

JAERI-Tech

2005-037



JP0550305



ARTISTプロセスにおける元素分離シミュレーション
—表計算による向流抽出器の分離シミュレーション—

2005年7月

山口 五十夫・鈴木 伸一・佐々木 祐二
山岸 功・松村 達郎・木村 貴海

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。
入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 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（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

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, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2005

編集兼発行 日本原子力研究所

ARTISTプロセスにおける元素分離シミュレーション
－ 表計算による向流抽出器の分離シミュレーション －

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部

山口 五十夫・鈴木 伸一・佐々木 祐二・山岸 功・松村 達郎・木村 貴海

(2005年5月20日受理)

溶媒抽出法による再処理では、大量処理と連続運転性に優れたミキサーセトラ型溶媒抽出器が多用されている。そこでARTISTプロセス開発で得られたデータをもとに、使用済み核燃料を用いてミキサーセトラを運転した場合、各フラクションに分布する金属イオンの割合を、向流接触抽出計算式⁽¹⁾を表計算に組み込んでシミュレーションした。しかし、前出の向流接触抽出計算式は、ミキサーセトラ内の各ステージにおいて酸濃度変化等の影響で金属イオンの分配比が変化した場合の計算に対応していない。そのため、抽出剤の酸抽出分配比より、ミキサーセトラ内の各ステージの平衡酸濃度を求め、その酸濃度に対応した金属イオンの分配比から、ミキサーセトラの各フラクションに分布する金属イオンの割合を求める計算法を開発した。これらの計算法は各フラクションに分布する金属イオンの割合ばかりでなく、M・S内の各ステージに分布する金属イオンの割合も求めることができる。

Elemental Separation Simulation in the ARTIST Process

— Separation Simulation of Counter-current Extractor by Commercial Software —

Isoo YAMAGUCHI, Shinichi SUZUKI, Yuji SASAKI, Isao YAMAGISHI, Taturou MATUMURA
and Takaumi KIMURA

Department of Materials Science
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 20, 2005)

For the development of the reprocessing of spent nuclear fuels, the solvent extraction using the mixer-settler equipment is greatly used. This method has the advantages of the treatment of the large mass of materials and continuous operations. In case of the application of the mixer-settler devise, the precise calculation using the distribution ratio of metals in order to determine the metal concentration at each stage is indispensable. This calculation is performed in the development of ARTIST process. The metal concentration in each stage of ARTIST process is calculated by the simulation using Excel software equipped with counter-current equations. This method is not taken into consideration of the change of acid concentration, therefore, we developed the new method to calculate the metal concentration even after acidity change. This method can calculate not only the metal concentration at each extraction step but also at each stage of mixer-settler. Using this calculation, we evaluated the optimum condition of solvent extraction in ARTIST process.

Keywords: Solvent, Extraction, Mixer-settler, Calculation, Software, Partitioning Process
High-level Liquid Waste

目 次

1. はじめに -----	1
2. バッチ法による分配比の測定 -----	2
2. 1 試薬 -----	2
2. 2 各種抽出剤に対する分配比の測定 -----	2
3. 向流接触抽出計算式 -----	4
3. 1 分配比一定の向流接触抽出計算 -----	4
3. 2 酸濃度変化に対応した向流接触抽出計算 -----	4
3. 2. 1 ミキサーセトラー内溶液通過概念図 -----	5
3. 2. 2 酸分配挙動計算表 -----	5
3. 2. 3 スクラブステージの酸抽出計算式誘導 -----	6
3. 2. 4 酸抽出計算式のまとめ -----	7
3. 2. 5 金属イオンの分配挙動計算表 -----	7
3. 2. 6 スクラブステージの金属イオン抽出計算式誘導 -----	8
3. 2. 7 金属イオン抽出計算式のまとめ -----	9
4. ミキサーセトラー運転シミュレーション -----	10
4. 1 向流接触抽出計算式によるシミュレーション -----	10
4. 1. 1 U, TRU, Srを抽出分離するミキサーセトラーの配置図 -----	10
4. 1. 2 各種抽出剤に対する金属イオンの分配比 -----	10
4. 1. 3 向流接触抽出計算式を用いた計算とその結果 -----	11
4. 1. 4 向流接触抽出計算式によるシミュレーションの結果 -----	12
4. 2 酸濃度変化を考慮したシミュレーション -----	13
4. 2. 1 抽出剤に対する酸の分配比 -----	13
4. 2. 2 ミキサーセトラーにおける酸の抽出計算 -----	13
4. 2. 3 ミキサーセトラー各ステージの平衡後硝酸濃度 -----	15
4. 2. 4 ミキサーセトラーにおける金属イオンの抽出計算 -----	16
4. 2. 5 ミキサーセトラー各ステージの平衡後金属イオン分布比 -----	16
5. まとめ -----	19
5. 1 分配比一定のシミュレーション結果 -----	19
5. 2 分配比補正後のシミュレーション結果 -----	19
謝辞 -----	20
参考文献 -----	21

Contents

1. Introduction -----	1
2. Measurement of the Distribution Ratio by Batch Method -----	2
2.1 Reagent -----	2
2.2 Distribution Ratio of Metals by the Various Extraction System -----	2
3. Equation for the Counter-current Extraction -----	4
3.1 Calculation for the Metal Concentration at the Constant Distribution Ratio -----	4
3.2 Calculation for the Metal Concentration at the Changeable Acid Concentration -----	4
3.2.1 Concept for the Flow of Solutions in Mixer-settler -----	5
3.2.2 Calculation on Acid Distribution -----	5
3.2.3 Introduction of Equation of Acid Distribution at Scrub Stage -----	6
3.2.4 Evaluation on Introduction of Equation of Acid Distribution -----	7
3.2.5 Calculation on Metal Distribution -----	7
3.2.6 Introduction of Equation of Metal Distribution at Scrub Stage -----	8
3.2.7 Evaluation on Introduction of Equation of Metal Distribution -----	9
4. Simulation of Operation of Mixer-settler -----	10
4.1 Simulation by Calculation with Counter-current Extraction -----	10
4.1.1 Concept of Mixer-settler for the Mutual Separation of U, TRU and Sr ----	10
4.1.2 Distribution Ratio of Metals by Various Extractants -----	10
4.1.3 Results of Calculation Using Equation for Counter-current Extraction -----	11
4.1.4 Results of Simulation Using Equation for Counter-current Extraction -----	12
4.2 Calculation of Metal Distribution at the Changeable Acidity -----	13
4.2.1 Distribution of Acid into the Extraction Solvents -----	13
4.2.2 Calculation of Acid Extraction at Mixer-settler -----	13
4.2.3 Concentration of Acid at Each Stage of Mixer-settler after Equilibrium -----	15
4.2.4 Calculation of Metal Extraction at Mixer-settler -----	16
4.2.5 Concentration of Metal Concentration at Each Stage of Mixer-settler after Equilibrium -----	16
5. Conclusion -----	19
5.1 Results for Simulation at a Constant D Values -----	19
5.2 Results for Simulation at D Values after Compensation of Deviation of Acid Concentration -----	19
Acknowledgments -----	20
References -----	21

1. はじめに

現在、再処理の抽出剤として用いられているTBPに代わり、廃溶媒の処理が容易なCHON（炭素、水素、酸素、窒素のみで構成され、廃棄処理では気体のみが発生）を構成元素とするアミド系の抽出剤を用いて使用済み燃料を処理する ARTIST (Amide-based Radio-resources Treatment with Interim Storage of Transuranics)プロセス⁽¹⁾の開発を進めている。本プロセスの主要工程の概略を図 1-1に示す。主な特徴は次の通りである。

- (1) 使用済み燃料を硝酸で溶解した溶液より、Uを N,N-ジ2エチルヘキシルジメチルプロパナミド抽出剤(D2EHDMPA)で選択的に抽出⁽²⁾する。(ウランの選択抽出工程と記す)
- (2) D2EHDMPA raffinateより、TRUと希土類元素をテトラオクチルジグリコールアミドとジヘキシルオクタンアミドの混合抽出剤(TODGA+DHOA)で共抽出⁽³⁾する。(全TRU元素の抽出工程と記す)
- (3) FPを含むTODGA+DHOA raffinateより、SrとCsを分離する。
 - (A) SrはTODGAのSrに対する抽出特性⁽⁴⁾を利用して分離する。(Srの抽出工程と記す)
 - (B) Csはクラウン系抽出剤で分離する。(Csの抽出工程と記す)
- (4) 一方、全TRU元素の抽出工程で共抽出したTRUと希土類元素フラクションより、窒素ドナー系配位子抽出剤で、TRU元素と希土類元素を分離する。(4f/5f元素の分離工程と記す)

2004年にはウランの選択抽出工程、全TRU元素の抽出工程及びSrの抽出工程についてバッチ試験による各金属イオンの抽出特性試験が実施された。Csの抽出工程、並びに4f/5f元素の分離工程については、抽出試薬の設計、試作、性能等の試験を実施中である。従って、本報ではウランの選択抽出工程、全TRU元素の抽出工程及びSrの抽出工程について、ミキサーセトラー（以下M・Sと記す）内の各ステージで金属イオンの分配比が常に一定と仮定した向流接触抽出計算式を用いてM・Sの最適運転条件の探索を行い、それに伴う各フラクションに分布する金属イオンの割合をシミュレーションした。

なお、抽出剤（有機相）は水相の酸溶液と接触すると、目的とする金属イオンばかりでなく、酸も抽出する。このためM・S等向流接触型抽出器を運転した場合に、M・Sの各ステージにおいて、有機相と水相の酸濃度がその時の酸分配比に従って適宜変化する。金属イオンの分配比は抽出平衡後の水相の酸濃度と相関関係にあるため、各ステージの水相の酸濃度に従って金属イオンの分配比も変化する。従って、前出、向流接触抽出計算式のシミュレーションに対して、M・S内の各ステージで酸濃度変化を伴う各種金属イオンの分配比補正を加えたシミュレーションを実施する必要がある。本報では分配比一定のM・S運転シミュレーションに加えて、M・S内各ステージの酸濃度変化を酸抽出分配比から算出し、これらの酸濃度から各ステージの金属イオンの分配比を求め、M・S内各ステージに分布する金属イオンの割合を表計算でシミュレーションする方法を述べる。なお、「M・S内各ステージに分布する金属イオンの割合」とはM・Sに供給（フィード）する単位時間当たりの金属イオン量に対するM・S内各ステージを通過する単位時間当たりの金属イオン量の比を示したものである。ここではフィードに含まれる金属イオン量を1とした時の割合を示した。

2. バッチ法による分配比の測定

2. 1 試薬

【抽出剤】

(A)ウランの選択的抽出剤

N,N-di(2-ethyl)hexyl-2,2-dimethyl propanamide(D2EHDMPA)をn-paraffine hydrocarbon(NPH)で1M溶液となるよう希釈して使用した。

(B)全TRU元素の抽出剤

N,N,N',N'-tetraoctyl-diglycolamide(TODGA)を0.1M溶液及びN,N-dihexyl-octanamide(DHOA)を1M溶液となるようn-paraffine hydrocarbon(NPH)で希釈して使用した。

(C)Srの選択的抽出剤

N,N,N',N'-tetraoctyl-diglycolamide(TODGA)をn-paraffine hydrocarbon(NPH)で0.1M溶液となるよう希釈して使用した。

【分配比測定対象金属イオン】

Sr, Zr, Mo, Tc, Ru, Pd, Ba, U, Np, Pu, Am, Cmの硝酸塩を各々トレーサー濃度から0.1g/L濃度の溶液となるよう硝酸に溶解して使用した。

【その他の試薬】

その他の試薬は全て試薬特級を使用した。

2. 2 各種抽出剤に対する分配比の測定

【金属イオンの分配比測定法】

バッチ試験において、抽出溶液（有機相）と金属イオンを含む酸溶液（水相）を混合接触すると、有機相中に水相の酸が抽出され、接触平衡前の水相酸濃度よりも、平衡後の水相酸濃度が低下することがある。また、その逆で、予め酸が抽出された有機相に水相が接触すると、水相に酸が逆抽出され、水相酸濃度が増加する場合もある。抽出操作において金属イオンの水相酸濃度に対する分配比の評価は平衡後の水相酸濃度に対して行うので、抽出前後の著しい水相酸濃度変化は金属イオンの分配比を求める上で好ましくない。従って、本試験では有機相の前処理として測定すべき分配比の硝酸濃度溶液に、同体積の有機相を予め添加して酸平衡に達するまで混合し、その後、水相と有機相を分相して水相のみを廃棄した。このようにして前処理を施した有機相に金属イオンを含んだ硝酸濃度既知の溶液（水相）を有機相と同体積添加して抽出実験に供した。金属イオン分配比(D metal)は以下の式で求めた。

$$D_{\text{metal}} = C_{\text{Org}} [\text{M}] / C_{\text{Aq}} [\text{M}]$$

ここで

$C_{\text{Org}} [\text{M}]$: 平衡後の有機相金属イオン濃度

$C_{\text{Aq}} [\text{M}]$: 平衡後の水相金属イオン濃度

である。

【硝酸の分配比測定法】

目的とする抽出剤に対して酸抽出（酸分配比）のデータを取得するため、酸濃度既知の溶液（水相）に水相と同体積の有機相を添加し、酸平衡に達するまで混合、その後、水相と有機相を分相し、水相の酸濃度を測定した。初期酸濃度に対する酸の分配比(D acid)は以下の式で求めた。

$$D \text{ acid} = (C_{(i)} [\text{M}] - C_{(f)} [\text{M}]) / C_{(f)} [\text{M}]$$

ここで

$C_{(i)} [\text{M}]$: 平衡前の水相硝酸濃度

$C_{(f)} [\text{M}]$: 平衡後の水相硝酸濃度

である。

3. 向流接触抽出計算式

3. 1 分配比一定の向流接触抽出計算

各種抽出剤に対する金属イオンの分配比(D)を基に、M・Sを運転した時、M・S出口の各フラクションに、どれだけ金属イオンが分布するかを計算で求める「向流接触抽出計算式」を以下に示す。これらの計算式は金属イオンの分配比がM・Sの各ステージで、常に一定であるとの仮定を置いている。なお、本章では、記号が多用されるため、予め凡例を表 3-1に示した。大記号(D、V、 β 等)の末尾に付した小記号(E)、(O)、(S)、(B)、(F)はそれぞれ抽出、有機相、スクラップ、逆抽出、フィードを示す。

①スクラップ無し

$$\beta_{(E)} = D_{(E)} \times V_{(O)} / V_{(E)}$$

$$\rho_{(E)} = \beta_{(E)} \times (\beta_{(E)}^{N(E)} - 1) / (\beta_{(E)}^{N(E)+1} - 1)$$

②スクラップ有り

$$\beta_{(E)} = D_{(E)} \times V_{(O)} / (V_{(E)} + V_{(S)})$$

$$\beta_{(S)} = D_{(S)} \times V_{(O)} / V_{(S)}$$

$$\beta_{(E)} \times (\beta_{(E)}^{N(E)} - 1) / (\beta_{(E)} - 1)$$

$$\rho_{(E)} = \frac{\beta_{(E)} \times (\beta_{(E)}^{N(E)} - 1) / (\beta_{(E)} - 1)}{1 / \beta_{(S)}^{N(S)} \times (\beta_{(S)}^{N(S)+1} - 1) / (\beta_{(S)} - 1) + \beta_{(E)} \times (\beta_{(E)}^{N(E)} - 1) / (\beta_{(E)} - 1)}$$

③逆抽出

$$\beta_{(B)} = D_{(B)} \times V_{(O)} / V_{(B)}$$

$$\rho_{(B)} = (1 - \beta_{(B)}^{N(B)}) / (1 - \beta_{(B)}^{N(B)+1})$$

本報では上式の(D_(E)、D_(S)、D_(B))、(V_(O))、(V_(E)、V_(S)、V_(B))及び(N(E)、N(S)、N(B))を変数とする計算で $\rho_{(E)}$ 或いは $\rho_{(B)}$ を簡単に求める計算表を「Microsoft株式会社製表計算ソフトExcel」(以下Excelと記す)を用いて作成した。本「計算表」は抽出剤に対する金属イオンの分配比(D)、M・Sに流入する被抽出液、抽出剤、スクラップ剤、逆抽出剤の流量(V)、並びにM・Sの抽出、スクラップ、逆抽出のステージ数(N)を入力することにより、各フラクションに分布する金属イオンの割合を計算することができる。

3. 2 酸濃度変化に対応した向流接触抽出計算

前出の「向流接触抽出計算式」はM・Sの各ステージにおいて、金属イオンの分配比が常に一定であるとの仮定を置き、M・S出口の各フラクションに分布する金属イオンの割合を計算

するものであるが、酸分配比の大きな抽出剤（有機相）をM・Sの運転に用いた場合は、M・S内の各ステージで有機相、水相の酸濃度が逐次変化し、それに伴い、金属イオンの分配比も変化するので、正確な金属イオンの分離度評価はできない。従って、これらの場合には、M・S内での酸挙動を明らかにし、M・S内各ステージの金属イオン分配比を考慮したシミュレーションを実施する必要がある。

ここでは最初にバッチ法で求めた抽出剤の酸分配比からM・S定常運転時の各ステージの水相酸濃度を表計算（Excel使用）で求める方法を示し、続いて、これらの結果（水相酸濃度）を基に、各ステージの金属イオン分配比を求め、M・Sが定常運転になった時の各ステージに分布する金属イオンの割合を表計算（Excel使用）で求める方法を示す。

3. 2. 1 ミキサーセトラ内溶液通過概念図

抽出ステージを2段、スクラブステージを2段とした、M・S運転時の有機相と水相溶液のM・S内通過概念図を図3-1に示す。

有機相はNo.1ステージに注入(Org.In)し、No.2ステージで分相(Settler)した水相と混合(Mixer)接触する。その後、No.1ステージで水相と有機相を分相(Settler)する。水相はNo.1ステージから流出(Aq.Out)し、有機相はNo.2ステージに流入、以下No.2、3、4ステージと同じ操作を繰り返しNo.4ステージから流出(Org.Out)する。他方、水相はNo.4ステージに注入(Aq.In)し、有機相と逆の方向に流れる。フィード液（水相）はNo.2ステージに注入(Feed In)する。

