

JAERI-Research

96-069



再処理分離工程における放射性核種の抽出移行挙動

1997年1月

内山軍藏・朝倉俊英・宝徳 忍
渡辺眞樹男・根本英幸*・藤根幸雄

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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。

入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。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。

This report is issued irregularly.

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷(株)

再処理分離工程における放射性核種の抽出移行挙動

日本原子力研究所東海研究所燃料サイクル安全工学部

内山 軍藏・朝倉 俊英・宝徳 忍

渡辺眞樹男・根本 英幸*・藤根 幸雄

(1996年12月11日受理)

現行再処理工場（ピューレックス法）の抽出分離第1サイクルを模擬した分離フローシートを3基のミキサセトラ型抽出器を用いて構成し、ウラン-TBP-硝酸溶液系におけるテクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ジルコニウム及びルテニウムなどの放射性核種の抽出移行挙動を測定した。得られた結果は以下のとおりである。

ウランは共除染工程において模擬溶解液として供給した量に対し99.999%以上がTBP有機溶媒に抽出され、ウラン逆抽出工程では全U量の約90%が回収された。ネプツニウムは、共除染工程において模擬溶解液として供給した量に対し約30%が抽残液に、Tc洗浄工程では約12%が洗浄されてTc廃液に、また、U/Pu分配工程では約58%がPu溶液へ移行した。テクネチウムは、共除染工程において模擬溶解液として供給した量に対し約99%がTBP有機溶媒により抽出され、Tc洗浄工程では高濃度硝酸により全Tc量の86%が洗浄され、U/Pu分配工程では13%がPu溶液へ移行した。他の放射性核種について、ルテニウム及びジルコニウムは共除染工程において模擬溶解液として供給した量に対しそれぞれ99%、93%が抽残液へ移行した。高濃度硝酸を用いたTc洗浄工程ではルテニウムがジルコニウムに比べ効率よく洗浄された。ヨウ素については、模擬溶解液として調整した量の約45%が試験中にヨウ素ガスとして揮発した。水溶液中のヨウ素の化学形は I_2 であった。ヨウ素は抽出分離工程ではほとんど水相へは移行せず、有機溶媒とともに工程内を移行し、再生溶媒にかなりの割合が残留することがわかった。

Extraction Behavior of Radionuclides in the First Separation Cycle in Reprocessing

Gunzo UCHIYAMA, Toshihide ASAKURA, Shinobu HOTOKU,
Makio WATANABE, Hideyuki NEMOTO* and Sachio FUJINE

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

(Received December 11, 1996)

The chemical flowsheet experiment by using three mixer-settlers was conducted to study the extraction behavior of radionuclides such as technetium, neptunium, iodine, zirconium and ruthenium in the uranium-TBP-nitric acid solution system in the simulated first separation cycle in current reprocessing plants. The following results were obtained:

More than 99.999% of the total uranium fed to the co-decontamination step in the simulated dissolver solution was extracted by TBP solvent. About 90% of the total uranium was recovered in the uranium back-extraction step. About 30% of the total neptunium fed to the co-decontamination step was in the raffinate solution in the co-decontamination step, 12% of the total neptunium was in the Tc solution in the Tc separation step and about 58% of the total neptunium was in the Pu solution in the U/Pu partitioning step. As for technetium, about 99% of the total technetium was extracted by TBP in the co-decontamination step, 86% of the total technetium was scrubbed with high acid nitric acid solution in the Tc separation step and 13% of the total technetium was in the Pu solution in the U/Pu partitioning step.

As for the other radionuclides, 99% of the total ruthenium and 93% of the total zirconium were distributed into the raffinate in the co-decontamination step. In the Tc separation step, ruthenium was scrubbed more effectively than ruthernium with high

* Technology Service Center, Sumitomo Metal Mining Co. Ltd.

acid solution. About 45% of the total iodine fed to the co-decontamination step was vaporized during the experiment. Iodine in aqueous solutions in the flowsheet was mainly in volatile I_2 form. Iodine was rarely distributed into the aqueous solution and was distributed with TBP solvent in the flowsheet. Significant amounts of iodine was contained in the washed solvent.

Keywords: Extraction, Separation, Reprocessing, Neptunium, Technetium, Zirconium, Ruthenium, Iodine, Mixer-settler, TBP, Purex Process

目 次

1. はじめに	1
2. 試 験	1
2.1 試験装置	1
2.2 試 薬	2
2.3 試験方法	2
2.4 分析方法	2
3. 結果と考察	3
3.1 定常到達時間	3
3.2 ウラン及び硝酸の定常濃度分布	3
3.3 放射性核種等の定常濃度分布	4
3.4 亜硝酸濃度分布	5
3.5 ヒドラジン濃度分布	5
3.6 ウラナス濃度分布	6
3.7 HDBP濃度分布	6
3.8 ウラン及び放射性核種等の移行率	6
4. おわりに	9
謝 辞	10
参考文献	11

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	1
2.1 Apparatus	1
2.2 Materials	2
2.3 Experimental Procedure	2
2.4 Analytical Methods.....	2
3. Results and Discussion	3
3.1 Operation Time for Steady-state Conditions	3
3.2 Concentration Profiles of Uranium and Nitric Acid at Steady-state	3
3.3 Concentration Profiles of Radionuclides at Steady-state	4
3.4 Concentration Profile of Nitrous Acid at Steady-state	5
3.5 Concentration Profile of Hydrazine at Steady-state	5
3.6 Concentration Profile of Uranium (IV) at Steady-state	6
3.7 Concentration Profile of Di-butyl Phosphahate at Steady-state	6
3.8 Distributed Fractions of Uranium and Radionuclides in the Flowsheet	6
4. Conclusions	9
Acknowledgements	10
References	11

1. はじめに

原研では、再処理プロセスの安全性研究の一環として、軽水炉燃料の高燃焼度化などに対応した再処理プロセスの高度化研究を行っている。本研究では、ネプツニウムやテクネチウムなどの長寿命核種の分離制御技術を向上させてPUREXプロセスの単純化、TRU廃棄物の発生量低減、環境放出放射能の低減及び廃棄物管理の安全性向上などを旨とした再処理プロセスの開発を行う。

これまでに、ウラン、プルトニウム、ネプツニウム、テクネチウムなどを用いて行った分離プロセス試験研究^{1)・2)・3)}の成果をもとに下記の要素技術を含むPARC (Partitioning Conundrum Key) プロセスの基本概念を提案した⁴⁾。

- ①溶解オフガス処理工程において¹⁴C及び¹²⁹Iを固体吸着剤を用いて分離する。
- ②共除染工程とU/Pu分配工程の間に²³⁷Npと⁹⁹Tcの各分離工程を設け、有機溶媒に抽出されたPuやUから分離する。
- ③共除染工程抽残液からAm及びCmを抽出分離する。
- ④再処理各工程で用いる水、試薬を最大限に再利用する。

本PARCプロセス概念の使用済み燃料を用いた実証試験についてはNUCEF実験棟BのBECKY α - γ セル内の再処理プロセス試験装置を用いて行う予定である。同試験装置については、これまでにコード試薬を用いた単体作動試験及び総合プロセス試験を終了させた。現在ウランペレットを用いて、溶解挙動、抽出分離挙動や分離装置機器の流動特性の把握などを目的としたウラン試験を実施している。

今回、再処理プロセス試験装置と同様のミキサセトラ型抽出器（3基）からなる抽出分離基礎試験装置を用いて現行再処理工場（ピューレックス法）の抽出分離第1サイクルを模擬した分離フローシートを構成し、溶液条件によりTBP（リン酸トリブチル）抽出性が異なる複数の原子価状態や複合錯体で存在するために複雑な抽出挙動を示すことで知られているテクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ジルコニウム及びルテニウムなどの放射性核種の抽出移行挙動をウラン溶液系において測定した。本報告では、その結果の概要について述べる。

2. 試験

2.1 試験装置

試験には3基の小型ミキサセトラ型抽出器（抽出器Ⅰ、Ⅱ及びⅢ）と模擬溶解液調整槽などから構成される抽出分離基礎試験装置（Photo-1）を用いた。抽出器の容量はミキサ部6ml、セトラ部17mlである。本試験のフローシートをFig. 1に示す。今回の試験では、抽出器Ⅰは共除染工程、FP洗浄工程及びTc洗浄工程に用いた。抽出器Ⅱはウラン洗浄工程、Pu逆抽出工程及びPuバリア工程からなるU/Pu分配工程に用い、また、抽出器Ⅲはウラン逆抽出工程及び溶媒洗浄工程にそれぞれ用いた。

1. はじめに

原研では、再処理プロセスの安全性研究の一環として、軽水炉燃料の高燃焼度化などに対応した再処理プロセスの高度化研究を行っている。本研究では、ネプツニウムやテクネチウムなどの長寿命核種の分離制御技術を向上させてPUREXプロセスの単純化、TRU廃棄物の発生量低減、環境放出放射能の低減及び廃棄物管理の安全性向上などを旨とした再処理プロセスの開発を行う。

これまでに、ウラン、プルトニウム、ネプツニウム、テクネチウムなどを用いて行った分離プロセス試験研究^{1)・2)・3)}の成果をもとに下記の要素技術を含むPARC (Partitioning Conundrum Key) プロセスの基本概念を提案した⁴⁾。

- ①溶解オフガス処理工程において¹⁴C及び¹²⁹Iを固体吸着剤を用いて分離する。
- ②共除染工程とU/Pu分配工程の間に²³⁷Npと⁹⁹Tcの各分離工程を設け、有機溶媒に抽出されたPuやUから分離する。
- ③共除染工程抽残液からAm及びCmを抽出分離する。
- ④再処理各工程で用いる水、試薬を最大限に再利用する。

本PARCプロセス概念の使用済み燃料を用いた実証試験についてはNUCEF実験棟BのBECKY α - γ セル内の再処理プロセス試験装置を用いて行う予定である。同試験装置については、これまでにコールド試薬を用いた単体作動試験及び総合プロセス試験を終了させた。現在ウランペレットを用いて、溶解挙動、抽出分離挙動や分離装置機器の流動特性の把握などを目的としたウラン試験を実施している。

今回、再処理プロセス試験装置と同様のミキサセトラ型抽出器(3基)からなる抽出分離基礎試験装置を用いて現行再処理工場(ピューレックス法)の抽出分離第1サイクルを模擬した分離フローシートを構成し、溶液条件によりTBP(リン酸トリブチル)抽出性が異なる複数の原子価状態や複合錯体で存在するために複雑な抽出挙動を示すことで知られているテクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ジルコニウム及びルテニウムなどの放射性核種の抽出移行挙動をウラン溶液系において測定した。本報告では、その結果の概要について述べる。

2. 試験

2.1 試験装置

試験には3基の小型ミキサセトラ型抽出器(抽出器I、II及びIII)と模擬溶解液調整槽などから構成される抽出分離基礎試験装置(Photograph 1)を用いた。抽出器の容量はミキサ部6ml、セトラ部17mlである。本試験のフローシートをFig. 1に示す。今回の試験では、抽出器Iは共除染工程、FP洗浄工程及びTc洗浄工程に用いた。抽出器IIはウラン洗浄工程、Pu逆抽出工程及びPuバリア工程からなるU/Pu分配工程に用い、また、抽出器IIIはウラン逆抽出工程及び溶媒洗浄工程にそれぞれ用いた。

2. 2 試薬

試験には、ウラン及び非放射性の模擬FP元素を含む3N硝酸水溶液に放射性物質(テクネチウム(^{99}Tc , $^{95\text{m}}\text{Tc}$), ネプツニウム(^{237}Np , ^{239}Np), ヨウ素(^{131}I), ルテニウム(^{103}Ru)及びジルコニウム(^{95}Zr)), 亜硝酸ソーダ及び非放射性ヨウ素を添加したものを模擬溶解液として用いた。模擬溶解液中のヨウ素濃度については、使用済み燃料溶解液のヨウ素追い出し操作後に残留すると推定される濃度($1.7 \times 10^{-5}\text{M}$)になるよう非放射性のヨウ化カリウム(KI)とヨウ素酸カリウム(KIO_3)を添加した。KIと KIO_3 の添加モル比は99:1とした⁵⁾。Table 1に模擬溶解液の組成を示す。なお、ヨウ素を除く非放射性模擬FP元素については、燃焼度が45,000MWD/tU, 冷却期間が4年の条件でORIGEN-IIコードにより計算された軽水炉使用済み燃料の組成をもとに高濃度に含まれる上位23種のFP元素を選定した。また、試験終了後の放射能分析により、模擬の溶解液中のヨウ素の化学形は60%が I_2 , 25%がコロイド状ヨウ素(PdIなどが考えられる), 10%が I^- , 5%が IO_3^- であった(Table 2)。模擬溶解液の γ 線スペクトル及び吸光スペクトルをFig. 2及びFig. 3に示す。

各工程の試薬濃度や流量など試験条件をFig. 1に示した。有機溶媒には30%TBP/nDDを用いたが、共除染工程に供給した有機溶媒には、あらかじめ3N硝酸と接触させた後、 ^{60}Co γ 線により外部照射(270C/kg: $1.5 \times 10^6\text{R}$)した溶媒を用いた。照射後の有機溶媒中のHDBP濃度は286ppmであった。

FP洗浄液には2N硝酸を、Tc洗浄工程には6N硝酸を用いた。Pu還元剤には電解還元して調整したウラナス(U^{4+})を5.6g/L, ウラン(UO_2^{2+})を4.4g/L, ヒドラジンを0.2Mの各濃度で含む0.1N硝酸水溶液を用いた。ウラン逆抽出液には0.02N硝酸を、また、溶媒洗浄液には0.3M炭酸ナトリウム水溶液をそれぞれ用いた。

2. 3 試験方法

試験は、あらかじめ模擬溶解液の代わりにウランを含まない3N硝酸を共除染工程に、その他の工程については、それぞれ所定の試薬を用いて各抽出器を酸平衡に到達させた後、共除染工程に供給していた3N硝酸を模擬溶解液に替えウラン及び模擬FP元素の抽出試験を開始させた。模擬溶解液の供給は約10.5時間で停止した。模擬溶解液供給開始後、各抽出器から流出する溶液を30分ごとにサンプリングし、各工程の定常到達時間を測定した。定常到達後の試料溶液のサンプリングは模擬溶解液等の試薬の供給及び抽出器の攪拌機を停止した後、全段の有機相及び水相の各試料をサンプリングした。

2. 4 分析方法

硝酸濃度	: 電位差滴定法
ウラン濃度	: 電位差滴定法, あるいはアルセナゾIII発色法
ウラナス濃度	: 発色法
放射性核種濃度	: 放射線(γ 線)測定
放射性核種原子価	: 吸光法
亜硝酸濃度	: 発色法(フローインジェクション法)

HDBP濃度 : イオンクロマト法
pH : 電極法

3. 結果と考察

3. 1 定常到達時間

抽出器Ⅰ及び抽出器Ⅱの1段目から流出する水溶液及び16段目から流出する有機溶媒、抽出器Ⅲの1段目から流出する水溶液の各溶液中に含まれるウラン及び硝酸の各濃度の経時変化をそれぞれFig. 4, Fig. 5, Fig. 6, Fig. 7及びFig. 8に示す。

Fig. 8に示した抽出器Ⅲ1段目から流出するウラン溶液中の硝酸及びウラン濃度の経時変化より、試験開始後、約5時間でウラン濃度がほぼ一定になっている。ウランについて約5時間で抽出器Ⅲ1段目までがほぼ定常に到達していることを示している。

抽出器Ⅰ及び抽出器Ⅱの1段目から流出する水溶液及び16段目から流出する有機溶媒、抽出器Ⅲの1, 2段目から流出する溶媒洗浄廃液及び16段目から流出する溶媒洗浄済み溶媒の各溶液中に含まれるテクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ルテニウム及びジルコニウムの各濃度の経時変化をFig. 9, Fig. 10, Fig. 11, Fig. 12, Fig. 13及びFig. 14に示す。また、Fig. 15に各抽出器から流出する水溶液及び溶媒中の ^{131}I の計数率(CPM, 1分間測定)の経時変化を示す。同図より、定常到達が遅い溶媒洗浄済み溶媒(再生溶媒)でも、試験開始後約5時間で溶媒中の ^{131}I 濃度はほぼ一定になっている。ヨウ素の測定結果より約5時間の運転(有機溶媒が3基の抽出器の有機相部分を約9回置換したことに相当)で抽出器Ⅲの全段についてもほぼ定常に到達していると考えられる。これらのことから本試験溶液系では約5時間の運転で各抽出分離工程とも定常に到達したと思われる。

3. 2 ウラン及び硝酸の定常濃度分布

抽出器Ⅰ, Ⅱ及びⅢの定常到達後におけるウラン, 硝酸, 亜硝酸, テクネチウム, ネプツニウム, ヨウ素, ルテニウム及びジルコニウムの有機相及び水相の各濃度, さらに各濃度をもとに計算した分配比をTable 3に示す。

定常到達後の共除染工程からTc洗浄工程までの硝酸及びウランの段方向濃度分布をFig. 16に、抽出器Ⅱ(U/Pu分配工程)における硝酸及びウランの段方向濃度分布をFig. 17に、ウラン逆抽出及び溶媒洗浄工程の硝酸及びウランの段方向濃度分布をFig. 18にそれぞれ示す。

Fig. 16より、共除染工程では有機相ウラン濃度は6段目から検出下限値以下に減少している。FP洗浄工程及びTc洗浄工程では有機相ウラン濃度はほぼ一定である。

有機相硝酸濃度は有機相ウラン濃度(フリーTBP濃度)の増減により、共除染工程ではやや高く、FP洗浄工程及びTc洗浄工程で低くなっている。

Fig. 17より、U/Pu分配工程(抽出器Ⅱ)では、有機相ウラン濃度はウラン洗浄工程では段番号が小さくなるにつれて減少している。Pu逆抽出工程及びPuバリア工程ではほぼ一定値を示している。

HDBP濃度 : イオンクロマト法
pH : 電極法

3. 結果と考察

3. 1 定常到達時間

抽出器Ⅰ及び抽出器Ⅱの1段目から流出する水溶液及び16段目から流出する有機溶媒、抽出器Ⅲの1段目から流出する水溶液の各溶液中に含まれるウラン及び硝酸の各濃度の経時変化をそれぞれFig. 4, Fig. 5, Fig. 6, Fig. 7及びFig. 8に示す。

Fig. 8に示した抽出器Ⅲ1段目から流出するウラン溶液中の硝酸及びウラン濃度の経時変化より、試験開始後、約5時間でウラン濃度がほぼ一定になっている。ウランについて約5時間で抽出器Ⅲ1段目までがほぼ定常に到達していることを示している。

抽出器Ⅰ及び抽出器Ⅱの1段目から流出する水溶液及び16段目から流出する有機溶媒、抽出器Ⅲの12段目から流出する溶媒洗浄廃液及び16段目から流出する溶媒洗浄済み溶媒の各溶液中に含まれるテクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ルテニウム及びジルコニウムの各濃度の経時変化をFig. 9, Fig. 10, Fig. 11, Fig. 12, Fig. 13及びFig. 14に示す。また、Fig. 15に各抽出器から流出する水溶液及び溶媒中の ^{131}I の計数率(CPM, 1分間測定)の経時変化を示す。同図より、定常到達が遅い溶媒洗浄済み溶媒(再生溶媒)でも、試験開始後約5時間で溶媒中の ^{131}I 濃度はほぼ一定になっている。ヨウ素の測定結果より約5時間の運転(有機溶媒が3基の抽出器の有機相部分を約9回置換したことに相当)で抽出器Ⅲの全段についてもほぼ定常に到達していると考えられる。これらのことから本試験溶液系では約5時間の運転で各抽出分離工程とも定常に到達したと思われる。

3. 2 ウラン及び硝酸の定常濃度分布

抽出器Ⅰ, Ⅱ及びⅢの定常到達後におけるウラン, 硝酸, 亜硝酸, テクネチウム, ネプツニウム, ヨウ素, ルテニウム及びジルコニウムの有機相及び水相の各濃度, さらに各濃度をもとに計算した分配比をTable 3に示す。

定常到達後の共除染工程からTc洗浄工程までの硝酸及びウランの段方向濃度分布をFig. 16に、抽出器Ⅱ(U/Pu分配工程)における硝酸及びウランの段方向濃度分布をFig. 17に、ウラン逆抽出及び溶媒洗浄工程の硝酸及びウランの段方向濃度分布をFig. 18にそれぞれ示す。

Fig. 16より、共除染工程では有機相ウラン濃度は6段目から検出下限値以下に減少している。FP洗浄工程及びTc洗浄工程では有機相ウラン濃度はほぼ一定である。

有機相硝酸濃度は有機相ウラン濃度(フリーTBP濃度)の増減により、共除染工程ではやや高く、FP洗浄工程及びTc洗浄工程で低くなっている。

Fig. 17より、U/Pu分配工程(抽出器Ⅱ)では、有機相ウラン濃度はウラン洗浄工程では段番号が小さくなるにつれて減少している。Pu逆抽出工程及びPuバリア工程ではほぼ一定値を示している。

水相ウラン濃度は、供給したPu還元剤がウラナス（4価のウラン，5.6 g/l）とともに6価のウラン（4.4 g/l）を含み、また、硝酸濃度も0.1 Mとやや低いため40～60 g/lと高くなっている。

Fig. 18のウラン逆抽出工程におけるウラン濃度分布より、9段目以降のウラン濃度は検出下限値以下になっていることから、ウラン装荷溶媒として1段目に供給されたウランが0.02 N希硝酸（ウラン逆抽出液）により効果的に逆抽出されてウラン溶液に移行していることを示している。

3.3 放射性核種等の定常濃度分布

定常到達後の抽出器Iから流出する高レベル廃液及びウラン溶媒の γ 線スペクトルをFig. 19及びFig. 20に、抽出器IIから流出するPu溶液及びウラン溶媒の γ 線スペクトルをFig. 21及びFig. 22に、抽出器IIIから流出するウラン溶液、再生溶媒及び洗浄廃液の γ 線スペクトルをFig. 23, Fig. 24及びFig. 25に、抽出器Iの12段目から流出するTc廃液の γ 線スペクトルをFig. 26に、抽出器IIの5段目から4段目に移行する水溶液の γ 線スペクトルをFig. 27に、抽出器IIIの11段目から12段目に移行する溶媒の γ 線スペクトルをFig. 28にそれぞれ示す。

共除染、FP洗浄及びTc洗浄工程（抽出器I）におけるテクネチウム、ネプツニウム及びヨウ素の段方向濃度分布をFig. 29に、ルテニウム及びジルコニウムの段方向濃度分布をFig. 30に示す。U/Pu分配工程（抽出器II）におけるテクネチウム、ネプツニウム及びヨウ素の段方向濃度分布をFig. 31に、また、ルテニウム及びジルコニウムの段方向濃度分布をFig. 32に示す。ウラン逆抽出工程及び溶媒洗浄工程（抽出器III）におけるテクネチウム、ネプツニウム及びヨウ素の段方向濃度分布をFig. 33に、また、ルテニウム及びジルコニウムの段方向濃度分布をFig. 34に示す。

Fig. 29より、テクネチウム、ネプツニウム及びヨウ素とも共除染工程では有機相濃度は傾きに差はあるが左下がりであり、TBPに抽出されているのがわかる。

テクネチウムは共除染工程では他の核種に比べ勾配が大きく有機溶媒に抽出されてFP洗浄工程へ移行している。テクネチウムがウランあるいはジルコニウムとともに共抽出されたものと考えられる。FP洗浄工程では、テクネチウムの水相濃度が有機相濃度より高く、テクネチウムが洗浄されていることを示している。Tc洗浄工程では水相濃度と有機相濃度との差がさらに大きくなり、テクネチウムが高硝酸濃度により効果的に洗浄されたことを示している。

ネプツニウムについては、共除染工程では勾配が緩やかで、また、ネプツニウムの水相濃度が有機相濃度よりも高いことから、ネプツニウムが5価として高レベル廃液へ移行していることを示している。高レベル廃液の吸光スペクトル測定により、高レベル廃液にネプツニウム5価のピーク（980 nm）を確認した（Fig. 35）。

Tc洗浄工程では高硝酸濃度水溶液条件のためネプツニウム6価の分配比が大きくなり、U/Pu分配工程へネプツニウムが移行したことを示している。なお、Tc洗浄廃液の吸光スペクトル測定より980 nmにピークが認められ、一部5価のネプツニウムの存在が確認された（Fig. 36）。

