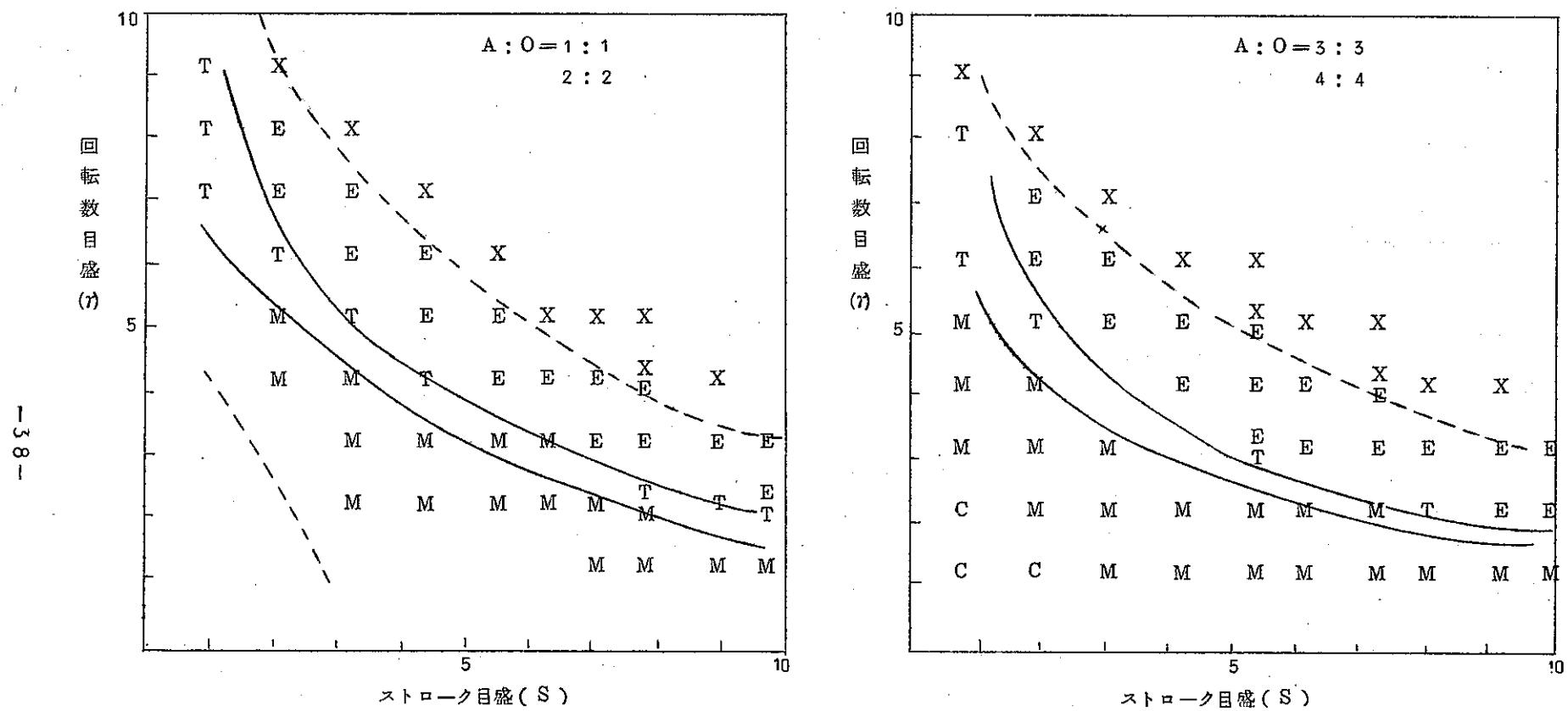


Fig. 7 An operation diagram of the No. 3 column with 30v/o TBP/dodecane-H₂O system

6. 参 考 文 献

1) T.V. Healy and H.A.C. McKay; Rec. trav. chin., 75, 730 (1956),
V.B. Schevchenko, V.S. Smelov; J.Nuclear Energy, Part A,
Reactor Sci.11, 196 (1960),
Translated from Atomnaya Energy, 6, 140 (1959),
Soviet J. Atomic Energy, 5, 1455 (1958),
Translated from Atomnaya Energy, 5. 542 (1958).