逆抽出は、図3-1と同じで、No.2ステージのフィード液（水相）注入(Feed In)を削除した概念図となる。

3. 2. 2 酸分配挙動計算表

(1) M・S運転時の各ステージにおける酸分配挙動を計算する計算表を表3-2に示す。ここでは簡単のため、抽出ステージを2段、スクラブステージを2段としたM・Sを例として示した。本表中の第1行はM・Sのステージ番号を示した。第2行目からは各ステージの水相と有機相の酸濃度をそれぞれ計算するため、第1行で示したステージを2列毎に分割して計算するセルをそれぞれ作成した。第2行は各ステージの水相と有機相の液性を示した。なお、ステージナンバー1及び2の列は抽出ステージであり、使用する記号の末尾に(E)を付した。また、ステージナンバー2の列はフィードステージでもあり(F)を、ステージナンバー3、4の列はスクラブステージであり同様に(S)を付した。第3行目はM・S初期状態の各ステージ水相酸濃度(M)を入力する。第4行目以降は各ステージの酸濃度を計算するエリアである。縦方向に①、②→⑩で示す2行を1組とした行は、M・Sの1つのステージに有機相と水相が流入及び流出し、これらの溶液がステージを1回分交換した時を計算の1単位として示した。即ち、2行のセルと2列のセルとで組み合わせた4個のセルで、1回の混合→平衡→分相までの諸計算を実施し、溶液がステージを1回交換した時の水相と有機相の酸濃度を算出する。他のステージも4個のセルを1組として、同様の計算を本表の下方向に向かって繰り返す。

- 返し実施する。なお、これら4個のセルでのそれぞれの計算内容を(2)以下に詳述する。
- (2) 具体的に、表 3-2中のステージナンバー3の2列及び①の2行で示す第1回交換単位の4セルと、これら4セルの入力データとなる周辺セルに注目した詳細酸分配挙動計算表を表 3-3に示す。
- (A)表中 3①-Init. Aq_(s) で示すセルではステージナンバー3に流入する有機相と水相の酸量から平衡前に全て水相に酸があったと仮定した酸濃度(M)を計算する。ここで計算に用いる有機相の酸濃度は、2①-Out Org_(f) セルデータ (これは 3①-In Org_(s) と同じものである) を用い、水相の酸濃度は3①-In Aq_(s) セルデータを用いて計算する。
- (B)表中 3①-D_(s) で示すセルでは、3①-Init. Aq_(s) の酸濃度(M)を用いて、酸分配比(D_(s))を計算する。
- (C)表中 3①-Out Aq_(s) で示すセルでは、酸の分配比(D_(s))から抽出・分相後の水相酸濃度(M)を計算する。これらの計算値はステージナンバー2の入力データ 2②-In Aq_(f) となる。
- (D)表中 3①-Out Org_(s) で示すセルでは、酸の分配比(D_(s))から抽出・分相後の有機相酸濃度(M)を計算する。これらの計算値はステージナンバー4の入力データ4①-In Org_(s) となる。
- (3) 以後はこれら4個のセルを1組として、酸濃度がM・S内の各ステージで一定となるまで繰り返し計算を行う。各セルの酸濃度変化が無くなった時点をM・Sが平衡に達したと見なし、これをM・S平衡時の各ステージの酸濃度とする。

3. 2. 3 スクラブステージの酸抽出計算式誘導

ここではM・S平衡後のスクラブステージ酸濃度を表計算で求める計算手順を示す。

- (1) スクラブステージに流入する酸量 (表 3-3中(3①-Init. Aq_(s))で示すセルに導入する計算式)
- スクラブステージのセルに流入する酸量(mol)をT.acid_(s)とすると、関係式は
- $$T.acid_{(s)} = ((3①-InOrg_{(s)}) \times V_{(0)}) + ((3①-InAq_{(s)}) \times V_{(s)}) \text{ となる。} \text{-----} \text{①}$$
- T.acid_(s)が平衡前の水相にあると仮定し、その時の酸濃度をInit.Aq_(s)とすると、関係式は
- $$Init.Aq_{(s)} = T.acid_{(s)} / V_{(s)} \text{ となる。} \text{-----} \text{②}$$
- (2) 分配比 (表 3-3中(3①-D_(s))で示すセルに導入する計算式) と移行比
- 対象とする抽出剤の平衡前酸濃度と酸分配比の関係を実験により求め、平衡前酸濃度と酸分配比の関係式を求める。酸の分配比をD_(s)とすると、関係式は
- $$D_{(s)} = \text{function}(Init.Aq_{(s)}) \text{ となる。} \text{-----} \text{③}$$
- 水相と有機相の流量比を考慮に入れた移行比 (平衡後、酸が水相と有機相に移行する比) をβ_(s)とすると、関係式は
- $$\beta_{(s)} = D_{(s)} \times (V_{(0)} / V_{(s)}) \text{ となる。} \text{-----} \text{④}$$
- (3) スクラブステージから流出する酸の量
- (A)水相 (表 3-3中(3①-Out Aq_(s))で示すセルに導入する関係式)
- (a)水相への酸移行割合
- 分配後の水相へ移行する酸の割合をαAq_(s)とするとαAq_(s)は1/(β_(s) + 1)で表される。

従って、関係式は

$$\alpha Aq_{(s)} = V_{(s)} / (D_{(s)} \times V_{(0)} + V_{(s)}) \text{ となる。} \text{-----} \text{⑤}$$

(b)水相への酸移行量と酸濃度

水相への酸移行量は、 $\alpha Aq_{(s)}$ に $T.acid_{(s)}$ を乗じ、また、その酸濃度は $V_{(s)}$ で除する。従って、スクラブステージ平衡後水相酸濃度を $OutAq_{(s)}$ とすると、関係式は

$$OutAq_{(s)} = T.acid_{(s)} / (D_{(s)} \times V_{(0)} + V_{(s)}) \text{ となる。} \text{-----} \text{⑥}$$

(B)有機相 (表 3-3中(3①- $Out Org_{(s)}$))で示すセルに導入する計算式)

(a)有機相への酸移行割合

分配後の有機相へ移行する酸の割合を $\alpha Org_{(s)}$ とすると $\alpha Org_{(s)}$ は $\beta_{(s)} / (\beta_{(s)} + 1)$ で表される。従って、関係式は

$$\alpha Org_{(s)} = (D_{(s)} \times V_{(0)}) / (D_{(s)} \times V_{(0)} + V_{(s)}) \text{ となる。} \text{-----} \text{⑦}$$

(b)有機相への酸移行量と酸濃度

有機相への酸移行量は、 $\alpha Org_{(s)}$ に $T.acid_{(s)}$ を乗じ、また、その酸濃度は $V_{(0)}$ で除する。従って、スクラブステージ平衡後有機相酸濃度を $OutOrg_{(s)}$ とすると、関係式は

$$OutOrg_{(s)} = (D_{(s)} \times T.acid_{(s)}) / (D_{(s)} \times V_{(0)} + V_{(s)}) \text{ となる。} \text{-----} \text{⑧}$$

3. 2. 4 酸抽出計算式のまとめ

前3. 2. 3章ではM・S平衡後のスクラブステージ酸濃度を表計算で求める計算手順を詳述した。本章ではスクラブステージ酸濃度計算手順を基に、フィードステージ、抽出ステージ及び逆抽出ステージの各セルに導入する計算式を求めた。スクラブステージに対して他のステージにおける条件の相違点を以下に示す。

(1) フィードステージ

フィードステージに流入する酸量は前ステージ有機相と後ステージ水相から流入する酸量にフィードの酸量が加算される。また、有機相の流量はスクラブステージと同じであるが、水相の流量はスクラブ流量にフィード流量が加算される。

(2) 抽出ステージ

抽出ステージに流入する酸量は前ステージ有機相と後ステージ水相とから流入する酸量のみで、スクラブステージと全く同じであるが、水相の流量はスクラブ流量とフィード流量の合計値である。

(3) 逆抽出ステージ

逆抽出ステージに流入する酸量は前ステージ有機相と後ステージ水相とから流入する酸量のみで、スクラブステージと全く同じである。従ってスクラブステージの計算式をそのまま使用する。但し、使用する記号の(S)を(B)に読み替える。

スクラブステージ、フィードステージ、抽出ステージ及び逆抽出ステージの表計算に導入する計算式を表 3-4にまとめて示した。

3. 2. 5 金属イオンの分配挙動計算表

- (1) M・S運転時の各ステージにおける金属イオンの分配挙動を計算する計算表を表 3-5に示す。ここでは前出、酸分配挙動計算表と同じく、抽出ステージを2段、スクラブステージを2段としたM・Sを例として示した。本表中の第1行はM・Sのステージ番号を示した。第2行目は前述、酸分配挙動計算表で求めた各ステージの平衡水相酸濃度(M)を入力する。第3行目では平衡水相酸濃度(M)から、各ステージの金属イオン分配比(D)を計算する。第4行目では各ステージの金属イオン分配比(D)とM・S内を流れる水相と有機相の流量比から、移行比(β)を計算する。第5行目からは各ステージの水相と有機相の金属イオン量をそれぞれ計算するため、第1行目で示したステージを2列毎に分割して計算するセルをそれぞれ作成した。第5行目では移行比(β)から有機相と水相に移行する金属イオン割合(α_{Aq} 、 α_{Org})を計算する。第6行目は各ステージの水相と有機相の液性を示した。第7行目にはM・S初期状態の各ステージにおける水相の金属イオンの割合を入力する。第8行目以降は各ステージの金属イオン分布割合を計算するエリアである。縦方向に①、②→⑩で示す行は、M・Sの1つのステージに有機相と水相が流入及び流出し、これらの溶液が1回分交換した時を計算の1単位として示した。
- (2) 本表 3-5中 3①-OutMAq_(s) で示すセルではステージナンバー3に流入する金属イオンの量を求め、M・S内の1つのステージで混合→平衡→分相を行った後の水相に分布する金属イオン量を計算する。具体的には有機相 2①-OutMOrg_(f) セルデータと水相 3①-InMAq_(s) セルデータの値を合計し、ステージナンバー3の水相に移行する金属イオン割合($\alpha_{Aq(s)}$)を乗じることにより、分相後の水相金属イオンの割合を計算する事ができる。また、3①-OutMOrg_(s) で示すセルでは前記と同じ手法で、分相後の有機相金属イオンの割合を計算する。なお、これらの計算結果である水相(3①-OutMAq_(s))においては行②、ステージナンバー2に対応する入力データとなり、有機相(3①-OutMOrg_(s))においては行①、ステージナンバー4に対応する入力データとなる。
- (3) 以後はこれら2個のセルを1組として、金属イオンの割合がM・S内の各ステージで一定となるまで繰り返し計算を行う。各セルの金属イオンの割合の変化が無くなった時点をM・Sが平衡に達したと見なし、これをM・S平衡時のM・S内各ステージに分布する金属イオンの割合とする。

3. 2. 6 スクラブステージの金属イオン抽出計算式誘導

ここではM・S平衡後のスクラブステージの各ステージに分布する金属イオンの割合を表計算で求める計算手順を示す。

- (1) スクラブステージに流入する金属イオンの割合

スクラブステージのセルに流入する金属イオンの割合(-)を $T.metal_{(s)}$ とすると、関係式は $T.metal_{(s)} = InMOrg_{(s)} + InMAq_{(s)}$ となる。-----①

- (2) 金属イオン分配比と移行比 (表 3-5中 $D_{(s)}$ 及び $\beta_{(s)}$ で示すセルに導入する計算式)

酸分配挙動計算表で求めた各ステージの平衡水相酸濃度(M)より、各ステージの金属イオン

分配比を求める。各スクラブステージの金属イオン分配比を $D_{(s)}$ とすると、関係式は

$$D_{(s)} = \text{function}(\text{OutAq}_{(s)}) \text{となる。} \text{-----} \text{②}$$

水相と有機相の流量比を考慮に入れた移行比を $\beta_{(s)}$ と表すと、関係式は

$$\beta_{(s)} = D_{(s)} \times (V_{(0)} / V_{(s)}) \text{となる。} \text{-----} \text{③}$$

(3) スクラブステージから流出する金属イオンの割合

(A) 水相

(a) 水相への金属イオン移行割合 (表 3-5中 $\alpha\text{Aq}_{(s)}$ で示すセルに導入する計算式)

分配後の水相へ移行する金属イオンの割合を $\alpha\text{Aq}_{(s)}$ とすると $\alpha\text{Aq}_{(s)}$ は $1 / (\beta_{(s)} + 1)$ で表される。従って、関係式は

$$\alpha\text{Aq}_{(s)} = V_{(s)} / (D_{(s)} \times V_{(0)} + V_{(s)}) \text{となる。} \text{-----} \text{④}$$

(b) 水相金属イオンの割合 (表 3-5中 $\text{OutMAq}_{(s)}$ で示すセルに導入する計算式)

水相金属イオンの割合は、 $\alpha\text{Aq}_{(s)}$ に $T.\text{metal}_{(s)}$ を乗じる。従って、スクラブステージ平衡後水相金属イオンの割合を $\text{OutMAq}_{(s)}$ で表すと、関係式は

$$\text{OutMAq}_{(s)} = (V_{(s)} \times T.\text{metal}_{(s)}) / (D_{(s)} \times V_{(0)} + V_{(s)}) \text{となる。} \text{-----} \text{⑤}$$

(B) 有機相

(a) 有機相への金属イオン移行割合 (表 3-5中 $\alpha\text{Org}_{(s)}$ で示すセルに導入する計算式)

分配後の有機相へ移行する金属イオンの割合を $\alpha\text{Org}_{(s)}$ とすると $\alpha\text{Org}_{(s)}$ は $\beta_{(s)} / (\beta_{(s)} + 1)$ で表される。従って、関係式は

$$\alpha\text{Org}_{(s)} = (D_{(s)} \times V_{(0)}) / (D_{(s)} \times V_{(0)} + S V_{(s)}) \text{となる。} \text{-----} \text{⑥}$$

(b) 有機相金属イオンの割合 (表 3-5中 $\text{OutMOrg}_{(s)}$ で示すセルに導入する計算式)

有機相金属イオンの割合は、 $\alpha\text{Org}_{(s)}$ に $T.\text{metal}_{(s)}$ を乗じる。従って、スクラブステージ平衡後有機相金属イオンの割合を $\text{OutMOrg}_{(s)}$ で表すと、関係式は

$$\text{OutMOrg}_{(s)} = (D_{(s)} \times V_{(0)} \times T.\text{metal}_{(s)}) / (D_{(s)} \times V_{(0)} + V_{(s)}) \text{となる。} \text{-----} \text{⑦}$$

3. 2. 7 金属イオン抽出計算式のまとめ

前第3. 2. 6章ではM・S平衡後のスクラブステージ金属イオンの割合を表計算で求める計算手順を詳述した。

本章ではスクラブステージ金属イオンの割合を表計算で求める計算手法を基にして、フィードステージ、抽出ステージ及び逆抽出ステージの計算式をスクラブステージとの相違点を考慮しながら各々のステージについて誘導した。なお、スクラブステージとの相違点は前第3. 2. 4章と同等であるので割愛する。また、スクラブステージ、フィードステージ、抽出ステージ及び逆抽出ステージの表計算に導入する計算式を表 3-6にまとめて示した。

4. ミキサーセトラー運転シミュレーション

4. 1 向流接触抽出計算式によるシミュレーション

使用済み核燃料を被分離液として、第3.1章で作成した「計算表」を用い、M・Sを運転した時の各フラクションに分布する金属イオンの割合を求めた。

4. 1. 1 U, TRU, Srを抽出分離するミキサーセトラーの配置図

アーチストプロセスでのU, TRU, Srを抽出分離するM・Sの配置図を図4-1に示す。

図中、最上段のM・S①は使用済み燃料を3M硝酸で溶解した溶液(HLW feed)より、1M D2EHMPA-n.p溶媒(solvent)によりUを抽出する。溶媒の洗浄(scrub)は3M硝酸で行う。抽出されない金属イオンはラフィネート(raffinate)としてM・S①より流出する。Uを抽出した溶媒はM・S②に流入し、1M硝酸で溶媒中のUを逆抽出(Back Ext.)して水相に戻す。

中段のM・S③はM・S①ラフィネート(TRU RE FP feed)より、0.1M TODGA+1M DHOA-n.p溶媒(solvent)でTRUと希土類元素を共抽出する。溶媒の洗浄(scrub)はM・S①と同じく3M硝酸で行う。M・S④による逆抽出(Back Ext.)は0.1硝酸で行い、TRUと希土類元素を水相に戻す。下段のM・S⑤はM・S③ラフィネート(Sr FP feed)より、0.1M TODGA-n.p溶媒(solvent)でSrを抽出する。溶媒の洗浄(scrub)は3M硝酸で行う。抽出したSrはM・S⑥により0.2M硝酸で逆抽出(Back Ext.)して水相に戻す。以下、これらの計画でシミュレーションを行う。また、それぞれ3種類の抽出剤は再利用(Solv.recycling)する。

4. 1. 2 各種抽出剤に対する金属イオンの分配比

(1) 1M D2EHMPA-n.p抽出剤

1M D2EHMPA-n.p抽出剤に対して使用済み燃料中に含まれる各種金属イオンの内、U(VI)、Pu(IV)、Np(VI)及びNp(IV)について硝酸濃度を変化したときの分配比を調べた。その結果を図4-2示す。金属イオンの分配比は硝酸濃度が上昇するに従い上昇し、分配比は硝酸濃度の累乗にほぼ比例することが認められた。

M・S内の抽出剤は各ステージで水相と接触し、金属イオンばかりでなく酸の抽出や放出を行う。その結果、水相の酸濃度が変化し、金属イオンの分配比もそれに伴い適宜変化する。

本章では分配比が各ステージで常に一定であるとしたシミュレーションを実施するが、分配比が各ステージで変化するとしたシミュレーション(第4.2章で検討)と比較検討するため、横軸の平衡後酸濃度と縦軸の金属イオン分配比の関係について近似式を求め、その近似式から平衡後酸濃度に対する金属イオンの分配比を求めてシミュレーションの入力データとした。その結果、U(VI)の近似式は $D=0.104 \times (\text{acid}(M))^{2.4014}$ 、Np(VI)の近似式は $D=0.0564 \times (\text{acid}(M))^{2.2445}$ となった。なお、使用済み燃料中の主要FP(Sr, Cs等)の分配比は3M硝酸で0.01以下である事を確認した。

近似式等から求めた抽出、逆抽出条件である各種金属イオンの分配比を他の抽出剤と共に表 4-1にまとめて示す。

(2) 0.1M TODGA+1M DHOA-n.p混合抽出剤

0.1M TODGA+1M DHOA-n.p混合抽出剤に対してAm(III)、Cm(III)、U(VI)、Np(V)及びFP元素Mo、Ru、Pd、Sr、Tc、Zrについて硝酸濃度を変化したときの分配比を調べた。その結果を図 4-3及び図 4-4に示す。

