

JAERI-M
83-011

群分離法の開発：動燃再処理廃液に
よる群分離試験——その1

1983年2月

久保田益充・山口五十夫・岡田 賢造
森田 泰治・中村 治人

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村 日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, -Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1983

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

群分離法の開発：動燃再処理廃液による群分離試験 — その1

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

久保田益充・山口五十夫・岡田賢造

森田 泰治・中村 治人

(1983年1月22日受理)

高レベル再処理廃液中に含まれる超ウラン元素， ^{90}Sr ， ^{137}Cs を分離（群分離）し，超ウラン元素は高速中性子により核分裂生成物に変換する，また ^{90}Sr ， ^{137}Cs はガラス固化体よりも安定な鉱物性の化合物にするという考え方のもとに群分離の開発を進めている。本報は1982年5月から実施した動燃再処理廃液約2ℓ（～23Ci）による群分離試験の結果をまとめたものである。

群分離の第1目標としている超ウラン元素は99.9%以上の収率で，また ^{90}Sr ， ^{137}Cs は99.99%以上の収率でそれぞれ分離することができた。これらの結果は模擬再処理廃液及び原研再処理廃液による試験結果とほとんど一致した。現在は動燃再処理廃液約18ℓによる群分離試験を実施中である。

JAERI-M 83-011

Development of Partitioning Method : Partitioning Test
with Nuclear Fuel Reprocessing Waste prepared at PNC
- Part 1

Masumitsu KUBOTA, Isoo YAMAGUCHI, Kenzo OKADA,
Yasuji MORITA and Haruto NAKAMURA

Division of Environmental Safety Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received January 22, 1983)

The partitioning has been developed under the concepts of separating transuranium elements, ^{90}Sr and ^{137}Cs from a high level fuel reprocessing waste, and then transmuting transuranium elements to fission products with fast neutron and fixing ^{90}Sr and ^{137}Cs as mineral like compound more stable than glass.

The present paper describes results of the partitioning test initiated in May of 1982 with about 2 l (~ 23 Ci) of the fuel reprocessing waste prepared at PNC. Transuranium elements which are the first objective in the partitioning could be separated in the yield over 99.9 %, and ^{90}Sr and ^{137}Cs over 99.99 %.

These results were almost consistent with those of the partitioning tests with a simulated fuel reprocessing waste and the actual waste obtained by the fuel reprocessing test at JAERI in 1968. The partitioning test with about 18 l (~ 210 Ci) of the fuel reprocessing waste prepared at PNC is now in progress.

Keywords : Partitioning, Fuel Reprocessing Waste, Transuranium Elements, Strontium-90, Cesium-137, High Level Radioactive Waste

目 次

1. 序 論	1
2. 実 験	1
2.1 動燃再処理廃液の搬入	1
2.2 群分離試験	1
2.2.1 群分離フローシート	1
2.2.2 動燃再処理廃液の濃縮及び脱硝	2
2.2.3 TBPによるU, Puの抽出	2
2.2.4 TBP raffinate フラクシヨンの濃縮及び脱硝	2
2.2.5 DIDPAによるRE, Am, Cmの抽出	3
2.2.6 RE, Am, Cm フラクシヨンの脱硝	3
2.2.7 陽イオン交換樹脂カラムによるREとAm, Cmの分離	3
2.2.8 無機イオン交換体による ¹³⁷ Cs, ⁹⁰ Srの分離	3
2.2.9 放射能の測定	4
3. 群分離試験の結果	5
3.1 群分離試験原液の性状及び放射能組成	5
3.2 TBPによるU, Puの抽出	5
3.3 DIDPAによるRE, Am, Cmの抽出	6
3.4 陽イオン交換樹脂カラムによるREとAm, Cmの分離	7
3.5 無機イオン交換体による ¹³⁷ Cs, ⁹⁰ Srの分離	7
4. 結 言	8
文 献	8

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	1
2.1 Transportation of fuel reprocessing waste prepared at PNC	1
2.2 Partitioning test	1
2.2.1 Flowsheet for partitioning	1
2.2.2 Concentration and denitration of fuel reprocessing waste prepared at PNC	2
2.2.3 Extraction of U and Pu with TBP	2
2.2.4 Concentration and denitration of TBP raffinate fraction	2
2.2.5 Extraction of RE, Am and Cm with DIDPA	3
2.2.6 Denitration of RE, Am, Cm fraction	3
2.2.7 Mutual separation of RE and Am, Cm with cation exchanger column	3
2.2.8 Separation of ^{137}Cs and ^{90}Sr with inorganic ion exchanger	3
2.2.9 Measurement of radioactivity	4
3. Results of partitioning test	5
3.1 Properties and radioactive composition of starting material for partitioning test	5
3.2 Extraction of U and Pu with TBP	5
3.3 Extraction of RE, Am and Cm with DIDPA	6
3.4 Mutual separation of RE and Am, Cm with cation exchanger column	7
3.5 Separation of ^{137}Cs and ^{90}Sr with inorganic ion exchanger	7
4. Conclusion	8
References	8

1. 序 論

核燃料の再処理に伴って発生する高レベル廃液中に含まれる放射性核種を半減期や放射能毒性に応じて、超ウラン元素、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 及びその他の元素に分離（群分離）し、安全な形で処分しようという考え方のもとに群分離法の開発を進めている。^{1)~4)} 本報告はケープ内に設置した群分離試験装置²⁾による動燃再処理廃液を用いた群分離フローについての化学的及び工学的試験の結果をまとめたものである。

すでに同装置では模擬再処理廃液及び原研再処理廃液によるコールド及びセミホットの群分離試験を実施しており、その結果はJAERI-M 9627³⁾及びJAERI-M 82-144⁴⁾にまとめられている。これらの試験と並行して動燃再処理廃液を搬入するための輸送容器の準備を進め、1982年2月と3月には、動燃再処理廃液約28ℓ（～320 Ci）の輸送を実現した。⁵⁾ 本報告では1982年5月10日から実施した動燃再処理廃液約2ℓ（～23 Ci）による群分離試験の結果についてのべる。

2. 実 験

2.1 動燃再処理廃液の搬入

動燃再処理廃液の輸送は原研と動燃との共同研究契約にもとずいて、動燃東海事業所再処理工場工務部試験課と原研環境安全研究部群分離研究室の間で行われたものであり、再処理廃液の調製と輸送容器への収納、発送前の輸送物検査などは工務部試験課が、また官庁許認可関係と輸送については群分離研究室が中心となって作業を進めた。⁵⁾ 輸送容器は我が国で初めて6,000 Ci までの再処理廃液を入れて運搬できる容器として国の承認を受けたものであり、容器の外観をFig. 1に示す。本容器により動燃再処理工場からRI製造棟内群分離試験施設に再処理廃液を、1982年2月9日に10.5ℓ（～130 Ci）、同年3月26日に17.2ℓ（～190 Ci）、それぞれ搬入した。

2.2 群分離試験

2.2.1 群分離フローシート

現在開発されている群分離フローシートの概略をFig. 2に示す。主な特徴は次のようである。¹⁾

- 1) UとPuをTBP (tributyl phosphate) で抽出する。
- 2) 超プルトニウム元素の抽出に先がけてZrとMoを沈澱として除去する。
- 3) 超プルトニウム元素と希土類元素 (RE) はpH0.5に調整した溶液からDIDPA (di-

1. 序 論

核燃料の再処理に伴って発生する高レベル廃液中に含まれる放射性核種を半減期や放射能毒性に応じて、超ウラン元素、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 及びその他の元素に分離(群分離)し、安全な形で処分しようという考え方のもとに群分離法の開発を進めている。^{1)~4)}本報告はケープ内に設置した群分離試験装置²⁾による動燃再処理廃液を用いた群分離フローについての化学的及び工学的試験の結果をまとめたものである。

すでに同装置では模擬再処理廃液及び原研再処理廃液によるコールド及びセミホットの群分離試験を実施しており、その結果はJAERI-M 9627³⁾及びJAERI-M 82-144⁴⁾にまとめられている。これらの試験と並行して動燃再処理廃液を搬入するための輸送容器の準備を進め、1982年2月と3月には、動燃再処理廃液約28ℓ(～320Ci)の輸送を実現した。⁵⁾本報告では1982年5月10日から実施した動燃再処理廃液約2ℓ(～23Ci)による群分離試験の結果についてのべる。

2. 実 験

2.1 動燃再処理廃液の搬入

動燃再処理廃液の輸送は原研と動燃との共同研究契約にもとづいて、動燃東海事業所再処理工場工務部試験課と原研環境安全研究部群分離研究室の間で行われたものであり、再処理廃液の調製と輸送容器への収納、発送前の輸送物検査などは工務部試験課が、また官庁許認可関係と輸送については群分離研究室が中心となって作業を進めた。⁵⁾輸送容器は我が国で初めて6,000Ciまでの再処理廃液を入れて運搬できる容器として国の承認を受けたものであり、容器の外観をFig.1に示す。本容器により動燃再処理工場からRI製造棟内群分離試験施設に再処理廃液を、1982年2月9日に10.5ℓ(～130Ci)、同年3月26日に17.2ℓ(～190Ci)、それぞれ搬入した。

