

J A E R I - M  
93-211

TRUリサイクル研究のための  
バックエンド試験施設概念の検討

1993年11月

藤根 幸雄・白田 重和・森田 泰治  
吉田 善行・鈴木 康文・古田 照夫  
東稔 達三・太田 和明\*・西村 健二\*  
長谷川伸一\*

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。

入手の問合せは、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、お申しこみください。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）で複写による実費領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 Division Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1993

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 ニッセイエプロ株式会社

## TRUリサイクル研究のためのバックエンド試験施設概念の検討

日本原子力研究所東海研究所燃料サイクル安全工学部

藤根 幸雄・臼田 重和・森田 泰治<sup>+1</sup>・吉田 善行<sup>+2</sup>

鈴木 康文<sup>+1</sup>・古田 照夫<sup>+3</sup>・東稔 達三<sup>+4</sup>・太田 和明\*

西村 健二\*・長谷川伸一\*

(1993年10月1日受理)

本報告書は、軽水炉将来技術開発計画特別チームが行った「軽水炉将来技術総合試験施設」のバックエンド試験施設の概念について検討した結果をまとめたものである。

将来の核燃料サイクルにおいては、プルトニウムリサイクル利用を進めてエネルギー資源を確保する必要がある。これを推進するためには、発電炉で発生するTRU核種を分離回収して放射性廃棄物の長期毒性を低減させることが重要となる。本報告では、「軽水炉将来技術総合試験施設」においてTRUを含む超高燃焼プルトニウム試験燃料を処理してTRUをリサイクル利用することを想定としたバックエンド技術の開発研究を行う試験施設概念について検討した。

---

注) 藤根幸雄, 鈴木康文, 古田照夫, 東稔達三(平成5年3月31日まで軽水炉将来技術開発計画特別チーム)  
東海研究所: 〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

+ 1 燃料研究部

+ 2 先端基礎研究センター

+ 3 原子炉安全工学部

+ 4 原子炉工学部

\* 三菱マテリアル株式会社

Conceptual Design of Backend Technology R & D Facility  
for TRU Recycle in the Future Fuel Cycle System

Sachio FUJINE, Shigekazu USUDA, Yasuji MORITA<sup>+1</sup>  
Zenkou YOSHIDA<sup>+2</sup>, Yasufumi SUZUKI<sup>+1</sup>, Teruo FURUTA<sup>+3</sup>  
Tatsuzo TONE<sup>+4</sup>, Kazuaki OHTA\*, Kenji NISHIMURA\*  
and Shinichi HASEGAWA\*

Department of Fuel Cycle Safety Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 1, 1993)

Plutonium is needed to be recycled in the future fuel cycle to establish the stable electricity supply system. Technology for isolation of TRU elements is required to reduce the long-term toxicity of radioactive waste in the backend of Pu recycle fuel cycle. Advanced LWR Technology Development Program Team in JAERI has proposed an "Integrated Test Facility for the Future LWR Technology" in order to conduct research and development works for the future fuel cycle. A concept of backend

---

S. Fujine, Y. Suzuki, T. Furuta and T. Tone has been the members of Advanced LWR Technology Development Program Team until 31 March 1993.

+1 Department of Fuel Research

+2 Frontier Fundamental Research Center

+3 Department of Reactor Safety Research

+4 Department of Reactor Engineering

\* Mitsubishi Materials Corporation

technology R & D facility is studied as a part of the "Integrated Test Facility for the Future LWR Technology". The facility is planned to perform R & D of reprocessing and the other associated activities, mainly on MOX fuel of high plutonium enrichment for very high burnup and minor actinide-bearing fuels.

Keywords; Reprocessing, Partitioning, MOX Fuel, TRU, Fuel Cycle,  
High Burnup, Backend of Fuel Cycle

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. バックエンド技術の現状と展望 .....	2
2.1 再処理技術 .....	2
2.2 群分離技術 .....	32
2.3 金属燃料再処理技術 .....	42
3. バックエンド試験施設 .....	51
3.1 試験施設の目的 .....	51
3.2 基本設計条件 .....	52
3.3 施設概念 .....	55
3.4 分離プロセスのフローダイアグラム .....	64
3.5 物質収支 .....	77
3.6 技術的課題 .....	81
4. まとめ .....	83
謝 辞 .....	83
参考文献 .....	84

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Present Status and Perspective of Backend Technology	
Development .....	2
2.1 Improved Purex Technology .....	2
2.2 Partitioning Technology .....	32
2.3 Metallic Fuel Reprocessing Technology .....	42
3. R & D Facility Concept of Backend Technology for TRU Recycle in the Future Fuel Cycle System .....	51
3.1 Purpose of the R & D Facility .....	51
3.2 Basic Design Condition .....	52
3.3 Facility Concept .....	55
3.4 Flow Diagram of Separation Process .....	64
3.5 Material Balance .....	77
3.6 Engineering Subject for the Facility Construction .....	81
4. Ending Remarks .....	83
Acknowledgements .....	83
References .....	84

## 1. はじめに

原研の「軽水炉将来技術開発計画特別チーム」は、軽水炉時代の長期化を想定した燃料サイクルシステムを検討し、超高燃焼軽水炉、高転換炉などを導入してプルトニウムの有効利用を図る概念を提案した。そして、試験炉概念の検討、燃料試験施設概念の検討などが行われた。本報告は、これらに関連するバックエンド試験施設の概念を検討した結果について報告するものである。

将来型燃料サイクルのバックエンドとしては、再処理と群分離を統合したプロセスを構築することが提案され、現行再処理技術を改良・高度化したプロセス及び全てのTRU核種を分離回収する新プロセスなどが提案された。そして、使用済燃料を再処理し、ウラン、プルトニウムとともにTRU核種を分離回収してリサイクル利用することが想定された。このような将来型バックエンド技術の試験研究施設は、再処理、群分離、乾式処理さらに広範な廃棄物処理技術まで多種多様な技術を含む。本報告では、まず、これら関連技術の現状と展望を調査し、概念検討の基礎とした。再処理技術については、前処理技術（脱被覆、溶解）、湿式の分離精製技術、転換技術などを調査し、乾式処理については金属燃料再処理技術に限定して調査した。

次に、バックエンド試験施設概念の検討を行った。このとき、受け入れ燃料としては、放射能及びTRU核種の含有量が最も多いと考えられる超高燃焼度燃料を想定した。バックエンド試験施設のメインフローは、脱被覆、酸化-溶解-調液、ウラン回収（晶析）、無機（沈澱）分離、溶媒抽出分離、精製、転換及び乾式抽出などの工程で構成した。これらの工程はそれぞれセルに分割して収納し、各工程の要素技術について研究開発するとともに、工程の組み換えによって異なったプロセスを試験研究できるような概念とした。分離技術は、分離能力が高い溶媒抽出及びイオン交換技術を主力技術とし、高純度な製品を回収して、各種仕様のリサイクル燃料製造に供することとした。また、新規の抽出剤、レーザー、乾式技術など多彩な技術を適用できるように配慮した。

これによって将来のバックエンド技術として想定する再処理群分離統合プロセスについて、図1.1のように他の燃料関連施設と連携して、プルトニウム及びTRUのリサイクル試験研究を行い、将来のバックエンドシナリオ選定の判断材料となるべき基礎データを取得する計画とした。

## 2. バックエンド技術の現状と展望

### 2.1 再処理技術

#### 2.1.1 前処理技術

使用済燃料の前処理には、剪断・脱被覆、溶解、清澄、調液の工程が含まれる。このうち、ここでは、剪断・脱被覆及び溶解に関する技術を述べる。

##### (1) 剪断・脱被覆

燃料要素の剪断・脱被覆技術としては、ピン剪断法、カッターカット開法、レーザー切開法、ジェット切開法、変形拡管排出法などが研究開発されている。

###### ① ピン剪断法

この方法は、最も簡単な燃料棒剪断方法であり、既に、集合体の剪断法として、実プラントでの多くの実績がある（図2.1.1）。集合体の剪断においては、支持格子の剪断が問題となっているが、燃料要素のみを剪断するピン剪断においては特に問題は認められない。

###### ② カッターカット開法

この方法は、被覆管のみを剪断して脱被覆させるもので、燃料ミートの剪断を行わないためにカッター歯に掛かる負担は減少する。したがって、処理速度の増大、耐久性の向上、保守性の向上が期待できるものと予想される。図2.1.2に示すように燃料棒の両端を剪除した後に切削工具により被覆管の縦方向に切り込みを入れ、燃料ペレットを含む全長にわたって切り裂き、内部の燃料を取り出す。しかしながら、切開に伴う切削粉の発生は避けられず、切削粉による火災など安全性に関する検討が必要と考えられる。

###### ③ レーザー切開・剪断法

レーザーを利用した切開法及び剪断法は、切削粉の発生がなく、レーザー装置をセル外に置いて遠隔で操作が可能である。図2.1.3に示すように集合体の剪断に応用されている。レーザー出力を制御して、被覆管のみを切開することも可能である。

###### ④ ジェット切開法

ジェットによる方法としては、水を用いたウォータージェット法、ケイ砂等を添加したアブレシブジェット法などがある。ウォータージェット法は、水を2000～4000気圧に昇圧して、0.2～0.5 mm径のノズル口から毎分5～10 l噴射し、その運動エネルギーによつて剪断するもので、鉄筋コンクリートなどの解体等に多く用いられている。アブレシブジェット法では、ウォータージェット法の水中にケイ砂などの硬性慣性物質を添加させて剪断速度を速くさせる。ウォータージェット法では、剪断による切削粉の発生が少ないなどの特徴があるが、水の使用量が多く、放射性物質を含んだ液滴が噴霧状態でセル内に充満する恐れがあり、また放射性の液体廃棄物が多く発生すると予想される。

###### ⑤ 変形拡管排出法

この方法は、燃料ピンを図2.1.4に示すような芯の付いたロール上を移動させるこ

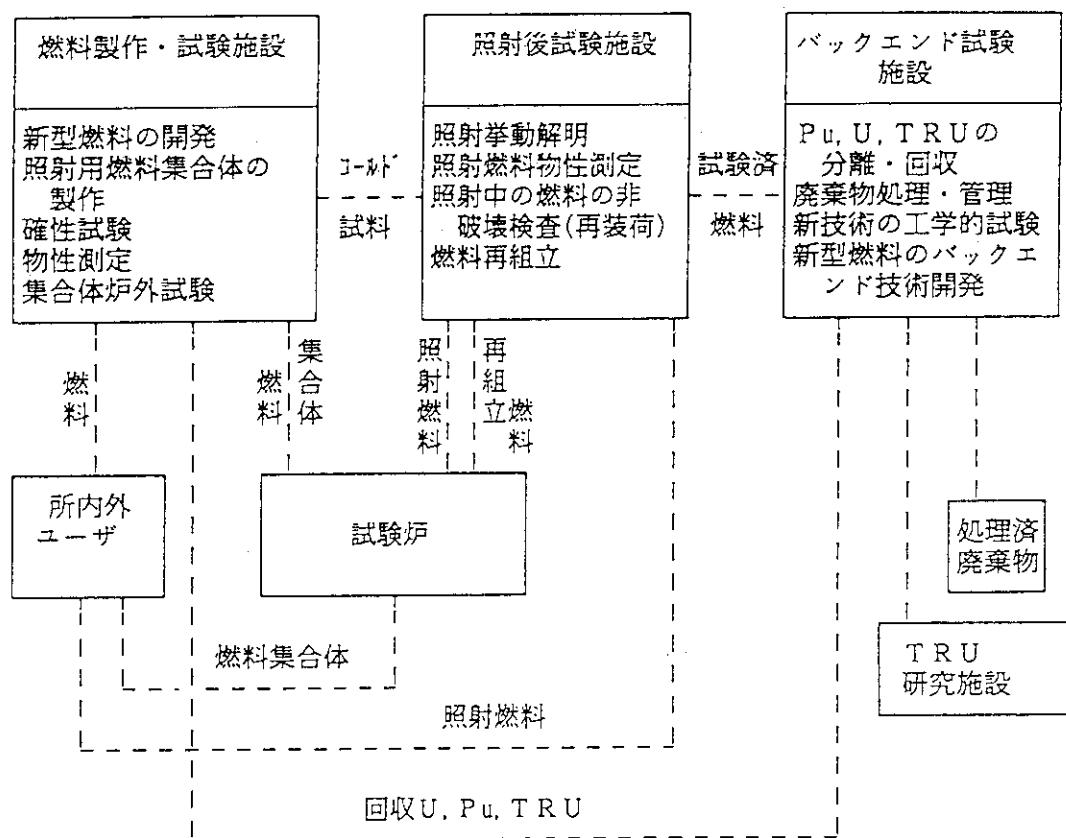


図 1.1 軽水炉将来技術開発計画特別チームが構想した燃料関連試験施設

とにより燃料ピン形状を変形させて機械的に燃料を粉碎させるものであり、粉碎された燃料は変形後燃料ピンの両端を切断して回収することが考えられている。この方法では、燃料が細粒化されているために、溶解性が向上することが期待されている。

## (2) 溶解

燃料溶解法は、後続するプロセスに大きな影響を及ぼす。高燃焼度燃料の溶解性を高めるためには、使用済燃料を前処理することが検討されている。

その一つは、二酸化ウランを空気中で酸化処理し、八酸化三ウランの微細な粉末にすることである。この方法では、これによって揮発性の<sup>3</sup>H、I、Xe、Kr等の大部分を除去することができ、溶解工程以降のプロセスにおいてこれらの核種による汚染の低下を図ることが可能となる。

もう一つは、酸化物をアルカリ、アルカリ土類金属と反応させることによりウラン酸塩、あるいはプルトニウム酸塩を形成させ、溶解させるものである。この塩を形成させることによって、酸化物は微細化し同時に揮発性の核分裂生成物を効果的に除去することが可能となるとしている。

### ① 酸化物の溶解

高燃焼度燃料の溶解性に関するデータは基本的に乏しい。40Gwd/t 以下の燃焼度では、燃料の溶解性は、燃焼度とともに増加することが知られている。一方、不溶性残渣は、燃焼度の上昇とともに増加する。酸化物の溶解液には、実験室規模での試験を含めると硝酸、塩酸、フッ酸、硫酸、リン酸などが利用されたが、硝酸による溶解が最も代表的で、実績も多い。また、Ag<sup>2+</sup>酸化触媒による電解法による溶解技術が研究されている。

### ② 窒化物の溶解

ウラン、プルトニウムの窒化物は、酸化物、炭化物と同じく硝酸によって溶解され得る。その速度は酸化物の場合より速いと報告されている。しかしながら、窒化物の直接溶解では、窒素酸化物ガスの発生に加えて、全窒素量の10~20%がアンモニウムイオンとして溶解液中に存在することも報告されている。また、燃料の不純物分析などを行う場合に、燃料を完全に溶解させるためには、表2.1.1のような酸化処理と強酸による溶解が行われている。

## 2. 1. 2 分離精製技術

現在再処理工場においてウラン及びプルトニウムの分離・精製に用いられている方法は、PUREX法と呼ばれる溶媒抽出法である。この方法は、ウラン、プルトニウム、核分裂生成物をほぼ完全に分離できる、抽出剤TBPが化学的に安定している等、優れた利点を有するため、商業規模の再処理プロセスでは例外なく採用されている。しかし、核燃料サイクルの確立のため、ウラン、プルトニウムのより選択的かつ簡便な分離、有用元素の回収、放射性廃棄物の合理的な処理・処分とその発生量の抑制、再処理に係わる信頼性・安全性・経済性の向上を目的として、現在も様々な再処理技術の開発が行われて

いる。

ここでは、先ず現行の湿式再処理プロセスのフローシートの改良について、次に抽出装置の改良と開発について、最後にバックエンドの分野で利用される湿式の分離・精製法について、その現状と展望を述べる。

### (1) 再処理フローシートの改良

工程の簡素化、放射性廃棄物の管理及び有用元素の回収等の観点から、主にPUREX法のフローシートの改良が提案されている。

#### a) 抽出サイクルの簡素化

現在の再処理プロセスは、ウラン、プルトニウムの高収率・高純度を狙うとともに、厳しい安全基準を満たすため複雑かつ不経済になり、5回程度の抽出・逆抽出サイクルが必要になる（図2.1.5参照）。これに対し、より経済性の優れた簡略化されたプロセスが提案されている。代表的なものはドイツで開発されたIMPUREX (IMproved PUREX)であり、抽出工程を1回のサイクルで処理する。そのフローシートを図2.1.6に示す。

#### b) 晶析法のウラン及びプルトニウム精製への適用

晶析とは溶液中の溶質が飽和に達し、結晶固体となる現象のことで、この際溶質が精製される。ウラン及びプルトニウム精製工程へ適用するには、溶液の濃度・温度をコントロールすることにより行う。この方法の特徴は、抽出剤を使用しないこと、工程の簡略化・設備のコンパクト化、経済性の向上等があげられる。单一サイクルに晶析工程を加えたプロセス（図2.1.7参照）の確立がドイツで検討されている。日本でも、晶析技術を精製工程へ適用する試みがなされている。

#### c) マイナーアクチソイド及び有用元素の回収

ネプツニウム及びテクネチウム、ルテニウム等白金族元素の回収を目的としたフローシートの改良が、主に再処理・群分離プロセルの統合という観点で行われている。このうち、テクネチウムは、ヒドラジン（分配工程でU(IV)の安定剤として使用）を分解する触媒作用があるため、その回収は工程管理上からも注目されている。これらの元素は複数の原子価で溶存し、従ってその抽出挙動も複雑である。定量的に回収するには極めて高度かつ微妙な分離技術を要する。これは上記の工程の簡素化の方向とは相反するものであるが、放射性廃棄物の合理的管理及び低減化並びに有用元素の回収を考えるならば、将来はより重要となろう。

#### d) 還元法の改良

分配工程においては、プルトニウムを逆抽出され易いように、Pu(IV)をPu(III)に還元

する。この場合、廃棄物の発生しない還元方法が開発されてきた。最近は、硝酸ウラナスを用いる方法が一般的であるが、固体廃棄物が発生しない塩フリーである硝酸ヒドロキシルアミン (HAN) の使用、電解還元、光化学的還元による方法も検討されている。特に、電解還元は抽出器の改良と組合せて実用化が期待されている。

なお、電気化学的な方法は、プルトニウム、ネプツニウムをはじめ全ての元素の微妙な原子価調整が可能で、工程の管理が容易である。さらに、難溶性燃料の溶解、白金族元素の電着回収等も可能であるので、これら電気化学的な技術を総合的に利用した再処理プロセス (SREEP) が提案されている (図 2.1.8 参照)。

その他、Pu(IV)をPu(III)に還元することなく分配する方法として、硝酸及びTBP濃度並びに温度をコントロールする方法、低温領域で有機相中のウラン負荷度を増大することによりPu(IV)の分配比を低下させ分配する方法等が考案されている。

#### d) TBP以外の抽出剤によるウラン及びプルトニウムの抽出プロセス

TBPを用いるウラン及びプルトニウムの再処理法が、現在最も優れており実績もあることはすでに述べた通りであるが、最大の欠点はその廃溶媒の処理処分法が困難であることである。TBPを含む有機リン化合物系抽出剤は、すべてその分解過程でリン酸を生じるため、リン化合物系以外の抽出剤を用いるプロセスの開発が期待されている。例えば、アミド系抽出剤は、完全に焼却することができ、廃棄物量の減容が可能である。図 2.1.9 にアミド系抽出剤 DOHA を用いたフローシートを示す。

### (2) 抽出装置の改良

有効分離段数、分離時間、処理量等の分離性能のみならず、保守のしやすさ、安全性の確保も、抽出装置の種類（構造・大きさ等）に決定的に依存するので、その開発は重要である。現在、再処理工程で実用化されている主な抽出装置は、ミキサセトラとパルスカラムであり、特に後者の改良が行われている。また、燃料の高燃焼度化に備え、液体の接触時間を短縮して溶媒劣化を低減した遠心抽出器の開発研究も、実用化を目指しかなり進んでいる。

#### a) ミキサセトラ

水相と有機相を混合するミキサ部と相分離を行うセトラ部からなり、構造が単純で保守も比較的容易である。しかし、ホールドアップ量が大きく、抽出剤の劣化を受けやすい。また、水相と有機相の界面にクラッドが発生し、運転管理上の問題点もある。装置を大型化するには、臨界安全上の制限がある。

最近の主な改良点として、装置本体に電極を装着するミキサセトラが考案された。この装置では、還元剤を用いずに電解還元法によりPu(IV)をPu(III)に還元することができる。その概念を図 2.1.10 に示す。

ミキサセトラは、技術的にはほぼ確立された装置であり、現在最も一般的に使用されているが、将来の高速炉燃料及び高燃焼度燃料の再処理には適当ではない。そのため、抽出装置本体の積極的改良はほとんど行われていない。

#### b) パルスカラム

円筒型カラムの上部より重い水相を、下部より軽い有機相を供給し、向流接触させることにより2相間で物質移動を連続的に行う抽出である。向流接触時の抽出効率を上げるため装置内に脈動を加えるため、パルスカラムと呼ばれる。ミキサセトラと比べ、処理容量が多い、クラッドの発生が少ない、液液の接触時間が少ない、稼働部が少ない等の利点を有し、最近では大型再処理工場の抽出装置として採用されている。我が国でも、六ヶ所再処理工場では、円環型パルスカラムの使用が予定されている。

ミキサセトラと同様に、パルスカラムに直接電極を装着すれば、電解還元法によりプルトニウムを還元することができる（図2.1.1-1参照）。この場合、装置自体の電気化学的な腐食の問題が残されている。臨界安全性の観点から、中性子毒物（ホウ素、ハフニウム）を使用したパルスカラムも考案され、装置の大型化への試みも検討されている。通常のパルスカラムは、縦型で長すぎるため（通常10 m以上）、最近では横型（水平型）にする装置が報告されている（図2.1.1-2参照）。また、回転円筒型抽出装置が提案されている（図2.1.1-3参照）。これは、二重円筒の内搭が回転することにより円環部の液液混合が達成できる装置である。

#### c) 遠心抽出器

回転体の中で混合と遠心力による相分離を行う抽出装置である。抽出及び相分離の時間が短縮されるため、抽出剤の劣化が極力防止できる。パルスカラムと比較して設備が小さいわりに処理量を多くとれるので経済的である。しかし、構造が複雑であり、直接保守が困難である。今まで提案されている遠心抽出器の形式は、回転軸が水平なものと垂直なもの、段構造が単段式と多段式のものがある。1例として、10段式の遠心抽出器を図2.1.1-4に示す。商業規模のプラントでの実績はほとんどないが、高燃焼度燃料の再処理においては、共除染工程での実用化が期待される。

### （3）分離精製手法の開発

バックエンドの分野で実用化されている、あるいは適用可能な温式法による分離・精製技術を対象に、その原理、特徴、適用性等について以下に簡単にまとめた。詳細は、表2.1.2(1)～表2.1.2(6)を参照されたい。

#### a) 溶媒抽出法

有機相と水相中の目的成分の分配性の差を利用して、選択的に分離・精製する方法で

ある。有機相に使用される抽出剤の代表的なものには、リン化合物系、アミド系、サルファイド系などがあり、また新しくは大環状分子（クラウンエーテル）や超臨界流体を利用したものなどが挙げられる。分離の特徴としては、選択性に優れ、分離、高純度化が可能であること、抽出能力が高く、成分の濃縮ができること、比較的低温での操作であることなどが挙げられる。

再処理プロセスでは、TBP抽出剤を用いてウラン及びプルトニウムの分離・精製を行っているが、他のマイナーアクチノイドや他の有用元素の回収を目的に、より機能的な抽出剤が開発されている。これらについては、久保田等により詳細な調査と分類が報告されている。また、一般産業分野においても工業的規模でのコバルト、ニッケル等の製錬、希土類元素の分離・精製などにも使用されており、成熟度の高い分離・精製技術といえる。ここではウラン、プルトニウムの回収に重要なTBPを中心に、リン化合物系抽出剤についてのみ述べる。

TBPは単座配位中性有機リン化合物抽出剤の一つであり、IV価及びVI価の元素に対して大きな抽出能力を持つ。また、他の抽出試薬を混合させることによる新しい抽出効果（協同効果）の開発のためのベース溶媒ともなっている。TBP抽出剤は、PUREX法による再処理において共除染、精製において使用されかなりの実績を持っており、ウラン、プルトニウムの回収率は、99.9%以上、核分裂生成物に対する除染係数は $10^7$ ～ $10^8$ 程度を得ることができる。

二座配位中性有機リン化合物抽出剤には、CMP、CMPO等があり、TBPより抽出能力が高くIII価アクチノイドも抽出する。米国では、CMPOの特性を利用したマイナーアクチノイドの回収を目的とするTRUEXプロセスが開発されている。原研においても、CMPOと同等の能力を有するリン化合物系抽出剤DIDPAを中心とした群分離プロセスが開発されている。

#### b) 液体膜法

液体膜法は溶媒抽出法を基本とするもので、溶媒抽出における元素の抽出と逆抽出を同時にに行わせることを主眼に開発されたものである。基本的な構成は、原液水相／抽出有機相／逆抽出液相からなり、物質は原液側から有機相を通じて逆抽出液側へ連続的に抽出される。この方法の代表的なものとしては、内部水相を包含した分散有機相と外部水相から構成されるエマルジョン（乳化）型、疎水性多孔質膜に有機相を含浸させた支持型がある。

この方法は、抽出・逆抽出を同時に行わせることができることの理由から、工程の簡素化が期待できる。また、濃度勾配に逆らった能動輸送現象が利用できるために、希薄溶液からの元素の濃縮などが可能である。一方、支持膜の耐放射線性、有機相の保持性（含浸液流出）などの改良の余地が残されている。

1970年代の半ばから実用化を目指して研究が進められ、最近工業的な利用が検討され

ている。原子力の分野においても、鉱石からのウラン抽出、硝酸溶液からのマイナーアクチノイド等の回収に関する試験的報告がなされている。

#### c) クロマトグラフィー

クロマトグラフィーは、固体又は液体を固定相とし、その一端から試料混合物を適当な展開剤で移動させ、各成分の吸着性や分配性の差による固定相内の移動速度の差を利用して元素を分離する方法である。通常、極めて大きな分離段数を有するため、化学的性質の類似した多元素の相互分離が可能となる。この方法の代表的なものとしては、分析手法として広く使われているイオンクロマトグラフィー、高速液体クロマトグラフィーが、また分離・分取の方法として使用されている抽出剤含浸クロマトグラフィー、液-液抽出クロマトグラフィー、さらに最近分析手法として検討されはじめた超臨界抽出クロマトグラフィー等が挙げられる。

基本的にバッチ操作であるが、連続操作型にすることも可能である。この手法は、特に分析の分野で発展し、微量分析に適し、今や分析手法として欠くことのできないものとなっている。抽出剤含浸及び液-液抽出クロマトグラフィーにおいては、抽出剤を適当に選定できるので、溶媒抽出に匹敵する多様な元素分離が可能である。

分析の分野では欠くことのできない手法となっており、現在、その用途は分析手段ばかりでなく、高純度元素の回収手段としても実用化されている。原子力の分野においては、ロッキーフラットにおいて含浸クロマトグラフィーで100 gのアメリシウムが回収された実績がある。

#### d) 吸着法

吸着物質表面に物理的に吸着、あるいは化学的に吸着物質の表面物質と置換させるイオン交換現象により、選択的に元素を分離する方法である。代表的なものとしては、有機イオン交換体、無機イオン交換体、キレート樹脂を使用した化学吸着法、物理吸着法が挙げられる。溶離液によって、比較的容易に樹脂から分離するために、原液から元素の回収と濃縮が可能である。

化学的な吸着の場合には吸着の選択性と、溶離液の種類による溶離性を利用して選択的な分離ができるために、多種の元素が吸着した場合も分離回収することが可能である。この代表例としては、先に挙げたクロマトグラフィー法がある。なお、有機イオン交換体を使用する場合、高放射線下では樹脂の劣化にともなう性能劣化に注意を要する。

イオン交換法は、工業的に最も普及している方法であり、現在でも希土類元素の相互分離等に使用されている。原子力の分野でも、炉水の浄化に使用され、最近では高レベル廃液からの希土類元素等の回収法として検討されている。陽イオン交換樹脂を用いて、高レベル廃液からアメリシウム、キュリウムを回収した報告がある。一方、陰イオン交換樹脂を利用した例では、プルトニウムからネプツニウムの分離、有機溶媒を溶離液と

した超プルトニウム元素の相互分離等がある。

#### e) 沈澱法（晶析法）

溶液中に特定の添加剤を加え化合物をつくることにより、元素の溶解度を低下させ結晶として析出させる反応晶析や、液の温度等環境条件を変化させることにより元素の溶解度を低下させ析出させるものなどが挙げられる。前者の代表的な例としては、シュウ酸、ギ酸等を用いて高レベル廃液中のマイナーアクチノイドの分離が、また後者の代表的な例としてはウランの晶析による回収、あるいは精製などがある。

晶析技術は、結晶とその表面がもつ物理化学的性質に着目して、新しい機能を発掘する手段として多くの期待が集められている。最近では、超伝導材料粉末、高温強度材料、機能性材料の製造に応用されている。また、原子力分野では古くからマイナーアクチノイド等の回収に晶析反応を基本とした開発が進んでおり、実高レベル廃液を利用した実績もあることから有望な技術の一つと考えられている。フローシートの改良で述べたように、晶析技術は再処理プロセスのウラン、プルトニウムの精製工程に適用する試みがなされている。

#### f) その他の方法

以上述べた手法以外には、電気的分離法、磁気的分離法、レーザ技術の応用、微生物の利用などが挙げられる。

電気的分離法には、電場をかけることによりそのイオン形態に従って移動する現象を利用した電気泳動法、電気ポテンシャルによって膜を通してイオンを移動させる電気透析法がある。また、電気的手法としてその範囲を拡大すれば、液分散への応用、液の攪拌・混合への応用、相分離への応用、電解還元、電解酸化など、これまで示してきた分離、抽出技術の補助的操作としての利用法もある。パイロット規模のものがあるが、大部分は電気泳動法、電気透析法とも実験室規模で実施されている。

磁気的分離法には、磁性を帯びた物質への取り込みが、非磁性物質への取り込みに比較して大きいことを使用したもので、溶液中で磁性物質（鉄）と共に沈させ回収するもの（フェライト化法）や、核種のもつ磁性率を利用して磁場中を移動させる高勾配磁気分離法などがある。フェライト化法は、廃液からのプルトニウム、アメリシウムの回収などについて実験室規模でその効果が確認されており、通常の凝集沈澱に比較して大幅な廃棄物発生量の低減が可能である。一方、高勾配磁気分離法については、高磁場保持技術の進歩により常磁性まで適応可能となったことから、特にウラン系廃棄物に対して試験が行われている。

その他、レーザを利用した溶媒抽出等への補助技術、微生物を利用した廃液の処理などがある。前者は、光反応により原子価を抽出に適合した形態に調整する技術として比較的詳細に検討されている。一方、後者の利用法としては、バクテリアリーチングを基

本とした利用法が主要部分を占めており、非鉄金属分野では鉱石からの金属の浸出、排水処理に実用化されている。原子力の分野においても、鉱石からのウランの浸出による回収の実績がある。

### 2.1.3 転換技術

バックエンド試験施設では、転換工程へ流れてくる核燃料物質としては、溶液と金属が考えられる。金属は、そのまま酸化処理すること、あるいは溶解することにより溶液とすることが可能である。従って、ここでは溶液の転換技術について記述する。転換技術は、表2.1.3.に示すように脱硝と培焼・還元とから成る。