金属イオンの分配比は硝酸濃度が上昇するに従い概ね上昇するが、Ru、Pd、Sr、Tc、Zrは高い硝酸濃度で低下する傾向を示した。Am(III)の近似式は $D=6.915 \times (\text{acid}(M))^{1.4376}$ 、Cm(III)の近似式は $D=7.577 \times (\text{acid}(M))^{1.4566}$ となった。TRUの抽出条件である3M硝酸及び逆抽出条件である0.1M硝酸でのAm(III)とCm(III)の分配比は近似式から、他の核種は図より抽出、逆抽出条件の分配比を求めた。その結果をまとめて表 4-1に示す。

(3) 0.1M TODGA-n.p抽出剤

0.1M TODGA-n.p抽出剤に対してFP元素であるMo、Ru、Pd、Sr、Ba、Tcについて硝酸濃度を変化したときの分配比を調べた。その結果を図 4-5に示す。抽出平衡後硝酸濃度に対する金属イオンの分配比挙動は前出の0.1M TODGA+1M DHOA-n.p混合抽出剤と類似しているが、全体的に分配比が同条件で10倍ほど上昇した。Srの抽出条件である3M硝酸及び逆抽出条件である0.2M硝酸での各種金属イオンの分配比をまとめて表 4-1に示す。

4. 1. 3 向流接触抽出計算式を用いた計算とその結果

(1) ウランの選択抽出工程 (1M D2EHDMPA-n.p抽出剤)

U(VI)を99.9%以上抽出し、また、U(VI)を99.99%以上逆抽出するM・Sの最適運転条件を向流接触抽出計算式で求めた。その計算表を表 4-2に示す。

表 4-2-2 抽出計算表の第1カラムに着目する核種名を、第2及び3カラムに抽出及びスクラブ条件である3M硝酸での金属イオン分配比を入力する。その後、表 4-2-1 抽出運転条件表に有機相、フィード及びスクラブの流量を、更に、抽出及びスクラブのステージ数を入力する。その結果、表 4-2-2 抽出計算表の第6カラムにフィードに含まれる金属イオン量を1とした時の抽出される割合が出力される。

表 4-2-4 逆抽出計算表では第1カラムに着目する核種名を、第2カラムに逆抽出条件である1M硝酸での金属イオン分配比を入力する。その後、表 4-2-3 逆抽出運転条件表に有機相、逆抽出剤の流量及び逆抽出ステージ数を入力する。その結果、表 4-2-4 逆抽出計算表の第4カラムに入力した有機相に含まれる金属イオン量を1とした時の逆抽出される割合が出力される。これらの計算表を用いてM・Sの最適運転条件を求めた結果を全TRU元素の抽出工程、Srの抽出工程と共に、まとめて表 4-5に示す。

表 4-5より、Uを99.9%以上抽出する条件は、有機相、フィード及びスクラブの流量比を4:2:1とし、抽出ステージを10段、スクラブステージを4段にする。また、抽出されたU(VI)を99.99%以上逆抽出する条件は有機相、逆抽出剤流量比を2:1とし、逆抽出ステージを7段にすることで達成できる。この時、FP元素、Np(IV)、Pu(IV)、Am(III)及びCm(III)は100%ラフィネートフ

ラクションに移行するが、Np(VI)は80%以上抽出する。Np(V)のデータはないが、後工程の挙動を知るため、ここでは抽出されないとするダミーデータを入力した。

抽出された全ての元素は逆抽出できるのでUフラクションにNp(VI)の約80%が混入し、ラフィネートフラクションに約20%ほど移行する。

(2) 全TRU元素の抽出工程 (0.1M TODGA+1M DHOA-n.p混合抽出剤)

TRU元素を99.99%以上抽出し、また、99.99%以上逆抽出するM・Sの運転条件を向流接触抽出計算式で求めた。その計算表を表 4-3に示す。計算手順は表 4-2と全く同じであるので割愛する。なお、これらの計算表で求めたM・S運転条件の結果を表 4-5に示す。

表 4-5より、TRUを99.99%以上抽出する条件は、有機相、フィード及びスクラブの流量比を1:4:1とし、抽出ステージを4段、スクラブステージを6段にする。また、抽出されたTRUを99.99%以上逆抽出する条件は有機相、逆抽出剤流量比を2:1とし、逆抽出ステージを3段にすることで達成できる。この時、FP元素の大部分がラフィネートフラクションに移行するが、Zrの99.9%以上がTRUフラクションに混入する。また、Tcは各フラクションに分布し、溶媒に45%ほど混入する。U(VI)は98%以上抽出するがNp(V)は抽出できない。

(3) Sr元素の抽出工程 (0.1M TODGA-n.p抽出剤)

Srを99.99%以上抽出し、また、99.99%以上逆抽出するM・Sの運転条件を向流接触抽出計算式で求めた。前項と同じく計算表を表 4-4に示したが、計算手順は表 4-2と全く同じであるので割愛する。なお、これらの計算表で求めたM・S運転条件の結果を表 4-5に示す。

表 4-5より、Srを99.99%以上抽出する条件は、有機相、フィード及びスクラブの流量比を2:2:1とし、抽出ステージを7段、スクラブステージを4段にする。また、抽出されたSrを99.99%以上逆抽出する条件は有機相、逆抽出剤流量比を2:1とし、逆抽出ステージを4段にすることで達成できる。Tcはここでも各フラクションに分布し、Pdは96%程抽出される。Mo、Ru及びBaは抽出されない。SrとBaは同族であり化学的に分離が困難とされているが、ここでは相互に100%分離できる。Np(V)は抽出できずラフィネートフラクションに移行する。

4. 1. 4 向流接触抽出計算式によるシミュレーションの結果

ウランの選択抽出、全TRU元素の抽出及びSrの抽出工程を総合した各核種の分離挙動を表 4-6にまとめて示した。ここで、ウランの選択抽出工程の入力値は各核種について100(%)として入力するが、全TRU元素の抽出工程の入力値はウランの選択抽出工程のラフィネートフラクションの割合を入力値とする。同じく、Srの抽出工程では全TRU元素の抽出工程におけるラフィネートフラクションの割合を入力値とする。

- (1) ウランの選択抽出工程において、U(VI)を目的とするフラクションに99.9%以上回収できるが、Np(VI)の80%以上がUフラクションに混入する。溶媒(solvent)フラクションに未洗浄の核種は認められず、1M硝酸による逆抽出操作のみで溶媒の再利用が可能である。
- (2) 全TRU元素抽出工程において、TRUを目的とするフラクションに99.999%以上回収できるが、Zrの99.9%及びTcの11%並びにFP元素の0.4%程度がTRUフラクションに混入する。溶媒(solvent)フラクションにはTcの45%及び微量のFPが混入する。

(3) Srの抽出工程において、Srを目的とするフラクションに99.9%以上回収できるが、Tcの約18%及びPdの96%がSrフラクションに混入した。ラフィネートフラクションにはU、TRU、Sr以外の全元素を回収する予定であるが、Mo、Ru及びBaの100%がラフィネートフラクションに移行して回収できた。Np(V)はウランの選択抽出工程でラフィネートフラクションに100%移行するとした仮定において、Srの抽出工程のラフィネートフラクションに移行する事がわかった。溶媒(solvent)フラクションにはTcの22%程度及びPdの4%程度が混入する。

4. 2 酸濃度変化を考慮したシミュレーション

前第4.1章で述べた「向流接触抽出計算式」によるM・S分配シミュレーションはM・S内の各ステージで金属イオンの分配比が常に一定であるとの仮定を置いているので、M・S内の各ステージで、金属イオンの分配比が何らかの影響で変動した場合のシミュレーションは出来ない。従って、抽出剤の酸抽出による水相の酸濃度変化に伴う金属イオンの分配比変動がM・S内の金属イオンの挙動にどのように影響するか検討した。

その手法は、抽出剤の酸抽出分配比より、M・S内各ステージの平衡酸濃度を求め、その酸濃度に対する金属イオンの分配比をM・S内各ステージの抽出計算に入力し、各フラクションに分布する金属イオンの割合を求めた。これらの結果を前出の「向流接触抽出計算式」から求めた結果と対比してその影響を検討した。

4. 2. 1 抽出剤に対する酸の分配比

M・Sにおける酸抽出のシミュレーションを実施するため、硝酸濃度を変化したときの1M D2EHDMPA-n.p抽出剤、0.1M TODGA+1M DHOA-n.p混合抽出剤及び0.1M TODGA-n.p抽出剤に対する硝酸の分配比を求めた。その結果を図4-6示す。初期硝酸濃度が上昇するに従い、どの抽出剤も酸分配比が上昇した。また、これら3種の抽出剤の内、酸分配比の大きい順は0.1M TODGA+1M DHOA-n.p > 1M D2EHDMPA-n.p > 0.1M TODGA-n.pである。なお、初期硝酸濃度に対する酸分配比の近似式を以下に示す。これらの数式は次章「ミキサーセトラーにおける酸の抽出計算」で用いる。

- | | |
|---------------------------------|--|
| (1) 1M D2EHDMPA-n.p抽出剤 | $D(\text{acid}) = 0.0324 \times (\text{Init. acid}(M))^{0.5682}$ |
| (2) 0.1M TODGA+1M DHOA-n.p混合抽出剤 | $D(\text{acid}) = 0.135 \times (\text{Init. acid}(M))^{0.6497}$ |
| (3) 0.1M TODGA-n.p抽出剤 | $D(\text{acid}) = 0.0164 \times (\text{Init. acid}(M))^{0.7742}$ |

4. 2. 2 ミキサーセトラーにおける酸の抽出計算

アーチストプロセスにおけるM・Sフィードの酸濃度は3M硝酸水溶液である。そのため、各抽出剤の初期3M硝酸濃度に対する酸の分配比を前出、近似式から求めた。

その結果、1M D2EHDMPA-n.p抽出剤で0.0605、0.1M TODGA+1M DHOA-n.p混合抽出剤で0.2756、0.1M TODGA-n.p抽出剤で0.0384となった。しかし、M・Sの運転において、各ステージの酸濃

度を変化させる要因は、酸分配比ばかりでなく、酸分配比に有機相と水相の流量比を乗じた酸移行比 (β) がその指針となると考えられる。前第4.1章、で求めたM・Sの運転条件を勘案し、それぞれの工程の β 値を計算すると、ウランの選択抽出工程では0.0806、全TRU元素の抽出工程では0.0551、Srの抽出工程では0.0256となった。なお、上記3工程の中で最も β 値が大きくなる工程はウランの選択抽出工程である。従って、ウランの選択抽出工程(1M D2EHDMPA-n.p抽出剤)に対するシミュレーションを主に代表例として示し、分配比が常に一定であるとの仮定をおいた計算と比較し検討した。

(1) 抽出及びスクラブステージの計算

M・Sにおける酸の抽出量計算表(抽出+スクラブステージ)を表4-7に示す。表4-7-1及び4-7-2の抽出ステージ及びスクラブステージ入力データ表には比較のために、前出「向流接触抽出計算式」で求めたM・Sの最適運転条件を入力した。即ち、有機相、フィード及びスクラブ流量比を4:2:1とし、抽出ステージを10段、スクラブステージを4段とし、フィード及びスクラブ酸濃度を3M硝酸溶液とし、有機相に含まれる酸量は抽出剤の酸分配比から0.2463M硝酸溶液相当とした。なお、M・Sの初期状態は各ステージに0.1M硝酸溶液が既に投入されているものとした。

表4-7-3酸抽出計算表は本来、列として抽出10ステージ、スクラブ4ステージ、並びに行として各ステージの酸濃度が平衡となる交換回数25回分を示すべきであるが、表示するデータが膨大となるため、抽出ステージの3段から9段及びスクラブステージの2段から3段を省略し、交換回数は4回から22回分を省略して示した。

図4-7には前出、表4-7を用いて計算したM・S内各ステージの水相硝酸濃度を縦軸に交換回数を横軸にして示した。なお、全てのステージについて水相硝酸濃度をプロットするとデータが膨大となるため、スクラブステージの1段及び4段、抽出ステージの1、2段及び10段について示した。スクラブステージ4段目はほぼ12回の交換で平衡に達するが、抽出ステージ10段目はフィードステージから離れているため硝酸の到達が遅く、平衡到達に20回程度の交換回数が必要となる。

表4-7-4マスバランス表において、平衡(25回分交換)後のM・Sに流入する硝酸量とM・Sより流出する硝酸量とを比較検討した。硝酸の流入量は499.26mmol/hであり、流出量は498.35mmol/hであった。入力量に対して出力量は99.82%あり、完全平衡達成には30回以上の交換が必要であると考えられる。なお、M・S各ステージの初期状態を3M硝酸溶液にしておくと、5回程度の交換で平衡に達し、マスバランスも25回の交換で硝酸の入力量に対して出力量が100%になる事がわかった。

(2) 逆抽出ステージの計算

M・Sにおける酸の逆抽出量計算表(逆抽出ステージ)を表4-8に示す。

表4-8-1逆抽出ステージ入力データ表には表4-7と同じく、前出「向流接触抽出計算式」で求めたM・Sの最適運転条件を入力した。即ち、有機相、水相流量比を2:1とし、逆抽出ステージを7段とし、逆抽出硝酸濃度を1M硝酸溶液とし、有機相に含まれる硝酸濃度を0.2463M硝酸溶液相当とした。M・Sの初期状態は各ステージに1M硝酸溶液が既に投入されているも

のとした。

表 4-8-2酸逆抽出計算表も表 4-7と同じくデータを省略して示した。なお、M・S内各ステージの水相硝酸濃度変化図も割愛するが、表 4-8-3マスバランス表より、硝酸の入力値と出力値が等しいことから、25回の交換回数で充分平衡に達していると考えられる。

4. 2. 3 ミキサーセトラ各ステージの平衡後硝酸濃度

(1) ウランの選択抽出工程

M・S内の平衡後硝酸濃度分布を図 4-8に示す。

横軸のステージナンバー1~10は抽出ステージ、11~14はスクラブステージ、15~21は逆抽出ステージである。縦軸はM・S平衡後の各ステージの硝酸濃度(M)を示した。

抽出及びスクラブステージにおいて、予め3M硝酸溶液と充分接触（前処理：Pretreated）した抽出剤（有機相：0.246M硝酸を含む）をM・Sに投入すると、M・S平衡後の各ステージの水相硝酸濃度はフィードやスクラブ溶液の3M硝酸溶液とほとんど変わらない濃度で分布する。しかし、前出の前処理を抽出剤（有機相）に施さない（Untreated）と、有機相が最初に水相と接触するステージナンバー1において水相の硝酸濃度は目標値の3.00Mに対して2.67Mと著しく低下する結果となった。この事は、酸を抽出していない抽出剤が水相の酸を抽出するもので、その結果、目標とする水相酸濃度は得られず、また、期待する金属イオンの抽出分配比も得られない事となる。なお、これらの問題は抽出剤の酸による前処理を行うか、或いは抽出のステージ数を目標とする水相酸濃度になるまで増加する事により解決できる。

逆抽出ステージでは、抽出剤の前処理操作有り、無しに関係なく、最初に有機相が水相と接触するステージナンバー15において、逆抽出硝酸濃度1Mに対して、水相の硝酸濃度が1.43Mと上昇する結果となった。この事は、金属イオンや酸を抽出した有機相が最初に接触するステージの水相に酸を放出するもので、目標とする水相酸濃度は得られず、また、期待する金属イオンの逆抽出分配比も得られない事となる。これらの問題は逆抽出のステージ数を目標とする水相酸濃度になるまで増加する事によって解決できる。

(2) 全TRU元素の抽出工程

M・S内の平衡後硝酸濃度分布を図 4-9に示す。

横軸のステージナンバー1~4は抽出ステージ、5~10はスクラブステージ、11~19は逆抽出ステージである。縦軸はM・S平衡後の硝酸濃度(M)を示した。

抽出及びスクラブステージにおいて、抽出剤の酸による前処理を施すことにより、目標とする水相酸濃度分布が得られた。しかし、酸による前処理を実施しないと、ウランの選択抽出工程と同じく、ステージナンバー1において水相硝酸濃度は目標値の3.00Mに対して2.82Mと低下した。同条件でのウランの選択抽出工程における酸濃度低下は2.67Mであり、これらの値より低下率は低かった。この事は本章冒頭で提示した酸移行比（ β ）値が抽出ステージの酸濃度変動の指標となる事を示している。何れにせよ酸抽出分配比の大きな抽出剤を用いる場合は抽出剤の酸による前処理が必要不可欠である。

逆抽出ステージでは、最初に抽出剤が水相に接触するステージナンバー11において、逆抽

出目標硝酸濃度0.1Mに対して水相硝酸濃度が2.08Mと著しく上昇した。その後、ステージナンバーが増加するに従い水相、有機相共に酸濃度は低下し、ステージナンバー15において水相硝酸濃度が0.12Mとなった。従って、ステージナンバー11から14では期待する金属イオンの逆抽出分配比は得られない。

4. 2. 4 ミキサーセトラーにおける金属イオンの抽出計算

前章と同じく、ここでも、ウランの選択抽出工程（1M D2EHDMPA-n.p抽出剤）に対する計算を主に代表例として示し、分配比が常に一定であるとの仮定をおいたシミュレーションと比較し検討した。

(1) 抽出及びスクラブステージの計算

M・Sにおける金属イオンの抽出量計算表（抽出+スクラブステージ）を表 4-9に示す。表 4-9-1及び4-9-2の抽出ステージ及びスクラブステージ入力データ表には比較のために、前出「M・Sにおける酸の抽出計算」と同じ条件を入力した。即ち、有機相、フィード及びスクラブ流量比を4:2:1とし、抽出ステージを10段、スクラブステージを4段とし、フィード及びスクラブ酸濃度を3M硝酸溶液とした。表 4-9-3は抽出ステージの3段から9段及びスクラブステージの2段から3段を、また、交換回数は6回から45回分を省略して示した。マスバランスは45回の交換回数で入力量と出力量が等しくなり、その結果、全てのステージが平衡に到達するのに45回程度の交換回数が必要である。

(2) 逆抽出ステージの計算

M・Sにおける金属イオンの逆抽出計算は逆抽出量計算表を用いて実施するが、前出、表 4-9の抽出量計算表の内、スクラブステージの計算部分と全く同じであるので提示を割愛する。但し、これらの入力データは有機相、水相流量比を2:1とし、逆抽出ステージを7段、逆抽出剤は1M硝酸溶液とした。なお、交換計算はマスバランスが等しくなるまで実施した。

