

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 2001. 6. - 6

[技術情報室]

昭和48年度開発課試料系の湿式関係業務報告

プルトニウム燃料第1開発室における定常および開発業務

1975年4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

昭和 48 年度開発課試料系の湿式関係業務報告



プルトニウム燃料第 1 開発室における定常および開発業務

実施責任者 小 泉 益 通 (プル燃部開発課)
(田 中 成) (")
報告者 栢 明 (")
鹿 島 貞 光 (")
都 所 昭 雄 (")
佐々木 仁 (")
三 村 平 (現再処理建設部)

作 成 1974 年 月

期 間 1973 年 4 月 1 日 ~ 1974 年 3 月 31 日

目 的 : 昭和 48 年度に実施したプル燃部開発課試料系の湿式関係の定常ならびに開発業務をまとめ今後の業務実施上の参考に資したい。

要 旨 : 本年度は主として次の各項目の業務内容について実施した。

- (1) ラブソディー 5 照射用試料の共沈法による製造
- (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など) および技術部開発研究室で発生する廃液 (分析廃液およびイオン交換廃液) の処理
- (3) 湿式グローブボックス (#5B) のパネル交換
- (4) その他の業務として, 有機廃液のゲル状固化, 高レベル可燃物の焼却および回収品の処理

各項目についての実績は次のとおりである。

- (1) Pu-U の共沈法による高速炉照射試験用混合酸化物燃料製造の先行試験として共沈条件と物性値との関係を検討した。
- (2) 第 1 開発室で発生した分析廃液 : 43.7ℓ, 湿式グループの作業によって発生した廃液 : 199.3ℓ および技術部開発研究室からの廃液 77.4ℓ, 合計 320.4ℓ を処理した。
- (3) 第 1 開発室 R-125 内の G.B. #5B のパネル 8 枚について Glove Box Panel Exchange 委員会 (以後 G.P.E. 委員会と記す) を編成し, 交換手順等を検討した上で交換した。
- (4) 従来よりボックス内に保管されていた回収廢物をロット毎に乾燥, 焙焼を行ない, 計 30 ロット 5.1kg の処置を行なった。

目 次

1. 試料係湿式グローブの48年度業務計画	1
2. ラブソディー5照射用試料の共沈法による製造	2
2.1 製造フローシート	2
2.2 共沈用フィード溶液の調製	4
2.3 共沈工程	7
2.4 被曝計算	12
2.5 結果と考察	13
3. 廃液処理と中和殿物焙焼	17
3.1 48年度の処理実績	17
3.2 結果と考察	25
4. グローブ・ボックスのパネル交換	26
4.1 作業計画	26
4.2 グローブ・ボックス内の除染	26
4.3 パネル交換	27
5. その他の業務	28
5.1 有機廃液のゲル状固化	28
5.2 ティッシュの焼却	28
6. まとめ	31

1 試料保湿式グルーアの48年度業務計画表

開発課試料保湿式グルーアの48年度における業務計画は表-1に示すとおりである。

表-1 48年度試料保湿式関係業務計画表

項目	日程	48年										49年							
		4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3						
1. ラブソディー5用 Pu-u 共沈殿物の製造																			
		溶解 イオン交換精製																	
2. 廃液処理																			
3. グローブボックス パネル交換																			
4. 有機溶媒の固化 可燃物の焼却 回収																			