#### (1) 脱硝

主な脱硝技術として、沈澱脱硝法、マイクロ波脱硝法、流動層脱硝法などがある。

##### ① 沈澱脱硝法

この方法は、シュウ酸、アンモニア、その他の沈澱形成剤を添加することにより、核燃料物質を沈澱させ硝酸溶液から分離させる。プルトニウム、ウランの混合溶液及びアメリシウム溶液についてのシュウ酸による沈澱物の形成が行われている。この沈澱物は、焙焼されて酸化物となる。この方法は回分式操作であるが、沈澱を形成させる沈澱反応槽、ろ過器によって溶液中の物質を回収するために比較的簡単なプロセスとなる。反面、沈澱剤を添加することによる廃液の増加を伴う。

##### ② マイクロ波脱硝法

マイクロ波加熱により、溶液を加熱、蒸発濃縮させ、硝酸化合物を分解し、酸化させる。マイクロ波加熱による脱硝効率を上げるために、溶液をある程度濃縮させておくことが効率的である。この方法は回分操作であり、マイクロ波装置で脱硝する。脱硝によってNO<sub>x</sub>ガスが発生するために、酸回収、オフガス吸収の設備が必要となる。

##### ③ 流動層脱硝法

流動層に溶液を供給し、熱分解させる。この方法では、流動層形成媒体（シード）として、熱分解物と同じ物質を使用するために、常にシードを確保しておく必要がある。これは、連続操作によって行うことが可能で、処理能力も大きくとることができる。前処理として適切な濃度まで蒸発濃縮せることが必要であり、脱硝によってNO<sub>x</sub>が発生するために、酸回収、オフガス吸収の設備が必要となる。また、流動層を形成させるための空気系なども必要となり、沈澱法等に比較するとシステムは複雑となる。

(2) 培焼・還元

培焼・還元は、脱硝した燃料物質を燃料加工に適した形態にするために行う。主な培焼還元技術として、電気炉型培焼還元法、キルン型培焼還元法などがある。

① 電気炉型培焼還元法

基本的にバッチ操作にて行われる。装置は比較的コンパクトにすることが可能である。

② キルン型培焼還元法

基本的に連続操作にて行われる。装置は、駆動部を有するために上記のものに比較すると複雑となる。

表 2.1.1 窒化物燃料の溶解に関する諸条件

処理方法	溶解液or 雰囲気	溶解試料 性状	反応温度	溶解概要、結果
酸化	酸素	粉体	200 ~ 700°C	200 °Cから緩やかな酸化が始まり、U <sub>2</sub> N <sub>3</sub> , UO <sub>2</sub> の結晶が形成され、250 °CでUO <sub>3</sub> が生成され、400 °CでU <sub>3</sub> O <sub>8</sub> に転換し始め、700 °Cでほぼ全てのNが除去され酸化される。
酸化	酸素	粉体	室温	始めに急激な酸化が生じ、粒子表面に酸化膜が形成されるとその後は緩やかな反応となる2段階の酸化反応を示した。
酸化	酸素 50~760 torr	粉体	230 ~ 270°C	酸化終了時点における形態は非晶質でU <sub>0.3</sub> -N <sub>0.2-0.4</sub> であった。
酸化	真空	粉体	800 ~ 1800°C	窒化物燃料中の溶存酸素による酸化反応性は、1200°C以上から段階的に生じる。
酸化	空気中	粉体	室温~ 500°C 熱天秤	300 °C以下から緩やかな反応が起こり、発火によって急激に反応が進行する。最終的に、UO <sub>x</sub> からU <sub>3</sub> O <sub>8</sub> になる。
溶解	溶解液は 結果欄	粉体 製造法の 異なる5 種類のUN	加熱 温度不明	HCl+HF+C, H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> +HClO <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> +CuSeO <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> +H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> , strong-phosphoric-acid, H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> +strong phosphoric acid, H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> +H <sub>2</sub> SeO <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> +SeOCl <sub>2</sub> について行っているが、あらゆる製造条件のUNを溶解可能であったのは、strong-phosphoric-acid, H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> +strong-phosphoric-acidであった。
溶解	H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	粉体	加熱 温度不明	1g/50ml 比で混合し、水分が無くなるまで加熱し、更に液体となるまでの加熱する。液体となったら冷却し、水とH <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> を加える。
溶解	Sn(II)- H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	粉体	加熱 温度不明	0.1gUN, 1.5g SnCl <sub>2</sub> -2H <sub>2</sub> O, 10ml H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> を加え加熱し、水を蒸発させ、発煙しなくなるまで継続する。加熱を止め冷えたら15mlの水を加える

技術精製離分(2.1.2)

表 2.1.2 分離精製技術(つづき)

要 素 技 術	試 薬 等 形 態 等	分離対象又は方法	基 本 プ ロ セ ス	長 所・短 所	実 様 (場 所)
溶媒抽出法 (酸性有機リシン化物)	① diisodecylphosphoric acid ② 0.5M DIPA in 0.1M TBP + dodecane ③ chemical form: $\begin{array}{c} > \text{P} \quad 0 \\   \\ \text{i-C}_1\text{H}_1 \quad \text{i-C}_1\text{H}_1 \end{array}$ i-C <sub>1</sub> H <sub>1</sub> : mixture of methyl (nooyl)	70% i-BuLi: カルバメートの一括抽出 Am. Cr., No. Pu, R.E., U Am. Cr., R.E. / No. Pu, U	DIPAによるTRU-1番抽出プロセス • 4M硝酸によるAm. Cr., R.E.の逆抽出 • シュウ酸によるNo. Pu の逆抽出 • リン酸によるNo. Pu の逆抽出 (検討中)	0.5M濃度の硝酸溶液からAm. Cr を抽出することができる可能で、水への溶解度の低く、抽出操作に優れている。	実験室規模で実験を実施した試験を実施し、回収率に加えてCFR99.9%以上、Am. Cr 99.9%以上を得ている。 日本原子力研究所
D E H P A (酸性有機リシン化物)	① di(2-ethylhexyl)phosphoric acid ② 0.3M DEPA in 0.2M TBP + dodecane ③ chemical form: $\begin{array}{c} > \text{P} \quad 0 \\   \\ \text{C} \cdot \text{C} \quad \text{C} \cdot \text{C} \end{array}$ C = C = :CH <sub>2</sub> (CH <sub>2</sub> ) <sub>n</sub> -CH-CH <sub>2</sub> C <sub>1</sub> H <sub>1</sub>	TRUとlnの相互分離 • TAL-SPEAKプロセス • reverse TAL-SPEAK プロセス	① TAL-SPEAKプロセス • H <sub>2</sub> Nの脱脂、ろ過、TBPによるNo. Pu 抽出 • 5% 溶解度調整 • TBPによるln, TRU抽出 • ln, TRUのCEPAによる相互分離 ② reverse TAL-SPEAK プロセス • H <sub>2</sub> Nの脱脂、シュウ酸による脱脂、沈殿形成 • ジカルボン酸による再溶解 • DEPAによるNo. Pu の抽出 • TRUのDIPAグリコール酸による逆抽出 • 5M硝酸によるlnの逆抽出	バッチ式の向流操作は実験を実施し、プロセスフローを検討している。 EC イスラ研究所 古くは、アメリカ ORNL	摩耗嫌 溶媒再生液など
T R P O (混合有機リシン化合物、石油精製副産物)	① trialkyl phosphine oxide ② 30 %TPO in kerosene ③ chemical form:	粗油のln, TRUの抽出 TRU, R.E. Am. Cr., R.E. / No. Pu	TBPプロセス • H <sub>2</sub> Nを1~1.5M 添加後に脱脂、ろ過 • TBPによるTRU, R.E.の抽出 • 5%硝酸によるAm. Cr., R.E.の逆抽出 • シュウ酸によるNo. Pu の逆抽出 • 5%の炭酸ソーダによるlnの逆抽出	安価で、軽油燃焼性に優れる。アクチノイドの抽出に優れている。	分配係数の測定を実施している。 中国
Alanine (オクチルデシルアミン混合物)	① hydrogen chloride salt of Alanine 33% mixture of octyl and decyl tertiary amine ② 0.6M Alanine33% in diethylbenzene ③ chemical form:	粗油のlnとアカババの相互分離 (TRAMEX法)	TRAMEXプロセス • 1N LiCl弱酸性存在下での抽出 • 5%硝酸によるアカババの逆抽出	耐放射線性に優れ、分解物による分離への影響は小さい。	実験室規模で実験を実施している。 アメリカ ORNL
(ジアミド化合物 : TAAD)	① tetra[alkyl-n-alkyl]propane diamide ② 0.5M TAAD in t-butylbenzene ③ chemical form:	アカババ、アカババの一括分離 $\begin{array}{c} > \text{N}-\text{C}-\text{CH}_2-\text{C}-\text{N} \quad \begin{array}{c} \text{R} \\   \\ \text{R} \end{array} \\   \quad   \\ \text{R} \quad \text{R} \end{array}$ R:CH <sub>3</sub> , R':C <sub>1</sub> H <sub>1</sub> ,	TAADによるTRU-1番抽出 • 2M硝酸によるTRU-1番抽出 • 0.5Mシュウ酸によるln抽出	TBU 元素に対する抽出能力があり、製造は比較的容易、また耐放射線性もTBPと同程度である。また、溶媒選択可能である。 TBUの抽出性能は、TBU プロセスと同等の分離性能が得られる。	ベンチスケール試験にて分離性能を評価している。 スランズ ガバメント研究所

表 2.1.2 (3) 分離精製技術 (つづき)

要 素 技 術	試 薬 又は名 称	試 薬 等 形 態 等	分離対象又は方法	基 本 プ ロ セ ス	最 所 ・ 短 所	実 様 (場 所)	施 設 物 な ど
溶 漢 抽 出	Primene.M-T (1級アミン) ① 0.5M Primene.M-T in NPH ② chemical form: $C_6H_5-(C_6H_4)_4-NH_2$	Tc の分離 (TREXの逆抽出液) (Purexランプル)	Primene.M-T ↓ 抽出 U ↓ 洗浄 ↓ 逆抽出 ↓ 0.25M洗浄アセトニトリル ↓ 落塩洗浄 ↓ Tc	TREX逆抽出液(炭酸- $\beta$ -沸騰水) 0.05M酢酸 ↓ 又は、Purexランプル溶液(pH1~2)		概念のみ PNL他	廃液など
	TPTZ + HDNNS 5-triazine (サルファイド系)	① TPTZ:tris(2,4,6-(2-pyridyl))1,3, 5-triazine HDNNS:dimonylnaphthalene sulfonic acid ② TPTZ + HDNNS in chloroform (0.05M TPTZ + 0.03M HDNNS in CCl <sub>4</sub> ) ③ chemical form:	ジタリカルバチルの相互 分離 ↓ 0.125M酢酸 + 0.003M TPTZ ↓ 0.05M TPTZ + 0.03M HDNNS in CCl <sub>4</sub> ↓ 抽出 ↓ AcS ↓ Lns	Lns. AcS in 0.125M酢酸 + 0.003M TPTZ ↓ 0.05M TPTZ + 0.03M HDNNS in CCl <sub>4</sub> ↓ 抽出 ↓ AcS ↓ Lns		実験室規模の計 性を行ってい る。 フランス ナショナル研究 所	廃液など
	Crown XI (大環状系-7)	① bis(4,4'(S')-1-hydroxy-heptyl)cycl o[4,4'-crown-7] ② 0.02M Crown + 27%TBP + 5%DMS + 68%Kerosene ③ chemical form:	7%が、7%が土壌の選択 ↓ 85%が	耐溶剤性、逆抽出性 に關して不明。	模擬溶液を使用 した実験室試験 を実施。 アメリカ ORNL		
液 体 順 法	エマルジョン型		リン酸中ウランの回収			バイロット規模	
						解乳化操作が比較的困 難で、技術的改良の余 地が多い。溶液抽出法 に比較して溶媒の選用 量が少ない。比較的低 濃度溶液からの回収に 適している。	
支 持 型		① 二重液体膜 ② 第一液体膜: 0.25M CHPO + 0.75M TBP in decalin ③ 第二液体膜: 4M Primene.M-T in decalin ④ 材質:多孔質ポリプロピレン	再処理廃液からのラジカ リ、カドバイトの分離 ↓ 第一液体膜 ↓ 第二液体膜 ↓ 材質:多孔質ポリプロピレン	・第一液体膜によるラジカリ、カドバイトの抽出 ・1M酢酸 + 0.05M HAFによるラジカド、カニバイトの逆抽出 ・第二液体膜による硝酸の逆抽出 ・4M NaOHによる硝酸の逆抽出 ・0.01M HClによるEu <sup>3+</sup> の逆抽出	・第一液体膜によるEu <sup>3+</sup> (in 0.01M 酢酸) の抽出 ・0.25M酢酸 + 3.0M 酢酸- $\beta$ -沸騰水によるEu <sup>3+</sup> の逆抽出 ・第二液体膜によるEu <sup>3+</sup> の抽出 ・0.01M HClによるEu <sup>3+</sup> の逆抽出	模擬溶液を使用 した実験室規模 試験を実施。 アメリカ ANL	廃液体膜、 硝酸ナトリ ウム尾液な ど
	(1) ケース1 (for Eu <sup>3+</sup> ) ① 二重液体膜 ② 第一液体膜: 0.02M HEPH in decalin ③ 第二液体膜: OPO in decalin ④ 材質:多孔質ポリプロピレン	溶波からEu Am の分 離	(1)の場合 ・第一液体膜によるEu <sup>3+</sup> (in 0.01M 酢酸) の抽出 ・0.25M酢酸 + 3.0M 酢酸- $\beta$ -沸騰水によるEu <sup>3+</sup> の逆抽出 ・第二液体膜によるAm <sup>3+</sup> の抽出 ・0.01M HClによるAm <sup>3+</sup> の逆抽出	同上	実験室規模で実 施。 アメリカ ANL	廃液体膜な ど	
	(2) ケース2 (for Am <sup>3+</sup> ) ① 二重液体膜 ② 0.25M OPO in decalin ③ 材質:多孔質ポリプロピレン		(2)の場合 ・第一液体膜によるAm <sup>3+</sup> (in 1.0M酢酸) の抽出 ・0.1M酢酸 + 3.0M 酢酸- $\beta$ -沸騰水によるAm <sup>3+</sup> の逆抽出 ・第二液体膜によるAm <sup>3+</sup> の抽出 ・1.0M酢酸によるAm <sup>3+</sup> の逆抽出 ④ 材質:同上				

表 2.1.2 (4) 分離精製技術 (つづき)

要 素 技 術	試薬又は名称	試 薬 等 形 態 等	分離対象又は方法	基 本 プ ロ セ ッ ス	長 所 ・ 短 所	実 様 (場 所)	廃棄物など
液 体 膜 法 支持型	① 一重液体膜 ② D-HCOP	溶渣からのAmの分離	・液体膜によるPu, Amの抽出 ・0.25M シュウ酸による逆抽出	葉面のコンパクト化が図られる。處理能力は比較的小小さく、支持膜の耐酸耐熱性、含浸材膜相の保持性の問題。	複数膜法が使用された実験室規模を実験室規模より大きい。 RFP	Am Pu, Al, Mg, Cu, Fe, Pbを含む溶液をカラムへ供給、吸着	廃液体膜など
クロマトグラフイー フィー	液-液抽出カラム	① 固定相有機溶媒 HOCP in dodecane ② カラム体 5 μm Zorbax-SIL	Fm の精製			Fm $\times 10^4$ 回収	廃ガラム樹脂など
抽出剤含浸型カラム	① 含浸剤：TBP ② カラム：styrene-divinylbenzene-based resin (Levextel-TBP resin)	Pu, Am の粗部分離	・25gPu/1.30gAm/1.6gMnO <sub>3</sub> のカラムへの供給 ・5M HNO <sub>3</sub> によるカラムの洗浄 ・ベッド量の3倍の0.3~0.5M HNO <sub>3</sub> によるPuの溶解	Amの除染率は350程度 出筋は比較的放射能に強い。 バッチ操作である。 ・3~5回洗浄 Am洗出液 Ion ex. column Pu溶解液	Am Pu, Al, Mg, Cu, Fe, Pbを含む溶液をカラムへ供給、吸着	混合溶液を用いた実験室規模試験を実施。 工業規模のプロセスを検討している。 ドイツ KfK	廃出液交換指
① 含浸剤：HD-EHP ② カラム：25 or 35 μm Cellite	TRP元素の分離		・Am, Cr, Cf, Es, Fm, Md を含む溶液をカラムへ供給、吸着 ・酢酸(或いは塩酸)による分別溶解	含浸剤の吸着、性能 の経時的劣化(含浸剤の溶解など)		分析測定。 100 μg オーダーの回収	廃出液など
① 合成剤：DHDECMP ② カラム：Amberlite XAD-4 resin	溶剤抽出法からFmの抽出		・Am, Pu, Al, Mg, Cu, Fe, Pbを含む溶液をカラムへ供給、吸着 ・水によってAmをカラムから溶離 (なお、前段にイオン交換カラムによるPuの分離操作がある)			バイロット規模で実施。これまでに100gのAmを回収している。 アメリカ RFP	

表 2.1.2 (5) 分離精製技術 (つづき)

要 素 技 術	試薬又は名称	試 液 等 形 態 等	分離対象又は方法	基 本 プ ロ セ ッ ス	場 所 ・ 短 所	実 機 (場 所)	廃棄物など
吸 着 法	有機イオン交換体 (イオン交換クロマトグラフィー)	強酸性陽イオン交換樹脂 Dowex 50 × 8 and AG 50 × 12	Am, Cm 相 構製液の精製 Lac, pH 3 の pH 調整 (pH 0.9) ・0.1 M HCl による供給、吸着 ・3 M HCl による洗浄 (ベット量の 2 ～ 3 倍)	・粗精製液 (0.058 Am/l, 0.0048 Cm/l, 0.05 NDTPA 1M La, pH 3) の pH 調整 (pH 0.9) ・0.1 M HCl による供給、吸着 ・3 M HCl による洗浄 (ベット量の 2 ～ 3 倍)	実験室規模の試 験室規模。 ドライ K-1	廃イオノン交 換樹脂	
	陽イオン交換樹脂 Dowex 50	H, W から Pm, Am, Cm の相 互 分離	H, W 液のイオン交換樹脂への供給、吸着 ・DTPA (20mg/l, pH 6) によるAm, Cm の段階的分離 ・NTA (20mg/l, pH 4) によるAm, Cm の段階的分離 NTA:nitrilotriacetic acid DTPA:diethylenetriaminepentaacetic acid	第一段階で効率的にEu の除去を行わないとい う点に影響する Am, Cm 分離が発生 する放射線分解が発生	13.5° の角処理 废液を処理し、 Pm 40g, Cm (244) 50g, Am 1000g 回 吸	使用済み樹 脂、废溶 液など	
	陽イオン交換樹脂 Dowex 50W-X8 resin in NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> form	Pu 錫付物質汚染液か らアカバナの分離	Pu 錫付物質汚染液に吸着させ、Am, Bk, DTPA によって選択的に 分離回収する。 AHIB: α-hydroxyisobutyric acid	照射劣化	Cm-244 3g Am-243 1.3g Cf-252 0.9g 回収 アメリカ SRL	使用済み樹 脂、废溶 液など	
	陰イオン交換樹脂 Rhône and Haas Amberlite IRA-938 (20 -50) mesh macroreticular anion resin	事務部汚液から Nd, Pu 事務部汚液から Nd, Pu	陰イオン交換樹脂にNd(VI)のみを選択的に吸着させ、Puを流 出させる。 ・Pu, Nd 混合溶液を陰イオン交換樹脂へ供給、Nd を吸着 ・SM-Nd + 0.6M 銀酸が +0.1M CeSAIによるPu洗浄 ・7.5 M HCl による不純物洗浄 ・0.3M HCl によるNd洗浄	阴离子的放射線情 報会議新出物の生成 ・N製品中のPu含有量大	63.5gを処理し 、9g, 3gのルを 回収。生産規 定を実施。 アメリカ RFP	使用済み樹 脂、废溶 液など	
	無機イオン交換体 チタン酸 (for Sr) ゼオライト (for Cs)	再処理溶液から Sr, Cs の分離	高レ-4 溶液 Sr, Ba, Fe, Cr, Ni, Cs pH 2-5 合体	高レ-4 溶液 Sr, Ba, Fe, Cr, Ni, Cs pH 2-5 合体 → 汚液	高レ-4 溶液吸着性良好だ が、沈殿の生成。 その他の種類の吸着	再処理溶液約30 リットルを選 択して実証 試験を実施。 日本原子力研究 所	交換体など
	Linde 社 AW-500, Zeolon	アルカリ溶液からCsの 分離	合成ゼオライトに溶液中のCsを吸着させ、溶媒液で分離回収 ・アルカリ溶液を交換体へ供給、吸着 ・0.7M 水酸化ナトリウム / 2M ナトリウム硫酸でCsを溶解 ・3M 水酸化ナトリウム / 2M ナトリウム硫酸でCsを溶解	pH 1 ～ 14 の範囲で使用 可能。pH 1 以下では交 換体の物理的性質が低 下する。	Purex 廃液上澄 み液からCsを選 択的に分離。11 000 mlの溶液を アーリカ Hanford	廃セオライ ト、残渣な ど	
物理吸着	活性炭	Tcの分離	・0.5M 水酸化ナトリウムによるTcの溶解 ・チオシアニ酸によるTcの溶解	再利用の場合の精道被 膜など	実験室規模で実 施されている。 日本原子力研究 所	実験室規模な ど	

表 2.1.2 (6) 分離精製技術 (つづき)

(6/7)

要素技術	試薬又は名称	試薬等形態等	分離対象又は方法	基本プロセス	長所・短所	実績(場所)	廢棄物など
沈殿法	晶析法		ウランの精製	クラン濃度80~95% / pH程度により、フランを硝酸ウラニル精晶として回収する	溶液の発生がなく、工場工程における溶出液が高濃化される。前工程にて除染操作が低くする。回収率がそれほど高くない。	実験室規模、ベニチスケーブル施設等による。回収率がそれほど高くない。	日本
シウウ酸沈殿法 (反応精析)	シウウ酸 アスコルビン酸	高レベル溶液中のNb, P u, Am, Cm 分離	シウウ酸 アスコルビン酸	前処理として、半脱水によるNb, Zr の沈殿・ろ過 ろ過液 ろ過液 ろ過液 ろ過液 沈殿	シテバも同時に沈殿する。H.W 滅没へのシューク脱液の問題など	シウウ酸沈殿法 自体はドライツ等で確立されている。 廃酸液を使用中である。	日本原子力研究所
	シウウ酸 ギ酸	高レベル溶液中のNb, P u, Am, Cm 分離	シウウ酸 ギ酸	H.L.W 脱脂・沈殿 pH ~2 ろ過 沈殿 ろ過 沈殿 ろ過 沈殿 沈殿抽出 H.W	アリバード元素の回収、その他の元素の沈殿を防ぐために、半脱水による脱脂ヒシウウ酸による沈殿操作を同時に行っている。	シウウ酸沈殿法 自体はドライツ等で確立されている。 E.C イスプラ	
リントンガステン 酸法	リントンガステン 酸	酸性溶液中Csの分離	酸性溶液 (0.5~2 M 硝酸) にリントン ガステン酸を加えるとCs が沈殿する	TREX抽出純度 (0.5~2 M 硝酸) から、Csを分離する。 リントンガステン酸 TREX抽出純度 ろ過 Cs沈殿 Cs精製 Sr抽出へ	沈殿へのその他元素の混入 (Nb, K, Rb, Hgなど)	ハワイ州にて大規模にCPurex H.W を使用して処理している。 アメリカ PNL他	

表 2.1.3 転換技術のまとめ

大分類	小分類	技術概要	装置の複雑さ	適用	備考
脱硝	沈殿脱硝法	アンモニア、硫酸、アシモニア、硫酸、その他の沈殿形成剤を添加して沈殿を生成する。主に脱硝反応器と沈殿槽から沈殿槽へ送られる。脱硝槽は、硫酸アシモニア水溶液と硫酸アシモニア水溶液との混合槽である。	比較的簡単な設備	取り扱い量が小～中程度に適合	この手法は基本的な操作であり、回収率も高いため、後工程での処理が容易である。
	マイクロ波脱硝法	マイクロ波加熱により、対象溶液を加熱、蒸発させることで効率的に脱硝される。脱硝槽は、硫酸アシモニア水溶液と硫酸アシモニア水溶液との混合槽である。	比較的簡単な設備	取り扱い量が小～中程度に適合	この手法は基本的な操作であり、回収率も高いため、後工程での処理が容易である。
	流動層脱硝法	流動層中に対象溶液を供給し、流動層内で熱交換を行うことによって脱硝される。脱硝槽は、硫酸アシモニア水溶液と硫酸アシモニア水溶液との混合槽である。	比較的複雑な設備	取り扱い量が中程度に適合	この手法は基本的な操作であり、回収率も高いため、後工程での処理が容易である。
	電気炉型焙焼・還元法	反応器により所定の酸化形態に焙焼・還元する。	比較的簡単な設備	取り扱い量が小～中程度に適合	この手法は基本的な操作であり、回収率も高いため、後工程での処理が容易である。
	カルン型焙焼・還元法	空気制御されたカルン中を通過させる。	比較的複雑な設備	取り扱い量が中程度に適合	この手法は基本的な操作であり、回収率も高いため、後工程での処理が容易である。

