

原子力発電所洗濯廃液処理装置の開発

Development of a Laundry Waste Treatment System for Nuclear Power Plants

極低放射能レベル($10^{-7} \sim 10^{-8} \mu\text{Ci/ml}$)の洗濯廃液を処理する装置として、逆浸透法と蒸発法とを組み合わせた新方式について実用化試験を行なった。

この方式の特徴は、逆浸透膜へのスケール付着による処理能力の低下防止のために、スポンジボール洗浄方式を開発し、また、蒸発器での界面活性剤による発泡を抑制するために、新しく開発した耐熱性シリコン消泡剤を適用した点にある。

処理量200l/hの実用規模試験装置を用いて模擬廃液による試験を行ない、放射能除去効率、濃縮度などの主要運転性能が十分実用に供することができることを確認した。

菊池 恂* *Kikuchi Makoto*
 杉本義和** *Sugimoto Yoshikazu*
 遊佐英夫*** *Yusa Hideo*
 江原勝也** *Ebara Katsuya*
 堀内 進**** *Horiuchi Susumu*

1 緒 言

最近、放射性廃棄物の処理処分に対する社会的環境条件が厳しくなるに伴い、極低レベルの洗濯廃液についても、再使用可能な程度にまで放射能を低減させる処理装置の開発が望まれている¹⁾。これに対処して、従来、逆浸透法²⁾、低発泡性洗剤を用いた蒸発法³⁾及び逆浸透法、薄膜蒸発法、高周波蒸発乾固法の組み合わせ方式⁴⁾などの開発が進められてきたが、いずれも原子力発電所用としては実用化の段階に至っていない。

処理装置に要求される基本条件は、処理容量が大きなこと、高い放射能除去効率をもっていること、廃棄物の貯蔵量を低減するため高濃縮できることなどである。各種処理方式の比較検討の結果、これらの3条件を同時に満足する方式としては、廃液の浄化と前段濃縮に逆浸透法、最終濃縮に蒸発法を組み合わせたものが最も有望であるとの結論に達した。

この方式を装置化する上での主な問題点は、逆浸透膜面へのスケール付着による処理量の低下、及び界面活性剤による発泡のため蒸発器での放射能除去効率の低下である。これまでの基礎実験により、逆浸透装置にはスポンジボールによる膜面洗浄法を、蒸発器には耐熱性シリコン消泡剤を適用することによりこれらの問題を解決できる見通しを得、このほど実用規模試験装置を完成した^{5),6)}。以下に、装置の概要と主要性能の試験結果について報告する。

2 試験装置及び方法

2.1 概 要

実用化評価試験は、処理量200l/hの実用規模装置を用いて行なった。図1に装置全体のフローシートと各部の平均流量を、表1に主な仕様と基礎実験により得られた最適運転条件を示す。図2に装置の外観を示すが、装置全体をパッケージ型〔3×2×3(m)〕にして据付場所の低減を図っている。試験廃液としては、発電所から発生する洗濯廃液を模擬して、表2に示すような組成の廃液を用いた。

2.2 逆浸透装置

循環タンクに供給された洗濯廃液は、逆浸透膜の加水分解を防止するために硫酸添加によりpH5程度に調整された後、高压ポンプで約40kg/cm²に加圧されて4本の逆浸透モジュール

表1 試験装置の仕様と運転条件 逆浸透膜保護のために処理液温度、pHがコントロールされている。

装置	仕 様・運転条件	
	形 式	チューブラ形(内圧式)
逆浸透装置	膜 面 積	6.8m ²
	処理液温度	25°C
	処理液pH	5
	圧 力	40kg/cm ² G
蒸 発 器	形 式	強制循環形
	伝 熱 面 積	4 m ²
	処理液pH	8 ~ 9

表2 洗濯廃液性状 スケールの原因となる懸濁物質とCa⁺⁺、発泡の原因となる界面活性剤が含まれている。

洗 剤	200~500ppm
界面活性剤	30~60ppm
懸濁物質	10~30ppm
イオン(Ca ⁺⁺)	2 ~ 5 ppm
電 導 度	100~300μV/cm
pH	7 ~ 8
放射能濃度	10 ⁻⁷ μCi/ml