ヨウ素については、共除染工程において大部分抽出されてFP洗浄工程に移行している。FP洗浄工程及びTc洗浄工程ではほとんど洗浄されずにU/Pu分配工程へ移行している。

Fig. 30より、ルテニウム及びジルコニウムは共除染工程では水相濃度が有機相濃度より高く、また濃度勾配も小さいことからTBPにはほとんど抽出されずに高レベル廃液に移行している。ルテニウム

はF P洗浄工程及びT c洗浄工程において比較的好く洗浄されている。ジルコニウムはF P洗浄工程ではほとんど洗浄されないが、T c洗浄工程では洗浄されていることを示している。高濃度硝酸を用いたT c洗浄工程でのルテニウムとジルコニウムの濃度勾配を比較すると、ルテニウムの方がジルコニウムに比べ効率よく洗浄されていることがわかる。

Fig. 31及びFig. 32より、テクネチウム、ネプツニウム、ルテニウム及びジルコニウムについては、抽出器Iの16段目から流出する有機溶媒が供給される5段目より若い段番号のところでは水相濃度は有機相濃度よりも高く、また、6段目以降よりも濃度が高くなっており、1段目から流出するPu溶液に大部分の量が移行し、ウラン逆抽出工程へはわずかであることがわかる。なお、Pu溶液の吸光スペクトルより、ウラン6価の他にウラナスの吸収ピーク(647nm)が認められる(Fig. 37)。

ヨウ素については4段目以降で有機相中濃度が水相濃度よりも高く、大部分ウラン逆抽出工程へ移行したことを示している。

定常濃度分布の測定のための γ 線計測時間は、核種の半減期と試料数量を考慮し1試料あたり10分としたため、ウラン逆抽出工程及び溶媒洗浄工程まで有機溶媒に抽出されて移行する割合が非常に少ないテクネチウム、ネプツニウム、ルテニウム及びジルコニウムの濃度分布については γ 線計数値がバックグラウンドレベルであり、バラツキが大きく明らかな傾向を判断することは困難である。ヨウ素については有機溶媒に残留して移行する量が多いため、Fig. 33に示した濃度分布より、ウラン逆抽出工程では水相(ウラン溶液)にはほとんど移行しないが、溶媒洗浄工程ではアルカリ洗浄廃液側へ一部移行しているのがわかる。

3.4 亜硝酸濃度分布

共除染工程、F P洗浄工程及びT c洗浄工程における亜硝酸濃度分布をFig. 38に示す。共除染工程では有機相亜硝酸濃度が水相濃度よりも高く、TBPに抽出されている。F P洗浄工程及びT c洗浄工程では有機相濃度と水相濃度が逆転しており、亜硝酸が逆抽出されたことを示している。U/Pu分配工程へ供給される有機溶媒中の亜硝酸濃度は 6×10^{-5} Mと非常に低くなっている。亜硝酸の分配係数は、硝酸濃度、ウラン濃度、フリーTBP濃度などにより変化し、水相硝酸濃度が高くなると分配係数は小さくなる傾向がある。同図において、T c洗浄工程については硝酸濃度が約6Mと高いために亜硝酸が洗浄されたものと考えられる。

U/Pu分配工程における亜硝酸濃度分布をFig. 39に示す。U/Pu分配工程では、有機相及び水相とも亜硝酸濃度は全段通してほぼ一定であり、また、有機相濃度は水相濃度よりも高くなっている。Fig. 40及びFig. 41に示すU/Pu分配工程におけるヒドラジン濃度分布及びウラナス濃度分布より、全段にわたり亜硝酸分解剤及びPu還元剤であるウラナスが分布しており、水相中亜硝酸が 3×10^{-5} Mと低い値になっている。

3.5 ヒドラジン濃度分布

Fig. 40に示したU/Pu分配工程におけるヒドラジンの水相濃度分布より、ヒドラジンが全段にわたり、0.25M程度の高い濃度で分布している。U/Pu分配工程へ供給された有機溶媒中の亜硝酸濃度が 6×10^{-5} Mと低いため、亜硝酸の分解に消費されたヒドラジン量がわずかであったことを示している。

3. 6 ウラナス濃度分布

Fig. 41に示したU/Pu分配工程におけるウラナスの水相濃度分布より、ウラナスが全段にわたり、5 g/L程度の高い濃度で分布している。今回の試験では、Puを用いなかったこと及びウラナス安定剤であるヒドラジンが高濃度で存在したことにより、このような結果になったものと考えられる。

3. 7 HDBP濃度分布

前述したように本試験に用いた⁶⁰Co照射溶媒中のHDBP濃度は286 ppmであったが、抽出器Ⅲから流出し溶媒洗浄工程へ流入する溶媒（11段目有機相）中のHDBP濃度は42 ppm以下であり、共除染工程からウラン逆抽出工程までの間にHDBPが水相に逆抽出されて移行したことを示している。また、抽出器Ⅲ16段目（溶媒洗浄工程）から流出する溶媒中のHDBP濃度は2 ppm以下であった。溶媒洗浄工程でもHDBPがアルカリ洗浄されたものと推測される。

なお、溶媒洗浄工程（抽出器Ⅲ12段から16段）の各段の水相pHは約11であった。

3. 8 ウラン及び放射性核種等の移行率

模擬溶解液及び定常到達後の各流出液中のウラン及び模擬FP元素の濃度や流量比をもとに各放射性核種の移行率を算出した。なお、ウランについてPu還元剤として供給したウラナス及び同還元剤に含まれるウランを含めた移行率としている。その結果をTable 4に示す。

3. 8. 1 ウランの移行率

共除染工程及びFP洗浄工程では、99.999%以上のウランがTBP有機溶媒に抽出され、高レベル廃液には0.001%以下が移行した。Tc洗浄工程では分配平衡分が水相に逆抽出されて廃液側に移行し（分布率0.63%）、残り99.4%以上が有機溶媒に抽出されてU/Pu分配工程へ移行した。再処理施設では、Tc洗浄廃液へ移行したウランは補助抽出器を用いて抽出し、共除染工程へ戻され、回収されることになる。

U/Pu分配工程では、全ウランの89.1%がTBPに抽出されたままウラン逆抽出工程へ移行し、10.3%がPu溶液へ移行した。Pu溶液へのウランの移行率が大きいのは、ウラン洗浄工程の流量比(O/A)が小さかったためと思われる。

ウラン逆抽出工程では、全ウランの89.1%が0.02N硝酸により逆抽出された。溶媒洗浄廃液及び再生溶媒への移行率は0.001%以下であった。

3. 8. 2 テクネチウムの移行率

共除染工程及びFP洗浄工程では、98.8%以上のテクネチウムがTBP有機溶媒に抽出され、高レベル廃液には1.17%が移行した。Tc洗浄工程では85.98%が高硝酸洗浄液により洗浄されている。残り約12.7%が有機溶媒に抽出されてU/Pu分配工程へ移行した。民間再処理施設では、Tc洗浄廃液は最終的に高レベル廃液として処理されることになる。最終的に高レベル廃液に移行するTc量は約87%と推定される。

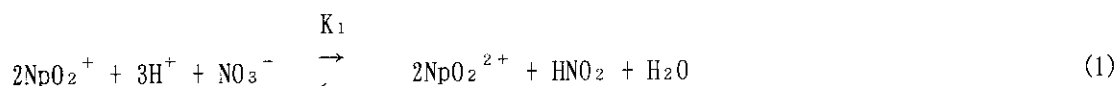
U/Pu分配工程では、全Tc量の12.7%がPu溶液に移行し、ウランとともにTBPに抽出されてウラン逆抽出工程へ移行したテクネチウムは0.06%であった。

ウラン逆抽出工程では、移行してきたテクネチウムのほぼ全量が0.02N硝酸により逆抽出された。溶媒洗浄廃液及び再生溶媒への移行率はそれぞれ0.001%以下、0.059%以下であった。

3.8.3 ネプツニウムの移行率

共除染工程及びFP洗浄工程では、約70%のネプツニウムがTBP有機溶媒に抽出されてTc洗浄工程へと移行し、高レベル廃液には約30%が移行した。

硝酸溶液中ではネプツニウムは4価、5価及び6価で存在するが、3M硝酸溶液中では4価はほとんど存在しないことが知られている。硝酸溶液中のネプツニウムの5価と6価の酸化還元平衡式は(1)式で表される⁶⁾。



ここで、平衡定数 $K_1 = 0.0006 \text{ M}^{-1.5}$

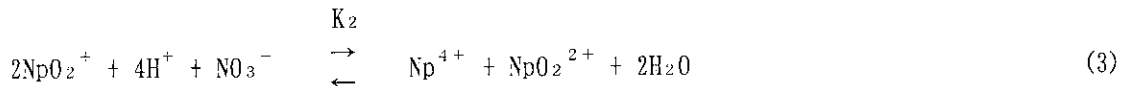
よって、(1)式より、ネプツニウム5価の割合は(2)式のように表される。

$$\text{Np 5 価 割合} = \frac{[\text{NpO}_2^+] \cdot 100}{[\text{NpO}_2^+] + [\text{NpO}_2^{2+}]} = \frac{[\text{HNO}_2]^{0.5} \cdot 100}{[\text{HNO}_2]^{0.5} + 0.0006 [\text{H}^+]^{1.5} \cdot [\text{NO}_3^-]^{0.5}} [\%] \quad (2)$$

模擬溶解液の溶液条件を同式に入れて計算されるネプツニウム5価の割合と亜硝酸濃度との関係をFig. 42に示す。同図より、亜硝酸濃度0.002Mでは、ネプツニウム5価の割合は90%となる。本試験で得られた高レベル廃液へ移行したネプツニウムの割合は約30%であり、模擬溶解液中のネプツニウム5価の割合に対し少なく、共除染工程においてネプツニウム5価が(1)式に従い硝酸により6価に一部酸化されたためと考えられる。

硝酸溶液中のネプツニウムの5価と6価の酸化還元平衡式についていくつかの報告があり今後これらの平衡式の妥当性及び抽出器内の酸化還元反応速度式について検討する必要がある^{7), 8)}。ネプツニウムを共除染工程において効率的に抽出し、高レベル廃液への移行率を低く抑えるには新たな酸化剤等を用いてネプツニウムの酸化を積極的に行う工程を設ける必要がある。

Tc洗浄工程では12.4%が高硝酸洗浄液により洗浄されているが、残り約57%が有機溶媒に抽出されてU/Pu分配工程へ移行した。30%TBP/nDD-硝酸溶液系における亜硝酸の分配比は0.2N以上の硝酸濃度条件では硝酸濃度が高くなるにつれて小さくなる⁹⁾。Tc洗浄工程ではFig. 38からもわかるように水相亜硝酸濃度は共除染工程に比べかなり高くなっている。上記(1)によりネプツニウムが6価から5価に一部還元されて水相に洗浄されたものと思われる。なお、民間再処理施設では、Tc洗浄廃液からウランとPuを抽出して回収するため補助抽出器が設けられている。この補助抽出器でのウラン及びPuの抽出は、テクネチウムを水相に保持させる必要があるためTc洗浄工程と同様の高硝酸濃度条件で行われる。ネプツニウムの補助抽出器での移行挙動は高硝酸濃度溶液条件でのネプツニウムの原子価状態に依存する。Tc洗浄工程及び補助抽出器のように5.5Mを越える硝酸水溶液中では次式で示されるネプツニウムの不均化反応についても考慮する必要がある。



ここで、平衡定数 $K_2 = 0.00014 \sim 0.00046 \text{ M}^{-4}$ である¹⁰⁾。

よって、(3)式より、ネプツニウム4価、5価及び6価の割合は(4)式及び(5)式のように表される。

$$\text{Np 5 価の割合} = \frac{[\text{NpO}_2^+] \cdot 100}{[\text{Np}^{4+}] + [\text{NpO}_2^+] + [\text{NpO}_2^{2+}]} = \frac{100}{2[K_2]^{0.5} \cdot [\text{H}^+]^2 + 1} \quad [\%] \quad (4)$$

$$\text{Np 4 価の割合} = \text{Np 6 価の割合} = 100 - \text{Np 5 価の割合} \quad [\%] \quad (5)$$

上式をもとに計算されるネプツニウムの原子価状態と硝酸濃度との関係を Fig. 43 に示す。同図より、6 M 硝酸水溶液では、ネプツニウムの40～50%がTBP非抽出性の5価となる。ネプツニウムの原子価状態は上式の不均化反応速度や抽出器の滞留時間などにも依存するため、Tc洗浄工程及び補助抽出器におけるネプツニウムの抽出移行挙動については、これら因子の影響について検討する必要がある。

U/Pu分配工程では、Tc洗浄工程から移行したネプツニウムのほぼ全量がPu溶液に移行した。また、ネプツニウムのウラン溶液への移行率は非常に小さかった。ネプツニウムがウラナス及びヒドラジンによりTBP非抽出性の5価までにしか還元されなかったためと思われる。実際にPu溶液の吸光スペクトルを測定したところ、5価のピークは認められたが4価のピークは認められなかった。

以上のように、今回の試験では共除染工程において高レベル廃液に約30%のネプツニウムが、またTc洗浄工程においてTc廃液へ約12%が移行したが、これらの移行率はネプツニウムの溶解液中の原子価状態、共除染工程での硝酸による5価から6価への酸化挙動、TBPのウランによる飽和度(フリーTBP濃度)、Tc洗浄工程-補助抽出器での還元及び不均化挙動などにより大きく影響されるため、ネプツニウムの移行率とこれらの試験条件との関係を調べる必要がある。

3. 8. 4 ヨウ素の移行率

溶液中濃度から求めたヨウ素の物質収支は約54%と他の核種(92%–105%)に比較して悪かった。試験中に模擬溶解液あるいは抽出器内のヨウ素が亜硝酸により I_2 に酸化($\text{I}^- \rightarrow \text{I}_2$)あるいは還元($\text{IO}_3^- \rightarrow \text{I}_2$)されて揮発し、気相へ移行してしまったためと考えられる。このことは試験後の模擬溶解液中のヨウ素の化学形の60%が I_2 であったことから推測される(Table 2)。なお、他の核種の本試験に係わる物質収支は87%–104%の範囲で比較的良好であった。

ここではヨウ素の移行率については、試験開始前に採取しておいた模擬溶解液中のヨウ素量に対する試験終了後に採取した各流出液への移行率として求めた。また、物質収支の不足分46%は模擬溶解液からオフガス系へ移行したものとした。

共除染工程及びFP洗浄工程では、高レベル廃液へのヨウ素の移行率は3%で、51%がTBPに抽出されてTc洗浄工程へと移行した。

Tc洗浄工程では4.9%が高硝酸洗浄液により洗浄されているが、残り46%が有機溶媒に抽出されてU/Pu分配工程へ移行した。

U/Pu分配工程では、全体の3%がPu溶液に移行した。

ウラン逆抽出工程及び溶媒洗浄工程では有機溶媒中ヨウ素ほとんど洗浄されずに再生溶媒に38.3%移行した。ウラン溶液への移行率は0.76%であり、溶媒洗浄廃液への移行率は4%であった。

なお、溶媒洗浄済み溶媒（再生溶媒）を0.1NのNaOHにより体積比(O/A)=1で2回、回分洗浄した後、さらに1N硝酸で1回同様にして回分洗浄し、ヨウ素の洗浄挙動を調べた。その結果をTable 5に示す。1回目の0.1NのNaOHで残量ヨウ素のうち47%が洗浄されたが、2回目の洗浄では洗浄率は残量ヨウ素の6%とほとんど洗浄されなかった。残留するヨウ素を1N硝酸により洗浄したが、洗浄率は0.6%とわずかであった。この結果は、溶媒洗浄工程においてウラン逆抽出済み溶媒に残留するヨウ素濃度を弱アルカリ性及び強アルカリ性試薬を用いて約半分程度に洗浄することは可能であるが、さらに残留するヨウ素については酸性試薬ではほとんど洗浄できないことを示している。この残留するヨウ素はTBPあるいは希釈剤の硝酸あるいは放射線による加水分解生成物などに有機ヨウ素として強く固定化されているものと推定される。再処理工程では、有機ヨウ素を含む溶媒洗浄済み溶媒は再生溶媒としてリサイクル使用されることになり、再生溶媒中のヨウ素濃度はリサイクル回数とともに増加することと思われる。再使用できなくなった廃棄溶媒（廃溶媒）の処理工程ではヨウ素の処理対策（オフガス捕集等）が必要となる。たとえば、廃溶媒を液中燃焼法により処理する場合にはオフガス系へ揮発移行するヨウ素を銀吸着剤により除去する方法が検討されている¹¹⁾。

3. 8. 5 ルテニウムの移行率

ルテニウムは共除染工程において模擬溶解液として供給した量の98.93%がTBP有機溶媒に抽出されずに、高レベル廃液へ移行した。Tc洗浄工程では0.89%がTc廃液に移行し、U/Pu分配工程への移行率は約0.15%であり、その大部分はPu溶液へ移行した。

3. 8. 6 ジルコニウムの移行率

ジルコニウムは共除染工程において模擬溶解液として供給した量の93.4%がTBP有機溶媒に抽出されずに、高レベル廃液に移行した。Tc洗浄工程では4.1%が廃液側に移行し、U/Pu分配工程への移行率は2.6%であった。U/Pu分配工程では、Pu溶液に1.4%が移行し、ウラン逆抽出工程ではウラン溶液に1.2%移行した。

4. おわりに

現行再処理工場（ピューレックス法）の抽出分離第1サイクルを模擬した分離フローシートを3基のミキサセトラ型抽出器で構成し、溶液条件によりTBP（リン酸トリブチル）抽出性が異なる複数の原子価状態や複合錯体で存在するために複雑な抽出挙動を示すことで知られているテクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ジルコニウム及びルテニウムなどの放射性核種の抽出移行挙動をウラン溶液系において測定した。得られた結果は以下のとおりである。

ウランは共除染工程において模擬溶解液として供給した量に対し99.999%以上がTBP有機溶媒に抽出されて次工程へと移行し、高レベル廃液への移行率は0.001%以下であった。ウラン逆抽出工程では全U量の89.1%が回収された。テクネチウムは、共除染工程において模擬溶解液として供給し

U/Pu分配工程では、全体の3%がPu溶液に移行した。

ウラン逆抽出工程及び溶媒洗浄工程では有機溶媒中ヨウ素ほとんど洗浄されずに再生溶媒に38.3%移行した。ウラン溶液への移行率は0.76%であり、溶媒洗浄廃液への移行率は4%であった。

なお、溶媒洗浄済み溶媒（再生溶媒）を0.1NのNaOHにより体積比(O/A)=1で2回、回分洗浄した後、さらに1N硝酸で1回同様にして回分洗浄し、ヨウ素の洗浄挙動を調べた。その結果をTable 5に示す。1回目の0.1NのNaOHで残量ヨウ素のうち47%が洗浄されたが、2回目の洗浄では洗浄率は残量ヨウ素の6%とほとんど洗浄されなかった。残留するヨウ素を1N硝酸により洗浄したが、洗浄率は0.6%とわずかであった。この結果は、溶媒洗浄工程においてウラン逆抽出済み溶媒に残留するヨウ素濃度を弱アルカリ性及び強アルカリ性試薬を用いて約半分程度に洗浄することは可能であるが、さらに残留するヨウ素については酸性試薬ではほとんど洗浄できないことを示している。この残留するヨウ素はTBPあるいは希釈剤の硝酸あるいは放射線による加水分解生成物などに有機ヨウ素として強く固定化されているものと推定される。再処理工程では、有機ヨウ素を含む溶媒洗浄済み溶媒は再生溶媒としてリサイクル使用されることになり、再生溶媒中のヨウ素濃度はリサイクル回数とともに増加することと思われる。再使用できなくなった廃棄溶媒（廃溶媒）の処理工程ではヨウ素の処理対策（オフガス捕集等）が必要となる。たとえば、廃溶媒を液中燃焼法により処理する場合にはオフガス系へ揮発移行するヨウ素を銀吸着剤により除去する方法が検討されている¹¹⁾。

3. 8. 5 ルテニウムの移行率

ルテニウムは共除染工程において模擬溶解液として供給した量の98.93%がTBP有機溶媒に抽出されずに、高レベル廃液へ移行した。Tc洗浄工程では0.89%がTc廃液に移行し、U/Pu分配工程への移行率は約0.15%であり、その大部分はPu溶液へ移行した。

3. 8. 6 ジルコニウムの移行率

ジルコニウムは共除染工程において模擬溶解液として供給した量の93.4%がTBP有機溶媒に抽出されずに、高レベル廃液に移行した。Tc洗浄工程では4.1%が廃液側に移行し、U/Pu分配工程への移行率は2.6%であった。U/Pu分配工程では、Pu溶液に1.4%が移行し、ウラン逆抽出工程ではウラン溶液に1.2%移行した。

4. おわりに

現行再処理工場（ピューレックス法）の抽出分離第1サイクルを模擬した分離フローシートを3基のミキサセトラ型抽出器で構成し、溶液条件によりTBP（リン酸トリブチル）抽出性が異なる複数の原子価状態や複合錯体で存在するために複雑な抽出挙動を示すことで知られているテクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ジルコニウム及びルテニウムなどの放射性核種の抽出移行挙動をウラン溶液系において測定した。得られた結果は以下のとおりである。

ウランは共除染工程において模擬溶解液として供給した量に対し99.999%以上がTBP有機溶媒に抽出されて次工程へと移行し、高レベル廃液への移行率は0.001%以下であった。ウラン逆抽出工程では全U量の89.1%が回収された。テクネチウムは、共除染工程において模擬溶解液として供給し

た量に対し98.8%がTBP有機溶媒により抽出され、高レベル廃液へは1.17%が移行した。Tc洗浄工程では高濃度硝酸により全Tc量の86%が洗浄され、U/Pu分配工程では13%がPu溶液へ移行した。ネプツニウムは、共除染工程において模擬溶解液として供給した量に対し約70%がTBP有機溶媒により抽出され、Tc洗浄工程では12%が洗浄された。U/Pu分配工程へは57%が移行し、そこではほぼ全量がPu溶液へ移行した。ヨウ素については、模擬溶解液として調整した量の約45%が試験中にヨウ素ガスとして揮発したと思われる。ヨウ素は抽出分離工程ではほとんど水相へは移行せず、有機溶媒中に残留し分離工程を移行することがわかった。ジルコニウム及びルテニウムは、共除染工程において模擬溶解液として供給した量に対しそれぞれ93.4%、98.9%が高レベル廃液へ移行した。高濃度硝酸を用いたTc洗浄工程ではルテニウムがジルコニウムに比べ効率よく洗浄された。

今後、ウラン-プルトニウム-R I溶液系あるいは使用済み燃料溶液系で試験を行い、核種の濃度や原子価状態、TBPウラン飽和度（フリーTBP濃度）、流量比、還元剤濃度、工程段数、滞留時間（流量）及び不純物濃度などが異なる試験条件における上記の放射性核種の移行率などを取得し、高度化再処理プロセス（PARCプロセス）を開発していく予定である。

謝 辞

本試験を実施するに当たり、燃料サイクル安全工学部長内藤倣孝氏から御支援を頂いた。また、本試験の運転及び分析に際し、原子力エンジニアリング（株）の櫻村次夫氏、柳田佳徳氏、石崎洋一氏、放射線照射振興協会（財）の佐藤真人氏、高橋由博氏、沢田睦氏の各氏には御協力して頂いた。NUCEF試験室技術試験課BECKYグループ員及びプロセス安全工学研究室員の方々から種々のご協力を頂いた。本原稿の査読をNUCEF試験室課長代理杉川進氏にお願いした。各氏に対し、ここに深く感謝の意を表します。

た量に対し98.8%がTBP有機溶媒により抽出され、高レベル廃液へは1.17%が移行した。Tc洗浄工程では高濃度硝酸により全Tc量の86%が洗浄され、U/Pu分配工程では13%がPu溶液へ移行した。ネプツニウムは、共除染工程において模擬溶解液として供給した量に対し約70%がTBP有機溶媒により抽出され、Tc洗浄工程では12%が洗浄された。U/Pu分配工程へは57%が移行し、そこではほぼ全量がPu溶液へ移行した。ヨウ素については、模擬溶解液として調整した量の約45%が試験中にヨウ素ガスとして揮発したと思われる。ヨウ素は抽出分離工程ではほとんど水相へは移行せず、有機溶媒中に残留し分離工程を移行することがわかった。ジルコニウム及びルテニウムは、共除染工程において模擬溶解液として供給した量に対しそれぞれ93.4%、98.9%が高レベル廃液へ移行した。高濃度硝酸を用いたTc洗浄工程ではルテニウムがジルコニウムに比べ効率よく洗浄された。

今後、ウラン-プルトニウム-R I溶液系あるいは使用済み燃料溶液系で試験を行い、核種の濃度や原子価状態、TBPウラン飽和度（フリーTBP濃度）、流量比、還元剤濃度、工程段数、滞留時間（流量）及び不純物濃度などが異なる試験条件における上記の放射性核種の移行率などを取得し、高度化再処理プロセス（PARCプロセス）を開発していく予定である。

謝 辞

本試験を実施するに当たり、燃料サイクル安全工学部長内藤倣孝氏から御支援を頂いた。また、本試験の運転及び分析に際し、原子力エンジニアリング（株）の櫻村次夫氏、柳田佳徳氏、石崎洋一氏、放射線照射振興協会（財）の佐藤真人氏、高橋由博氏、沢田睦氏の各氏には御協力して頂いた。NUCEF試験室技術試験課BECKYグループ員及びプロセス安全工学研究室員の方々から種々のご協力を頂いた。本原稿の査読をNUCEF試験室課長代理杉川進氏にお願いした。各氏に対し、ここに深く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) Uchiyama G., Fujine S., Hotoku S., Maeda M. : "New separation process for neptunium, plutonium and uranium using butyraldehydes as reductants in reprocessing. "Nucl. Technol., **102**, 341(1993).
- 2) Uchiyama G., Asakura T., Watanabe M., Fujine S., Maeda M. : "A new separation process of neptunium, technetium, plutonium and uranium using butyraldehydes as reductants in nuclear fuel reprocessing. "Proc. of Int. Solvent Extraction Conf. (ISEC'96) (1996).
- 3) Uchiyama G., Fujine S., Hotoku S., Maeda M. : " Method of separating uranium, plutonium and neptunium from spent nuclear fuel mutually" France Patent 2682523 (1994).
- 4) Maeda M., Fujine S., Uchiyama G., Kihara T., Asakura T., Sakurai T. and Tsujino T., : " Proc. of Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems (Global 1995)", 556(1995).
- 5) Sakurai T., Takahashi A., Ishikawa N. and Komaki Y. : "Interaction of iodine with an extraction of 30% TBP/70% n-dodecane", J. Nucl. Sci. Technol, **32**[7], 664 (1995).
- 6) Gourisse D. : "Oxidation of Np(V) by aqueous solutions of nitric acid in the presence of

- nitrous acid", *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **33**, 831(1971).
- 7) Tochiyama O., Nakamura Y., Hirota M and Inoue Y. : " Kinetics of nitrous acid - catalyzed oxidation of neptunium in nitric acid-TBP extraction system", *J. Nucl. Sci. Technol.*, **32**[2], 118(1995).
 - 8) Moulin J. P. : "Oxidation-reduction kinetics of neptunium in nitric acid solution", CEA-R-4912 (1979).
 - 9) 宝徳 忍, 木原武弘, 内山軍藏, 藤根幸雄, 前田 充 : JAERI-M 93-095, "亜硝酸の再処理溶液中での分配平衡" (1993).
 - 10) Sidall T.H., Dukes E. J. : "Kinetics of HNO_2 catalyzed oxidation of neptunium(V) by aqueous solutions of nitric acid ", *J. Am. Chem. Soc.*, **81**, 790(1959).
 - 11) Uchiyama G., Maeda M., Fujine S., Amakawa M and Uchida K., Chida M. : " Development of spent solvent treatment process by a submerged combustion technique", *J. Nucl. Sci. Technol.*, **31**[3], 228(1994).