4. 2. 5 ミキサーセトラー各ステージの平衡後金属イオン分布比

(1) ウランの選択抽出工程

(A) U (VI) の挙動

前出、M・Sにおける金属イオンの抽出及び逆抽出量計算表で求めたM・S内各ステージに分布するU (VI) の割合を図 4-10図に示す。横軸のステージナンバー1~10は抽出ステージ、11~14はスクラブステージ、15~21は逆抽出ステージである。縦軸はフィードに含まれるU (VI) の量を1とした時の、M・S内各ステージに分布するU (VI) の割合を示した。なお、比較のためにM・S内の各ステージでU (VI) の分配比が変化しないと仮定したU (VI) の分布割合を白抜き点線で示した。

スクラブステージでの挙動は水相、有機相ともほとんど変わらないが、抽出ステージでは分配比固定計算の結果と分配比補正計算の結果に若干の差が出た。即ち、同じステージ数において、分配比固定計算の結果よりも分配比補正計算の結果の方が抽出率について低

下する結果となるが、分配比補正の計算結果に抽出ステージを更に1段増加することによって分配比固定計算の結果と同等以上の抽出率が得られることがわかった。いいかえれば、分配比固定計算の結果から得られたステージ数に、更に1段の抽出ステージを増加することにより、目的とする抽出率が得られる事となる。

逆抽出ステージでの挙動は、水相、有機相とも逆抽出ステージ（ステージナンバー16～21）で分配比固定計算結果と分配比補正計算結果にU（VI）の分布割合で約2.75倍の差が出た。これは逆抽出の最初のステージ（ステージナンバー15）の水相酸濃度が1.00M硝酸溶液であるべき所、1.43M硝酸溶液となり、それに伴いU（VI）の分配比が0.104から0.2455に上昇したためである。しかし、抽出ステージと同じく、逆抽出ステージを1段のみ増加することによって目的とする逆抽出率を得る事ができる。

(B) Np（VI）の挙動

ウランの選択抽出工程において、M・S内各ステージに分布するNp（VI）の割合を図4-11に示す。スクラブステージと抽出ステージにおいては分配比固定計算結果と分配比補正計算結果に大きな差は無かった。また、Np（VI）はU（VI）と比較して、金属イオンの分配比が若干低いのでスクラブステージでの水相金属イオンの割合が高く、また、抽出ステージでは各ステージの金属イオンの割合の傾きが少ない。その結果、抽出率は分配比固定計算で示した結果と同じく81%程度となった。なお、Np（VI）は本工程においてラフィネートフラクションに移行すべきであるが移行率は19%程度であった。

逆抽出挙動はU（VI）と極めて類似しており、分配比補正計算で逆抽出率が低下する問題も逆抽出ステージを1段増加する方法で解決できる。

(2) 全TRU元素の抽出工程

全TRU元素の抽出工程におけるM・S運転平衡後の各ステージに分布するAm（III）の割合を図4-12に示す。抽出剤の酸による前処理を実施することにより、スクラブステージと抽出ステージにおいて各ステージに分布する金属イオンの割合は分配比固定計算と分配比補正計算の結果に大きな差は無かった。また、抽出率はステージ数、僅か4段で目的の99.99%以上を達成できる。

他方、逆抽出率は分配比固定計算の場合、ステージ数、3段のみで99.999%以上の逆抽出率が得られるが、分配比補正計算ではステージナンバー11から13の3段において逆抽出効果が無く、ステージナンバー14以上のステージで逆抽出効果が得られた。図4-9より、ステージナンバー11から13のステージでは抽出剤に含まれている酸の逆抽出が行われ、水相の酸濃度が上昇する。ちなみに、ステージナンバー11の水相硝酸濃度は2.08Mと高く、図4-3より、Am（III）の分配比は60である。また、ステージナンバー13の水相硝酸濃度は0.62Mで、この時の分配比は1.7と1を超えている。ステージナンバーが増加すると共に水相の硝酸濃度は順次低下し、ステージナンバー14で硝酸濃度は0.234Mとなり、この時、Am（III）の分配比は初めて0.1以下となる。これらの条件下では、有機相（金属イオンを抽出した）が逆抽出条件を満たさないステージを水相と接触しながら単に通過し、逆抽出条件を満たしたステージにおいて水相に金属イオンを放出、継いで、有機相から金属イオンを逆抽出した水相は、再び、前出である逆抽出条件を満たさないステージに流入し、有機相に金属イオンが抽出される。

これらの事象は各ステージの有機相と水相に金属イオンが蓄積する事を示している。図4-12のステージナンバー11から19において、有機相ではステージナンバー13、水相ではステージナンバー14にそれぞれ最大値を持つ線対称型の曲線が得られた。これらの最大値はフィードに対する分布割合で約12,400倍の値を示した。この場合、M・S内で有機相と水相の流速が同値とすると、ステージナンバー13及び14におけるAm(III)の有機相と水相の濃度はフィード濃度に対して12,400倍に濃縮された事となる。実際のM・S運転においては、これらのステージで第3相の生成、不分相、配管閉塞等の不具合発生が憂慮される。特にU、Pu等核燃料物質の取り扱いでは臨界管理等に配慮せねばならない。又、これら、蓄積現象を伴うM・Sの運転では各ステージに金属イオンが蓄積するまでM・Sが平衡に達せず、この場合、ステージナンバー11からの水相中金属イオン流出が無いと仮定しても、フィード量の37,000倍交換しなければ平衡に達しない事がわかった。

これらの問題を総合的に判断すると、全TRU元素の抽出工程全体について改良を加える必要がある。たとえば、スクラブのフィードに対する流量や硝酸濃度の最適値を探索し、超ウラン元素の抽出量と酸の抽出量のバランスを勘案することである。

5. まとめ

M・S型溶媒抽出器を用いて、高レベル廃液中の金属イオンを相互に分離する事を目的とした、アーチストプロセスの各工程について、各種金属イオンの抽出挙動をシミュレーションした結果、以下の所見を得た。

5. 1 分配比一定のシミュレーション結果

(1) ウランの選択抽出工程

U (VI) を99.9%以上抽出するM・Sの運転条件で、第一の分離目的元素であるAmとCmは抽出せず99.999%以上の収率でラフィネートフラクションに移行した。しかし、Np (VI) は約20%ほどラフィネートフラクションに移行するのみで、Uフラクションに81%以上混入した。本工程でNpの4価と5価は100%ラフィネートフラクションに移行するので、本工程の前処理としてNpの原子価調整を実施すれば効率よくU (VI) から分離することができる。或いは、本工程のUフラクションに対して同じくNpの原子価調整を実施し、再度抽出工程を繰り返してもUからの分離が可能である。

(2) 全TRU元素の抽出工程

AmとCmの分配比が極めて高いため、目的とするTRU元素を99.999%以上抽出し、TRU以外の元素を極力抽出しないM・Sの運転条件は、水相と有機相の流量比を5対1とし、更に、抽出ステージ4段と極めて少ないステージ数となった。また、TRUフラクションにTRU以外の元素混入を防ぐため、スクラブステージ数を6段と比較的多くした。このような条件で、TRU元素からの分離目的元素であるSr及びFP元素は99.9%以上の収率でラフィネートフラクションに移行した。しかし、Zrの99.9%以上がTRUフラクションに混入する。本工程で、U (VI) は98%以上抽出されるがウランの選択抽出工程で除去されているので問題とならない。Tcは各フラクションに分配し分離できない。

(3) ストロンチウムの抽出工程

Srを99.99%以上抽出するM・Sの運転条件で、分離目的元素であるBa及びFP元素は抽出せず99.9%以上の収率でラフィネートフラクションに移行した。しかし、Pdの95%以上がSrフラクションに混入する。本工程で、U (VI) 及び、AmとCmは99%以上抽出されるが、前ステージのウランの選択抽出工程及び全TRU元素の抽出工程で分離除去されているので問題とならない。Srと同族のBaを相互に化学分離することは一般的に困難とされているが、本工程で99.99%以上の分離度を得たことは特筆に値する。なお、ここでもTcは各フラクションに分配し分離できない。

5. 2 分配比補正後のシミュレーション結果

(1) 硝酸に対する分配比の大きい抽出剤は逆抽出時の水相酸濃度を上昇させる要因となる。また、 β 値が大きな工程では抽出時の水相酸濃度を低下させる要因となる。

- (2) M・Sの抽出ステージにおいて、抽出剤と水相が最初に接触するステージで、水相の酸濃度が目標とする抽出水相酸濃度より低下するが、M・S内で接触する酸と同等の試薬で、予め抽出剤の前処理を実施することにより、これらの問題は解決できる。
- (3) 酸に対する分配比の大きな抽出剤において、逆抽出ステージでは、目標とする水相酸濃度より、水相の酸濃度が極めて上昇するが、逆抽出ステージ数が増加するに連れて、目標とする酸濃度に近づく。これらの傾向は酸に対する分配比の大きな抽出剤に対して顕著である。
- (4) ウランの選択抽出工程では「分配比一定のシミュレーション結果」で得た抽出ステージ数及び逆抽出ステージ数に抽出ステージ1段、逆抽出ステージ1段を追加することにより、目的と同等以上の抽出及び逆抽出率を担保できる。
- (5) 全TRU元素の抽出工程では逆抽出工程において金属イオンの蓄積現象が認められた。これらの問題を解決するには、スクラブのフィードに対する流量や硝酸濃度の最適値を探索し、超ウラン元素の抽出量と酸の抽出量のバランスを勘案する必要がある。
- (6) Srの抽出工程での分配比補正シミュレーションは実施していないが、抽出剤の硝酸に対する分配比及び β 値がウランの選択抽出工程での抽出剤よりも低い事から、分配比固定のシミュレーション結果のステージ数に抽出ステージ及び逆抽出ステージを共に1段のみ追加すれば、目的とする金属イオンの分離効率を担保できる。

謝 辞

本シミュレーションの遂行に当たり、様々な助言をいただいた、燃料サイクル安全工学部プロセス安全研究室の森田泰治室長に深く感謝いたします。

参考文献

1. M. Benedict, T.H. Pigford, H.W. Levi ; “Nuclear chemical engineering Second edition ” , (1981), McGraw-Hill Book Company.
2. アミド系抽出剤を用いたTRU暫定備蓄を伴う使用済み核燃料処理プロセス
館盛勝一、鈴木伸一、佐々木祐二、 日本原子力学会誌、43, 1235-1241 (2001).
3. Study on Selective Separation of Uranium by N,N-dialkylamide in ARTIST Process,
Shinichi Suzuki, Yuji Sasaki, Tsuyoshi Yaita, Takaumi kimura, Proceedings of
International Conference ATALANTE2004, P1-63,(2004),Nime, France
4. Extraction and separation of Am(III) and Sr(II) by
N,N,N',N'-tetraoctyl-3-oxapentanediamide (TODGA), Suzuki Hideya, Sasaki
Yuji, Sugo Yumi, Apichaibuol Ampika, Kimura Takaumi, Radiochim. Acta 92,
463-466 (2004).
5. Cumulative study on solvent extraction of elements by N,N,N',N' -
tetraoctyl-3-oxapantanediamide (TODGA) from nitric acid into n-dodecane, Zhi-Xuan
Zhu, Yuji Sasaki, Hideya Suzuki, Shinichi Suzuki, Takaumi Kimura,
Anal. Chim. Acta in press

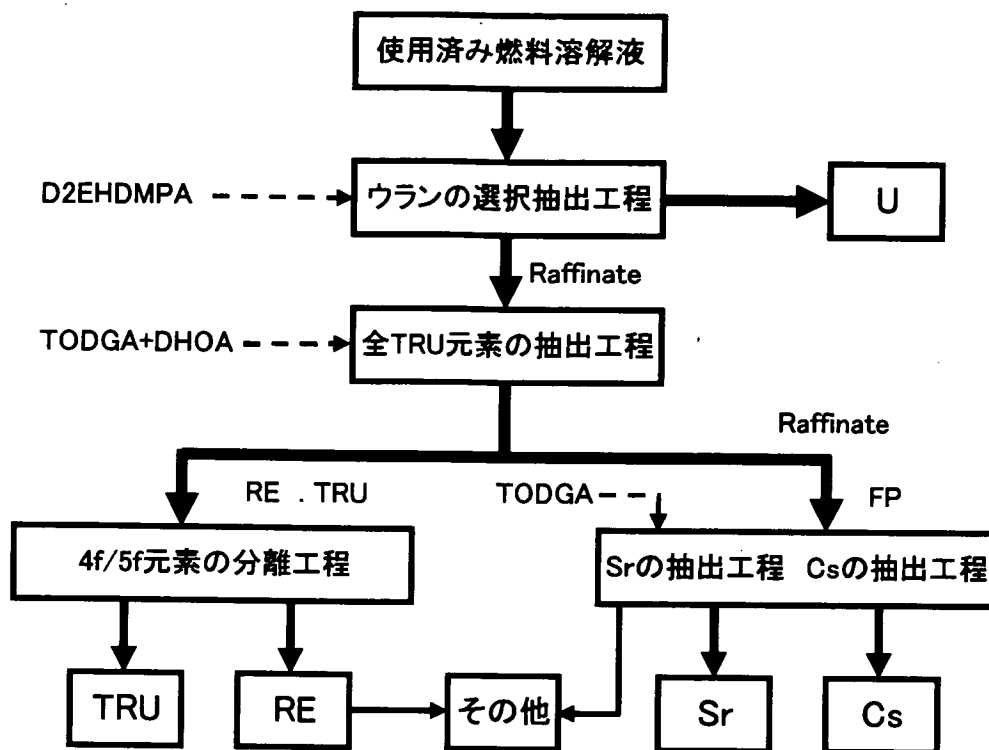
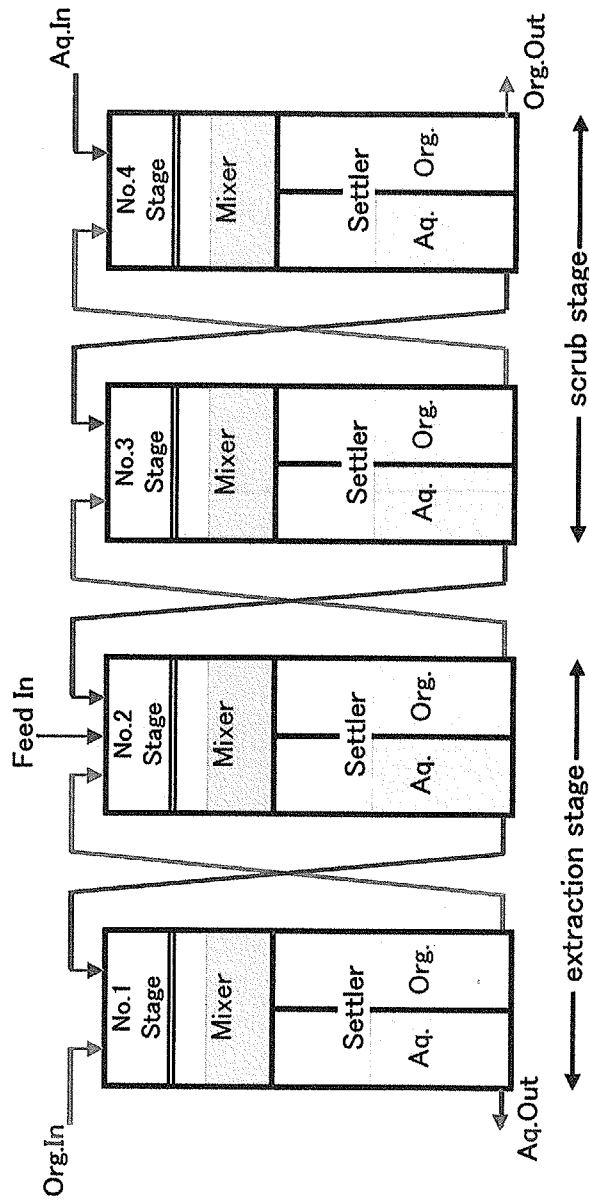


図 1-1 アーチストプロセスのフロー



注記: ① 抽出・スクラブステージ概念図ではStage number 2にFeed液が注入される。
 ② 逆抽出ステージ概念図ではFeed液(Feed In)を削除する。

図 3-1 ミキサーセトラー溶液通過概念図

This is a blank page.