※ 実質的な作業は48年2月中旬より始めた。

2 ラプソデー5照射用試料の共沈法による製造

2.1 製造フローシート

2.1.1 ブロックダイアグラムと核燃料物質の取扱い場所

実験計画によるブロックダイアグラムと核燃料物質の取扱い場所は図-1の通りである。

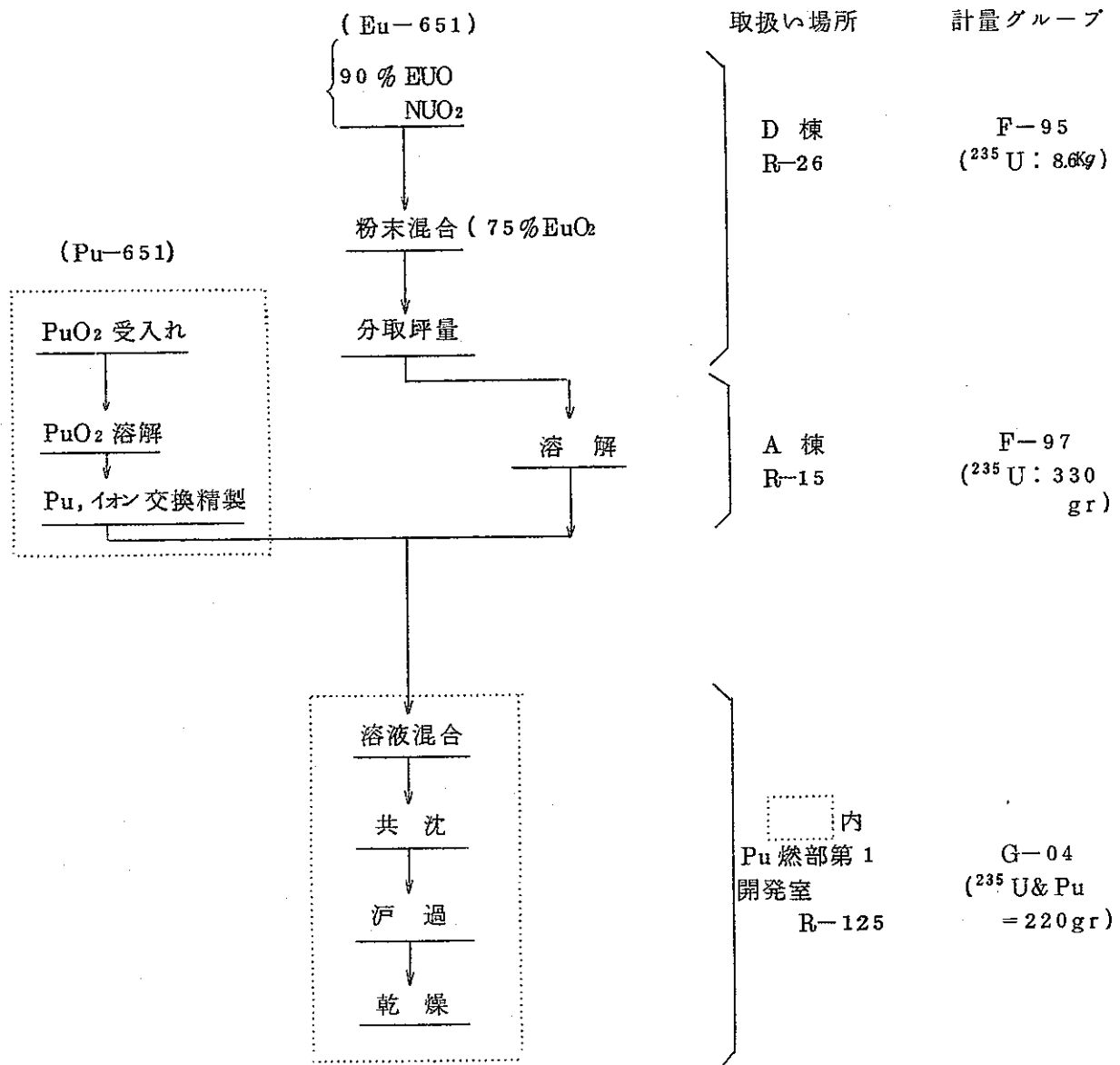


図-1. ブロックダイアグラムと核燃料物質の取扱い場所

2.1.2 共沈フローシート

Rapsodie-5 照射用試料製造のうち共沈ケーキ製造までの共沈フローシートは
 図-2 に示す通りである。

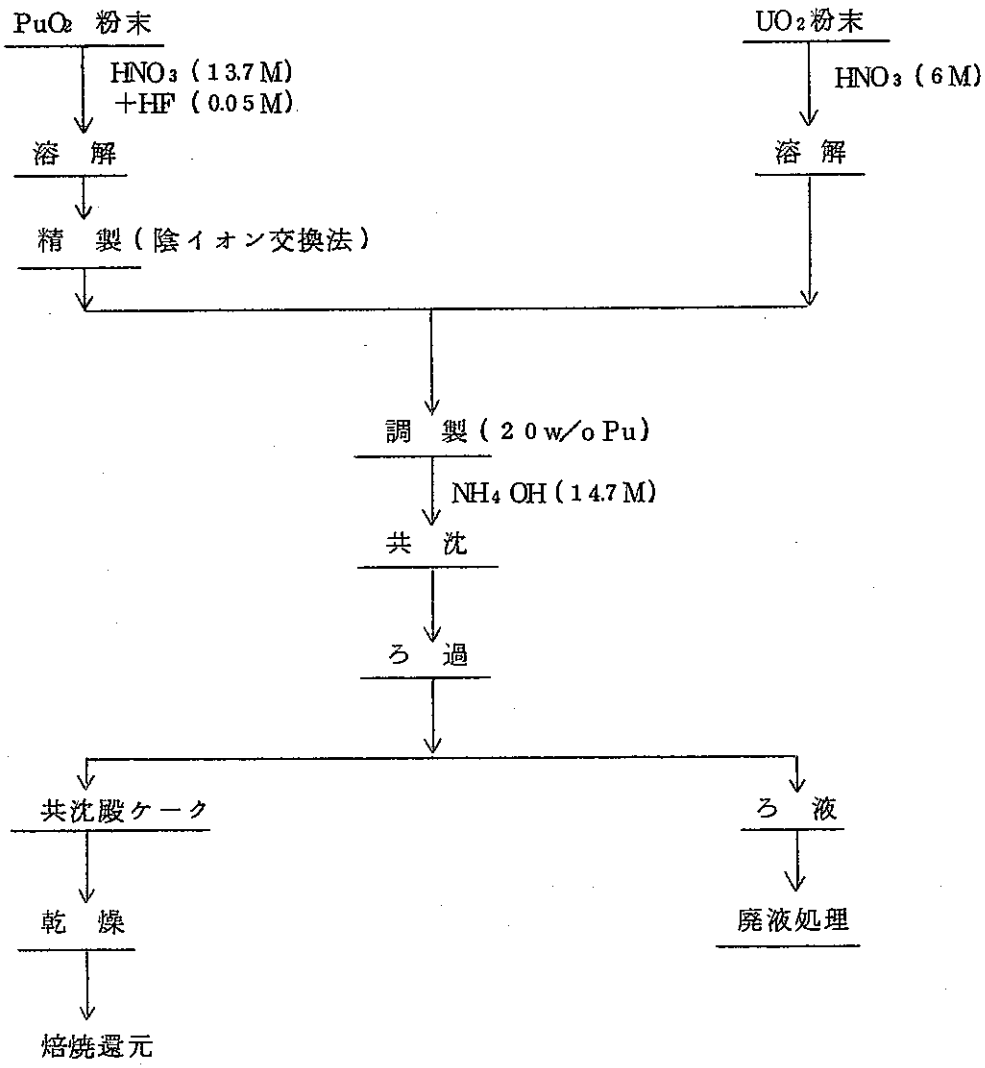


図-2 共沈フローシート

2.2 共沈用フィード溶液の調製

2.2.1 硝酸プルトニウム溶液の調製

二酸化プルトニウムの溶解は、100gPu/Batchを9ロットにわたって実施した。溶解条件は、硝酸(13.7M)－フッ酸(0.05M)混酸、反応温度120°Cで行なった。溶解に要した時間は、多少の差はあったが、約180分程度であった。溶解後の酸濃度は、10～12M程度であり、その後、イオン交換精製に供するため7～8M溶液に調整した。

2.2.2 硝酸ウラニル溶液の調製

ラブソディ－5照射用試料は、75%濃縮ウランを使用するため、まず、天然ウランと90%濃縮ウランの混合によって75%濃縮ウランを調製した。混合は、ボールミル混合と溶解混合の両法について検討した。質量分析結果を表－2に示す。

表－2 UO₂混合結果

Lot No.	使用ウラン量		混合条件	混合結果		75%EuO ₂		
	NUO ₂ (g)	90%EuO ₂ (g)		U ²³⁵ 結果	品位	分析試料	混合ロス	取出量
1	586.3	2900	ボールミル (88 rpm) 6時間20分	74.926±0.4%	0.8767	9.5g	5.6g	3479.2g
2	67.3	332.9	溶解	74.993±0.15%	0.8767	1.47	—	349.39g

この結果から、ただ1回の混合で、良好なU-235の分析結果を得た。また溶解混合でも正確な秤量を行なえば、満足しうる結果をうることがわかった。

つぎに75%濃縮ウランの溶解は、フード内で以下の条件(6M硝酸、室温)で行なった。また溶解後の分析結果は表－3に示すとおりである。

表－3 UO₂粉末分光分析結果

分析元素	結果(ppm)
Ag	< 0.1
Al	14
B	< 0.2
Cd	< 0.2
Cr	10
Cu	2
Fe	100
Mg	< 2
Mn	—
Ni	< 4

分析元素	結果(ppm)
Si	30
V	—
Zn	—
Ca	<10
C	20
F	<10
N	10
Pd	2
Mo	6
Sn	2

2.2.3 イオン交換法によるプルトニウムの精製

今回の共沈に使用するプルトニウム (fissile 83.63%) は Am^{241} が約 1.2% 蓄積しており、表面線量率が非常に高いため、今後の作業における個人被ばくを低減させることおよび溶解時に混入した不純物を除去するために、溶解したプルトニウムは陰イオン交換法によって精製した。陰イオン交換法によるプルトニウムの精製は樹脂 1.5 × 2 ℓ を用いて 100 gPu/バッチで行なった。

9 ロットにわたり精製したプルトニウム溶液はプルトニウム濃度を高くするとともに濃度勾配をなくすために、中和後再溶解した。

再溶解液の分光分析結果を表-4 に示し、イオン交換工程における物質収支を表-5 に示した。

なお、イオン交換工程による Pu の平均物質収支は、95% であった。

表-4 イオン交換精製液分光分析結果

Lot No 分析元素	RI-11	RI-12	RI-13	RI-14	RI-15	RI-16	RI-17	RI-18	RI-19	*** Rap-24
Ag	1.7 ppm	0.2	1.5	0.4	0.9	0.2	0.3	0.4	0.2	—
Al	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	15	20	15	< 500
B	28	1.9	0.6	0.9	1.2	2.0	0.4	1.9	1.4	< 20
Cd	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 20
Cr	13	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 500
Cu	< 1	< 1	< 1	12	4	3	< 1	< 1	< 1	—
Fe	< 10	< 10	< 10	< 10	80	< 10	< 10	< 10	< 10	< 500
Mg	< 2	< 2	< 2	< 2	9	3	6	< 2	< 2	< 25
Mn	< 6	< 6	< 6	< 6	< 6	< 6	< 6	< 6	< 6	—
Ni	35	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 500
Si	20	17	< 10	< 10	25	20	40	20	20	—
V	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 200
Zn	< 50	< 50	< 50	< 50	< 50	< 50	< 50	80	90	—
*Pu回収量	1025g	886	823	962	1052	840	886	947	8768	—