Table 1 模擬溶解液組成

硝酸 濃度	2.93 M
亜硝酸濃度	0.0022 M
ウラン濃度	236 g/L
⁹⁹ Tc 濃度	11 mg/L
²³⁷ Np 濃度	63 mg/L
I 濃度	2.1 mg/L (1.7×10^{-5} M)
Ru 濃度	810 mg/L
Zr 濃度	1,340 mg/L
Sr 濃度	310 mg/L
Mo 濃度	1,200 mg/L
Ce 濃度	800 mg/L
Ba 濃度	530 mg/L
Pd 濃度	480 mg/L
Cs 濃度	920 mg/L
La 濃度	400 mg/L
他模擬FP濃度	570 mg/L

Table 2 模擬溶解液及び流出溶液中のヨウ素化学形

	I ⁻	IO ₃ ⁻	コロイド	I ₂
模擬溶解液	9.74	5.21	24.96	60.09
高レベル廃液	15.07	14.67	12.93	57.33
Pu溶液	6.93	3.79	13.07	76.21
Tc廃液	3.64	3.00	44.62	48.74

Table 3 定常到達後の抽出器 I、抽出器 II 及び抽出器 III の各段における酸、ウラン、亜硝酸、テクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ルテニウム及びジルコニウムの濃度及び分配比 (1/3)

	段番号	相	H ⁺ [N]	U [g/l]	HNO ₂ [N]	⁹⁹ Tc [mg/l]	²³⁷ Np [mg/l]	I [mg/l]	Ru [mg/l]	Zr [mg/l]
抽出器 I	1	Org	6.80E-01		1.26E-04	5.69E-02	4.47E+00	1.08E-02	3.65E+01	1.12E+01
		Aq	3.23E+00		4.78E-05	1.26E-01	1.15E+01	4.40E-02	4.91E+02	7.93E+02
		D=O/A	2.11E-01		2.64E+00	4.52E-01	3.89E-01	2.46E-01	7.43E-02	1.41E-02
	2	Org	7.40E-01		1.59E-04	1.39E-01	4.02E+00	1.44E-02	3.57E+01	1.42E+01
		Aq	3.65E+00	2.56E+00	5.29E-05	2.15E-01	1.33E+01	4.02E-02	5.40E+02	8.07E+02
		D=O/A	2.03E-01		3.01E+00	6.48E-01	3.02E-01	3.58E-01	6.61E-02	1.77E-02
	3	Org	7.60E-01		1.82E-04	2.94E-01	4.09E+00	7.43E-03	3.49E+01	1.48E+01
		Aq	3.65E+00		5.63E-05	3.56E-01	1.48E+01	2.71E-02	5.83E+02	8.41E+02
		D=O/A	2.08E-01		3.23E+00	8.25E-01	2.77E-01	2.74E-01	5.99E-02	1.76E-02
	4	Org	7.70E-01		2.05E-04	7.16E-01	7.48E+00	2.12E-02	3.83E+01	1.67E+01
		Aq	3.75E+00	4.15E+00	6.27E-05	8.28E-01	1.26E+01	7.82E-02	6.06E+02	8.83E+02
		D=O/A	2.05E-01		3.27E+00	8.65E-01	5.92E-01	2.71E-01	6.33E-02	1.89E-02
	5	Org	7.90E-01		2.02E-04	1.94E+00	1.05E+01	2.92E-02	4.84E+01	2.33E+01
		Aq	3.80E+00	3.72E+00	7.09E-05	1.53E+00	1.82E+01	8.38E-02	6.47E+02	9.06E+02
		D=O/A	2.08E-01		2.85E+00	1.27E+00	5.77E-01	3.48E-01	7.49E-02	2.57E-02
	6	Org	7.90E-01		2.62E-04	4.48E+00	1.63E+01	5.05E-02	5.10E+01	3.11E+01
		Aq	3.85E+00	3.81E+00	8.25E-05	3.56E+00	1.91E+01	8.62E-02	7.18E+02	1.00E+03
		D=O/A	2.05E-01		3.18E+00	1.26E+00	8.52E-01	5.86E-01	7.10E-02	3.10E-02
	7	Org	7.60E-01	6.82E+00	2.66E-04	8.81E+00	1.65E+01	8.04E-02	4.54E+01	3.95E+01
		Aq	3.93E+00	5.25E+00	9.59E-05	7.57E+00	3.25E+01	9.80E-02	7.44E+02	1.05E+03
		D=O/A	1.93E-01	1.30E+00	2.77E+00	1.16E+00	5.07E-01	8.21E-01	6.11E-02	3.75E-02
	8	Org	4.20E-01	5.58E+01	3.05E-04	1.24E+01	1.92E+01	1.94E-01	1.74E+01	4.37E+01
		Aq	3.82E+00	1.47E+01	1.37E-04	1.80E+01	4.37E+01	1.58E-01	6.85E+02	9.87E+02
		D=O/A	1.10E-01	3.80E+00	2.23E+00	6.92E-01	4.40E-01	1.23E+00	2.53E-02	4.43E-02
	9	Org	3.10E-01	6.35E+01	2.89E-04	1.28E+01	1.86E+01	1.81E-01	1.01E+01	4.53E+01
		Aq	2.95E+00	6.02E+00	8.92E-05	3.02E+01	3.38E+01	7.05E-02	7.61E+01	1.47E+02
		D=O/A	1.05E-01	1.05E+01	3.24E+00	4.23E-01	5.50E-01	2.57E+00	1.32E-01	3.07E-01
	10	Org	2.40E-01	6.61E+01	3.03E-04	1.05E+01	1.36E+01	1.75E-01	5.78E+00	3.58E+01
		Aq	2.48E+00	9.06E+00	9.38E-05	2.84E+01	3.05E+01	6.55E-02	2.74E+01	9.52E+01
		D=O/A	9.68E-02	7.30E+00	3.23E+00	3.69E-01	4.47E-01	2.67E+00	2.11E-01	3.76E-01
	11	Org				1.92E+01	1.90E+01	3.78E-02	9.47E+00	5.46E+01
		Aq	2.25E+00	3.88E+00	9.56E-05	2.06E+01	2.11E+01	3.90E-02	9.64E+00	6.50E+01
		D=O/A				9.29E-01	9.02E-01	9.70E-01	9.83E-01	8.40E-01
	12	Org	4.30E-01	6.49E+01	1.57E-04	6.77E+00	1.66E+01	1.86E-01	2.58E+00	2.96E+01
		Aq	4.89E+00		4.11E-04	3.72E+01	1.15E+01	1.06E-01	1.35E+01	1.05E+02
		D=O/A	8.79E-02		3.82E-01	1.82E-01	1.44E+00	1.76E+00	1.92E-01	2.82E-01
	13	Org	4.50E-01	6.66E+01	1.18E-04	5.44E+00	1.57E+01	1.89E-01	1.72E+00	2.29E+01
		Aq	5.71E+00		3.72E-04	2.68E+01	6.18E+00	9.29E-02	1.29E+01	7.26E+01
		D=O/A	7.88E-02		3.17E-01	2.03E-01	2.54E+00	2.03E+00	1.34E-01	3.15E-01
	14	Org	4.80E-01	6.69E+01	1.00E-04	3.92E+00	1.56E+01	1.81E-01	1.50E+00	2.04E+01
		Aq	5.90E+00	5.22E+00	2.95E-04	1.77E+01	4.16E+00	7.72E-02	5.69E+00	5.05E+01
		D=O/A	8.14E-02	1.28E+01	3.39E-01	2.21E-01	3.74E+00	2.35E+00	2.63E-01	4.05E-01
	15	Org	4.70E-01	6.80E+01	4.06E-05	2.63E+00	1.48E+01	1.77E-01	4.16E-01	1.36E+01
		Aq	5.98E+00	4.05E+00	5.43E-04	1.25E+01	5.80E+00	7.23E-02	4.77E+00	3.92E+01
		D=O/A	7.86E-02	1.68E+01	7.48E-02	2.10E-01	2.55E+00	2.45E+00	8.71E-02	3.47E-01
	16	Org	4.80E-01	6.56E+01	6.22E-05	1.44E+00	1.27E+01	1.55E-01	4.69E-01	1.13E+01
		Aq	6.05E+00		3.73E-04	6.87E+00	5.11E+00	4.71E-02	3.85E+00	2.36E+01
		#VALUE!	7.93E-02		1.67E-01	2.09E-01	2.48E+00	3.29E+00	1.22E-01	4.78E-01

Table 3 定常到達後の抽出器Ⅰ、抽出器Ⅱ及び抽出器Ⅲの各段における酸、ウラン、亜硝酸、テクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ルテニウム及びジルコニウムの濃度及び分配比 (2/3)

	段番号	相	H ⁺ [N]	U [g/l]	HNO ₂ [N]	⁹⁹ Tc [mg/l]	²³⁷ Np [mg/l]	I [mg/l]	Ru [mg/l]	Zr [mg/l]
抽出器Ⅱ	1	Org	2.10E-01	2.92E+01	8.58E-05	1.55E-01	1.88E+01	1.04E-02	5.50E-01	9.24E+00
		Aq	1.20E+00	1.21E+01	1.20E-05	2.67E+00	2.51E+01	2.25E-02	7.67E-01	2.17E+01
		D=O/A	1.75E-01	2.41E+00	7.15E+00	5.82E-02	7.49E-01	4.62E-01	7.17E-01	4.25E-01
	2	Org	1.10E-01	6.81E+01	7.86E-05	1.54E-01	7.72E+00	1.75E-02	3.26E-01	3.46E+00
		Aq	1.44E+00	2.19E+01	1.50E-05	3.17E+00	4.36E+01	3.39E-02	2.31E+00	3.24E+01
		D=O/A	7.64E-02	3.12E+00	5.24E+00	4.85E-02	1.77E-01	5.16E-01	1.41E-01	1.07E-01
	3	Org	1.00E-01	7.99E+01	5.45E-05	2.39E-01	6.47E+00	3.67E-02	4.90E-01	4.35E+00
		Aq	1.51E+00	2.69E+01	1.61E-05	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
		D=O/A	6.62E-02	2.97E+00	3.39E+00					
	4	Org	1.00E-01	7.92E+01	1.08E-04	7.98E-01	9.16E+00	1.36E-01	7.46E-02	7.41E+00
		Aq	1.51E+00	2.94E+01	3.40E-05	4.15E+00	4.34E+01	4.43E-02	1.30E+00	3.52E+01
		D=O/A	6.62E-02	2.70E+00	3.18E+00	1.92E-01	2.11E-01	3.07E+00	5.76E-02	2.10E-01
	5	Org	3.00E-02	8.24E+01	6.56E-05	2.04E-01	2.93E+00	1.40E-01	6.29E-01	2.54E+00
		Aq	5.40E-01	7.15E+01	2.75E-05	2.29E+00	2.23E+01	2.05E-02	1.34E+00	2.35E+01
		D=O/A	5.56E-02	1.15E+00	2.39E+00	8.89E-02	1.32E-01	6.85E+00	4.68E-01	1.08E-01
	6	Org	ND	8.49E+01	8.28E-05	1.48E-01	7.79E-01	1.29E-01	1.05E+00	1.34E+00
		Aq	2.00E-01	7.39E+01	2.58E-05	6.54E-01	7.01E+00	1.66E-02	1.59E+00	1.06E+01
		D=O/A		1.15E+00	3.21E+00	2.26E-01	1.11E-01	7.74E+00	6.64E-01	1.26E-01
	7	Org		8.60E+01	8.99E-05	2.15E-01	1.14E-01	1.48E-01	6.35E-01	2.34E-01
		Aq	1.40E-01	7.87E+01	2.46E-05	2.25E-01	2.94E-01	1.47E-02	1.14E+00	3.72E+00
		D=O/A		1.09E+00	3.65E+00	9.54E-01	3.87E-01	1.01E+01	5.57E-01	6.28E-02
	8	Org		8.48E+01	7.78E-05	1.50E-01	1.35E-01	1.38E-01	5.43E-01	3.93E-01
		Aq	1.20E-01	7.75E+01	2.66E-05	1.68E-01	1.08E+00	1.11E-02	8.10E-01	2.46E+00
		D=O/A		1.09E+00	2.92E+00	8.91E-01	1.25E-01	1.24E+01	6.71E-01	1.60E-01
	9	Org		8.31E+01	7.30E-05	1.88E-01	1.87E-01	1.55E-01	6.46E-01	4.68E-02
		Aq	1.30E-01	7.49E+01	2.54E-05	1.60E-01	3.37E-01	1.29E-02	3.98E-01	1.92E+00
		D=O/A		1.11E+00	2.87E+00	1.18E+00	5.54E-01	1.20E+01	1.62E+00	2.44E-02
	10	Org		8.07E+01	7.50E-05	2.04E-01	0.00E+00	1.67E-01	2.28E-01	7.67E-01
		Aq	1.20E-01	6.91E+01	2.65E-05	1.71E-01	0.00E+00	1.13E-02	5.80E-01	1.24E+00
		D=O/A		1.17E+00	2.83E+00	1.19E+00		1.48E+01	3.93E-01	6.17E-01
	11	Org		7.59E+01	7.08E-05	1.82E-01	0.00E+00	1.49E-01	5.22E-01	8.70E-01
		Aq	1.20E-01	6.42E+01	2.73E-05	1.47E-01	0.00E+00	8.51E-03	1.81E-01	1.38E+00
		D=O/A		1.18E+00	2.59E+00	1.24E+00		1.75E+01	2.88E+00	6.33E-01
	12	Org	3.00E-02	6.55E+01	5.93E-05	1.45E-01	0.00E+00	1.51E-01	3.84E-01	2.99E-01
		Aq	1.30E-01	5.20E+01	2.55E-05	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
		D=O/A	2.31E-01	1.26E+00	2.33E+00					
	13	Org		6.42E+01	7.05E-05	1.18E-01	0.00E+00	1.29E-01	0.00E+00	0.00E+00
		Aq	2.00E-01	7.51E+01	2.42E-05	1.21E-01	3.37E-01	1.22E-02	9.59E-02	1.36E+00
		D=O/A		8.55E-01	2.91E+00	9.76E-01	0.00E+00	1.06E+01	0.00E+00	0.00E+00
	14	Org		6.69E+01	6.90E-04	1.44E-01	0.00E+00	1.40E-01	0.00E+00	0.00E+00
		Aq	1.30E-01	4.78E+01	2.39E-05	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
		D=O/A		1.40E+00	2.89E+01					
	15	Org	DL	6.26E+01	1.04E-04	1.29E-01	6.01E-01	1.47E-01	3.30E-01	9.54E-01
		Aq	1.20E-01	4.81E+01	2.69E-05	9.00E-02	0.00E+00	7.39E-03	6.50E-01	9.63E-01
		D=O/A		1.30E+00	3.87E+00	1.43E+00		1.99E+01	5.08E-01	9.90E-01
	16	Org		5.76E+01	7.79E-05	7.49E-02	3.28E-01	1.56E-01	2.66E-01	6.73E-01
		Aq	1.70E-01	3.96E+01	2.91E-05	1.06E-01	5.79E-02	6.67E-03	3.84E-02	1.42E+00
		D=O/A		1.45E+00	2.68E+00	7.05E-01	5.67E+00	2.34E+01	6.94E+00	4.74E-01

Table 3 定常到達後の抽出器Ⅰ、抽出器Ⅱ及び抽出器Ⅲの各段における酸、ウラン、亜硝酸、テクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ルテニウム及びジルコニウムの濃度及び分配比 (3/3)

段番号	相	H ⁺ [N]	U [g/l]	HNO ₂ [N]	⁹⁹ Tc [mg/l]	²³⁷ Np [mg/l]	I [mg/l]	Ru [mg/l]	Zr [mg/l]
1	Org		4.56E+01		0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
	Aq	1.00E-02	4.27E+01		7.03E-02	5.58E-01	1.35E-03	1.45E-01	0.00E+00
	D=O/A		1.07E+00		0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	
2	Org	DL	3.79E+01		9.50E-02	0.00E+00	1.31E-01	2.62E-01	5.61E-01
	Aq	2.00E-02	3.77E+01		1.08E-01	3.22E-01	2.27E-03	2.77E-02	3.27E-01
	D=O/A		1.00E+00		8.80E-01	0.00E+00	5.77E+01	9.46E+00	1.71E+00
3	Org		2.99E+01		4.60E-02	8.58E-02	1.42E-01	1.07E-01	7.02E-01
	Aq	2.00E-02	2.84E+01		5.61E-02	4.29E-02	2.27E-03	1.07E-02	0.00E+00
	D=O/A		1.05E+00		8.21E-01	2.00E+00	6.24E+01	1.00E+01	#DIV/0!
4	Org		1.81E+01		0.00E+00	0.00E+00	1.53E-01	0.00E+00	4.02E-01
	Aq	1.00E-02	2.17E+01		4.19E-02	0.00E+00	1.70E-03	2.56E-02	1.40E-01
	D=O/A		8.35E-01		0.00E+00		9.02E+01	0.00E+00	2.87E+00
5	Org		8.15E+00		0.00E+00	8.58E-02	1.41E-01	2.62E-01	5.80E-01
	Aq	2.00E-02	1.45E+01		3.31E-02	1.93E-01	2.56E-03	1.21E-01	2.81E-02
	D=O/A		5.64E-01		0.00E+00	4.44E-01	5.51E+01	2.15E+00	2.07E+01
6	Org		2.01E+00		8.37E-03	1.01E-01	1.76E-01	4.26E-02	1.12E-01
	Aq	2.00E-02	7.28E+00		1.34E-02	0.00E+00	0.00E+00	1.77E-01	2.81E-02
	D=O/A		2.76E-01		6.25E-01			2.41E-01	4.00E+00
7	Org				2.01E-02	3.86E-01	1.69E-01	4.26E-02	3.74E-01
	Aq	2.00E-02	3.06E+00		0.00E+00	9.23E-02	1.78E-03	1.24E-01	0.00E+00
	D=O/A					4.19E+00	9.48E+01	3.45E-01	
8	Org				0.00E+00	0.00E+00	1.61E-01	6.39E-02	0.00E+00
	Aq	2.00E-02	7.80E-01		0.00E+00	0.00E+00	7.68E-04	0.00E+00	4.02E-01
	D=O/A						2.09E+02		0.00E+00
9	Org				1.67E-02	3.65E-02	1.68E-01	2.19E-01	2.99E-01
	Aq	2.00E-02			1.72E-02	7.94E-02	5.80E-04	1.11E-01	2.99E-01
	D=O/A				9.76E-01	4.59E-01	2.89E+02	1.98E+00	1.00E+00
10	Org				8.37E-04	2.85E-01	1.83E-01	6.39E-02	2.99E-01
	Aq	2.00E-02			0.00E+00	5.79E-02	1.45E-03	5.75E-02	4.96E-01
	D=O/A					4.93E+00	1.26E+02	1.11E+00	6.04E-01
11	Org				0.00E+00	0.00E+00	1.74E-01	2.24E-01	3.09E-01
	Aq	2.00E-02			0.00E+00	1.14E-01	2.90E-03	1.49E-02	5.61E-01
	D=O/A					0.00E+00	6.00E+01	1.50E+01	5.50E-01
12	Org				0.00E+00	0.00E+00	1.65E-01	1.64E-01	0.00E+00
	Aq				2.55E-02	0.00E+00	1.91E-01	2.34E-01	5.33E-01
	D=O/A				0.00E+00		8.65E-01	7.00E-01	0.00E+00
13	Org				1.26E-03	0.00E+00	1.77E-01	1.13E-01	2.99E-01
	Aq				2.01E-02	0.00E+00	1.42E-01	3.77E-01	3.09E-01
	D=O/A				6.25E-02		1.25E+00	2.99E-01	9.70E-01
14	Org				0.00E+00	0.00E+00	1.73E-01	0.00E+00	5.61E-01
	Aq				8.37E-03	0.00E+00	8.85E-02	4.09E-01	4.86E-01
	D=O/A				0.00E+00		1.95E+00	0.00E+00	1.15E+00
15	Org				0.00E+00	2.94E-01	1.71E-01	0.00E+00	0.00E+00
	Aq				6.28E-03	0.00E+00	5.34E-02	1.11E-01	9.35E-01
	D=O/A				0.00E+00		3.21E+00	0.00E+00	0.00E+00
16	Org				3.39E-02	0.00E+00	1.57E-01	6.82E-02	2.81E-02
	Aq				0.00E+00	2.79E-02	4.82E-02	0.00E+00	2.99E-01
	D=O/A					0.00E+00	3.26E+00		9.38E-02