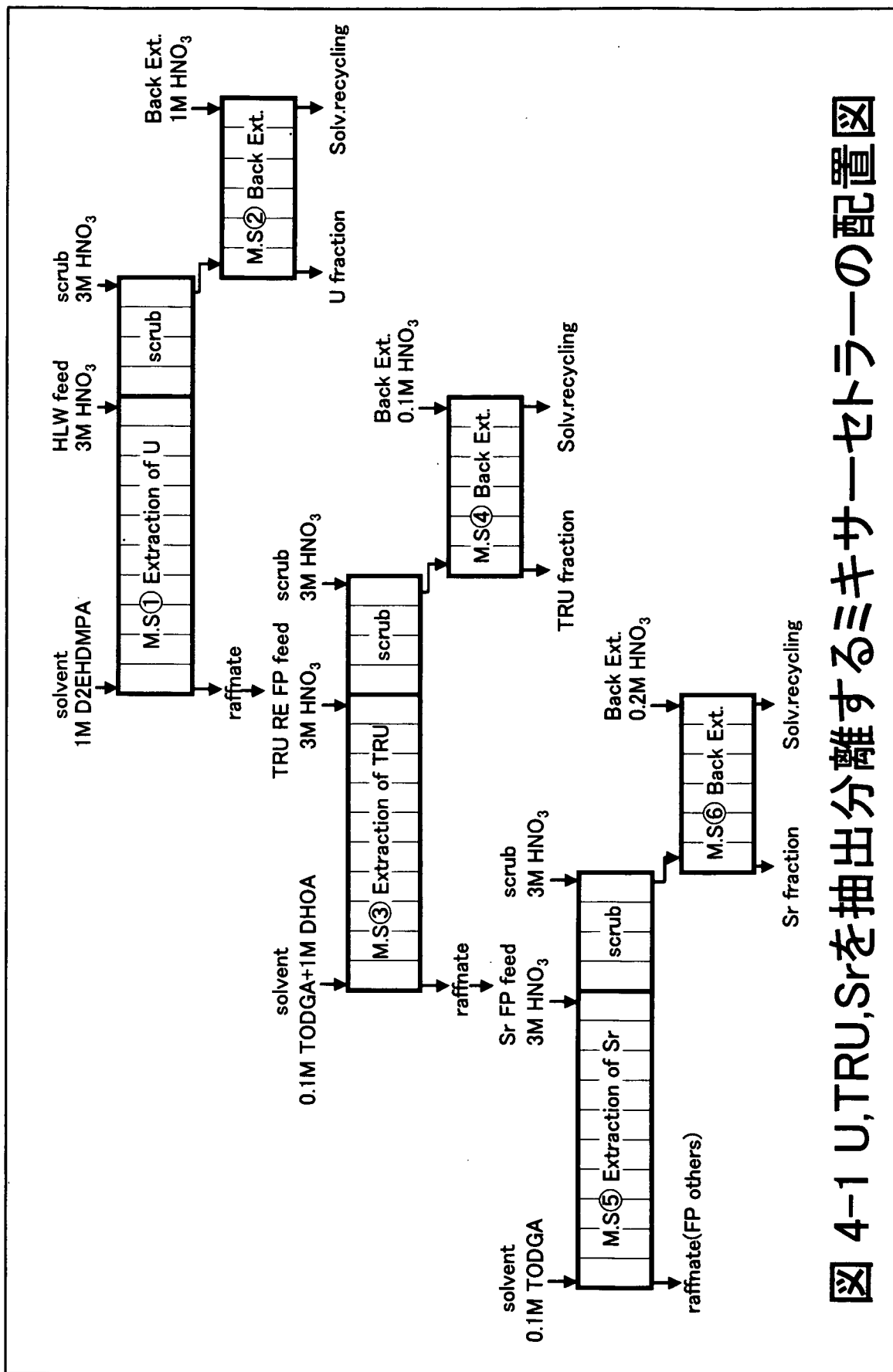


図 4-1 U, TRU, Srを抽出分離するミキサーセトラの配置図

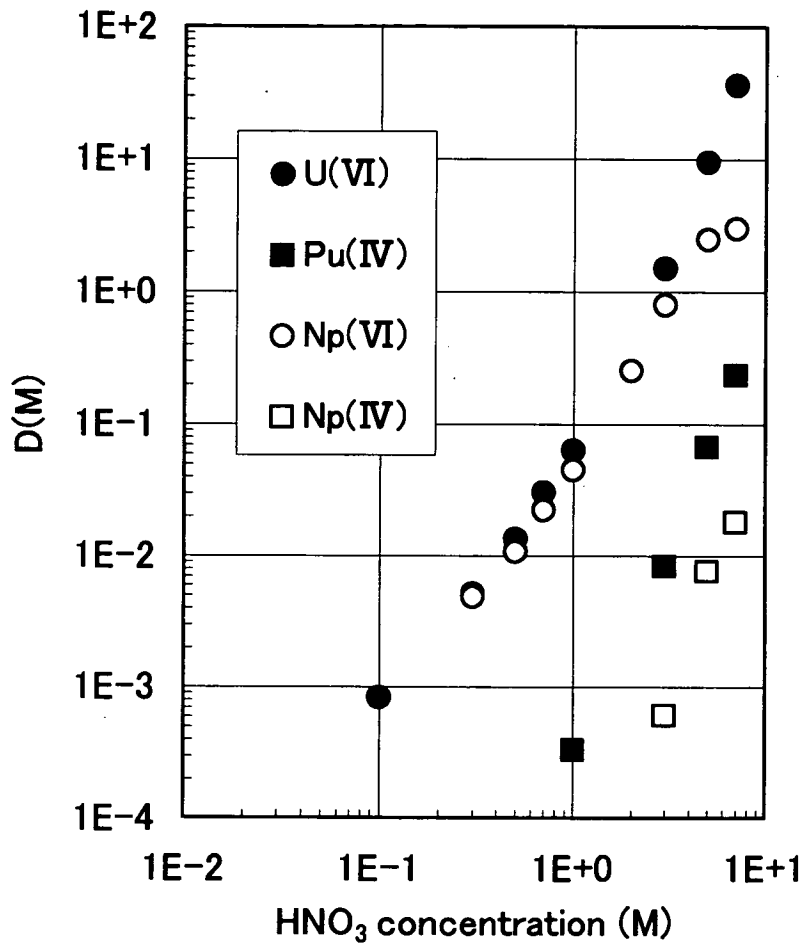


図 4-2 1.0M D2EHDMPA-n.pによる
各種金属イオン抽出分配比の硝酸濃度依存性

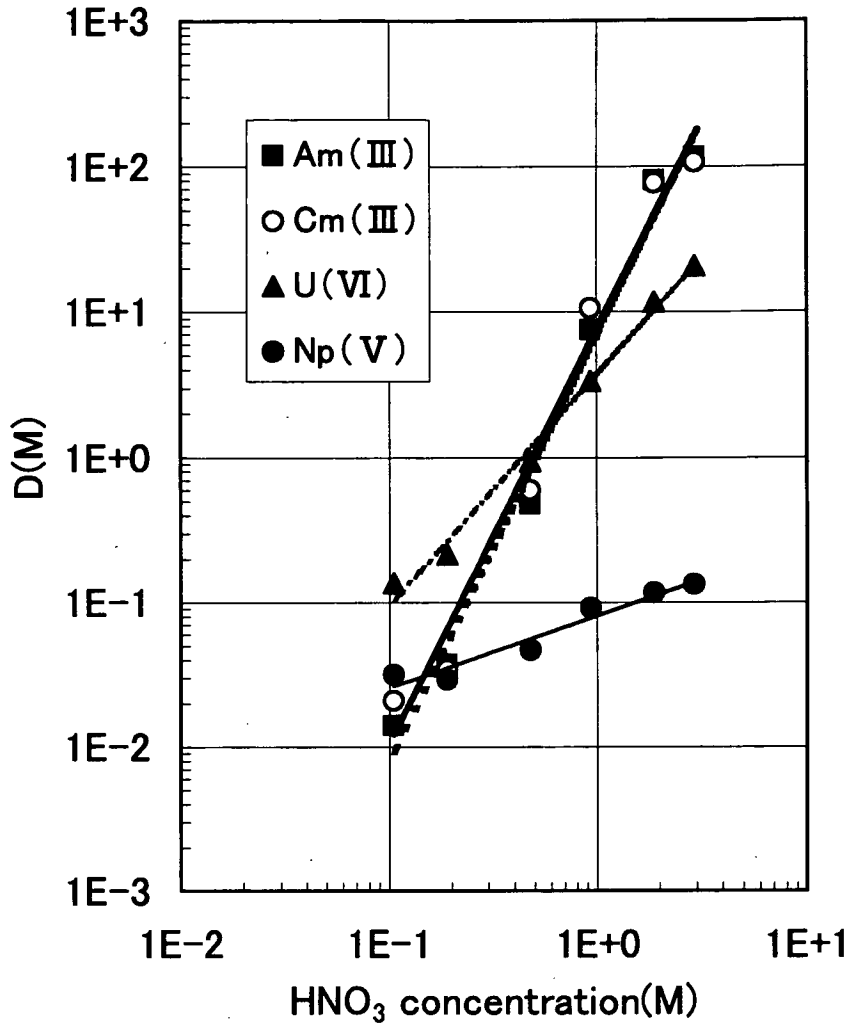


図 4-3 0.1M TODGA+1M DHOA混合系-n.p
 による各種金属イオン抽出分配比の
 硝酸濃度依存性 (その1)

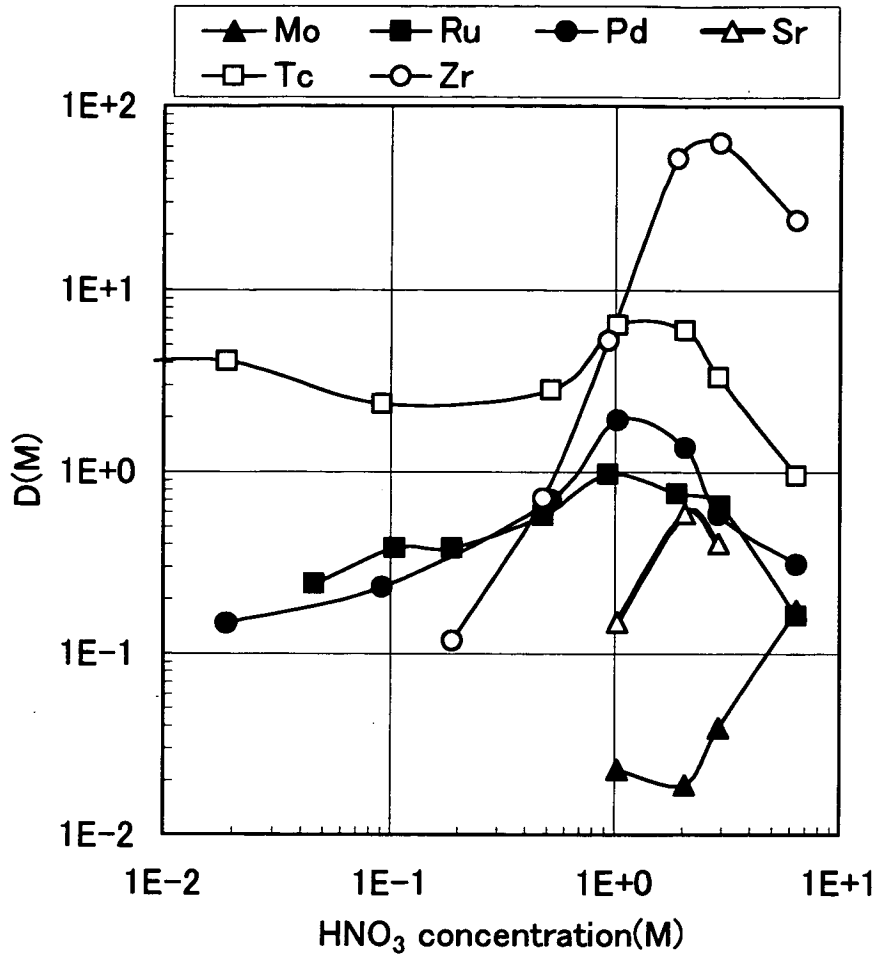


図 4-4 0.1M TODGA+1M DHOA混合系-n.p
 による各種金属イオン抽出分配比の
 硝酸濃度依存性 (その2)

