研究論文

185. 放射性廃水蒸発濃縮処理装置の除染係数

真室哲雄*, 松村 隆*, 石山稔雄*, 吉川和子*, 荻野孝志*

*Decontamination Factor of a Radiochemical Waste Evaporator System*By Tetsuo MAMURO, Takashi MATSUMURA,
Toshio ISHIYAMA, Kazuko YOSHIKAWA and Takashi KARINO

A study was made to determine the decontamination efficiency of a radiochemical waste evaporator system, consisted of evaporator, cyclone, mist-separator and condenser. The system was designed to handle the liquid radioactive waste, ranged in activity from 10^{-4} to 10^{-2} $\mu\text{C}/\text{ml}$, at the rate of 200 l/hr and to get a volume reduction ratio of 100 ~ 200. The evaporator is single effect and vertical shell-and-tube type. The evaporator is operated for non-foaming liquid by fixing the liquid level above the upper tube sheet of the calandria as usual. For foaming liquid, however, the evaporator is operated by lowering the liquid level below the middle of the calandria. In the latter case, the upper part of the tubes above the liquid surface serves as a foam breaker. The decontamination factors of the evaporator, the cyclone and the mist-separator and the over-all decontamination factor were measured for the boil-up rates varying from 50 to 300 l/hr. Lithium chloride and strontium nitrate solutions were used as test liquid. The decontamination characteristic of the evaporator is different for the two test liquids and depends on the liquid level. The over-all decontamination factor was measured to be $10^6 \sim 10^8$ and it was revealed that the required decontamination efficiency was achieved. Some discussions are given on the mechanism of the generation of liquid entrainment.

緒 言

放射性廃水を蒸発濃縮処理する場合に除染をはばむ主要な原因となるものとして、一般に(1) entrainment, (2) splashing, (3) foaming, (4) carry-over by volatile radioactivity の4種が考えられている¹⁾。1961年3月に完成した大阪府立放射線中央研究所放射性廃水蒸発濃縮処理装置について、上記(1)と(2)に着目して除染係数の測定を行ない、その除染特性を明らかにすることができたので報告する。

I. 装置の概要

本装置は $10^{-4} \sim 10^{-2} \mu\text{C}/\text{ml}$ 程度の廃水を対象とし、常用処理能力 200 l/hr、溶存固形成分が 1,000 ppm 程度の廃水について減容比 100 ~ 200 と設計された。運転に際しては原廃水を蒸発罐に供給しながら蒸発し、罐内の液が一定の濃度または放射能レベルに達したとき

に濃縮液の排出を行なう。Fig. 1 に本装置のフロー・シートを示す。原廃水は内面ゴムライニングの鉄製貯溜槽(容量 3 m³)に、(1)長半減期、(2)短半減期、(3)発泡性、(4)揮発性の4種に分別して貯溜される。貯溜槽が一杯になると、廃水は小型ケミポンプにより pH 調整槽(容量 2 m³, 内面ゴムライニング、液面計および攪拌機付属)に移され、酸またはアルカリの添加、攪拌により pH 調整を受ける。この操作は蒸発罐や配管における腐食や罐石の発生を抑え、場合によっては ¹³¹I のような揮発性核種の揮発を防ぐことを目的とする。pH 調整の結果生じたスラッジは静置沈降の後にポンプによりスラッジ受槽に移されて貯溜される。上澄液はポンプによりまず予熱器に送られる。予熱器は二重管横型で、廃水が内管側を、スチームが外管側を通る。ここで廃水は常温から 100 °C 近くまで加熱された

* 大阪府立放射線中央研究所 (Radiation Center of Osaka Pref.)

Fig. 1 Flowsheet of the radioactive waste evaporator system

後蒸発罐の下部液室に送入される。蒸発罐は Fig. 2 のような SUS-28 製単効用縦型シェールアンドチューブ型のもので、蒸発室の両側に傾斜した 2 組の視窓がついており、一方を照明用に他方を観測用に使用すると、罐内