抽出器Ⅲ

Table 4 ウラン、テクネチウム、ネプツニウム、ヨウ素、ルテニウム及びジルコニウムの移行率

	移 行 率 [%]					
	高レベル 廃 液	Tc 廃 液	Pu 溶 液	U 溶 液	洗 浄 廃 液	再 生 溶 媒
U	< 0.001	0.64	10.3 (U ⁴⁺ :2.4%)	89.1	< 0.001	< 0.001
Tc	1.17	85.98	12.7	0.06	< 0.001	< 0.059
Np	30.97	12.43	56.5	< 0.01	< 0.001	< 0.12
I	3.16	4.89	3.13	0.76	4.09	38.3
Ru	98.93	0.89	0.14	< 0.01	0.01	< 0.009
Zr	93.44	4.1	1.4	1.2	0.004	< 0.01

Table 5 溶媒洗浄済み溶媒の回分洗浄結果

洗浄回数	洗浄液	体積比 O/A [-]	洗浄後水相 酸濃度	¹³¹ I放射能濃度 [cpm]		洗浄率 [%]
				有機相	水相	
1回目	0.1N NaOH	1	pH=11	39.07	34.71	47.05
2回目	0.1N NaOH	1	pH=11	43.26	2.82	6.12
3回目	1N HNO ₃	1	0.863N	41.62	0.24	0.58

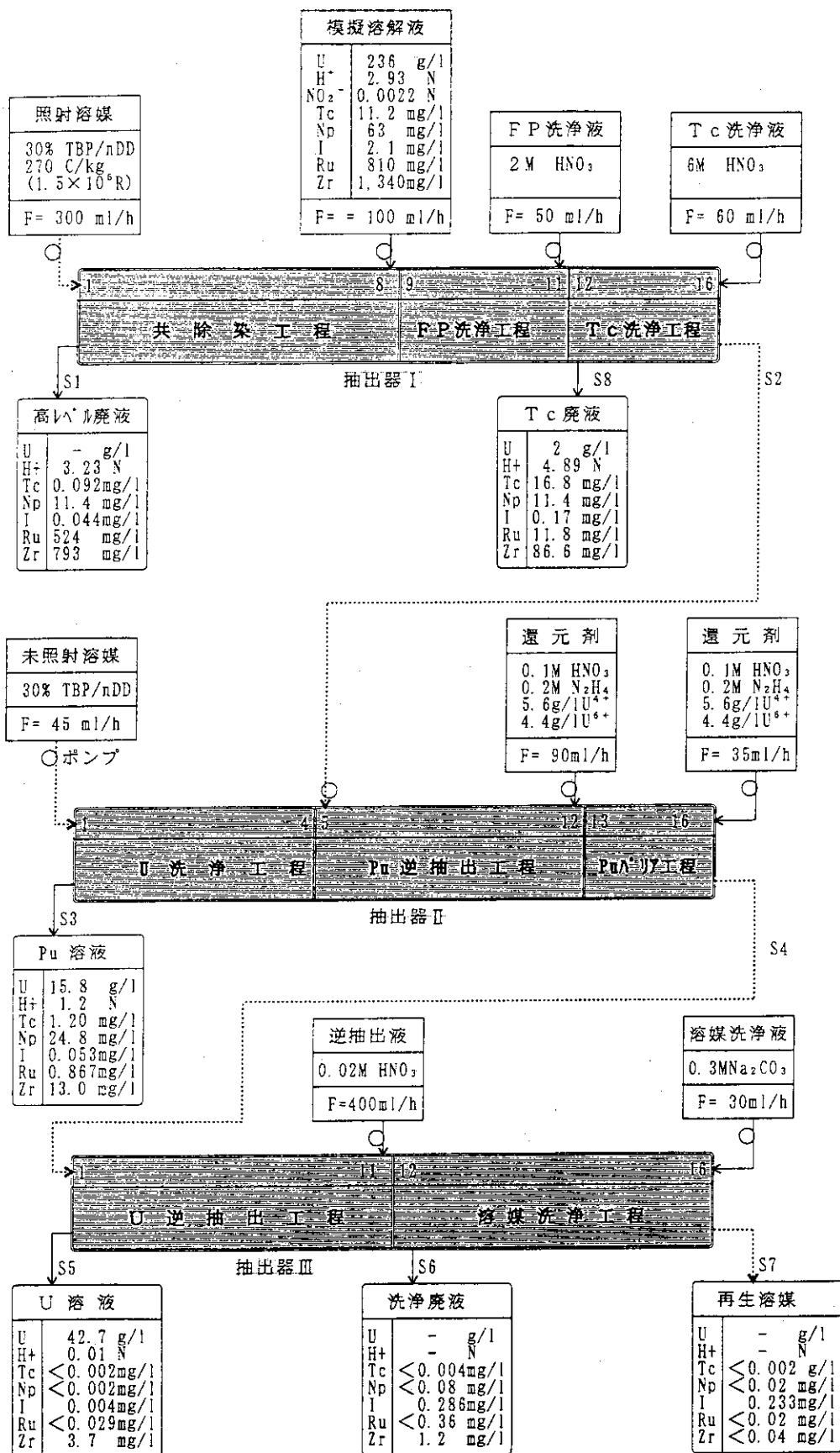


Fig. 1 抽出分離工程試験フローシート

Filename D:\GEM\FEED.CHN
Date 95/12/21 12:57:31
Real time 3733.00
Live time 3600.00

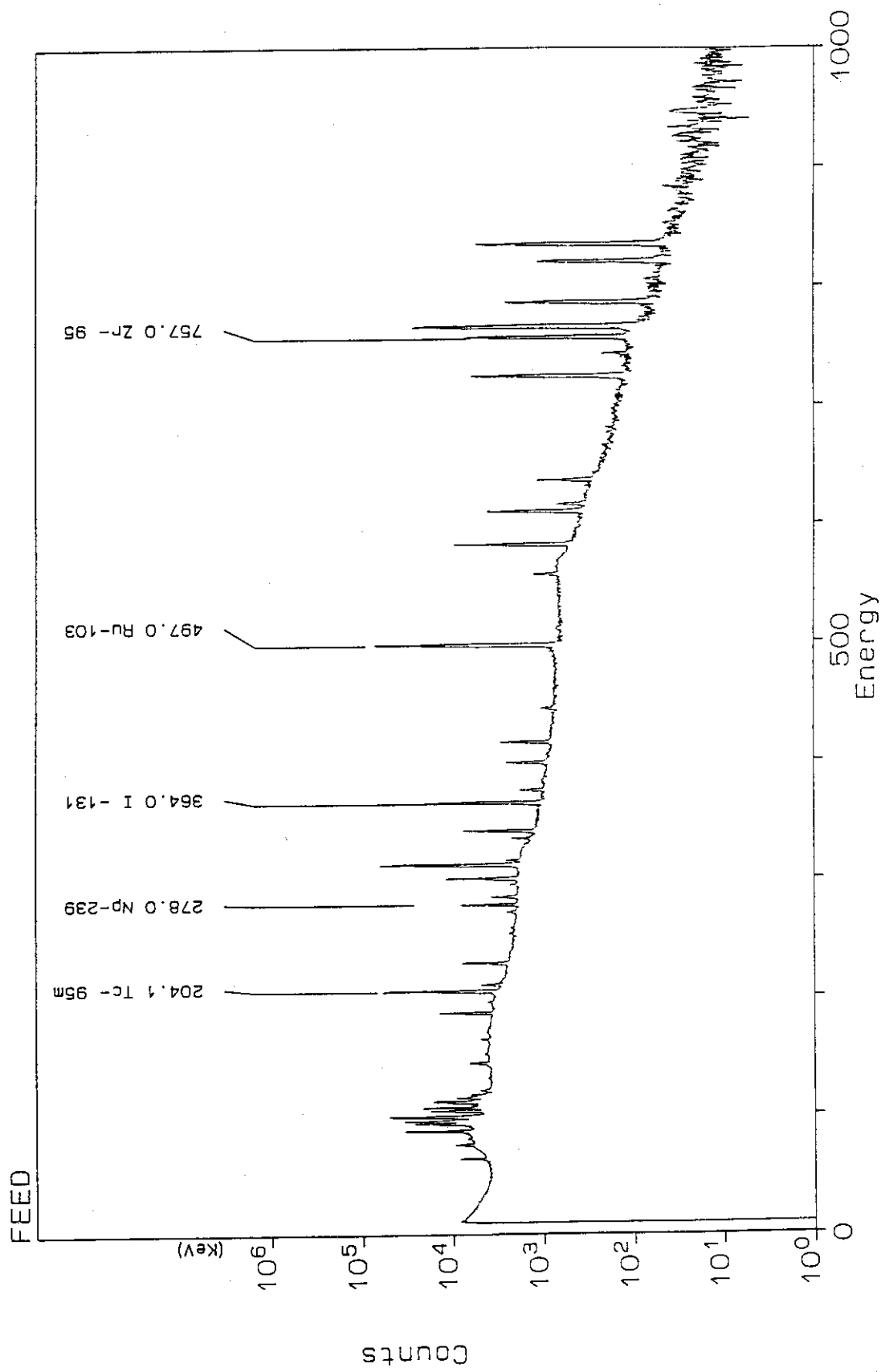
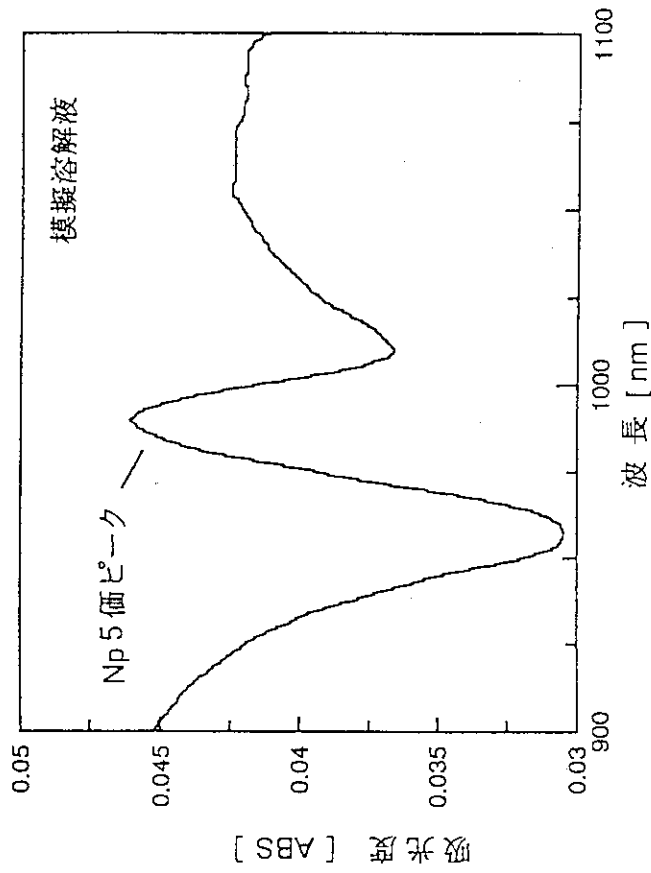
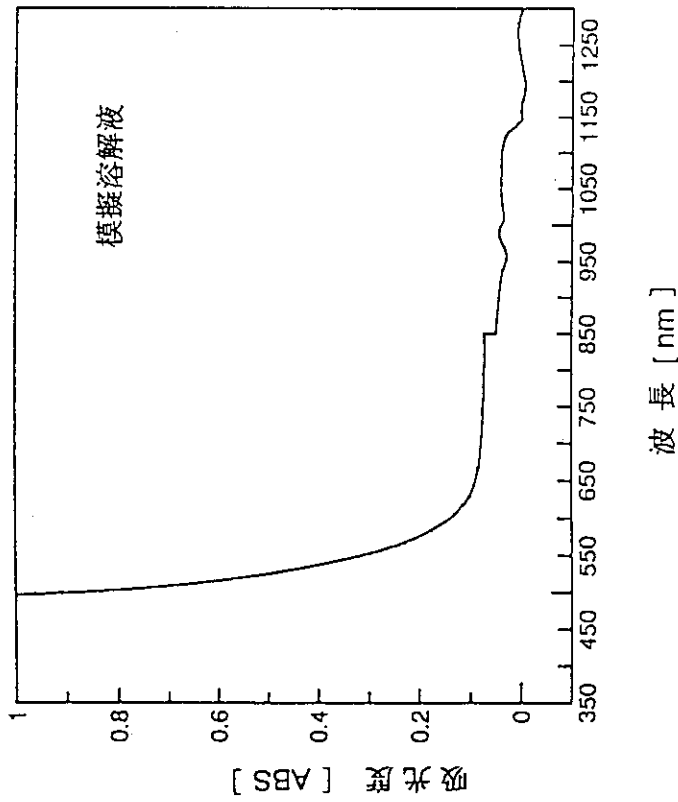