ルに送られる。逆浸透モジュールは、図3に示すように、ステンレス鋼製耐圧管に挿入された18本の酢酸セルロース製チューブユニット(φ12.5×2,400mm)から成り、膜面積は1モジュール当たり1.7m²である。加圧供給された廃液は膜面を通過する間に清浄水だけが透過し、残留濃縮液は冷却器で25°Cに冷却された後、所定の濃度に達するまで約1,000l/hの流速でリサイ

* 日立製作所日立研究所 理学博士 ** 日立製作所日立研究所 *** 日立製作所日立研究所 工学博士 **** 日立製作所日立工場

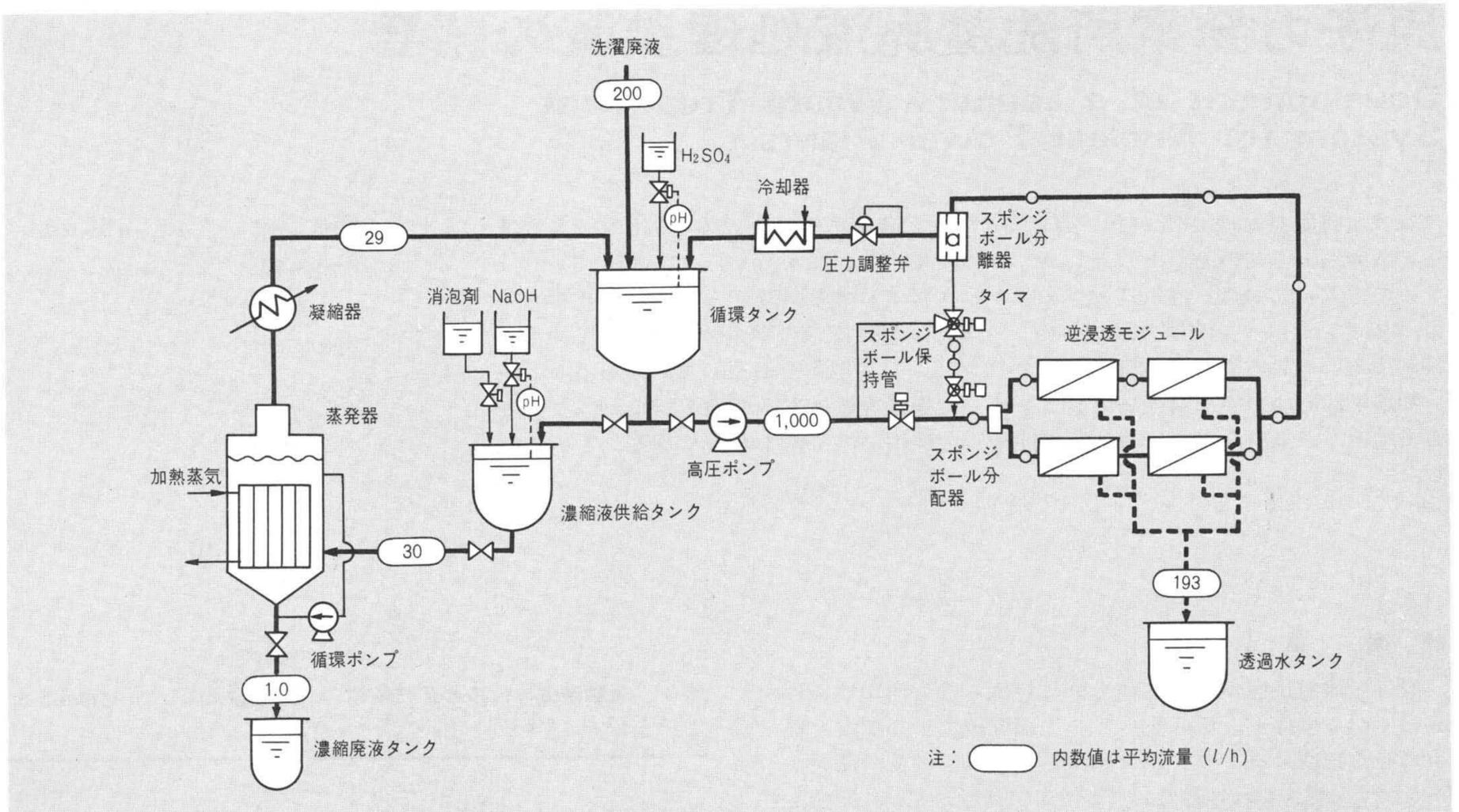


図1 洗濯廃液処理装置フローシート スポンジボール洗浄系と消泡剤添加装置を組み込んだ試験装置の系統を示す。図中の平均流量は、1.2m³の洗濯廃液を逆浸透装置で6時間、蒸発器で1.4時間処理したときの値を表わしている。