2.2 群分離試験

2.2.1 群分離フローシート

現在開発されている群分離フローシートの概略をFig.2に示す。主な特徴は次のようである。¹⁾

- 1) UとPuをTBP(tributyl phosphate)で抽出する。
- 2) 超プルトニウム元素の抽出に先がけてZrとMoを沈澱として除去する。
- 3) 超プルトニウム元素と希土類元素(RE)はpH0.5に調整した溶液からDIDPA(di-

isodecyl phosphoric acid) - TBP で抽出する。

- 4) 超プルトニウム元素と RE は加圧型陽イオン交換カラムで分離する。
- 5) ^{137}Cs と ^{90}Sr は無機イオン交換体カラムに吸着する。

2.2.2 動燃再処理廃液の濃縮及び脱硝 (5月10日～5月19日)

搬入した動燃再処理廃液は使用済燃料を Purex 法により再処理した時に発生した TBP raffinate 溶液であるので、この溶液を脱硝・濃縮した形で貯蔵される通常の再処理高レベル廃液とはその性格が異なっている。このため本群分離試験では搬入した再処理廃液 2.24 l (ケーブ内タンクに移した時の洗滌液を含むもので、以下群分離試験原液と名づける) について脱硝と濃縮を行い、通常の再処理高レベル廃液と同等の再処理廃液を調製することとした。

ケーブ内での脱硝・濃縮に先立って群分離試験原液約 8 ml を FP セルに移し、比重及び酸性度の測定及びギ酸による脱硝試験を行った。これらの結果にもとづき、ケーブでは群分離試験原液 2.24 l を脱硝・濃縮容器に移して約 140°C に加熱して約 1.0 l に濃縮したのち、ギ酸を加えて脱硝した。この時点でのケーブ内線量率は線源から約 2 m 離れた場所で 280 mR/h であった。

脱硝後の溶液はセラミックフィルターでろ過し、脱硝後液タンクに移した。ここでの液量は 1.36 l で酸性度は 1.56N であった。TBP 抽出に必要な溶液とするため、このタンクに 14NHNO_3 6.65 ml を加えて酸性度 2.0N のフィード原液 1.53 l を調製した。

2.2.3 TBP による U, Pu の抽出 (5月21日～5月22日)

溶媒抽出装置ミキサーセトラでの運転条件を Fig. 3 に示す。

各バンクの有機相、水相における放射能濃度がほぼ定常状態に達したと考えられる約 3 時間 40 分の抽出を行ったのち、運転を停止し、各バンクから有機相及び水相を 2~3 ml ずつサンプリングした。再びミキサーセトラを運転し、フィード原液が入っている脱硝後液タンク内を空にした。その後、脱硝後液タンク内に 2NHNO_3 1 l を入れ、ミキサーセトラを洗滌するための運転を行った。

2.2.4 TBP raffinate フラクシヨンの濃縮及び脱硝 (5月24日～5月25日)

TBP raffinate フラクシヨンの 2.8 l を脱硝・濃縮容器に移し、約 900 ml に濃縮した。溶液の一部をサンプリングし、FP セル内で小型装置による脱硝試験を行った。これは TBP raffinate フラクシヨンをギ酸により脱硝する場合に気泡の成長が考えられるため、これを試験するためである。この結果、気泡の成長がほとんどおこらないことが確認できたので、ケーブ内 TBP raffinate フラクシヨンの濃縮液を脱硝した。この際、ギ酸の添加量は濃縮液に含まれる硝酸量の 1.5 倍当量とした。脱硝後の溶液はセラミックフィルターでろ過したのち、脱硝後液タンクに移した。ここでの液量は約 1.3 l となった。溶液の一部をサンプリングし、酸性度を求めた結果は 0.804N で pH 0.53 となっており、DIDPA 抽出のためのフィード原液として適当であることがわかった。

2.2.5 DIDPAによるRE, Am, Cmの抽出(5月26日~5月28日)

ミキサーセトラの運転条件をFig.4に示す。

フィード原液の流量がTBP抽出の時の約3分の1となっており、各バンクから有機相、水相をサンプリングするまでには約10時間の運転を必要とした。このため抽出操作は2日間にわたり、第1日目は4時間とし、2日目には6時間とした。各バンクから溶液をサンプリングした後は、TBP抽出の場合と同様にミキサーセトラの洗滌操作を0.5NHNO₃ 1ℓをフィード液として実施した。

2.2.6 RE, Am, Cmフラクションの脱硝(5月31日~6月2日)

RE, Am, Cmフラクションの1.75ℓを脱硝・濃縮容器に移し、硝酸量の1.5倍当量のギ酸457mlを加えて脱硝した。この場合にはRE, Am, Cmフラクションの酸性度が3.81Nと高く、使用するギ酸の量も多くなることから、ギ酸を2回に分けて添加した。脱硝後の溶液はセラミックフィルターで濾過したのち脱硝後液タンクに移した。この時の液量は2.2ℓで酸性度は0.863Nであった。

2.2.7 陽イオン交換樹脂カラムによるREとAm, Cmの分離(6月16日~6月18日)

カラム温度を70℃にしたのち、1ℓのフィードポンベに脱硝後のRE, Am, Cmフラクションを入れ、これを脱イオン交換水で置換しながら、第1カラム(内径10mm,長さ150cm, Dowex 50W×8, 100~200mesh, H型)に圧送した。この際、カラムでの流速は約15ml/minとした。第1カラム通過後の溶液の放射能は、ケーブル地下室に設置したNaI検出器及びGM型線量率計で連続的に測定した。すべてのRE, Am, Cmフラクションを第1カラムにフィードしたのち、脱イオン交換水1ℓでカラムを洗滌した。サージポンベ内の脱イオン交換水を溶離剤である0.05MDTPA(diethylene triamine penta acetic acid)溶液(pH6.5)で置換したのち、第1カラム、第2カラム(内径7.5mm,長さ150cm, Dowex 50WX8, 100~200mesh, H型)及び第3カラム(内径7.5mm,長さ150cm, Diaion CPK-08, 400mesh, H型)を連結し、第1カラムに吸着したREとAm, Cmの溶離を開始した。溶離剤の流速は10.2ml/minとし、第3カラムからの溶出液の放射能強度を吸着の場合と同様、地下室に設けたNaI検出器で40秒ごとに連続的に測定した。またケーブル内では第3カラムの側面に設置したNaI検出器でカラム内でのγ放射能の移動を連続的に測定した。地下室でγ放射能の流出を確認した時点からケーブル内に設置したフラクションコレクタの運転を開始し、40秒間隔で流出液を約6.8mlづつポリエチレン製マイシン瓶に集めた。

0.05MDTPA溶液2.99ℓをカラムに通液したのち、サージタンク内の溶離剤を3NHNO₃ 730mlで置換し、カラムに圧送した。これによりNH₄⁺型イオン交換樹脂をH型に変えた。その後は脱イオン交換水約1.2ℓによりカラムを洗滌した。

2.2.8 無機イオン交換体による¹³⁷Cs, ⁹⁰Srの分離(9月6日~9月10日)

¹³⁷Cs, ⁹⁰Srを含むDIDPA raffinateフラクション3.4ℓ(酸性度0.397N)を2N NaOHで中和した。この結果、pH 8.75の溶液4.25ℓが得られた。およそ15時間後にケーブル内のポ

ンプにより中和液を汲み上げたところ白濁が認められたので、中和操作の4日後にセラミックフィルタにより濾過した。得られた溶液4.2ℓを無機イオン交換体カラムへのフィード原液とした。

ゼオライト50g、オルトチタン酸200gを含む無機イオン交換体カラムはJAERI-M 82-144⁴⁾に述べたようにして調製した。このカラムにフィード原液を流速200ml/hで通液した。実験は3日間にわたって行い、その日の運転終了前に約200mlのカラム通過液をポリエチレン製瓶にサンプリングした。フィード原液タンクが空になってからは脱イオン交換水1ℓによりカラムを洗滌した。その後は減圧ポンプによりカラムの一方の出口を負圧とし、他方の口から空気を取込むようにしてカラム内の乾燥操作を15時間にわたって行った。乾燥のすんだ¹³⁷Cs、⁹⁰Srを吸着した無機イオン交換体カラムはケーブル内のピットに収納した。なお収納前のケーブル内空間線量率は約400mR/hで、収納後は約70mR/hに減少した。