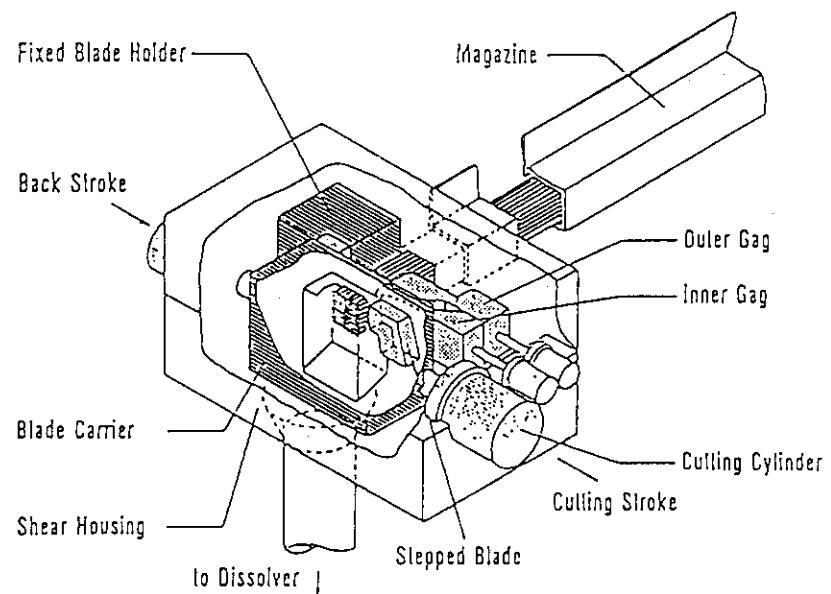


図 2.1.1 燃料剪断法の一例

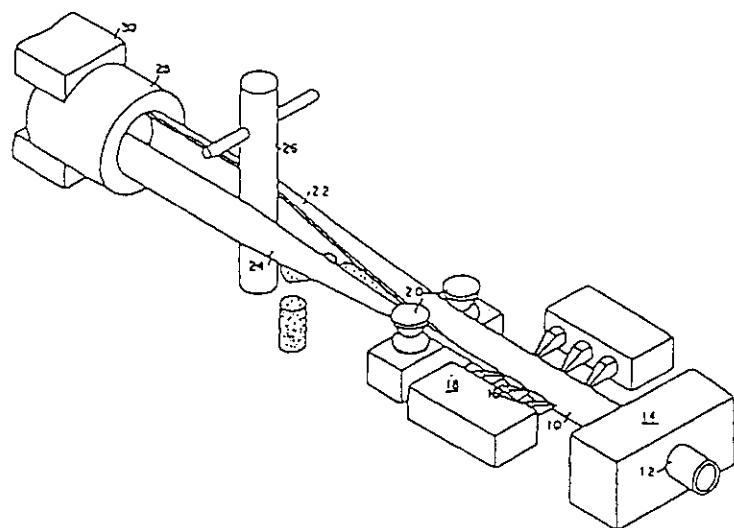


図 2.1.2 カッター切斷法の一例

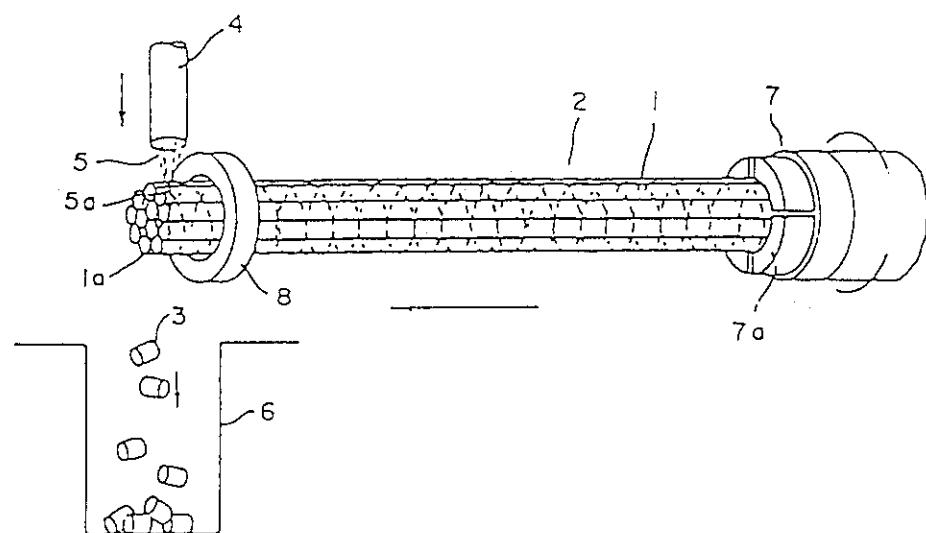


図 2.1.3 レーザー切断法の一例

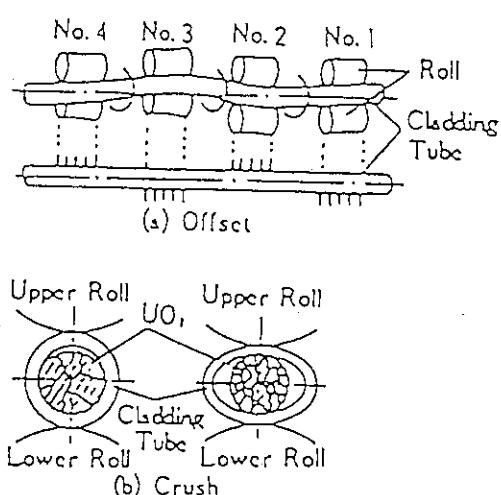


図 2.1.4 変形拡管法の一例

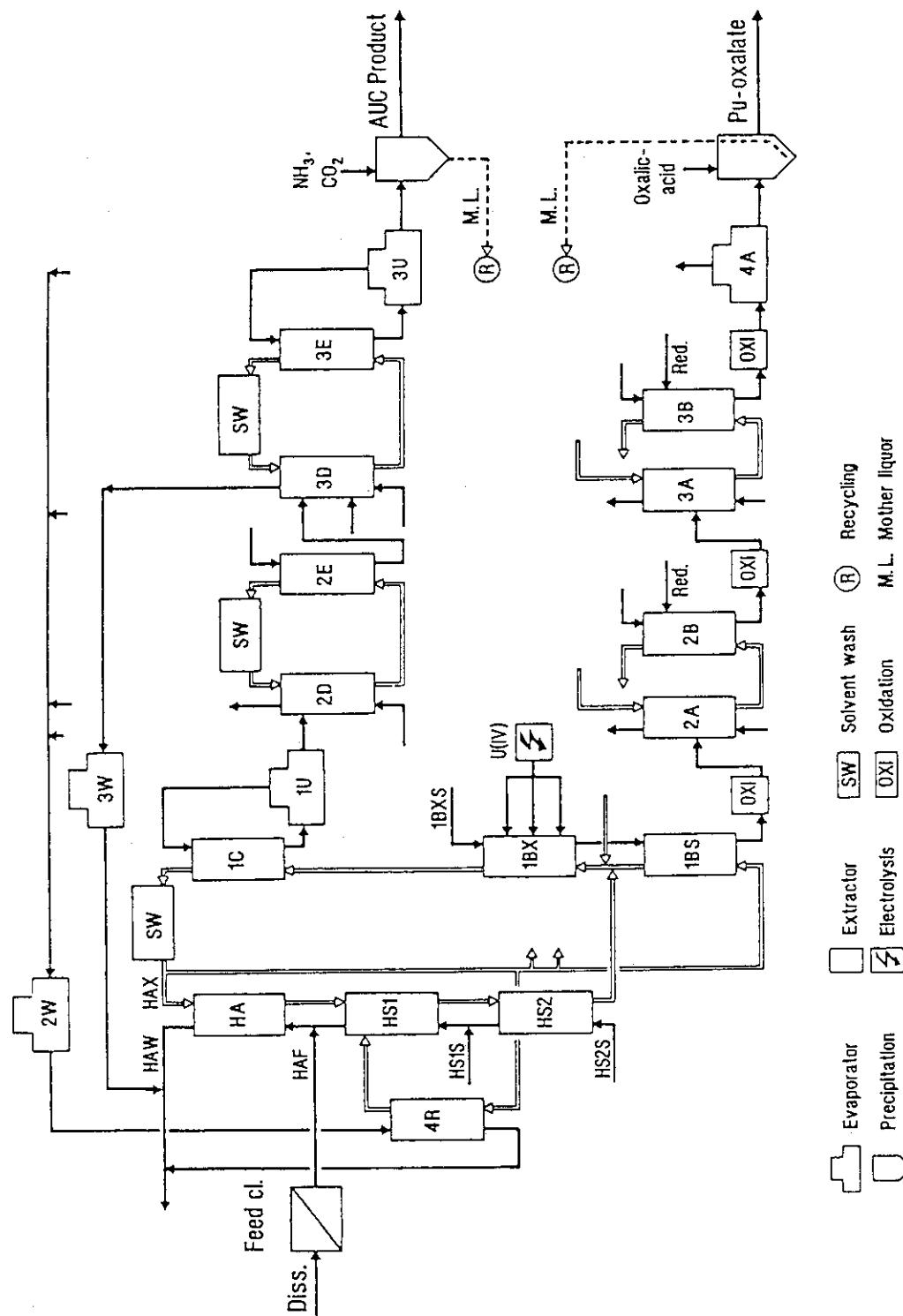
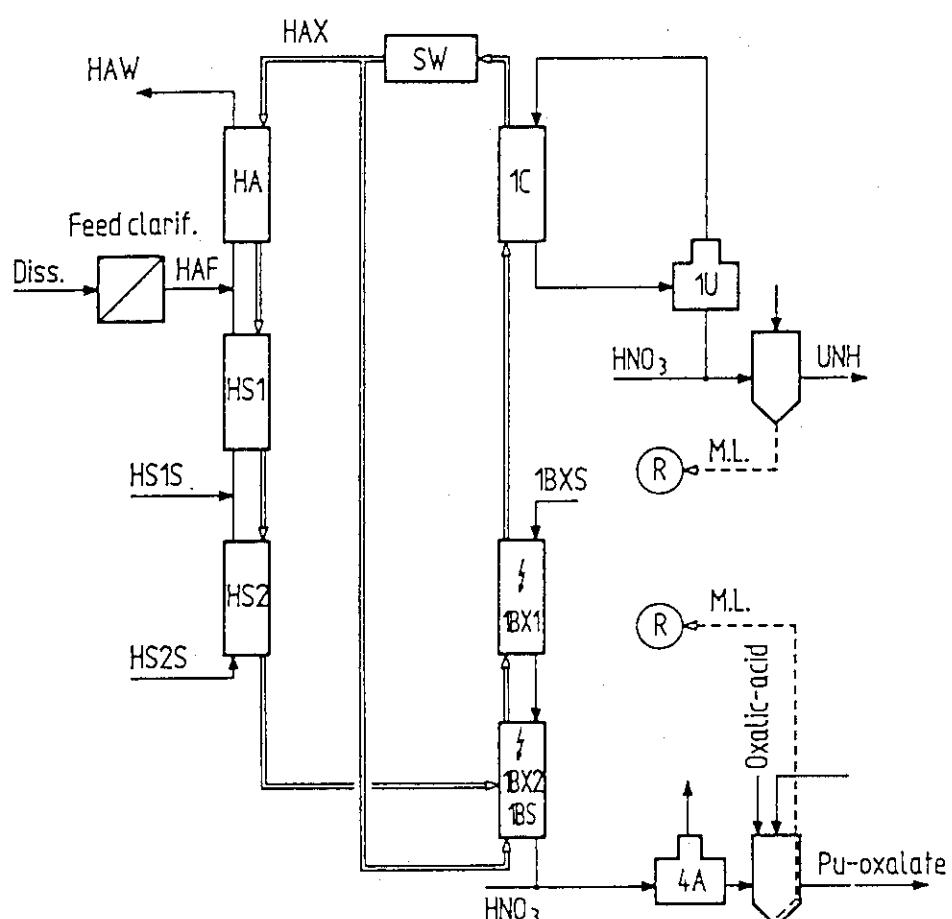


Fig. 1. Conventional Purex process. Historical flowsheet nomenclature is by combination of the following letters: A = U/Pu coextraction; B = Pu strip; C = U strip; D = U extraction; E = U strip; F = Feed; H = high active cycle; S = scrub or scrub solution; U = U concentration; W = raffinate concentration or extractant; X = extraction or extractant; leading 1-3 = cycle number, trailing 1-2 = partial unit number. Other abbreviations: 4R = raffinate recycling extractor; 4A = Pu concentration; AUC = U precipitation; Red = reductant; Feed cl. = feed clarification; Diss = dissolver; UNH = uranyl nitrate hexahydrate.

図 2.1.5 従来のピュレックス工程



Concept for a one-cycle Purex process (IMPUREX). For the engineering symbols cf. Fig. 1.

図 2.1.6 単一サイクルピュレックス工程（IMPUREX）の概念

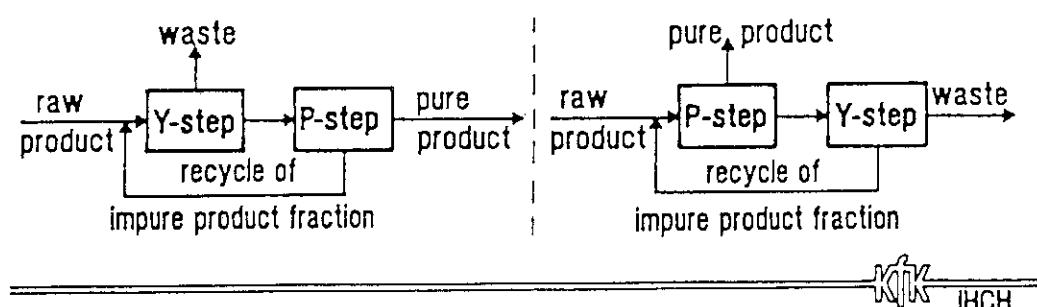


Fig. 1 Separation principle for high yield and high purity

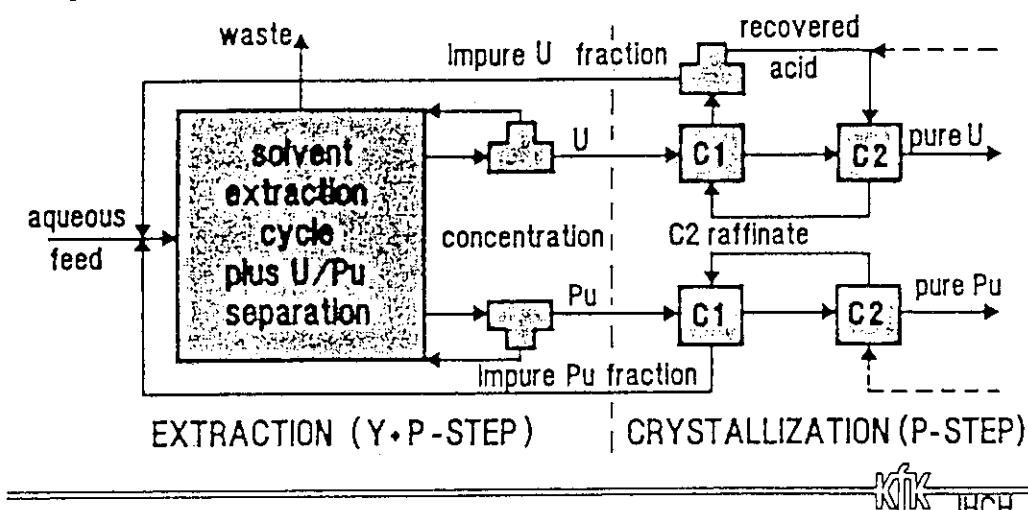


Fig. 2 Simplified extraction-crystallization flowsheet concept

図 2.1.7 単一サイクルに晶析工程を加えたプロセス

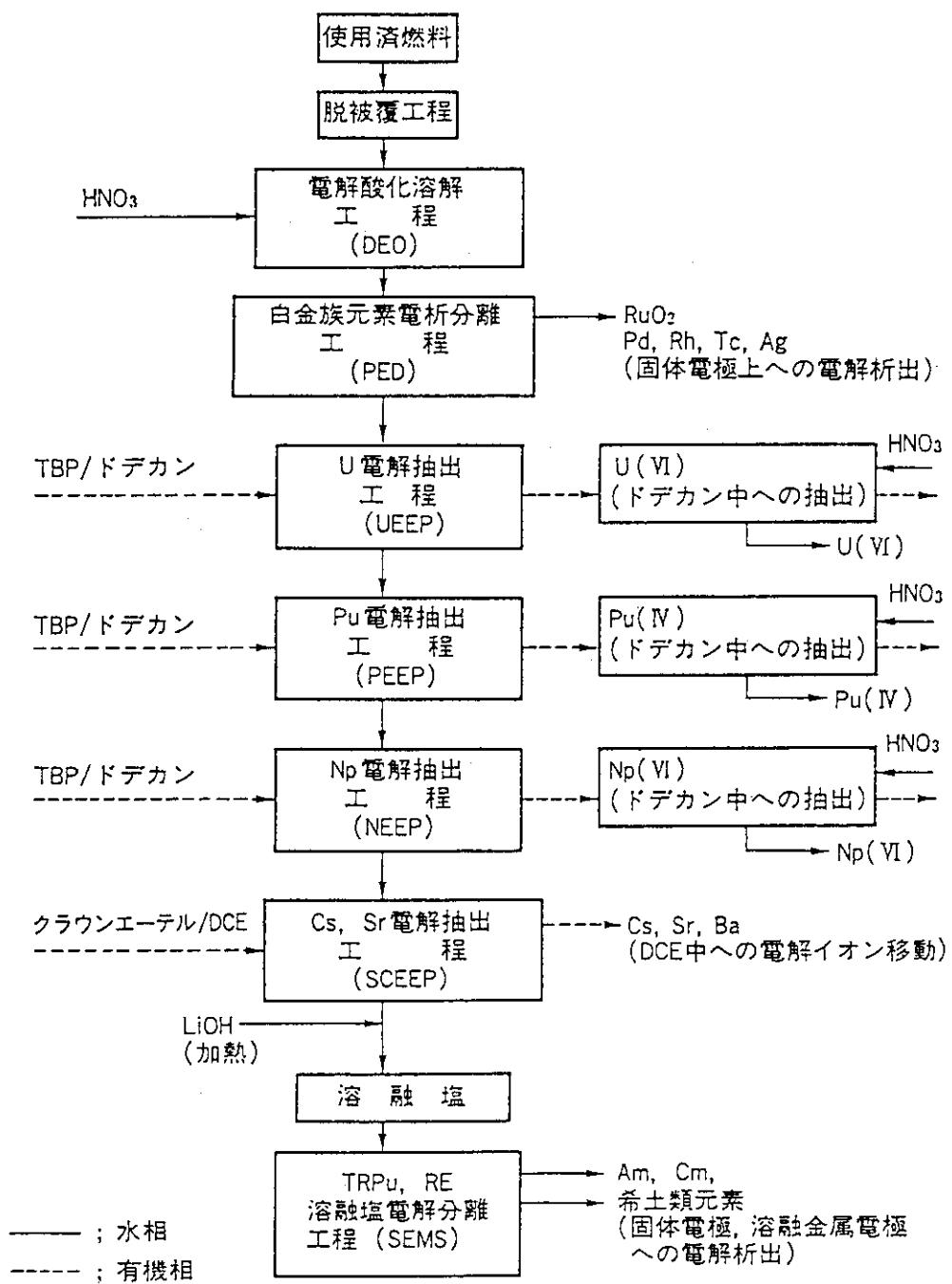


図 2.1.8 電解-抽出プロセスによる再処理法 (SREEP)

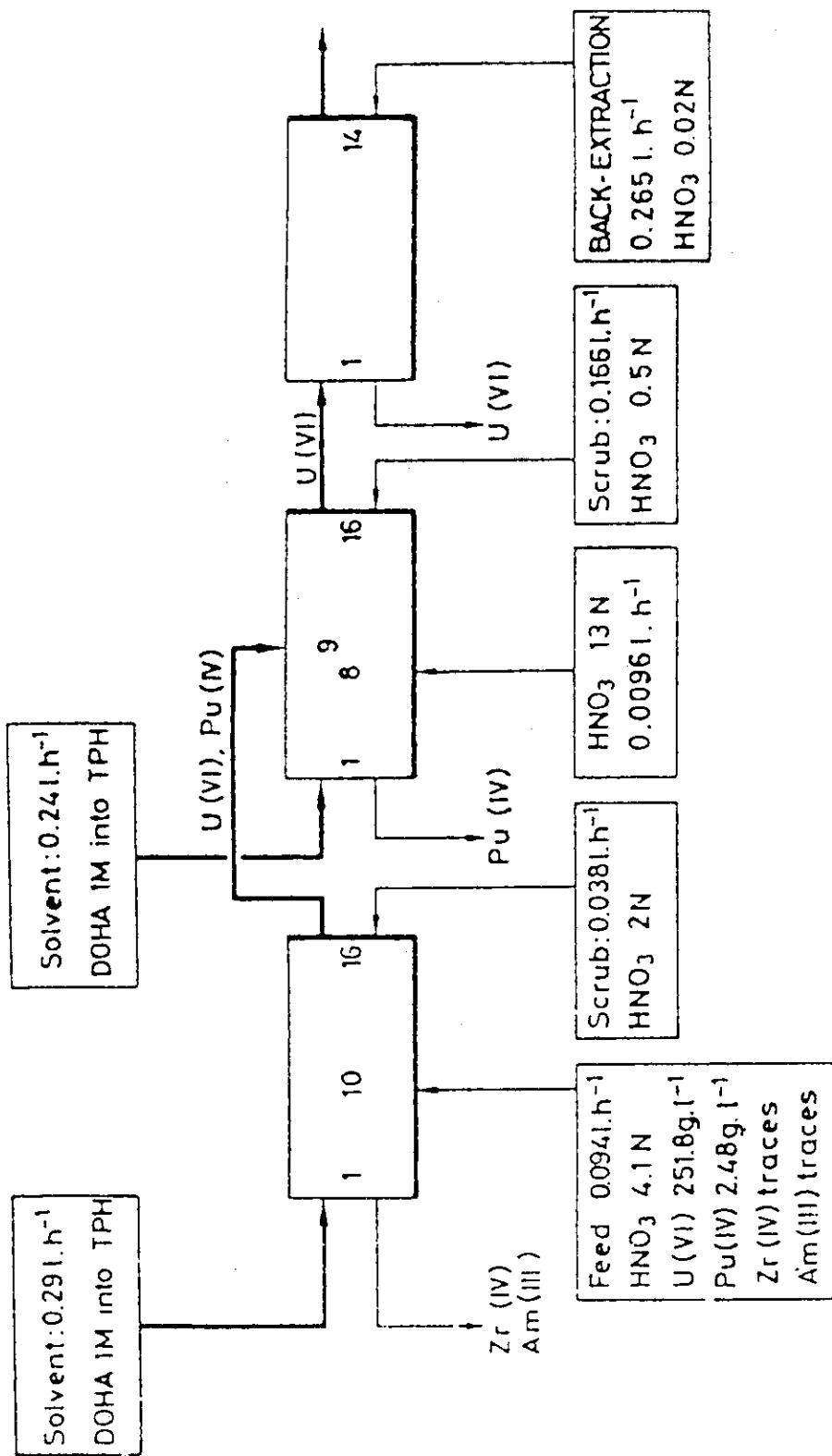


図 2.1.9 アミド系抽出剤 (DOHA) によるフローシート  
 (プルトニウムの還元を含まない)

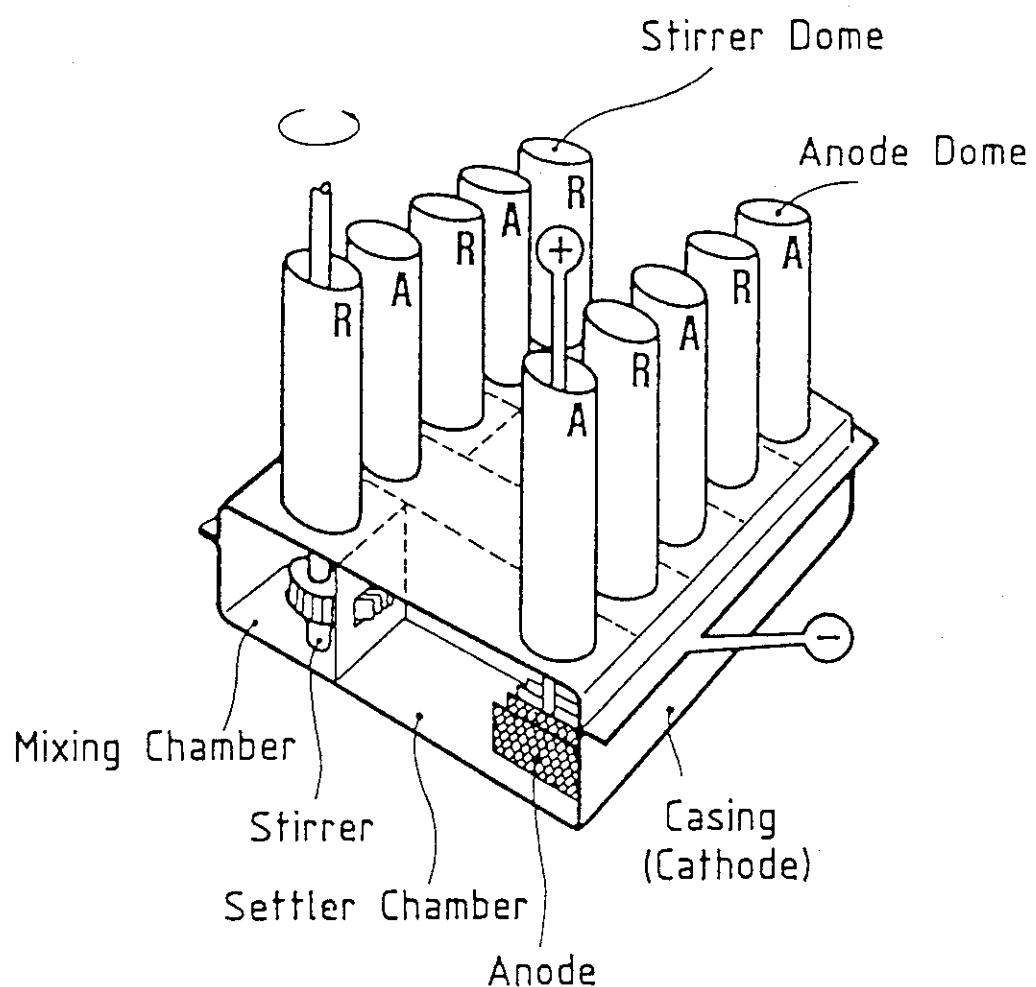


図 2.1.10 電解還元ミキサセトラ装置の概念図

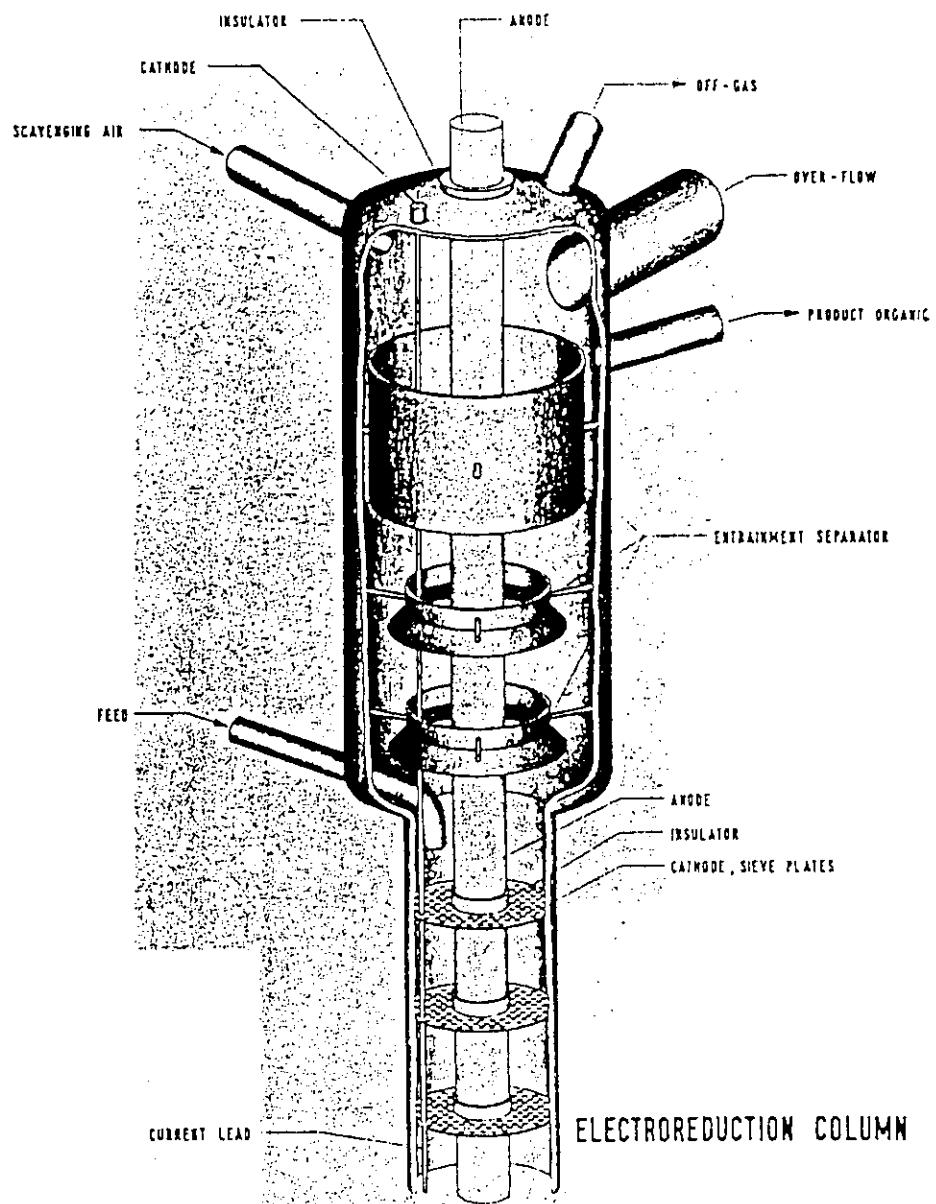


図 2.1.11 電解還元パルスカラム装置の概念図

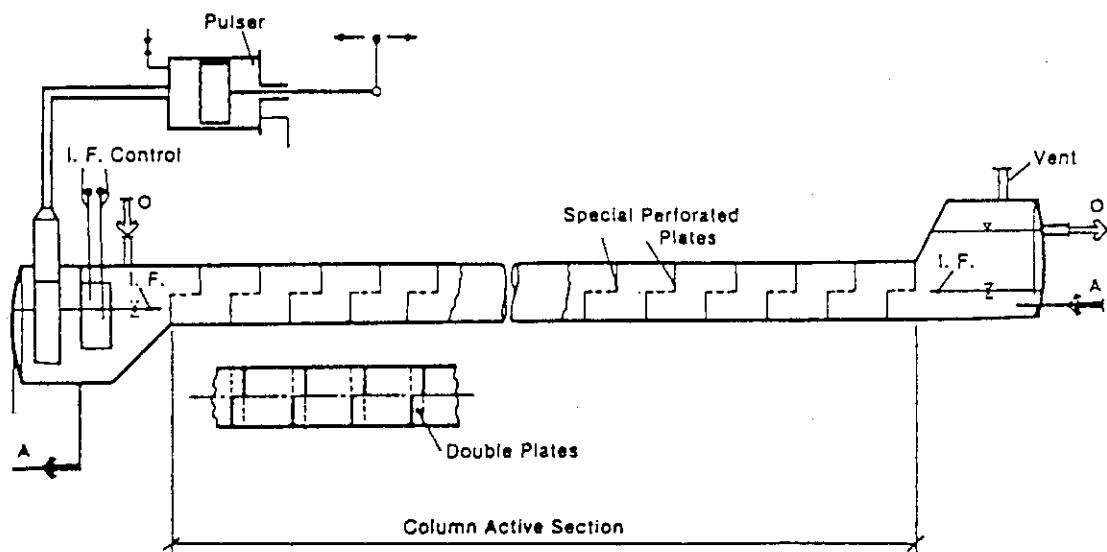
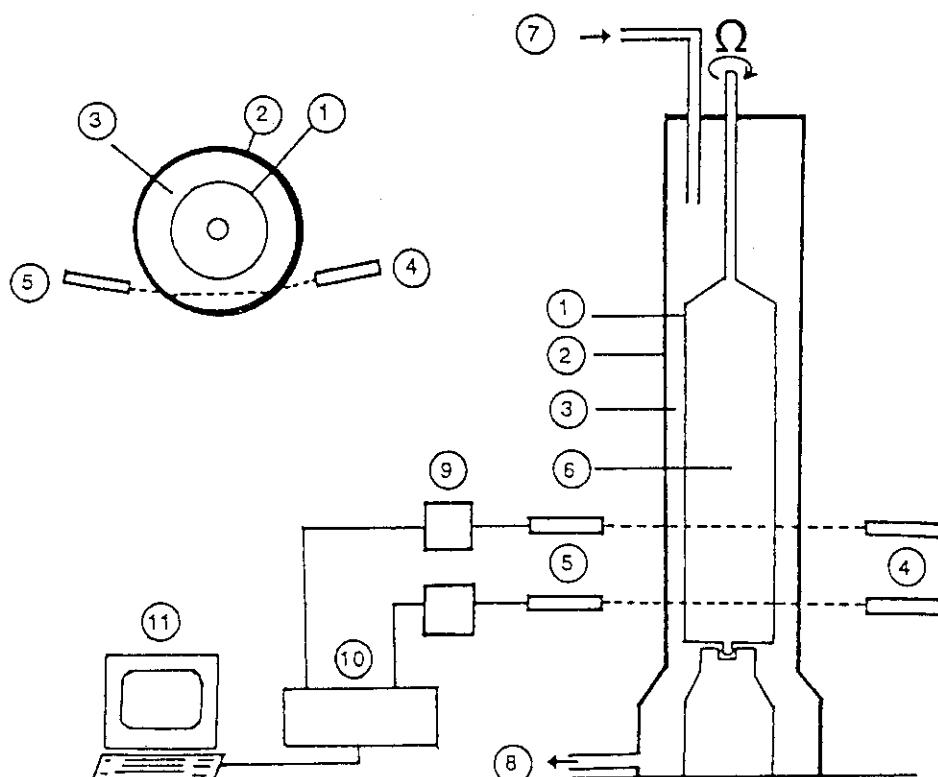


図 2.1.12 水平型パルスカラム



- |                   |                     |
|-------------------|---------------------|
| 1. Inner cylinder | 7. Feed solution    |
| 2. Outer cylinder | 8. Effluent         |
| 3. Annulus        | 9. Amplifier        |
| 4. He-Ne laser    | 10. A/D converter   |
| 5. Photodiode     | 11. Computer system |
| 6. Dye injector   |                     |

図 2.1.13 回転円筒型抽出装置

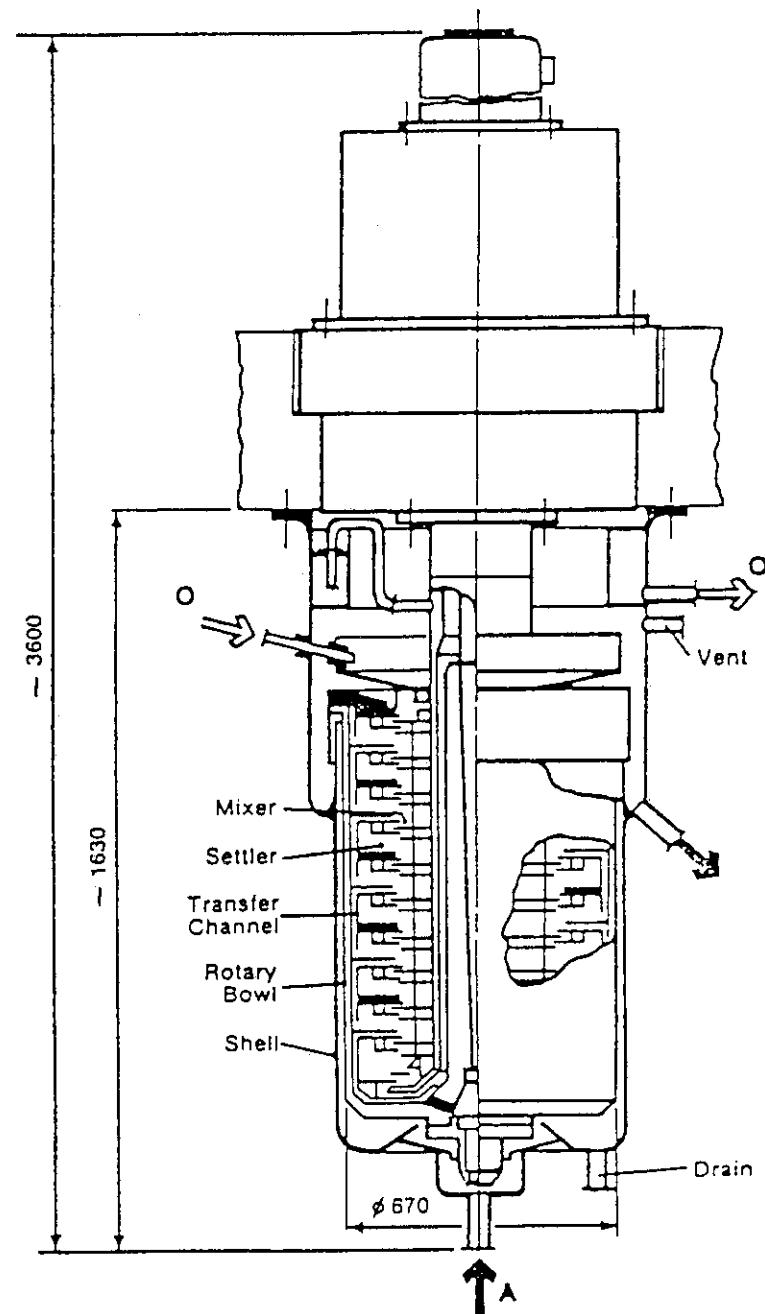


図 2.1.14 多段遠心抽出器 (Robatel)