* 原料液：Pu 100g

*** Rap-2, および 4 を製造した時のスペック。

Cu + Zn + Si < 600 ppm。

Ag + Mn + Mo + Pb + Sn < 200 ppm。

表-5 ラブソディー5照射用試料製造に供した硝酸プラトニウム溶液のイオン交換工程における物質収支

Lot. No.	実施月日	原料液		前処理液		吸着廃液		洗浄(O)液		溶離(O)液		洗浄濃縮液		精製液		※ 合 計	
		Pu (g)	Am (g)	Pu (g)	Am (mg)	Pu (g)	Am (mg)	Pu (g)	Am (mg)	Pu (g)	Am (mg)	Pu (g)	Am (mg)	Pu (g)	Am (mg)	Pu (g) 収率 (%)	Am (g) 収率 (%)
RI-11	S48 3/1 ~3/2	100.00	1.50	—	—	0.16	85.32	0.003	742.50	0.05	14.66	5.53	0.96	102.49	37.92	103.87 103.87	0.88 58.67
12	3/8 ~3/9	100.00	1.50	0.01	3.81	0.72	—	0.19	—	0.43	—			88.64	—	91.37 91.37	— —
13	3/15~3/16	100.00	1.50	0.76	—	0.005	4.76	0.004	943.75	0.65	28.80			82.25	84.19	85.05 85.05	1.06 70.67
14	3/29~3/30	100.00	1.50	0.43	5.97	0.02	—	0.003	—	0.25	—			96.20	—	96.90 96.90	— —
15	4/12~4/13	100.00	1.50	0.42	—	0.05	4.57	0.26	603.68	0.03	21.69	7.80	504.00	105.05	90.52	107.37 107.37	0.82 54.67
16	4/18~4/19	100.00	1.50	0.56	0.49	0.003	—	0.33	—	0.42	—			83.99	—	86.86 86.86	— —
17	4/26~4/27	100.00	1.50	0.33	—	0.005	0.51	0.003	591.36	0.21	40.59			88.62	127.76	90.73 90.73	0.86 57.33
18	5/11~5/12	100.00	1.50	1.64	148.26	0.16	—	0.96	—	0.05	—			94.71	—	99.08 99.08	— —
19	7/19~7/20	100.00	1.50	—	—	0.012	0.07	0.00	0.81	0.101	0.13			88.00	9.30	89.67 89.67	0.19 12.67
平均		100.00	1.50													94.54 94.54	0.76 50.67

※) PuおよびAm量は、1ロット当りの各種工程溶液中のPuおよびAm量の平均値の和である。

2.3 共沈工程

2.3.1 実験計画

プルトニウムとウランとの共沈殿物を製造するにあたり、製造した粉末の物性に影響を与えると考えられるアンモニア水の添加速度、沈殿生成温度および熟成時間を変数とし、粉末物質と共沈条件との関係の検討を兼ねて以下の実験計画により共沈（シリーズ1）を行なった。

因子

- | | |
|--------------------------|---------------------------------------|
| (1) (Pu + U)溶液濃度 | 100 gr |
| (2) NH ₄ OH濃度 | 14.7M |
| (3) " 添加速度 | (A) 5ml/min (B) 10ml/min (C) 20ml/min |
| (4) 沈殿生成温度 | (D) 30°C (E) 50°C (F) 70°C |
| (5) 沈殿生成 pH 値 | 7~8 |
| (6) 攪拌速度 | air jet (const) |
| (7) 沈殿時遊離酸濃度 | 1.5~2.0M |
| (8) 熟成時間 | (G) 10min, (H) 60min |
| (9) 沈殿物乾燥温度 | 100±2°C |

実験回数（シリーズ -1）

Lot. No.	因子の組合せ
CP-101	A-D-G
-102	B-D-G
-103	C-D-G
-104	A-D-H
-105	B-D-H
-106	C-D-H
-107	A-E-G
-108	B-E-G
-109	C-E-G

Lot. No.	因子の組合せ
CP-110	A-E-H
-111	B-E-H
-112	C-E-H
-113	A-F-G
-114	B-F-G
-115	C-F-G
-116	A-F-H
-117	B-F-H
-118	C-F-H

シリーズ -1として製造した粉末についてタップ密度および焼結密度を測定した。その結果は、表6、および7に示したとおりである。

なお、得られた殿物は、550°Cで1時間焙焼、さらに800°Cで4時間還元した後に各々の物性値測定に供した。

表-6 タップ密度 (g/cc) への生成条件の影響

C \ B		A	5	10	20
30	10		3.57	3.13	3.85
	60		3.80	3.56	2.98
50	10		3.86	2.60	3.18
	60		3.01	2.62	3.40
70	10		3.21	3.37	3.04
	60		2.41	2.51	2.78

A : アンモニア添加速度 (ml/min)

B : 熟成時間 (min)

C : 生成温度 (°C)

表-7 焼結密度 (% TD) への生成条件の影響

C \ B		A	5	10	20
30	10		86.48	86.39	85.98
	60		84.50	84.58	84.51
50	10		83.38	83.50	85.83
	60		86.06	82.48	86.02
70	10		86.67	84.43	84.95
	60		83.60	86.72	86.85

A : アンモニア添加速度 (ml/min)

B : 熟成時間 (min)

C : 生成温度 (°C)

シリーズ -1の結果より, アンモニア水の添加速度は粉末物性に影響を与えない事がわかったので, 新たにPH値を変数とした以下の共沈実験(シリーズ -2)を行なった。

因子

- (1) (Pu+U)濃度 100gr
- (2) アンモニア水濃度 14.7M
- (3) " 添加速度 10ml/min
- (4) 沈殿生成温度 (A) 30°C (B) 40°C (C) 50°C (D) 60°C
(E) 70°C

- (5) 沈殿生成 PH 値 (F) 7.5 (G) 8.5
 (6) 遊離酸濃度 1.5M
 (7) 熟成時間 (H) 10min (I) 30min (J) 120min
 (8) 沈殿物乾燥温度 $100 \pm 2^{\circ}\text{C}$

実験回数 (Phase -2)

Lot. No.	因子の組合
OP-201	A-I-F
-202	B-I-F
-203	B-H-F
-204	D-H-F
-205	A-H-F
-206	A-H-F
-207	E-J-F
-208	E-J-F
-209	A-I-F
-210	A-I-F
-211	B-I-F
-212	B-I-F

Lot. No.	因子の組合
OP-213	B-H-F
-214	B-H-F
-215	D-H-F
-216	D-H-F
-217	B-H-G
-218	B-H-G
-219	C-H-G
-220	C-H-G
-221	D-H-G
-222	D-H-G