2.2.9 放射能の測定

ケーブル内群分離試験装置でサンプリングした溶液を含むポリエチレン製マイシン瓶は鉛コンテナに入れてFPセルに運搬し、加熱したニクロム線を使って開封した。溶液のごく一部を分注器によりポリエチレン製棒瓶にサンプリングし、通常は約5mlの水で希釈した。この試料をFPセル内からフード内に移し、 α 放射能及び γ 放射能測定用試料を調製した。

α 放射能測定用試料の調製では、溶液の一部をステンレス製プレートに採取したのち、赤外線ランプの下で乾燥した。その後、試料全体を高周波誘導加熱装置により700~800℃に加熱して α 放射能測定用試料とした。 α 放射能強度の測定には、ガスフロー型比例計数管を、また α 線スペクトルの測定にはSi半導体を備えた波高分析器を使用した。 α 放射能の絶対強度を求めるためには²⁴¹Amの標準溶液から一定量をステンレス製プレート上に採取して α 放射能測定試料を調製し、ガスフロー型比例計数管により測定して計数効率を求めた。この値を試料の測定値に乗じて絶対放射能強度を算出した。^{238,239}Pu、²⁴¹Am、^{242,244}Cm等の核種ごとの絶対量は α 線スペクトルのピーク面積を比較した値にガスフロー型比例計数管より求めた絶対量に乗じて求めた。

γ 線スペクトルの測定は溶液の一部をポリエチレン製棒瓶に採取したのち、Ge(Li)検出器を備えた波高分析器により行った。この際、 γ 線スペクトルのピーク面積から絶対放射能強度を求めるため、¹⁵²Eu標準線源を同時に測定した。 γ 線スペクトルの解析はBOB 76計算コードにより行った。

ケーブル内でREとAm、Cmをイオン交換分離した時のフラクションについては放射能強度が極めて高いものも含まれているので、ケーブル内に設置した電離箱型線量率計により放射能強度を測定した。これと同時にケーブル内に設置した天秤により試料の重量を求め、単位重量当りの放射能強度を算出した。放射能強度の低い試料については一部FPセルに運んで放射能測定用試料とした。

無機イオン交換体による⁹⁰Srの除染係数を求めるために、⁹⁰Srの濃度を次の方法により定量した。サンプリング試料の一定量にBa(NO₃)₂溶液5ml、ついで0.1NH₂SO₄ 1mlを加えて溶液の全量を10mlとし、約10mgのBaSO₄沈澱を生成した。沈澱を熟成したのち東洋濾

紙 No. 5 C を備えたろ過棒により吸引ろ過して沈澱を集めた。この試料をステンレス製試料皿に移して乾燥したのち、ガスフロー型 GM 計数管で β 放射能を測定した。 ^{90}Sr から生成する ^{90}Y 放射能の増加量を 2 週間にわたって測定し、その変化の様子を解析することによって ^{90}Sr の放射能強度を算出した。

3. 群分離試験の結果

3.1 群分離試験原液の性状及び放射能組成

群分離試験廃液は密度 1.078 g/ml ，酸性度 2.12N でほとんど無色透明の硝酸溶液であった。 γ 線スペクトルから求めた放射能組成を Table 1 に示す。

3.2 TBP による U, Pu の抽出

ミキサーセトラの各バンクでの水相及び有機相における α 放射能分布曲線を Fig. 5 に示す。U, Pu フラクシヨンの流出口となるバンク No. 12 の水相及び有機相には Pu 以外の α 放射能は極めて少なく、水相における Am の量は約 $4 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ であった。一方 TBP raffinate フラクシヨンの流出口となるバンク No. 1 の水相での α 放射能は Am, Cm が大部分であり Pu の検出は不可能であった。Pu が濃縮される有機相でも Pu の検出は不可能でその量は検出限界 $5 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ 以下と考えられる。セミホット試験での結果のように Pu が TBP に抽出される化学種のみであるとすれば、バンク No. 1 の水相での Pu 濃度は $2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ 以下となる。

TBP 抽出における α 放射能についての物質収支を Table 2 に示す。この結果から、Pu の 98.8% 以上が TBP によって抽出されそのうちの 98.6% は Pu, U フラクシオンに、また 2.4% は TBP フラクシオンに移っていた。一方 TBP raffinate フラクシオンに含まれる Pu の量は 1.2% 以下であり、TBP による抽出のみで群分離の目標とする 98% 以上の Pu を高レベル再処理廃液から除去するという目的は達せられていることが確認できた。TBP raffinate フラクシオンに移る Pu の割合は原研処理廃液での群分離試験の結果とほぼ同じと考えられたが、TBP に抽出された Pu が U, Pu フラクシオンに移る割合は大きく異なっていた。すなわち、今回の動燃再処理廃液による試験では Pu の 97.4% が U, Pu フラクシオンに移っていたのに対して、原研再処理廃液では 60~80% であった。このことから、動燃再処理廃液の Pu の化学的挙動は原研再処理廃液の場合より単純化されているということができよう。

TBP による U, Pu の抽出では Am, Cm はほとんど抽出されず 99.9% 以上が TBP raffinate フラクシオンに移っており、U, Pu フラクシオンに移る Am, Cm の量は約 0.03% にすぎなかった。なお本試験において、U については特に定量していないが、これは TBP による U の抽出は Pu よりも容易であること、U の 80% が抽出されていれば群分離の目的は達せられていることなどの理由による。

紙 No. 50 を備えた濾過棒により吸引濾過して沈澱を集めた。この試料をステンレス製試料皿に移して乾燥したのち、ガスフロー型 GM 計数管で β 放射能を測定した。 ^{90}Sr から生成する ^{90}Y 放射能の増加量を 2 週間にわたって測定し、その変化の様子を解析することによって ^{90}Sr の放射能強度を算出した。

3. 群分離試験の結果

3.1 群分離試験原液の性状及び放射能組成

群分離試験廃液は密度 1.078 g/ml 、酸性度 2.12N でほとんど無色透明の硝酸溶液であった。 γ 線スペクトルから求めた放射能組成を Table 1 に示す。

3.2 TBP による U, Pu の抽出

ミキサーセトラの各バンクでの水相及び有機相における α 放射能分布曲線を Fig. 5 に示す。U, Pu フラクシジョンの流出口となるバンク No. 12 の水相及び有機相には Pu 以外の α 放射能は極めて少なく、水相における Am の量は約 $4 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ であった。一方 TBP raffinate フラクシジョンの流出口となるバンク No. 1 の水相での α 放射能は Am, Cm が大部分であり Pu の検出は不可能であった。Pu が濃縮される有機相でも Pu の検出は不可能でその量は検出限界 $5 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ 以下と考えられる。セミホット試験での結果のように Pu が TBP に抽出される化学種のみであるとすれば、バンク No. 1 の水相での Pu 濃度は $2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ 以下となる。

TBP 抽出における α 放射能についての物質収支を Table 2 に示す。この結果から、Pu の 98.8% 以上が TBP によって抽出されそのうちの 98.6% は Pu, U フラクシジョンに、また 2.4% は TBP フラクシジョンに移っていた。一方 TBP raffinate フラクシジョンに含まれる Pu の量は 1.2% 以下であり、TBP による抽出のみで群分離の目標とする 98% 以上の Pu を高レベル再処理廃液から除去するという目的は達せられていることが確認できた。TBP raffinate フラクシジョンに移る Pu の割合は原研処理廃液での群分離試験の結果とほぼ同じと考えられたが、TBP に抽出された Pu が U, Pu フラクシジョンに移る割合は大きく異なっていた。すなわち、今回の動燃再処理廃液による試験では Pu の 97.4% が U, Pu フラクシジョンに移っていたのに対して、原研再処理廃液では 60~80% であった。このことから、動燃再処理廃液の Pu の化学的挙動は原研再処理廃液の場合より単純化されているということができよう。

TBP による U, Pu の抽出では Am, Cm はほとんど抽出されず 99.9% 以上が TBP raffinate フラクシジョンに移っており、U, Pu フラクシジョンに移る Am, Cm の量は約 0.03% にすぎなかった。なお本試験において、U については特に定量していないが、これは TBP による U の抽出は Pu よりも容易であること、U の 80% が抽出されていれば群分離の目的は達せられていることなどの理由による。

TBP抽出での ^{137}Cs , ^{106}Ru , ^{154}Eu の分布曲線をFig. 6に示す。 ^{137}Cs 及び ^{154}Eu はTBPによってほとんど抽出されていないのに対して, ^{106}Ru の一部は抽出され,U,Puフラクション及びTBPフラクションを汚染していた。Table 3にはTBP抽出における ^{137}Cs , ^{106}Ru , ^{154}Eu , ^{125}Sb についての物質収支を示す。この結果から, ^{137}Cs 及び ^{154}Eu の99.99%以上がTBP raffinateフラクションに移っているが, ^{106}Ru については98.5%がTBP raffinateフラクションに,0.80%がU,Puフラクション,0.68%がTBPフラクションに移っていることがわかった。 ^{125}Sb についてはバンク№14及び№16の有機相及び水相からの試料にのみその γ 線スペクトルが測定できた。TBPフラクションに含まれる ^{125}Sb の量はフィード原液に含まれる ^{125}Sb の量の0.01%にすぎないものであった。U,Puフラクションには ^{106}Ru の他に ^{137}Cs 及び ^{154}Eu の γ 線スペクトルが測定されたが,その量はフィード原液に含まれる ^{137}Cs 量の $4 \times 10^{-4}\%$, ^{154}Eu 量の $6 \times 10^{-3}\%$ であった。