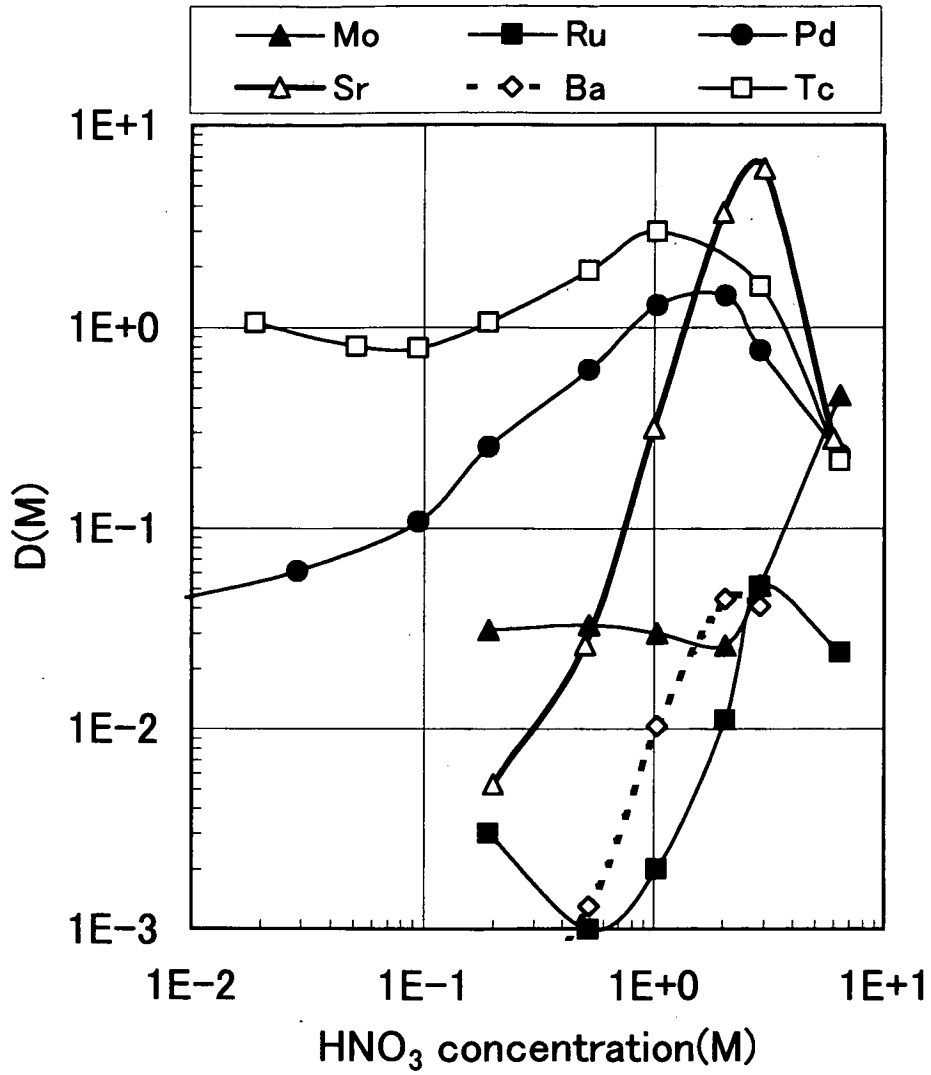


Fig.4-5 0.1M TODGA単独系-n.pによる
各種金属イオン抽出分配比の
硝酸濃度依存性

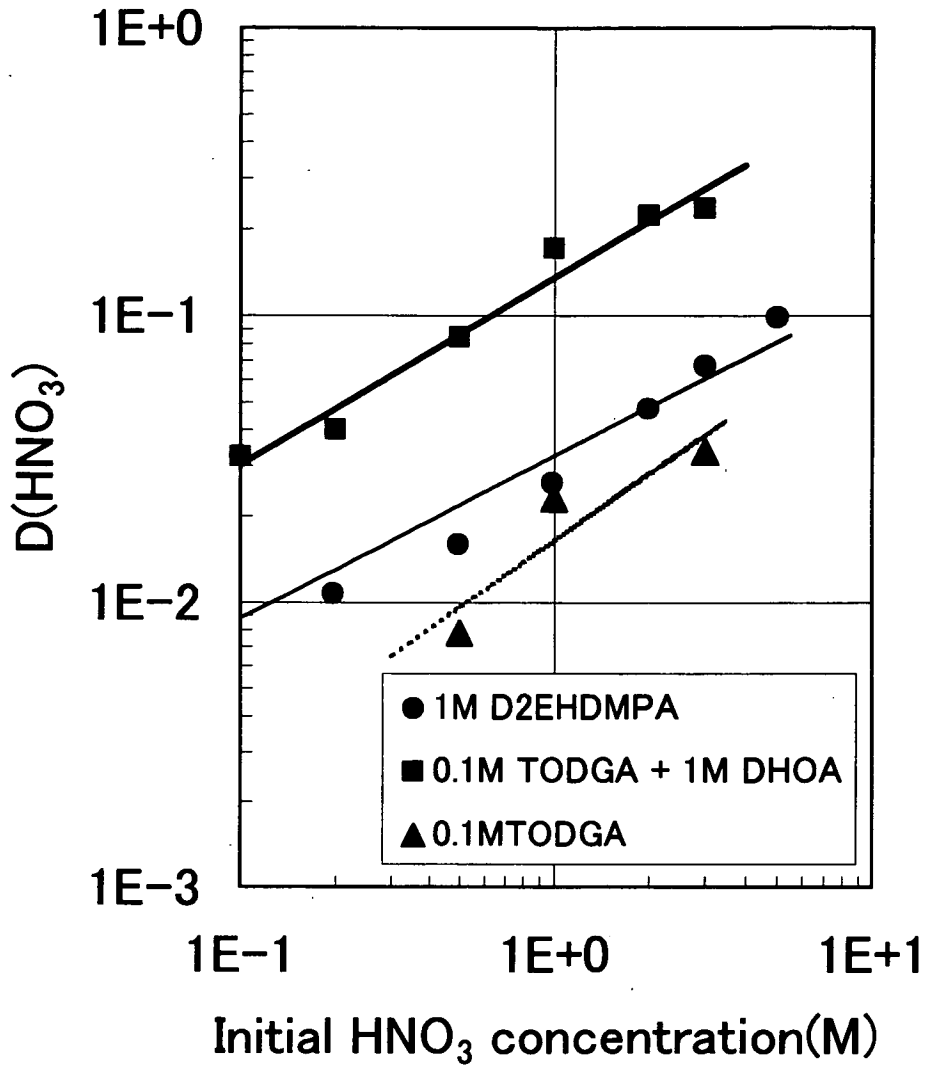


図 4-6 各種抽出剤に対する
酸抽出分配比の初期硝酸濃度依存性

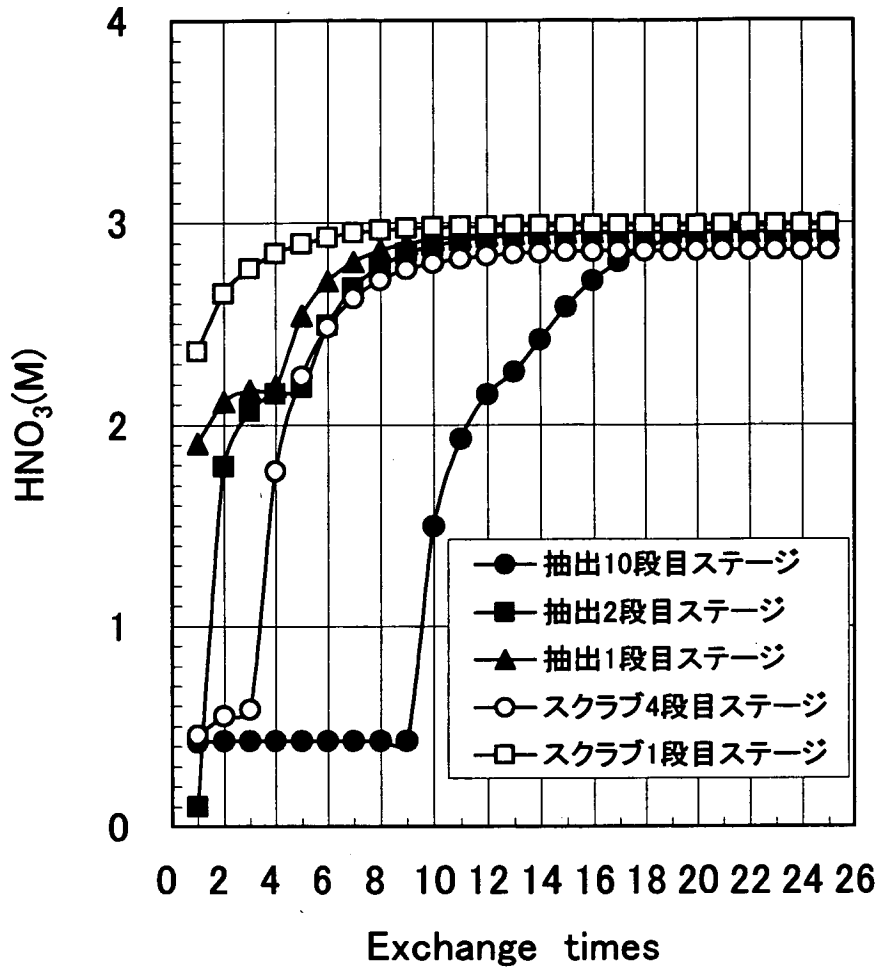


図 4-7 ミキサーセトラ内各ステージの水相硝酸濃度変化

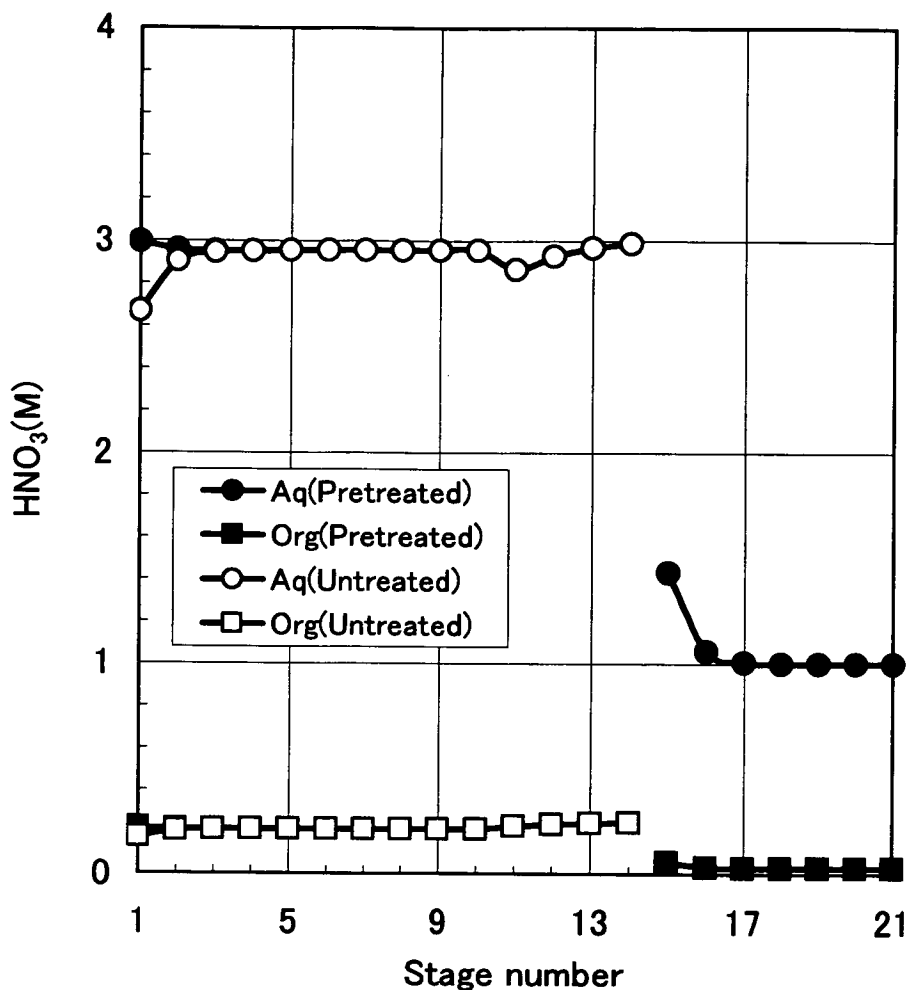


図 4-8 ウランの選択抽出工程における
ミキサーセトラ内の平衡後硝酸濃度分布

Solvent : 1M D2EHDMPA-n.p
 Extraction stage : 10
 Scrub stage : 4
 Back extraction stage : 7

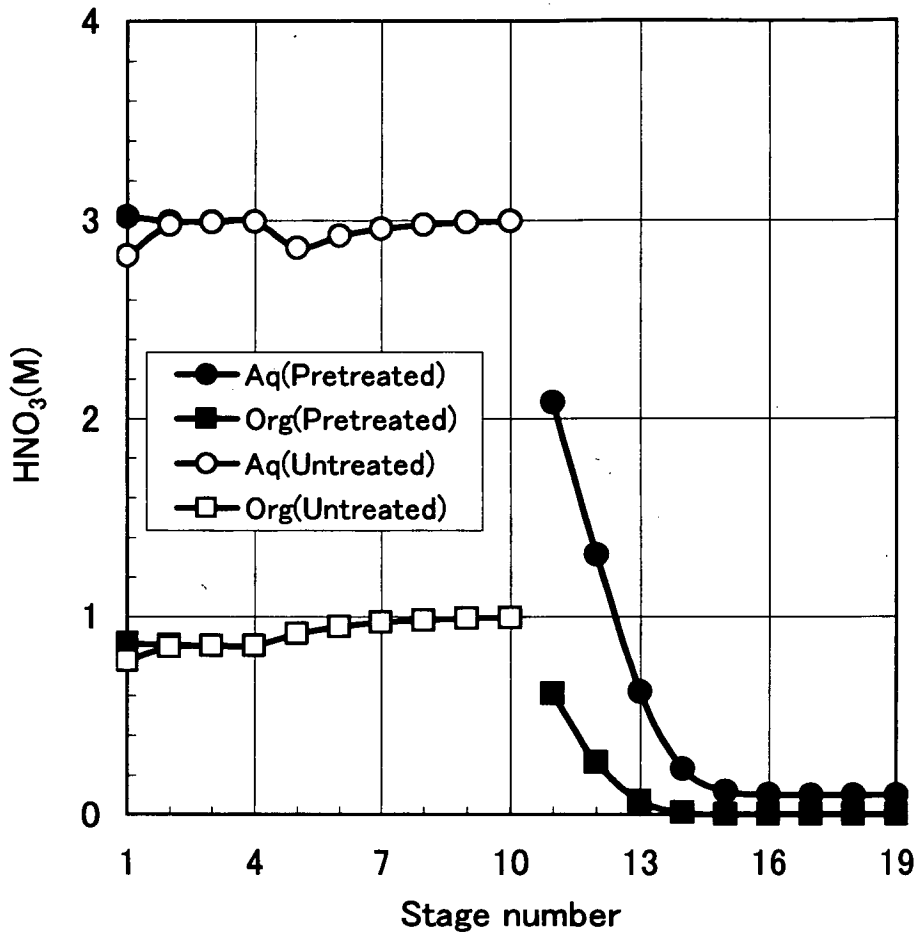


図 4-9 全TRU元素の抽出工程における
ミキサーセトラー内の平衡後硝酸濃度分布

Solvent : 0.1M TODGA+1.0M DHOA-n.p
 Extraction stage : 4
 Scrub stage : 6
 Back extraction stage : 9

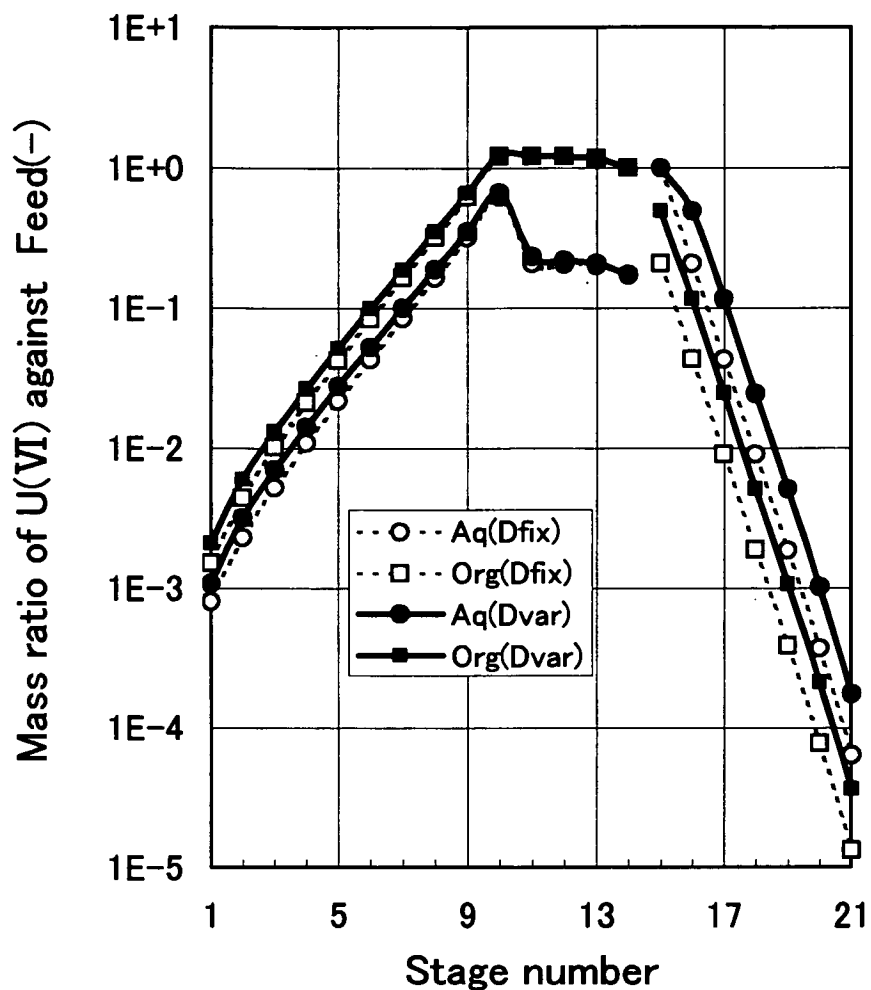


図 4-10 ウランの選択抽出工程における
ミキサーセトラー運転平衡後の
各ステージでのU(VI)の分布比

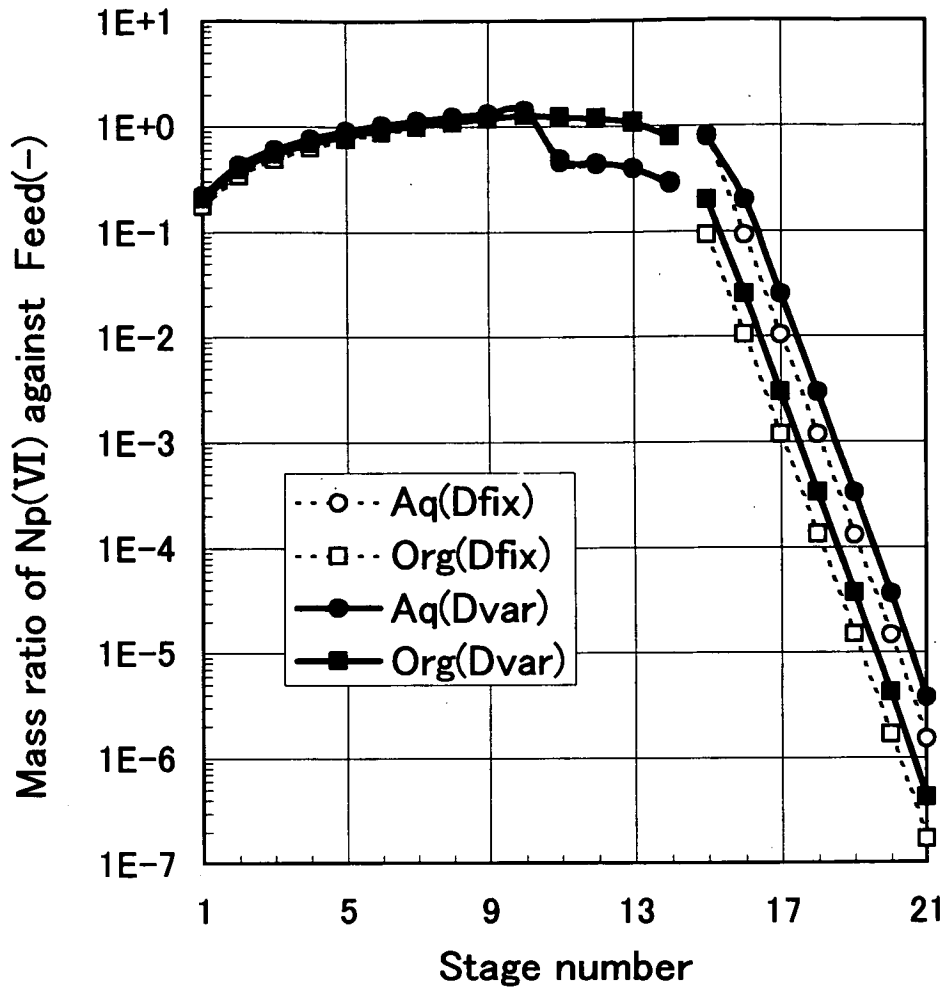


図 4-11 ウランの選択抽出工程における
ミキサーセトラー運転平衡後の
各ステージでのNp(VI)の分布比

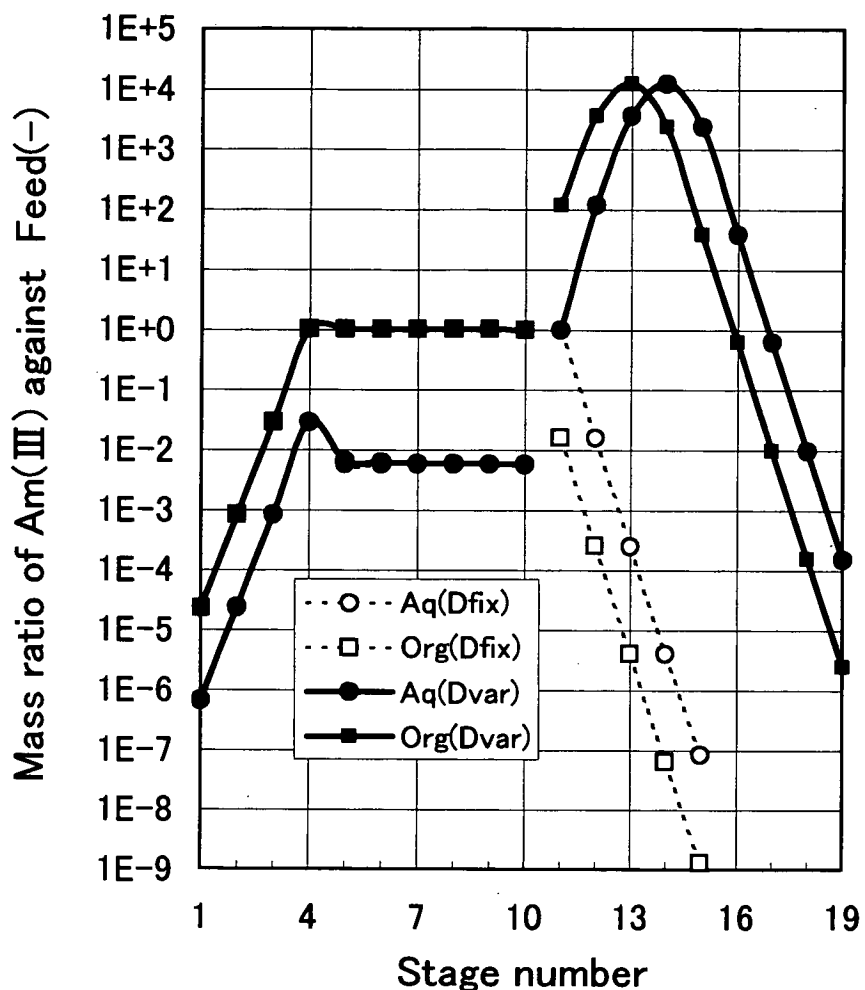


図 4-12 全TRU元素の抽出工程における
ミキサーセトラー運転平衡後の
各ステージでのAm(III)の分布比

表 3-1 記号の凡例

記号	内容	単位	備考
D	分配比	(-)	酸、金属イオンの抽出計算に共通して使用する
V _(o)	有機相流量	(mL/h)	単位の整合を取れば如何なる単位も使用可 酸、金属イオンの抽出計算に共通して使用する
V	水相流量	(mL/h)	
β	移行比	(-)	酸、金属イオンの抽出計算に共通して使用する
N	段数	(-)	
ρ _(E)	抽出される割合	(-)	
ρ _(B)	逆抽出される割合	(-)	
T.acid	セルに流入する酸量	(mol)	酸の抽出計算に使用する
M _(F)	フイード液酸濃度	(M)	
InAq	セルに流入する水相酸濃度	(M)	
InOrg	セルに流入する有機相酸濃度	(M)	
Init.Aq	水相のみと仮定した酸濃度	(M)	
α Aq	水相への酸、金属イオン移行割合	(-)	
α Org	有機相への酸、金属イオン移行割合	(-)	
OutAq	平衡後水相酸濃度	(M)	
OutOrg	平衡後有機相酸濃度	(M)	
T.metal	セルに流入する金属イオンの割合	(-)	
InMAq	セルに流入する水相金属イオンの割合	(-)	金属イオンの抽出計算に使用する
InMOrg	セルに流入する有機相金属イオンの割合	(-)	
OutMAq	平衡後水相金属イオンの割合	(-)	
OutMOrg	平衡後有機相金属イオンの割合	(-)	

注記 : 計算のステージを明示するため、記号の末尾にスクラップステージでは(S)、抽出ステージでは(E)、フイードステージでは(F)、逆抽出ステージでは(B)を付した。

This is a blank page.