Fig. 2 Evaporator

の沸騰状態がよく観察できるようになっている。蒸発罐を出た蒸気は Fig. 3 のようなサイクロンに入り、ここで 10μ 以上の液滴が捕集されて蒸発室内に環流する。蒸気は続いて 20μ 程度のガラス・ウールを充填した Fig. 4 のような構造のミスト・セパレータに入り、サイクロンで捕集されなかったさらに微細な液滴が捕集される。この液体は貯溜槽に流れ、ついで低レベル廃水処理用凝集沈殿装置に送られる。ミスト・セパレータを出た蒸気はコンデンサにおいて凝結し、凝結水は 3 基の凝結水受槽(容量 2 m^3)のいずれかに入る。ここで凝結水をモニタして除染が充分ならば放流し、不十分ならばイオン交換樹脂塔に送るか、または凝集沈殿装置に送る。なお、本装置には硝酸洗浄用の配管および貯溜槽、給水設備、放射性気体および非放射性有害

気体のベント回路などが付属している。

本装置の設計に際して特に留意した要点は次のようである。

- (1) 蒸発罐に取り付けられたディスプレイサ式液面指示

調節計の信号により、ポンプと予熱器との間の空気作動弁を働かせて蒸発罐送入液量を制御し、罐内液面をあらかじめ設定した高さに自動的に固定するようにした。非発泡性廃水の場合にはカランドリヤ上部板の上に液面を位置させる通常の方法で運転を行なうが、発泡性廃水の場合には液面を下げてカランドリヤの中央部以下に位置させ、液面上部の加熱管の部分をフォーム・ブリーカとして利用し、発泡による除染度の低下を防止する。

- (2) pH 調整槽、蒸発罐下部液室、蒸発室の 3 個所に消泡剤注入孔を設け、場合により使い分けをする。

- (3) 蒸発罐の伝熱面積は充分に大きくとり、スチームと液の温度差を小さくとった。液面をカランドリヤ中央部に設定した場合の伝熱面積が約 20 m^2

Fig. 3 Cyclone

Fig. 4 Mist-separator

である。

- (4) 蒸発罐の構造はなるべく接合部などの少ない簡単なものとした。ダウンテーク、バッフル板なども付属していない。
- (5) 蒸発室内蒸気質量速度を常用 200 l/hr の蒸発速度で 300 kg/m²・hr 程度にとり、また蒸発室の高さも約 130 cm として、蒸発室内での微粒液滴の上昇を抑える。
- (6) ミスト・セパレータ内における除染は拡散作用が支配的であるので、塔の内径は充分大きく 89 cm にとって蒸気速度を小さくし、ガラス・ウールの充填高さも 100 cm にとって蒸気通過距離を長くした。
- (7) ミスト・セパレータの内部構造は蒸気のチャンネリングを防ぐために Fig. 4 のような特殊な設計とした。これは Brookhaven National Laboratory における蒸発装置のミスト・セパレータによく似た構造である⁽¹⁾⁽²⁾。

II. 除染係数の測定法

日本原子力研究所の大型蒸発装置について、塩化リチウムの 10% 前後の蒸溜水水溶液を用いた場合の除染成績が発表されている⁽³⁾。比較のために、本実験においてもまず塩化リチウム水溶液を試験廃水とし、濃度測定には炎光光度計を利用することにした。引き続き ⁸⁹Sr (半減期 51 日, 1.46 MeV β) 約 10 mc を硝酸ストロンチウム溶液中に希釈したものを試験廃水として実験を行なった。この場合、放射能測定器として G-M カウンタおよび低バック・グラウンド型測定器(株式会社日本無線医理学研究所製、バック・グラウンド計数率約 0.7 cpm)を併用した。

通常の運転条件では、罐内液の濃度が連続的に変化するので、蒸発罐の除染性能の把握が困難である。そこで罐内に一定濃度の試験廃水を入れておき、蒸発によって失われただけの量の蒸溜水を補給するという運転条件で除染係数の測定を行なった。罐内液の濃度は常に一定に保たれているわけである。罐内液の濃度としては、塩化リチウムの場合に $5 \times 10^4 \sim 10^5$ ppm, 硝酸ストロンチウムの場合に $7 \times 10^4 \sim 10^5$ ppm に選ばれたが、これらはほとんど濃縮最終段階における濃度である。

除染係数の算出は次のようにして行なわれた。蒸発罐に濃度 c_0 の試験廃水を充填し、これを m_0 なる蒸発速度で蒸発した場合、サイクロンで捕集され蒸発罐に環流する液の流量を m_1 , 濃度を c_1 , ミスト・セパ