3.3 DIDPAによるRE, Am, Cmの抽出

DIDPAによるRE, Am, Cm抽出におけるミキサーセトラの各バンクでの α 放射能の分布曲線をFig. 7に示す。RE, Am, Cmフラクションの流出口となるバンク№11の水相については試料のサンプリングが不可能であったため測定されていない。図中に示した値は後述のように α 放射能についての物質収支から求めたものである。図から α 放射能は極めてよく抽出され,また 4NHNO_3 により逆抽出されていることが明らかである。バンク№15及び№16の有機相にはTBPによって抽出されなかったPuがDIDPAによって抽出され, 4NHNO_3 で逆抽出されずに残留することが前回の原研再処理廃液によるセミホット試験で確認されている。本試験ではこれらの有機相にもPuによる α 線スペクトルは検出されず,すべてがAm, Cmであることが確認できた。このことはTBPによって抽出されないPuがほとんど存在しなかったことを意味する。

DIDPA抽出における α 放射能についての物質収支をTable 4に示す。ここでバンク№11の水相についての測定値がないため,RE, Am, Cmフラクションについての値はフィード原液でのActivity flowからDIDPA raffinate及びDIDPAフラクションでのActivity flowを差引いた値から求めたものである。表からはDIDPAによってAm, Cmの99.99%以上が抽出され,99.8%がRE, Am, Cmフラクションに,0.2%がDIDPAフラクションに移っていることがわかる。DIDPAに抽出されないAm, Cmの量は $4 \times 10^{-3}\%$ にすぎなかった。したがって高レベル再処理廃液から99.9%以上のAm, Cmを分離するという群分離の目標は充分達成されていることが確認できた。

DIDPA抽出における ^{60}Co , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{137}Cs , ^{154}Eu についての各バンク水相での分布曲線をFig. 8に示す。有機相についてはFPセルでの γ 線測定試料調製の際にn-ドデカンで希釈したことに問題があるらしく,データがいちぢるしく変動していたため図中に示していない。なおバンク№11, №12については水相からのサンプリングが不可能であったため測定値がない。このためRE, Am, Cmフラクションの流出口となるバンク№11での水相における ^{106}Ru , ^{125}Sb の値は,バンク№13, №14, №15の水相での値を直線で外そうすることによ

り、 ^{144}Ce 、 ^{154}Eu の値はTBPの場合と同様に放射能に関する物質収支から計算して求めた。図からはTBP抽出の場合と同様に ^{106}Ru 及び ^{125}Sb がすべてのバンクに分布していることが明らかである。

DIDPA抽出における γ 放射能についての物質収支をTable 5に示す。ここでDIDPA raffinate フラクションの放射能濃度としてはバンク№1及び№2の水相の値の平均値を用いた。RE, Am, Cmフラクションには ^{154}Eu の99%以上が移っているが、 ^{144}Ce については93%で、約7%がDIDPAに抽出されたままであった。 ^{125}Sb 及び ^{106}Ru についてはそれぞれ16%及び2.9%であった。 ^{125}Sb 及び ^{106}Ru はDIDPAフラクションにも同程度検出され、それぞれ52%及び5.4%であった。このことから、比較的よく ^{125}Sb がDIDPAによって抽出されていることが明らかとなった。RE, Am; Cmフラクションに含まれる ^{137}Cs は $9 \times 10^{-4}\%$ で極めてわずかであり、99.99%以上はDIDPA raffinate フラクションに移っていた。

3.4 陽イオン交換樹脂カラムによるREとAm, Cmの分離

ケーブ内で測定した陽イオン交換分離フラクションの放射能強度から求めた溶離曲線をFig. 9に示す。ピークの裾の部分のフラクションについて γ 線スペクトルを測定した結果、2.76ℓから2.83ℓまでの試料には ^{241}Am 、 ^{154}Eu 、 ^{155}Eu が、2.83ℓには ^{144}Ce が含まれていることが確認できた。溶離曲線の解析から2776mlから2842mlまでの48mlの溶出液中に99.99%以上の ^{241}Am が含まれていることがわかった。約50mlの溶出液中に大部分の ^{241}Am が含まれるという結果は第1回セミホット試験の場合と一致した。 ^{241}Am の溶出は2760ml付近から始まっているが、これは第1回セミホット試験の場合の1560mlより多く、第2回セミホット試験の2820mlよりは少ない値であった。第1回セミホット試験は模擬再処理廃液を使用した場合であり、第1カラムに吸着した希土類元素の量が多く、第2回セミホット試験は原研再処理廃液のみの試験で希土類元素がほとんど含まれていない。本試験の結果は第1カラムに吸着した希土類元素の量が原研再処理廃液のときに比較して、わずかながら増加し、展開カラムとして使用されるカラムの長さが短くなったことによるものと考えられる。

3.5 無機イオン交換体による ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の分離

DIDPA raffinate フラクションから無機イオン交換体カラムへのフィード原液を調製する段階で中和とろ過の操作を行ったが、この際 ^{106}Ru の25%、 ^{137}Cs の約3%及び ^{90}Sr の34%が沈澱に移った。

フィード原液及び無機イオン交換体カラム通過液の放射能濃度をTable 6に示す。 ^{106}Ru 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 、 ^{90}Sr などの濃度は通液量が2ℓから4ℓに増加してもほとんど一定であり、フィード原液に対する№3フラクションでの放射能濃度の割合は ^{106}Ru 1.7%、 ^{137}Cs $2.0 \times 10^{-4}\%$ 、 ^{90}Sr $3.1 \times 10^{-4}\%$ であった。 ^{60}Co 及び ^{125}Sb についてはフィード原液中の検出ができなかったことから、カラムに吸着した割合を直接求めることはできない。しかしながら一連の群分離フローの中で ^{137}Cs はほとんど失われずに無機イオン交換体カラムのフィード原液に移っている

ので、フィード原液中の ^{137}Cs 濃度を基準にして、無機イオン交換体カラム操作までを含めた一連の群分離フローによって除去された核種の割合を求めることができる。それによれば無機イオン交換体カラム処理後(No.3フラクション)の核種の除染係数は ^{90}Sr 5.3×10^5 , ^{106}Ru 1.0×10^2 , ^{137}Cs 4.9×10^5 , ^{125}Sb 7.1×10^2 , ^{60}Co 9.8×10 となった。 ^{106}Ru の除染係数が比較的低いのはこの元素の化学的挙動の複雑さから判断して一般に考えられることであるが、 ^{60}Co については意外な結果であった。いずれにしろ、DIDPA raffinateフラクションを無機イオン交換体カラムに通すことで放射性核種の大部分が除去され、通過液の放射能濃度を約 $0.7 \mu\text{Ci}/\text{mL}$ に減少することができた。

4. 結 言

高レベル再処理廃液の運搬に必要な輸送容器の設計とBM型輸送容器としての国の承認を得るまでにおよそ3年間を要した。これにより1982年2月には動燃再処理廃液の輸送を実現した。動燃再処理廃液約2ℓによる群分離試験の結果、分離の対象として最も重要な核種であるPu, Am, CmはTBP及びDIDPAなどの抽出によりいずれも99.9%以上の収率で再処理廃液から分離できることを確認した。また発熱の主体となる ^{90}Sr 及び ^{137}Cs は無機イオン交換体カラムを通過させることで99.99%以上吸着できることを確認した。これらの結果は模擬再処理廃液及び原研再処理廃液による試験結果とほとんど一致した。むしろ ^{239}Pu についてのTBPによる抽出挙動は原研再処理廃液の場合に比べてより単純であり、良好な結果であった。

今回の試験では装置上のトラブルはほとんどなく安全な運転を続けることができた。しかしながら、ケーブルから取出したサンプリング試料の放射能強度が高く、放射能測定試料を調製する段階で大幅な溶液の希釈操作が必要となり、慎重な対応が必要であった。

現在は動燃再処理廃液の取扱い量をさらに増加して、再処理工場の高レベル廃液貯蔵タンクに貯蔵される再処理廃液(Purex法でのTBP raffinateフラクションを約15倍に濃縮した溶液)に相当する溶液を調製し、群分離試験を実施中である。