シリーズ -1 およびシリーズ -2 で得られた結果を総括して表-8 および表-9 に示した。

表 - 8 シリーズ -1 共沈結果

ZN844-75-01

工程	成分 濃度等	Lot No	CP-101	-102	-103	-104	-105	-106	-107	-108	-109	-110	-111	-112	-113	-114	-115	-116	-117	-118
		処理 月日	5 / 15	5 / 17	5 / 21	5 / 23	5 / 28	5 / 30	6 / 1	6 / 5	6 / 7	6 / 11	6 / 13	6 / 18	6 / 20	6 / 22	6 / 26	7 / 7	7 / 4	7 / 6
原液	Pu H ⁺ (M)	RI-14 541ml	RI-14 541	RI-14 541	RI-14 541	RI-12,11 519	RI-11 414	RI-11 414	RI-11 414	RI-11 414	RI-11 414	RI-11,12 443	RI-12 633	RI-12 633	RI-16 680	RI-16 680	RI-16 680	RI-16 680	RI-16,12 640	RI-12 633
	U H ⁺ (M)	Lot-1-1 278ml	Lot-1-2 278	Lot-1-3 278	Lot-1-4 278	Lot-2-1 357	Lot-2-2 357	Lot-2-3 357	Lot-2-4 357	Lot-3-1 328	Lot-3-2 328	Lot-3-3 328	Lot-3-4 328	Lot-4-1 308	Lot-4-2 308	Lot-4-3 308	Lot-4-4 308	Lot-4-4 308	Lot-5-1 372	Lot-5-2 372
調整液	量	312ℓ	312	312	312	300	300	300	300	300	300	324	324	300	300	300	300	300	300	310
	Pu (g)	20.02	20.02	20.02	20.02	20.20	20.22	20.22	20.22	20.22	20.22	20.21	20.00	20.00	20.20	20.20	20.20	20.20	20.03	20.00
	U (g)	80.06	80.06	80.06	80.06	80.22	80.22	80.22	80.22	80.00	80.00	80.00	80.00	80.24	80.24	80.24	80.24	80.24	79.98	79.98
	H ⁺ (M)	1.5	1.5	1.5	1.5	1.9	1.9	1.5	1.5	1.5	1.5	1.7	1.7	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
沈殿	NH ₄ OH添加速度	5ml/min	10	20	5	10	20	5	10	20	5	10	20	5	10	20	5	10	20	
	NH ₄ OH消費量	370 min	400	410	410	510	500	420	460	450	460	490	500	410	430	450	590	440	280	
	沈殿生成温度	30℃	30	30	30	30	30	50	50	50	50	50	50	70	70	70	70	70	70	
	生成pH値	8.4	7.6	7.6	7.4	7.4	7.8	7.8	7.6	7.9	7.8	7.6	7.6	7.8	7.6	7.2	7.4	7.4	7.4	
	熟成時間	10 min	10	10	60	60	60	10	10	10	60	60	60	10	10	10	60	60	60	
	熟成温度	30℃	30	30	30	30	30	50	50	50	50	50	50	70	70	70	70	70	70	
濾過	濾過所要時間	- min	90	190	115	135	135	85	75	70	70	105	40	41	80	60	50	60	45	
	沈殿洗淨水	- ml	450	600	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	
	濾液総量	4.0ℓ	3.5	3.5	5.0	4.0	4.0	4.0	4.5	4.0	4.5	4.3	4.0	4.0	3.8	3.8	4.0	3.6	3.7	
	濾液中Pu量	0.28mg	0.37	1.376	11.695	2.92	0.10	0.72	0.95	1.16	1.04	6.88	0.40	1.74	0.61	1.86	1.48	0.5	0.41	
	濾液中U量	<40.0mg	<35.0	<35.0	<50.0	<40.0	<40.0	<1.5	<2.25	<2.00	<2.25	<4.7	<1.68	<1.56	<3.8	<3.8	<3.7	<3.6	<3.7	
沈殿物乾燥	乾燥時間	30 hrs	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	
	乾燥温度	100±2℃	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	
	乾燥後重量	14.90g	13.90	16.60	14.60	14.55	13.90	13.95	13.85	13.15	12.95	13.25	13.20	13.70	13.55	13.90	13.40	14.25	14.35	
	焙焼後重量	10.90g	11.50	11.30	12.25	12.15	11.80	11.90	12.05	11.25	11.15	11.50	11.70	11.50	11.50	11.65	11.65	11.65	12.40	
	Pu回収量	1.84g	1.932	1.993	1.972	1.999	1.873	1.833	1.856	1.811	1.775	2.069	2.064	2.029	2.069	2.137	2.137	1.998	2.127	
	U回収量	7.40g	7.889	7.964	8.405	8.606	8.624	8.637	8.746	8.087	8.015	7.810	8.027	7.971	8.011	8.115	8.075	8.252	8.826	
UO ₂ /PuO ₂ 比	4.02	4.09	4.00	4.26	4.31	4.56	4.71	4.71	4.47	4.52	3.78	3.89	3.93	3.87	3.80	3.78	4.13	4.15		

表 - 9 シリーズ - 2 共沈結果

工程	Lot No 成分 処理日	CP-201	-202	-203	-204	-205	-206	-207	-208	-209	-210	-211	-212	213	-214	-215	-216	-217	-218	-219	-220	-221	-222	
		8/2	8/3	8/7	8/8	8/10	8/21	8/23	8/27	8/29	8/31	9/4	9/6	9/10	9/12	9/14	9/18	9/19	9/21	10/9	10/11	10/15	10/17	
原液	Pu (m ²)	RI-1218 300,268	RI-18 510	RI-18 510	RI-18 510	RI-18 510	RI-1818 519	RI-15 533	RI-15 533	RI-15 533	RI-1517 558	RI-17 571	RI-17 571	RI-17 571	RI-1719 575	RI-19 620	RI-19 620	RI-19 620	RI-19 620	RI-1913 581	RI-13 566	RI-13 882		
	H ⁺ (M)	6.8, 3.3	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3, 2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	7.2	7.2	7.2	7.2	3.9	1.43	1.43	1.43	1.43	5.5	7.0	7.0	
液	U (m ²)	Lot-6-1 284	Lot-6-2 284	Lot-6-3 284	Lot-6-4 284	Lot-6-5 284	Lot-5-3 372	Lot-7-1 322	Lot-7-2 322	Lot-7-3 322	Lot-7-4 322	Lot-8-1 299	Lot-8-2 299	Lot-8-3 299	Lot-8-4 299	Lot-9-1 341	Lot-9-2 341	Lot-9-3 341	Lot-9-4 341	Lot-10-1 328	Lot-10-2 328	Lot-10-3 328	Lot-10-4 510	
	H ⁺ (M)	1.04	1.04	1.04	1.04	1.04	0.94	0.27	0.27	0.27	0.27	0.98	0.98	0.98	0.98	1.36	1.36	1.36	1.36	1.33	1.33	1.33	1.33	
調整	液量 (L)	300	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	
	Pu (gr)	1998	1998	1998	1998	1998	1964	1996	1996	1996	1996	2006	1999	1999	1999	1985	1984	1984	1984	1984	1999	1998	3113	
	U (gr)	8020	8020	8020	8020	8020	7998	8021	8021	8021	8021	8007	8007	8007	8007	8003	8003	8003	8003	8013	8013	8013	12459	
	H ⁺ (M)	1.5	1.5	2.6	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	6.94	0.85	1.5	1.5	1.7	1.5	1.5	1.5	1.5	1.6	2.0	
沈殿	NMOH消費量	10.6min	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	
	NMOH消費量	390ml	420	635	375	430	414	413	422	420	410	365	260	235	387	365	470	415	440	440	435	453	640	
	沈殿生成温度	30°C	40	40	60	30	30	70	70	30	30	40	40	40	40	60	60	40	40	50	50	60	60	
	生成 pH 値	7.6	7.8	7.6	7.6	7.4	8.0	7.4	7.4	7.4	7.6	7.6	7.9	7.8	7.4	7.8	7.2	8.8	8.6	8.8	8.8	8.6	8.4	
	熟成時間	30min	30	10	10	10	10	120	120	30	30	30	30	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
	熟成温度	30°C	40	40	60	30	30	70	70	30	30	40	40	40	40	60	60	40	40	40	50	60	60	
ろ過	ろ過所要時間	11.5min	40	35	40	65	70	45	45	55	60	35	55	55	50	45	43	28	45	39	45	41	69	
	ろ過洗浄水	600ml	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	
過	ろ液中U量	3.6L	4.2	4.2	3.6	3.7	3.7	3.8	3.6	3.7	3.8	3.9	3.4	3.5	3.8	3.8	3.7	3.8	3.9	3.8	3.8	3.9	3.9	
	ろ液中Pu量	1.15mg	0.71	1.81	1.80	2.74	0.48	0.95	1.87	0.14	1.90	0.66	0.41	0.30	0.15	0.72	0.33	0.04	0.16	0.23	0.27	0.12	0.18	
沈殿物乾燥	乾燥時間	24hrs	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	
	乾燥温度	100±2°C	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	
	乾燥後重量	1350g	1337	1335	1340	1347	1400	1335	1310	1290	1290	1297	1385	1315	1335	1430	1465	1475	1655	1315	1315	1335	2175	
	焙焼後重量	1140g	1110	1180	1130	1135	1165	1100	1105	1110	1120	1085	1115	1120	1140	1265	1225	1230	1410	1150	1190	1125	1785	
	Pu回収量	g	20.36	21.64	20.72	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	U回収量	g	77.07	81.51	77.27	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	UO ₂ /RO ₂ 比		3.79	3.77	3.73	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—		

2.4 被曝計算

ラプソディー5照射用試料の製造を開始するに当って、これら一連の作業に伴なう個人被曝が著しく増加しない事を確認するために、製造工程全般における作業条件を考慮し、作業者の個人被曝線量を計算した。

2.4.1 プルトニウムの同位体組成

Pu-238	0.41%
-239	75.01%
-240	14.34%
-241	7.43%
-242	1.39%
Am-241	12060 ppm(1.2%)

(分離精造後の経過日数; 1,060日)

2.4.2 作業条件

湿式工程における1ロットあたりの作業条件は表-10の通りであるとして計算に用いた。

表-10 作業条件

(1Lot:Pu-100gr)