2), 3)

Date of Inorganic Solvent Extraction (1) JAERI 1047 (1963)

4-3 有機溶媒廃液の ゲル状固化法の開発と安全作業基準の作成

従来から抽出に使用した廃有機溶媒あるいは分析から排出される各種の有機試薬の処理については、プル燃部ではとくに行なわず、グローブボックス内に保管してきた。

処理法としては、焼却することが好ましいが、装置化も種々困難な問題が伴なうものと考えられる。

東海事業所技術部で行なわれている処理法としては、バーミュキュライト（蛭石）と石膏の混合物に有機廃液を物理的に吸収（浸みこませる）させて保管している。しかしこの方法では、溶媒 1 ℥について吸収剤 2 ℥以上必要とし、吸収剤の比重も大きいので、処理能力も低下し、とくにグローブ・ボックス内の作業としては決して良好な方法とはいえないと思われる。

以上の理由から、湿式グループでは新技術開発事業団で開発されたヘドロ処理のためのゲル化剤（商品名：ゲルオールD）を用いて有機廃液のゲル化処理を試みた。

4-3-1 ゲル状固化法

(1) 有機廃液のうち、沸点の比較的高いものへの応用

溶媒をマントルヒーターで沸点まで加熱しながら、“ゲルオールD”を添加し、容器（アルミ製スフィクター缶）の壁にゲル状物質が出来るまで順次添加する。そののち放冷するとゲル状となって固化する。この方法で、TBP, TPB／ドデカン, オクタール, ダイフロイル（#3, #10), プチルセルソルブ, TOAおよびTOA／キノレン等を固化することができた。

(2) 有機廃液のうち、沸点の比較的低いものへの応用

あらかじめ“ゲルオールD”（白色粉末）を、N, N'-dimethyl formamide に溶解（20～30%溶液）して使用する。この溶液を処理すべき有機廃液が固化するまで添加する。この方法でベンゼン、トルエン、四塩化炭素、アセトン、酢酸エチルおよびクロロホルム等を固化することができた。

この他、メチルアルコール、エチルアルコール、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサン、イソアミルアルコール、カルピトールおよびシクロルベンゼン等多くの試薬に応用できた。