最後に再処理廃液を調製して下さった動燃再処理工場工務部試験課の方々に深く感謝する。

文 献

- 1) M. Kubota, H. Nakamura, S. Tachimori, T. Abe, H. Amano: "Removal of Transplutonium Elements from High-level Waste", IAEA-SM-246/24 (1981).
- 2) 山口五十夫, 中村治人, 久保田益充, 館盛勝一, 佐藤彰, 青山三郎: "群分離法の開発—群分離試験用ケーブルと装置の製作", JAERI-M9049 (1980).
- 3) 久保田益充, 山口五十夫, 中村治人, 館盛勝一, 佐藤彰: "群分離法の開発—群分離試験装置によるコールドおよびセミホット試験", JAERI-M9627 (1980).
- 4) 久保田益充, 山口五十夫, 中村治人, 岡田賢造, 水野文夫, 佐藤淳和: "群分離法の開

ので、フィード原液中の¹³⁷Cs濃度を基準にして、無機イオン交換体カラム操作までを含めた一連の群分離フローによって除去された核種の割合を求めることができる。それによれば無機イオン交換体カラム処理後(No.3フラクション)の核種の除染係数は⁹⁰Sr 5.3×10^5 , ¹⁰⁶Ru 1.0×10^2 , ¹³⁷Cs 4.9×10^5 , ¹²⁵Sb 7.1×10^2 , ⁶⁰Co 9.8×10 となった。¹⁰⁶Ruの除染係数が比較的低いのはこの元素の化学的挙動の複雑さから判断して一般に考えられることであるが、⁶⁰Coについては意外な結果であった。いずれにしろ、DIDPA raffinateフラクションを無機イオン交換体カラムに通すことで放射性核種の大部分が除去され、通過液の放射能濃度を約0.7 $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ に減少することができた。

4. 結 言

高レベル再処理廃液の運搬に必要な輸送容器の設計とBM型輸送容器としての国の承認を得るまでにおよそ3年間を要した。これにより1982年2月には動燃再処理廃液の輸送を実現した。動燃再処理廃液約2ℓによる群分離試験の結果、分離の対象として最も重要な核種であるPu, Am, CmはTBP及びDIDPAなどの抽出によりいずれも99.9%以上の収率で再処理廃液から分離できることを確認した。また発熱の主体となる⁹⁰Sr及び¹³⁷Csは無機イオン交換体カラムを通過させることで99.99%以上吸着できることを確認した。これらの結果は模擬再処理廃液及び原研再処理廃液による試験結果とほとんど一致した。むしろ²³⁹PuについてのTBPによる抽出挙動は原研再処理廃液の場合に比べてより単純であり、良好な結果であった。

今回の試験では装置上のトラブルはほとんどなく安全な運転を続けることができた。しかしながら、ケーブルから取出したサンプリング試料の放射能強度が高く、放射能測定試料を調製する段階で大幅な溶液の希釈操作が必要となり、慎重な対応が必要であった。

現在は動燃再処理廃液の取扱い量をさらに増加して、再処理工場の高レベル廃液貯蔵タンクに貯蔵される再処理廃液(Purex法でのTBP raffinateフラクションを約15倍に濃縮した溶液)に相当する溶液を調製し、群分離試験を実施中である。

最後に再処理廃液を調製して下さった動燃再処理工場工務部試験課の方々に深く感謝する。

文 献

- 1) M. Kubota, H. Nakamura, S. Tachimori, T. Abe, H. Amano: "Removal of Transplutonium Elements from High-level Waste", IAEA-SM-246/24 (1981).
- 2) 山口五十夫, 中村治人, 久保田益充, 館盛勝一, 佐藤彰, 青山三郎: "群分離法の開発—群分離試験用ケーブルと装置の製作", JAERI-M9049 (1980).
- 3) 久保田益充, 山口五十夫, 中村治人, 館盛勝一, 佐藤彰: "群分離法の開発—群分離試験装置によるコールドおよびセミホット試験", JAERI-M9627 (1980).
- 4) 久保田益充, 山口五十夫, 中村治人, 岡田賢造, 水野文夫, 佐藤淳和: "群分離法の開

ので、フィード原液中の ^{137}Cs 濃度を基準にして、無機イオン交換体カラム操作までを含めた一連の群分離フローによって除去された核種の割合を求めることができる。それによれば無機イオン交換体カラム処理後(No.3フラクション)の核種の除染係数は ^{90}Sr 5.3×10^5 , ^{106}Ru 1.0×10^2 , ^{137}Cs 4.9×10^5 , ^{125}Sb 7.1×10^2 , ^{60}Co 9.8×10 となった。 ^{106}Ru の除染係数が比較的低いのはこの元素の化学的挙動の複雑さから判断して一般に考えられることであるが、 ^{60}Co については意外な結果であった。いずれにしろ、DIDPA raffinateフラクションを無機イオン交換体カラムに通すことで放射性核種の大部分が除去され、通過液の放射能濃度を約 $0.7 \mu\text{Ci}/\text{ml}$ に減少することができた。

4. 結 言

高レベル再処理廃液の運搬に必要な輸送容器の設計とBM型輸送容器としての国の承認を得るまでにおよそ3年間を要した。これにより1982年2月には動燃再処理廃液の輸送を実現した。動燃再処理廃液約2ℓによる群分離試験の結果、分離の対象として最も重要な核種であるPu, Am, CmはTBP及びDIDPAなどの抽出によりいずれも99.9%以上の収率で再処理廃液から分離できることを確認した。また発熱の主体となる ^{90}Sr 及び ^{137}Cs は無機イオン交換体カラムを通過させることで99.99%以上吸着できることを確認した。これらの結果は模擬再処理廃液及び原研再処理廃液による試験結果とほとんど一致した。むしろ ^{239}Pu についてのTBPによる抽出挙動は原研再処理廃液の場合に比べてより単純であり、良好な結果であった。

今回の試験では装置上のトラブルはほとんどなく安全な運転を続けることができた。しかしながら、ケーブルから取出したサンプリング試料の放射能強度が高く、放射能測定試料を調製する段階で大幅な溶液の希釈操作が必要となり、慎重な対応が必要であった。

現在は動燃再処理廃液の取扱い量をさらに増加して、再処理工場の高レベル廃液貯蔵タンクに貯蔵される再処理廃液(Purex法でのTBP raffinateフラクションを約1.5倍に濃縮した溶液)に相当する溶液を調製し、群分離試験を実施中である。

最後に再処理廃液を調製して下さった動燃再処理工場工務部試験課の方々に深く感謝する。

文 献

- 1) M. Kubota, H. Nakamura, S. Tachimori, T. Abe, H. Amano: "Removal of Transplutonium Elements from High-level Waste", IAEA-SM-246/24 (1981).
- 2) 山口五十夫, 中村治人, 久保田益充, 館盛勝一, 佐藤彰, 青山三郎: "群分離法の開発—群分離試験用ケーブルと装置の製作", JAERI-M9049 (1980).
- 3) 久保田益充, 山口五十夫, 中村治人, 館盛勝一, 佐藤彰: "群分離法の開発—群分離試験装置によるコールドおよびセミホット試験", JAERI-M9627 (1980).
- 4) 久保田益充, 山口五十夫, 中村治人, 岡田賢造, 水野文夫, 佐藤淳和: "群分離法の開

- 発：無機イオン交換体カラム法による⁹⁰Sr及び¹³⁷Csを含む廃液の処理法の開発（共同研究成果報告）” JAERI-M 82-144（1982）.
- 5) 久保田益充，中村治人，山口五十夫，岡田賢造：“高レベル再処理廃液輸送用HLW-79Y-4T型容器の設計・製作と再処理廃液の輸送”未公刊資料（1982）.

Table 1 Concentration of γ -activities
in the high-level waste prepared
at PNC

Radioisotope	Concentration on Jul. 1, 1982 (Ci/l)
^{60}Co	0.00449
^{106}Ru	0.154
^{125}Sb	0.0284
^{134}Cs	0.234
^{137}Cs	2.58
^{144}Ce	0.122
^{154}Eu	0.0512
^{155}Eu	0.0200
^{241}Am	0.0230

Table 2 Distribution of α -activities
in TBP extraction

Fraction	Flow rate (ml/h)	Activity concentration ($\mu\text{Ci/ml}$)	Activity flow rate ($\mu\text{Ci/h}$)
TBP raffinate (No. 1 Aq)	~ 416	Am 3.66×10^{-3} Cm 6.67×10^{-3} Pu $< 2 \times 10^{-3}$	1.52×10^4 2.77×10^3 $< 8 \times 10^{-1}$
Pu (No.12 Aq)	~ 100	Am 4.17×10^{-3} Cm 9.84×10^{-4} Pu 6.27×10^{-1}	4.17×10^{-1} 9.84×10^{-2} 6.27×10^0
TBP (No.16 Org)	~ 204	Am ~ 0 Cm ~ 0 Pu 4.31×10^{-3}	~ 0 ~ 0 8.79×10^{-1}

