

# 高レベル廃液からの アクチニド分離プロセスの研究

(共同研究報告書)

2002年3月

核燃料サイクル開発機構  
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地 4 9  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2002

## 高レベル廃液からのアクチニド分離プロセスの研究 (共同研究報告書)

駒 義和\*、青嶋 厚\*、森田 泰治\*\*、館盛 勝一\*\*

### 要 旨

本レポートは、核燃料サイクル開発機構（サイクル機構）と日本原子力研究所（原研）との間で、「高レベル廃液からのアクチニド分離プロセスの研究」のテーマのもと、平成10年9月より平成14年3月末までの3年半の間実施した共同研究の成果をまとめたものである。共同研究の目的は、サイクル機構で開発中のTRUEX / SETFICSプロセス及び原研で開発中のDIDPA抽出プロセスのそれぞれのアクチニド分離プロセスについて総合的な評価を行って、共通的な課題を抽出し、効率的なプロセスの開発に資することにある。

評価検討により共通的な課題を抽出した結果、アクチニド分離の主工程は異なっているが、廃溶媒の処理やDTPA廃液の処理等の分離後の処理、溶媒リサイクル等の副次的な工程では多くの共通的な課題が存在することが明らかになった。工学実証規模に移すための共通的な開発要件としては、これらの課題を解決すると共に、副次的な工程を含むプロセス全体についてある程度の規模で一貫した試験を実施することが必要であると結論した。さらに、プロセス全体について高い視点から評価すると、経済性向上と二次廃棄物発生量低減の2項目が重要であり、これらを念頭に置いた上で、より合理的で効率的なアクチニド分離プロセス開発のため、今後も継続して研究開発を推進することが必要である。

\* 東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進再処理技術開発グループ

\*\* 日本原子力研究所

## Studies on Actinide Separation Process from High-level Liquid Waste (Document on Collaborative Study)

Yoshikazu KOMA<sup>\*</sup>, Atsushi AOSHIMA<sup>\*</sup>, Yasuji MORITA<sup>\*\*</sup> and Shoichi TACHIMORI<sup>\*\*</sup>

### Abstract

The present report describes the results of a joint study between Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC) and Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) on actinide separation process from high-level liquid waste, which was performed for three and half years from September, 1998 to March, 2002. The purpose of the joint study is to point out common subjects in process development by an overall evaluation of each actinide separation process: TRUEX/SETFICS Process studied in JNC and DIDPA Extraction Process studied in JAERI. This would contribute to more effective process development.

The result of the evaluation showed that both processes have common subjects to be studied in sub-processes such as treatment step for spent solvent or DTPA waste solution and solvent washing step for recycling, although the main process for actinide separation is different from each other. In the way to the demonstration of both processes in an engineering scale, it is necessary to develop the sub-processes and to test the whole process including the sub-processes. Two essential requirements in the process development are the cost reduction and the minimization of secondary wastes. Future continuing research and development should be performed for more rational and effective actinide separation process so as to fulfill these requirements as much as possible.

\* Tokai Works, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Advanced Fuel Recycle Technology Division, Recycle Process Technology Group

\*\* Japan Atomic Energy Research Institute

## 目 次

|                        |    |
|------------------------|----|
| 1. はじめに                | 1  |
| 2. DIDPA 抽出分離法の開発成果と課題 | 2  |
| 2.1 研究開発の現状            | 2  |
| 2.1.1 目的               | 2  |
| 2.1.2 処理対象及び分離目標       | 2  |
| 2.1.3 分離プロセスの概要        | 2  |
| 2.1.4 これまでの成果          | 3  |
| 2.1.5 技術的到達度           | 7  |
| 2.2 今後の見通し及び課題         | 7  |
| 3. SETFICS 法の開発成果と課題   | 9  |
| 3.1 研究開発の現状            | 9  |
| 3.1.1 目的               | 9  |
| 3.1.2 処理対象及び分離目標       | 9  |
| 3.1.3 分離プロセスの概要        | 10 |
| 3.1.4 これまでの成果          | 10 |
| 3.1.5 技術的到達度           | 14 |
| 3.2 今後の見通し及び課題         | 14 |
| 4. おわりに                | 18 |
| 5. 参考文献                | 19 |