Fig. 2 模擬溶解液のγ線スペクトル



b) 拡大: 吸光度 0.03 - 0.05



a) 吸光度 -0.1 - 1.0

Fig. 3 模擬溶液の吸光スペクトル

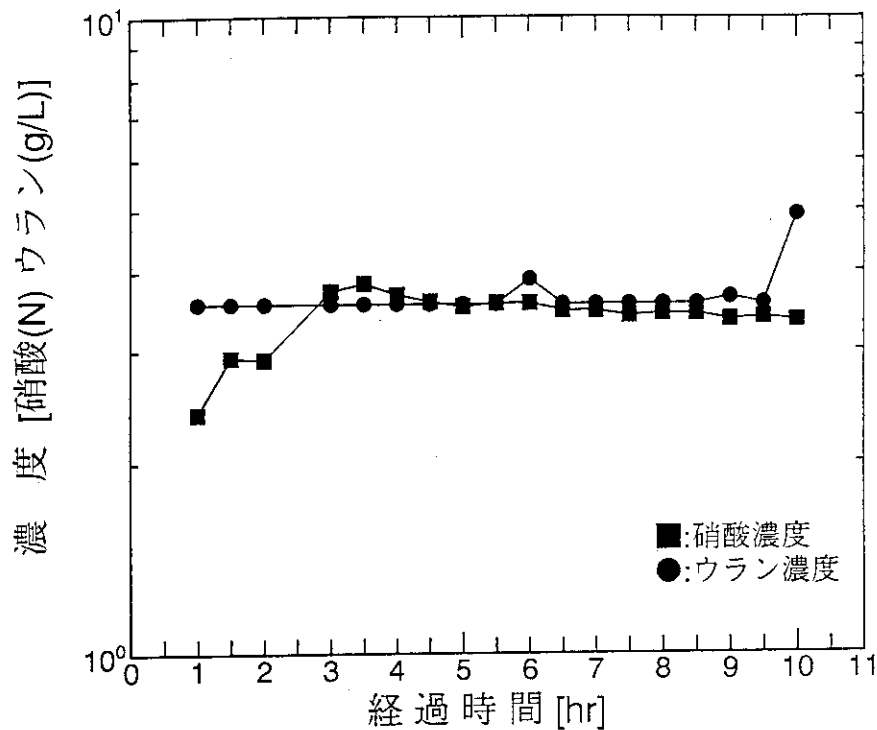


Fig. 4 抽出器 I から流出する水相廃液中のウラン及び硝酸濃度の経時変化

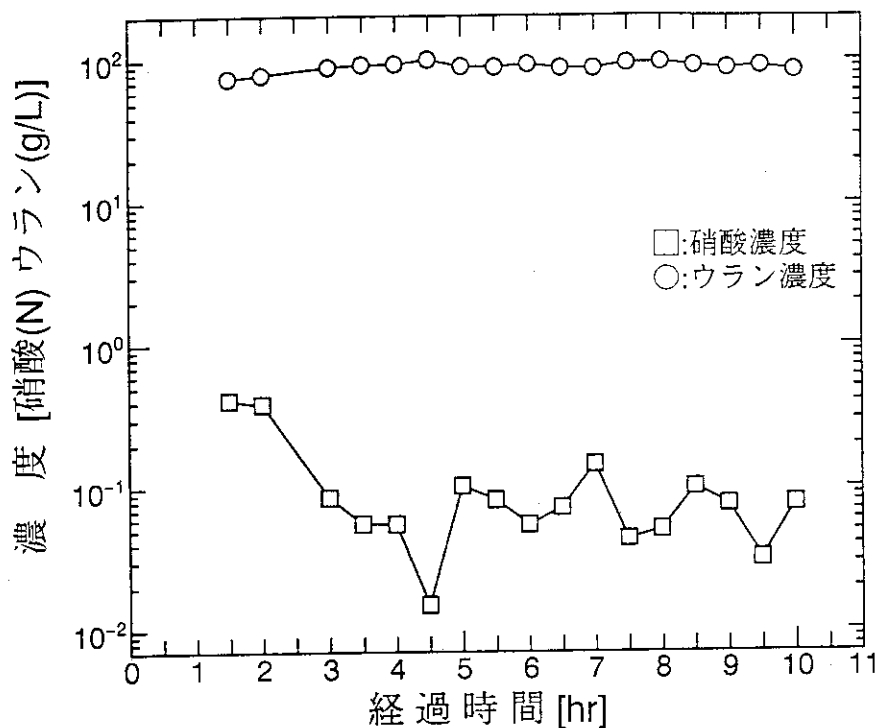


Fig. 5 抽出器 I から流出するウラン抽出有機溶媒中のウラン及び硝酸濃度の経時変化

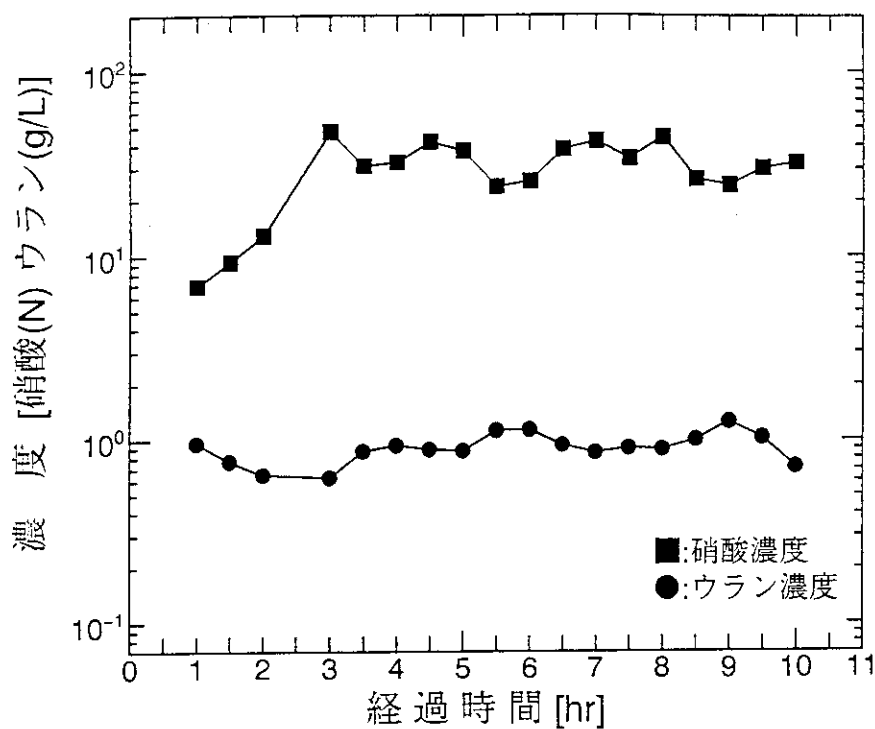


Fig. 6 抽出器IIから流出する水相廃液中のウラン及び硝酸濃度の経時変化

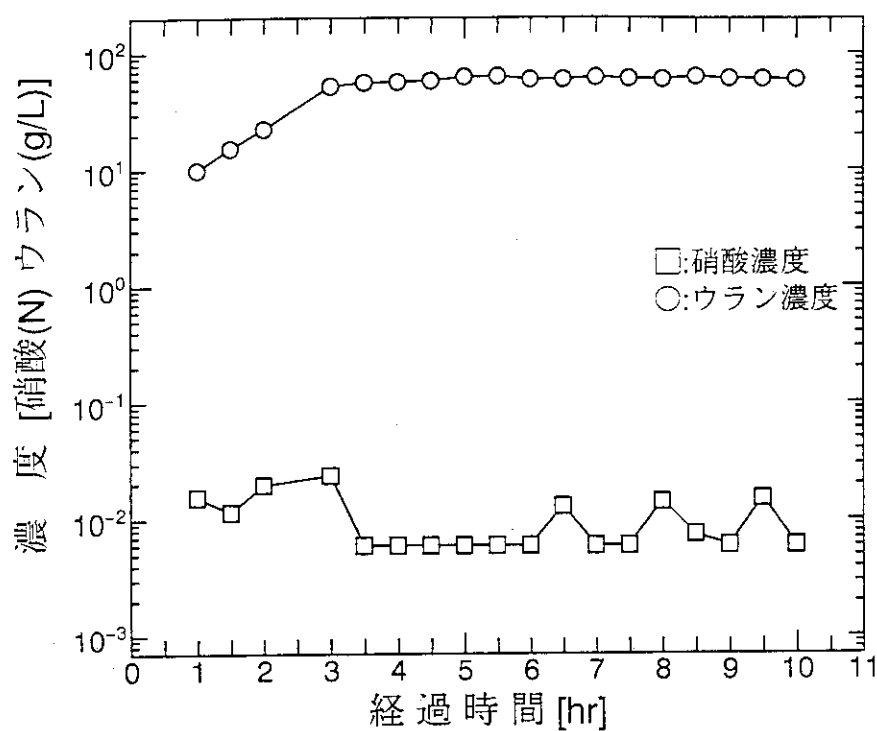


Fig. 7 抽出器IIから流出するウラン抽出有機溶媒中のウラン及び硝酸濃度の経時変化

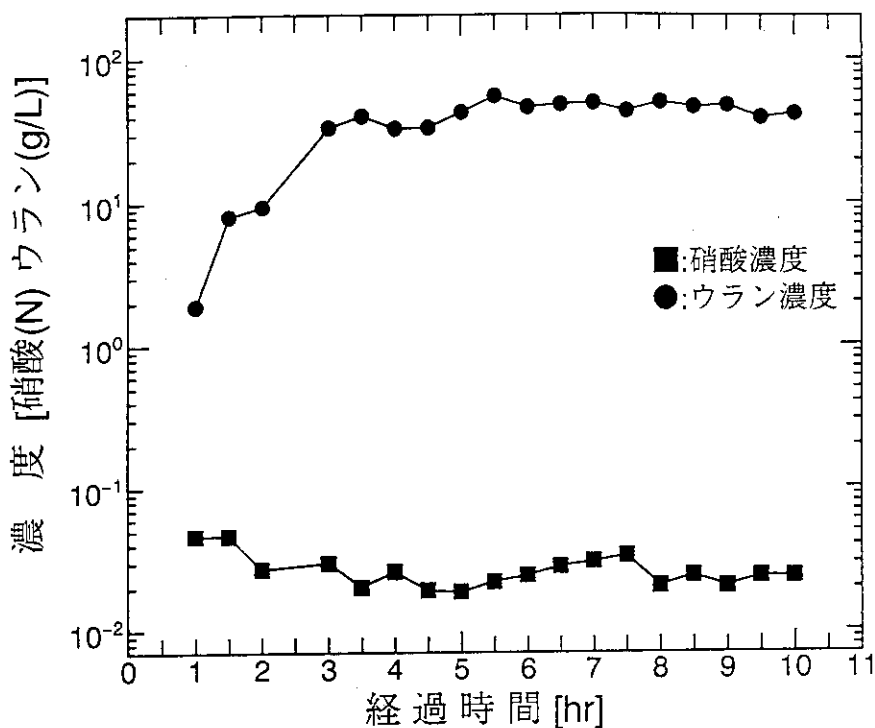


Fig. 8 抽出器Ⅲから流出するU溶液中のウラン及び硝酸濃度の経時変化

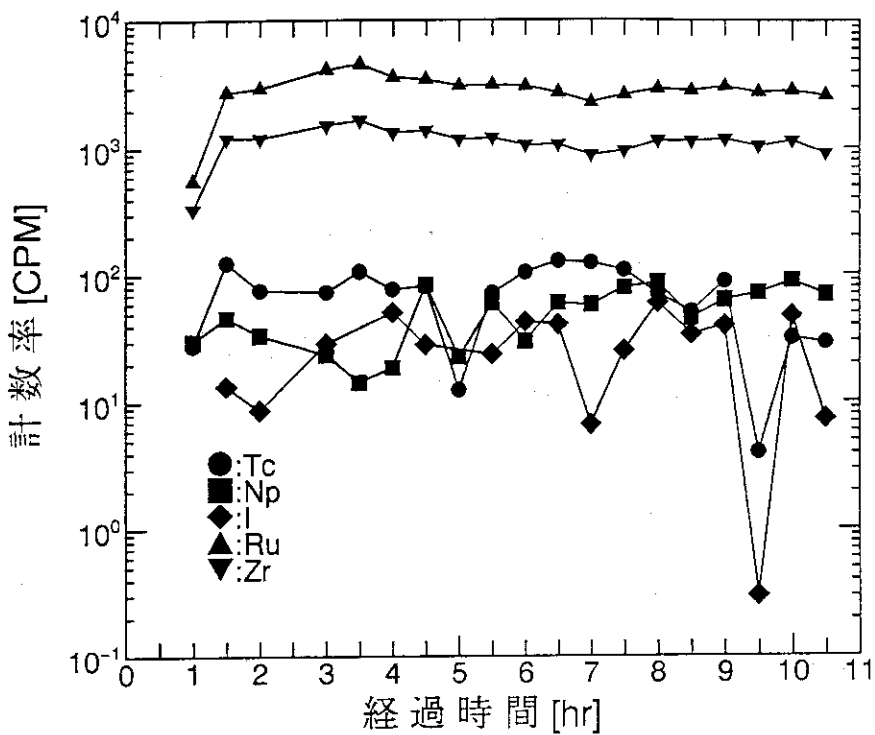


Fig. 9 抽出器Ⅰから流出する水相廃液中のTc、Np、Ru及びZr濃度（計数率）の経時変化

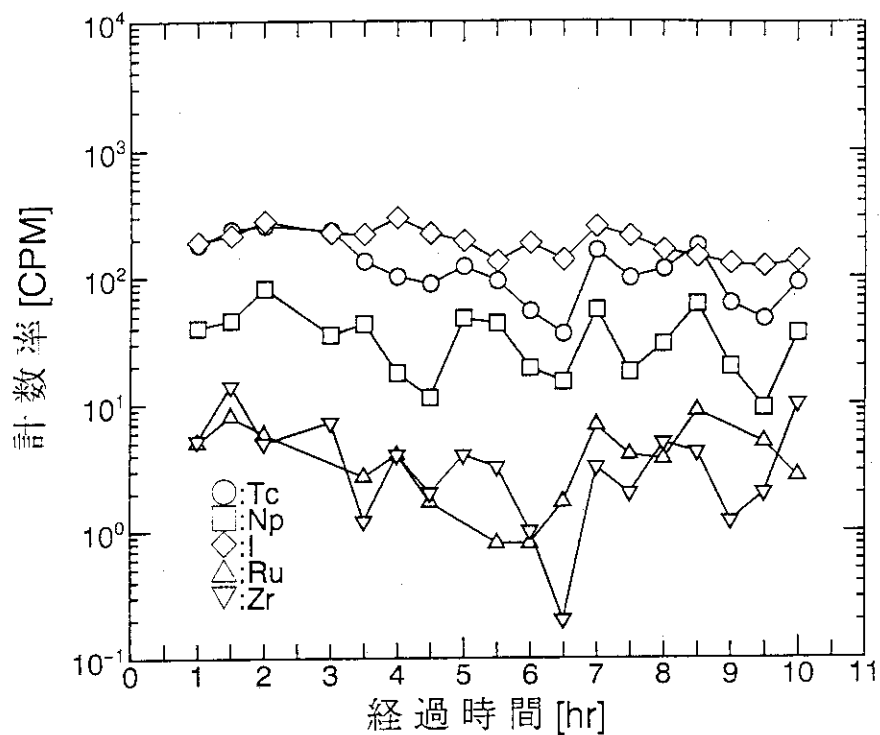


Fig. 10 抽出器 I から流出するウラン抽出有機溶媒中の Tc, Np, Ru 及び Zr 濃度 (計数率) の経時変化

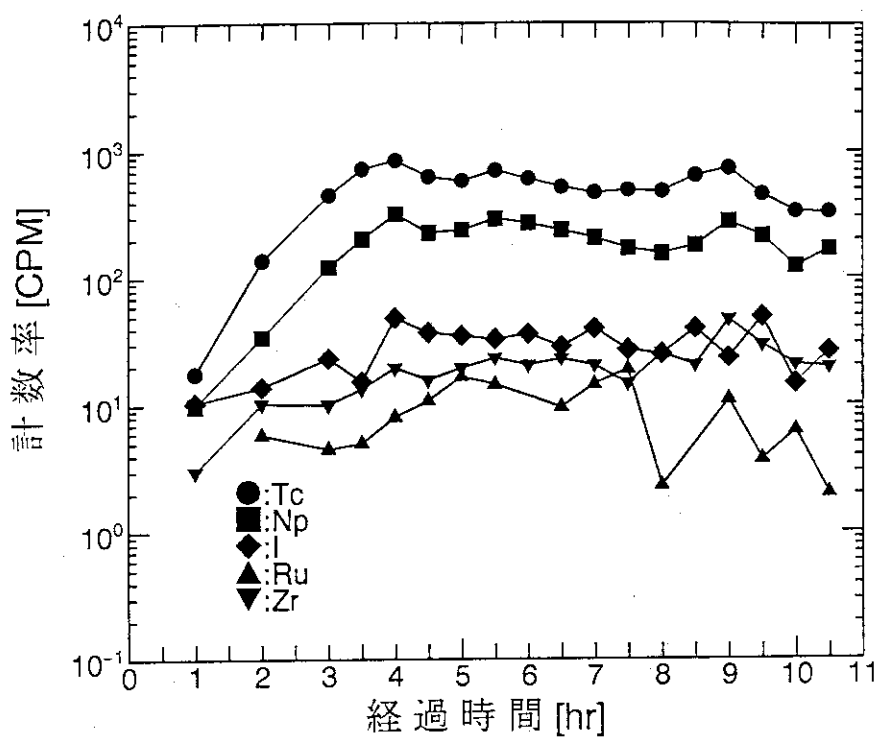


Fig. 11 抽出器 II から流出する水相廃液中の Tc, Np, Ru 及び Zr 濃度 (計数率) の経時変化

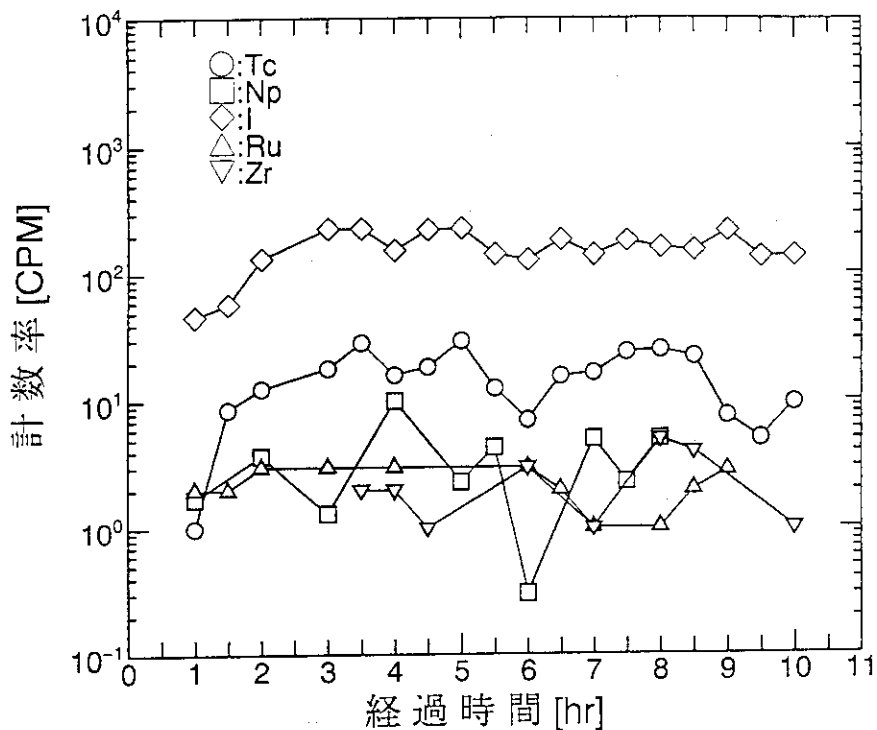


Fig. 12 抽出器IIから流出するウラン抽出有機溶媒中のTc, Np, Ru及びZr濃度(計数率)の経時変化

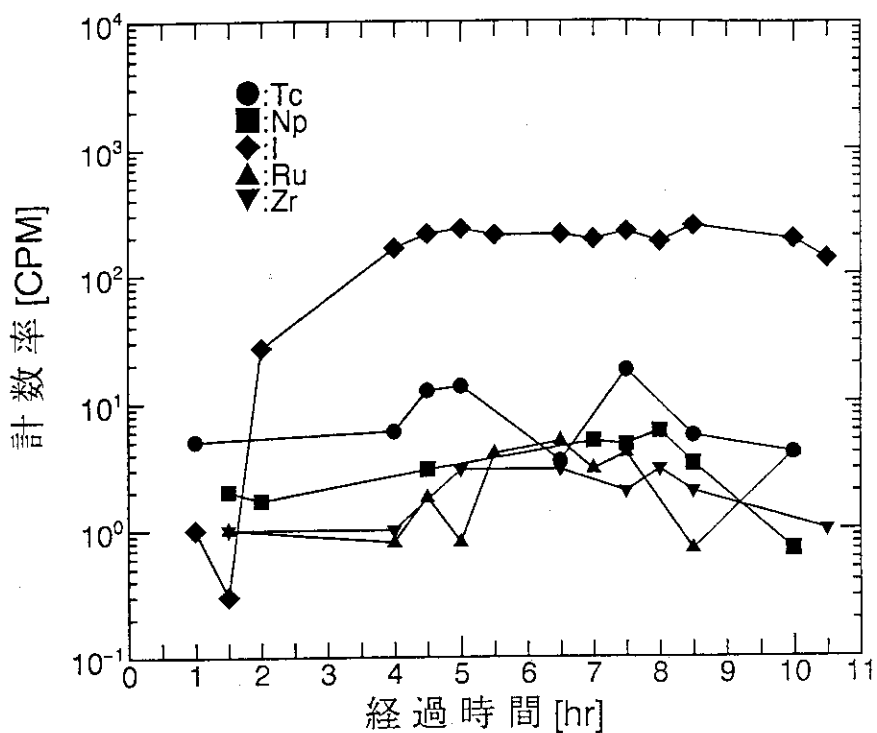


Fig. 13 抽出器IIIから流出する洗浄廃液中のTc, Np, Ru及びZr濃度(計数率)の経時変化

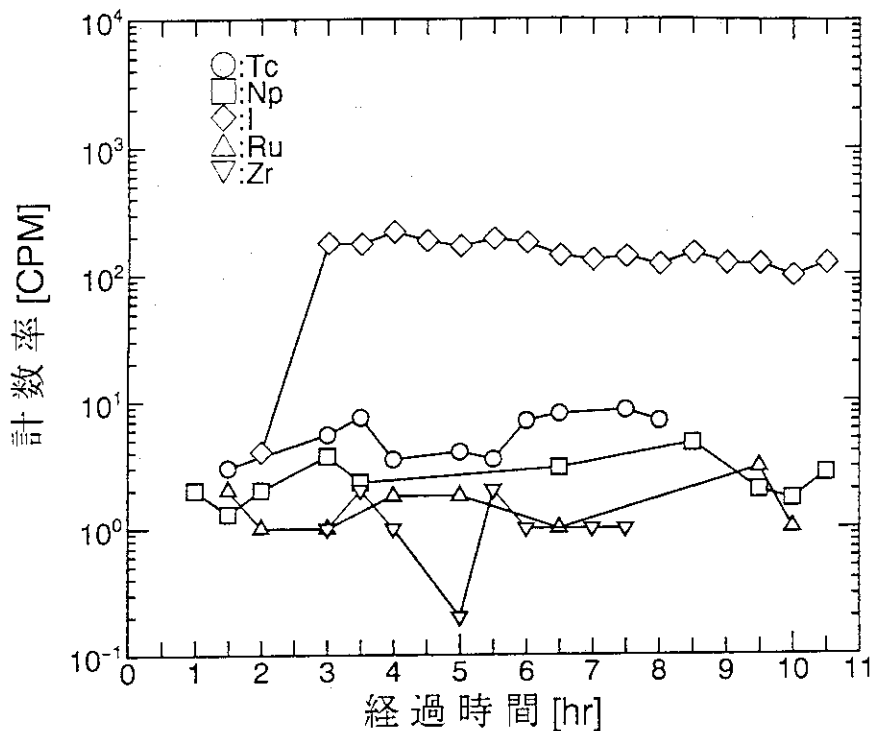


