液体シンチレータ廃液前処理装置†

馬場茂雄, 古田 隆, 五郎丸 毅, 堀江正信, 遠藤英男*

東京薬科大学 192-03 東京都八王子市堀之内1432-1

*セフティ理研(株) 176 東京都練馬区貫井5-26-19

1979年7月13日 受理

Key Words: liquid scintillator, vaporization apparatus

1. 緒 言

現在, 軟 β 放射体トレーサ実験を実施するにあたって最大の障害になっているのは, 測定済み液体シンチレータ廃液(以下液シン廃液)の処理の問題である¹⁾。著者らは, 各実験室内で液シン廃液を揮発性成分と不揮発性成分に分離する前処理装置を開発した。

2. 実 験

2.1 処理試料および装置

疎水性シンチレータとして PPO 4.0 g および dimethyl POPOP 0.4 g を toluene 1 l に溶解し, また親水性シンチレータとして PPO 4.0 g, dimethyl POPOP 0.4 g および naphthalene 100 g を dioxane 750 ml, toluene 150 ml および methyl cellosolve 100 ml の混合溶媒に溶解して用いた。本装置の原理図は Fig. 1 に示す。

2.2 処理速度に関する実験

あらかじめ装置を作動させたのち, 疎水性シンチレータ, 親水性シンチレータいずれも500 ml を25×34×6 cmのステンレスバットにとり, 外部より温度が読める位置にアルコール温度計をおき, 所定の位置にバットを設置し, 液相が完全に消失するまでの時間を計測した。この場合, 定常状態におけるヒータ温度は液温よりも20°前後高い値を示した。

2.3 RI の揮散に関する実験

¹⁴C-benzoic acid 10 mmol (78 μ Ci) および ¹⁴C-phenylalanine 10 mmol (90 μ Ci) をそれぞれ500 ml の疎水性シンチレータおよび親水性シンチレータに溶解する。この10 ml を標準液としてとり, 残りを液温30°, 送風量13 l/min で処理する。回収された液体に必要な量の PPO, dimethyl POPOP および naphthalene (¹⁴C-phenylalanine の場合) を添加し, その10 ml の放射能の強さを測定した。

2.4 一般的な液シン廃液処理法

25×34×6 cmのステンレスバットに薄いプラスチックフィルムを張り, 2~3 l の液シン廃液を入れて, 装置を作動させる。前処理が完了したらフィルムごと取り出す。

3. 結果および考察

液シン廃液の処理法としては Table 1 に挙げたような方法が考えられる。液シン廃液の処理法は直接最終処理する方法 (Table 1, Method 1 および 3) と, あらかじめ揮発性成分と不揮発性成分に分離したのち, 最終処理する方法 (Method 2, 4 および 5) に大別される。また液シン廃液の最終処理法としては, 保管廃棄する方法, 海洋投棄する方法なども考えられるが, 含まれている RI の半減期, シンチレータの物性などから燃焼処理が最も実用的な方法であると考えられる^{1), 2)}。最終処理の機関としては, 国またはこの目的に設立された法人 (Method 1 および 2), 各実験室 (Method 3 および 4) およびいわゆる“すそ切り”制度を認めて前処理した液シン廃液については産業廃棄物処理業者 (Method 5) などが考えられる。以上考えられる5つの方法にはそれぞれ問題がある。すなわち, Method 1 および 3 はあらゆる組成の廃液に対

† Vaporization Apparatus for Liquid Radioactive Scintillation Wastings.

Shigeo BABA, Takashi FURUTA, Tsuyoshi GOROMARU, Masanobu HORIE and Hideo ENDO*: Tokyo College of Pharmacy, 1432-1, Horinouchi, Hachiojishi, Tokyo 192-03, *Safety Riken Co. Ltd., 5-26-19, Nukui, Nerima-ku, Tokyo 176.

応できるような燃焼装置を必要とし、とくに naphthalene を含む液体シンチレータが燃焼処理にあたってトラブルの原因になるおそれがある。Method 1 および 2 では処理施設周辺のコンセンサスが問題となり、また液シン廃液の集荷が停止されるに至った経緯からもこれらの方法の実現にはかなりの年月が必要である。さらに Method 2 では前処理が適確に行われていることの確認が必要となる。Method 3 および 4 では、各実験室に設備可能な程度の大きさ、価格、安全性をもつ燃焼装置が開発されるか否かが問題である。また Method 5 は RI 使用者にとって最もありがたい方法ではあるが、前処理で“すそ”以下になっていることの確実な証明が必要である。現在のわが国における RI に対する国民感情からいって、この方法も実現の可能性に乏しい方法であるといわざるをえない。

Table 1 Methods for treatment of liquid radioactive scintillation wastings

Method	Pretreatment	Final treatment
1	NO	Collect wastings, and burn them at one or more appropriate facilities
2	YES	
3	NO	Burn wastings in a laboratory
4	YES	
5	YES	Treat as industrial wastings

以上の考察から今後液シン廃液は各実験室で少なくとも前処理をしなければならないし、場合によっては燃焼処理も考えざるをえないと考え、液シン廃液の前処理装置および前処理された液シン廃液の燃焼装置の開発に着手した。

液シン廃液の前処理法は、1)できるだけ人手や経費のかからないこと、2)RI 廃棄物を再生産しないこと、3)1日あたりの処理能力は少なくともその実験室における液体シンチレータの1日あたりの平均使用量を上まわること、4)前処理後、容器内に残留する不揮発性成分を容易に取り出せること、5)安全性が高い、6)廉価、堅ろう、操作が容易、7)省エネルギーという社会的要請にこたえているなどの諸条件を満たしていなければならない。