表 3-2 酸分配挙動計算表 (抽出ステージ、フィードステージ及びスクラブステージ)

Stage number		1		2		3		4		Stage No.
Character of phase		Aq _(E) 1	Org _(E) 1	Aq _{(E)2} (Aq _(F))	Org _{(E)2} (Org _(F))	Aq _(S) 1	Org _(S) 1	Aq _(S) 2	Org _(S) 2	Character of phase
No. of times	Acidity (Initial of M.S)*			1①-In Aq _(E)		2①-In Aq _(F)		3①-In Aq _(S)		4①-In Aq _(S)
①	1①-In Org _(E)	1①-Init.Aq _(E)	1①-D _(E)	2①-Init.Aq _(F)	2①-D _(F)	3①-Init.Aq _(S)	3①-D _(S)	4①-Init.Aq _(S)	4①-D _(S)	
		1①-Out Aq _(E)	1①-Out Org _(E)	2①-Out Aq _(F)	2①-Out Org _(F)	3①-Out Aq _(S)	3①-Out Org _(S)	4①-Out Aq _(S)	4①-Out Org _(S)	4②-In Aq _(S)
②		1②-Init.Aq _(E)	1②-D _(E)	2②-Init.Aq _(F)	2②-D _(F)	3②-Init.Aq _(S)	3②-D _(S)	4②-Init.Aq _(S)	4②-D _(S)	
		1②-Out Aq _(E)	1②-Out Org _(E)	2②-Out Aq _(F)	2②-Out Org _(F)	3②-Out Aq _(S)	3②-Out Org _(S)	4②-Out Aq _(S)	4②-Out Org _(S)	4③-In Aq _(S)
③		1③-Init.Aq _(E)	1③-D _(E)	2③-Init.Aq _(F)	2③-D _{(F)④}	3③-Init.Aq _(S)	3③-D _(S)	Continue	Continue	Continue
		1③-Out Aq _(E)	1③-Out Org _(E)	2③-Out Aq _(F)	2③-Out Org _(F)	3③-Out Aq _(S)	3③-Out Org _(S)	"	"	"
④		1④-Init.Aq _(E)	1④-D _(E)	Continue	Continue	"	"	"	"	"
		1④-Out Aq _(E)	1④-Out Org _(E)	"	"	"	"	"	"	"
⑤		Continue	Continue	"	"	"	"	"	"	"
"		"	"	"	"	"	"	"	"	"
"		"	"	"	"	"	"	"	"	"
⑩		1⑩-Init.Aq _(E)	1⑩-D _(E)	2⑩-Init.Aq _(F)	2⑩-D _(F)	3⑩-Init.Aq _(S)	3⑩-D _(S)	4⑩-Init.Aq _(S)	4⑩-D _(S)	
		1⑩-Out Aq _(E)	1⑩-Out Org _(E)	2⑩-Out Aq _(F)	2⑩-Out Org _(F)	3⑩-Out Aq _(S)	3⑩-Out Org _(S)	4⑩-Out Aq _(S)	4⑩-Out Org _(S)	

注記 : Acidity (Initial of M.S)* = ミキサ—セトラ—初期状態の各ステージ水相酸濃度(M)

This is a blank page.

表 3-3 詳細酸分配挙動計算表

Stage number	1		2		3		4	
	Aq ^(E) 1	Org ^(E) 1	Aq ^(E) 2 (Aq ^(F))	Org ^(E) 2 (Org ^(F))	Aq ^(S) 1	Org ^(S) 1	Aq ^(S) 2	Org ^(S) 2
Number of times								
Character of phase								
Acidity (Initial of M.S)*								
①	shorten				3①-Init.Aq(s)	3①-D(s)	3①-In Aq(s)	
					3①-Out Aq(s)	3①-Out Org(s)	4①-Init.Aq(s)	
					2②-In Aq(F)	4①-In Org(s)		
②	shorten				2②-Init.Aq(F)			

注記 : Acidity (Initial of M.S)* = ミキサーセトラ初期状態の各ステージ水相酸濃度(M)

This is a blank page.

表 3-4 セルに導入する計算式のまとめ (酸抽出)

No.	フィードステージ
1	$T.acid_{(F)} = (InOrg_{(F)} \times V_{(O)}) + (InAq_{(F)} \times V_{(S)}) + (M_{(F)} \times V_{(F)})$
2	$Init.Aq_{(F)} = T.acid_{(F)} / (V_{(S)} + V_{(F)})$
3	$D_{(F)} = \text{function}(Init.Aq_{(F)})$
4	$\beta_{(F)} = D_{(F)} \times V_{(O)} / (V_{(S)} + V_{(F)})$
5	$\alpha Aq_{(F)} = (V_{(S)} + V_{(F)}) / (D_{(F)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$
6	$OutAq_{(F)} = T.acid_{(F)} / (D_{(F)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$
7	$\alpha Org_{(F)} = (D_{(F)} \times V_{(O)}) / (D_{(F)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$
8	$OutOrg_{(F)} = (D_{(F)} \times T.acid_{(F)}) / (D_{(F)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$

No.	スクラブステージ
1	$T.acid_{(S)} = (InOrg_{(S)} \times V_{(O)}) + (InAq_{(S)} \times V_{(S)})$
2	$Init.Aq_{(S)} = T.acid_{(S)} / V_{(S)}$
3	$D_{(S)} = \text{function}(Init.Aq_{(S)})$
4	$\beta_{(S)} = D_{(S)} \times (V_{(O)} / V_{(S)})$
5	$\alpha Aq_{(S)} = V_{(S)} / (D_{(S)} \times V_{(O)} + V_{(S)})$
6	$OutAq_{(S)} = T.acid_{(S)} / (D_{(S)} \times V_{(O)} + V_{(S)})$
7	$\alpha Org_{(S)} = (D_{(S)} \times V_{(O)}) / (D_{(S)} \times V_{(O)} + V_{(S)})$
8	$OutOrg_{(S)} = (D_{(S)} \times T.acid_{(S)}) / (D_{(S)} \times V_{(O)} + V_{(S)})$

No.	逆抽出ステージ
1	$T.acid_{(B)} = (InOrg_{(B)} \times V_{(O)}) + (InAq_{(B)} \times V_{(S)})$
2	$Init.Aq_{(B)} = T.acid_{(B)} / V_{(B)}$
3	$D_{(B)} = \text{function}(Init.Aq_{(B)})$
4	$\beta_{(B)} = D_{(B)} \times (V_{(O)} / V_{(B)})$
5	$\alpha Aq_{(B)} = V_{(B)} / (D_{(B)} \times V_{(O)} + V_{(B)})$
6	$OutAq_{(B)} = T.acid_{(B)} / (D_{(B)} \times V_{(O)} + V_{(B)})$
7	$\alpha Org_{(B)} = (D_{(B)} \times V_{(O)}) / (D_{(B)} \times V_{(O)} + V_{(B)})$
8	$OutOrg_{(B)} = (D_{(B)} \times T.acid_{(B)}) / (D_{(B)} \times V_{(O)} + V_{(B)})$

No.	抽出ステージ
1	$T.acid_{(E)} = (InOrg_{(E)} \times V_{(O)}) + (InAq_{(E)} \times (V_{(S)} + V_{(F)}))$
2	$Init.Aq_{(E)} = T.acid_{(E)} / (V_{(S)} + V_{(F)})$
3	$D_{(E)} = \text{function}(Init.Aq_{(E)})$
4	$\beta_{(E)} = D_{(E)} \times V_{(O)} / (V_{(S)} + V_{(F)})$
5	$\alpha Aq_{(E)} = (V_{(S)} + V_{(F)}) / (D_{(E)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$
6	$OutAq_{(E)} = T.acid_{(E)} / (D_{(E)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$
7	$\alpha Org_{(E)} = (D_{(E)} \times V_{(O)}) / (D_{(E)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$
8	$OutOrg_{(E)} = (D_{(E)} \times T.acid_{(E)}) / (D_{(E)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$

This is a blank page.

表 3-5 金属イオン分配挙動計算表(抽出ステージ、フィードステージ及びスクラブステージ)

Stage number	1		2		3		4		Stage No.
平衡水相酸濃度 (M)	1-Out Aq(E)		2-Out Aq(F)		3-Out Aq(s)		4-Out Aq(s)		(M)
金属イオン分配比 (D)	D(E)		D(F)		D(s)		D(s)		(D)
移行比 (β)	$\beta(E)$		$\beta(F)$		$\beta(s)$		$\beta(s)$		(β)
移行割合 (α)	α Aq(E)	α Org(E)	α Aq(F)	α Org(F)	α Aq(s)	α Org(s)	α Aq(s)	α Org(s)	(α)
Character of phase	Aq(E) 1	Org(E) 1	Aq (F)	Org(F)	Aq(s) 1	Org(s) 1	Aq(s) 2	Org(s) 2	Character of phase
No. of times Conc. of metal ion (Initial of M.S)*									
①	1①-OutMAq(E)	1①-OutMORG(E)	1①-InMAq(S)	2①-OutMORG(F)	2①-InMAq(S)	3①-OutMORG(s)	3①-InMAq(S)	4①-OutMORG(s)	4①-InMAq(s)
②	1②-OutMAq(E)	1②-OutMORG(E)	2②-OutMAq(F)	2②-OutMORG(F)	3②-OutMAq(s)	3②-OutMORG(s)	4②-OutMAq(s)	4②-OutMORG(s)	4②-InMAq(s)
③	1③-OutMAq(E)	1③-OutMORG(E)	2③-OutMAq(F)	2③-OutMORG(F)	3③-OutMAq(s)	3③-OutMORG(s)	4③-OutMAq(s)	4③-OutMORG(s)	4③-InMAq(s)
④	1④-OutMAq(E)	1④-OutMORG(E)	Continue	Continue	Continue	Continue	Continue	Continue	Continue
⑤	Continue	Continue	Continue	Continue	Continue	Continue	Continue	Continue	Continue
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼
⑩	1⑩-OutMAq(E)	1⑩-OutMORG(E)	2⑩-OutMAq(F)	2⑩-OutMORG(F)	3⑩-OutMAq(s)	3⑩-OutMORG(s)	4⑩-OutMAq(s)	4⑩-OutMORG(s)	4⑩-InMAq(s)

注記 : Conc. of metal ion (Initial of M.S)* = ミキサーセトラ初期状態の各ステージ水相金属イオン濃度

This is a blank page.

表 3-6 セルに導入する計算式のまとめ(金属イオン抽出)

No.	スクラブステージ	フィードステージ
1	$T.\text{metal}_{(S)} = \text{InMOrg}_{(S)} + \text{InMAq}_{(S)}$	$T.\text{metal}_{(F)} = \text{InMOrg}_{(F)} + \text{InMAq}_{(F)} + 1$
2	$D_{(S)} = \text{function}(\text{OutAq}_{(S)})$	$D_{(F)} = \text{function}(\text{OutAq}_{(F)})$
3	$\beta_{(S)} = D_{(S)} \times V_{(O)} / V_{(S)}$	$\beta_{(F)} = D_{(F)} \times V_{(O)} / (V_{(S)} + V_{(F)})$
4	$\alpha \text{Aq}_{(S)} = V_{(S)} / (D_{(S)} \times V_{(O)} + V_{(S)})$	$\alpha \text{Aq}_{(F)} = (V_{(S)} + V_{(F)}) / (D_{(F)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$
5	$\text{OutMAq}_{(S)} = (V_{(S)} \times T.\text{metal}_{(S)}) / (D_{(S)} \times V_{(O)} + V_{(S)})$	$\text{OutMAq}_{(F)} = (V_{(S)} + V_{(F)}) \times T.\text{metal}_{(F)} / (D_{(F)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$
6	$\alpha \text{Org}_{(S)} = (D_{(S)} \times V_{(O)}) / (D_{(S)} \times V_{(O)} + V_{(S)})$	$\alpha \text{Org}_{(F)} = (D_{(F)} \times V_{(O)}) / (D_{(F)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$
7	$\text{OutMOrg}_{(S)} = (D_{(S)} \times V_{(O)} \times T.\text{metal}_{(S)}) / (D_{(S)} \times V_{(O)} + V_{(S)})$	$\text{OutMOrg}_{(F)} = (D_{(F)} \times V_{(O)} \times T.\text{metal}_{(F)}) / (D_{(F)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$

No.	抽出ステージ	逆抽出ステージ
1	$T.\text{metal}_{(E)} = \text{InMOrg}_{(E)} + \text{InMAq}_{(E)}$	$T.\text{metal}_{(B)} = \text{InMOrg}_{(B)} + \text{InMAq}_{(B)}$
2	$D_{(E)} = \text{function}(\text{OutAq}_{(E)})$	$D_{(B)} = \text{function}(\text{OutAq}_{(B)})$
3	$\beta_{(E)} = D_{(E)} \times V_{(O)} / (V_{(S)} + V_{(F)})$	$\beta_{(B)} = D_{(B)} \times (V_{(O)} / V_{(B)})$
4	$\alpha \text{Aq}_{(E)} = (V_{(S)} + V_{(F)}) / (D_{(E)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$	$\alpha \text{Aq}_{(B)} = V_{(B)} / (D_{(B)} \times V_{(O)} + V_{(B)})$
5	$\text{OutMAq}_{(E)} = (V_{(S)} + V_{(F)} \times T.\text{metal}_{(E)}) / (D_{(E)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$	$\text{OutMAq}_{(B)} = (V_{(B)} \times T.\text{metal}_{(B)}) / (D_{(B)} \times V_{(O)} + V_{(B)})$
6	$\alpha \text{Org}_{(E)} = (D_{(E)} \times V_{(O)}) / (D_{(E)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$	$\alpha \text{Org}_{(B)} = (D_{(B)} \times V_{(O)}) / (D_{(B)} \times V_{(O)} + V_{(B)})$
7	$\text{OutMOrg}_{(E)} = (D_{(E)} \times V_{(O)} \times T.\text{metal}_{(E)}) / (D_{(E)} \times V_{(O)} + (V_{(S)} + V_{(F)}))$	$\text{OutMOrg}_{(B)} = (D_{(B)} \times V_{(O)} \times T.\text{metal}_{(B)}) / (D_{(B)} \times V_{(O)} + V_{(B)})$

表 4-1 向流接触抽出計算式に入力する分配比(D)のデータ

抽出剤 硝酸(水相)	ウランの選択抽出工程		全TRU元素の抽出工程		Srの抽出工程	
	1M D2EHDMPA 抽出(3M)	逆抽(1M)	0.1M TODGA+1MDHOA 抽出(3M)	逆抽(0.1M)	0.1M TODGA 抽出(3M)	逆抽(0.2M)
Sr	—	—	4.03E-01	1.00E-03	6.00E+00	7.00E-03
Zr	—	—	6.31E+01	4.00E-02	—	—
Mo	—	—	3.90E-02	2.00E-02	5.50E-02	3.10E-02
Tc	—	—	3.50E+00	2.50E+00	1.70E+00	1.10E+00
Ru	—	—	6.50E-01	3.80E-01	5.50E-02	3.00E-03
Pd	—	—	6.00E-01	2.20E-01	7.50E-01	2.70E-01
Ba	—	—	—	—	4.11E-02	<1.00E-03
FP	<1.00E-02	<1.00E-02	—	—	—	—
U(VI)	1.45E+00	1.04E-01	2.11E+01	1.30E-01	5.50E+00	2.00E-02
Np(IV)	<1.00E-02	<1.00E-02	—	—	—	—
Np(V)	—	—	1.38E-01	3.00E-02	1.30E-01	<1.00E-03
Np(VI)	6.94E-01	5.64E-02	—	—	—	—
Pu(IV)	1.00E-02	3.20E-04	—	—	>1.00E+03	3.00E+00
Am(III)	—	—	1.74E+02	8.00E-03	>1.00E+03	1.42E-01
Cm(III)	—	—	1.75E+02	1.05E-02	>1.00E+03	1.80E-01

表 4-2 ウランの選択抽出工程でのミキサ-セトラ-運転シミュレーション

表 4-2-1 抽出運転条件表

試薬	流量(ml/h)	ステージ	段数
有機相 1M D2EHMPA-np (抽出剤)	200	抽出	10
フィード 3M 硝酸(含SF)	100	---	---
スクラブ 3M 硝酸	50	スクラブ	4

表 4-2-2 抽出計算表

核種	抽出段 分配比	スクラブ段 分配比	抽出 移行比	スクラブ 移行比	抽出される 割合 ρ
	$D_{(E)}$	$D_{(S)}$	$\beta_{(E)}$	$\beta_{(S)}$	
U(VI)	1.45E+00	1.45E+00	1.94E+00	5.82E+00	0.99922329
Np(IV)	1.00E-02	1.00E-02	1.33E-02	4.00E-02	0.00000003
Np(VI)	6.94E-01	6.94E-01	9.25E-01	2.78E+00	0.81134361
Pu(IV)	1.00E-02	1.00E-02	1.33E-02	4.00E-02	0.00000003
Main FP	1.00E-02	1.00E-02	1.33E-02	4.00E-02	0.00000003

表 4-2-3 逆抽出運転条件表

試薬	流量(ml/h)
有機相 1M D2EHMPA-np	200
逆抽出剤 1M 硝酸	100
逆抽出段数 ステージ	7

表 4-2-4 逆抽出計算表

核種	分配比	逆抽出 移行比	逆抽出される 割合 $\rho_{(E)}$
	$D_{(E)}$	$\beta_{(E)}$	
U(VI)	1.04E-01	2.08E-01	0.99998666
Np(IV)	1.00E-02	2.00E-02	1.00000000
Np(VI)	5.64E-02	1.13E-01	0.99999979
Pu(IV)	3.20E-04	6.40E-04	1.00000000
Main FP	1.00E-02	2.00E-02	1.00000000

表 4-3 全TRU元素の抽出工程でのミキサ-セトラ-運転シミュレーション

表 4-3-1 抽出運転条件表

試薬		流量(ml/h)	ステージ	段数
有機相	0.1M TODGA+1MDHQA-np (抽出剤)	100	抽出	4
フィード	3M 硝酸(含TRU-FP)	400	---	---
スクラブ	3M 硝酸	100	スクラブ	6

表 4-3-3 逆抽出運転条件表

試薬		流量(ml/h)
有機相	0.1M TODGA+1MDHQA-np	100
逆抽出剤	0.1M 硝酸	50
逆抽出段数	ステージ	3

表 4-3-2 抽出計算表

核種	抽出段 分配比	スクラブ段 分配比	抽出 移行比	スクラブ 移行比	抽出される 割合 ρ
	$D_{(E)}$	$D_{(S)}$	$\beta_{(E)}$	$\beta_{(S)}$	
Sr	4.03E-01	4.03E-01	8.06E-02	4.03E-01	0.00022453
Zr	6.31E+01	6.31E+01	1.26E+01	6.31E+01	0.99996312
Mo	3.90E-02	3.90E-02	7.80E-03	3.90E-02	0.00000000
Tc	3.50E+00	3.50E+00	7.00E-01	3.50E+00	0.55882941
Ru	6.50E-01	6.50E-01	1.30E-01	6.50E-01	0.00412934
Pd	6.00E-01	6.00E-01	1.20E-01	6.00E-01	0.00261079
U(VI)	2.11E+01	2.11E+01	4.22E+00	2.11E+01	0.99747807
Np(V)	1.38E-01	1.38E-01	2.77E-02	1.38E-01	0.0000017
Am(III)	1.74E+02	1.74E+02	3.49E+01	1.74E+02	0.99999934
Cm(III)	1.75E+02	1.75E+02	3.50E+01	1.75E+02	0.99999935