## 1. はじめに

核燃料サイクル開発機構（サイクル機構）と日本原子力研究所（原研）とは、「高レベル廃液からのアクチニド分離プロセスの研究」のテーマのもと、平成10年9月より平成14年3月末までの3年半の間、共同研究を実施した。本共同研究の目的は、サイクル機構及び原研でそれぞれ開発中のアクチニド分離プロセスの総合的な評価に基づき、共通的な課題を抽出し、共同研究を実施することによって効率的なプロセスの開発に資することにある。

担当部署は、サイクル機構側が東海事業所 先進リサイクル研究開発部 先進再処理技術開発グループ（開始当初は動力炉核燃料開発事業団 東海事業所 再処理技術開発部 アクチニドプロセス・分析開発室）、原研側が東海研究所 物質科学研究部 抽出分離化学研究グループ（開始当初は燃料研究部 群分離研究室）である。

共同研究の具体的な内容は、「アクチニド分離法の比較評価」と「希土類元素からのアクチニド分離法比較評価研究」に分けられた。前者では、情報交換を通じ、原研で進められているDIDPAプロセス及びサイクル機構で進められているTRUEX / SETFICSプロセスについて相互評価を行い、アクチニド分離プロセス開発に求められる必要条件及びそれぞれの技術的課題等を整理して、これによりアクチニド分離プロセスを工学実証規模に移すための共通的な開発要件を抽出・整理することとした。後者の「希土類元素からのアクチニド分離法比較評価研究」に関しては、アクチニド元素の核変換処理を行うために不可欠の、Am及びCmの希土類元素からの分離について、原研はDIDPA溶媒からのDTPAによる逆抽出法を、サイクル機構はCMPO-TBP混合溶媒からのDTPAによる逆抽出法（SETFICSプロセス）を、それぞれ研究開発している。共同研究では、これらの方法について、アクチニドと希土類元素との分離に影響する因子について検討を行うこととした。

本報告書は、以上のサイクル機構 - 原研共同研究「高レベル廃液からのアクチニド分離プロセスの研究」の成果をまとめたものである。

## 2 . DIDPA 抽出分離法の開発成果と課題

### 2.1 研究開発の現状

#### 2.1.1 目的

原研における群分離の研究は1973年(昭和48年)頃から開始され、1984年(昭和59年)にかけて、高レベル廃液に含まれる元素を、超ウラン元素(TRU)群、Sr-Cs群及びその他の元素群の3群に分離するプロセスの研究開発を実施した<sup>1),2)</sup>。TRU群の分離には、ジイソデシルリン酸(DIDPA: diisodecylphosphoric acid)<sup>3),4)</sup>による抽出分離プロセスを独自に開発して適用することとし、研究開発を進めた。また、3群群分離プロセスでは、3価のアクチニド(An(3))とランタニドの分離に陽イオン交換法を適用した。

1985年(昭和60年)頃からは、3群群分離プロセスの研究開発及び評価の結果を受け、Np及びTcの分離に重点を置き、Tc-白金族元素群を新たな分離元素群として加えた4群群分離プロセスの開発を開始した。ここでもTRU群の分離にDIDPA抽出法を適用することとし、特にNpの分離手法開発に重点を置いて研究を行った。また、An(3)とLnの分離についても、連続操作が可能な方法として、DIDPAからの逆抽出の段階で両者を分離する方法について研究した。

DIDPA抽出分離プロセス開発の目的は、濃縮高レベル廃液より、すべてのTRU元素(Np, Pu, Am, Cm)を高い回収率で分離する手法を確立することである。さらに、高レベル廃液中のアクチニドでは最も存在量の多いU (DIDPAに抽出される)や、核分裂生成物等を定量的に逆抽出し、溶媒の再利用が可能なプロセスとする点にも重点を置いた。

#### 2.1.2 処理対象及び分離目標

処理対象は、硝酸濃度2Mの濃縮高レベル廃液とした。但し、DIDPAにより高レベル廃液からAm及びCmを抽出するには、高レベル廃液中の硝酸濃度を約0.5Mに調整することが必要である。このため、脱硝による前処理法を開発した。

分離目標としては、4群群分離プロセスの開発当初は、Np 99.95%, Pu 99.9%, Am 99.99%, Cm 99.9%を設定した<sup>5)</sup>が、原研での分離核変換サイクルにおけるマイナーアクチニド(MA:Np, Am, Cm)の処理率の目標値は99.5%である<sup>6)</sup>ので、群分離における回収率を過度に高くする必要がないことからMAの回収目標値として99.95%に変更した。