Table 3 Distribution of γ -activities in TBP extraction

Fraction	Flow rate (ml/h)	Activity concentration ($\mu\text{Ci/ml}$)	Activity flow rate ($\mu\text{Ci/h}$)
TBP raffinate	~ 416	^{106}Ru 1.46×10^2 ^{137}Cs 2.93×10^3 ^{154}Eu 5.54×10	6.07×10^4 1.22×10^6 2.30×10^4
U, Pu	~ 100	^{106}Ru 4.95 ^{137}Cs 4.8×10^{-2} ^{154}Eu 1.3×10^{-2}	4.95×10^2 4.8 1.3
TBP	~ 204	^{106}Ru 2.04 ^{125}Sb 7.0×10^{-3}	4.16×10^2 1.43

Table 4 Distribution of α -activity in DIDPA extraction

Fraction	Flow rate (ml/h)	Activity concentration ($\mu\text{Ci/ml}$)	Activity flow rate ($\mu\text{Ci/h}$)
DIDPA raffinate	~ 199	1.20×10^{-3}	2.39×10^{-1}
RE, Am, Cm	~ 101	(5.56×10)	(5.62×10^3)
DIDPA	~ 408	2.47×10^{-2}	1.01×10
Feed soln.	~ 97	5.80×10	5.63×10^3

Table 5 Distribution of γ -activities in DIDPA extraction

Fraction	Flow rate (ml/h)	Activity concentration ($\mu\text{Ci/ml}$)	Activity flow rate ($\mu\text{Ci/h}$)
DIDPA raffinate	~ 199	^{60}Co 2.89 ^{106}Ru 8.12×10 ^{137}Cs 1.92×10^3	5.75×10^2 1.62×10^4 3.82×10^5
RE, Am, Cm	~ 101	^{137}Cs (3.3×10^{-2}) ^{106}Ru (5.1) ^{125}Sb (5.7) ^{144}Ce ^{154}Eu	(3.33) (5.15×10^2) (5.76×10^2) (1.69×10^4) (7.86×10^3)
DIDPA	~ 408	^{106}Ru 2.32 ^{144}Ce 3.07 ^{125}Sb 4.58	9.47×10^2 1.25×10^3 1.87×10^3
Feed soln.	~ 97	^{60}Co 6.06 ^{144}Ce 1.87×10^2 ^{154}Eu 8.10×10 ^{127}Sb 3.70×10	5.88×10^2 1.81×10^4 7.86×10^3 3.59×10^3

Table 6 Activity concentration in the effluent from inorganic ion exchanger column

Fraction	Collected fraction	Activity concentration ($\mu\text{Ci/ml}$)				
		^{106}Ru	^{137}Cs	^{60}Co	^{125}Sb	^{90}Sr (cps/ml)
No.1	1.7l~1.9l	4.58×10^{-1}	1.18×10^{-3}	1.41×10^{-2}	—	3.1
No.2	3.3l~3.5l	6.77×10^{-1}	7.22×10^{-3}	2.47×10^{-2}	1.23×10^{-3}	2.4×10
No.3	4.2l~4.4l	6.73×10^{-1}	2.33×10^{-3}	2.05×10^{-2}	1.78×10^{-3}	6.8
Feed soln.		3.96×10	1.15×10^3	—	—	2.22×10^6

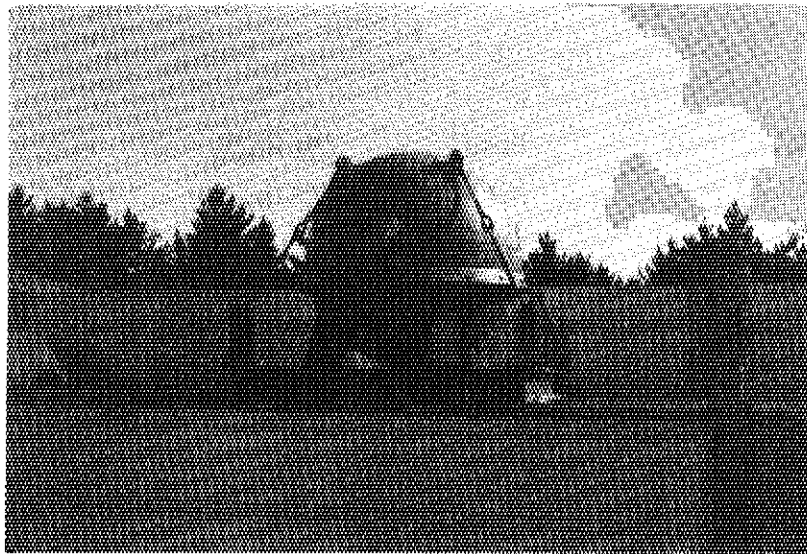


Fig.1 Outside view of the cask for transportation of high-level liquid waste

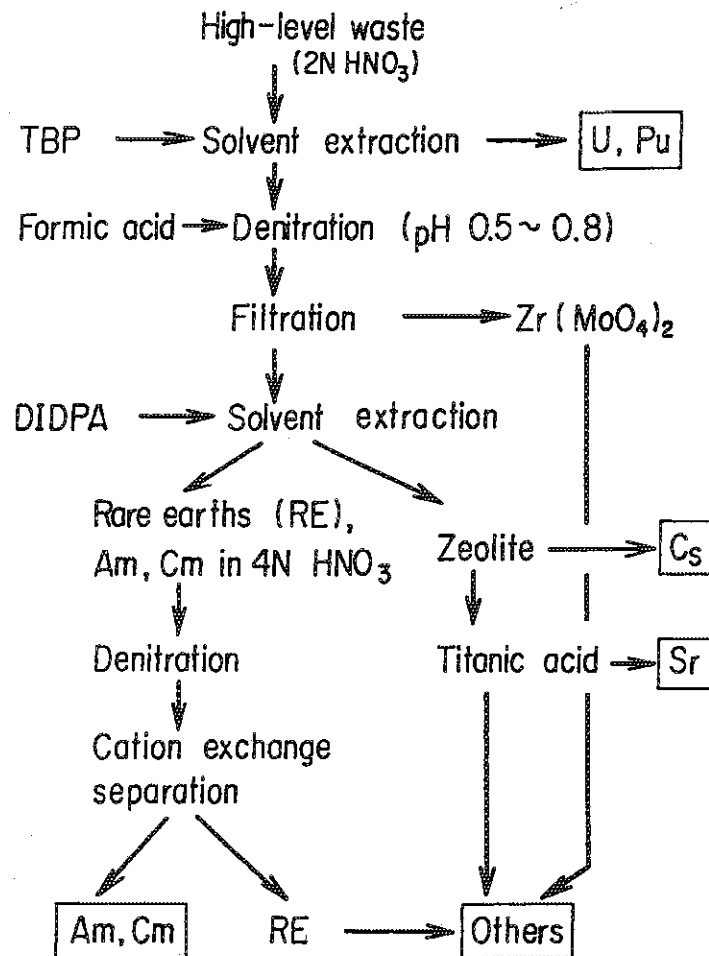


Fig.2 Flow-sheet for the partitioning of high-level waste

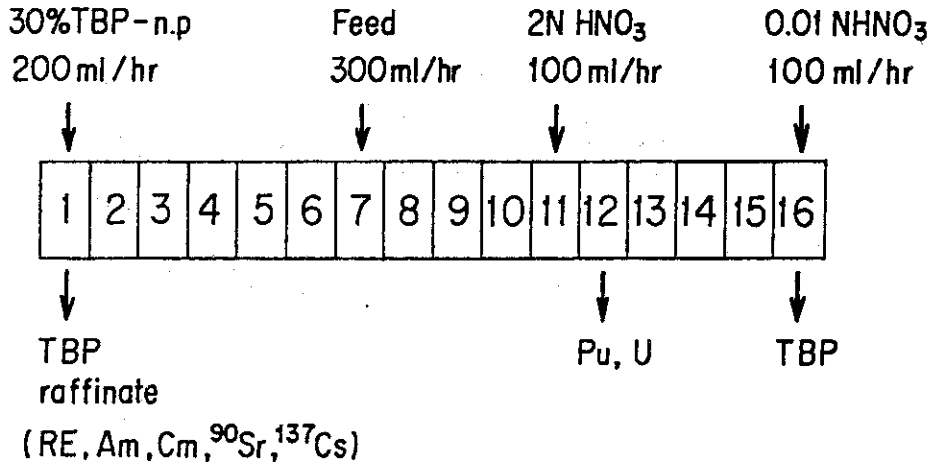


Fig.3 Operating conditions of the mixer settler for extraction of Pu and U with TBP