現在提案されている液シン廃液前処理法としては、80°前後に加温した液シン廃液内に空気を吹き込んで揮発性成分を蒸発させ、冷却器で凝縮させる方法^{3),4)}、試料自動燃焼装置から出た液シン廃液処理法として、この廃液を高温に保ち、窒素を吹きつけて⁵⁾H₂O と¹⁴CO₂を除く方法⁵⁾がある。このほかに一般の化学実験室で使用されているロータリーエバポレータで処理

している実験室もある。これらのいずれの方法も液シン廃液の容器としてフラスコまたは類似の容器を使用していること、処理するさいの温度が高いこと、および開放系で操作していることに問題がある。すなわち、液シン廃液容器としてフラスコを使用すると前処理後の不揮発性成分を取り出すのにふたたび有機溶媒を使用しなければならない。処理温度が高ければ化学形によっては分解するおそれがある。また、こうした開放系で操作する方法では液シン廃液に接する空気や水が有機溶媒で汚染され二次的な公害を引き起こすおそれがある。

著者らは新しい液シン廃液の前処理装置として、密閉系で液シン廃液から揮発性成分の蒸発とその凝縮を可能にする装置を提案する。Fig. 1 は、この目的を達成するために試作した装置の原理図を示す。

Fig. 1 Vaporization apparatus.

1. Air pump
2. Lid
3. Refrigerating pipe
4. Recovered liquid
5. Drain cock
6. Liquid radioactive wastings
7. Heater
8. Stainless steel pan (25×34×6cm)

本法における単位時間あたりの液シン廃液処理量(処理速度)は液シン廃液の組成、液シン廃液の加熱温度、送風量などによって大きく左右される。まず、疎水性シンチレータおよび親水性シンチレータについて、送風量一定(13l/min)のもとで液シン廃液の加熱温度と1時間あたりの処理量との関係を実験した。実験結果はFig. 2に示した。この実験によって、いずれの場合でも液シン廃液の加熱温度の上昇によって処理速度は著しく増大すること、疎水性シンチレータのほうが処理速度が大きいことが明らかになった。

液シン廃液の加熱温度を上げれば処理速度も著しく大きくなるが、加熱温度が30°でも1日の作業時間(8時間)あたり、疎水性シンチレータでは約3l、親

Fig. 2 Relationship between recovered volume and liquid temperature.

水性シンチレータでは約2 lを処理できるので、加熱温度は30°が適当であると決定した。

つぎに、液シン廃液の温度を30°に調整し、送風量と処理速度の関係を実験した。実験結果はFig. 3に示した。この実験によって循環器の作動は処理速度を著しく向上させることが明らかになった。しかしながら、あまり送風量が大きいと風圧による液シン廃液飛沫の飛散のおそれもあり、かつ送風量を13 l/minから20 l/minに上げてあまり大きな効果は認められなかったことから送風量は13 l/min前後が適当であると考えられる。

Fig. 3 Relationship between recovered volume and air-blowing rate.

以上、主として疎水性および親水性シンチレータについて述べたが、他の組成の液シン廃液についても本装置は有効である。たとえば、自動燃焼装置からでくる $^{14}\text{CO}_2$ 含有液シン廃液2 lは、まず30°で4時間、

のちに40°で4時間処理することによって揮発性成分と不揮発性成分にはほぼ完全に分離することができる。

液シン廃液を前処理する過程におけるRIの揮発性成分への揮散についても検討した。RIの揮散の割合はその化学形によって大きく左右される。著者らは ^{14}C -benzoic acid (疎水性シンチレータ) および ^{14}C -phenylalanine (親水性シンチレータ) を試料として実験したところ、 ^{14}C -benzoic acidの場合の揮散率は0.5%、 ^{14}C -phenylalanineの場合のそれは2.2%であった。いずれの場合にも揮散率は低く、測定試料の平均放射能を考えると、この操作によって各実験室で燃焼処理が認められる許容値²⁾以下にしうるものと考えられる。

本装置の消費電力はヒータの温度によってわずかに異なるが(ヒータ温度20°では100 V・250 W, 40°では100 V・300 W)、いずれにしても実験室の他の器具に比べて大きいとはいえない。また本装置は溶媒の加熱機構が容器の外側に配設されているので有機溶媒やその蒸気が加熱機構に接触しないし、しかも冷媒の温度が0°に達しなければヒータおよび循環器のスイッチがはいらぬように組み立てられているのできわめて安全であるといえる。

本装置による液シン廃液前処理法の特徴は、著しく省力化した状態で処理できること、消費するのは電力だけでその量はわずかであること、処理後の蒸発残留物の処理もきわめて容易に行えることである。

文 献

- 1) 有機廃液対策調査検討結果報告書, 昭和54年3月, 社団法人日本アイソトープ協会, 有機廃液特別対策委員会編
- 2) *Isotope news*, 6月号, p.31 (1979)
- 3) 那波克己, 鬼沢隆彦, 高橋大器, 中里一久, 徳永昇, 荒山寛: *Pure Chemicals "Daichi"*, 9, 30 (1978)
- 4) 日本製薬工業協会研究開発対策委員会RI部会: 有機廃液対策調査検討結果報告書, p.35, 昭和54年3月, 社団法人日本アイソトープ協会有機廃液特別対策委員会編
- 5) 斎藤智雄: *Pure Chemicals "Daichi"*, 9, 44 (1978)