レータで捕集される液の流量を m_2 , 濃度を c_2 , コンデンサで凝結する液の流量を m_3 , 濃度を c_3 とすると次式が成立する。

$$(D.F.)_{ev} = \frac{m_0 c_0}{m_1 c_1 + m_2 c_2 + m_3 c_3},$$

$$(D.F.)_{cy} = \frac{m_1 c_1 + m_2 c_2 + m_3 c_3}{m_2 c_2 + m_3 c_3},$$

$$(D.F.)_m = \frac{m_2 c_2 + m_3 c_3}{m_3 c_3},$$

$$(D.F.)_{over-all} = (D.F.)_{ev} \times (D.F.)_{cy} \times (D.F.)_m = \frac{m_0 c_0}{m_3 c_3} \doteq \frac{c_0}{c_3},$$

$$m_0 = m_1 + m_2 + m_3 \doteq m_3.$$

ここに、 $(D.F.)_{ev}$, $(D.F.)_{cy}$, $(D.F.)_m$ および $(D.F.)_{over-all}$ はそれぞれ蒸発罐, サイクロン, ミスト・セパレータの除染係数および総括除染係数である。ただし、蒸発罐, サイクロン, ミスト・セパレータなどは導管(保温されている)で接続されているので、これらの部分における液滴の捕集や熱損失による蒸気の凝結もある。したがって、上記の $(D.F.)$ の値は導管部分も含めた除染係数である。

装置の各部における温度, 圧力, 流量などが定常となるのは勿論、装置の履歴の影響が消失したとみられる状態において(運転開始後少なくとも 6 時間後)測定を行なうよう注意した。 m_0 が 50~300 l/hr の場合、 m_1 は 0.5~1 l/hr, m_2 は 1.2~2 l/hr であった。

III. 測定結果およびその考察

除染係数の測定結果をとりまとめて Figs. 5, 6 に示す。Fig. 5 は試験廃水が塩化リチウム溶液である場合の蒸発速度と除染係数との関係である。曲線 1 (○) は運転停止中の液面をカランドリヤ上部板の上約 10 cm に位置させた場合の結果を、曲線 2 (●) は液面をカランドリヤ中央部に位置させた場合の結果を示す。運転中の液面は沸騰のため運転停止中の液面よりも多少高くなる。Fig. 6 は試験廃水が硝酸ストロンチウム溶液であり、液面をカランドリヤ上部板の上約 10 cm に位置させた場合に得られた結果である。

凝結水中のリチウムの濃度および ⁸⁹Sr の放射能濃度が極めて低く、これらの測定誤差のため $(D.F.)_m$ および $(D.F.)_{over-all}$ を充分正確に求めることはできなかったが、測定した蒸発速度の範囲で、 $(D.F.)_m$ として 10~60, $(D.F.)_{over-all}$ として塩化リチウム溶液の場合に $10^7 \sim 10^8$, 硝酸ストロンチウム溶液の場合に $2 \times 10^6 \sim 5 \times 10^7$ の値が得られた。この結果、本装置が所

期の除染能力を持つことが判明した。

Curve 1 (○): Liquid level is 10 cm above the upper tube sheet of the calandria.
 Curve 2 (●): Liquid level is at the middle of the calandria.

Fig. 5 Decontamination factors obtained for LiCl solution

1. 蒸発罐本体の除染係数

(1) 液面位置の除染係数に対する影響

Fig. 5 (a)からわかるように、蒸発罐本体の除染係数は液面を低くしてカランドリヤ内に位置させた場合

Liquid level is 10 cm above the upper tube sheet of the calandria.

Fig. 6 Decontamination factors obtained for $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ solution

が小さい。液面がカランドリヤ中央部の場合に、蒸発速度を 130 l/hr 以上になると、急激に除染係数が低下するとともにサイクロン環流液の濃度 c_1 がサンプリングごとに大きく変動し(ときには蒸発罐内液の濃度 c_0 とほとんど同一となる)、定まった除染係数の値が得られない。これは蒸気泡が加熱管を勢よく上昇脱出するときに生じた splashing による飛沫が蒸発室内をほとんど鉛直に飛行して蒸気出口に達するためであると考えられる。この状態は覗窓から観察できる。元来 splashing なる現象は、気液境界面の単位面積あたりに通過する蒸気量がある値よりも増大して液の流動が激しくなり、局所的に速度の大きい噴射を生じることという⁽⁴⁾。加熱管内に液面が位置する場合には蒸発面積が小さいから、蒸発速度の小さい所で splashing が起こることは当然である。以上に反して、液面がカランドリヤ上部板の上にあるときには、蒸発面積が大きいのみならず、加熱管内で発生した蒸気泡が液面を脱出するまでに抵抗を受けるために splashing が抑えられる。液面をカランドリヤ上部板の上約 10 cm にした場合には、300 l/hr の蒸発速度でも覗窓から splashing は観察されない。