## 2. 2 群分離技術

本章では、使用済燃料溶解液よりその主構成元素であるU(Pu)を分離した後の溶液から、アクチノイド元素や、Cs、Sr等の重要FP元素を分離するための技術（群分離技術）についての現状と展望を概観する。Purex法を中心としたU分離技術、及び種々元素の分離手法については前章に記述されているので、本章では群分離に関わる範囲でのみ触れていくこととする。

### 2. 2. 1 分離法の研究

#### (1) アクチノイド元素の分離

一口にアクチノイド元素といってもU、PuとAm、Cmとでは性質は大きく異なる。ここでは、Am、Cmの分離を中心に述べる。

##### a. 溶媒抽出法

溶媒抽出法は、選択性に優れ、高純度化が可能、比較的操作が容易、また実績を有すること等からアクチノイド元素の分離に最も有力な手段である。以下に、抽出剤個々に着目して研究開発の現状と問題点を示す。

##### (a) リン化合物系抽出剤

###### ① TBP

TBP (tri-n-butylphosphate) は、単座配位中性有機リン化合物抽出剤の一つであり、VI価、IV価のアクチノイド元素に対して、大きな抽出能力を持つ。しかし、III価のアクチノイド元素 (Am、Cm) の抽出には塩析剤の添加等特殊な条件を必要とする。

###### ② DHECMP

DHECMP (dihexyl-N,N-diethyl carbamoyl methyl phosphonate) は、二座配位中性有機リン化合物であり、当初はプルトニウム汚染廃棄物からプルトニウムの回収を目的として利用された。最近では、後述するCMPDに取り代わられている。CMPDに比べて、TRU元素に対する選択性が高い反面、分配係数、精製の容易さ、耐放射線性、水相への溶解性などにおいて劣っている。

###### ③ CMPD

CMPD (octyl(phenyl)-N,N-diisobutylcarbamoylmethyl-phosphine oxide)

は、二座配位中性有機リン化合物抽出剤の一つであり、単座配位中性有機リン化合物抽出剤であるTBPなどと抽出特性は類似している。しかし、抽出能力が高く、酸濃度の高い溶液からでもTBPでは困難なⅢ価のTRU元素を抽出することが可能であるため、この溶媒の特性を利用したTRUEXプロセスが、米国アルゴンヌ国立研究所(ANL)でTRU元素の分離・回収のために開発されており、処理する廃液の特性に応じて、幾つかのフローが検討されている。

このTRUEXプロセスの特徴は、既存のPUREX溶媒に少量のCMPOを添加することによってTRUEX溶媒を調整することができること、広範囲の硝酸濃度(0.7~5M)でTRUの分配比が一定であることにより操作が容易であること、特殊な前処理は不要であること、硝酸溶液のみならず、硫酸、塩酸溶液に対しても適用できることなどが挙げられる。一方、ランタノイド元素との分離ができない等の短所がある。さらには、放射線分解生成物が、元素の逆抽出を妨害するという問題があり、もともとPuの逆抽出にHF溶液を用いることになっている点を含め逆抽出段階での課題が多い。

#### ④ D I D P A

DIDPA(diisodecylphosphoric acid)は、酸性有機リン化合物抽出剤の1つであり、CMPOと同じくⅢ価、Ⅳ価及びVI価のTRU元素に対して高い抽出能力を有する。このDIDPAの特性を利用した分離プロセスは日本原子力研究所において1973年から開始されており、DIDPAを中心としたプロセスについては、当初の3群群分離フローから現在は4群群分離を基本とするフローが研究されている。

DIDPAの特徴は、0.5M程度の硝酸からAm, CmなどのTRU核種を抽出することが可能であること、水への溶解度が低いこと、また耐放射線性に優れていること等を挙げることができる。DIDPAを用いた下記のTalspeakプロセスと同じ手法によるAm, Cmと希土類元素との分離についても研究されている。

#### ⑤ D E H P A (HDEHP)

DEHPA(di(2-ethylhexyl)phosphoric acid)は、DIDPAと同じく酸性有機リン化合物抽出剤の1つである。DIDPAとの違いのひとつは抽出時に溶液の酸濃度を0.1M程度にしなければならないことである。

適当な錯形成剤を用いることによりTRUと希土類元素との分離やSrの分離など行わせることが可能である。特にDTPAを錯形成剤として用い、TRUを選択的に水相に残す或いは移すことによって希土類元素と分離するTalspeakプロセスが知られている。

## ⑥ T R P O

T R P O (trialkyl phosphine oxide)は、石油精製の副産物であり、アルキル基の炭素原子の数が6～8ヶの中性有機リン化合物である。ウランの抽出剤として使用されており、耐放射線性に優れ、低コストである。また、この化合物がアクチノイドの抽出能力を有することから高レベル廃液からのT R U核種分離が検討されている。

### (b) アミド系抽出剤

アミド系抽出剤はリン元素を含まないことが特徴の中性抽出剤であり、モノアミドはTBP系統の抽出剤に、ジアミドはCMPOの系統の抽出剤に対応する。例えば、DHOA (*N,N*-dihexyloctaminde)は、TBPの代替抽出剤としてU、Puの抽出分離に利用できる可能性がある。この抽出剤の長所は、製造が比較的容易で、耐放射線性がTBPと同等であってかつ分解生成物がTBPにおけるDBPのように害を及ぼさないという点である。ただ、U(VI)との錯体の溶解度があまり大きくななく、第三相が生成しやすいという欠点がある。

ジアミド抽出剤は、CMPOと同様、二座配位の中性抽出剤であり、多くの誘導体が試験された。まだ開発途上にあるが、現在のところのDMDB2-(3-ON)PDAが最も優れたものとして提案されている。分解生成物の影響が少ないという点がCMPOに優るところであるが、脂肪族系希釈剤を用いることにはまだ成功していない。

### (c) アミン系

#### ① Alamine

Alamineは、オクチルアミンの混合物であり、高濃度の塩化リチウム溶液の中において、ラントノイド元素よりT R U元素に対する抽出能が高い特性を持つ。このうち、Alamine336とよばれるアミン混合物を使用したプロセスは、TRAMEX法としれ知られている。アメリシウムの回収率については、99.99%、希土類元素の除染係数10000以上が得られている。但し、LiCl等の塩析剤を高濃度で添加しなければならない点が短所である。

### (d) サルファイド系

#### ① T P T Z + H D N N S

T P T Z + H D N N S (TPTZ:tris(2,4,6-(2-pyridyl))1,3,5-triazine, HDNNS :dinonylnaphthalene sulfonic acid)は、両者の混合による協同効果を使用したものであり、この抽出剤の有するsulfur donor ligandsが選択的に4fイオンより5fイオンを抽出する特性を利用して、アクノイドとラントノイド元素を分離することが可能である。実験室規模で行われているが両者の分離は良好に行われている。

### b. 吸着法

吸着法によるアクチノイド元素の分離としては、有機イオン交換体を用いた分離・精製の研究が行なわれている。無機イオン交換体による分離についても研究されているが、基礎実験の域をでない。

有機イオン交換体としては、陽イオン交換体と陰イオン交換体いずれもが利用されている。その利用方法は、イオン交換クロマトグラフィである。主に、T R U元素等の分離、精製に用いられ、その実績は実験室規模のものから実規模のものまで存在する。照射による樹脂の劣化、局所的な核種の蓄積によってガスの発生等が問題として挙げられ、定期的な樹脂の交換が必要である。

### c. 沈澱法

溶液中に特定の添加剤を加え化合物化することによって元素の溶解度を低下させ結晶として析出させるなどの反応晶析や、液の温度等環境条件を変化させることにより元素の液中溶解度を低下させ析出させるものなどが挙げられる。前者の代表的な例としては、シュウ酸、ギ酸等を用いて高レベル廃液中のT R U元素の分離が、また後者の代表的な例としてはウランの晶析による回収、あるいは精製などが挙げられる。

沈澱法は添加剤を加えるものの固体廃棄物として発生する廃棄物量は少ないと予想される。一方、共沈などによって目的核種以外の元素の沈澱への移行などが発生する可能性がある。

## (2) Cs, Srの分離

### a. 抽出法

Cs, Srの抽出法による分離では、クラウンエーテルによる抽出及びコバルトジカルボライドによる抽出が研究されている。

クラウンエーテル（大環状ポリエーテル）は、分子内部に固有の環を有し、その環にある特定の大きさのイオンをその中に取り組むことができる。この特性を利用することによって、特定の核種のみを選択的に分離、抽出することが可能で、いわゆる、分子識別を行わせることができると考えられている。クラウンエーテルの使用に関しては、さらに耐放射線性、逆抽出性などの特性が不明確であるため、これらに関する調査が必要である。

コバルトジカルボライド抽出によるCs, Srの分離は、旧ソ連においてセミバイロット規模で実廃液を用いた試験がすでに行なわれている。良好な分離が達成できるようだが、希釀剤にニトロベンゼンを用いなければならないのが致命的な欠点である。

### b. 吸着法

チタン酸、ゼオライト等が主に使用されている。ウラン等に関する吸着試験例もあるが、主な対象はアルカリ、アルカリ土類金属であると考えられる。ハンフォードにおいては、1万mg以上のピューレックス廃液上澄液からセシウムを選択的に回収、除去した実績がある。放射線分解に対して強いものの、使用pH領域が比較的高く、場合によっては沈澱等の形成が避けられないことがある。一方で、Csを吸着したゼオライト、Srを吸着したチタン酸はそのまま仮焼することにより安定な固化体とすることができますという利点がある。

### (3) Tcの分離

#### a. 抽出法

Tcは通常  $TcO_4^-$  の化学系で存在するため陰イオン交換性の抽出剤により分離できる。アミン系抽出剤であるPrimeneJM-Tはその一つで、ウエスチングハウス・ハンフォード社から提案されているCUREコンセプトの中でその使用が検討されている。製品ウランの中に移行してくるテクネチウムをこの溶媒によって分離除去するものである。実績が少ないためにベンチ及びパイロットスケールでの試験が必要である。

#### b. 吸着法

活性炭を利用したTcの吸着・分離の例などが挙げられる。耐放射線性が高いものの、再利用する場合に構造破壊などをきたす可能性がある。実験室規模では、Tcが、白金族元素の一部は同伴するもののCs、Sr等から高い回収率で分離できることを確認している。今後の成果が期待される。

## 2. 2. 2 分離法の適用性

### (1) Uの分離

使用済燃料溶解液に対しては、まずその主構成元素であるUを分離するべきである。これによりその後の取扱元素の量を大幅に減ずることができる。Uの分離法としては、TBPを抽出剤とするPurexプロセスが実用段階にある。（この場合PuもUとともに分離される。）しかし、超高燃焼度燃料の処理においては、放射線レベルが高く、TBPの放射線分解が大きな問題となる可能性がある。この意味で、有機試薬を用いない晶析法の適用について検討することは意義がある。但し、使用済燃料からのU分離とすることでの晶析法の研究はまだ十分でなく、PuやFP元素の挙動等今後の検討課題が多い。また、晶析法による回収漏れUの量を把握することも、次のアクチノイド元素分離工程の組み立てに影響するという点で重要である。

## (2) Cs、Srとアクチノイド元素との分離

バックエンド試験施設におけるアクチノイド元素の分離では、分離度を高くすることができる溶媒抽出法を適用することが最も有力である。この場合も、上で述べたように、溶媒の放射線損傷を抑える意味でアクチノイド元素分離に先立ちCs、Srを有機溶媒を用いずに除去することができればより信頼性の高いプロセスとなる。

この考えに合致するCs、Srの分離法としては、唯一沈殿法であろう。Csのみを選択的に沈殿させる方法は研究されているが、Srについてはそのような方法が今のところ開発されていないことから、両者を同時に分離するには、Cs、Srを溶液中に残し、アクチニド元素を沈殿させるという手法を探らざるを得ない。具体的には、シュウ酸塩沈殿法、脱硝沈殿法或いはその組合せがまず考えられる。これらの沈殿法についてある程度は研究が行われているが、検討課題はいまだ多い。主な課題を具体的に挙げると以下のようになる。

## ①アクチノイド回収率

これまで研究された沈殿法では、99%或いは99.5%の回収率が限度であり、更に高い回収率が要求される場合には特別の配慮が必要である。

## ②Uの沈殿

UはVI価であると沈殿し難い。IV価への還元が必要とされる可能性がある。

## ③Srの共沈

Srを100%液中に残すことは難しい。どの程度許容できるかを検討する必要がある。

## ④他の元素の挙動

特に、アクチノイド元素抽出工程に及ぼす影響の大きいMo、Zr、Fe等の挙動を把握する必要がある。できればこれらの元素はアクチノイド元素から分離された方が望ましい。

## ⑤沈殿の溶解法

沈殿は溶解した上でアクチノイド元素の抽出に適した溶液にする必要がある。

## ⑥沈殿ろ過法

沈殿の性状を把握し、ろ過法について化学工学的に検討しなければならない。以上のように沈殿法については課題が多く、適用するには十分な研究開発が必要である。Cs、Srを先に分離することによるアクチノイド元素抽出工程におけるメリットとをまず評価する必要があり、その上でCs、Srの分離度の目標を定めて技術開発を進めるべきであろう。

## (3) アクチノイド元素の分離

(2) で述べたようにアクチノイド元素分離工程では溶媒抽出法の適用が最も有力である。Cs、Srが分離されていれば抽出剤の選択におけるフレキシビリティが高くなるが、抽出剤の化学的安定性、抽出容量等を考慮するとこれまでに高レベル廃液からのアクチノイド元素の分離のために研究開発されてきた抽出剤を利用するのが適当である。3. 1節で挙げた抽出剤の中から選択するに当たって（新たな抽出剤の選択も有り得るが）考慮するべき一つの事項は、アクチノイド元素と残存するFP元素等との分離と、Am、Cmと希土類元素との分離とをどう結び付けるかである。両者の分離はできるなら一つの抽出剤で行うことが望ましい。これを満たす抽出剤は、酸性リン酸エステル抽出剤のDEHPAとDIDPAである。

DEHPAを用いた分離プロセスとしては、ECイスラ研究所によるプロセス(図2.2.1)やスウェーデンのCTHプロセス(図2.2.2)が提案されている。このDEHPAの短所はAm、Cmを抽出する際、酸濃度を0.1M程度まで下げなければならない点であるが、もしMo、Zrが除去されなければこれは欠点となる。従って、バックエンド試験施設に適用する場合、アクチノイド元素分離工程の前のCs、Sr分離工程をどのようなものにするかによって適用性の良悪が変化する。DIDPAでは、Am、Cmと希土類元素との分離の点ではDEHPAにやや劣るが、利点として、Am、Cmの抽出で酸濃度が0.5M程度でよいことの他に、Npを高い回収率で分離できるという点がある。DIDPAを用いたアクチノイド元素分離プロセスとして提案されているものを図2.2.3に示す。この図ではUについては示されていないが、他のアクチノイド元素とともに抽出される元素であり、最後にリン酸或いはIV価に還元してシュウ酸により逆抽出できる。初めのU分離に晶析法を適用した場合そこでのUの回収率はあまり高くなく、このアクチノイド分離工程でのUはアクチノイド元素の中で依然最も量が多いので、TBP等で先に分離することも考えていいかもしれない。

以上のような分離により、アクチノイド元素等は、①U、Pu、Np、②Am、Cm、③希土類元素、④その他の元素のフラクションに分かれる。①のフラクションは、プロセスによっては①-1U、①-2Pu、Np或いは①-1U、Pu、①-2Np或いは3元素独立のフラクションに分かれる。混合フラクションの場合でも3元素をそれぞれ分けることは、これまでに研究された溶媒抽出等の方法により可能であり、容易である。一方、AmとCmとの分離においては、通常の溶媒抽出では不可能であり、クロマトグラフィーの手法を用いることになる。AmのみをIV価等に酸化してCmと分離することも考えられているが、今のところ余り現実的でない。クロマトグラフィーによる分離係数が高く、操作の容易な分離法の開発は今後の課題である。

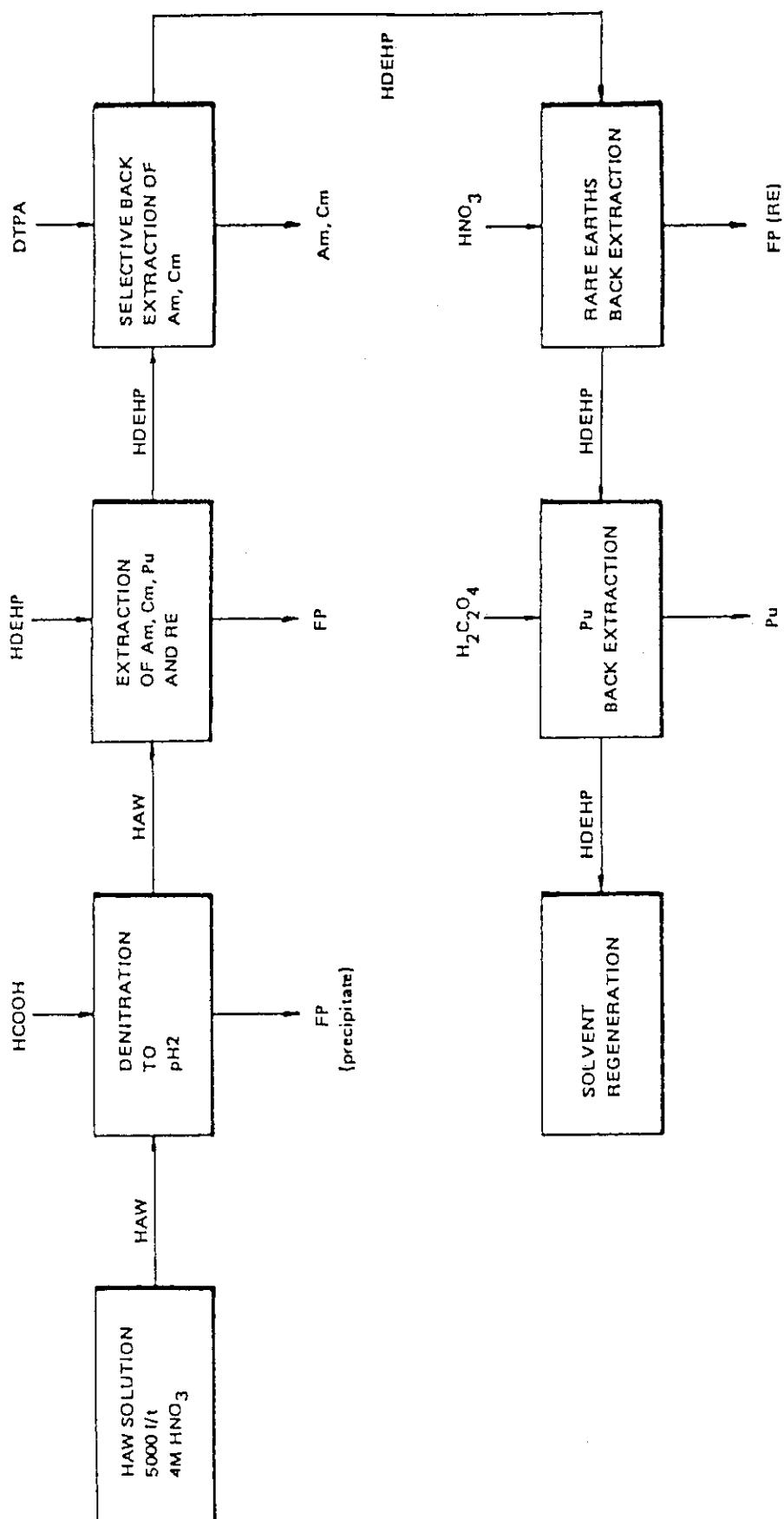


図 2.2.1 HDEHPプロセスの概要 (Ispra)

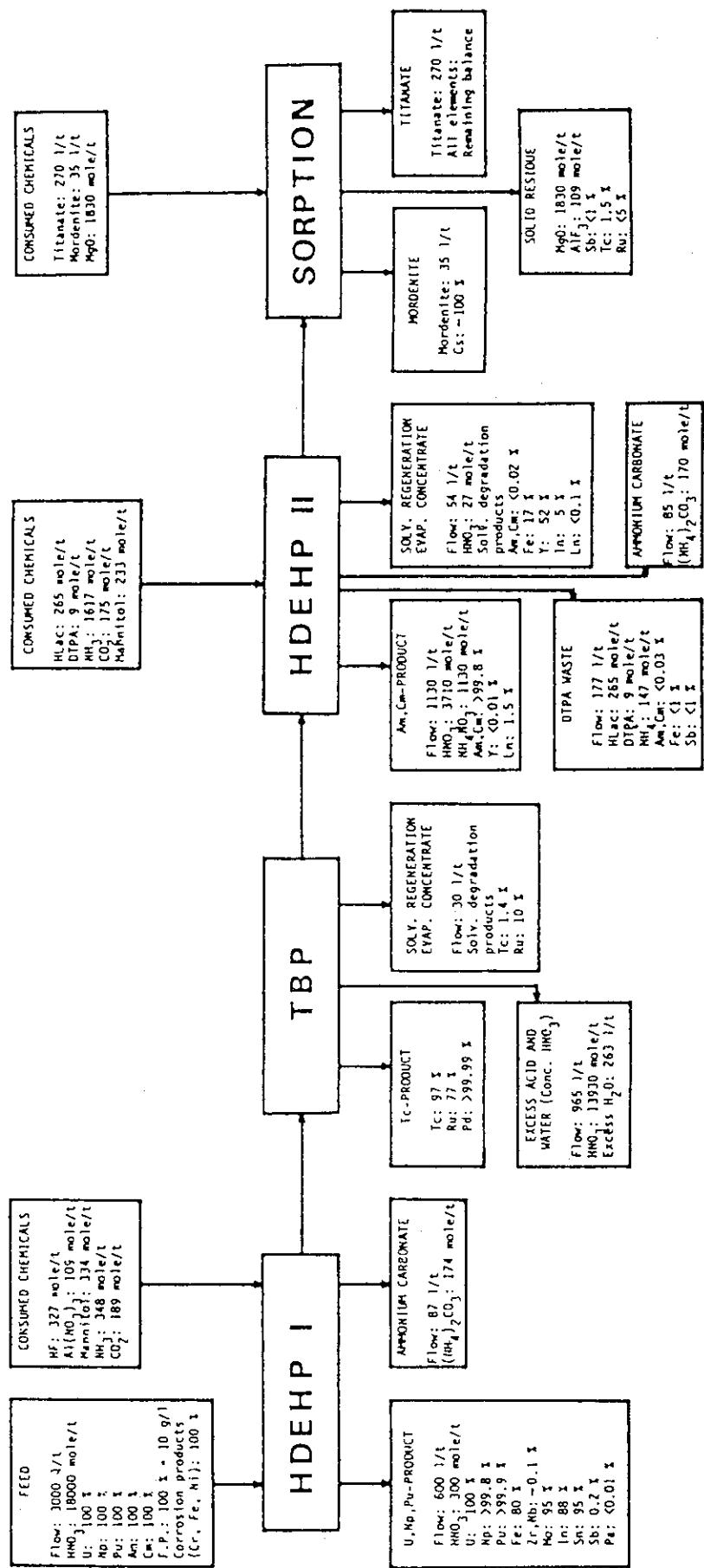


図 2.2.2 CTH プロセスの物質収支データ

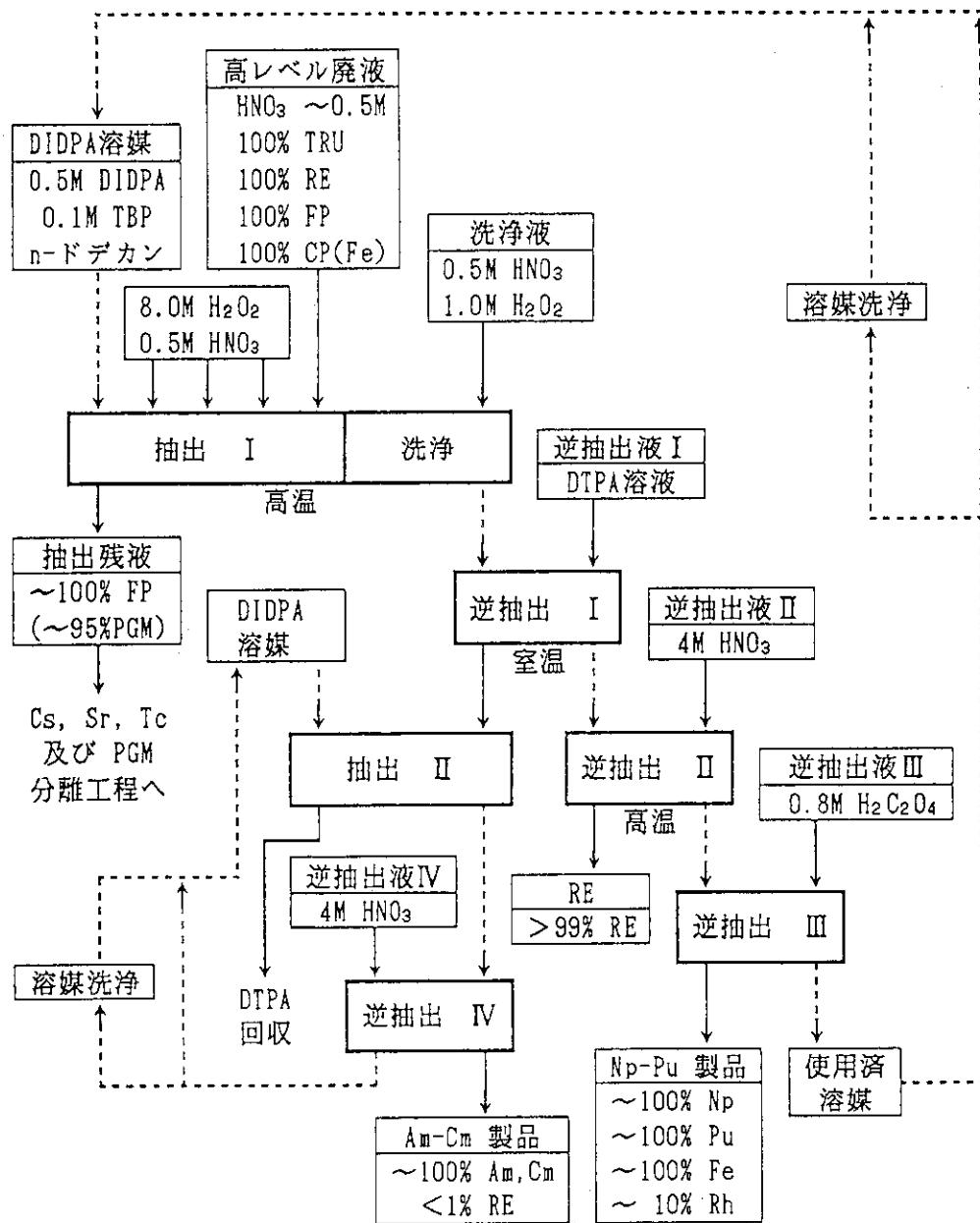


図 2.2.3 DIDPA 抽出法による高レベル廃液からの超ウラン元素分離プロセス

## 2. 3 金属燃料再処理技術

### 2. 3. 1 金属燃料サイクルにおける再処理

新たな再処理技術の研究開発に際しては、核燃料サイクルの成立性を基軸とする全体的な評価が重要である。これは、適用される再処理法が炉型や燃料燃焼挙動によって決る燃料の形態、再処理して回収したU, Pu等のリサイクル法、あるいは廃棄物処理処分法等に大きく依存するからである。この観点から、金属燃料サイクルでは酸化物燃料を主対象とする現行の湿式再処理法とは全く原理の異なった再処理技術の採用が展望できる。

金属燃料サイクルの研究開発の歴史は古く、1960年代にはFBR燃料の主体として重要な研究対象であった。にも拘らず、スウェーリングや燃料健全性等の問題点を抱えたまま、実用化には至らなかったという経緯がある。しかし、最近のEBR-IIにおける試料燃料の照射実験により、これら問題点が克服される可能性が指摘されるに至って、金属燃料サイクルの実用化への見通しが大きくクローズアップされている。

現在、米国DOEにおいては、ANLが提案しているFBR金属燃料サイクル概念に基づいて、いわゆるIFR(Integral Fast Reactor)計画が精力的に進められている。IFR計画は、(1)金属燃料FBR, (2)乾式再処理、(3)廃棄物処理、(4)射出成形法による燃料製造の各要素で構成される。これにより安全性と経済性の飛躍的な向上を同時に達成するのが本計画の大きな目標であり、例えば小型炉による固有安全性の一層の向上とモジュール化によるプラント建設コストの低減化が見込まれている。

IFR計画において重要な位置を占める使用済み金属燃料の再処理では、溶融塩分離法を基盤とする乾式法の採用が図られている。IFR燃料サイクルにおける金属燃料再処理フローシートを 図2.3.1 に示す。ここでは使用済燃料からFPの分離とU, Puの回収と精製がなされるが、溶融塩電解分離法の採用によって大いにプロセスの簡素化が可能であると評価されている。また乾式再処理法の特徴として、

- ①大幅な経済性の向上が期待できる、
  - ②核拡散抵抗性が高い、
  - ③廃棄物発生量が低減化できる、特にTRU廃棄物が発生しない、
- などあげられている。

### 2. 3. 2 溶融塩分離法の概要

IFR計画の金属燃料サイクルにおいて溶融塩電解分離プロセスが採用されているが、ここでは本プロセスで適用されている方法も含めてより広い溶融塩分離法の概略を述べる。なお、いわゆる乾式再処理、精製技術にはフッ化物揮発法、塩化物揮発法、ゾーンメルティング法等も含まれるが、これらについてはここでは割愛する。

溶融塩を利用する分離法は、溶融塩を用いた化学的あるいは電気化学的反応に基づくものであり過去にも多くの研究開発がなされている。特にU及びPuの生産、精製法として工学規模での適用例も多い。これらのうち次に示す手法が主なものであり、金属燃料再処理技術とも関連して現在でも幅広い研究が進められている。