Fig. 14 抽出器Ⅲから流出する溶媒洗浄済み溶媒中のTc、Np、Ru及びZr濃度(計数率)の経時変化

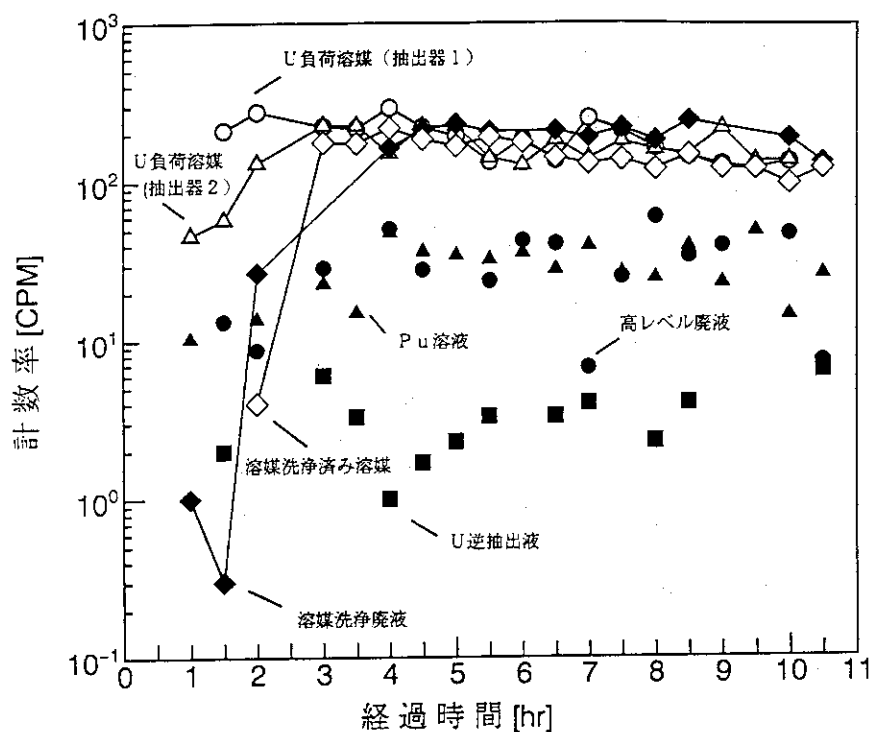


Fig. 15 各抽出器から流出する溶液中の¹³¹I濃度(計数率)の経時変化

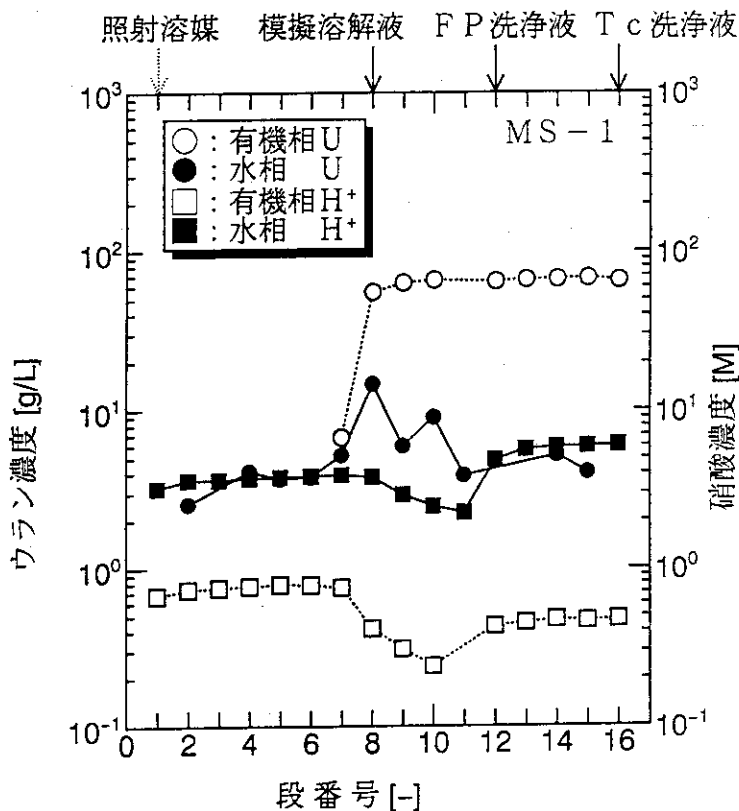


Fig. 16 抽出器 I の定常到達後のウラン及び硝酸の段方向濃度分布

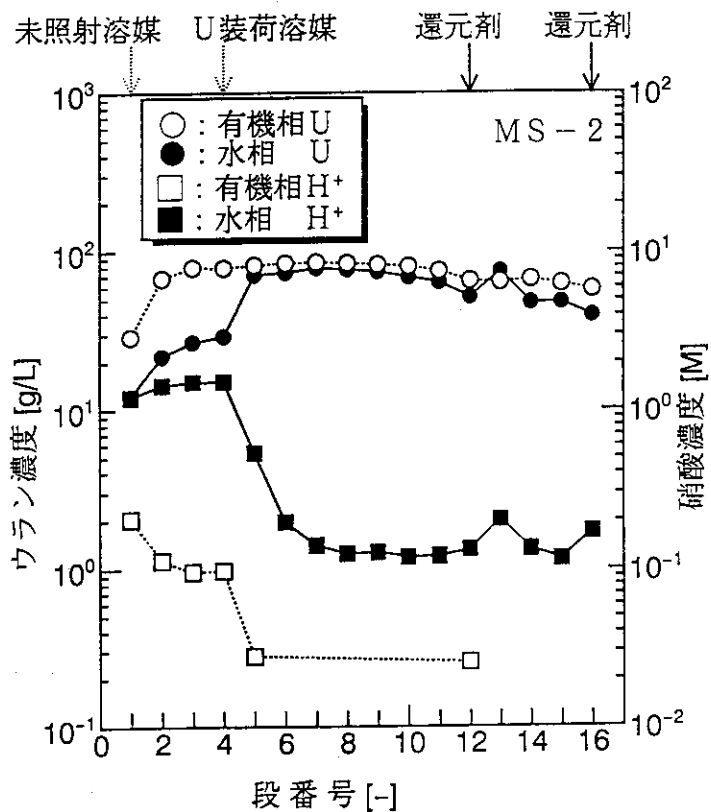


Fig. 17 抽出器 II の定常到達後のウラン及び硝酸の段方向濃度分布

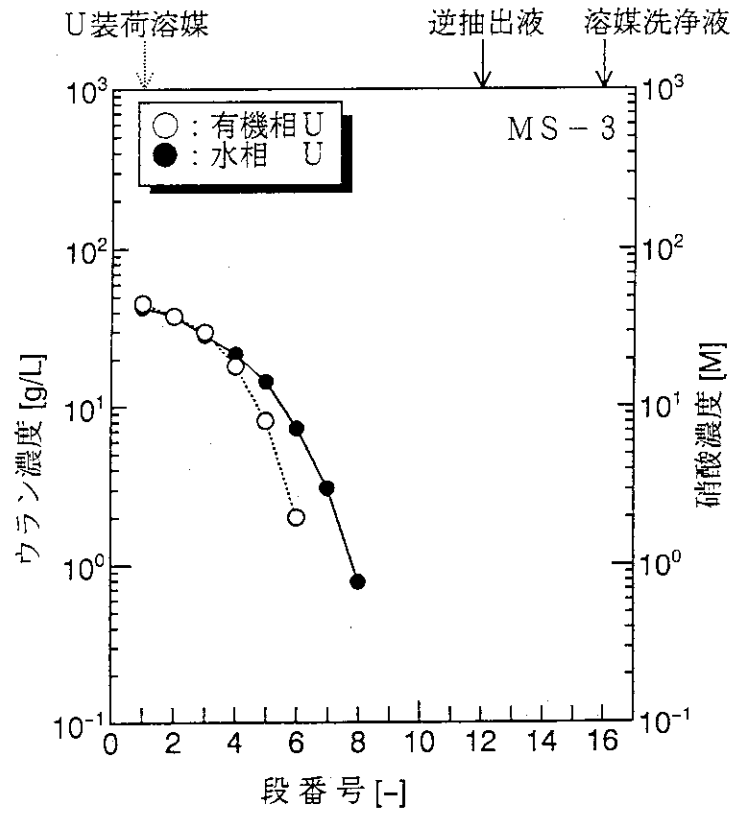


Fig. 18 抽出器Ⅲの定常到達後のウラン及び硝酸の段方向濃度分布

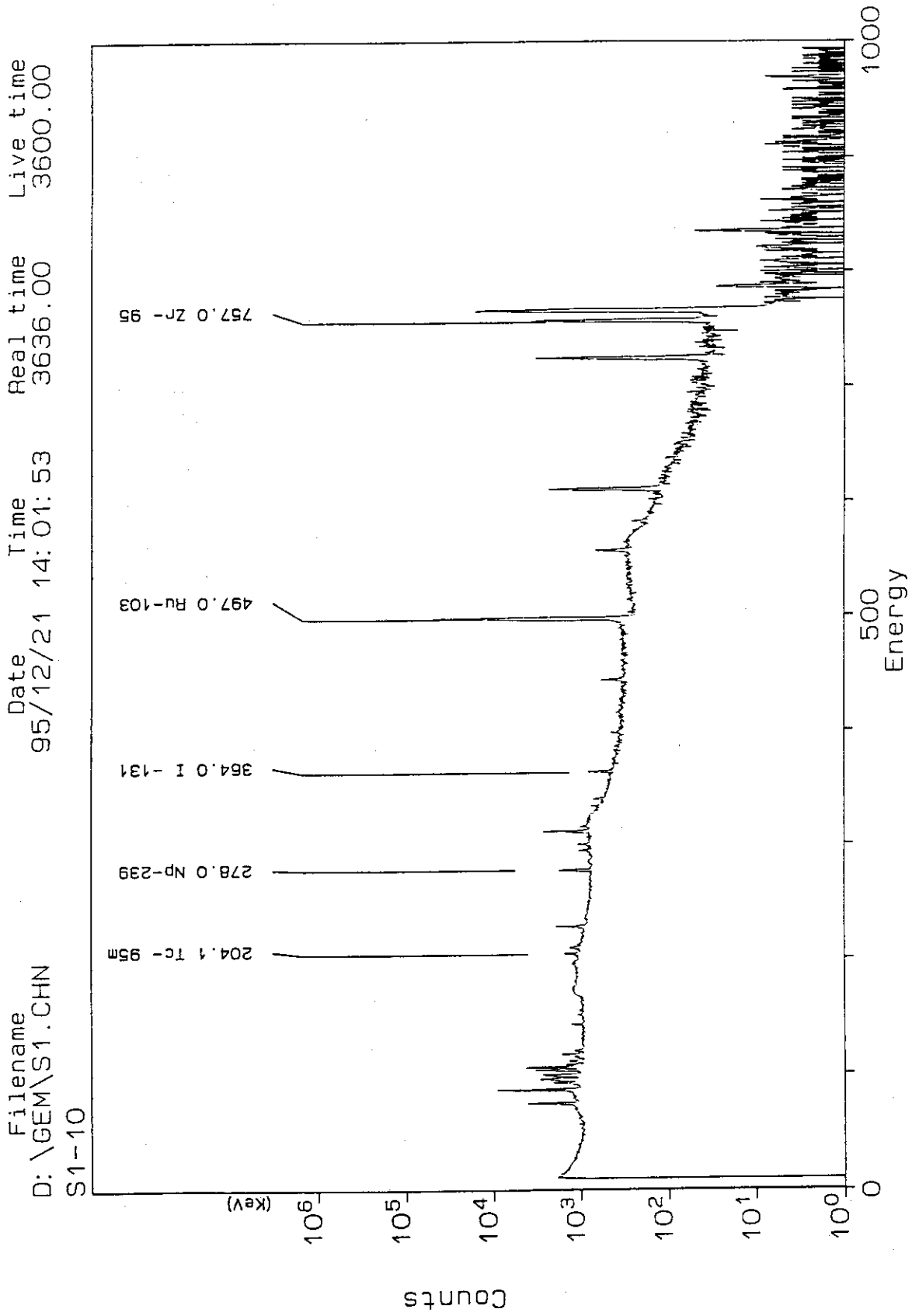


Fig. 19 抽出器 I から流出する高レベル廃液のγ線スペクトル

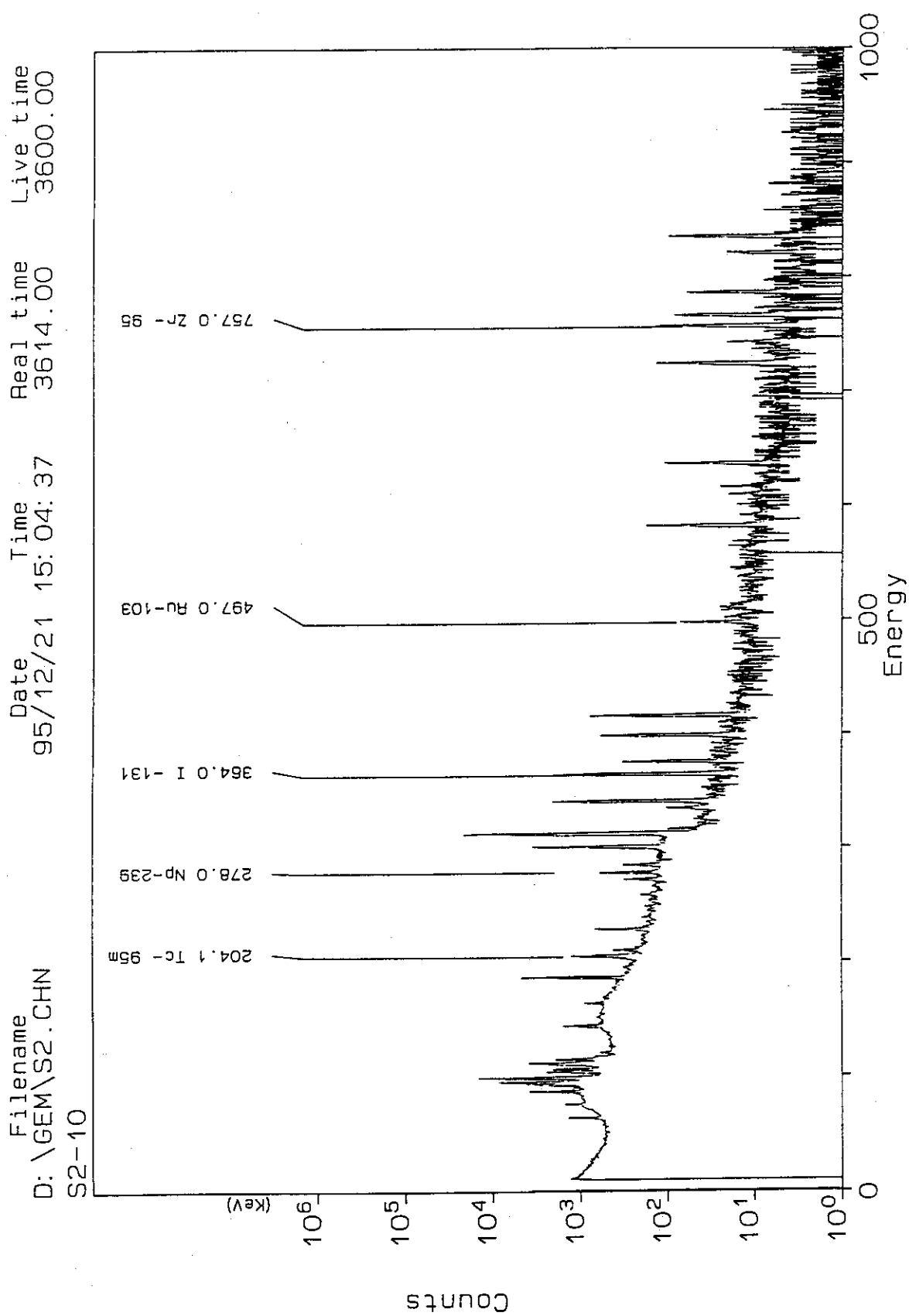


Fig. 20 抽出器 I から流出するウラン溶媒の γ 線スペクトル

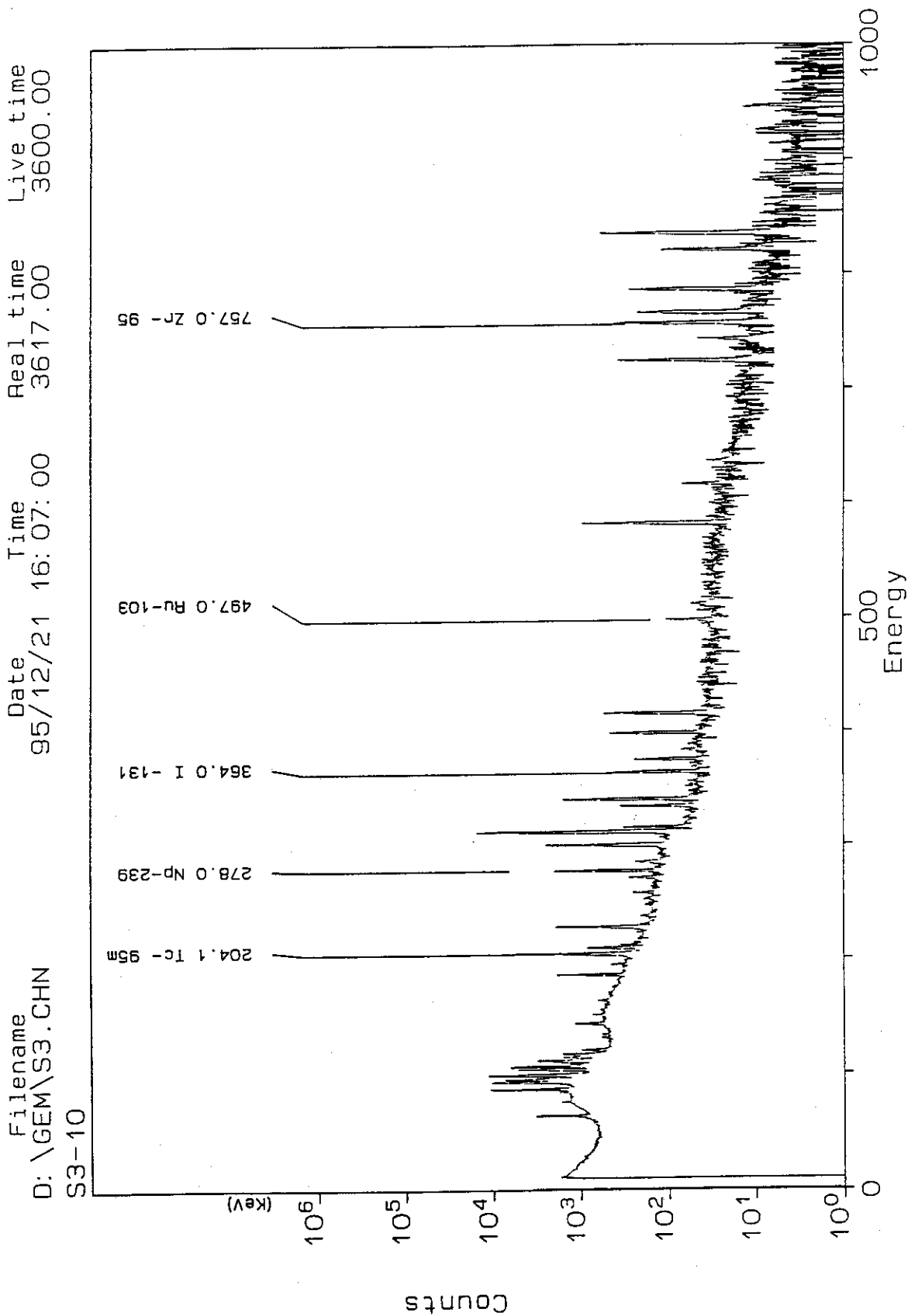


Fig. 21 抽出器IIから流出するPu溶液のγ線スペクトル

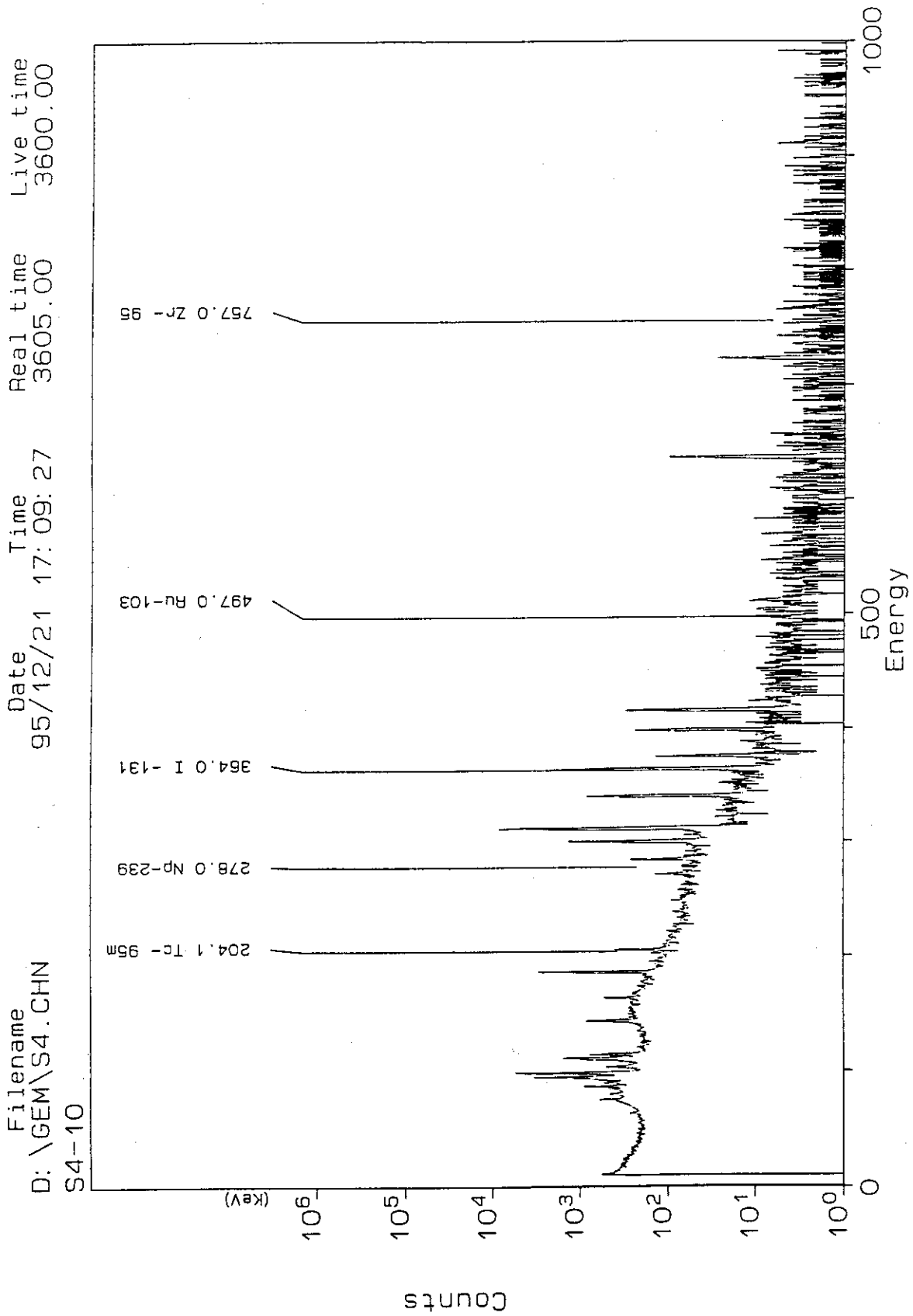


Fig. 22 抽出器IIから流出するウラン溶液のγ線スペクトル

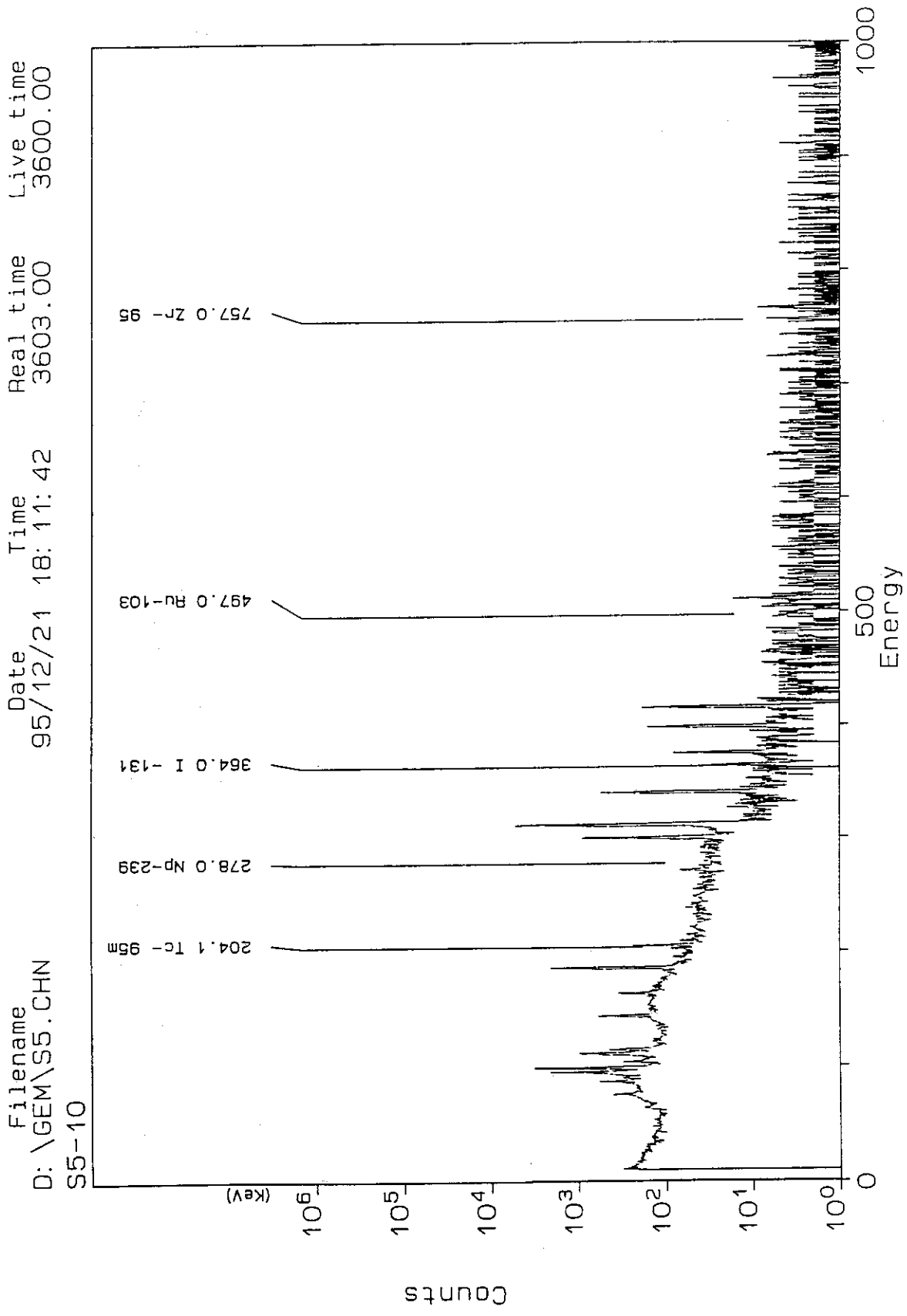


Fig. 23 抽出器Ⅲから流出するU溶液のγ線スペクトル

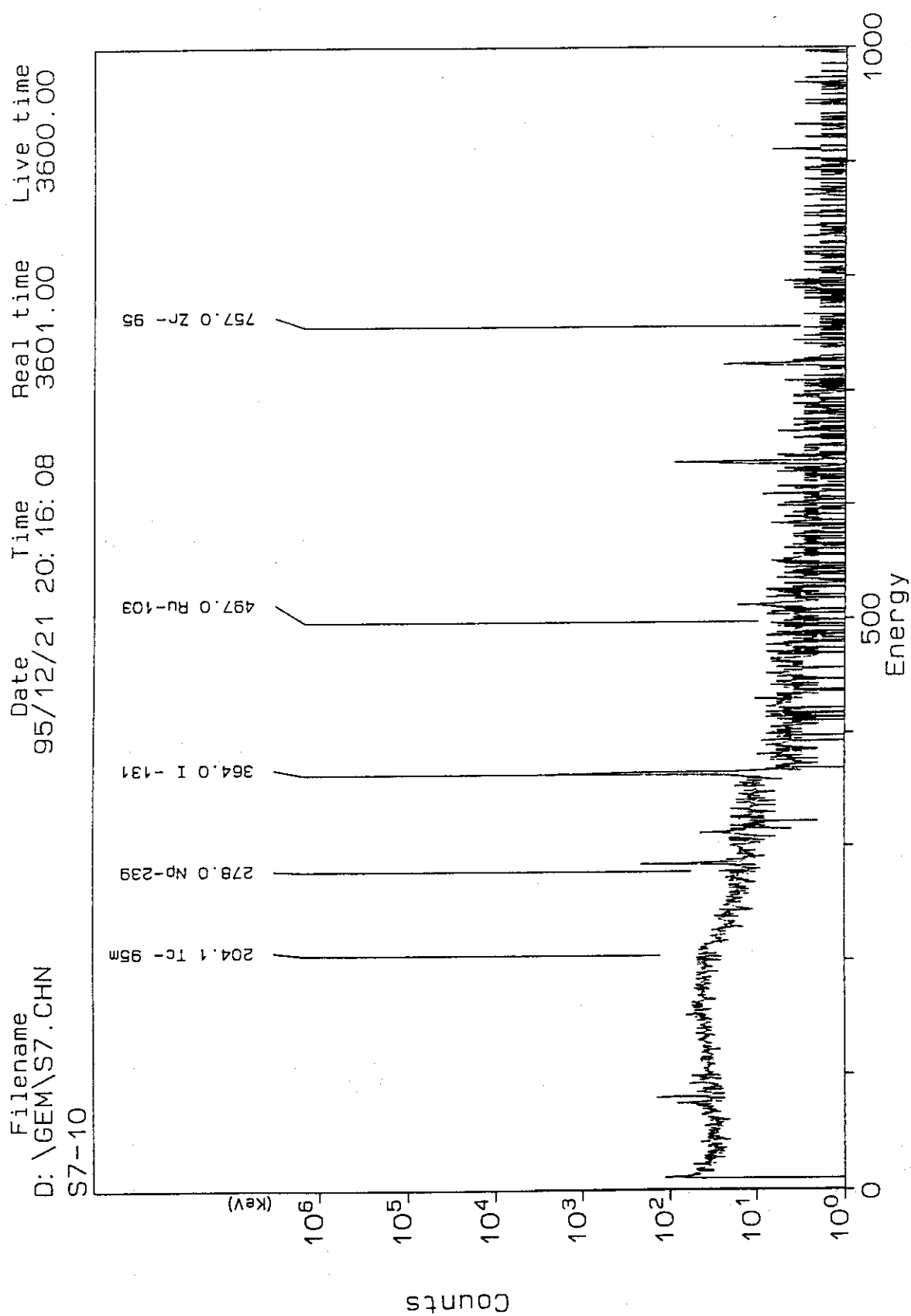


Fig. 24 抽出器Ⅲから流出する再生溶媒のγ線スペクトル

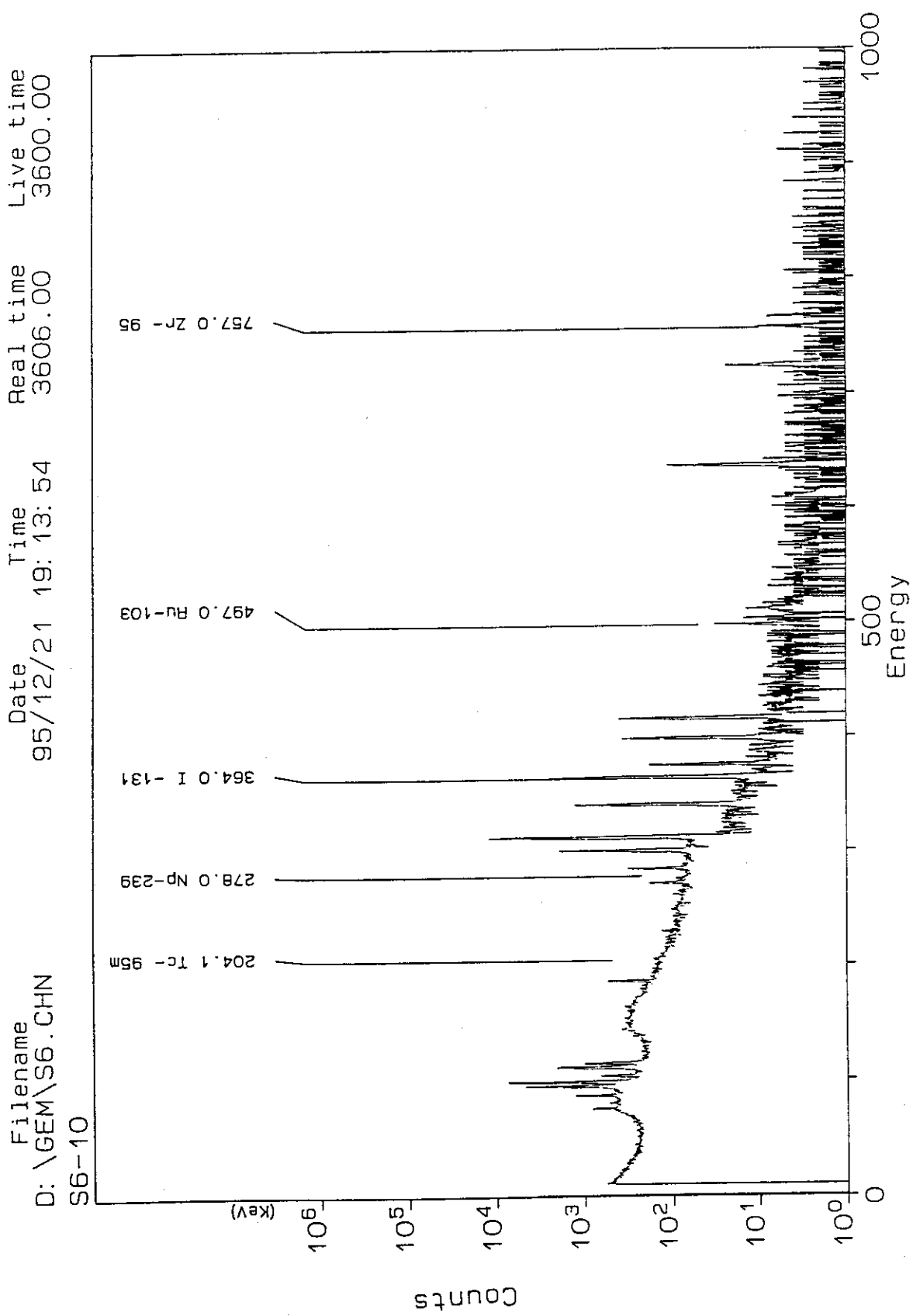


Fig. 25 抽出器Ⅲの12段目から流出する溶媒洗浄廃液のγ線スペクトル

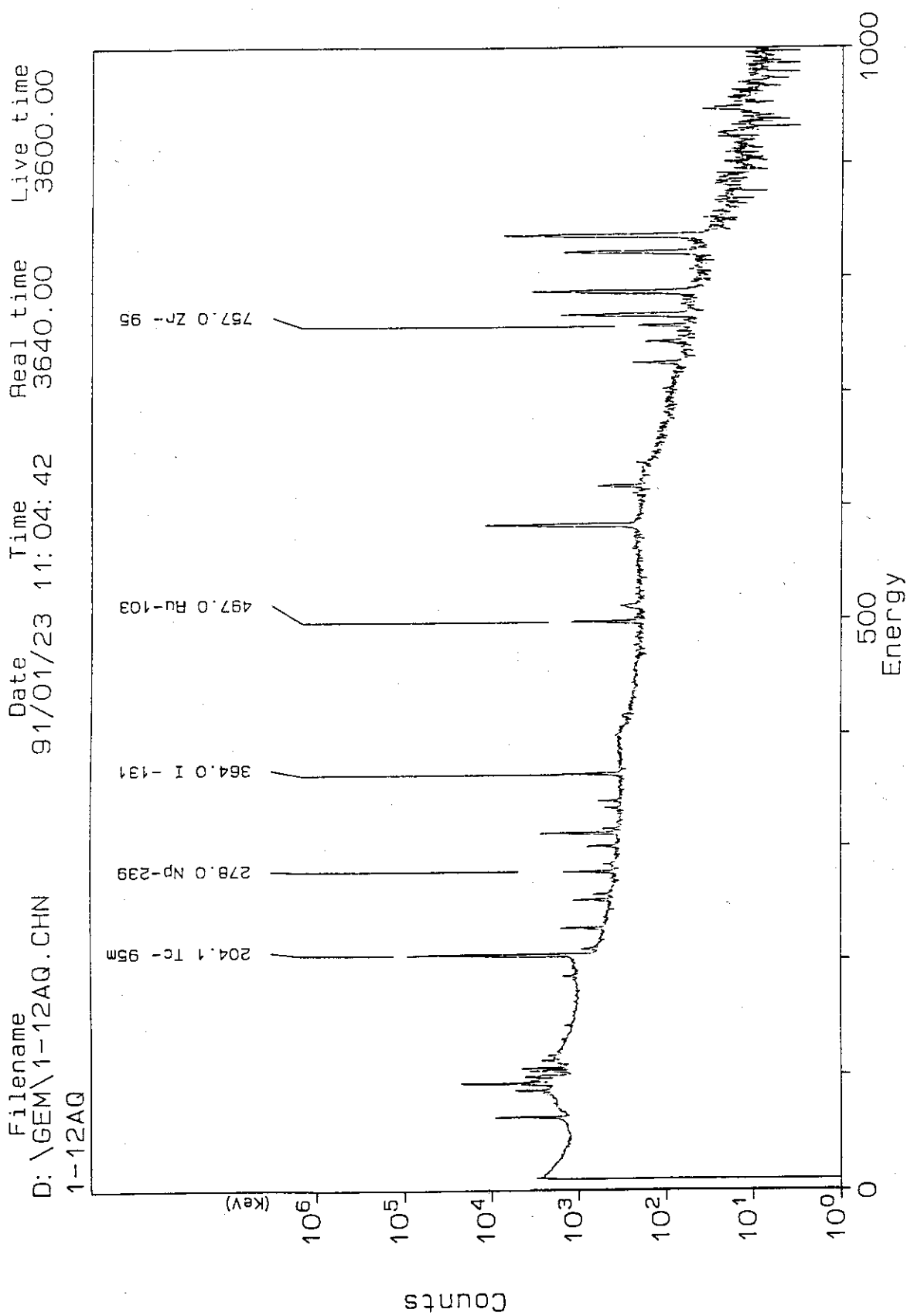


Fig. 26 抽出器 I 1 2 段目から流出する Tc 廃液の γ 線スペクトル

Filename D:\GEM\2-5AQ.CHN
Date 95/12/22 11:14:47
Live time 3600.00
Real time 3620.00
2-5AQ