したがって、非発泡性廃水の場合には通常の使用法通りにカランドリヤ上部板の上に液面を固定し、発泡性廃水の場合に液面を下げ、かつ蒸発速度を 100 l/hr 以下にして運転するのがよいと考えられる。

(2) 廃水の種類による除染係数の相異

Fig. 5 (a)の曲線 1 と Fig. 6 (a)の曲線を比較すると両対数のグラフ上前者がほぼ直線であるのに対して、後者は極大を持つ曲線となっている。蒸発速度が 100 l/hr 以上では両曲線はほぼ一致しているが、100 l/hr 以下で大きい相異を示している。この相異は主として塩化リチウム溶液と硝酸ストロンチウム溶液の界面化学的性質の相異に帰因する entrainment の量の相異によるものと考えられる。

(3) 液滴同伴の機構に関する考察

Garner ら⁽⁴⁾は、一般に気泡が破裂した場合に大粒径の液滴と小粒径の液滴に明瞭に分かれて分布することを示した。このうち前者は気泡が破裂した後に残る液面のくぼみが平面に復するときに生じる噴射作用によって生じ、三石ら⁽⁵⁾⁽⁶⁾の研究によると、最高到達高さが約 20 cm であって蒸発室が十分に高い場合には除染をばばむ大きい原因とはならない。これに反して、後者は気泡の上部半球部の液膜が破裂するときに生じた微細な液滴であって、蒸気に同伴して蒸発室を脱出することができる。これがいわゆる entrainment であ

る。蒸発蒸気単位量あたりの entrainment の量は気泡が小さいほど大きくなる。

本実験で得られた Fig. 5 (a) および Fig. 6 (a) の曲線の勾配は、三石ら⁽³⁾の得た結果よりもむしろ Manowitz ら⁽¹⁾の得た結果に似ている。特に、Fig. 6 (a) の硝酸ストロンチウム溶液の場合の曲線の有様は Manowitz らの小規模蒸発実験装置の場合に極めて似ている。比較的鋭い極大点が存在しているが、これは従来 splashing point として説明されている。本実験では、液面がカランドリヤ上部板の上にある時には 300 l/hr の蒸発速度でもほとんど splashing は観察できなかった。

Fig. 6 (a) の曲線および Manowitz らの曲線に現われる極大は splashing によるものではなくて、次のような原因によるものではないだろうか。蒸発速度の小さい領域では、蒸気泡は互いに大した干渉を行わずに破裂する。この領域では、蒸発速度を増すにつれて当然 entrainment の量も増すが、前者の増し方が後者の増し方よりも大きいために単位蒸気量あたりの entrainment の量が減少する。その結果除染係数は大きくなる。蒸発速度が大きくなって極大点を越す所から、液面の流動が次第に激しくなり、気泡は液面で破裂するまでに互いに干渉し合うのみならず激しく運動する。その結果小気泡の破裂が多くなる。また蒸発室内の蒸気速度が大きくなるので、より大粒径の液滴の同伴が可能となってくる。このようにして単位蒸気量あたりの entrainment の量が増大するので、極大点を越えて蒸発速度が大きくなるにつれて除染係数は低下する。さらに蒸発速度を大きくしていくと、splashing が起こるようになり急激に除染係数が低下してしまうと考えられる。

塩化リチウム溶液の場合には、蒸発速度が 50 l/hr 以下の所に極大点が現われるものと推測される。Fig. 5 (a) の曲線 2 において、約 130 l/hr が splashing point と考えられるべきであろう。

蒸発罐における
飛沫同伴の機構に

Plate 1

関しては、あまり多くの研究はないが⁽⁴⁾⁽⁵⁾⁽⁷⁾、今後溶液の界面化学的性質からの基礎的研究とともに、加熱管内の沸騰現象や気泡の相互干渉の現象に関する理解が必要となると考えられる^{(8)~(10)}。

2. サイクロンの除染係数

Fig. 5 (b) および Fig. 6 (b) から、本装置のサイクロンの除染係数は 150 l/hr の付近に極大があり、本装置の常用設計値 200 l/hr では除染性能がやや落ちることを示している。蒸発罐の液面がカランドリヤ中央部の場合に蒸発速度が 130 l/hr を越え、splashing がさかんに起っているときには、サイクロンの除染係数として 500~1,000 という値を得ることがある。蒸発罐とサイクロンを合わせた系の除染係数 $(D.F.)_{ev} \times (D.F.)_{cy}$ も、蒸発罐本体の除染係数と同じく、塩化リチウム溶液の場合と硝酸ストロンチウム溶液の場合で傾向が相異している。