以上はもちろんコールド試験の結果であるが、少量のホット試験の結果も良好であった。ゲル化した状態のものを写真2にしめした。

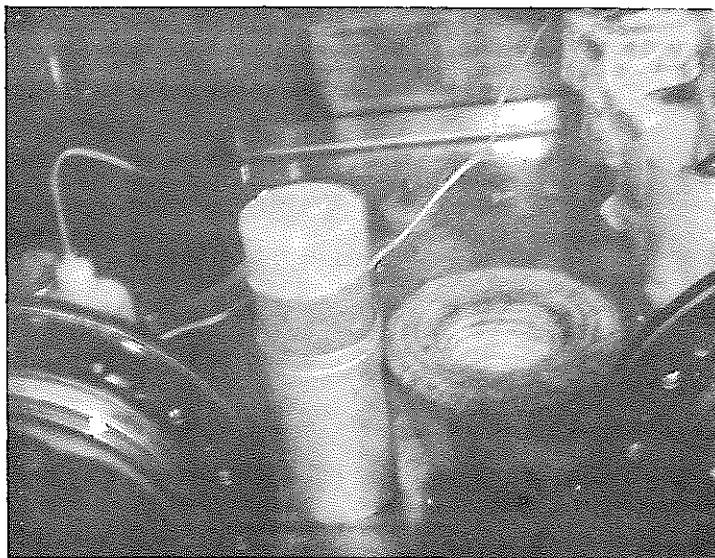


写真2 30 v/o TBP／ドデカンを固化したもの（ホット試験）

(3) 本法を従来法と比較すると、つぎにあげるような点で優れている。

- (i) “ゲルオールD”の使用量が少ないので、処理能力が著しく増加する。また粉末の比重が小さいのでボックス内での作業が容易である。
- (ii) 従来の吸収法（しみ込ませる）と異なり化学反応である。
- (iii) 有機相と水相が混合する場合、有機相のみがゲル状化するので、水相を分離することができる。これは、例えば酸などの分離回収（酸が低濃度の場合）に応用可能となる。
- (iv) 貯ぞう性については、ゲル化した30 v/o TBP／ドデカンをアルミ製のスフィクター缶に入れ、約6ヶ月間30°Cの場所に放置した結果、何ら揮発物の発生、形状変化もみられなかった。今後はさらに長期間の保存性を検討してゆくことが必要である。

4-3-2 安全作業基準の作成

1. 適用範囲

G.B#4 を使用する有機廃液の処理作業に適用する。

2. 作業内容

ゲル化剤使用による有機廃液の固化処理

3. 使用する G.B および機器

G.B #4 1) 金属製容器

2) マントルーラー

4. 使用する機器の概略仕様

- 1) 金属製容器 容量 1ℓ のアルミ製缶
- 2) マントルヒーター 500W

5. 作業対象

- 1) 分析廃液 分析作業に使用した有機廃液
- 2) 溶媒抽出廃液 ウランおよびプルトニウムの抽出に使用した有機廃液

このグループ・ボックス内で処理対象となる有機廃液は、キシレン (b.p 140°C), プチルセルソルブ (171°C), 四塩化炭素 (77°C), メチルイソブチルケトン (130°C), TBP (178°C) およびドデカン (215°C) 等である。またこれらの他にゲル化剤としてジベンザルソルビット (ゲルオール D) 粉末および粉末の溶剤として使用する N, N' -dimethylformamide (常温で使用) を使用する。

(注) 廃液中の核燃料物質濃度は 1 g/1ℓ 以下とする。

6. 安全解析

(1) 臨界

このグループ (G.B. #4) の制限量は、全体で 220g に抑えられているので、誤ってダブルバッチにしたとしても臨界に達することは決してない。

(2) 火災

有機廃液のボックス内への搬入量は 1ℓ 以下とし、一回の処理量は 500 ml 以下とする。ボックスへの搬入はポリエチレン瓶を使用する。また固化処理に際しては、TBP / ドデカンをのぞく他のすべての廃液は常温で処理するので火災が発生するとは考えられない。

また TBP / ドデカンの処理は、温度調節器付のマントルヒーターで 150°C 以下の温度で行なう。かつマントルヒーターは十分なる断熱剤で被われているので引火の恐れはない。さらに処理用容器は金属製であるので、破損は考えられない。

一方、ボックス内の空気は 2 分間に 1 回換気されているので、溶媒蒸気がボックス内に充満することは考えられない。実施にあたってはさらに安全性を考え、ボックス内、霧囲気を NF ガスで希釈する。

以上取扱法の注意があれば火災の危険性はないが、万が一に備え温度警報、 NF ライン、金属消火剤が設けられている。

(3) 汚染

包藏性の高いグローブ・ボックス内部で作業するため、通常はグローブ・ボックス外部の汚染はないはずである。GP-2 の作業に固有の汚染については、次のようなものが考えられる。