クルされる。この温度調節は、圧密化などによる膜の劣化を防止するために必要なものである。この装置には、膜面を自動的に洗浄するために開発したスポンジボール循環系が設置されている。この洗浄法は図3に示すように、直径約13mmのスポンジボールを廃液とともに逆浸透チューブ内を間欠的に循環させ、ボールの衝突、ボールの流通による乱流促進などにより膜面のスケールを洗浄除去するものであるが、電子顕微鏡観察によりスポンジボールによる膜面の破損は全くないことを確認した。

2.3 蒸発器

逆浸透装置により前段濃縮された廃液は、濃縮液供給タ

ンクに移送され腐食防止のためのpH調整(pH 7~8)と発泡防止のための消泡剤添加が行われた後、約30l/hの流速で蒸発器に連続的に供給される。この装置では伝熱管へのスケール付着を防止するため、強制循環形蒸発器(伝熱面積: 4m²)を採用した。

3 試験結果

3.1 膜面洗浄方法

逆浸透装置を廃液処理に適用する場合の最大の問題は、膜面へのスケール付着による透過水量の低下である。表1の組成のうちでスケールの原因となるものは、主として金属水酸

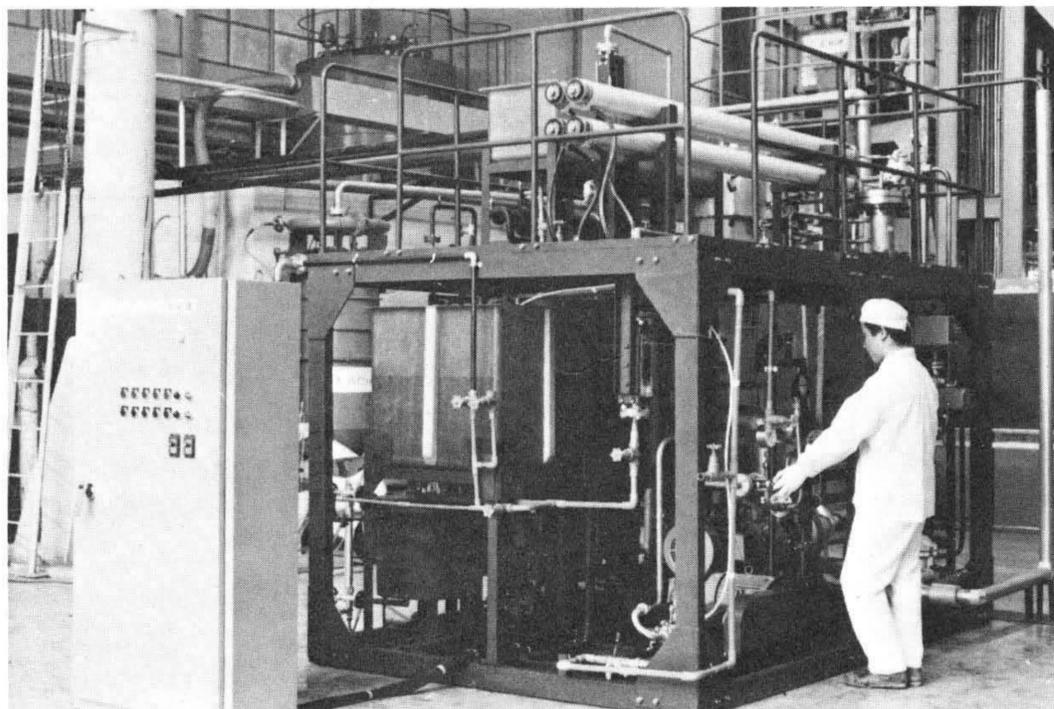


図2 実用規模試験装置 平均処理量200l/hの洗濯廃液処理装置の全景を示す。

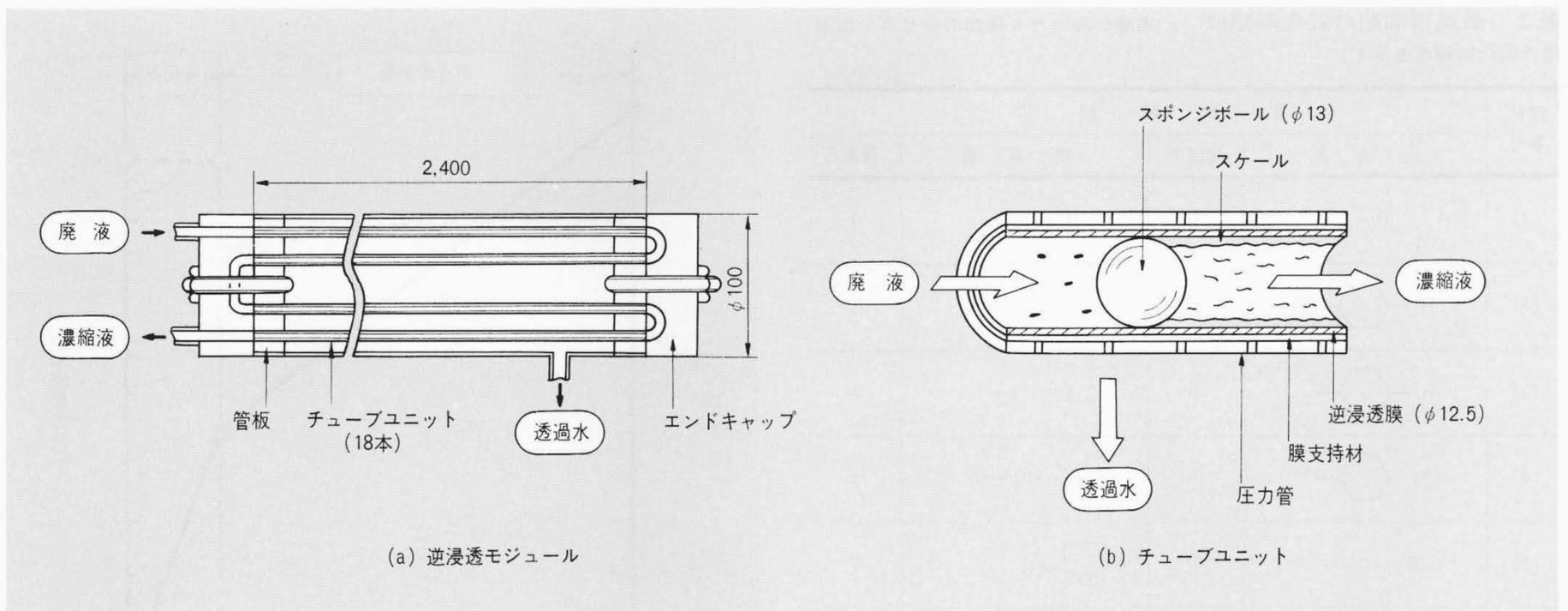
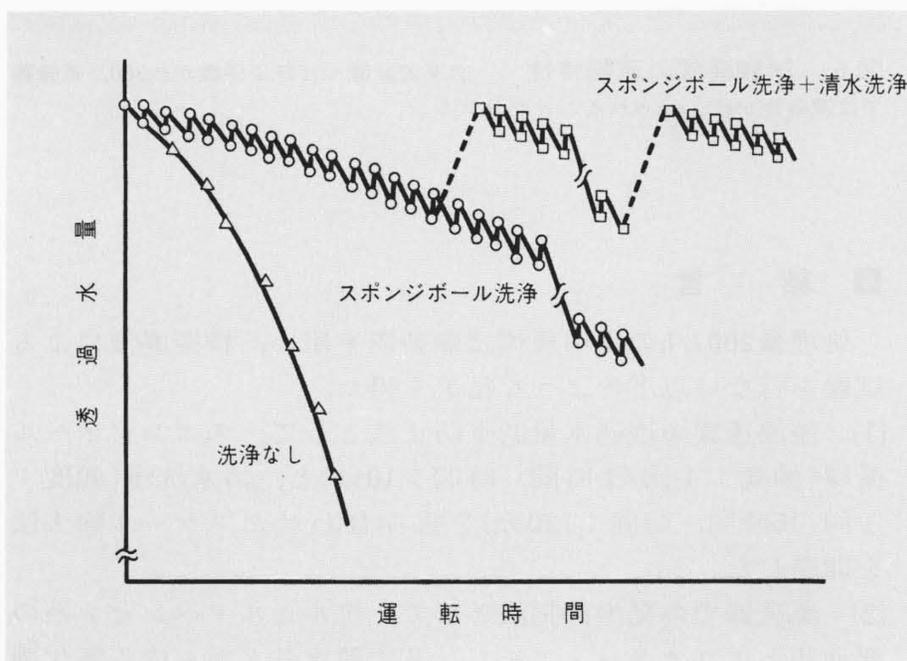