工 程	作業時間(分)		Pu含有量 (%)	表 面 積 (cm ²)	被ばく量(mrem)	
	T ₁	T ₂			r	n
粉末受入	30	0	100	50	0.5	0.13
溶 解	0	180	100	375	69.5	0.70
溶液調整	30	0	100	150	1.4	0.13
イオン交換	0	300	50	800	123.3	0.60
共 沈	180	0	20	450	50.0	0.20
戸 過	180	0	20	100	1.1	0.20
溶液移動	30	0	100	300	2.8	0.13
				計	203.6	2.19

ここで T₁ : 鉛ガラスのある場所での作業時間 (K=0.03)

T₂ : 鉛板(2mm) " (K=0.10)

また G. B. パネルによるしゃへい効果は無視した。

2.4.3 推定被ばく線量

表-10に示した作業条件を基にして、被曝線量計算式より算出した被ばく線量は以下のとおりである。

1ロット当りの被ばく量： 205.7mrem

9ロット処理による全被ばく量： 1,851.3mrem

5人で処理するとして1人当りの被ばく量：

$$1,851.3 / 5 = 370.3 \text{ mrem} / 7.5 \text{ month}$$

すなわち 148.1 mrem/man / 3 months

2.5 結果と考察

2.5.1 結果

実験,(シリーズ-1およびシリーズ-2)で得られたPuO₂-UO₂共沈粉末について測定した物性値は、以下に示すとおりである。

表-11は粉末のタップ密度の測定結果であり、表-12はBET法による比表面積の測定結果である。

表-11 種々の共沈条件でえられた混合酸化物のTAP密度

D (°C)	C (min)	A(ml/min)		5		10		20	
		B (PH)		7.5	8.5	7.5	8.5	7.5	8.5
30	10	1.0		3.57	—	3.13	—	3.85	—
	60	6.0		3.80	—	3.56	—	2.98	—
50	10	1.0		3.86	—	2.60	2.56	3.18	—
	60	6.0		3.01	—	2.62	—	3.40	—
70	10	1.0		3.21	—	3.37	—	3.04	—
	60	6.0		2.41	—	2.51	—	2.78	—

表-12 種々の共沈条件でえられた混合酸化物の比表面積

D (°C)	C (min)	A(ml/min)		5		10		20	
		B (PH)		7.5	8.5	7.5	8.5	7.5	8.5
30	10	1.0		5.18	—	5.76	—	5.68	—
	60	6.0		—	—	5.61	—	—	—
50	10	1.0		—	—	5.29	4.68	—	—
	60	6.0		5.13	—	—	—	7.05	—
70	10	1.0		5.34	—	—	—	—	—
	60	6.0		—	—	7.52	—	7.97	—

これらタップ密度および比表面積の値は、分散分析法によって処理し、またそれぞれの効果について95%信頼限界の値を整理して、その結果を図-3、-4および-5に示す。

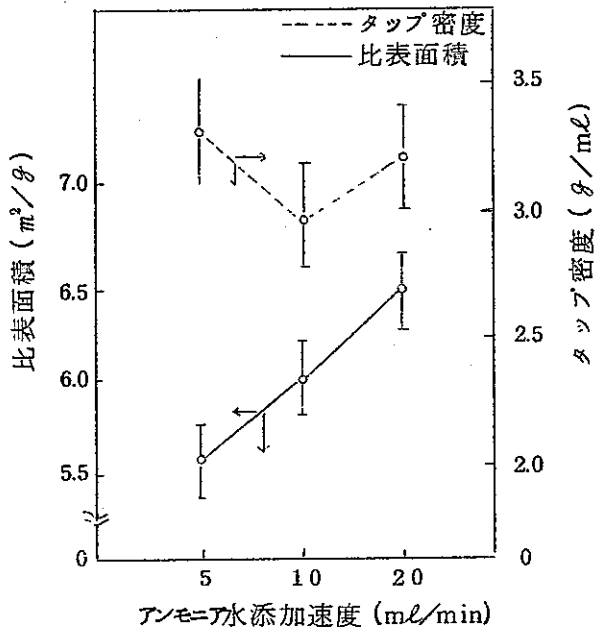


図-3 混合酸化物粉末のタップ密度および比表面積へのアンモニア水添加速度の影響。

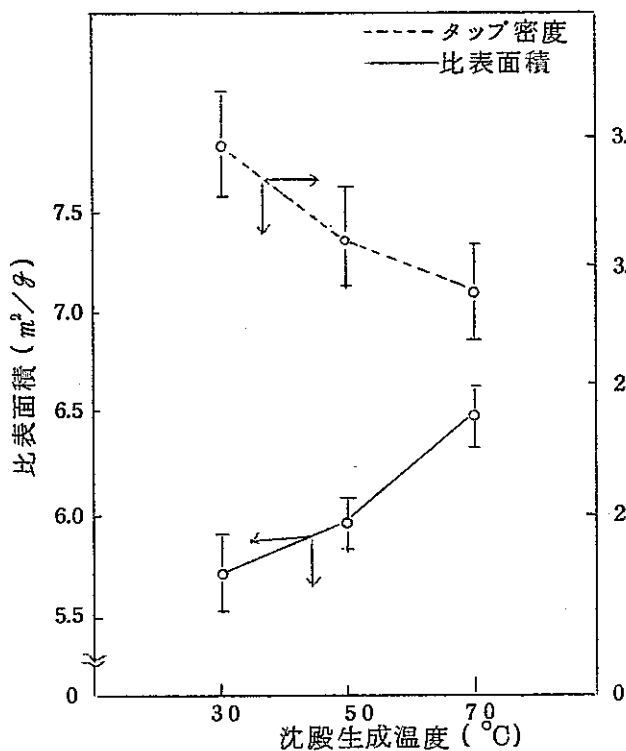


図-5 混合酸化物粉末のタップ密度および比表面積への沈殿生成温度の影響。

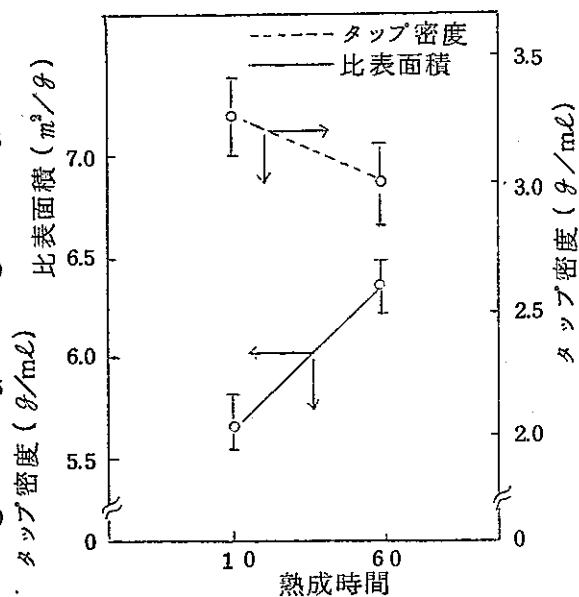


図-4 混合酸化物粉末のタップ密度および比表面積への熟成時間の影響。

以上の結果から共沈条件と得られた粉末の活性度およびタップ密度との関係について、以下の事実が明らかとなった。

- (1) 比表面積測定による粉末の活性度は、アンモニア水の添加速度が速く、また沈殿生成温度が高くなるほど大きくなる傾向がある。
- (2) タップ密度は、アンモニア水の添加速度の遅速による一定の傾向は示さなかったが、沈殿生成温度が低いほど高くなる傾向がある。
- (3) 沈殿熟成時間と粉末活性度の関係については、熟成時間が長くなるほど大きくなる傾向がある。一方、タップ密度との関係については、熟成時間が長くなるほど低くなる傾向がある。

2.5.2 考察

本製造実験は、ラブソディー5照射用試料のための原料粉末の供給という点では、十分その使命を果すことができた。

また当初の目的の一つである共沈条件と物性値との関係についても上述のようなある程度の成果が得られた。

これら共沈粉末の焼結性については、ラブソディー5用試料のテストランの段階で検討しようとしたが、ラブソディー5照射用ペレットの仕様密度が 85 ± 2 ％と可成り低いためにテストの重点が密度コントロールにあり、かつ製造工程にボールミル工程を入れたために、焼結性の直接的な検討は行うことが出来なかった。