1) 有機溶媒によるグローブの劣化にとく裂傷，ピンホールの発生……作業はグローブの上にさらに皮手袋をはめて行なうので劣化速度は大巾に減少する。

7. 一般的注意事項

- (1) 有機廃液を受入れる場合は，溶媒の pH 値（水分をふくんでいる場合がある）は中性近くにあっていふことを確認する。
- (2) 有機廃液の保管は，グローブ・ボックスの破損をさけるため全て内蓋つきのポリエチレンビンを使用し，有機ガスの漏洩のないように注意する。
- (3) マントルヒーター以外の電気器具，モーター類は固化処理中は使用しない。
- (4) 他の可燃性物質は，マントルヒーターの近くに置かない。
- (5) マントルヒーターのスイッチの on, off はボックス外で行なう。

8. 作業上の注意

- (1) TBP／ドデカン以外の有機廃液の固化作業は，固化剤を予め N, N' -dimethylformamide で溶解（常温あるいは少し温める）し，20～30% 溶液をポリエチレン製コマゴメピペットで有機廃液に添加しゲル化することを確認する。
- (2) TBP／ドデカンについては，容器に移し，マントルヒーターで 130～150°C で加温しながら固化剤を添加しきませる。溶解したらさらに添加することを繰返し，容器の壁にゲル状の固体物が付着しあらじめたら添加を中止して放冷する。

9. ボックス内異常時の処理

- (1) 火災
 - 1) 給気系コックを閉じ NF コックを全開する。
 - 2) アルミ缶に用意されている金属消火剤で局所を覆う。
 - 3) 2) で間に合わないかまたは間に合わないと判断される場合は，金属消火器を利用する。
 - 4) マントルヒーターを使用していた場合は，1) の処置のあとボックスの架台部のスイッチにより電源を切る。

(2) 汚染

- 1) 作業中に万が一汚染が発見された場合は，近隣作業者に事項の発生を知らせるとともにあわてずにグローブから腕を抜き，安全作業基準E項にしたがって処置する。

10. 緊急退避時の心得

(1) 臨界警報

- 1) 第1臨界の場合は，いかなる処置も不用，即刻退避
- 2) 第2臨界の場合は，室内警報と火災警報の同時吹鳴の場合と同様の処置をしてから退避する。

(2) その他の緊急退避

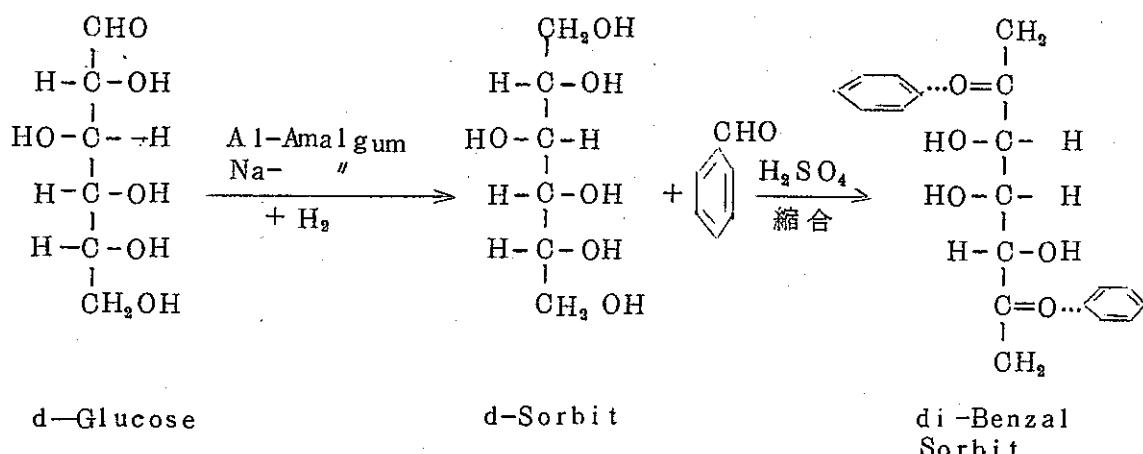
グローブボックスおよびマントルヒーターのスイッチを切ったのち退避する。

4-3-3 “ゲルオールD”の化学構造と放射線強度

“ゲルオールD”は商品名であって、化学名は、“ジベンザル・ソルビット”である。

製法は、d-Sorbit + ベンズアルデヒド $\xrightarrow[\text{触媒}{\text{締合}}]{\text{Al-Amalgum}}$ ジベンザルソルビットであると発表されている。