3. ミスト・セパレータの除染係数

前述したように、ミスト・セパレータの除染係数は 10~60 であり、装置の総括除染係数は塩化リチウム溶液の場合に $10^7 \sim 10^8$ 、硝酸ストロンチウム溶液の場合に $2 \times 10^6 \sim 5 \times 10^7$ であった。配管の都合上、サイクロンとミスト・セパレータ間の導管 (内径 10 cm) は約 6.5 m、ミスト・セパレータとコンデンサ間の導管は約 3 m あるが、これらによる除染係数も上記 10~60 の値

Plate 2

に含まれている。

IV. 結 言

Plates 1, 2 に本装置の主要部分を示す。Plate 1 の中央にみえる底部円錐形の槽が pH 調整槽で、上部左の底部円錐形の小型の槽が pH 調整の結果生じたスラッジの受槽である。手前左側の槽は水道水貯溜槽、右側の槽が洗浄用硝酸貯溜槽である。Plate 2 の中央が蒸発罐でその右上にサイクロンがみえ、右側手前にミスト・セパレータがみえる。蒸発罐の下方に接続されている槽は濃縮液受槽で、濃縮液の冷却固化を防ぐためにスチーム・ジャケットおよび温度計がついている。濃縮液受槽の後方にみえる蛇行管は予熱器である。

本装置の建設は千代田化工建設㈱が行ない、設計は同社化工部永野剛一氏が担当された。

本装置の計画に当って種々のご指導を賜わった京都大学衛生工学教室岩井重久教授に厚く感謝申し上げる。

(1961年 11月21日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) B. MANOWITZ, R. H. BRETTON, R. V. HORRIGAN: *Chem. Eng. Progress*, **51**, 313 (1955).
- (2) B. MANOWITZ, R. V. HORRIGAN, H. M. FRIED, *et al.*: *BNL-121*, (T-24)(1951).
- (3) 三石信雄, 阪田貞弘, 松田裕二, 山本 寛: 本誌, **1**, No. 6, 363 (1959).
- (4) F. H. GARNER, S. R. M. ELLIS, J. A. LACEY: *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, **32**, 222 (1954).
- (5) 三石信雄, 松田裕二, 山本 寛, 大山義年: 化学工学, **22**, 680 (1958).
- (6) 三石信雄, 山本 寛, 大山義年: 同上, **23**, 648 (1959).
- (7) H. E. O'CONNELL, E. S. PETTYJOHN: *Trans. A. I. Ch. E.*, **42**, 798 (1946).
- (8) J. M. COULSON, R. R. METHUA: *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, **31**, 208 (1953).
- (9) 矢木 栄, 白井 隆, 佐々木貞治: 化学工学, **15**, 317 (1951).
- (10) 矢木 栄, 白井 隆, 佐々木貞治: 同上, **17**, 216 (1953).

研究論文

186. *Research of Radioisotopes Production with Fast Neutrons, (I)*

Preparation of carrier-free ^{58}Co

速中性子による放射性同位体製造の研究, (I)
無担体 ^{58}Co の製造

By Chizuko SHIKATA*, Eiji SHIKATA* and Nagao SHIBATA*

^{58}Co was prepared by the reaction $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ in carrier-free. Cobalt-free nickel was prepared by anion exchange and nickel was precipitated as carbonate. By the irradiation of 50 g of nickel carbonate in JRR-1 reactor for 60 hr, $230\mu\text{C}$ of ^{58}Co were prepared at maximum.

Being ^{58}Co formed with fast neutrons, the fast neutron flux was measured by this reaction. In No.1 experimental hole of JRR-1 the fast neutron flux was $2.1 \times 10^{12} \text{n/cm}^2/\text{sec}$.

^{14}C , ^{32}P and ^{35}S are routinely produced by (n,p) reactions.

Many of (n,p) reactions are endothermic

I. INTRODUCTION

The production of radioisotopes by (n,p) reactions is very important, because they produce radioisotopes in carrier-free. For example,

四方千鶴子, 四方英治, 柴田長夫. Japan Atomic Energy Res. Inst. (日本原子力研究所)