図3 逆浸透モジュールとチューブユニットの構造 内圧式チューブラ形逆浸透モジュールの断面構造とスポンジボール洗浄原理を示す。



洗浄法	条件	頻度
スポンジボール洗浄	個数：10個 時間：10min	1回/1h
清水洗浄	流速：1.5m/s 時間：120min	1回/15h

注：濃縮度=20倍

図4 膜面洗浄法の比較 スポンジボール+清水洗浄法により、膜面が効率よく洗浄されることが分かる。

化物、有機系コロイドなどの懸濁物質であり、他は炭酸カルシウムや硫酸カルシウムなどの難溶性塩類である⁷⁾。基礎実験により清水フラッシング法、クエン酸洗浄法などの各種スケール除去法を比較検討して、スポンジボール循環による膜面洗浄法を選定した^{5), 6)}。図4に濃縮度20倍の条件で運転したときの膜面洗浄効果を示す。洗浄を行わない場合には、運転開始後短時間のうちにスケールが生成し、透過水量は急減している。スポンジボール洗浄だけでは膜の表面に付着したスケールは効率良く除去されるが、膜内部に形成されたスケールのため、透過水量は徐々に減少する。清水洗浄を併用した場合には、膜内部のスケールも溶解され初期の性能を持続できた。

3.2 耐熱消泡剤

最終濃縮を行なう蒸発器では、界面活性剤による発泡を抑制するために消泡剤を添加する必要がある。従来の市販品では熱分解による劣化が大きく、消泡剤の消費量と廃棄物量が増大する問題があり、そのままでは蒸発器に適用できない。そこで、高温下で長寿命の消泡剤の開発を試みた。高温水中で比較的安定なシリコン消泡剤を取り上げて基礎実験を行なった結果、消泡剤の耐熱性はシリコン化合物を水中に分散さ

せるために含まれている乳化剤の親水力と親油力とのバランスを示すHydrophile-Lipophile Balance(以下、HLBと略す)と関連づけられることが分かった^{5), 6)}。そこで、表3に示すような各種親水基と親油基とを組み合わせ、HLBの異なる乳化剤を含む消泡剤6種を試作し耐熱性を比較検討した。図5に界面活性剤500ppmを含む廃液に、供試消泡剤を濃度を変えて添加し発泡状態を観察した結果を示す。同図中、消泡領域と発泡領域との境界線は、発泡を抑制するために必要な最低消泡剤濃度を示している。この図より、アルキル・ベンゼン系の親油基とポリオキシ・エチレン系の親水基とから成る乳化剤を含む消泡剤(4)が最も低濃度で消泡効果を発揮することが分かる。(1)~(3)のように、HLBが低く比較的親油力が強い消泡剤の場合には、廃液中での分散性が悪いため多量の消泡剤が必要となる。例えば、消泡剤(1)を適用した場合には、廃棄物量が2倍以上に増大する結果になる。一方、HLBが高い(5), (6)の場合には、親水力が強すぎて熱分解が促進されるため、同様な結果を生ずる。消泡剤(4)を用いれば、洗濯廃液に200ppm程度の添加量で十分効果を発揮し、消泡剤添加による廃棄物量の増加は約5%以下に抑えることができる。

表3 供試消泡剤の乳化剤組成 実験に用いた6種類のシリコン消泡剤の乳化剤組成を示す。

試料番号	乳 化 剤 組 成			
	親 油 基	親油力	親 水 基	親水力
(1)	R ₁ -	小	H ₂ COO -	小
(2)	R ₂ -  -	中	H(CHOH) _n - O -	小
(3)	R ₂ -  -	中	E ₁ - O -	中
(4)	R ₂ -  -	中	E ₂ - O -	中
(5)	R ₁ - CO -	小	 - R ₃ - O -	中
(6)	R ₁ -	小	E ₃ - O -	大