今後、このような試験を実施する場合には、焙焼、還元および焼結温度も変数とし、とくに粉末の特性に影響を与えると思われる工程（ボールミル、バインダー添加）は全て省いて行なう必要がある。

また今回の実験で検討しえなかった沝過性および沝過時間等との関係も合わせて検討しておく必要がある。

一方、ラブソディー5照射用試料粉末の製造を約7.5ヶ月にわたって実施した間における全身および局部被曝線量は表-13に示すとおりであった。

表-13 被ばく結果

作業者	2～3月		4～6月		7～9月		合計(平均)	
	全身	局部	全身	局部	全身	局部	全身	局部
A	70	200	60	100	60	100	190 (63)	400 (133)
B	190	210	90	70	90	120	370 (123)	400 (133)
C	180	290	100	160	110	<20	390 (130)	470 (157)
D	230	360	100	120	80	<20	410 (137)	500 (167)
E	230	460	120	40	100	180	450 (150)	680 (227)

この結果から、湿式工程全般での各作業者の3ヶ月当りの平均被曝量は、Eが最高で150mrem、Aが最低で63mremであった。Eの被曝量は、推定計算値によく一致し、作業条件の妥当性を示していると思われる。

このように各人の被曝量が低く押えられたのは、積極的に被曝対策（各工程における鉛板の適切な利用）を講じた成果であろう。

3 廃液処理と中和燬物焙焼

3.1 48年度の処理実績

開発課試料係湿式グループにおける廃液処理対象は、プルトニウム燃料部第1開発室ならびにB棟で発生する工程廃液および分析廃液である。

処理法としては、従来通りの中和、蒸発濃縮を実施して来たが、本年度後半より放出廃液中の全 α 濃度をさらに低減する方向でプルトニウム燃料部第1, 2開発室を含めて再検討する必要性にさまられたので、開発課としては、LLDタンクに放出する時点(グローブ・ボックスからの放出時点)で30 dpm/ml以下に低減するように努めた。

開発課では、47年度後半に廃液処理能力、除染係数(D.F.)の向上および省力化を計るために蒸発濃縮装置を設置し、留出液の α 濃度を $\sim \times 10^2$ dpm/mlまで下げて来た。さらに1桁下げるために、活性炭塔を設け、1~2回程度吸着を繰返して目的値まで減らすことに成功した。

こゝで、蒸発濃縮装置-活性炭塔による改良型廃液処理工程フローシートを図-6に示した。

表-14に月別廃液処理状況ならびにPu, EU, NUの回収量、図-7に廃液受入量と排水量の関係、表-15に蒸発濃縮処理量、表-16に蒸発濃縮留出液および活性炭処理液中の α 濃度とD.F.の関係(1例)ならびに表-17に活性炭処理による再生液中の不純物含有量をまとめて示した。

さらに参考として、ラブソディー5照射用試料粉末製造時のイオン交換精製によって発生した廃液の中和処理における放射線実測値を表-18に示した。

一方、廃液処理によって発生した中和燬物の焙焼処理実績を表-19に示した。

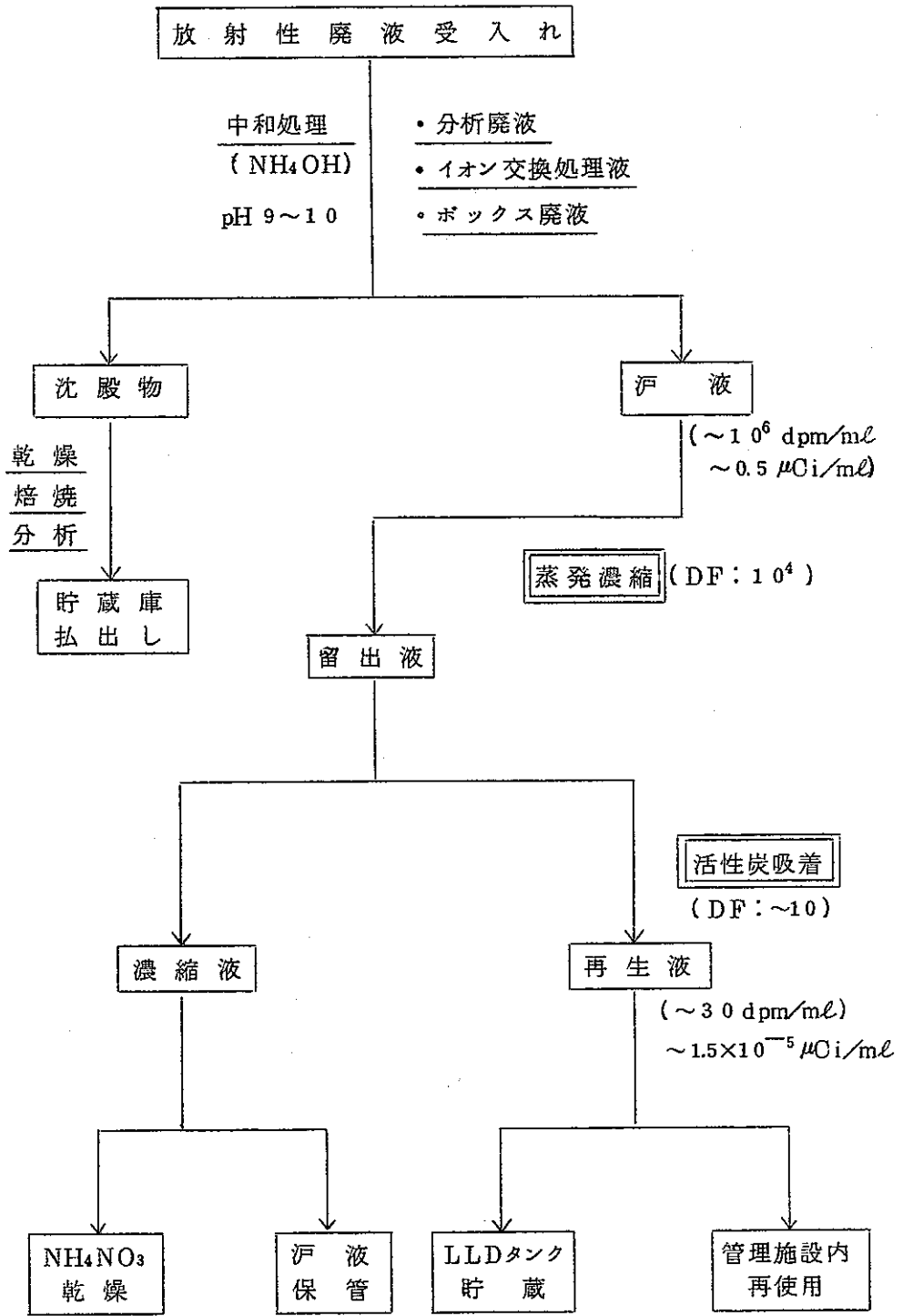


図-6 改良廃液処理工程フローシート

表-14 月別廃液処理状況

月		4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	計
		受入量		52.8ℓ	3.7ℓ	47.1ℓ	7.0ℓ	—	13.0ℓ	58.3ℓ	39.0ℓ	42.0ℓ	23.0ℓ	25.0ℓ
内 訳	分析廃液	3.0	—	16.7	7.0	—	13.0	—	4.0	—	—	—	—	43.7 "
	B棟廃液	—	—	3.04	—	—	—	—	—	24.0	23.0	—	—	77.4 "
	試料廃液	49.8	3.7	—	—	—	—	58.3	35.0	18.0	—	25.0	—	189.8 "
Pu (g)		33.04	4.00	0.67	0.95	—	1.41	16.08	4.58	22.10	0.136	—	—	82.97 g
EU		—	—	—	—	—	—	29.46	0.84	85.59	—	—	—	115.89 "
NU		—	—	317.65	—	—	33.5	—	—	140.00	1.15	—	—	492.30 "