- (i) 溶融金属蒸留法、
- (ii) 溶融金属抽出法
- (iii) 溶融塩抽出法
- (iv) 塩輸送法
- (v) 溶融塩電解析出法

以下、これら方法についてその原理、特徴、実績等を整理する。

#### a. 融解金属蒸留法

##### (原理)

溶融金属状態において含まれる元素の蒸気圧の差を利用して目的元素以外の元素を蒸発除去する方法。

##### (特徴・実績)

対象元素にもよるが、好ましい蒸気圧を得るために比較的高温にしなければならず耐高温材料が必要となる。また、目的元素と蒸気圧の近いあるいは小さいものは分離が困難である。本手法は高温冶金法の中でも（原子力分野に限らず）最も古くから研究されてきた金属精製法の1つである。原子力の分野では、使用済燃料を融解し、高温にして蒸気圧の高いCs, Sr, Y, Ba, I, Brなどが蒸発除去されることが確認されている。最近では、ANLの乾式再処理においてMg抽出を行なった後、Mgを蒸留して残ったPu, TRU, 希土類元素を回収する方法が検討されている。

#### b. 溶融金属抽出法

##### (原理)

精製したい金属と相互に溶け合わない金属（溶媒）を溶融状態で接触させ、2相間ににおける不純物の分配平衡を利用して、目的金属を精製する方法であり、高温における溶媒抽出法と考えることができる。

##### (特徴・実績)

原子力の分野においては、古くは1950年代に金属燃料の処理への適用が考えられ、Pu-U燃料のMgによる相互分離、Th-U燃料のMgによる相互分離などが行なわれた実績がある。最近では、ANLの乾式再処理の中の一工程にこのMg抽出の採用が検討されており、Mg中にPu, TRU及び希土類元素が移行するフローが考えられている。Mg抽出法によるPuの再処理フローシートを 図2.3.2に示す。

#### c. 溶融塩抽出法

##### (原理)

目的金属溶融物と溶融塩（溶媒）とを接触させ両者間における元素の分配平衡を利用する分離法で、主に溶融塩側に不純物を移行させる方法である。この方法では、目的金属中の不純物を溶融塩中に移すために、不純物より $\Delta G$ の小さい塩化物を添加する。こ

れにより不純物は塩化物として溶融塩相へ移行する。目的元素は、金属溶融物の蒸留等によって回収される。目的元素が溶融塩相中に分配される場合には、分離後、電解析出法、あるいは化学的還元法によって別の金属相に抽出し、以上記と同様にして回収する。

#### (特徴・実績)

この方法も古くから行なわれており、溶融燃料と溶融塩 ( $\text{NaCl}-\text{KC1}-\text{MgCl}_2$ ) と接触させることにより、核分裂生成物を溶融塩側へ移行させる方法がとられている。本プロセスの概要は 図2.3.3 に示すとおりである。最近では、ロスマス、ロッキイフラットにおいてバッチ型及び向流型 の連続分離工程が検討されている。

### d. 塩輸送法

#### (原理)

塩輸送法は溶融した塩浴の中で二つの溶融金属溜まりを設け（溶融金属A／塩浴／溶融金属B）、塩浴を介在して特定成分のみの輸送を行い、溶融金属Bの中に目的成分を抽出していく方法である。この方法は、溶融塩抽出法を発展させたものである。本法の概念図を 図2.3.4 に示す。

#### (特徴・実績)

溶融塩抽出法と同様に歴史は古い。最近では、ANL の乾式再処理の中の一工程として提案されており、バッチ式の小規模試験が実施されている段階である。輸送塩としては  $\text{MgCl}_2-\text{KC1-NaCl}$  系のものがよく使用されている。

### e. 溶融塩電解精製法

#### (原理)

溶融塩電解精製法は、溶液中の電解精製と同じく、元素が電気化学的に貴であるか卑であるかを利用することにより、金属イオンを陰極に析出させる方法である。

#### (特徴・実績)

ウランについては、古くから多くの研究がある。最近では IFR 計画の中で金属燃料の再処理技術としてこの溶融塩電解精製法がクローズアップされており、実験室規模 (~数 kg) で様々な試験が行なわれている。ANL により提案されている溶融塩電解プロセスの概念を 図2.3.5 に示す。なお同様な概念に基づく手法が、我が国の電力中央研究所などにおいて、高レベル廃液からの TRU 回収を目的として盛んに検討されている。TRU の回収、精製については、ランタノイドの混入が避けられず回収純度が低い。

## 2.3.3 IFR 金属燃料再処理の概要

IFR 計画における金属燃料の再処理では、金属の特性を十分に活用した乾式再処理（高温冶金あるいは溶融塩分離）法が採用される。乾式再処理プロセスの構成を図2.3.6 に示す。①試料の解体及びせん断工程、②燃料の溶融塩中への直接あるいは陽極電解溶解工程、③U, Pu の陰極電解回収、精製工程、④U, Pu からの塩、電極 Cd の分離工

程、及び⑤Pu富化度調整工程、等から成る。なお、プロセス操業は全て高純度アルゴンガス雰囲気のセル中で行なわれる。

③のU、Pu電解回収、精製工程では次の二種類の陰極が用いられ、それぞれが異なった特色を発揮する。すなわち、まず鉄あるいはウラン合金の陰極を用いて溶融塩浴中のUのみを析出回収する。引き続き溶融Cd陰極を用いて、溶融塩浴中に残留するUとPu及びTRU元素を同時に析出回収する〔デュアル陰極法〕。デュアル陰極法によると、Puは単体のままでは回収されないため、核拡散抵抗性が高いという本プロセスの利点が得られる。電解精製工程で発生する塩化物塩及びCdは、上述のような溶融塩／溶融Cd間の分配平衡に基づく手法によって処理し再利用される。

I FR計画における乾式再処理技術の成否は提案されている金属燃料サイクル自体の成立を大きく左右するため、実験室規模からパイロットプラント規模までその内容を拡大しながら極めて精力的な研究開発が推進されている。現時点で幾つかの今後の検討課題が指摘されているが、次の二点が直接再処理工程に係るものとしてあげられる。

- (i) 電解回収、精製工程の処理速度を向上するための条件の最適化と関連機器開発、
- (ii) 廃棄物処理技術の開発、特に塩化物廃棄物の固化、安定化のための技術。

表 2.3.1 主要な溶融塩分離法の概要

要 溶 法	試験又は名称	試 薬 等 形 态 等	分離対象又は方法	基 本 プ ロ セ ス	長 所・短 所	実績(場所)	廃物など
溶融重力法 Al金属-溶融LiCl	(系) 35wt%NaCl-35wt%KCl, アルゴン雰囲気	金属Na-から771K の分離	PuLiMg <sub>2</sub> と反応して出中にに生成される。 反応は以下の通り An + 3/2MgCl <sub>2</sub> → AnCl <sub>3</sub> + 3/2Mg 後の回収率を上げるために抽出は2段に行われている。	PuLiMg <sub>2</sub> と An + 3/2MgCl <sub>2</sub> → AnCl <sub>3</sub> + 3/2Mg	炉内にへの一歩が歩行 する。出中のAn, Mn の 回収が必要	2kgのバッチ運 送を実施。 アメリカ RF P	ルツボ 鉛など
(系) MgCl <sub>2</sub> 化物-溶融 LiCl-抽出金属	溶融組成: CaCl <sub>2</sub> -CaF <sub>2</sub> , 抽出金属: Cu-Mg 還元剤: Ca金属	Puの炉への抽出、U, Pu 炉内の抽出金属への 抽出	CaCl <sub>2</sub> -CaF <sub>2</sub> , Ca	CaCl <sub>2</sub> -CaF <sub>2</sub> , Ca CaCl <sub>2</sub> -CaF <sub>2</sub> -CaO + alkaline, alkaline-earth element.	ウランは沈殿として折 出。元素の溶解度デー タ不十分。 Mn, Mg, Mn, 土類金属が 炉内中に析出する。	バッチ小規模試 験を実施。 アメリカ ANL	ルツボ 鉛など
電 送 法	(系) 含行金属-炉-炉-抽出 抽出金属	含有金属: U, Pu, TRU, FP in Cu-Mg金属 抽出金属: Zn-Mg	Pu, TRU, 銅FPの炉出 FPの炉への抽出	U, Pu, TRU, FP Cu-Mg 有企鐵 Zn-Mg MgCl <sub>2</sub> -KCl-NaCl FP	バッチ小規模試 験を実施。 アメリカ ANL	バッチ小規模試 験を実施。 アメリカ ANL	ルツボ 鉛など
地 解 金 属 法	(系) 溶融金属-溶融塩 -金属燃料	溶融金属: Cd 溶融塩: KCl-LiCl	ウランの精製、TRU 製	Cd中で選択溶解 (精製) ・ウランの亜硝酸抽出 (精製) TRU の溶融金属抽出 (精製) ウラン抽出 金属燃料 O2供給 TRU 精製 精製	TRUの回収を望む ・シカバの注入。	バッチ小規模試 験を実施。 アメリカ ANL	ルツボ 鉛など

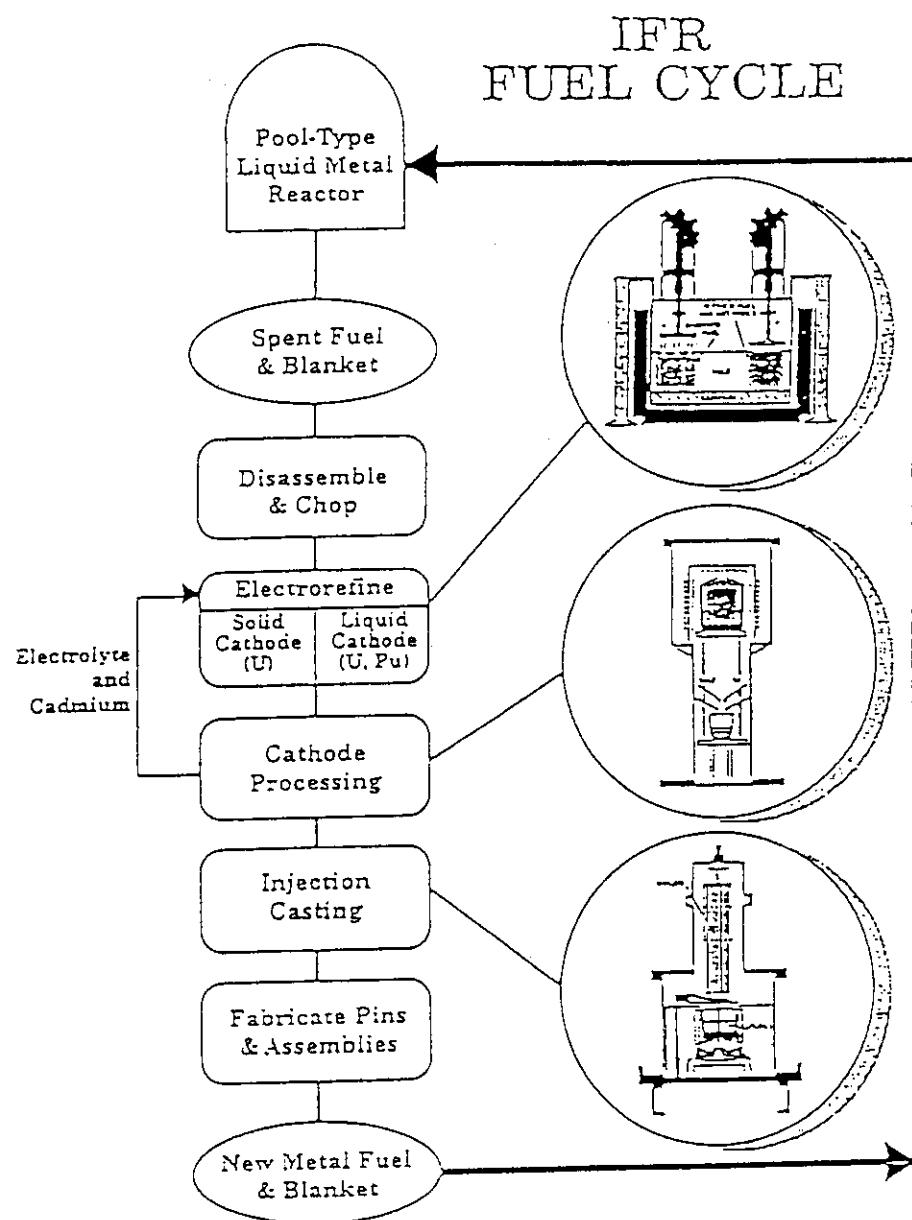


図 2.3.1 金属燃料再処理フローシート

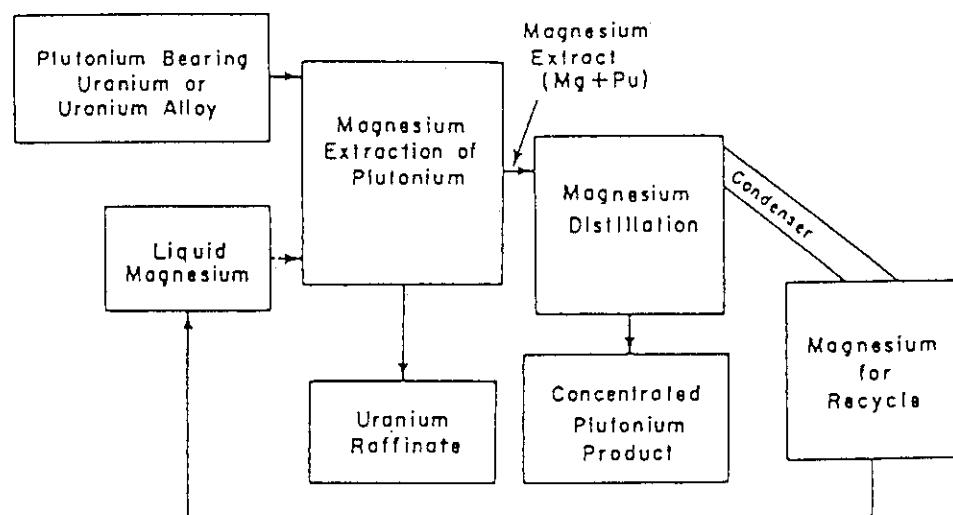


図 2.3.2. Pu の Mg 抽出法による再処理フローシート

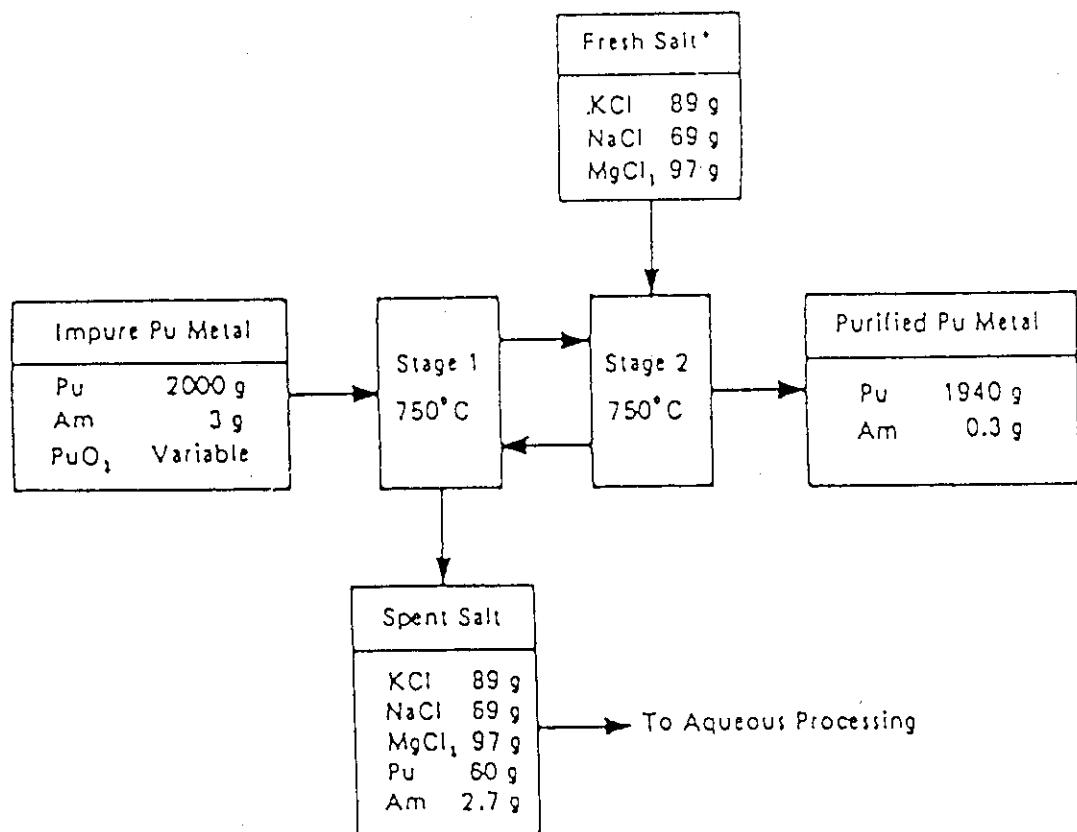


図 2.3.3 溶融塩抽出プロセス概要

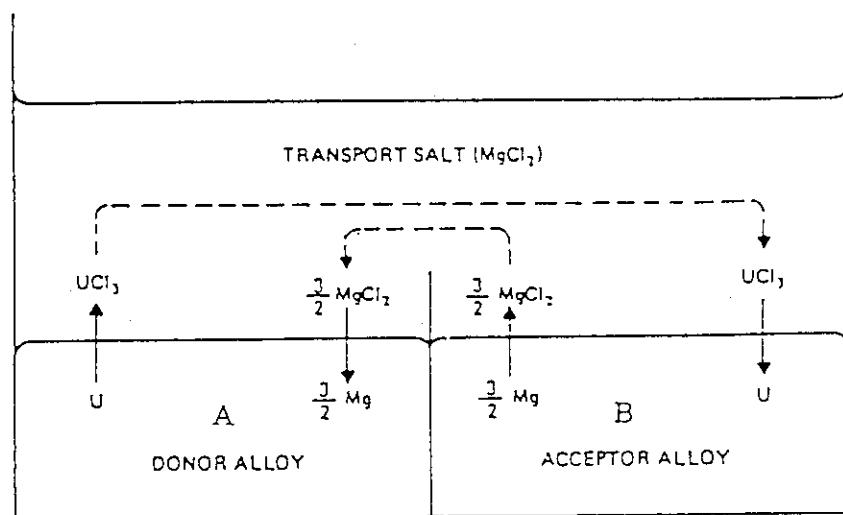


図 2.3.4 Salt Transport 法の概念図

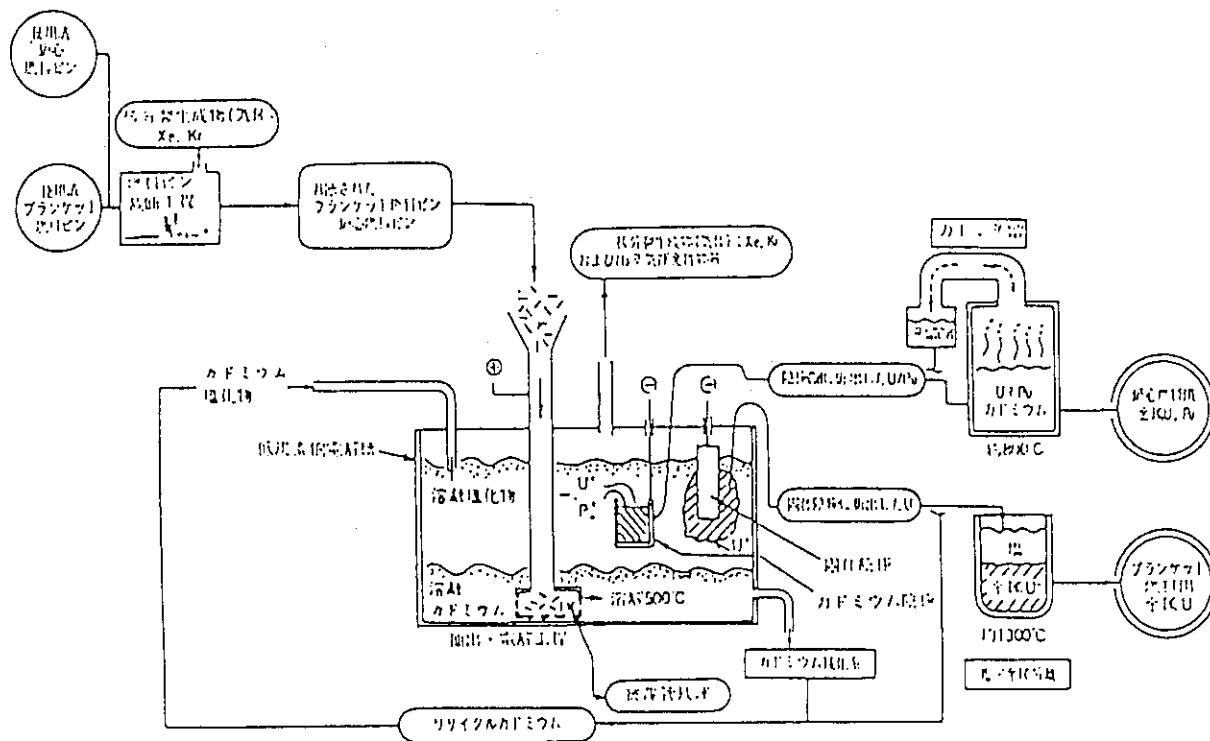


図 2.3.5 溶融塩電解回収、精製法の概略

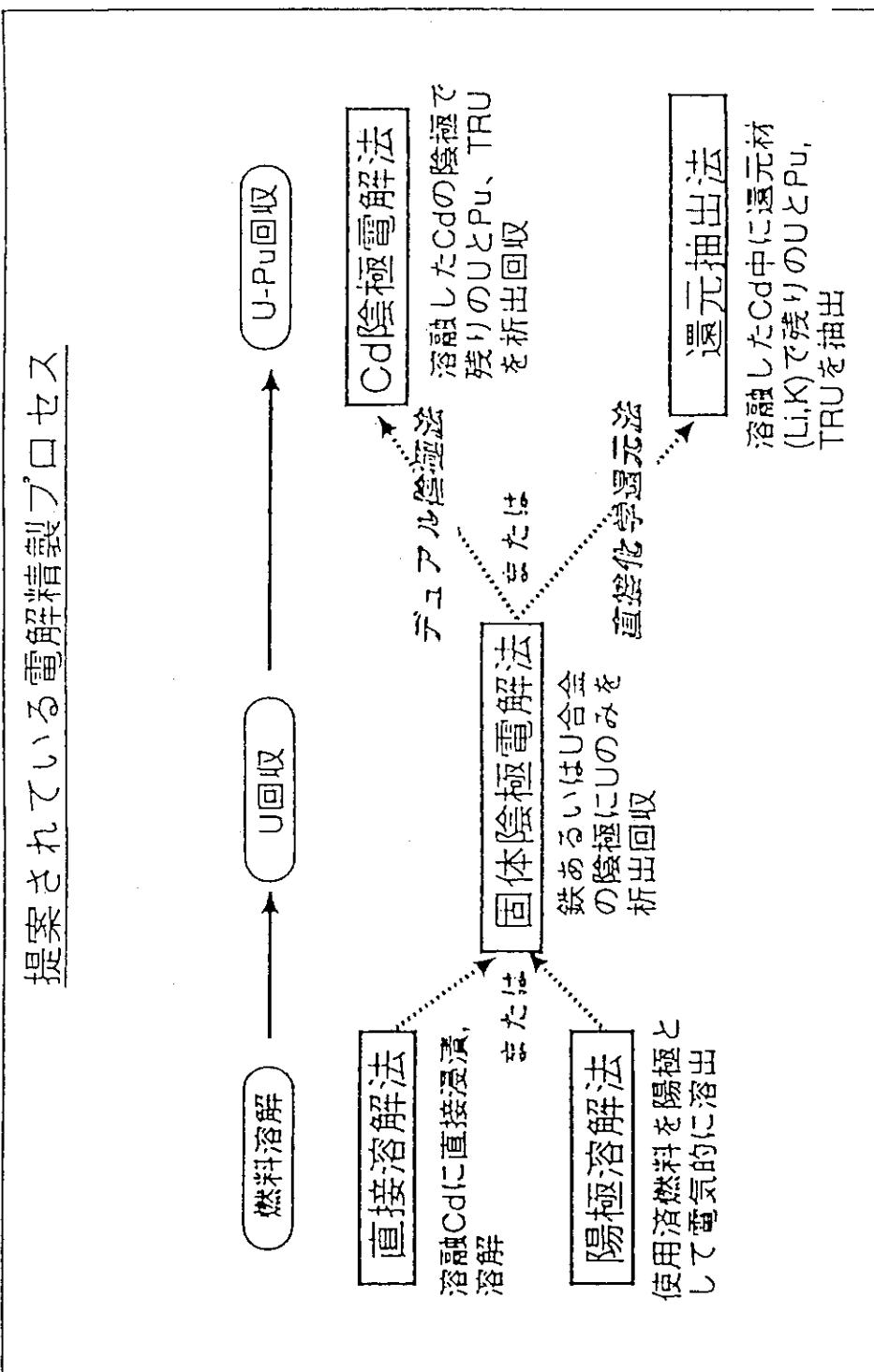


図 2.3.6 金属燃料再処理フローシートの電解法

### 3. バックエンド試験施設

#### 3.1 試験施設の目的

バックエンド試験施設では、将来型燃料サイクルシステムのプルトニウムリサイクルに対応する技術基盤を整備することを目的とした試験研究を実施する。特に、TRU核種を分離回収してリサイクル利用することに力点を置いた試験研究を行う。燃料としては、超高燃焼燃料などの新型燃料を想定し、再処理プロセスとしては、先端的分離技術を取り入れた再処理群分離統合プロセスを研究する。

NUCEF等の研究成果を踏まえて、準工学規模での新型燃料の溶解性、TRU核種の相互分離などの試験研究や、TRU廃棄物処理等周辺技術の開発、また、TRUを「燃料製作・試験施設」やその他の研究施設にリサイクルするために高純度精製技術に関する基礎研究を実施する。

試験するプロセスは、1つに限定しないで、可能ないくつかのオプションについて試験研究ができるような自由度を持った試験研究施設とする。プロセスを単純化合理化することを目標に、新しい分離要素技術について適用基礎試験を行う。

試験施設の研究目的をまとめると以下のようになる。

- ① 再処理群分離統合プロセスの研究
  - ・燃料溶解性向上の研究
  - ・プルトニウムとTRUの回収率向上の研究
  - ・TRU核種を回収する最適プロセスの開発
  - ・TRU核種相互分離プロセスの研究
  - ・アクチノイドとランタノイドの相互分離法の研究
- ② 高純度精製技術の開発研究
  - ・TRU核種の分離精製技術の研究
  - ・有用FP核種の分離精製技術の研究
- ③ TRU廃棄物処理技術の開発研究
  - ・難溶性TRU回収技術の研究
  - ・TRU廃棄物減容技術の研究
  - ・TRU廃棄物固化技術の研究

### 3.2 基本設計条件

#### 3.2.1 想定燃料

新型燃料として超高燃焼燃料を取り上げた。この使用済燃料の主要核種組成を、表3.2.1に示す。最大燃焼度100GWd/t、冷却なし、照射前Pu富化度は最大15wt%、TRU添加量は最大5%である。

受け入れ燃料は、燃料棒外径7~13mm、有効長200cmの燃料ピン及びピン解体物とした。なお、ペレットは、外径6~12mmの混合酸化物燃料(MOX)を主体とするが、一部窒化物燃料もあり得るとした。ウランは、天然、劣化、及び回収物である。燃料仕様を表3.2.2に示す。

#### 3.2.2 設計条件

分離プロセスの処理設備能力は、1試験当たり最大15kgMOX、TRU取扱量は最大550gとした。年3回の試験を実施することとし、MOX燃料ピンで年間最大50本(約42kgMOX)を再処理する能力を持つ。

ウランの回収率は99%以上とし、プルトニウム及びTRU核種の回収率は99.9%を目標とする。核種ごとに単離して精製する。純度はいずれもリアクタグレードを基本とする。なお、回収製品は、ウラン、プルトニウム、TRU核種のいずれも酸化物とする。

照射燃料は、キャスクで受け入れ、剪断、溶解し、分離処理(再処理、群分離)し、回収製品をそれぞれ精製して、転換するまでの一連のプロセスを試験研究として実施できるように計画した。分離技術は、分離精製能力が高い溶媒抽出及びイオン交換技術を主力技術とするが、新規の抽出剤、レーザー、乾式技術など、先端的で多彩なリサイクル技術の適用基礎試験を実施できるように配慮した。

また、この施設を、わが国のTRU核種リサイクル利用の中核的研究施設として位置づける立場から、TRU核種の高純度精製、TRU廃棄物処理について試験研究を行い、他の研究機関でのTRU利用に役立てるとした。

処理燃料は、冷却なしでTRU核種を多く含む試験燃料であるため、分離プロセスは、特に、以下の点を配慮することとした。

- ① 放射能が高い部分では、無機的方法を採用することで有機溶媒の放射線劣化を抑制する。
- ② 使用済み燃料に大量に存在するウランを分離プロセスの前段部で取り除き、取扱量を減らすことで後続プロセスの装置サイズを小さくする。

表 3.2.1 使用済燃料中の主要核種組成(1.05トンM当たり)

元 素	使用前組成	使用後組成	備 考
U	842,044.0	817,054.0	単位
Np	25,998.9	13,044.5	g
Pu	157,429.3	95,528.3	g
Am	22,704.6	13,218.9	g
Cm	3,852.8	11,651.0	g
NM	0.0	180.0	gram atom
RE	0.0	210.3	gram atom
Sr	0.0	1,211.4	g
Cs	0.0	9,558.5	g
Tc	0.0	2,194.8	g

\* 計算: ORIGIN-2 使用  
 プルトニウム15%、アクノイド5%、天然ウラン  
 燃焼度 100GWd/t、比出力40MW/t  
 冷却なし

\*\* 重量への換算には、1gram atom重 量として、Sr=90, Cs=137, U=238, Np=237,  
 Pu=239, Am=241, Cm=244, Tc=99 を使用した。

\*\*\* NM及びREは、それぞれRu, Rh, Pdの合計gram atom 数、及びY, La, Ce, Pr, Nd, Pm  
 , Sm, Eu, Gd の合計gram atom 数

表 3.2.2 超高燃焼試験燃料の仕様

ペレット仕様	
(1) 組成	① ウラン、プルトニウム酸化物及び窒化物 ② プルトニウム富化度最大 15 % ③ TRU 添加量最大 5 % ④ ウランは、天然、劣化、回収 U ⑤ 添加物 Gd
(2) 外径	6 ~ 12 mm
(3) 形状	デッシューチャンバー付、又は中心空孔付円筒形状
(4) 密度	85 ~ 98 % T.D.
燃料棒一集合体仕様	
(1) 燃料棒外径	7 ~ 13 mm
(2) 燃料有効長	200 cm
(3) 被覆管材質	ジルカロイ、ジルコニウム合金 (Zr-Nb 等)、ステンレス鋼、チタン
(4) ガス加圧量	35 kg/cm <sup>2</sup> 以下
(5) 支持格子材質	インコネル、ジルカロイ、ジルコニウム合金
(6) 燃料ピン配列	5 × 5 (25 本 / 1 集合体)
施設受入れ形態	
(1) 燃焼度	最大 100 GWd/t
(2) 冷却期間	炉取り出し後 1 年以内
(3) 受入れ形状	燃料ピン、燃料ピン解体物

### 3.3 施設概念

#### 3.3.1 構成

試験施設は、地下1階、地上2階の3階建てとした。プロセス設備を工程毎に収納するコンクリートセル（ $\alpha\gamma$ セル）を中心として構成する。セルは2階構造とした。地上1階及び地下1階の平面図を図3.3.1に示す。地上2階には、管理室、オフガス処理及び分析室を配置した。施設鳥かん図を図3.3.2に示す。建屋は75m×40mである。