また、化学構造については発表されていないが、推測すると、つぎのようなものとなる。



つぎにホット試験の可否を検討するために“ゲルオールD”を ^{60}Co 線源で照射して安定性を検討した結果、 $1.04 \times 10^6 \text{ r/hr}$ では何ら変化はみられない。また $1.0 \times 10^8 \text{ r hr}$ で少し色調変化(うす黄色)がみられたが、赤外分光分析の結果変化は観察されなかつた。したがって、このものは放射線にも非常に安定であると考えられる。

4-4 その他の作業

4-4-1 脱水炉の解体および焙焼炉の新設

第1開発室R-125内GP-03にある脱水炉は故障し、修理不能となっていたので、回収関係の焙焼は、GP-1-1(#11)の焙焼炉を利用して行なつて来たが、湿式用(回収品焙焼専用)の焙焼炉が必要であるとの考えにもとづきGP-03内の脱水炉を解体してバッグ・アウトしそのあとにマッフル炉型焙焼炉を新設した。

解体関連作業タイムスケジュール

	4/21	4/24	5/9	8/3
脱水炉解体作業	○	—	—	—
焙焼炉設置作業	—	—	—	○
局立合い検査	—	—	—	○

4 - 4 - 2 焙焼炉の安全作業基準

1. 適用範囲

G.B.#82を使用する作業に適用する。

2. 作業内容

(1) 焙 焼

(2) 焼 結

3. 使用する G.B., 主要機器

G.B.#82, 分割抵抗加熱式焙焼炉, 抵抗加熱式焼結炉

4. 主要機器概略仕様

(1) 分割抵抗加熱式焙焼炉

電 力	200V 単相, 4kW
炉 材 質	耐火レンガ
炉 内 尺 法	150×150×300%
外 装	ステンレス鋼製
最 高 温 度	700°C
常 用 温 度	500°C
外 壁 温 度	約60°C
温 度 制 御 方 式	プログラムコントロール
スクラバー本体	バイレックスガラス製
スクラバー寸法	178φ×800%

(2) 抵抗加熱式焼結炉

電 力	200V 単相, 15kW
炉 心 材 質	再結晶アルミナ
最 高 温 度	1,750°C ± 20°C
常 用 ガ ス	5% H ₂ - N ₂
温 度 制 御 方 式	プログラムコントロール

5. 作業対象

ウラン一プルトニウム混合乾燥ゲル, 同焙焼体, ウラン一プルトニウム混合ペレット
および同中和殿物

6. 安全解析

(1) 臨 界

このグループ(#82)の制限量は, 全体で220gに抑えられているので, 誤ってダブルバッチにしたとしても臨界に達することとは決してない。

(2) 火 災

このボックス(#82)では、引火性物質は全然使用していないので電気炉運転中にボックス内の温度が多少上昇しても火災が発生することは考えられない。なお万一に備えて温度警報、N F ライン、金属消火剤が設けられている。

(3) 汚 染

作業の大部分は、炉内で行なわれるため通常時の汚染はほとんど考えられない。

7. 一般的注意事項

- (1) 試料の取出し時については、試料の温度が十分低下していることを確認し、さらに皮製手袋を併用するようにしてグローブの焼損等を予防するようとする。
- (2) 温度指示記録計を監視して、炉内温度の異常を防止する。
- (3) 冷却を要する部分には、冷却水循環系が駆動されていることを確認する。