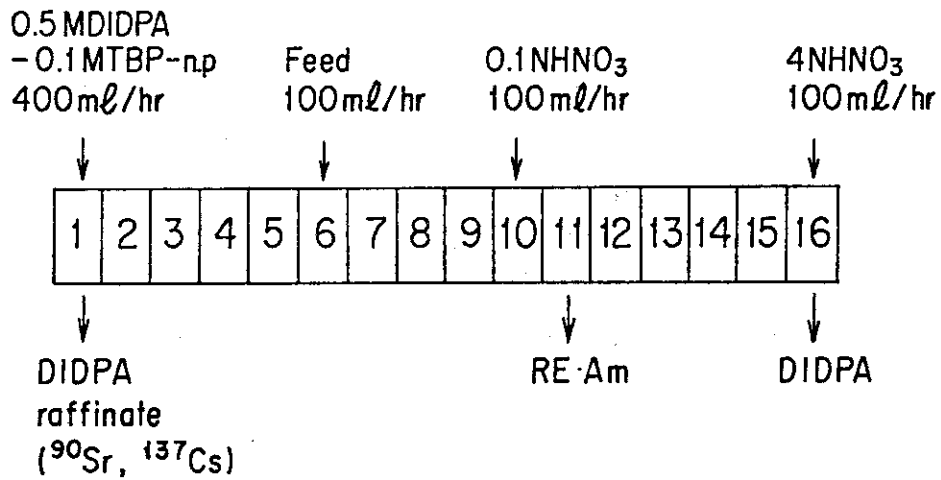


Fig.4 Operating conditions of the mixer settler for extraction of RE and Am with DIDPA

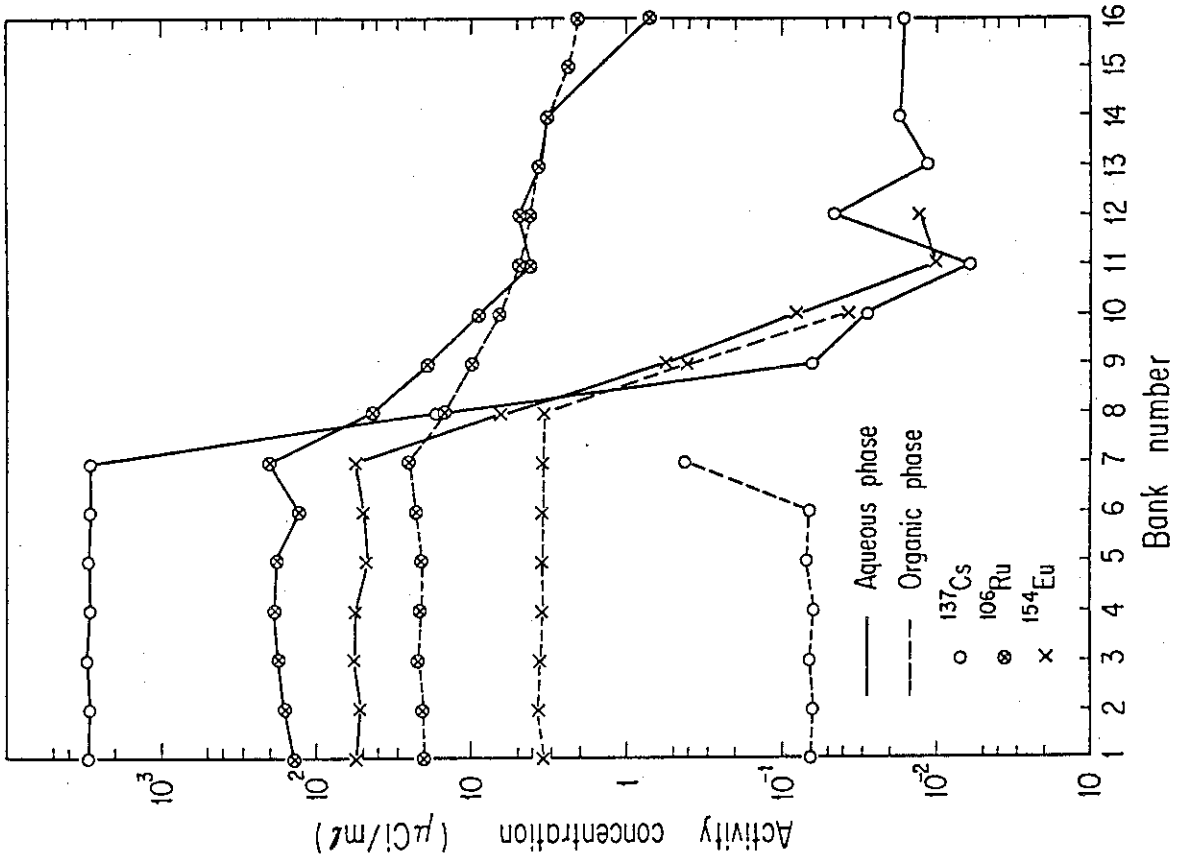


Fig. 5 Concentration profile for α -activities in the mixer settler used for TBP extraction

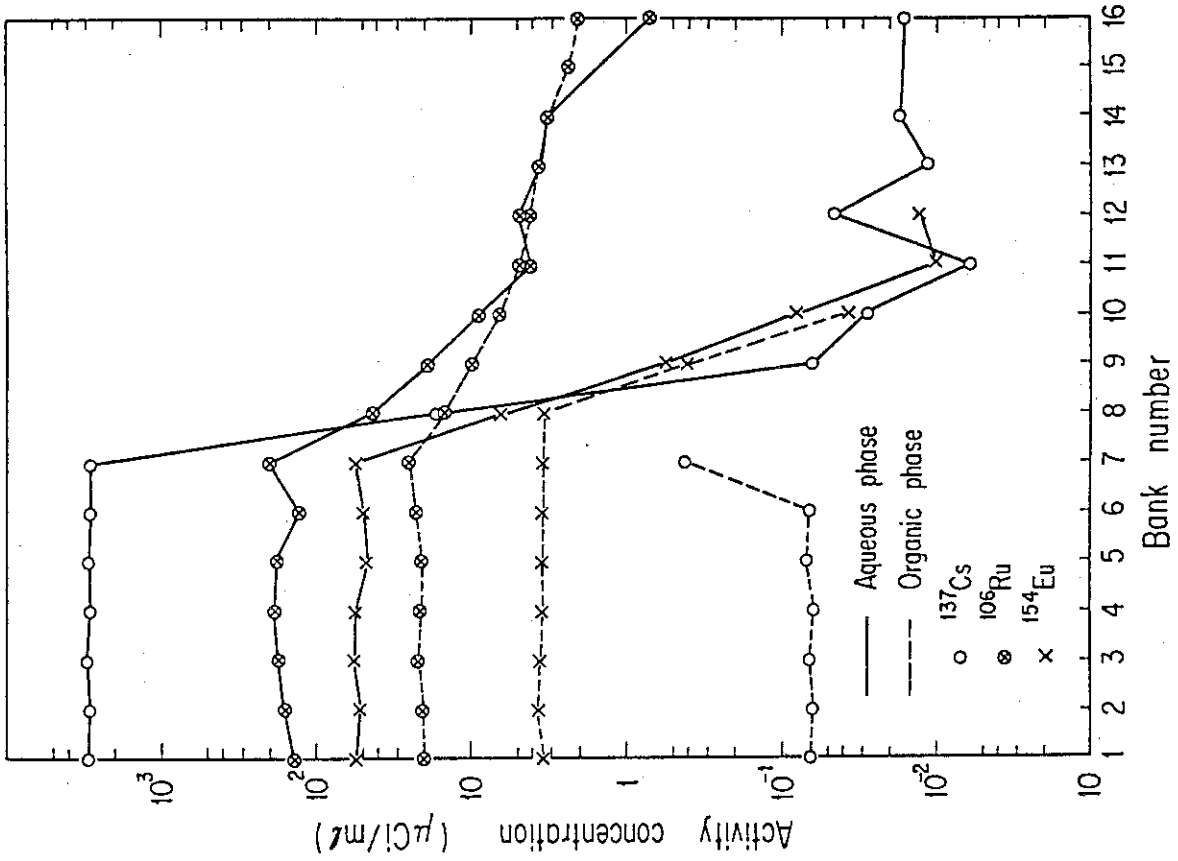


Fig. 6 Concentration profile for γ -activities in the mixer settler used for TBP extraction