施設は、以下の設備で構成される。

- ① 使用済燃料受入れ貯蔵設備
- ② ウラン、プルトニウム回収設備
- ③ TRU回収設備
- ④ 新技術開発試験設備
- ⑤ 廃液処理設備
- ⑥  $\alpha$ 廃棄物、液体廃棄物保管設備
- ⑦ オフガス処理設備
- ⑧ 分析設備
- ⑨ 空調設備

照射燃料は、カナルを介して搬送する。使用済燃料受入れ貯蔵設備では、照射燃料を前処理するまでの期間、燃料ピン及びピン解体物を一時的に保管する。ウラン、プルトニウム回収設備及びTRU回収設備はバックエンド試験施設の主要部である。新技術開発試験設備では、プルトニウム及びTRU核種の分離プロセスメインフローのオプションとなる革新的プロセス技術開発及びTRU廃棄物処理に関する研究開発を行う。廃液処理設備では、施設の運転に伴って発生する放射能レベルの低い廃液を保管可能な形態に処理する。 $\alpha$ 廃棄物、液体廃棄物保管設備では、施設の運転に伴い発生する固体廃棄物及び放射能レベルの高い液体廃棄物を貯蔵する。

#### 3.3.2 セル

試験施設の主要部は、分離プロセスのメインフローを構成するセル（表3.3.1）及びこれに付加した新規技術研究用セルで構成される。付帯設備を表3.3.2に示す。

セルは、工程毎に区分けされており、これを図3.3.3のように組み合わせることによって、いくつかの異なるプロセスについて試験が行えるようにした。なお、図3.3.4に示すように、脱被覆セル、溶解セル等を高い位置（地上1階）に配置することで、低い方へ物質が流れるようにした。

高温化学法を想定した乾式抽出技術研究用セルについては、Arガスシールによって不活性雰囲気とする必要がある。

図3.3.1の平面図で、紙面上方向を北側とすると、照射燃料は建屋北側の西部からカナルを通して受け取る。受け入れた燃料は、地上1階北側のセル内で脱被覆、粉末化処理を行い、さらに溶解、清澄を行う。1階北側のセルラインは、溶解セル等を除いて乾式のラインとした。このラインには、乾式抽出工程を組み入れ、また、最東端には乾式新技術開発セルを配置した。

溶解液は、地下で連結したセルを通して地上1階南側の湿式分離プロセスにはいり、ウラン回収、無機分離、溶媒抽出工程を経る。溶媒抽出工程は第1から第3まであり、溶媒抽出第1工程では、U、Pu、NpとAm、Cmの分離を行い、溶媒抽出第2工程では、U、Pu、Npの相互分離を行う。この溶液は、地下1階の南側セルに移送して精製、転換する。溶媒抽出第3工程においては、Am、Cmの相互分離を行う。TRU転換工程においては、Am、Cm及びNpの酸化物への転換を行う。これらの回収製品は、最西端から地上1階に上げて搬出する。地下1階の北側セルでは、酸回収、溶媒回収、廃棄物処理及び関連技術開発を行う。また、その他、湿式新技術開発セル、高純度精製技術開発セルなどの付属セルを配置した。

### 3.3.3 主要構成機器

工程毎に区分した主要な構成機器を表3.3.3に示す。

表 3.3.1 バックエンド試験施設の主要セル

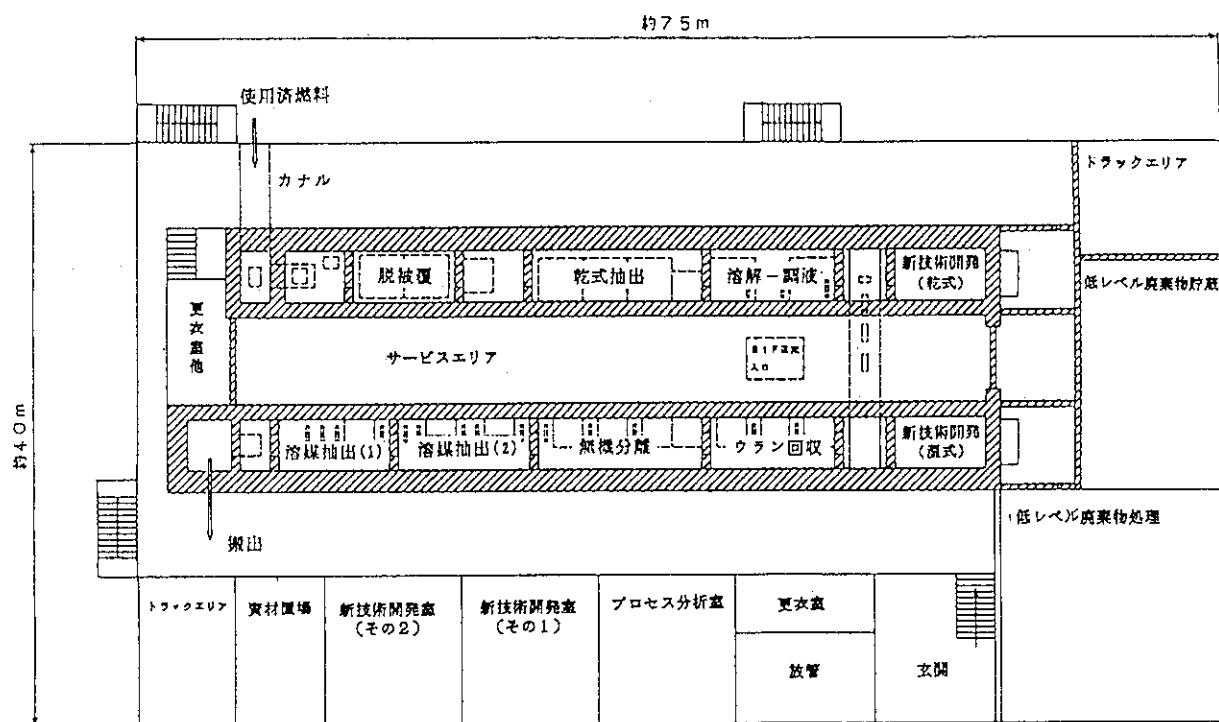
No	セル名称	目的及び仕様
1	脱被覆セル	燃料ミート分離；乾式
2	溶解一調液セル	溶解前処理、溶解、液調整；乾式一湿式
3	乾式抽出セル	燃料乾式溶解、高放射性FP分離；乾式
4	ウラン回収セル	ウラン分離、硝酸回収；湿式
5	無機分離セル	高放射性FP分離；湿式
6	溶媒抽出分離セル1	U, Pu, NpとAm, Cmの分離；湿式
7	溶媒抽出分離セル2	U, Pu, Np相互分離；湿式
8	溶媒抽出分離セル3	Am, Cm相互分離；湿式
9	精製セル	U, Pu, TRU精製；湿式
10	転換セル1	U, Pu精製物の酸化物転換；湿式一乾式
11	転換セル2	TRU精製物の酸化物転換；湿式一乾式
12	酸回収セル	酸回収；湿式
13	溶媒回収セル	溶媒再生；湿式
14	廃棄物処理技術開発セル	TRU廃棄物処理／技術開発；湿式、乾式
15	高純度精製セル	高純度精製
16	新技術開発セル1	湿式技術開発；湿式
17	新技術開発セル2	乾式技術開発；乾式
18	高レベル廃棄物貯蔵	貯蔵
19	除染セル	汚染機器除染
20	準備セル	各種準備作業実施場所

表 3.3.2 バックエンド試験施設の付帯設備

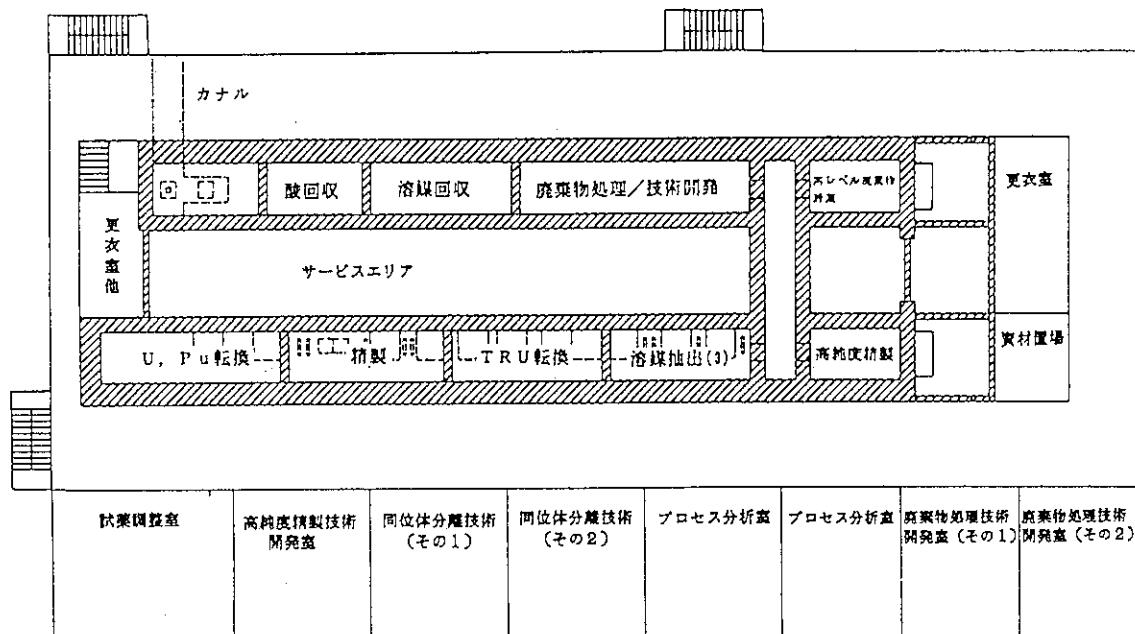
付 帯 設 備 名 称	設 備 機 能 等
使用済み燃料受入れ貯蔵設備	使用済み燃料（燃料ピン、ピン解体物）を照射後試験施設から受入れ、一時保管する。
新技術開発試験設備	主要工程の革新的な技術、高純度精製技術、同位体分離技術、廃棄物処理技術などを開発する。 (1)革新技術開発 2室(10m×10m) (2)高純度精製技術 2室(10m×10m) (3)同位体分離技術 2室(10m×10m) (4)廃棄物処理技術 2室(10m×10m)
廃液処理設備	施設運転に伴い発生する放射能レベルの低い廃液を保管可能な形態に処理する。 (1)低レベル廃液貯蔵設備 (20m <sup>3</sup> 程度) (2)廃液蒸発濃縮設備 (3)濃縮廃液固化設備
α廃棄物、液体廃棄物保管設備	施設運転に伴い発生する固体廃棄物、及び放射能レベルの高い液体廃棄物を保管する。 (1)固体廃棄物保管設備(ドラム缶400本程度) (2)高レベル放射性廃液保管設備(5m <sup>3</sup> 程度)
分析設備	運転管理、在庫管理、廃液処理、技術開発などに関する分析を行う。 (1)高線量分析室 3室 (機器、化学分析) (2)低線量分析室 3室 (機器、化学分析) (10m×10m)
換気設備	施設運転に必要な建屋換気を行う。
試薬調整設備	施設運転に必要な試薬を貯蔵・調整する。
その他ユーティリティー ・蒸気 ・冷却水 ・圧縮空気 ・ガス ・電気 ・その他	外部からの引き込みとし、付帯設備としては検討しない。

表 3.3.3 主要機器リスト

工程区分	小区分	機器名	備考
脱被覆工程		・ピン剪断機・レーザ剪断機	
溶解工程	酸化	・燃料酸化炉	
	溶解	・溶解槽・ハル洗浄槽・ハル貯蔵容器・不溶解残渣貯槽 ・溶解液貯槽	
	調液	・遠心清澄機・清澄液受槽・PGM分離器・液調整槽	
ウラン回収工程	ウラン回収	・ウラン晶析、分離、洗浄、再溶解槽・洗浄水貯槽・母液受け槽	
	母液蒸発濃縮	・蒸発濃縮缶・流出液受け槽	
沈殿分離工程	脱硝・沈殿分離	・脱硝、分離、再溶解槽・溶解液貯槽	
	過酸化水素沈殿分離	・沈殿、分離、再溶解槽 ・分離液受け槽	
溶媒抽出分離工程	Pu, Np/Am, CmC 分離、Pu/Np 分離	・供給槽・溶媒供給槽(TBP)・ミキサセトラ(1基) ・ラフィネット受け槽・Np液受け槽・Pu液受け槽 ・溶媒受け槽・洗浄液供給槽 ・Np逆抽出液貯槽・Pu逆抽出液貯槽	
	代替プロセス	・ミキサセトラ(3基)・溶媒供給槽(DIDPA) ・DTPA貯槽・ラフィネット受け槽 ・Np, Pu液調整槽・溶媒受け槽(DIDPA) ・DTPA受け槽・Np, Pu抽出液貯槽・脱硝濃縮缶	追加機器分のみ
	Am/Cm分離(イオン交換)	・液調整槽・イオン交換カラム(2基)・流出液受け槽 ・溶離液貯槽・Am, Cm液受け槽・Am液貯槽・Cm液貯槽	
溶媒抽出分離工程	Am/Cm分離(代替プロセス)	・液調整槽・Am, Cm分離ミキサセトラ・洗浄液貯槽 ・逆抽出液貯槽・Am, Cm, 貯槽	
	精製工程	・ウラン精製・洗浄・再溶解槽・再溶解液受け槽・洗浄廃液受け槽 ・洗浄液供給槽	
転換工程	U転換	・マイクロ波加熱転換炉・粉末かきとり器・U酸化物貯蔵容器	
	U-Pu転換	・マイクロ波加熱転換炉(*)・粉末かきとり器(*)・焙焼・還元炉 ・U-Pu混合酸化物貯蔵容器	(*) U転換と共通
	Np転換	・Np液蒸発濃縮缶・マイクロ波加熱転換炉・粉末かきとり器 ・焙焼・還元炉・Np酸化物貯蔵容器	
	Am, Cm転換	・マイクロ波加熱転換炉(*)・粉末かきとり器(*)・焙焼・還元炉(*) ・Am酸化物貯蔵容器・Cm酸化物貯蔵容器	(*) Np転換と共通
その他	オフガス処理	・NOx吸収塔・ヨウ素フィルタ・トリチウム回収塔 ・炭素14回収塔・クリプトン回収塔 ・HEPAフィルタ・プロセスオフガス洗浄塔	
	酸回收	・プロセス廃液1貯槽・蒸留塔 ・プロセス廃液2貯槽 ・蒸発缶・HLLW廃液貯槽 ・低レベル廃液貯槽 ・中和沈殿槽・ろ過機 ・回収硝酸貯槽 ・中和廃液貯槽 ・プロセス廃液3貯槽 ・蒸発濃縮缶・濃縮液受け槽	7°セス廃液1:オフガス回収液、硝酸流出液、Np, Pu濃縮凝縮液等 7°セス廃液2:ライネート1, 2等 7°セス廃液3:ろ液、イソ交換分離液等
	溶媒回収	(DIDPA系)・廃溶媒貯蔵・供給槽・洗浄液供給槽 ・溶媒洗浄ミキサセトラ・再生溶媒貯槽・洗浄廃液貯槽 (TBP系)・廃溶媒貯蔵・供給槽・洗浄液供給槽 ・溶媒洗浄ミキサセトラ・再生溶媒貯槽・洗浄廃液貯槽	
乾式抽出工程	溶融金属抽出	・溶融金属抽出器・Mg/U金属抽出器・Mg金属抽出器 ・Mg蒸留回収器・U金属容器・Mg蒸留残金属容器 ・塩廃棄物貯蔵容器・塩/金属分離器	

N  
↑

(地上1階)



(地下1階)

図 3.3.1 バックエンド試験施設の平面図（地上1階と地下1階）

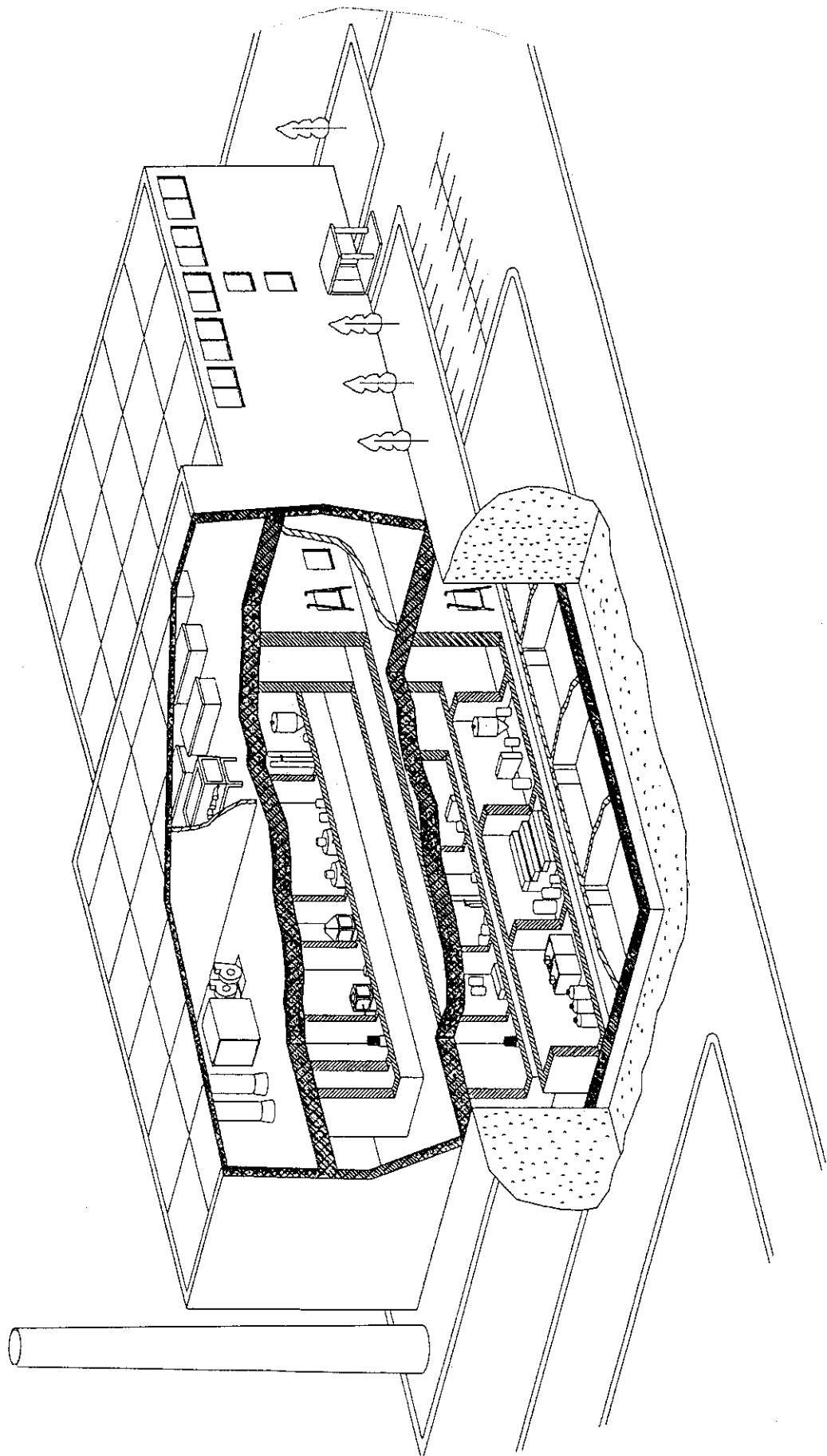


図 3.3.2 パックエンド試験施設の鳥瞰図

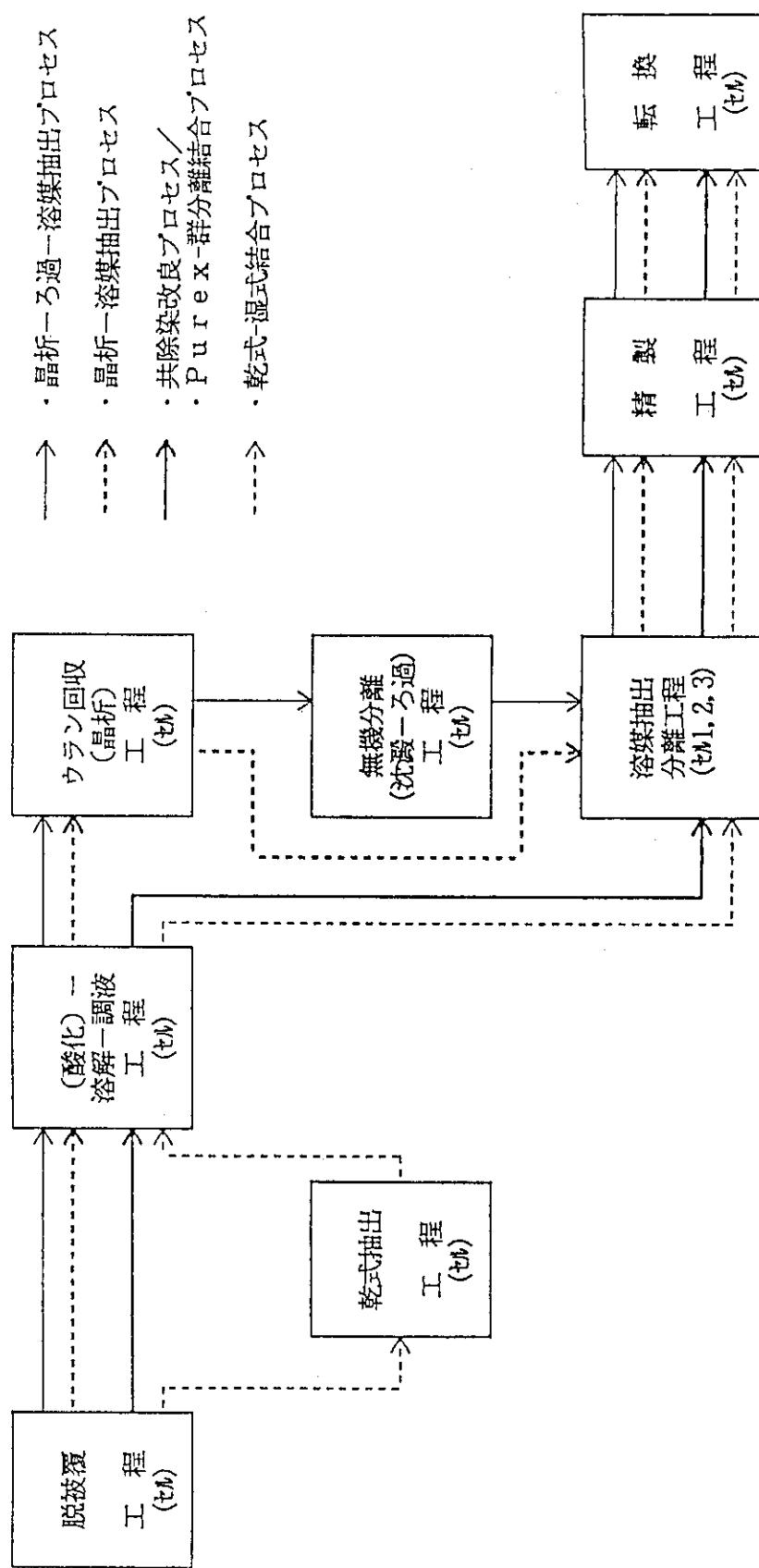


図 3.3.3 バックエンド試験施設における分離プロセス試験の工程セル組み合わせ

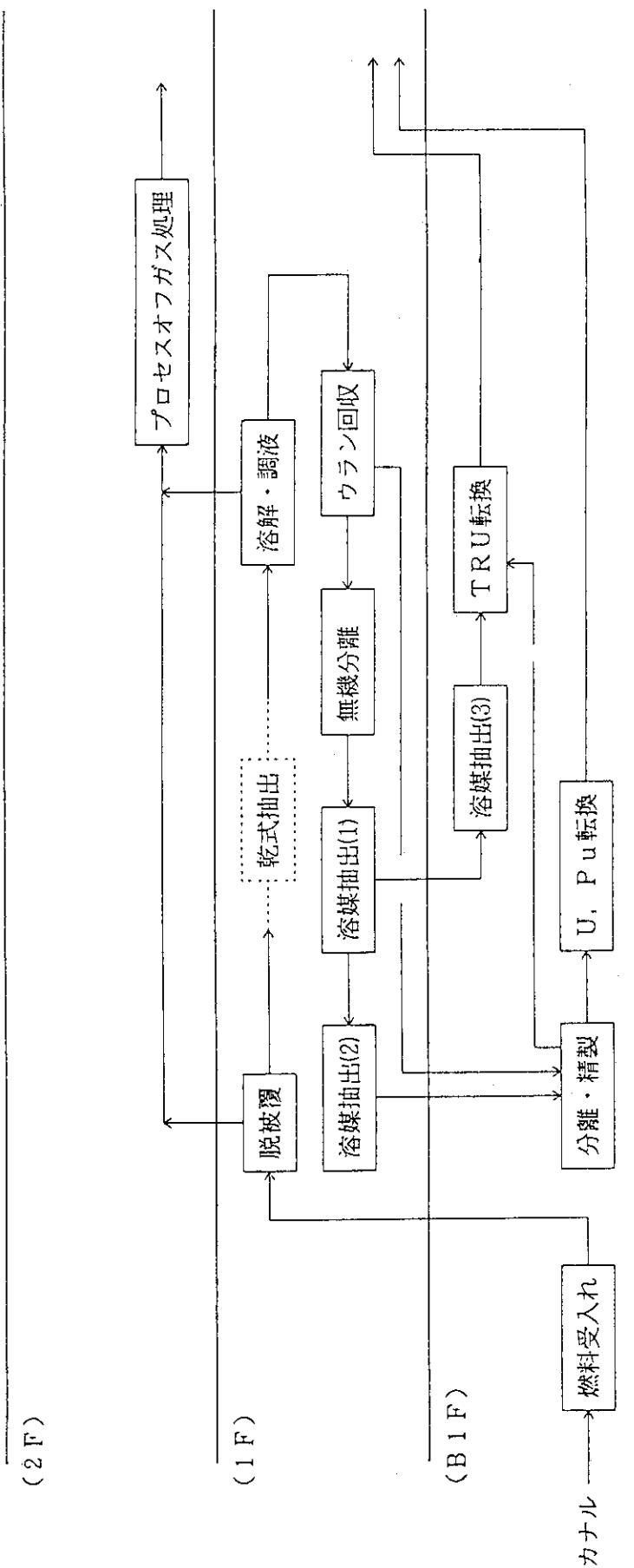


図 3.3.4 ノックエンド試験施設の立面的な物質フロー

### 3.4 分離プロセスのフローダイアグラム

#### 3.4.1 メインフローシート

新型燃料の再処理群分離統合プロセス試験研究用のメインプロセスフロー概念を図3.4.1に示す。まず、燃料をレーザ剪断で剪断し、酸化処理を施した後、粉末状燃料として溶解する。溶解液から、不溶解性残渣、白金族元素（PGM）を分離し、原子価調整、酸濃度などの調整を行う。

晶析法によって、大量にあるウランを硝酸ウラニル結晶として沈殿させ、この結晶を分離・洗浄する。この操作をもう一度繰り返すことでウランを精製する。プルトニウムとTRU核種は溶液に残留するが、洗浄廃液も一緒に混合して過剰の硝酸分を蒸発濃縮缶によって回収した後、ギ酸、シュウ酸等を添加してPuとTRU核種を沈殿させろ過する。ろ過液は高レベル廃液として処理する。また、回収した沈殿は、再溶解した後、溶媒抽出によってプルトニウム及びTRU核種の相互分離を行う。

溶媒抽出工程では、リン酸トリブチル（TBP）あるいはジイソデシルリン酸（DIDPA）等の新規抽出剤によってU, Pu, NpとAm, Cm, ランタノイド（Ln）を相互分離する。図3.4.1では、溶媒抽出工程にTBPを使った場合を示してあり、図3.4.2では、DIDPAを使用する場合を示してある。両者で抽出器の基数が異なるため、多い方の基数に合わせて設備しておく。U, Np, Puについては、TBPあるいはDIDPAによってNp, PuをUから分離し、さらにPuとNpを分離し精製する。Am, Cm, Lnについては、イオン交換法あるいはDIDPAによる溶媒抽出法によってAm, CmとLnを分離し、さらにAmとCmを分離する。

個別に分離された元素のうち、プルトニウムについては、濃縮し、ウランと混合してMOXとしてマイクロ波脱硝し、電気炉で焙焼・還元する。また、Np, Am, Cmは、濃縮、シュウ酸沈殿、ろ過し、電気炉で焙焼・還元する。

なお、剪断燃料の一部を取り出して、高温化学的抽出分離の基礎試験を実施する。この工程は、Arガスシールドした特別のセルに収納する（図3.4.3）。この工程を利用した場合は、晶析工程をスキップすることができるが、製品は粗分離であるのでTRU核種を相互に分離する場合は、TRU金属製品を再溶解して引き続き上記の溶媒抽出工程によって相互分離を行う。

#### 3.4.2 オプション

TRU核種を全て分離回収する再処理プロセスを想定したとき、基本概念として表3.4.1に示すものが考えられる。この表には、そのプロセスを構成する適用技術と課題も示した。基本概念（a）は、溶解液からTRU核種を含まないI価、II価の高放射性元素

をまず除去し、放射能が低くなったところでウラン、プルトニウム、TRUの分離を行う。概念(b)は、使用済燃料で最も量が多いウランを取り除き、取扱量を少なくしたところで、高放射性核種の分離、プルトニウム、TRU核種の分離を行うものである。基本概念(c)は、再処理プロセスの高レベル廃液からTRUを回収する。

それぞれの基本概念においても、適用技術の選定によって以下のようないくつかの異なったプロセスを構築することができる。

#### 基本概念(a)

- ① 塩輸送-溶媒抽出プロセス(乾式-湿式混合プロセス) (図3.4.4)
- ② 溶融金属抽出-溶媒抽出プロセス(乾式-湿式混合プロセス) (図3.4.5)
- ③ 新抽出剤共除染改良プロセス(湿式新溶媒抽出プロセス) (図3.4.6)

#### 基本概念(b)

- ① 晶析-ろ過-溶媒抽出プロセス(湿式晶析プロセス) (図3.4.7)
- ② 晶析-溶媒抽出プロセス(湿式晶析プロセス) (図3.4.8)

#### 基本概念(c)

- ① Purex再処理-群分離統合プロセス(湿式溶媒抽出プロセス)  
(図3.4.9)

ここに挙げた6つのプロセスを、工程の簡素さ、工程の確かさ、プロセスフローのスマートさ、新規性/将来性、廃棄物の発生量の低減化、装置材料に関する確かさ、安全性などについて評価した。ただし、各項目には、表3.4.2のように重み付けを行った。ここに、Aは10、Bは7、Cは5を評価の最高点とした。

表3.4.3に評価結果を示す。評価点はプロセス相互に接近しているが、最高点を取得したのは、共除染改良プロセスと晶析-ろ過-溶媒抽出プロセスである。共除染改良プロセスでは、共除染工程に使用された実績がないCMPOのようなTRU分離機能を有する溶媒を利用する事になる。晶析-ろ過-溶媒抽出プロセスでは、原子力分野への適用は試みられているものの、未だ溶解液に適用した実績がない晶析技術を採用することになる。