図-7 48年度月別廃液処理量

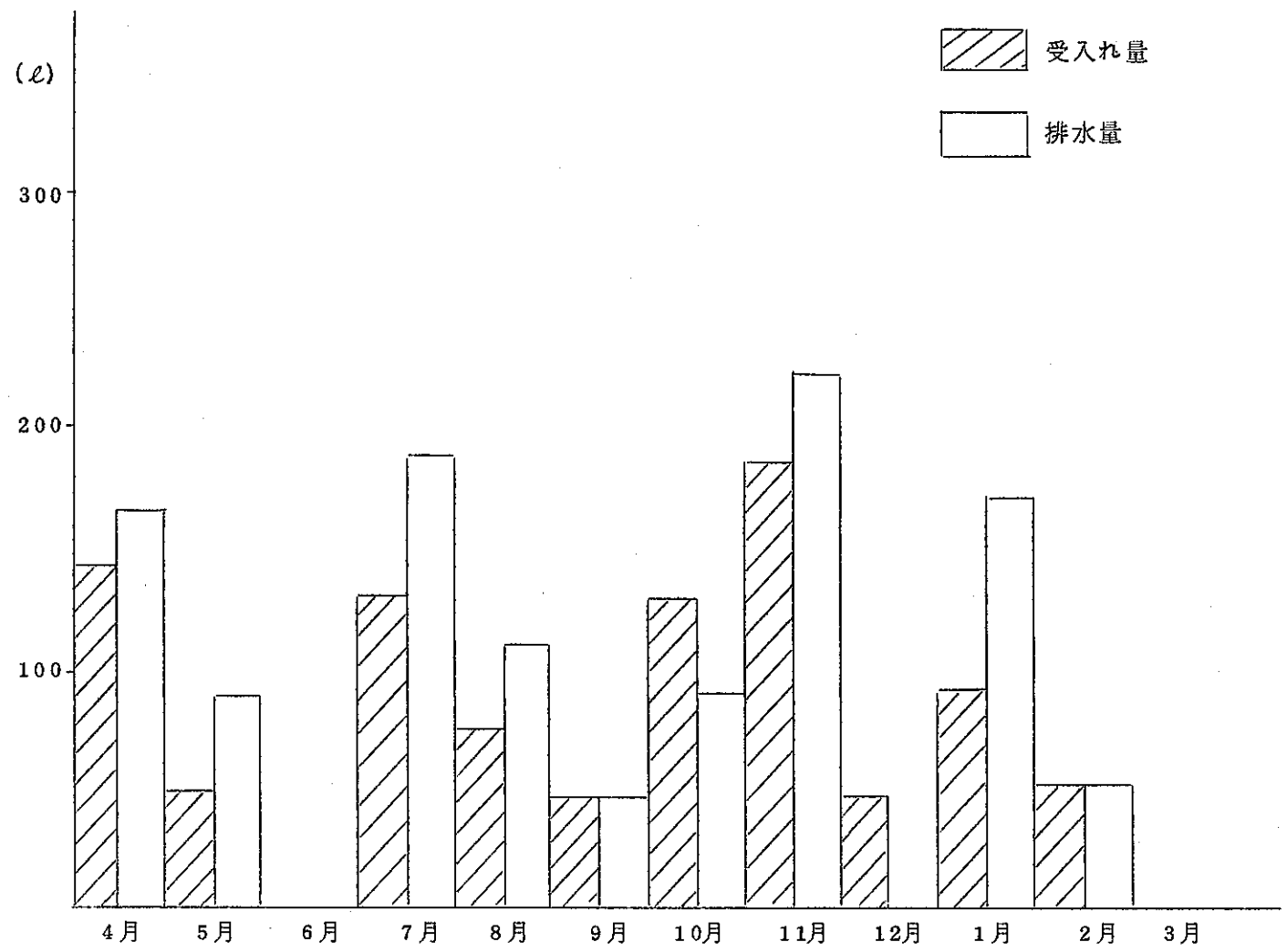


表-15 廃液蒸発濃縮処理量

		月	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	計	月平均
処理量 (ℓ)			142	50		131	75	43	128	183	45	90	50		937	79
内 訳	Rap ⁵ イオン交換廃液		130	50						137					317	26
	Rap ⁵ 共沈廃液					88	40		38						166	14
	分析廃液		12				35								47	4
	B棟廃液					43							50		93	8
	その他(混合)							43	90	46	45	90			314	26
回数			3	1		3	2	1	3	4	1	2	1		21	1.7
平均濃度 × 10 ⁵ dpm/ml			4.2	0.36		1.9	0.96	0.35	0.75	32.0	9.2	2.7	3.9			4.7
Pu × 10 ⁵ μg			4.8	0.14		2.0	0.58	0.12	0.76	50.0	3.3	1.9	1.8		65.4	5.45
排水量 (ℓ)			166	88		186	110	43	88	221	32	169	50		1,153	96
備考									蒸発管 ドレイン よりもれ	PE -001 留出硝酸		スクラ パー 廃液				

表-16 蒸発濃縮留液および活性炭処理液中の濃度とDFの関係

原液濃度 α (dpm/ml)	蒸発濃縮留液 (dpm/ml)	留 出 液 DF	活性炭処理液 (dpm/ml)	蒸留-活性炭 全DF
1) 4.7×10^6	160	2.9×10^4	< 30	1.6×10^5
2) 9.5×10^5	200	4.8×10^3	< 30	3.2×10^4
3) 1.9×10^6	140	1.4×10^4	< 30	6.3×10^4
4) 1.2×10^5	< 30	4.0×10^3	—	—
5) 2.9×10^5	108	2.7×10^3	< 30	1.0×10^4
6) 1.1×10^6	60	1.8×10^4	< 30	3.6×10^4
7) 3.4×10^6	97	3.5×10^4	< 30	1.1×10^5
8) 2.2×10^5	< 30	7.3×10^3	—	—
9) 4.5×10^5	140	3.2×10^3	< 30	1.5×10^4
10) 7.4×10^5	< 30	2.5×10^4	—	—

表-17 活性炭処理による再生液中の不純物含有量

不 純 物	含 有 量 (ppm)
Ag	検出なし
Al	< 50
B	検出なし
Cd	"
Cr	"
Cu	< 5
Fe	< 5
Mg	< 5
Mn	検出なし
Ni	"
Si	< 50
V	検出なし
Zn	"
^{239}Pu	1.6×10^{-6}
^{241}Am	7.4×10^{-7}

表-18 ラブソディー5照射用試料粉末製造時のイオン交換精製によって発生した
廃液の中和処理における放射線実測値(48.9.20現在)

ロット No	廃液名称	液量(ℓ)	ホモライト	鉛入りグローブ	鉛ガラスしゃべ ^{*1}	鉛容器-鉛ガラスしゃべ ^{*2}
RI-11	洗浄液	3.0	500	110	0.6	0.3
"	吸着廃液	3.0	150	37	0.4	<0.1
" 12	"	3.0	200	60	0.5	<0.1
" 13	洗浄液(1)	2.0	450	110	0.8	0.5
"	" (2)	2.0	430	70	0.5	0.3
"	溶離前処理液	3.0	100	17	0.3	<0.1
" 14	洗浄液	3.0	1,200	270	1.5	0.5
" 15	"	3.0	1,800	380	2.0	0.5
" 16	"	3.0	1,200	250	1.5	0.5
" 17	"	2.5	1,300	350	1.5	0.5
"	溶離前処理液	3.0	130	15	0.4	<0.1
" 18	吸着廃液	3.0	250	50	0.5	<0.1
"	洗浄液	3.0	1,900	360	1.9	0.5
RI-19	"	3.0	2,200	360	2.2	0.5
RI-11~14	洗浄濃縮液	6.0	3,000	600	5.5	2.0
RI-15~19	"	6.0	4,000	760	7.3	2.4
	合計	51.5	18,810	3,799	27.40	8.75