注：R₁~R₃ = アルキル基
E₁~E₃ = ポリオキシ・エチレン基

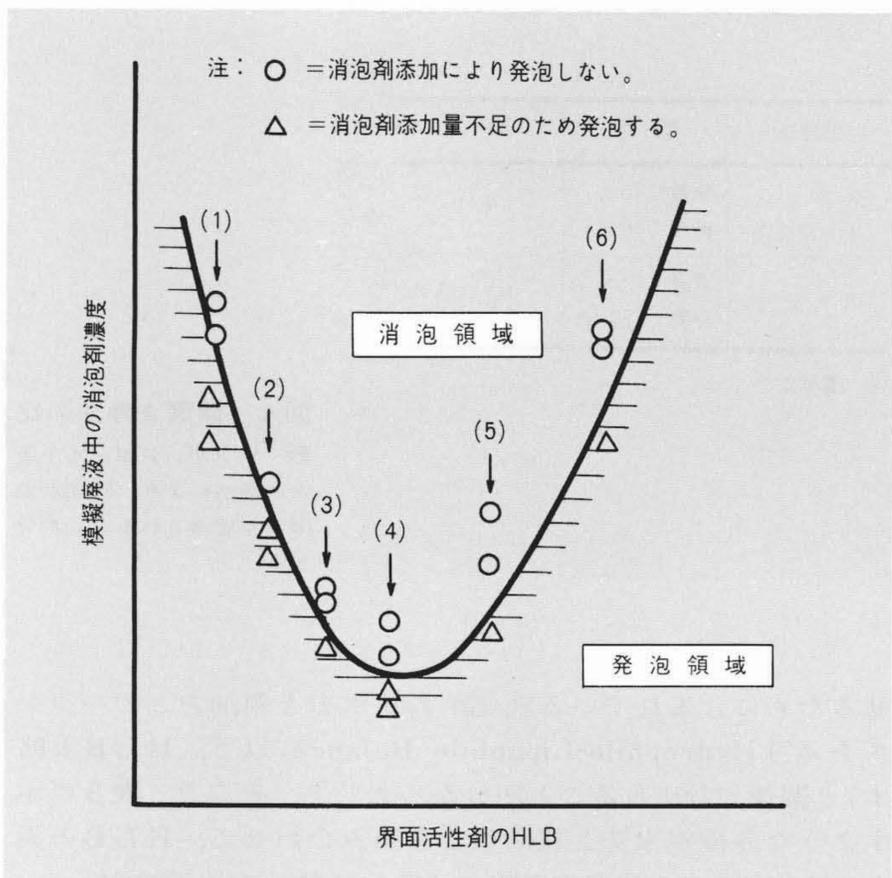


図5 消泡剤の性能とHLB 図中(4)が少量の添加量で優れた消泡効果をもっていることが分かる。図中の括弧囲み番号は表3の試料番号を示す。

3.3 放射能除去効率と濃縮度

約 10^{-7} $\mu\text{Ci/ml}$ の ^{58}Co トレーサーを含む模擬廃液を用いて運転性能試験を行なった。図6は試験結果の一例を示すもので、 1.2m^3 の廃液を逆浸透装置で6時間、蒸発器で1.4時間それぞれ処理したときの廃液量と、 ^{58}Co の除染係数(廃液中の ^{58}Co 濃度/透過水、又は凝縮水中の ^{58}Co 濃度)の時間変化を示したものである。この結果、逆浸透装置では除染係数は約300で、透過水は再使用可能なことが分かった。一方、蒸発器では新消泡剤の添加により発泡もなく、除染係数は約1,000、減容比(濃縮廃液の体積/洗濯廃液の初期体積)は約 $\frac{1}{900}$ を得ることが実証された。