試験施設のメインフローシートは、図3.3.3のように工程を組み合わせることによって、いずれのオプションに対しても基礎データを取得できるように設計したものである。

表 3.4.1 TRU を分離回収する再処理プロセスの基本フロー概念と適用技術と課題

メイントロセス基本フロー案	適用技術	考えられる課題等
(プロセスフロー基本概念(a))		
(1) 前処理 → 1,2FP 分離 ① TRUE X 法 ② 溶融塩抽出法	(1) 1,2FP 分離 ① 第三相の形成／溶解放液に対する適用性 ② 耐放射線性(Uo to 100MW/t)など／後流プロセスとの連続性など ③ データの蓄積不足／耐放射線性など	(1) 1,2FP 分離 ① 耐放射線性(Uo to 100MW/t)など／後流プロセスとの連続性など ② データの蓄積不足／耐放射線性など ③ U/Pu/TRU-Ln 相互分離 ① Pu/TRU-Ln 相互分離 ② 第三相の形成／液の適用性など ③ 液の適用性など
(2) U/Pu/TRU-Ln 相互分離 ① Pure X 法 ② TRUE X 法 ③ DIPDA 法	(2) U/Pu/TRU-Ln 相互分離 ① Pu/TRU-Ln 相互分離 ② 第三相の形成／液の適用性など ③ 液の適用性など	(2) U/Pu/TRU-Ln 相互分離 ① 耐放射線性／液の適用性など ② 前後プロセスとの連続性など ③ データの蓄積不足／液の適用性など
(3) TRU/Ln 相互分離 ① TALSPEAK 法( and reverse TALSPEAK 法) ② TRANEX 法 ③ TPZ+DANS 法 ④ 吸着法(イオン交換クロマトグラフィー)など	(3) TRU/Ln 相互分離 ① TRU/Ln 相互分離 ② 耐放射線性／液の適用性など ③ データの蓄積不足／前後プロセスとの連続性など ④ 液の適用性など	(3) TRU/Ln 相互分離 ① TRU/Ln 相互分離 ② 耐放射線性／液の適用性など ③ データの蓄積不足／前後プロセスとの連続性など ④ 液の適用性など
(プロセスフロー基本概念(b))		
(1) 前処理 → U 分離 ① TRU-Ln 分離 ② TRPO 法 ③ DIPDA 法 ④ TAAPDA 法など	(1) U 分離 ① 溶融塩抽出法 ② 塩輸送法 ③ 品析法など	(1) U 分離 ① データの蓄積不足／液の適用性など ② データの蓄積不足／後流プロセスとの連続性など ③ データの蓄積不足／後流プロセスとの連続性など
(2) U/Pu/TRU-Ln 相互分離 ① TRU-Ln 相互分離 ② TPZ+DANS 法 ③ 吸着法(イオン交換クロマトグラフィー)など	(2) Pu/TRU-Ln 相互分離 ① TRU-Ln 相互分離 ② TRPO 法 ③ DIPDA 法 ④ TAAPDA 法など	(2) Pu/TRU-Ln 相互分離 ① 耐放射線性／HLW に対する適用性など ② データの蓄積不足／液の適用性など ③ 液の適用性など ④ データの蓄積不足／液の適用性など
(3) TRU/Ln 相互分離 ① TALSPEAK 法( and reverse TALSPEAK 法) ② TRANEX 法 ③ TPZ+DANS 法 ④ 吸着法(イオン交換クロマトグラフィー)など	(3) TRU/Ln 相互分離 ① TALSPEAK 法( and reverse TALSPEAK 法) ② TRANEX 法 ③ TPZ+DANS 法 ④ 吸着法(イオン交換クロマトグラフィー)など	(3) TRU/Ln 相互分離 ① 耐放射線性／液の適用性など ② 液の適用性／前後プロセスとの連続性など ③ データの蓄積不足／液の適用性など ④ 液の適用性など
(プロセスフロー基本概念(c))		
(1) 前処理 → U-Pu 分離 ① Pure X 法	(1) U-Pu 分離 ① Pure X 法	(1) U-Pu 分離 ① 耐放射線性／液の適用性など
(2) TRU-Ln 分離 ① TRUE X 法 ② TRPO 法 ③ DIPDA 法 ④ 支持型液体膜法など	(2) TRU-Ln 分離 ① TRUE X 法 ② TRPO 法 ③ DIPDA 法 ④ 支持型液体膜法など	(2) TRU-Ln 分離 ① 耐放射線性／HLW に対する適用性など ② データの蓄積不足／液の適用性など ③ 液の適用性など ④ データの蓄積不足／液の適用性など
(3) U/Pu 相互分離 ① Pure X 法	(3) U/Pu 相互分離 ① Pure X 法	(3) U/Pu 相互分離 ① 液の適用性など
(4) TRU/Ln 相互分離 ① TALSPEAK 法( and reverse TALSPEAK 法) ② TRANEX 法 ③ TPZ+DANS 法 ④ 吸着法(イオン交換クロマトグラフィー)など	(4) TRU/Ln 相互分離 ① TALSPEAK 法( and reverse TALSPEAK 法) ② TRANEX 法 ③ TPZ+DANS 法 ④ 吸着法(イオン交換クロマトグラフィー)など	(4) TRU/Ln 相互分離 ① 耐放射線性／液の適用性など ② 前後プロセスとの連続性など ③ データの蓄積不足／液の適用性など ④ 液の適用性など

表 3.4.2 評価項目の重み付け

番号	評価項目	重み	設定理由
(1)	工程の簡素さ	B	本施設の中で簡素化技術が確立されていければ良いと考えられる。
(2)	工程の確かさ	A	燃料処理施設として機能しなければならない。
(3)	プロセスの流れのスムーズさ	B	研究の進行の中で改良されていけば良いと考えられる。
(4)	新規性／将来性	A	施設の目標（貢献度）として重要である。
(5)	廃棄物の発生の低減化	B	施設運転に影響する。
(6)	装置材料に関する確かさ	B	施設運転に影響する。
(7)	安全性	C	現時点では厳格に考慮する必要はない。

表 3.4.3 プロセスオプションの評価結果

評価項目 プロセスシステム	評価項目（表 4.3.1-1 参照）							合計	備考
	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	(6)	(7)		
塩輸送－溶媒抽出	5	7	5	9	5	6	3	40	
溶融金属－溶媒抽出	5	7	5	9	5	6	3	40	
共除染改良	7	7	6	9	5	7	3	44	
晶析－ろ過－溶媒抽出	5	7	6	9	7	7	3	44	
晶析－溶媒抽出	6	7	6	8	5	7	3	43	
PUREX 一群分離	6	9	6	7	5	7	3	43	