#### 2.1.3 分離プロセスの概要

DIDPA抽出分離法では、Am及びCmを硝酸濃度を約0.5Mの溶液より抽出できる。U及びPuに対してはあらゆる硝酸濃度において高い分配比を与える。NpについてもAm及びCmと同時に抽出できる手法を見出すことがDIDPA抽出プロセス開発の要点であった。すべてのアクチニドを一括して抽出した後、逆抽出の段階でそれぞれの化学的性質に応じて溶媒より回収する。Am, Cmと同時に抽出されるランタニドの分離については、米国で開発されたTalspeak法で用いられているジエチレントリアミン5酢酸(DTPA)を錯形成剤として用いてAm及びCmを

選択的に逆抽出する方法を適用した。次節で述べる研究開発の成果を基に構築したDIDPA抽出プロセスのフローをFigure 2-1に示す。

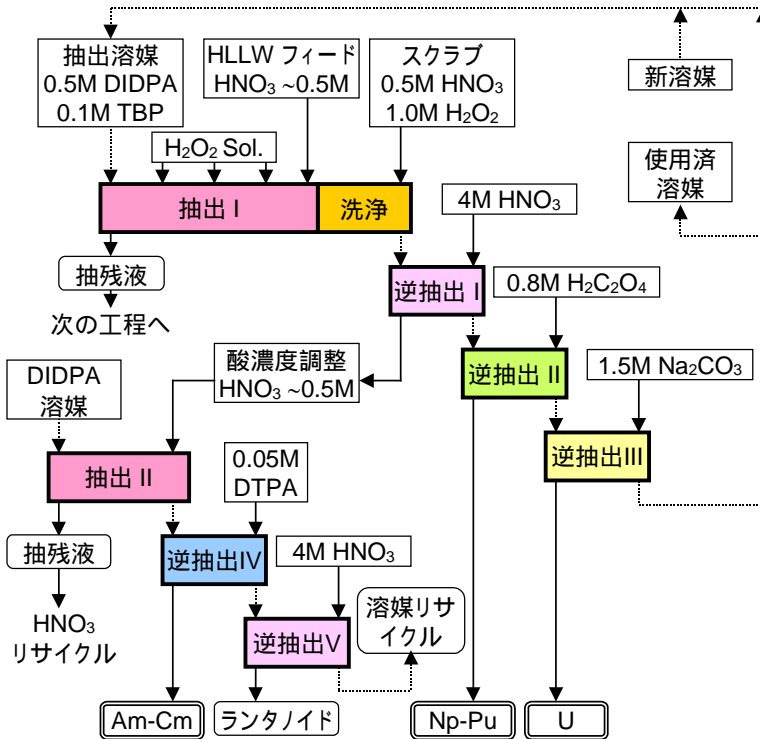


Figure 2-1 DIDPA抽出分離プロセスフロー

### 2.1.4 これまでの成果

#### (1) DIDPA抽出法基礎試験

DIDPAや古くから良く知られているDEHPA (di(2-ethylhexyl)phosphoric acid)等の酸性リン酸エステル系抽出剤では、Am及びCmを抽出するためには硝酸濃度を下げる必要がある点が欠点であるとされる。しかし、DEHPAの場合硝酸濃度を0.2M程度に下げなくてはならないのに対し、DIDPAでは硝酸濃度0.5M程度までの低下で十分であることがDIDPAの利点である。Figure 2-2に、DIDPAとDEHPAとの比較を、Amとほぼ同じ挙動をとるNdの分配比で示す。DEHPAの場合、Ndの分配比として10以上を得るには硝酸濃度を0.2M程度に下げなくてはならず、この場合Am, Cm等の共沈が無視できない量となる。