8. 作業上の注意事項

(1) 培養炉運転

作業名	注 意 事 項
試料そり入	① 試料そり入時、トレイを炉の中に送る時は、グローブに汚染のないように注意する。
プログラムコントローラーの設定	① プログラムコントロールを希望する値にセットする。この時、カムを時計方向に回転してスイッチを入れるが、レバーを 0°C 迄落すとカムがスリップしてスイッチが切れコントローラーの働きを失う事があるので注意する。 ② カムが回転することを確認する。
昇 温	① ヒーター電源スイッチを入れる。 ② その後、原則としてプログラムの回転に伴い自動的に上がるよう設定されている。 ③ 指針と指標とが一致しない場合は、手動によりプロコンの調節のネジをドライバーで回し、電源を調整する。 (電流調整ネジには、下限、上限の 2 つがある) ④ 昇温および保持の際には、時々記録計をチェックし指示と調節の指針にずれがある時は、ドライバーで回し電流を調節する。
冷 却 水	① ヒーター電源スイッチを入れると同時に冷却水を流す。 ② 冷却水循環装置の運転は、バルブの開閉を確認してからスイッチを入れる。

降 温	① 所定の炉内温度に一定時間保持したらヒータ電源スイッチを off にする。 ② 炉はスイッチを切ったままの状態で、冷却水を流しながら冷却する。 ③ 炉心温度が 70°C 以下になつたら冷却水を止める。
試料取り出し	① 試料取り出し時は、50°C 以下になってから行なう。万一のグローブの熱損傷を防ぐため皮手袋を着用する。
スクラッパーの運動	① ヒーター電源を入れ、冷却水を流したら直ちに吸引ポンプを on にする。 ② 炉内温度が 70°C 以下になり冷却水を止めた後、吸引ポンプを off にする。

4-4-3 乾燥器の新設

GP-01 で使用中の乾燥器は内部のサビがひどく、精製品などの乾燥は困難な状態であるため、新しい乾燥器を購入した。

乾燥器交換関連作業タイムスケジュール

	5/22	5/25	5/30
旧乾燥器解体作業	○	—	○
新乾燥器設置作業		○	—

4-4-4 ミキサセトラー部品等の解体

第1開発室開所以来、昭和41年度まで使用してきたミキサ・セトラー型抽出装置(GP-09)は、その後全く使用せずそのまま放置されていたが、ボックス内繁雑の原因となっているため、それを解体するとともにG-09(#5A)内の不要品等の整理を行なった。

解体関連作業タイムスケジュール

	5/10	5/18	5/20
解体作業	○	—	○
G.B 内 整理		○	—

上記3件の解体作業により発生した放射性排棄物は下記のとおりであった。

放射性可燃物 6 カートン

放射性不燃物 43 カートン

金属類 16 個

ドラム缶収納金属類 1 カン

5. ま と め

47年度は業務内容として、ウラン、プルトニウムの回収、放射性廃液の処理という定常業務の他に定常単位操作の方法および処理条件等の改良と開発研究に重点をおいた。このように多くの業務内容を少人数で処理することについて多くの努力を要求されたが、初期の目標を達成しえたものと思う。

定常業務における成果は、

- D C A 特殊燃料用のプルトニウムの回収に関して、とくにウランの含有量が規制され、T C A 燃料からの回収であったためにウランの除去（1,500 ppm 以下）に苦心した。しかしイオン交換操作において洗浄を慎重に実施してスペックを通過したことはとくに印象が深かった。

また被ばく量が計算値の75%にとどまつたことは、被ばく対策に十分留意した成果であった。

- 廃液処理については、計量係、分析係に保管されていたものを極力消化し、ほとんど保管量をゼロとした。またB棟保管分についても全量受入れ処理した。

一方、開発業務における成果は、

- 廃液処理に関して、年度末に処理能力の増加と省力化のために蒸発濃縮装置を設置し、その目的を達した。
- 有機廃液の処理法について、ゲル状固化法を実施し、技術的な進歩をみたことの意義は大きい。

最後に本業務を遂行するにあたり、御援助いただいた分析係の方々に感謝の意を表します。