表 4-3-4 逆抽出計算表

核種	分配比	逆抽出 移行比	逆抽出される 割合 $\rho_{(B)}$
	$D_{(B)}$	$\beta_{(B)}$	
Sr	1.00E-03	2.00E-03	0.999999999
Zr	4.00E-02	8.00E-02	0.99952894
Mo	2.00E-02	4.00E-02	0.99993856
Tc	2.50E+00	5.00E+00	0.19871795
Ru	3.80E-01	7.60E-01	0.84190024
Pd	2.20E-01	4.40E-01	0.95043938
U(VI)	1.30E-01	2.60E-01	0.98693405
Np(V)	3.00E-02	6.00E-02	0.99979696
Am(III)	8.00E-03	1.60E-02	0.99999597
Cm(III)	1.05E-02	2.10E-02	0.99999093

表 4-4 Srの抽出工程でのミキサセトラー運転シミュレーション

表 4-4-1 抽出運転条件表

試薬		流量(ml/h)	ステージ	段数
有機相	0.1M TODGA-np (抽出剤)	100	抽出	7
フィード	3M 硝酸(含Sr-FP)	100	---	---
スクラブ	3M 硝酸	50	スクラブ	4

表 4-4-3 逆抽出運転条件表

試薬		流量(ml/h)
有機相	0.1M TODGA-np	100
逆抽出剤	0.2M 硝酸	50
逆抽出段数	ステージ	4

表 4-4-2 抽出計算表

核種	抽出段 分配比	スクラブ段 分配比	抽出 移行比	スクラブ 移行比	抽出される 割合 ρ
	$D_{(E)}$	$D_{(S)}$	$\beta_{(E)}$	$\beta_{(S)}$	
Sr	6.00E+00	6.00E+00	4.00E+00	1.20E+01	0.99995006
Mo	5.50E-02	5.50E-02	3.67E-02	1.10E-01	0.00000496
Tc	1.70E+00	1.70E+00	1.13E+00	3.40E+00	0.89393576
Ru	5.50E-02	5.50E-02	3.67E-02	1.10E-01	0.00000496
Pd	1.00E+02	7.50E-01	6.67E+01	1.50E+00	1.00000000
Ba	4.11E-02	4.11E-02	2.74E-02	8.22E-02	0.00000118
U(VI)	5.50E+00	5.50E+00	3.67E+00	1.10E+01	0.99991022
Np(V)	1.30E-01	1.30E-01	8.67E-02	2.60E-01	0.00032116
Pu(IV)	1.00E+03	1.00E+03	6.67E+02	2.00E+03	1.00000000
Am(III)	1.00E+03	1.00E+03	6.67E+02	2.00E+03	1.00000000
Cm(III)	1.00E+03	1.00E+03	6.67E+02	2.00E+03	1.00000000

表 4-4-4 逆抽出計算表

核種	分配比	逆抽出 移行比	逆抽出される 割合 $\rho_{(B)}$
	$D_{(B)}$	$\beta_{(B)}$	$\rho_{(B)}$
Sr	7.00E-03	1.40E-02	0.99999996
Mo	3.10E-02	6.20E-02	0.99998614
Tc	1.10E+00	2.20E+00	0.44375214
Ru	3.00E-03	6.00E-03	1.00000000
Pd	2.70E-01	5.40E-01	0.95900353
Ba	1.00E-03	2.00E-03	1.00000000
U(VI)	2.00E-02	4.00E-02	0.99999754
Np(V)	1.00E-03	2.00E-03	1.00000000
Pu(IV)	3.00E+00	6.00E+00	0.16655949
Am(III)	1.42E-01	2.84E-01	0.99533352
Cm(III)	1.80E-01	3.60E-01	0.98918506

表 4-5 各ミキサセトラー運転シミュレーションの結果

高レベル廃液中の各核種量を100(%)として入力した場合の、各ミキサセトラーフラクションの核種分布割合(%)

運転条件	ウランの選択抽出工程			全TRU元素の抽出工程			Srの抽出工程		
	Raff.	U frac.	Solvent	Raff.	TRU frac.	Solvent	Raff.	Sr frac.	Solvent
有機相流量		200 ml/h	0.000	99.978	0.022	0.000	0.005	99.995	0.000
フィード流量		100 ml/h	0.000	0.004	99.949	0.047	—	—	—
スクラブ流量		50 ml/h	0.000	100.000	0.000	0.000	100.000	0.000	0.000
逆抽剤流量		100 ml/h	0.000	44.117	11.105	44.778	10.606	39.669	49.725
抽出段数		10 Stage	0.000	99.587	0.348	0.065	100.000	0.000	0.000
スクラブ段数		4 Stage	0.000	99.739	0.248	0.013	0.000	95.900	4.100
逆抽出段数		7 Stage	0.000	100.000	0.000	0.000	100.000	0.000	0.000
分布割合				0.252	98.445	1.303	0.009	99.991	0.000
Sr	100.000	0.000	0.000	—	—	—	—	—	—
Zr	100.000	0.000	0.000	100.000	0.000	0.000	99.968	0.032	0.000
Mo	100.000	0.000	0.000	—	—	—	—	—	—
Tc	100.000	0.000	0.000	—	—	—	0.000	16.656	83.344
Ru	100.000	0.000	0.000	0.000	100.000	0.000	0.000	99.533	0.467
Pd	100.000	0.000	0.000	0.000	—	—	0.000	98.919	1.081
Ba	100.000	0.000	0.000	—	—	—	—	—	—
U(VI)	0.078	99.921	0.001	—	—	—	—	—	—
Np(IV)	100.000	0.000	0.000	—	—	—	—	—	—
Np(V)	100.000	0.000	0.000	—	—	—	—	—	—
Np(VI)	18.866	81.134	0.000	—	—	—	—	—	—
Pu(IV)	100.000	0.000	0.000	—	—	—	—	—	—
Am(III)	100.000	0.000	0.000	0.000	100.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Cm(III)	100.000	0.000	0.000	0.000	99.999	0.001	0.000	0.000	0.000

表 4-6 向流接触抽出計算式によるシミュレーションの結果

各核種量を100(%)として入力した場合の、ミキサセトラから流出する各核種の分布割合(%)

分布割合	ウランの選択抽出工程		全TRU元素の抽出工程		Srの抽出工程		
	U frac.	Solvent	TRU frac.	Solvent	Raff.	Sr frac.	Solvent
Sr	0.000	0.000	0.022	0.000	0.005	99.973	0.000
Zr	0.000	0.000	99.949	0.047	—	—	—
Mo	0.000	0.000	0.000	0.000	100.000	0.000	0.000
Tc	0.000	0.000	11.105	44.778	4.679	17.501	21.937
Ru	0.000	0.000	0.348	0.065	99.587	0.000	0.000
Pd	0.000	0.000	0.248	0.013	0.000	95.650	4.089
Ba	0.000	0.000	0.000	0.000	100.000	0.000	0.000
U(VI)	99.921	0.001	0.076	0.001	0.000	0.000	0.000
Np(IV)	0.000	0.000	—	—	—	—	—
Np(V)	0.000	0.000	0.000	0.000	99.968	0.032	0.000
Np(VI)	81.134	0.000	—	—	—	—	—
Pu(IV)	0.000	0.000	—	—	—	—	—
Am(III)	0.000	0.000	100.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Cm(III)	0.000	0.000	99.999	0.001	0.000	0.000	0.000

表 4-7 ミキサーセトラーにおける酸の抽出量計算表(抽出+スクラブステージ)

工程名: ウランの選択抽出

抽出剤: 1M D2EHDMPA-np バッチ法で求めた硝酸分配比計算式: $D=0.0324 \times (\text{Init. acid (M)})^{0.5682}$

表 4-7-1 抽出ステージ入力データ表

抽出ステージ数	N(E)	10	段
フィード硝酸濃度	M(F)	3	M
フィード流量	V(F)	100	ml/h
有機相硝酸濃度	M(O)	0.2463	M
有機相流量	V(O)	200	ml/h

表 4-7-2 スクラブステージ入力データ表

スクラブステージ数	N(S)	4	段
スクラブ硝酸濃度	M(S)	3	M
スクラブ流量	V(S)	50	ml/h
有機相流量	V(O)	200	ml/h

表 4-7-3 酸抽出計算表

Number of Times	Org In		Aq(E)10		Org(E)10	
	Aq Out	Org Out	Aq(E)10	Org(E)10	Aq(E)10	Org(E)10
1	0.2463	0.2463	0.1000	0.4284	0.0162	0.0162
2	0.2463	0.2463	0.4194	0.0068	0.0164	0.0164
3	0.2463	0.2463	0.4269	0.0070	0.0164	0.0164
	0.2463	0.2463	0.4366	0.0164	0.0164	0.0164
	0.2463	0.2463	0.4273	0.0070	0.0164	0.0070

Number of Times	Aq(E)2		Org(E)2		Aq(E)In		Org(E)		Aq(S)4		Org(S)4	
	Aq(E)2	Org(E)2	Aq(E)2	Org(E)2	Aq(E)In	Aq(E)	Org(E)	Aq(S)4	Org(S)4	Aq(S)4	Org(S)4	
1	0.1000	0.1011	0.0081	0.0509	0.1000	0.4876	0.0176	0.1000	0.4876	0.0176	0.0176	
2	0.1000	0.1000	0.0008	0.0969	1.9052	0.5553	0.0201	0.4556	0.0080	0.0080	0.0080	
3	1.9063	0.0484	0.0969	0.0553	2.2674	0.5553	0.0201	0.5942	0.0201	0.0201	0.0201	
4	1.7908	0.0866	0.0866	0.1167	2.1118	0.1167	0.0111	0.5500	0.0111	0.0111	0.0111	
5	2.2156	0.0543	0.0543	0.0565	2.3329	0.0565	0.0209	0.6302	0.0209	0.0209	0.0209	
6	2.0660	0.1122	0.1122	0.1225	2.1696	0.1225	0.0122	0.5815	0.0122	0.0122	0.0122	

Number of Times	Aq(S)1		Org(S)1		Aq In		Org In		
	Aq(S)1	Org(S)1	Aq In	Org In	Aq Out	Org Out	Aq Out	Org Out	
1	0.1000	3.0033	0.1000	0.0681	3.0000	0.1000	3.0000	0.1000	3.0000
2	2.3607	0.1607	2.3607	0.0749	3.0000	2.3607	0.1607	3.0000	2.3607
3	3.4397	0.0749	3.4397	0.1982	3.0000	3.4397	0.0749	3.0000	3.4397
4	2.6469	0.1982	2.6469	0.0777	3.0000	2.6469	0.1982	3.0000	2.6469
5	3.6330	0.0777	3.6330	0.2154	3.0000	3.6330	0.0777	3.0000	3.6330
6	2.7714	0.2154	2.7714	0.0824	3.0000	2.7714	0.0824	3.0000	2.7714

表 4-7-4 マスバランス表

	In-Put			Out-Put		
	V(ml/h)	Acid(M)	V X M	V(ml/h)	Acid(M)	V X M
Org	200	0.2463	49.26	200	0.2463	49.25
Aq(F)	100	3.0000	300.00	150	2.9940	449.10
Aq(S)	50	3.0000	150.00			
Mass(mmol/h)			499.26			498.35

表 4-8 ミキサーセトラーにおける酸の逆抽出量計算表(逆抽出ステージ)

工程名:ウランの選択抽出
 抽出剤:1M D2EHDMPA-mp バッチ法で求めた硝酸分配比計算式: $D=0.0324 \times (\text{Init. acid (M)})^{0.5682}$

表 4-8-1 逆抽出段入力データ表

逆抽出ステージ数	N _(B)	7 段	有機相硝酸濃度	M _(O)	M
逆抽出硝酸濃度	M _(B)	1	有機相流量	V _(O)	200 ml/h
逆抽出硝酸流量	V _(B)	100			

表 4-8-2 酸逆抽出計算表

Time	7			6			5			2			1		
	B _{Org} In	A _{q(B)} 7	Org _(B) 7	A _{q(B)} 6	Org _(B) 6	A _{q(B)} 5	Org _(B) 5	A _{q(B)} 2	Org _(B) 2	A _{q(B)} 1	Org _(B) 1	A _q In	OrgOut		
1	0.2463	1.0000	0.04068	1.0000	0.03442	1.0000	0.033699	1.0000	0.033621	1.0000	0.03362	1.0000	1.0000		
		1.4926	0.0562	1.112301	0.0358	1.071639	0.0338	1.067245	0.0336	1.067241	0.0336	1.067241	1.0000		
2	0.2463	1.3803	0.0413	1.0407	0.0346	1.0040	0.0337	1.0000	0.0336	1.0000	0.0336	1.0000	1.0000		
		1.5333	0.0585	1.1210	0.0362	1.0729	0.0337	1.0672	0.0336	1.0672	0.0336	1.0672	1.0000		
	0.2463	1.4163	0.0585	1.0485	0.0362	1.0051	0.0339	1.0000	0.0336	1.0000	0.0336	1.0000	1.0000		
23		1.5436	0.0415	1.1237	0.0346	1.0734	0.0337	1.0672	0.0336	1.0672	0.0336	1.0672	1.0000		
	0.2463	1.4254	0.0591	1.0510	0.0364	1.0055	0.0339	1.0000	0.0336	1.0000	0.0336	1.0000	1.0000		
24		1.5436	0.0415	1.1237	0.0346	1.0734	0.0337	1.0672	0.0336	1.0672	0.0336	1.0672	1.0000		
	0.2463	1.4254	0.0591	1.0510	0.0364	1.0055	0.0339	1.0000	0.0336	1.0000	0.0336	1.0000	1.0000		
25		1.5436	0.0415	1.1237	0.0346	1.0734	0.0337	1.0672	0.0336	1.0672	0.0336	1.0672	1.0000		
	0.2463	1.4254	0.0591	1.0510	0.0364	1.0055	0.0339	1.0000	0.0336	1.0000	0.0336	1.0000	1.0000		

表 4-8-3 マスバランス表

In-Put			Out-Put		
V(ml/h)	Acid(M)	V X M	V(ml/h)	Acid(M)	V X M
200	0.2463	49.26	200	0.0308	6.16
100	1	100	100	1.4311	143.11
Mass(mmol/h)		149.26	Mass(mmol/h)		149.27

表 4-9 ミキサーセトラーにおける金属イオンの抽出量計算表(抽出+スクラブステージ)

工程名:ウランの選択抽出

抽出剤: 1M D2EHMPA-np 解析核種: U(VI) バッチ法で求めたU(VI)の分配比計算式 $D = 0.104 * (\text{acid}(M))^{2.4014}$

表 4-9-1 抽出ステージ入力データ表

抽出ステージ数	N(E)	10	段
フィード硝酸濃度	M(F)	3	M
フィード流量	V(F)	100	ml/h
有機相流量	V(O)	200	ml/h

表 4-9-2 スクラブステージ入力データ表

スクラブステージ数	N(S)	4	段
スクラブ硝酸濃度	M(S)	3	M
スクラブ流量	V(S)	50	ml/h
有機相流量	V(O)	200	ml/h

表 4-9-3 金属イオン抽出計算表

抽出ステージ数(N)	10	1	4	1	(N)	
平衡後水相濃度(M)	3.0002	2.9544	2.8633	2.9874	(M)	
分配比(D)	1.4550	1.40223	1.30063	1.44013	(D)	
移行比(β)	1.93994874	1.869635906	1.869635906	5.76053534	(β)	
移行割合(α)	0.3401	0.3485	0.6515	0.1479	0.8521	(α)
Time	Aq(E)10	Org(E)10	Aq(S)4	Org(S)1	Aq In	
1	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	
2	0.0000	0.0000	0.3485	0.6515	0.3348	
3	0.0000	0.0000	0.1214	0.2270	0.0996	
4	0.0000	0.0000	0.1893	0.3540	0.1247	
5	0.0000	0.0000	0.2323	0.4343	0.1398	
	0.2614	0.4887	0.5870	1.0974	0.2059	
					1.0714	
46	0.0000	0.0011	0.6595	1.2331	0.2342	
47	0.0000	0.0011	0.6595	1.2331	0.2342	
48	0.0000	0.0011	0.6595	1.2331	0.2342	
49	0.0000	0.0011	0.6595	1.2331	0.2342	
50	0.0000	0.0011	0.6595	1.2331	0.2342	

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
工率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光度	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10⁻¹⁹J
1 u=1.66054×10⁻²⁷kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バール	bar
ガール	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10⁻¹⁰m
1 b=100fm²=10⁻²⁸m²
1 bar=0.1MPa=10⁵Pa
1 Gal=1cm/s²=10⁻²m/s²
1 Ci=3.7×10¹⁰Bq
1 R=2.58×10⁻⁴C/kg
1 rad=1cGy=10⁻²Gy
1 rem=1cSv=10⁻²Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1 eVおよび1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- E C閣僚理事会指令では bar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s(=10⁵ dyn·s/cm²)=10 P(ポアズ)(g/(cm·s))
動粘度 1 m²/s=10⁴ St(ストークス)(cm²/s)

圧	MPa(=10bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 ⁻⁴	1.35951×10 ⁻³	1.31579×10 ⁻³	1	1.93368×10 ⁻²
	6.89476×10 ⁻³	7.03070×10 ⁻²	6.80460×10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 ⁻⁷	0.238889	9.47813×10 ⁻⁴	0.737562	6.24150×10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407×10 ⁻⁶	2.34270	9.29487×10 ⁻³	7.23301	6.12082×10 ¹⁹
	3.6×10 ⁶	3.67098×10 ⁵	1	8.59999×10 ⁵	3412.13	2.65522×10 ⁶	2.24694×10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279×10 ⁻⁶	1	3.96759×10 ⁻³	3.08747	2.61272×10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072×10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515×10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616×10 ⁻⁷	0.323890	1.28506×10 ⁻³	1	8.46233×10 ¹⁸
	1.60218×10 ⁻¹⁹	1.63377×10 ⁻²⁰	4.45050×10 ⁻²⁶	3.82743×10 ⁻²⁰	1.51857×10 ⁻²²	1.18171×10 ⁻¹⁹	1

1 cal= 4.18605J (計量法)
= 4.184J (熱化学)
= 4.1855J (15°C)
= 4.1868J (国際蒸気表)
仕事率 1 PS(仏馬力)
= 75 kgf·m/s
= 735.499W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 ⁻¹¹
	3.7×10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

ARTISTプロセスにおける元素分離シミュレーションー表計算による向流抽出器の分離シミュレーションー

R100

古紙配合率100%再生紙を使用しています