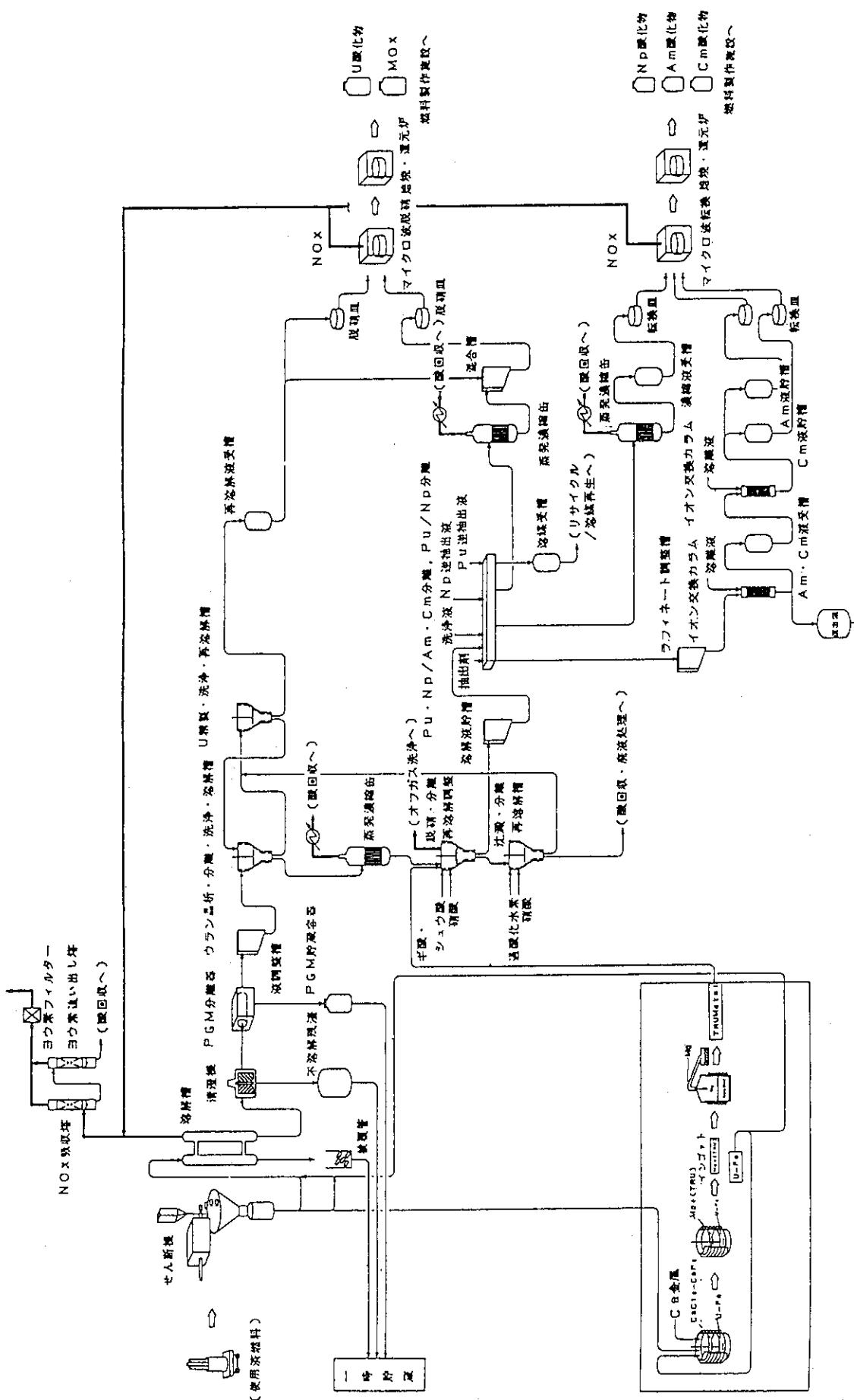


図 3.4.1 バックエンンド試験施設のメインプロセスフローシート

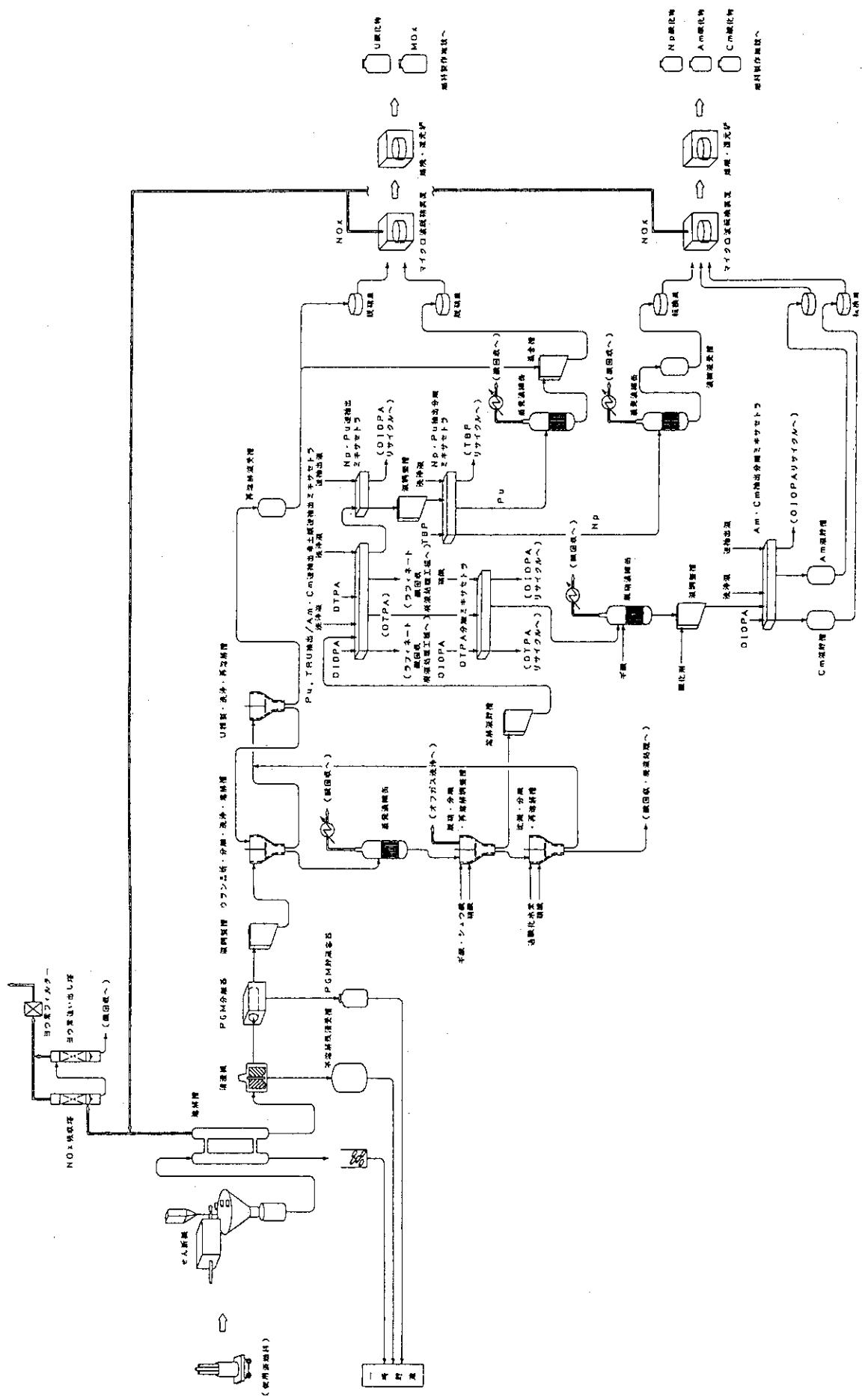


図3.4.2 DIDPAを使った溶媒抽出工程を持つメインプロセスフローシート

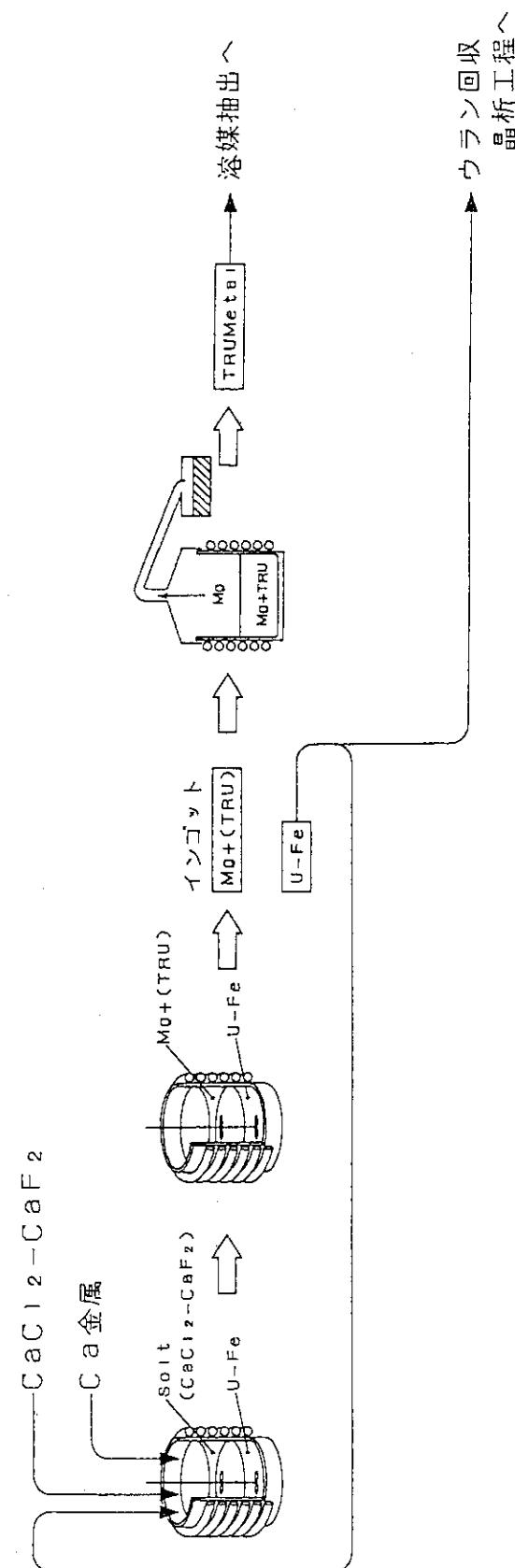


図 3.4.3 乾式工程のプロセスフローシート（溶融金属抽出－溶媒抽出プロセス）

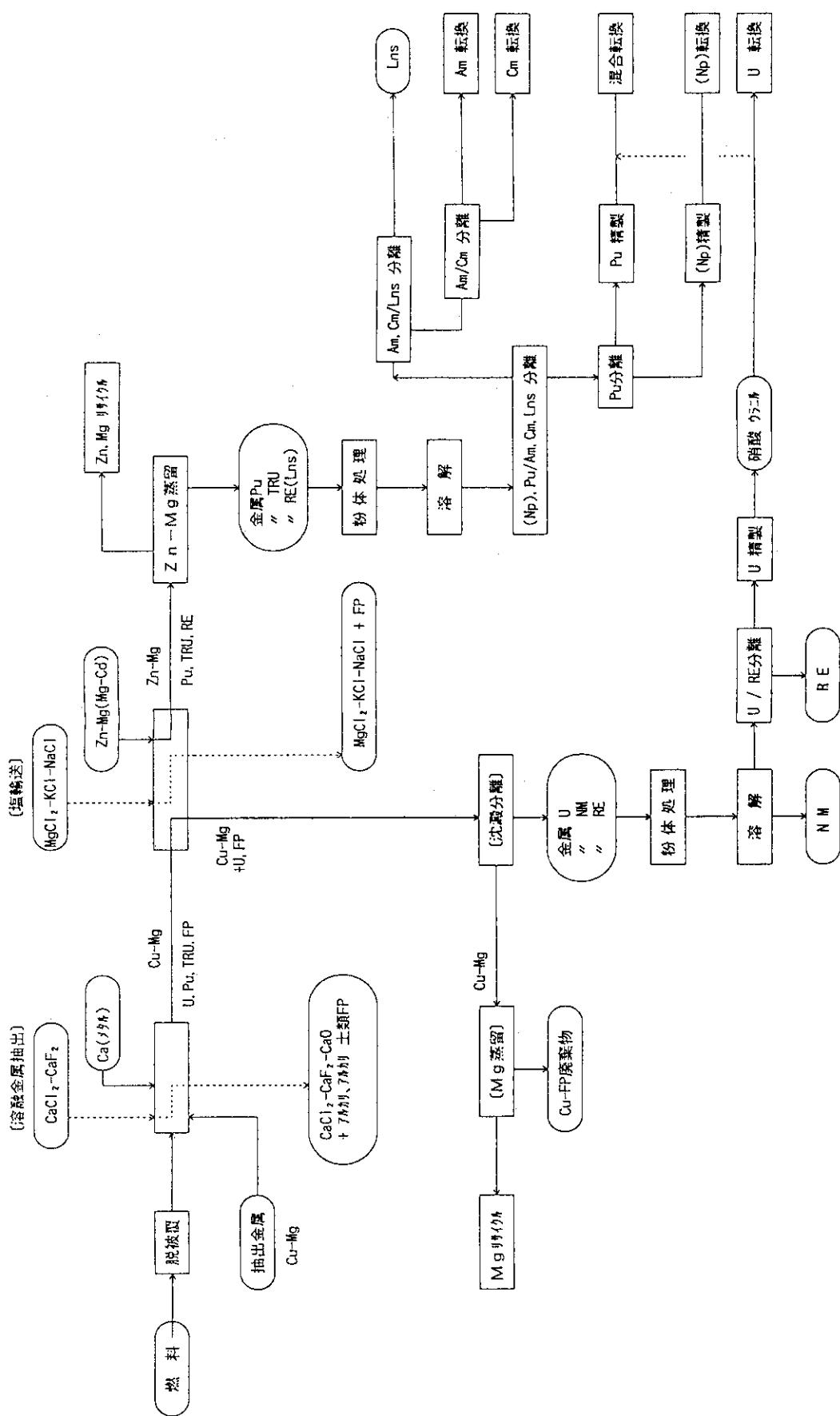


図 3.4.4 塩輸送 - 溶媒抽出プロセス

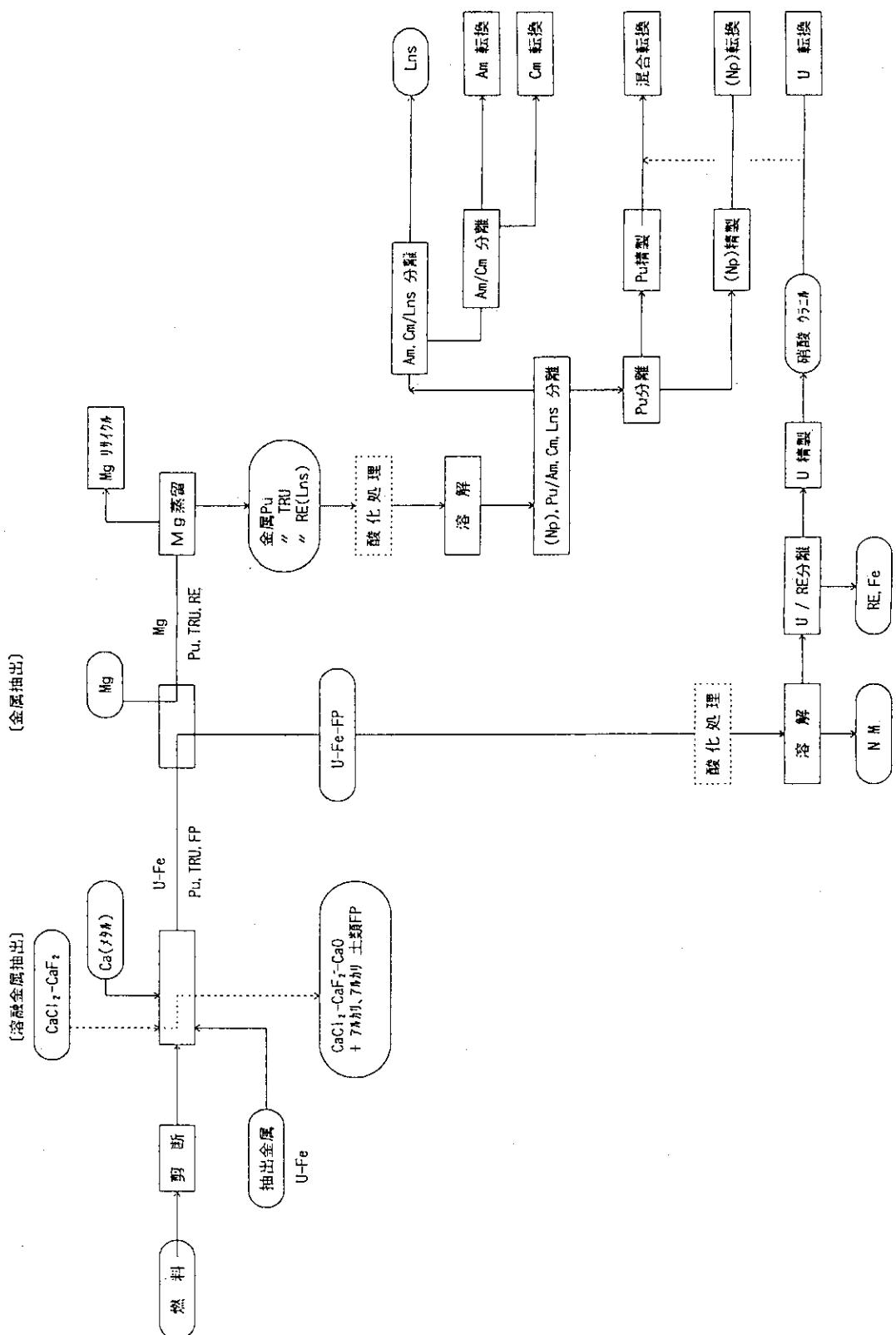


図3.4.5 溶融金属抽出一溶媒抽出プロセス

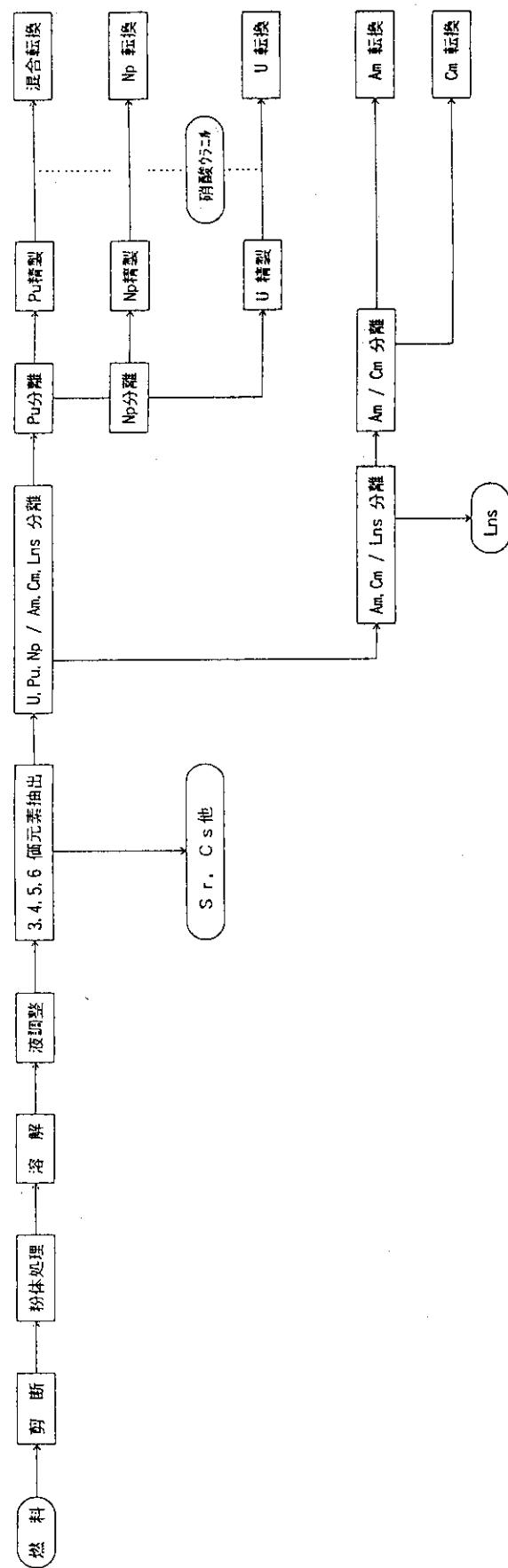


図 3.4.6 共除染改良プロセス

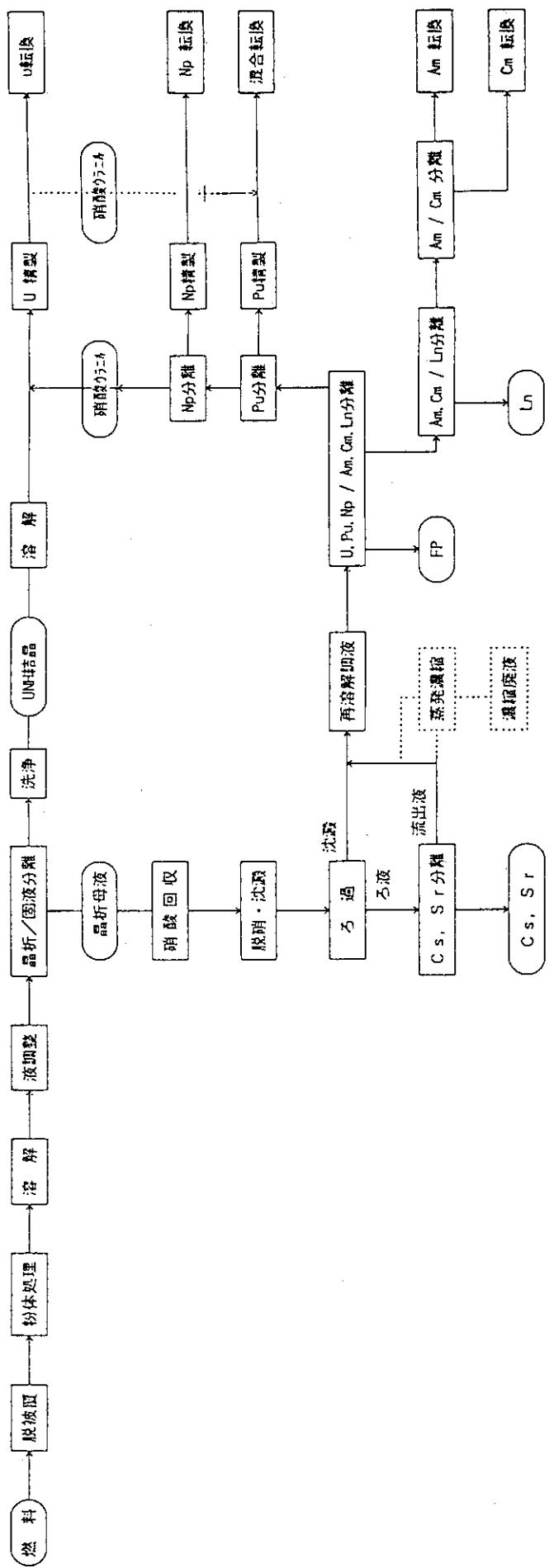


図 3.4.7 晶析—ろ過—溶媒抽出プロセス

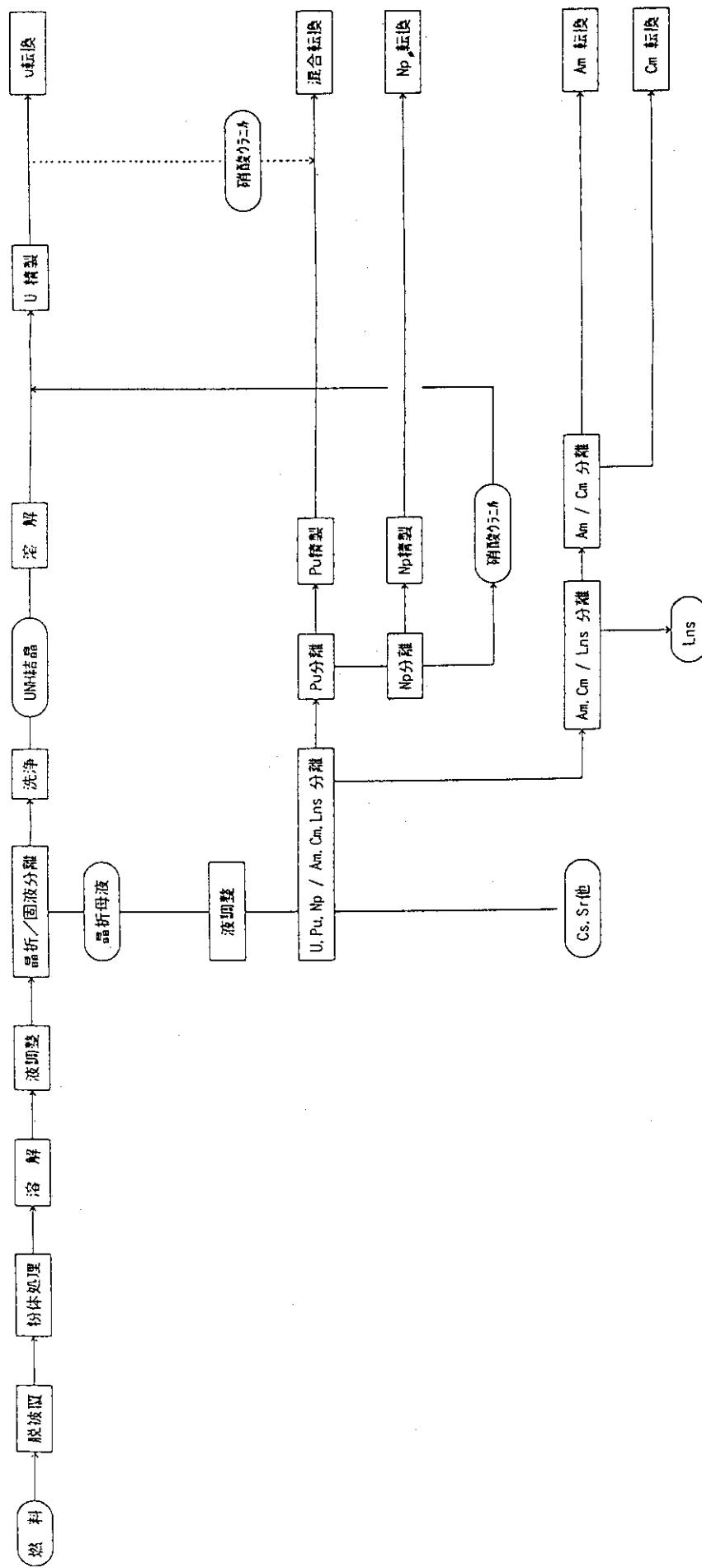


図 3.4.8 晶析－溶媒抽出プロセス

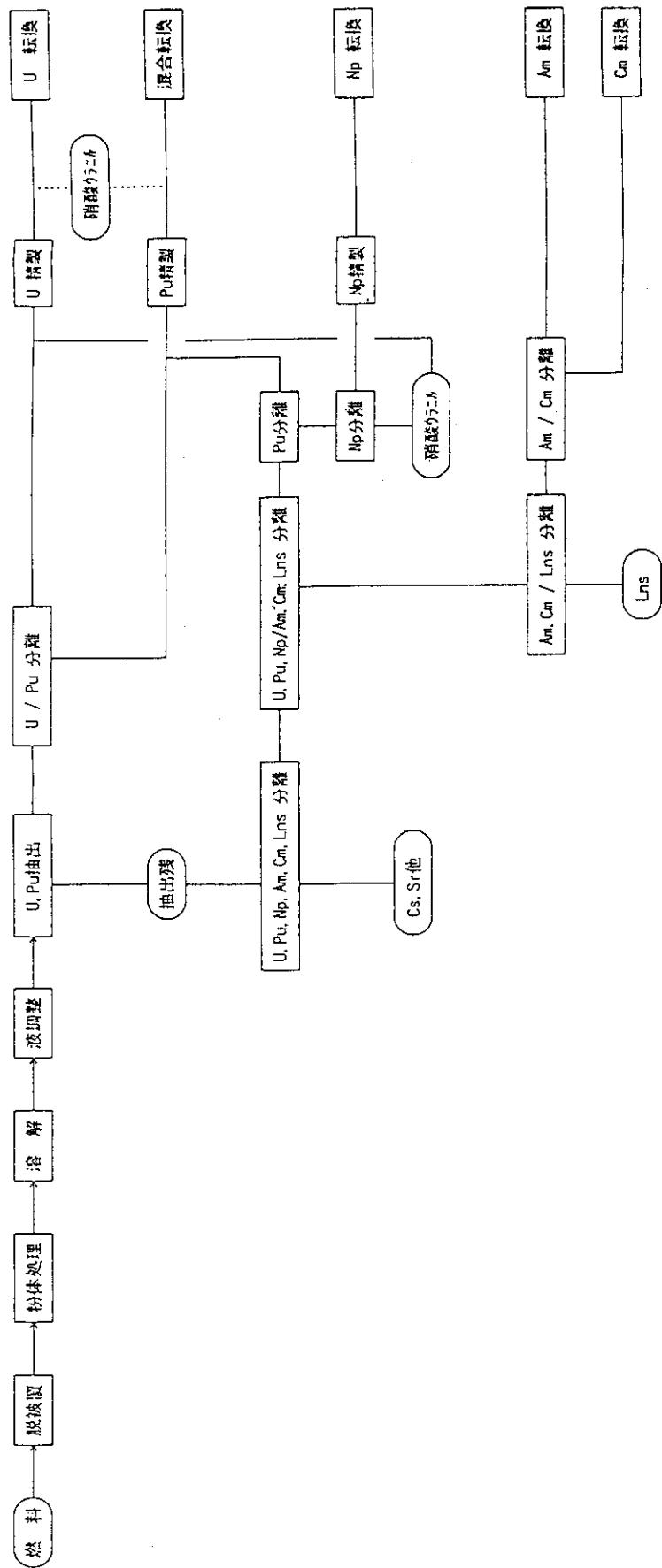


図3.4.9 Purex再処理一群分離結合プロセス

### 3.5 物質収支

#### 3.5.1 メインフローシートの物質収支

図3.4.1のフローシートの物質収支計算結果を表3.5.1に示す。各工程のプロセス条件を設定し、仮定した分離効率を用いて計算すれば、プロセス全体としての回収率（廃棄物へ行かない率）は、Uが99.99%、Pu99.90%、Np99.88%、Am99.99%、Cm99.99%を達成している。

乾式工程の物質収支は、表3.5.2である。

#### 3.5.2 放射性廃棄物発生量

脱被覆工程及び溶解清澄工程からは、ハル、不溶解残渣が発生し、オフガス処理工程で廃吸着材またはフィルター、PGM分離工程で作用電極、イオン交換分離工程で廃イオン交換樹脂、廃液処理工程で高レベル廃液、中和・ろ過ケーキ、中和廃液などが排出される。また、乾式工程セルからは、るつぼ、廃塩などが発生する。

定期的な保守作業に伴って、各工程施工設から可燃性あるいは難燃性の $\alpha$ 及び非 $\alpha$ 固体廃棄物が発生する。

これら放射性廃棄物発生量を関連した分野で公開されている技術報告、再処理事業申請書をベースに推定すると表3.5.3となる。

表 3.5.1 メイシンプロセスフローシートの物質収支

工程 核種	燃料 ①	溶解・清澄		PGM分離		液調整 ④	ウラン晶析分離		蒸発濃縮		脱硝・分離・再溶解析調整		No. Pu/Am/Cm 分離 ③-2
		濃渣液 ②-1	不溶残渣 ②-2	分離液 ③-1	回収PGM ③-2		UNH ⑤-1	晶析母液 ⑤-2	洗净K ⑤-3	洗净渣 ⑤-4	留出液 ⑥-1	濃縮液 ⑥-2	
U	11.672.2	11.672.2	0% 残	100% ④	0% ④	DF=10	回収率90%	DF=10	0% ④	DF=10000	99.5%	0.1%	99.9%
Pu	1.364.7	1.364.7	0% 残	100% ④	0% ④	DF=10	DF=10	DF=10	0% ④	DF=100	99%	0.1%	99.9%
NP	186.4	186.4	0% 残	100% ④	0% ④	DF=10	DF=10	DF=10	0% ④	DF=1000	99.5%	0.1%	99.9%
Am	188.8	188.8	0% 残	100% ④	0% ④	DF=10	DF=10	DF=10	0% ④	DF=1000	99.5%	0.1%	99.9%
Cm	166.4	166.4	0% 残	100% ④	0% ④	DF=10	DF=10	DF=10	0% ④	DF=1000	99.5%	0.1%	99.9%
NM *	2.6	2.6	1.3	50% 残	100% ④	DF=10	DF=10	DF=10	0% ④	DF=10000	99.5%	0.1%	99.9%
RE *	3.0	3.0	3.0	30% 残	100% ④	DF=10	DF=10	DF=10	0% ④	DF=10000	99.5%	0.1%	95.0%
Tc	31.4	25.1	17.3	30% 残	100% ④	DF=10	DF=10	DF=10	0% ④	DF=10000	60%	0.1%	99.9%
Sr	17.3	17.3	136.6	0% 残	100% ④	DF=10	DF=10	DF=10	0% ④	DF=10000	38%	0.1%	99.9%
Cs	136.6	136.6											
備考	使用済み燃料15kg当たりのグラム数						300g/l / 4 N ~40 ℥	結晶量 ~8.3 ℥ $\rho = 2.7 \text{ g/cc}$	~32 ℥ 5N	~30 ℥ 5N	3.5% 酸1.5k 8.半酸10 ℥	~40 ℥	

工程 核種	Pu逆抽出		混合		Am/Cm 分離		沈殿分離再溶解		U精製		洗浄液 ⑬-2
	No流 ③-1	Pu流 ③-2	PuH ⑪-1	UNH ⑪-2	Am流 ⑪-1	Am流 ⑪-2	Cm流 ⑪-3	⑫-1	⑫-2	⑬-1	
U	0.1%	99.9%	0.1%	99.9%	—	—	—	回収率99%	回収率99%	回収率99%	漏洩率1%
NP	99.9%	0.1%	99.9%	0.1%	100%	100%	0%	回収率99%	回収率99%	回収率99%	DF=100
Pu	99.9%	0.1%	99.9%	0.1%	0%	0%	100%	回収率99%	回収率99%	回収率99%	DF=100
Am	99.9%	0.1%	99.9%	0.1%	99%	99%	—	DF=10	DF=10	DF=10	DF=1000
Cm	99.9%	0.1%	99.9%	0.1%	99%	99%	—	DF=10	DF=10	DF=10	DF=1000
NM *	99.9%	0.1%	99.9%	0.1%	99%	99%	—	DF=100	DF=100	DF=100	DF=1000
RE *	99.9%	0.1%	99.9%	0.1%	99%	99%	—	DF=100	DF=100	DF=100	DF=1000
Tc	99.9%	0.1%	99.9%	0.1%	99%	99%	—	DF=100	DF=100	DF=100	DF=1000
Sr	99.9%	0.1%	99.9%	0.1%	100%	100%	—	DF=100	DF=100	DF=100	DF=1000
Cs	99.9%	0.1%									
備考											3 回洗浄 ~30 ℥ 5N

(注) NM, RE の単位はグラムアトム数

表 3.5.2 乾式工程の物質収支

工 程 核 種	① 燃 料	② 溶融金属抽出		③ Mg 抽出		④Mg蒸留
		抽出廃塩	抽出金属	抽出残	抽出金属	
U	11,672.2	0	11,672.2	11,672.2	0	0
Np	186.4	0	186.4	0	186.4	186.4
Pu	1,364.7	0	1,364.7	0	1,364.7	1,364.7
Am	188.8	0	188.8	0	188.8	188.8
Cm	166.4	0	166.4	0	166.4	166.4
NM *	2.6	0	2.6	1.3	0	0
RE *	3.0	0	3.0	0	3.0	3.0
Sr	17.3	17.3	0	0	0	0
Cs	136.6	136.6	0	0	0	0
Tc	31.4	0.0	31.4	31.4	0	0
備 考	使用済み燃料15kg当たりのグラム数	アルカリ、アルカリ土類は100%移行 塩量10倍 150kg 供給Ca金属 9kg  容量=100 ℥ (ρ=1.6)	U-Fe抽出金属／燃料=2 ; U-Fe 金属30kg  容量=2.4 ℥ (ρ=19)	+抽出Fe-U 金属  容量=2.2 ℥ (ρ=19)	Mg／金属比 = 3 ; Mg 量 135kg  容量=80 ℥ (ρ=1.7)	容量=1 ℥ (ρ=19)

表 3.5.3 プロセス廃棄物の種類と発生量の予備検討結果

## 【湿式プロセス部】

廃棄物名称	生発生量 (15kg処理当たり)	備考
ハル	~4.5kg 又は~4ℓ	見掛け密度 $\rho = 1.1\text{g}/\text{cm}^3$ と仮定
廃ヨウ素フィルタ	~200 g	4kg/tUの3倍
不溶解残渣	~150 g	
作用電極(PGM)	—	キャンペーン毎に交換
高レベル廃液	~ 20 ℓ	硝酸溶液
ろ過ケーキ	~500 g	主に凝集沈殿剤
中和廃液	~300 ℓ	硝酸ナトリウム溶液

## 【乾式プロセス】

るつぼ	50~150 ℓ	キャンペーン毎又は年に1回交換
廃 塩	60~180kg	キャンペーン毎又は年に1回交換

## 【その他】

各種洗浄廃液	不定量	保守作業毎
可燃性 $\alpha$ 廃棄物	不定量	運転及び保守作業毎
可燃性非 $\alpha$ 廃棄物	不定量	運転及び保守作業毎
不燃性 $\alpha$ 廃棄物	不定量	運転及び保守作業毎
不燃性非 $\alpha$ 廃棄物	不定量	運転及び保守作業毎

### 3.6 技術的課題

バックエンド試験施設の概念設計を行う上で必要な技術的課題は、プロセスに関する課題、プロセス技術の操作性に関する課題、施設設計に関する課題などがある。

プロセスに関する課題としては、表3.6.1に挙げる項目が考えられる。課題の内容に応じて原理確認で済むもの、要素技術の性能確認あるいはシステム性能を確認するものもある。また、文献調査で済むもの、基礎試験、工学試験等が必要なものもある。

セル内に配置される装置は、遠隔操作性、自動化、メンテナンスフリーなどの装置開発が必要となる。また、場合によってはロボット開発も必要となろう。

施設設計に関しては、臨界管理、遮蔽、閉じ込め性について検討する必要がある。

表 3.6.1 概念設計に必要な課題

プロックフロー名称	工 程 名 称	研 究 課 題
脱被覆－溶解－液調整 酸化	脱被覆	① 高燃焼度燃料へのレーザ切開法及びピン剪断法の適用性評価 ① トリチウム除去効率の把握 ② FP挙動の把握
	酸化	③ 粉体移行性的把握
	溶解	① FPガスの挙動把握（I, ルテニウム等） ② 溶解槽材料の開発 ③ 溶解装置システムの開発
PGM分離 ウラン回収－蒸発濃縮	PGM分離	① 装置システムの開発 ① 溶解液からU及びPuの分離技術開発 ② TRU元素の共晶挙動等に関する研究 ③ 最適晶析条件の把握 ④ 最適な装置システムの開発
	ウラン回収－蒸発濃縮	① 溶解液からの晶析法によるU及びPuの分離技術開発 ② TRU元素の共晶挙動等に関する研究 ③ 最適晶析条件の把握 ④ 最適な装置システムの開発
	無機分離	① 各元素の脱硝・沈澱挙動の詳細把握 ② 最適脱硝条件の把握 ③ 沈澱特性的把握（ろ過性、発熱性等） ④ 最適な装置システムの開発 ⑤ 臨界管理手法の検討 ⑥ 再溶解法の検討と溶解特性の把握 (硫酸一ギ酸脱硝)
		① 各元素の沈澱挙動の把握 ② 最適沈殿条件の把握 ③ 沈澱特性的把握（ろ過性等） ④ 再溶解法の検討と溶解特性の把握 ⑤ 最適な装置システムの開発
溶媒抽出分離	Np, Pu/Am, Cm 分離	① 溶媒の放射線損傷( $\alpha$ , $\gamma$ 線など) ② DIPDA法の適用条件の把握
	Am/Cm 分離 Am, Cm 吸着、 Am/Cm 分離	① DIPDA適用性の検討 ① 装置システムの開発
イオン交換分離		
U精製	晶析・分離・洗浄・ 再溶解	① 最適な装置システムの開発
乾式抽出	溶解・抽出	① 乾式溶解・抽出技術の開発 ③ 乾式溶解揮発性ガス挙動の把握 ⑤ 装置材料の開発 ⑥ 最適な装置システムの開発 精製
		① 最適蒸留精製法の検討 ② 最適な装置システムの開発 ③ 装置材料の開発

## 4.まとめ

バックエンド技術の中長期的将来を展望するとき、プルトニウムリサイクル、T R U消滅処理に対応する技術を念頭におくことが重要である。ここで検討したバックエンド試験施設概念は、中長期的将来の研究開発ニーズに対応することを目的として検討された。Pu富化度、燃焼度、冷却期間などが多様なプルトニウム燃料を対象として、基礎レベルから準工学レベルまでの先端的分離技術について試験研究し T R U核種の基礎データを取得することができる。また、再処理回収製品の有効利用を図る技術として、プルトニウム、T R U核種、長寿命F P核種の高純度分離精製技術の研究開発を行うことができる。

原研の「軽水炉将来技術開発計画特別チーム」では、燃料サイクルの将来展望を開いていく上では、炉と燃料サイクルを統一したプルトニウムリサイクルトータルシステムの単純化・最適化の研究を行うことが必要であると認識し、再処理、燃料加工、炉内燃焼等を関連付けて系統的・総合的に研究する総合試験施設概念を構想した。プルトニウムリサイクルに係わるこれら各ステップはそれぞれ関連しており、ここで検討した再処理技術とともに回収プルトニウムの再加工技術を開発研究することが重要となる。高燃焼度燃料やT R U消滅燃料から回収されるプルトニウムは、高次のT R U核種を含み、自己放射能が高い。そこで、この回収プルトニウムを使った燃料製造プロセスは、単純で遠隔自動化に適したものとする必要がある。

これらの試験研究によって、将来のバックエンドシナリオ選定の判断材料となるべきデータを取得し、T R U核種等の有効利用の道を探ることができる。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたり松浦祥次郎原研理事、小林岩夫燃料サイクル安全工学部長にご指導賜りました。また、軽水炉将来技術開発計画特別チームの中田宏勝サブリーダーをはじめチーム員の方々には有益な意見を頂きました。ここに深い謝意を表します。

本報告書を査読して頂いた久保田益充氏、前田充氏に感謝いたします。

## 4.まとめ

バックエンド技術の中長期的将来を展望するとき、プルトニウムリサイクル、TRU消滅処理に対応する技術を念頭におくことが重要である。ここで検討したバックエンド試験施設概念は、中長期的将来の研究開発ニーズに対応することを目的として検討された。Pu富化度、燃焼度、冷却期間などが多様なプルトニウム燃料を対象として、基礎レベルから準工学レベルまでの先端的分離技術について試験研究しTRU核種の基礎データを取得することができる。また、再処理回収製品の有効利用を図る技術として、プルトニウム、TRU核種、長寿命FP核種の高純度分離精製技術の研究開発を行うことができる。

原研の「軽水炉将来技術開発計画特別チーム」では、燃料サイクルの将来展望を開いていく上では、炉と燃料サイクルを統一したプルトニウムリサイクルトータルシステムの単純化・最適化の研究を行うことが必要であると認識し、再処理、燃料加工、炉内燃焼等を関連付けて系統的・総合的に研究する総合試験施設概念を構想した。プルトニウムリサイクルに係わるこれら各ステップはそれぞれ関連しており、ここで検討した再処理技術とともに回収プルトニウムの再加工技術を開発研究することが重要となる。高燃焼度燃料やTRU消滅燃料から回収されるプルトニウムは、高次のTRU核種を含み、自己放射能が高い。そこで、この回収プルトニウムを使った燃料製造プロセスは、単純で遠隔自動化に適したものとする必要がある。

これらの試験研究によって、将来のバックエンドシナリオ選定の判断材料となるべきデータを取得し、TRU核種等の有効利用の道を探ることができる。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたり松浦祥次郎原研理事、小林岩夫燃料サイクル安全工学部長にご指導賜りました。また、軽水炉将来技術開発計画特別チームの中田宏勝サブリーダーをはじめチーム員の方々には有益な意見を頂きました。ここに深い謝意を表します。

本報告書を査読して頂いた久保田益充氏、前田充氏に感謝いたします。

## 参考文献

- (1) 天野、長谷川、山原、鈴木、古田、”新型燃料開発のための燃料製作・試験施設及び照射後試験施設の概念”、JAERI-M 93-103、1993.
- (2) 稲辺、中田、秋江、与能本、小林、坪、伊藤、岩村、大久保、大杉、梅田、”燃料照射・炉特性研究用試験炉の概念検討”、JAERI-M 93-106、1993.
- (3) 藤根、高野、佐藤、東稔、山田、黒沢、”軽水炉時代の長期化を想定した将来型燃料サイクルシステム概念の検討”、JAERI-M 93-157、1993.
- (4) 松村、”高速増殖炉燃料棒の切断装置”、公開特許公報、昭和62-14398.
- (5) 福留、”使用済燃料の抜管法脱被覆”、神戸製鋼技報、Vol.38, No.3, p102, 1988.
- (6) P. Kunze, "German Bundle Shear - Cold Test Results", Trans. Am. Nucl. Soc., Vol.53, 1986
- (7) J.P. Glatz et al., "Dissolution of Different Types of Nuclear Fuels in Nitric Acids", International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management "RECOD '87, Vol.2, p587, 1987.
- (8) M. Paljevic and Z. Despotovic, "Oxidation of Uranium Mononitride", Journal of Nuclear Materials, Vol.57, 1975, pp253-257
- (9) T. Ohmichi and T. Honda, "The Oxidation of UC and UN Powder in Air", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.5, 1968, pp600-602
- (10) D. H. Bollman, "Rapid Technique for Dissolution of Nitrides", ANALYTICAL CHEMISTRY, VOL. 44, 1972, pp887-888
- (11) 松岡伸吾、”使用済燃料の再処理—軽水炉燃料の再処理—（特集 核燃料サイクル技術の開発動向と将来）”、エネルギー・資源、13(1), p.35-41, 1992.
- (12) H. Schmieder, G. Petrich, "IMPUREX:A Concept for an IMproved PUREX Process", Radiochimica Acta, 48, 181(1989)
- (13) E. Henrich, et.al., "Combination of TBP Extraction and Nitrate Crystallization for Spent Fuel Nuclear Reprocessing", I. Chem. E. Symp. Series No.103, Extraction'87. Scotland, p.191-205.
- (14) 西村、他、”再処理工程における晶析精製法の検討—晶析特性に関する基礎試験—”、日本原子力学会1989年秋の大会 要旨集 第二分冊, p.152(1989).
- (15) 森田、久保田、”ネプツニウムの回収—文献調査報告—”, JAERI-M 84-043(1984).
- (16) 吉田、立川、”電解—抽出プロセスによる使用済燃料再処理法”, 原子力工業、38(2), 48 (1992).
- (17) D. C. Campbell, A. L. Mills, "Non Reductive Partitioning of Uranium and Plutonium in the PUREX Reprocess", ISEC'86 Preprints I-301(1986).
- (18) S. Tachimori, N. Kubo, "Low Temperature Partitioning of Plutonium with High U (IV)-loading for Fuel Reprocessing", J. Nucl. Sci. Technol., 26, 852(1989).
- (19) C. Musikas, et.al., "Actinide Extractants for the Nuclear Industry of the

- Future", I. Chem. E. Symp. Series No.103, Extraction'87, Scotlant, p51-65, 1987.
- (20) G. Koch, "New Concepts of Fast Breeder Reprocessing", Radiochimica Acta, 37, 205(1984).
- (21) Y. Enokida, K. Nakata, A. Suzuki, "Axial Turbulent Diffusion in Fluid between Rotating Coaxial Cylinders", AIChE Journal, 35, 1211(1989).
- (22) A. F. Cermak, "Selection of Contactors for Larger Radiochemical Capacity", Proc. of the 2nd World Congress of Chemical Engineering, Canada, Oct. 4-9, 1981, Vol. II, p. 352-355.
- (23) 久保田, 他, "高レベル廃液からの超ウラン元素の抽出分離に関する基礎研究—抽出剤の調査と分類—(共同研究成果報告)", JAERI-M 88-002(1988).
- (24) M. Ruppert, J. Draxler, R. Marr, "Liquid Membrane Permeation and its Experiences in Pilot and Industrial Scale", Sep. Sci. Tech., 23, 1659(1988).
- (25) R. Chiariza et al., "A Double Liquid Membrane System for the Removal of Actinides and Lanthanides from Acidic Nuclear Waste", Separation Science and Technology, Vol. 22, p641, 1987.
- (26) T. Kimura, J. Akatsu, "Applications of Extraction Chromatography in the Bi-functional Extractant-Nitric Acid System for Separation of Actinides in Nuclear Fuel Cycle", Solvent Extraction 1990, Part A, Elsevier Sci. Pub., p. 723, 1992.
- (27) S. Usuda, H. Abe, S. Tachimori, H. Takeishi, W. Murayama, "Application of Centrifugal Partition Chromatograph to Separation of Actinides and Lanthanides in TBP Extraction System", Solvent Extraction 1990, Part A, Elsevier Sci. Pub., p. 717, 1992.
- (28) L. L. Martella, et.al., "Scale-up of Extraction Chromatography Using DHDECMP for the Separation and Purification of Americium", CONF-8106131-1(1981).
- (29) E. J. Wheelwright et al., "Simultaneous Recovery and Purification of Pm, Am and Cm by the Use of Alternating DTPA and NTA Cation-Exchange Flowsheets", American Chemical Society National Meeting, March 31 through April 5, 1968, at San Francisco California USA, CONF-680308--17, BNWL-SA-1492
- (30) L. L. Martella et al., "Production Scale Plutonium-Neptunium Separation and Residue Recovery at Rocky Flats Plant", RFP-4030(1987).
- (31) G. Uchiyama, S. Fujine, S. Hotoku, M. Maeda, "New Separation Process for Np, Pu, and U using Butyraldehydes as Reductants in Reprocessing", Nucl. Technol., Vol.102 p. 341-351(1993).
- (32) 次世代再処理技術研究専門委員会, "次世代再処理技術の課題", 社団法人 日本原子力学会, 1991年6月
- (33) J. O. Liljenzin, et al., "The CTH Process for HLLW Treatment, Part I, General Description and Process Design", Radiochimica Acta., Vol.35, p155-, 1984

- (34) Final Report of a Co-ordinated Research Programme on Environmental Evaluation and Hazard Assessment of the Separation of Actinides from Nuclear Wastes followed by either Transmutation or Separate Disposal, "Evaluation of Actinide Partitioning and Transmutation", Technical Report Series No.214, IAEA, 1982.
- (35) L.A.Bray et al., "Feasibility Evaluation and R&D Program Plan for Transuranic Partitioning of High-Level Fuel Reprocessing Waste", BNWL-1776, 1973.
- (36) E.P.Horwitz et al., "The TRUEX Process - A Process for the Extraction of the Transuranic Elements from Nitric Acid Wastes Utilizing Modified PUREX Solvent", Solvent Extr. Ion Exch., Vol.3, p75, 1985
- (37) L.A.Leonard et al., "Separation of Americium and Plutonium form Nuclear Wastes by the TRUEX Process", CONF-860826-8, 1986
- (38) W.W.Schulz et al., "The TRUEX Process and the Management of Liquid TRU Waste", 5th Symposium on Separation Science and Technology for Energy Applications, Knoxville, Tennessee, USA, Octorber 26-29, CONF-871038-9, 1987
- (39) R.Chiarizia et al., "Behavior of Americium in the Strip of the TRUEX Process", 5th Symposium on Separation Science and Technology for Energy Applications, Knoxville, Tennessee, USA, Octorber 26-29, 1987, CONF-871038-9, 1987
- (40) Z.Kolarik et al., "Extraction of Neptunium and Plutonium Nitrates with n-octyl(phenyl)-N,N-diisobutylcarbamoylmethylphosphine oxide ", Solvent Extr. Ion Exch., Vol.6, p247-, 1988.
- (41)久保田 益充 他, "群分離法の開発: D I D P Aによるネプツニウムの連続抽出及びシユウ酸による連続抽出", JAERI-M 90-023, 1990
- (42)F.Mannoe et al., "Actinide Partitioning by HDEHP Solvent Extraction; A Verification of the Process Scheme by Countercurrent Experiment in Hot Cells ", Inorganica. Chimica. Acta. Vol.94, p179-, 1984
- (43)F.Mannoe et al., "Chemical Separation of Actinides from High Activity Liquid Wastes - Final Report-", JRC Ispra, 1984
- (44)Activities on Actinide Burning at IAEA and in USSR, Rep. of KOREA, INDUA, CHINA, and CSFR. M.J.Crijns, 1990, 11
- (45)R.D.Baybarz et al., "Isolation of Transplutonium Elements by Amine Extraction", Nuclear Science and Engineering, Vol.17, p457-, 1963
- (46)C.Musikus, "Results and Prospects for Some Actinides Extractants Usable in Actinide Partitioning", CEA-CONF-10069, karlsruoh(DE), 1989.10
- (47)S.E.Binney et al., "CURE: Clean Use of Reactor Energy", WHC-EP-0268, 1990
- (48)C.Musikus et al., "Actinide and Lantanide Group Separation in Mixer Settler",

- CEA-CONF-8571, 1985
- (49) P. Vitorge, "Lanthanide and Trivalent Actinides Complexation by Tripyridyl Triazine, Application to Liquid-Liquid Extraction", CEA-R-5270, 1984
- (50) A. C. Muscatello et al., "Supported Extractant Membranes for Americium and Plutonium Recovery", Separation Science and Technology, Vol. 22, p843, 1987
- (51) G. Koch, "Recovery of By-Product Actinides from Power Reactor Fuels and Production of Heat Source Isotopes", American Chemical Society p412, 1980
- (52) E. P. Horwitz et al., "High-Speed High-Efficiency Separation of the Transplutonium Element by Extraction Chromatography", J. Inorg. Nucl. Chem., Vol. 35, p271, 1972
- (53) G. Koch et al., "Recovery of Transplutonium Elements from Fuel Reprocessing High-level Waste Solutions", KFK-1651, paper presented at the Symposium on the Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing, OECD-NEA and IAEA, Paris, 1972
- (54) R. M. Harbour, "Large-Scale Separation of Transplutonium Actinides by Pressurized Cation Exchange", Atomic Energy Review, Vol. 10, p379, 1972
- (55) 久保田 益充, "高レベル廃棄物の群分離技術開発の現状", 原子力工業, Vol. 31, p. 51, 1985
- (56) J. D. Navratil, "Process Chemistry of Americium-241", RFP--3688
- (57) J. E. Battles et al., "Pyrometallurgical Processing of Integral Fast Reactor Metal Fuels", The Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management at Sendai Japan, RECOD '91 Proceedings Vol. 1, p342, 1991
- (58) 常磐井守泰, "FBR金属燃料の乾式再処理技術-電解精錬技術の開発の現状と課題-", 原子力工業, Vol. 34, P46-, 1988.
- (59) 菅野昌義, "被照射燃料の乾式再処理", 新金属工業, 11月号, 303-, 1966
- (60) R. D. Pierce, et al., "Recycle of LWR Actinides to an IFR", The Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management at Sendai Japan, RECOD '91 Proceedings Vol. I, p336-, April 14-18, 1991
- (61) K. W. Fite, M. H. West, "Pyrochemical Investigations into Recovering Plutonium from Americium Extraction Salt Residues", LA-10963-MS, 1987
- (62) A. A. Jonke, "Reprocessing of Nuclear Reactor Fuel by Processes based on Volatilization, Fraction, Distillation and Selective Adsorption", Atomic Energy Review, IAEA, 3(1), 3-60, 1965