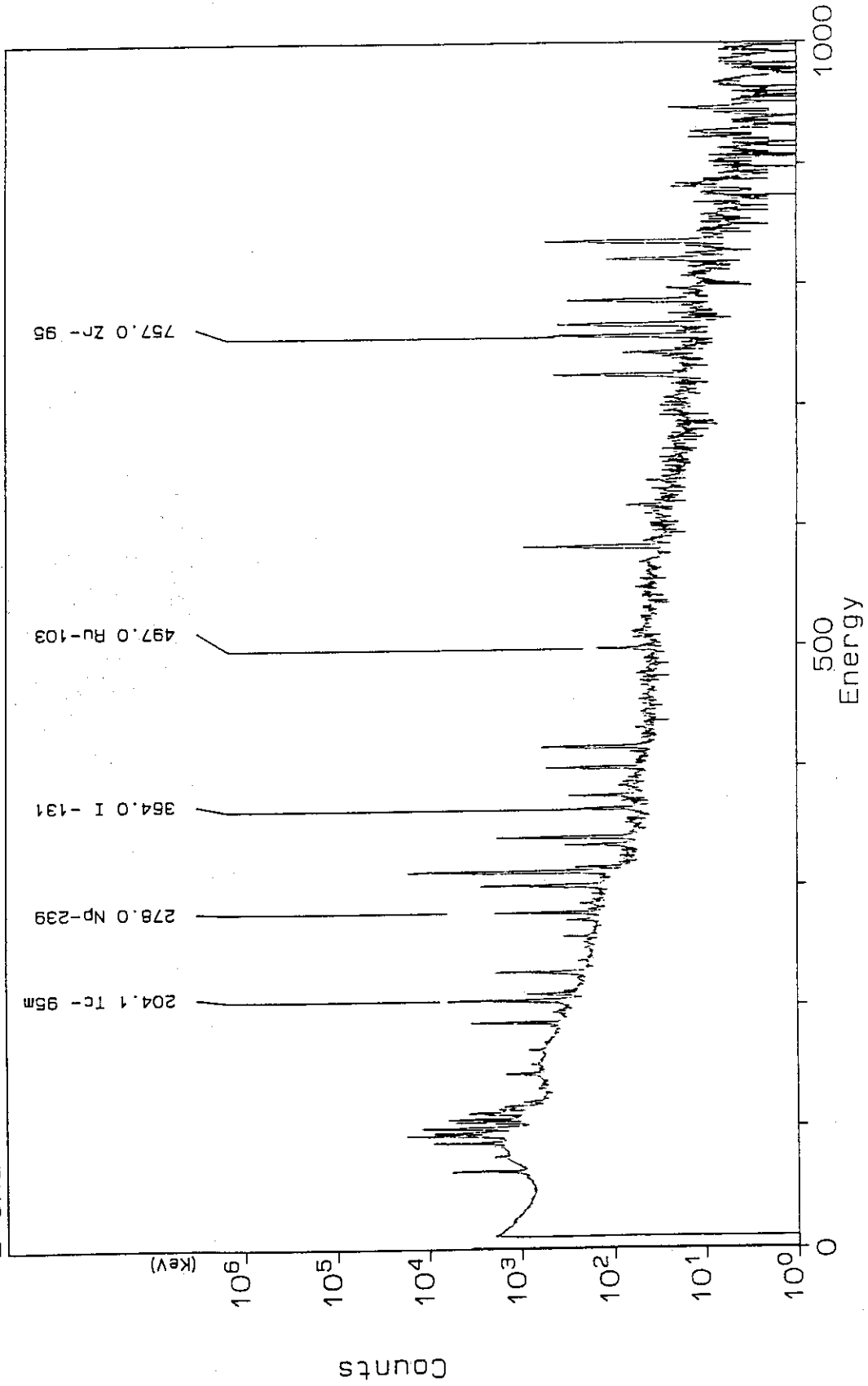


Fig. 27 抽出器IIの5段目から4段目に移行する水溶液のγ線スペクトル

Filename D:\GEM\3-110RG.CHN
3-110RG
Date 95/12/22 09:48:49
Time 09:48:49
Real time 3602.00
Live time 3600.00