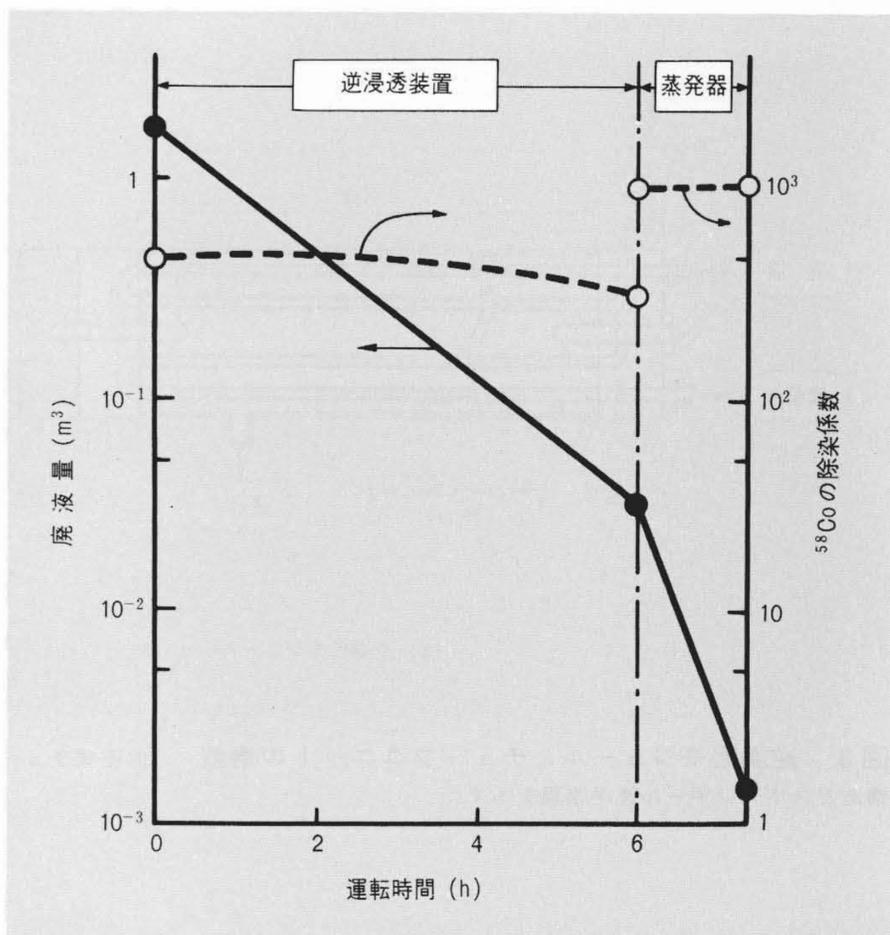


図6 試験装置の運転特性 逆浸透装置では除染係数が約300、蒸発器では減容比が約 $\frac{1}{900}$ 得られることが分かる。

4 結 言

処理量 200l/h の実用規模試験装置を用い、模擬廃液による試験を行ない以下のような結果を得た。

- (1) 逆浸透膜の透過水量低下防止法として、スポンジボール循環(頻度：1回/1時間、時間：10分)と、清水洗浄(頻度：1回/15時間、時間：120分)を組み合わせたスケール除去法を開発した。
- (2) 蒸発器での発泡抑制法として、アルキル・ベンゼン系の親油基とポリオキシ・エチレン系の親水基とから成る乳化剤を含む耐熱性シリコン消泡剤を開発した。
- (3) 放射能の除染係数は約300、減容比は約 $\frac{1}{900}$ が得られた。今後は、長期運転試験を必要とする逆浸透膜の寿命、蒸発器の腐食などの課題について検討を進めていく考えである。

参考文献

- 1) Y. Yoshida et al. : Reduction of Radioactive Effluents from Light-Water-Power-Reactors in Japan, IAEA-CN-36/166, Salzburg (May, 1977)
- 2) 末広：PWR発電所の改良形放射性廃棄物処理，火力原子力発電，28，47～54 (昭52-1)
- 3) Y. Nakayama et al. : New Techniques for the Treatment of Laundry and Other Low Level Liquid Wastes, IAEA-SM-207/15, Vienna, (March, 1976)
- 4) 安中ほか6名：逆浸透-薄膜蒸発法による原研(大洗研)の洗濯廃液処理システムと処理性能，日本原子力学会秋の分科会予稿集，J11 (昭52-10)
- 5) M. Kikuchi et al. : Development of a Laundry Waste Treatment System, Nuclear Engineering and Design Vol. 44, No. 3, 413～420 (1977)
- 6) 杉本ほか3名：洗濯廃液処理装置の開発，日本原子力学会秋の分科会予稿集，J10 (昭50-10)
- 7) 下里，ほか4名：逆浸透法による廃水処理，日立評論，58，257～262 (昭51-4)