*-1; ホモライト+鉛ガラス

*-2; " +鉛容器+鉛ガラス

表-19 焙焼処理実績

月	Lot No	処理数	推定 Pu 量(%)	推定 Eu 量(%)	推定 Nu 量(%)	備 考
5	Pu-001 Nu-001	1	11.97		123.69	(Pu-999)
10	Pu-001 Eu-001	5	19.49	9.06		高レベル可燃物
11	Pu-651 Eu-651	7	0.00	0.00		"
12	Pu-001 Eu-001	4	4.55	6.70		" (溶媒付)
"	"	1	12.88	18.42		
"	Pu-001 Nu-001	1	0.85		174.00	B棟廃液
"	Pu-004 Nu-001	1	3.02		171.68	
"	Pu-501 Nu-001	1	19.04		98.81	
1	Nu-001	1			87.72	
"	Pu-001 Nu-001	2	16.95		634.37	
"	Nu-002	1			4.45	
"	Nu-102	1			26.70	
"	Pu-102	1	1.23			
"	Pu-001 Eu-003	1	9.40	23.12		
"	Pu-001 Eu-004	1	1.10	7.41		
2	Eu-651	1		8.12		
"	Pu-001	1	0.00			ブロック微物
"	Pu-601	1	9.92			
"	Pu-004	1	9.83			
"	Pu-008	1	1.21			
"	Pu-006	1	1.26			
"	Nu-001	1			8.64	
"	Pu-002	1	0.62			
"	Pu-001 Eu-004	1	21.53	85.59		
Total		30	144.85	158.42	1,330.06	
月平均(6ヶ月)		5	24.14	26.40	221.68	

3.2 結果と考察

蒸発濃縮-活性炭吸着法の採用により、全 α 濃度を30 dpm/ml以下に低減させることが可能となり、さらに再生液中の不純物含有量が非常に少なくイオン交換水に劣らない純度のものが得られることが確認された。従って再生液の再使用を考えた場合、管理区域内での使用は十分可能であるとの確信を得たので、第1開発室ではグローブボックスの排水管の一部を変更し再生液の取出しが出来るように改造した。

再生液の用途として、酸濃度調整、中和殿物の洗浄、1次冷却水、およびスクラバー液等が考えられる。

以上の諸結果から従来から実施して来た廃液処理工程（中和-フロキュレーションの組合せ）の省力化、処理能力、DFおよび安全性の向上は小規模装置ながら実証された。またいわゆるクローズドシステム化が提唱されているなかで、蒸発留出液の再使用に関してその可能性を示唆した。

なお今後に残された課題としては、蒸発後の濃縮液の処理対策をたてねばならないだろう。

4 グローブ・ボックスのパネル交換

グローブボックス #5 Bは昭和44年窓板面に線模様の亀裂が数本発生し、昭和48年になるとボックス内部が見にくくなるほど生長密集化した。そこで、この窓板8枚を交換することとし、48年11月に開発課、管理課および放射線管理課の3者でGlove-box Panel Exchange 委員会（以下G. P. E. 委員会と記す）を編成し、交換マニュアルの検討を開始した。49年2月からは試料係によってボックス内部の整理および除染を行ない、3月下旬から4月上旬にかけてパネル交換を実施した。

4.1 作業計画

G. P. E. 委員会の発足以来、交換などの作業計画を表-20に示した。

表-20 パネル交換作業計画

作業	12	1	2	3	4	5
G. P. E. 委員会会合	┆┆┆┆┆	┆┆		┆┆┆┆┆		
安專委説明		┆┆				
部材発注		┆┆┆┆┆				
#5 B内の整理			┆┆┆┆┆			
Box 内除染			┆┆┆┆┆			
グローブ交換etc			┆┆┆┆┆			
Box 内除染			┆┆┆┆┆			
ペイント塗装				┆┆┆┆┆		
モックアップ試験				┆┆┆┆┆		
パネル交換				┆┆┆┆┆		
後かたづけ					┆┆┆┆┆	
局施設検査						┆┆┆┆┆

4.2 グローブ・ボックス内の除染

ボックス内の整理が終了後、硝酸とティッシュペーパーによる拭き取り法除染を実施した。除染は、目標レベル ($1 \times 10^3 \text{ cpm} / 100 \text{ cm}^2$) を設定し、この値を目標にくり返し行ない、平衡に達したところで、ペイント塗装に切り換えた。最終的には、 $\sim 10^2 \text{ cpm} / 100 \text{ cm}^2$ まで除染することが出来た。

4.3 パネル交換

交換予定のパネル前面にグリーンハウスを設営し、防護衣を装着した主作業員2名と補助作業員1名がグリーンハウス内に入り、パネルを交換した。

なお、8枚のパネル板(1,000cm×1,000cm/枚)を交換するのに要した日数は7日間であった。交換の詳細記録については、既発表の技術レポート(N841-74-43)を参照していただきたい。

5 その他の業務

5.1 有機廃液のゲル状固化

昨年度に引続き、Box 4 で有機溶媒の処理を行なった。今年度約10ℓの有機溶媒の処理を行ない、廃棄物として計量係へ払い出した。

処理量は表-21に示した。なお処理方法等は昨年度業務報告(SN-844-73-04)を参照していただきたい。

5.1.1 処理実績

昭和48年度における処理実績は表-21に示すとおりである。これで湿式ボックス内手持廃溶媒の処理は全て終了した。

表-21 処理実績

Lot	処理量(ℓ)	Pu量(♯)	Eu量(♯)	Nu量(♯)
Pu-102 Nu-001	1.6	0.00		5.20
Nu-001	1.3			0.00
Pu-001 Eu-001	8.475	0.52	3.15	
計	11.375 ※	0.52	3.15	5.20

※ 分析廃溶媒 3.0ℓを含む。

5.2 ティッシュの焼却

湿式回収工程で発生した高レベル可燃物、また溶媒抽出工程で発生した溶媒(30%TBPOドデカン)の浸込んだティッシュならびにイオン交換工程で発生した硝酸の浸込んだティッシュ等は、放射性可燃物として廃棄することができず各Box内に貯蔵していた。しかし計量管理および被曝管理上問題があった。

48年度に入りPE-001系の欠量、Box 5Bのパネル交換等で、それらの可燃物を早急に処理しなければならず11月よりBox 5Bの焼却炉とBox 82の焙焼炉とを使用して焼却した。

5.2.1 焼却炉概略仕様

マッフル炉

電力	200V単組 4KW
外蓋材質	SUS-27
炉材質	SUS-27
ヒーター	棒状シリコニット A10-6
断熱材	イソライト耐火レンガ
炉外寸法	500×450×550m/m
炉内寸法	200×200×220m/m
最高温度	1,000°C
常用温度	500°C
最高外壁温度	約60°C
温度制御方式	手動による2次電圧調整
スクラパー本体	パイレックスガラス製
スクラパー寸法	180φ×720
昇温速度	約700°C
降温速度	約100°C

5.2.2 運転実績

昭和48年度における焼却炉の運転実績は表-22に示すとおりである。

表-22 焼却処理実験

名 称	ロット	重 量	焼却灰重量		Pu	EU	備 考
高レベル可燃物	PE-001		247.0 g	推	0.00 g	0.01 g	
ティッシュ A	PE-651		135.5 "	推	0.00 "	0.00 "	Rapsodie-5 で使用した高放射線量のもの
" B	PE-001	3ℓポリビン ×8	99.0 "	確	4.55 "	6.70 "	溶媒(30%TBP-ドデカン)の浸込んだもの
" C	Pu-001						硝酸の浸込んだもの

6 ま と め

48年度は、業務内容として、ウラン、プルトニウムの回収、放射性廃液および廃棄物の整理という定常業務の他に、ラプソディー5照射用試料の共沈法による製造およびグローブ・ボックスのパネル交換という技術開発に重点をおいた。

業務成果は、

- (1) ボックス内に保管されていた回収廃物、約5.1kgを整理し、また第1開発室関係で発生した廃液320.4ℓの処理さらに回収工程から発生した高レベル可燃物(焼却灰として約500g)を焼却した。
- (2) 2月中旬から10月までの約8ヶ月間にラプソディー5照射用試料の原料粉末(共沈法)約4.6kg M. O. (20%PuO₂)の製造を行なった。この製造で共沈条件と粉末の物性値の関係を検討し、2, 3の知見を得た。
- (3) 開発課、管理課および放射線管理課の合同で、グローブ・ボックスパネル交換委員会を発足させ、延べ140名の努力により、8枚のパネル交換を無事完了させた。

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