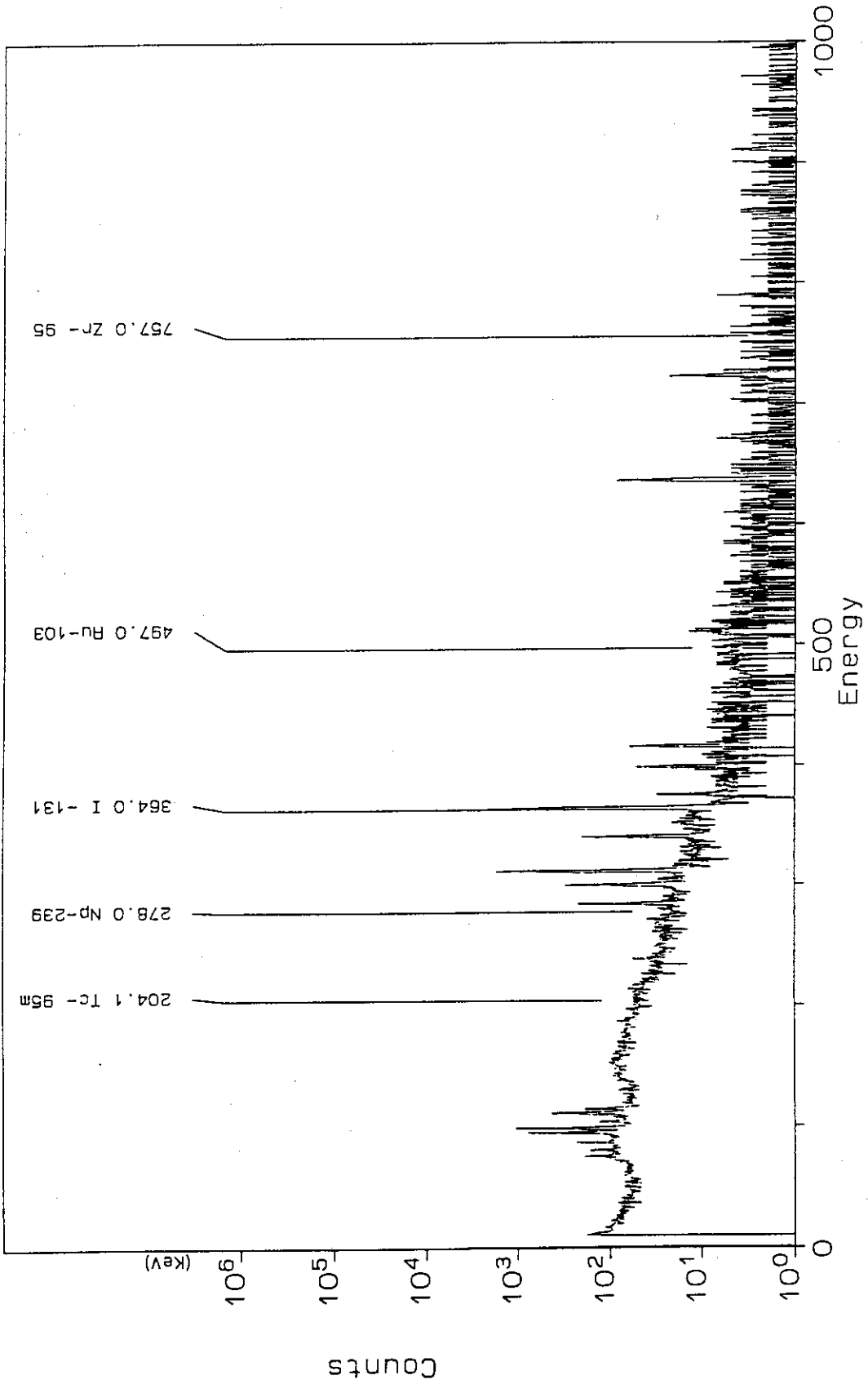


Fig. 28 抽出器Ⅲの11段目から12段目に移行する溶媒のγ線スペクトル

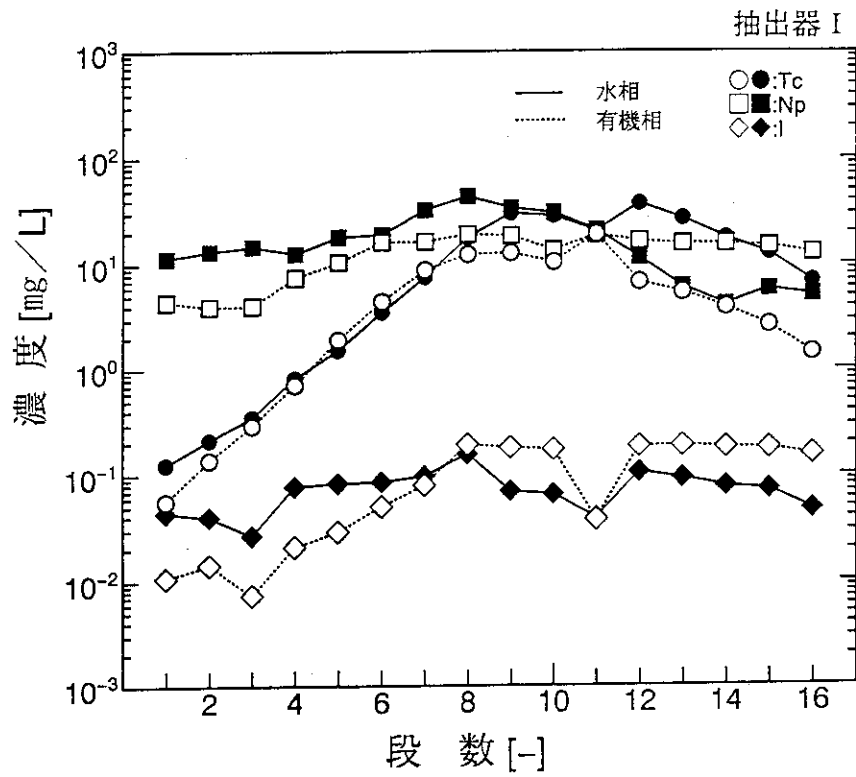


Fig. 29 抽出器 I の定常到達後の Tc, Np 及びヨウ素の段方向濃度分布

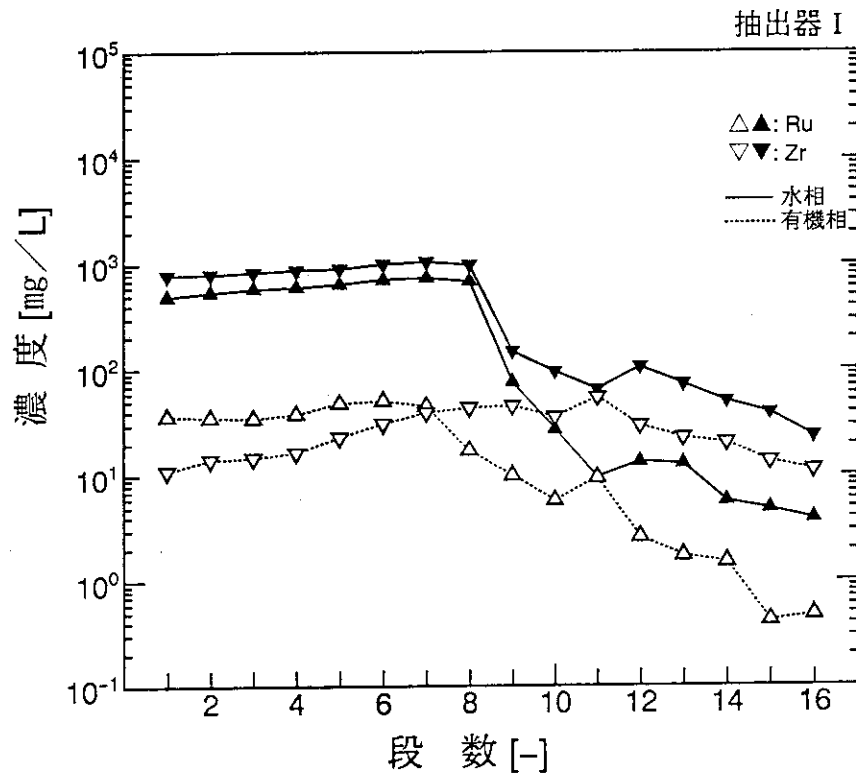


Fig. 30 抽出器 I の定常到達後の Ru 及び Zr の段方向濃度分布

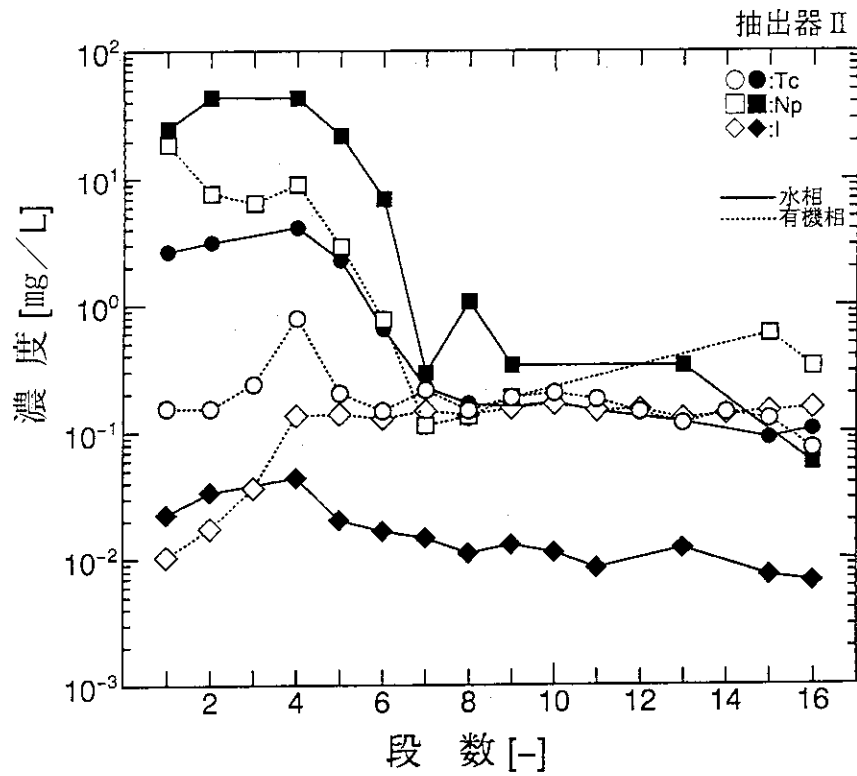


Fig. 31 抽出器 II の定常到達後の Tc, Np 及びヨウ素の段方向濃度分布

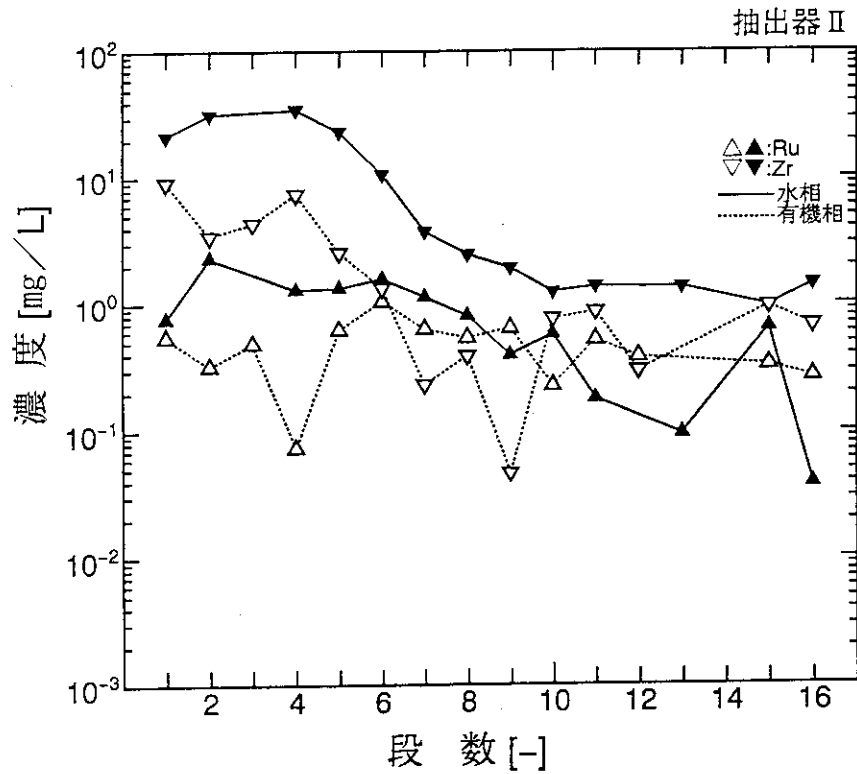


Fig. 32 抽出器 II の定常到達後の Ru 及び Zr の段方向濃度分布

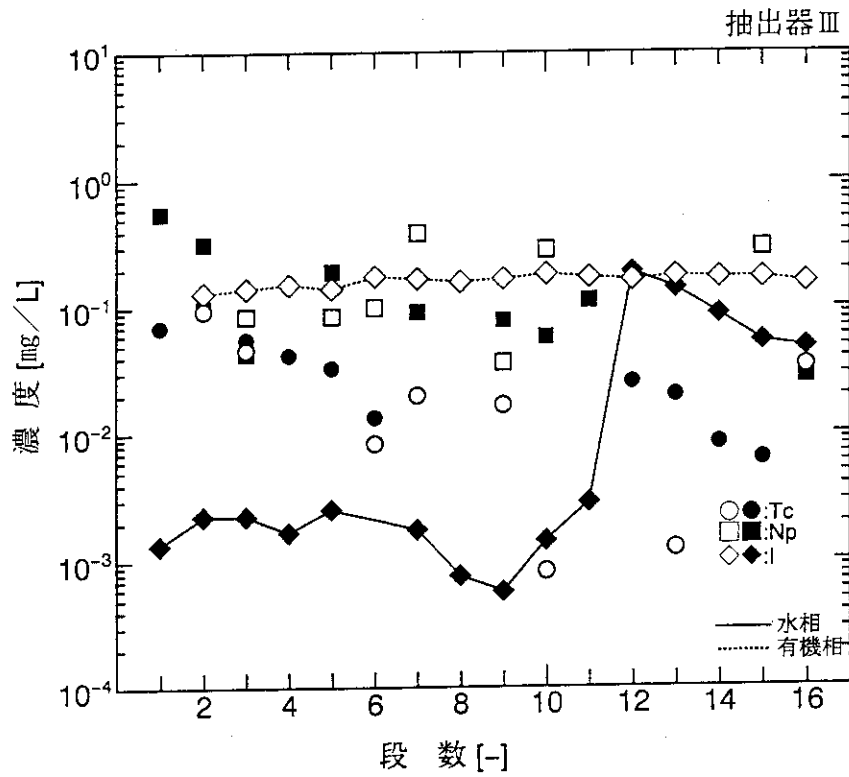


Fig. 33 抽出器Ⅲの定常到達後のTc, Np及びヨウ素の段方向濃度分布

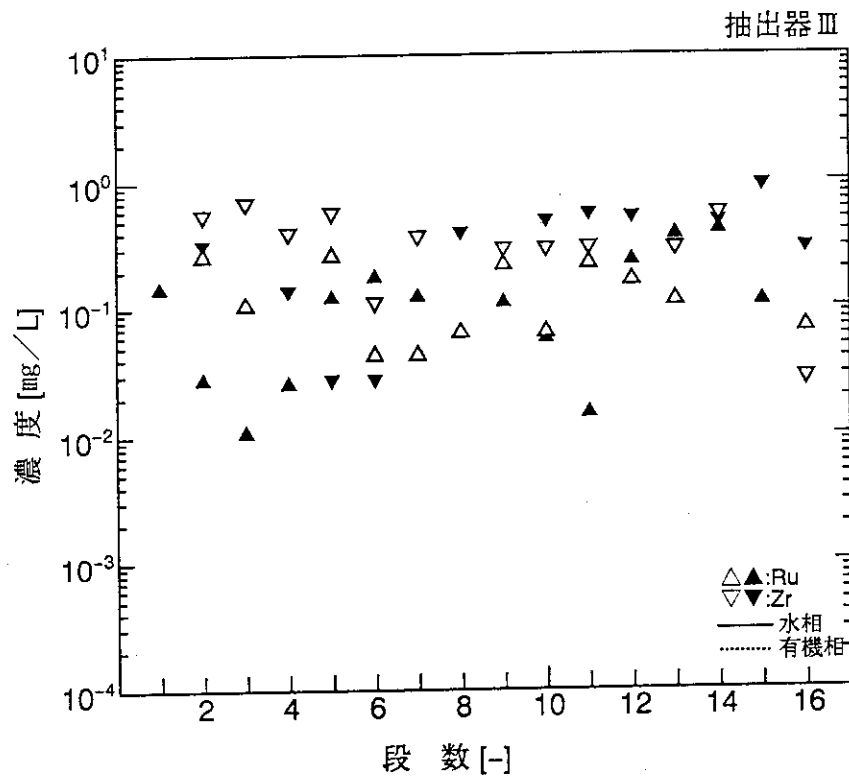


Fig. 34 抽出器Ⅲの定常到達後のRu及びZrの段方向濃度分布

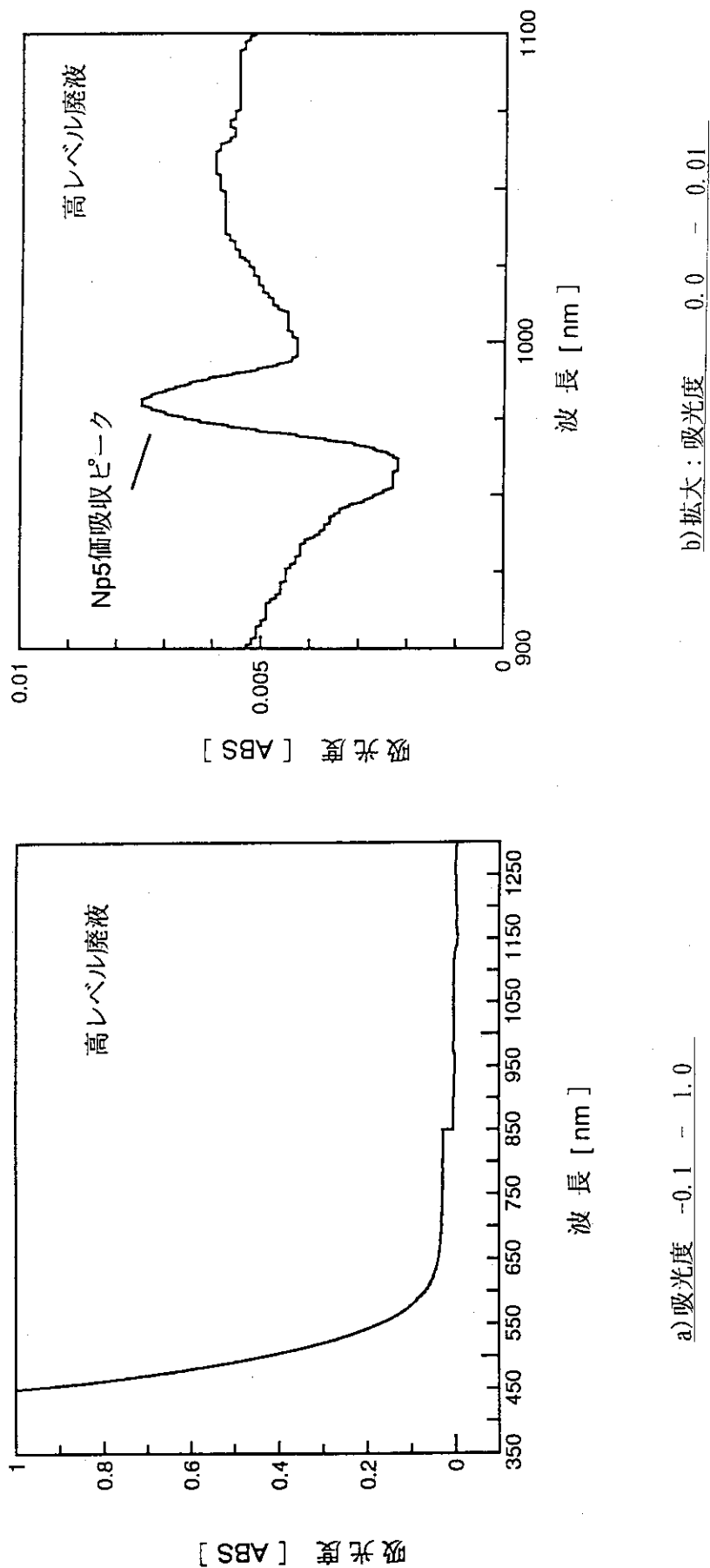
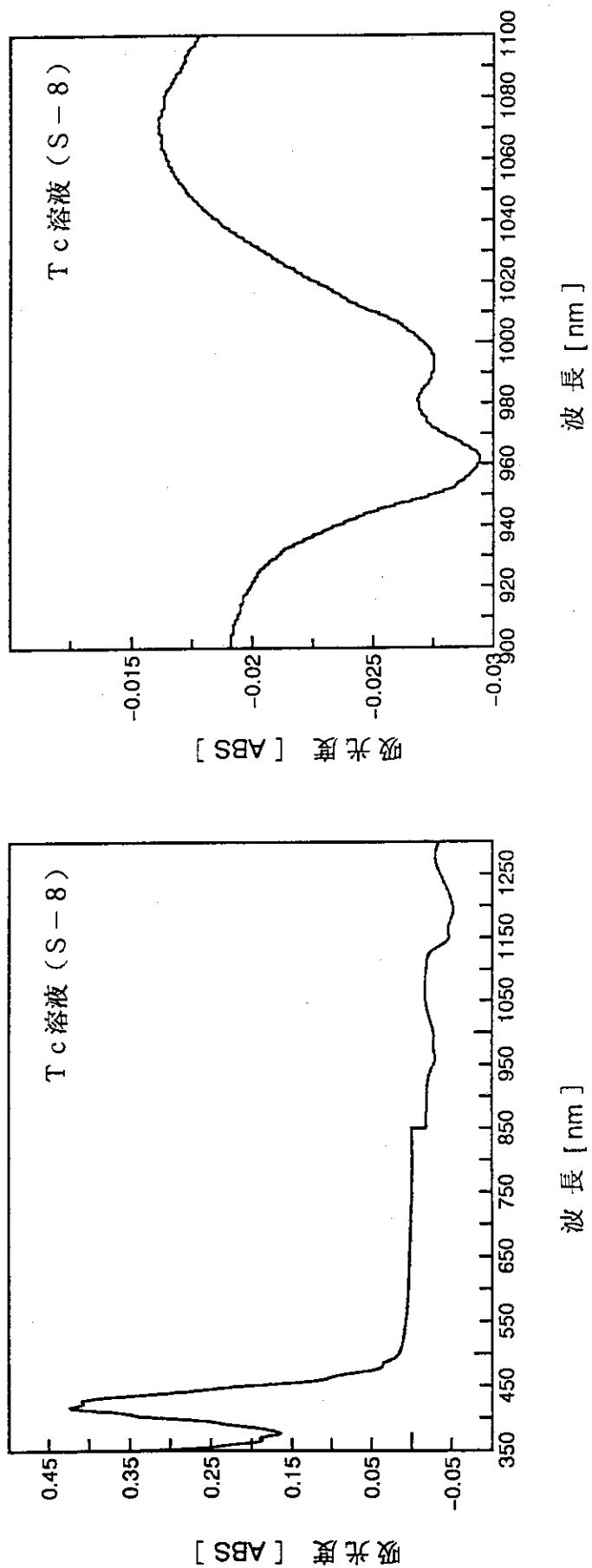


Fig. 35 高レベル廃液の吸収スペクトル



a) 吸光度 -0.1 - 0.45

b) 拡大: 吸光度 -0.03 - -0.01

Fig. 36 テクネチウム廃液の吸光スペクトル

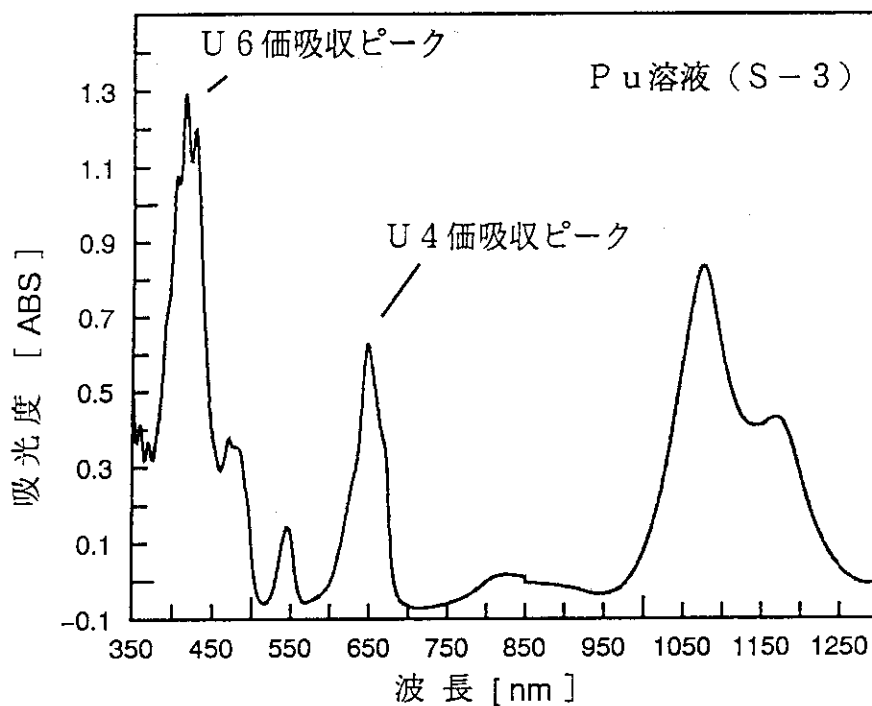


Fig. 37 プルトニウム溶液の吸光スペクトル

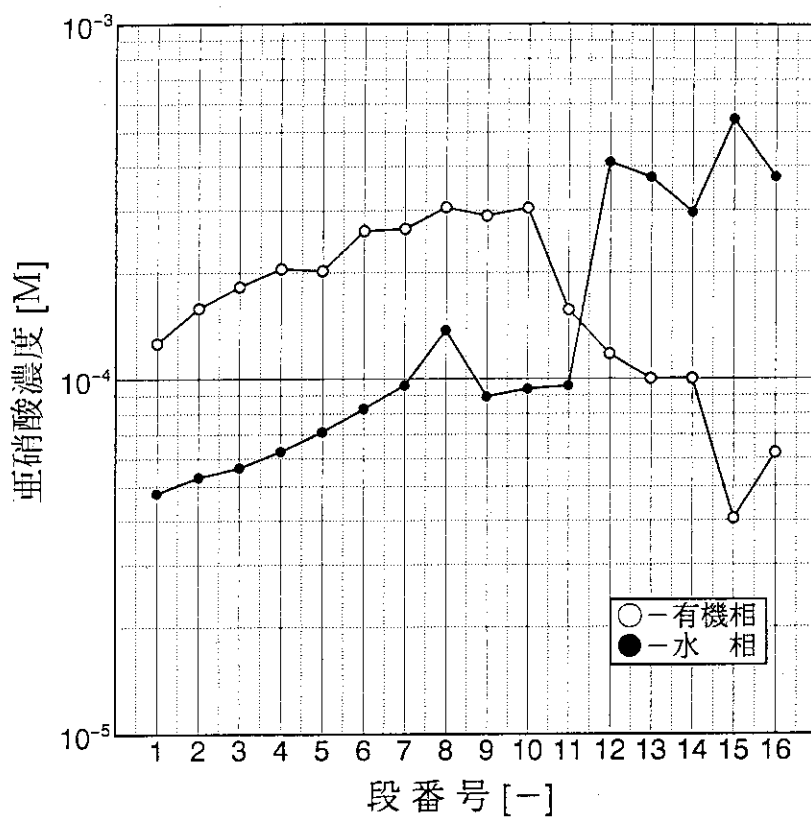


Fig. 38 抽出器 I の定常到達後の亜硝酸の段方向濃度分布

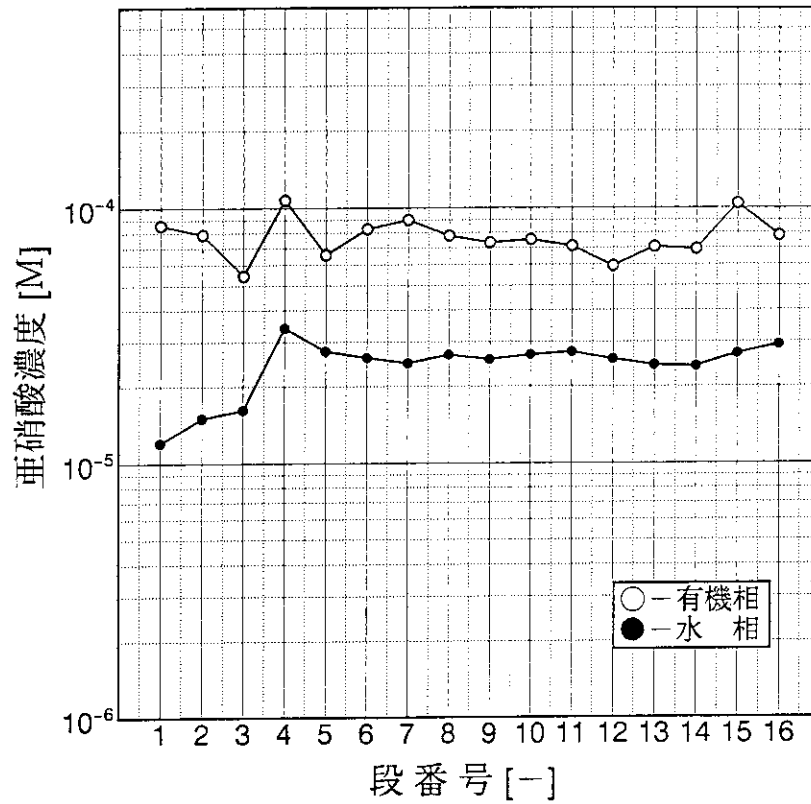


Fig. 39 抽出器Ⅱの定常到達後の亜硝酸の段方向濃度分布

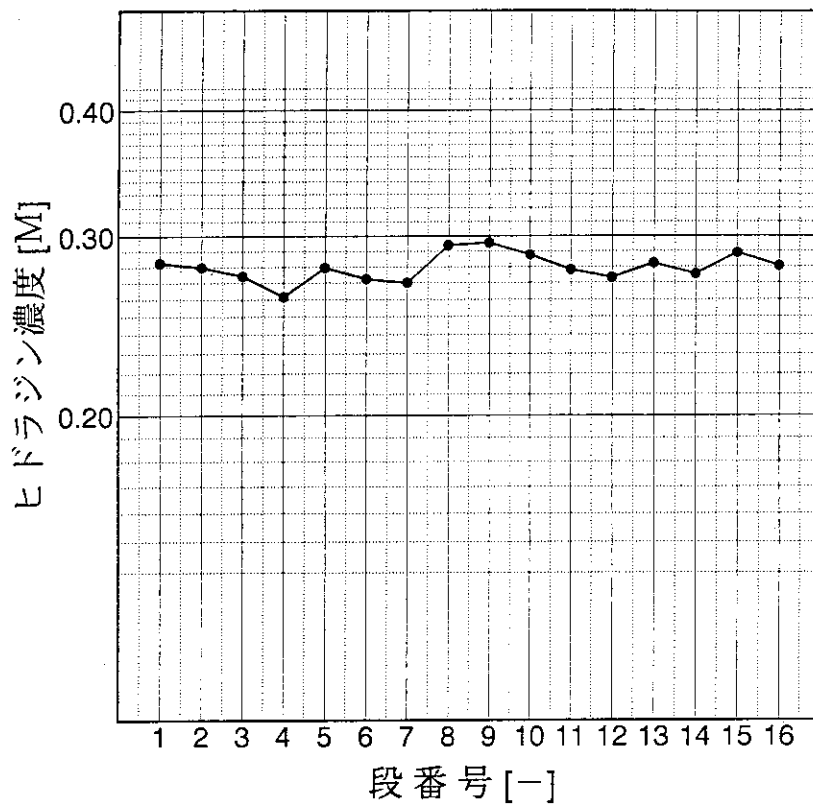


Fig. 40 抽出器Ⅲの定常到達後のヒドラジンの段方向水相濃度分布

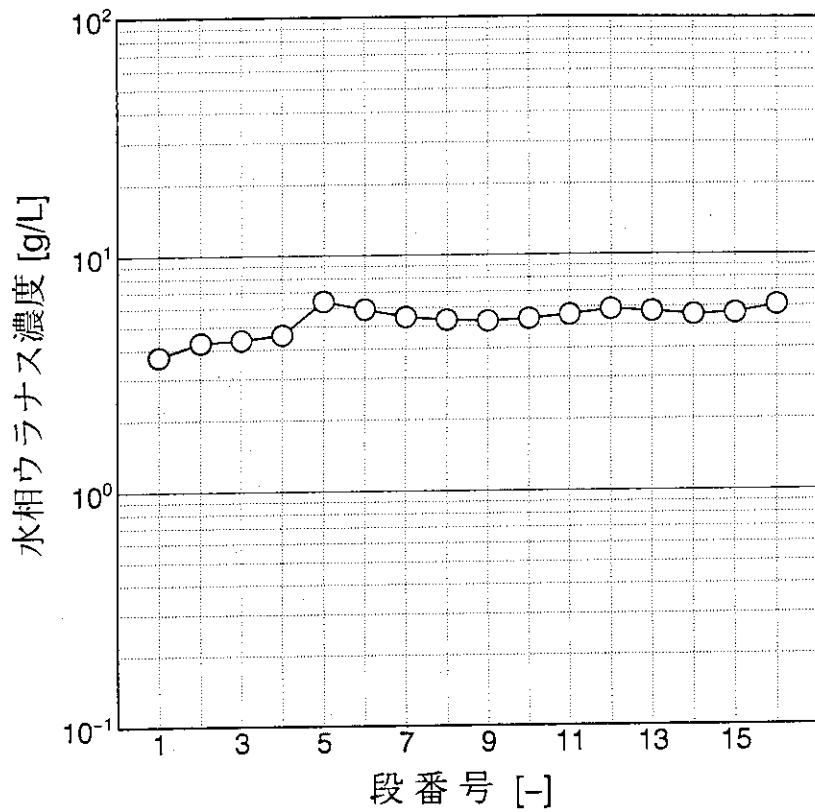


Fig. 41 抽出器Ⅱの定常到達後のウラナスの段方向水相濃度分布

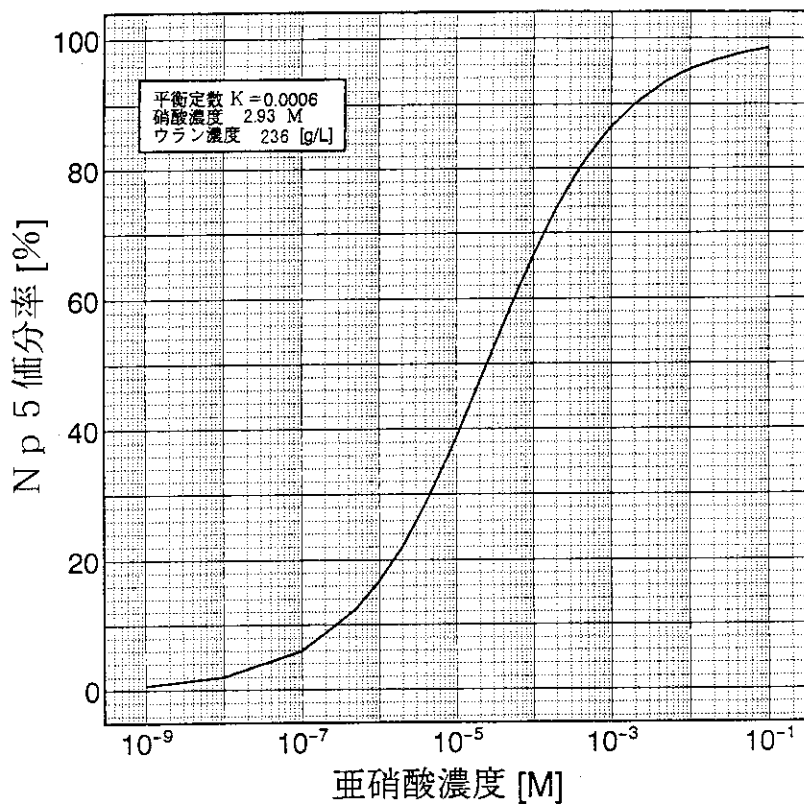


Fig. 42 ネプツニウム原子価状態と亜硝酸濃度との関係

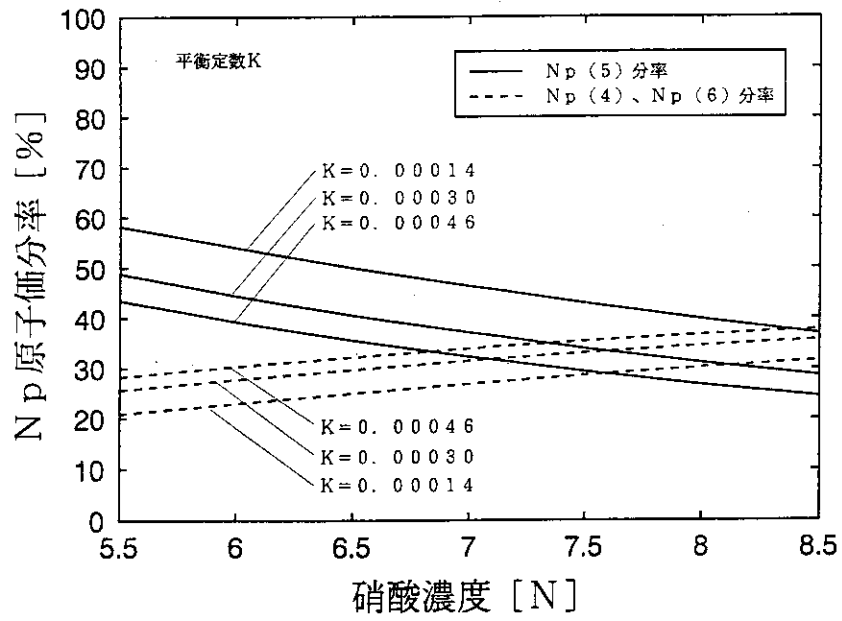
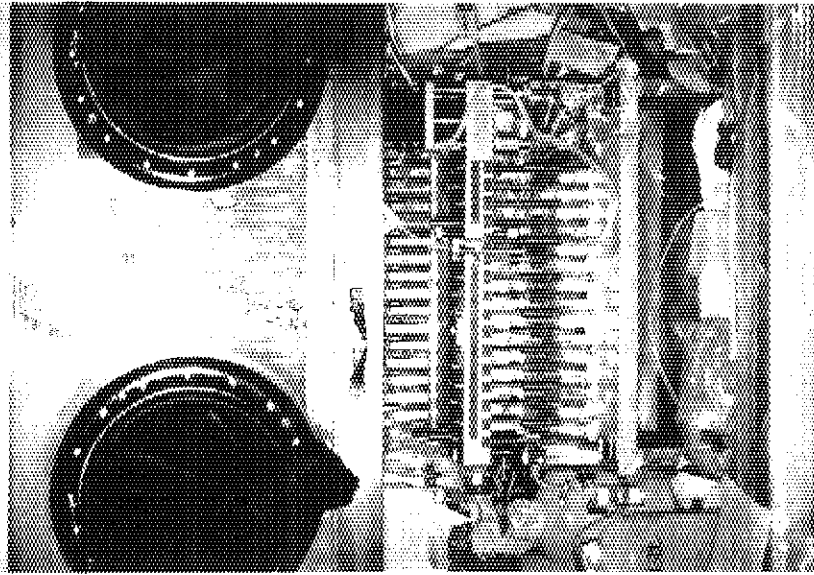
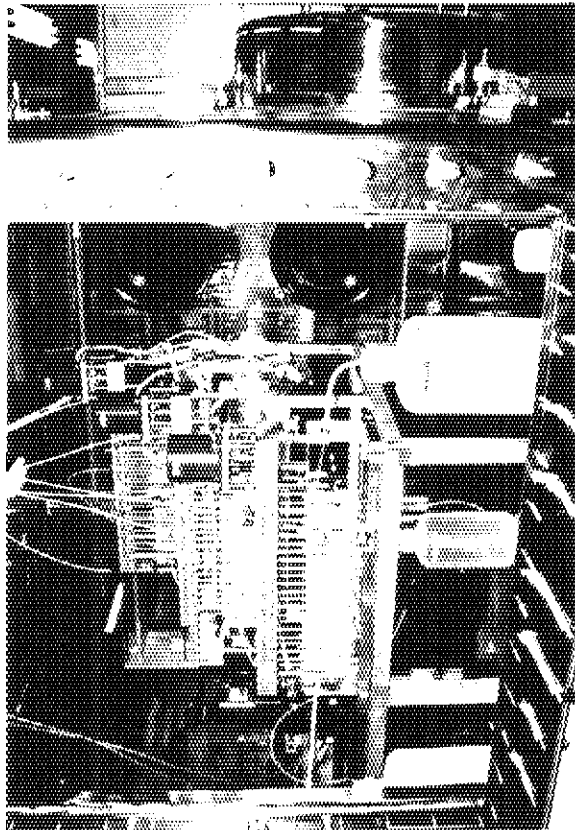


Fig. 43 ネプツニウム原子価状態と硝酸濃度との関係



b) 抽出分離試験時



a) 装置据え付け時

Photo 1 抽出分離工程装置の外観