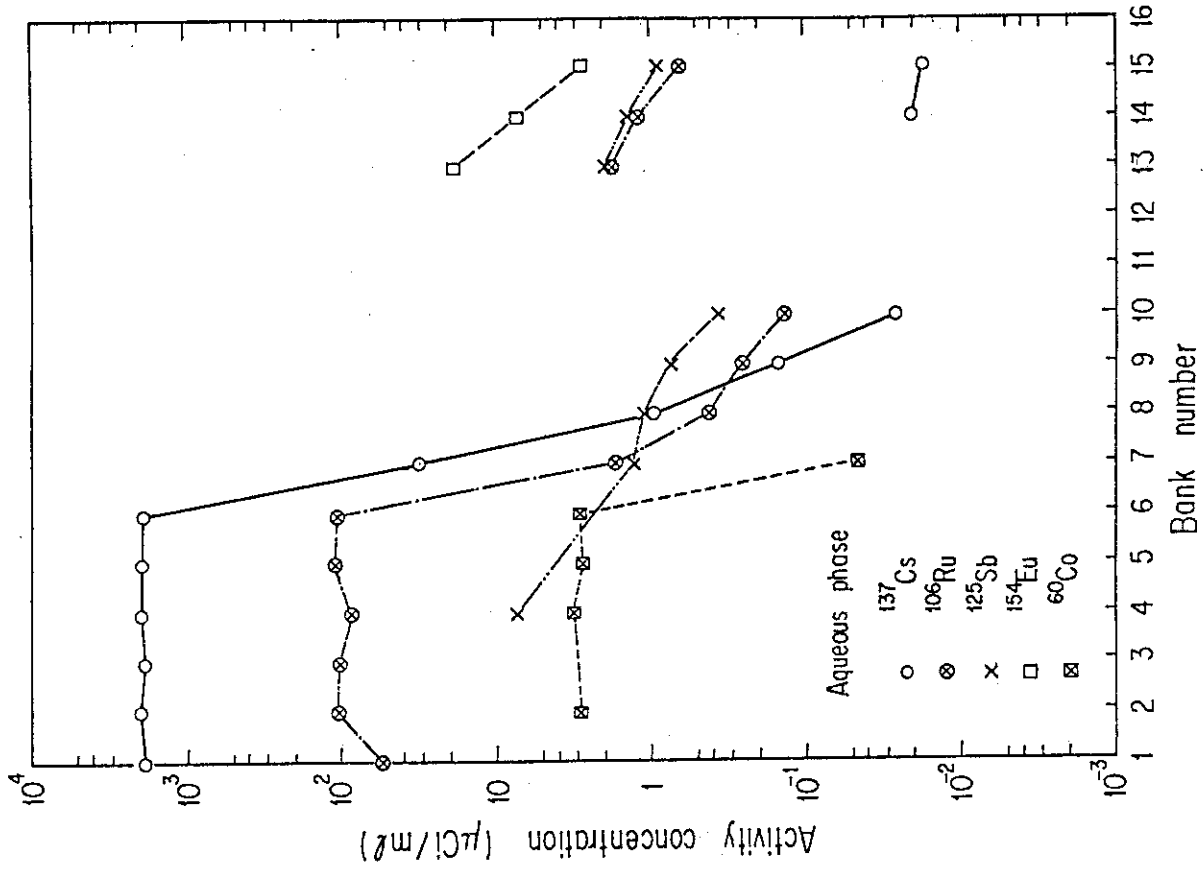


Fig. 8 Concentration profile for γ -activities in the mixer settler used for DIDPA extraction

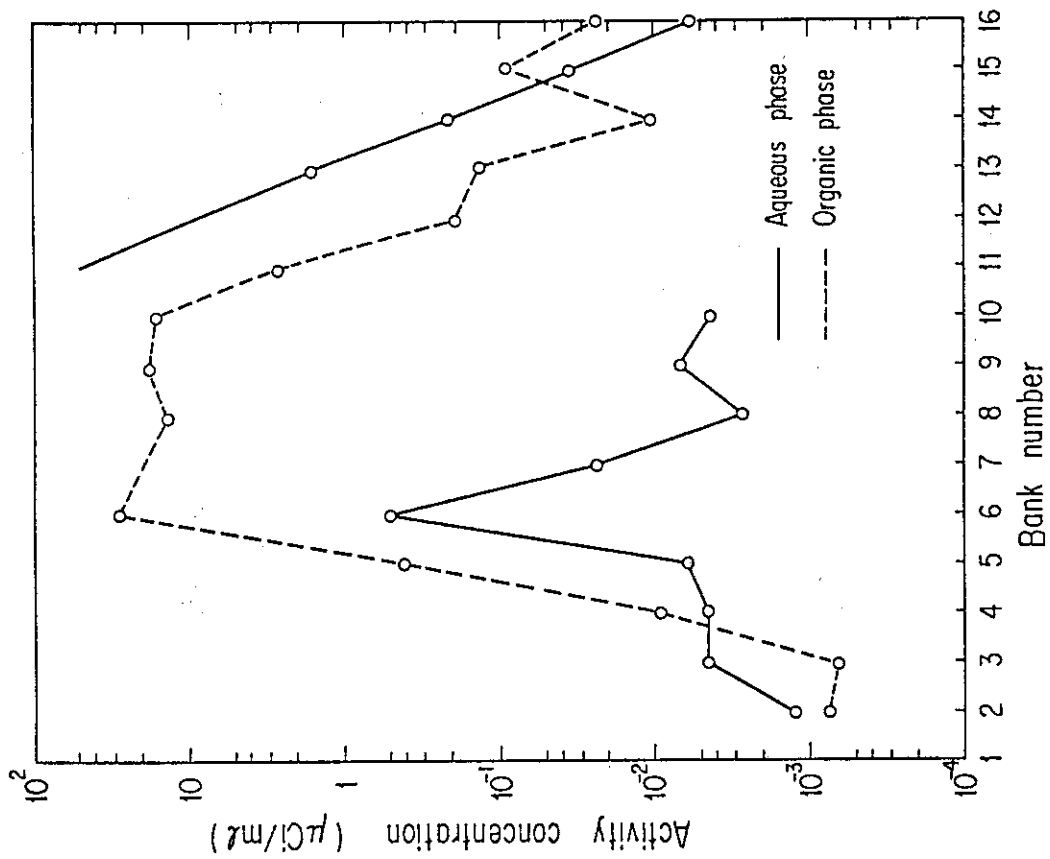


Fig. 7 Concentration profile for α -activities in the mixer settler used for DIDPA extraction

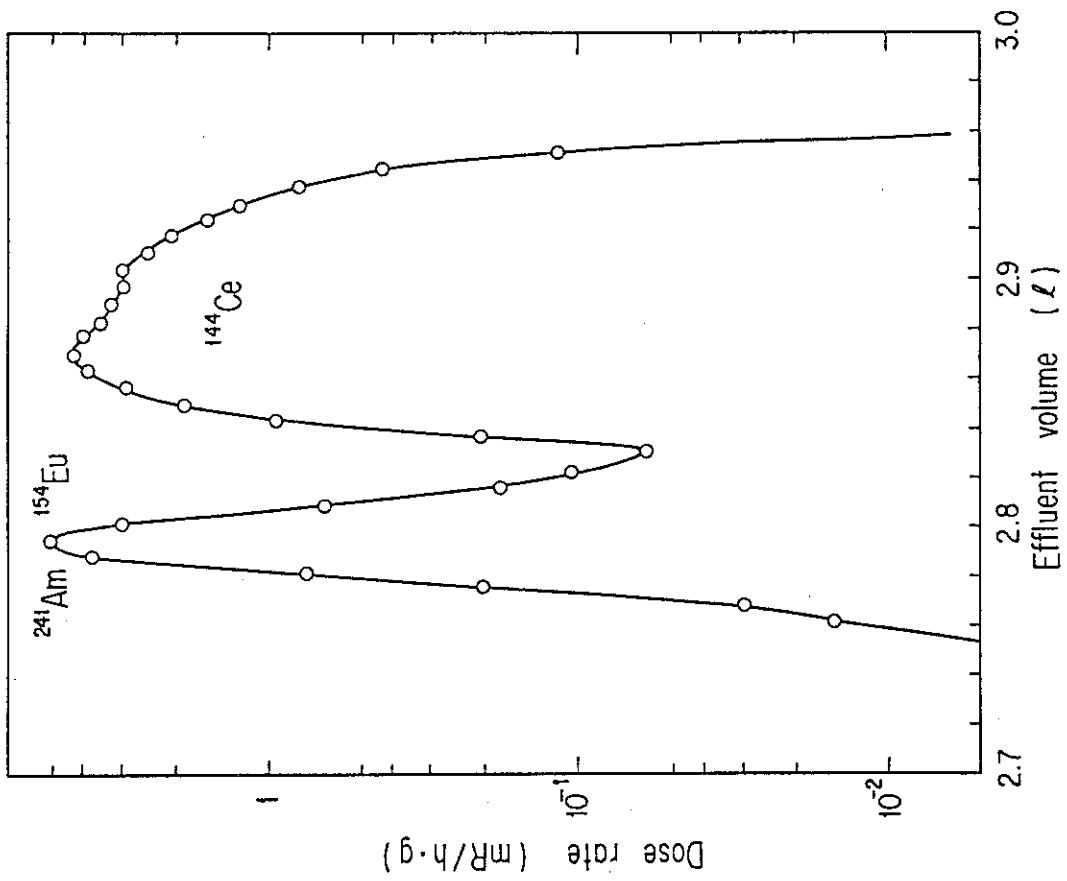


Fig.9 Elution of transplutonium elements and rare earths from cation exchange column with DTPA