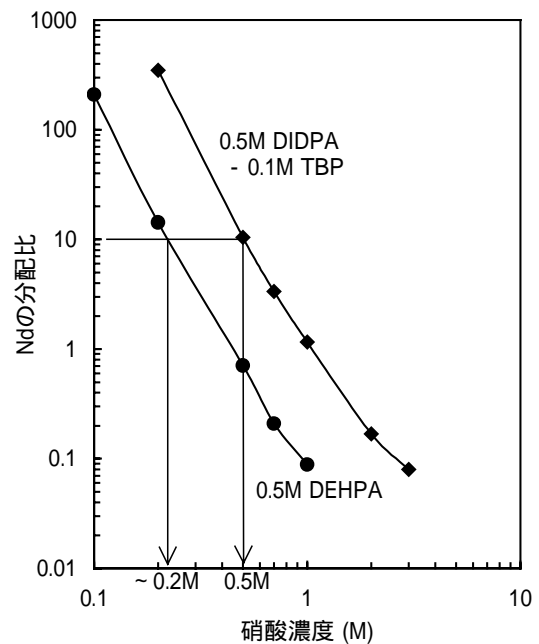


Figure 2-2 DIDPA及びDEHPAによる抽出におけるNd分配比



Npについては、4価及び6価は勿論、高レベル廃液中で安定に存在し、一般に抽出が困難とされる5価のNpが、徐々にではあるがDIDPAにより抽出されることを明らかにした<sup>7)</sup>。さらに、5価のNpについての抽出速度の改善について研究し、過酸化水素を共存させることによって、抽出を大きく促進できることを見出した<sup>8)</sup>。抽出時に過酸化水素を共存させた場合、Npは有機相中で4価の状態となる。

Am, Cm及び同時に抽出されるランタニドは4M硝酸で逆抽出できる。4価のNp及びPuはシュウ酸<sup>9)</sup>で、6価のUは炭酸ナトリウム<sup>10)</sup>で逆抽出できることを明らかにした。

Am及びCmからランタニドを分離するためのDTPAによる選択的逆抽出法の研究では、水相のpHが3.0～4.0の範囲でランタニドとAmの分配比の比である分離係数が10以上であり、水相pHを3.4以上とすることでAmの分配比を1以下にできることを明らかにした<sup>11)</sup>。

## (2) プロセス構築試験

高レベル廃液からのNp(5)の分離を目的として、DIDPAによるNpの抽出とシュウ酸による逆抽出試験をミキサーセトラーを用いて行った結果、過酸化水素を添加すれば、模擬高レベル廃液から、99.96%以上のNp(5)を抽出できることを示した<sup>12),13)</sup>。逆抽出試験では、0.8Mのシュウ酸で99.94%以上のNpが逆抽出できることを明らかにした<sup>13)</sup>。

過酸化水素添加系でのDIDPA抽出分離プロセスにおける他の元素の挙動について試験した結果、Am及びCmと挙動がほぼ同一のNdは99.99%以上が抽出されること、99.9%のFe及び6.5%のRuがDIDPAに抽出されるが、高レベル廃液中の放射能の大部分を占めるSr、Csなど、他の元素はほとんど抽出されないことがわかった。抽出されたFeはシュウ酸により逆抽出され、4M硝酸による逆抽出で得られるAm及びCmを含む溶液中には、ランタニド以外の混入が極めて少ないことを確認した<sup>13)</sup>。

DTPAを逆抽出剤とするAm, Cmとランタニドとの分離について、予備的試験として、Nd単成分でのミキサーセトラーを用いた連続逆抽出時の各段におけるpH及びNdの濃度分布について検討した。その結果、水相のpHは、有機相入口付近でアンモニウムイオンの抽出に伴い変化するものの、各段のpH分布はバッチ実験の結果から計算した値とほぼ一致し、これにより抽出プロセスのシミュレーション計算が可能なことを明らかにした。Ndの濃度分布についても、計算から求めたものとほぼ一致した。さらに、DTPA溶液のpHを4程度に上げ、NdがAmの模擬元素として挙動するように設定して、LaとNdとの分離試験を行った結果、ほぼ想定どおり、Laを有機相に残し、NdをDTPA溶液側へ逆抽出して、両元素を良好に分離できることを確認した<sup>14)</sup>。

以上の試験結果をもとに、Am, Cmとランタニドの共存系での各段毎のpH分布を考慮したシミュレーション計算を行い、各ランタニドの除染係数(DF)を算出し、Am及びCmを99.99%以上回収した上でのAm-Cm製品組成を求めた。その結果、Am-Cm製品へのランタニド混入量は分離前の量に対し約1%程度であり、製品純度として75wt%が得られることがわかった。この結果をTable 2-1に示す。さらに、シミュレーション計算では有機相スクラブを加えたプロセスではAm-Cm製品の純度として98%が得られるとの見通しも示した。

Table 2-1 DTPA逆抽出法によるAm, Cmとランタニドとの分離のシミュレーション  
計算による評価

計算条件 有機相：Am,Cm,ランタニド(Ln)を抽出したDIDPA溶媒、  
水相：0.05M DTPA-1M乳酸-硝酸アンモニウム、pH 3.52  
有機相 / 水相 流量比：1、逆抽出段数：16段、Am逆抽出率：99.995%  
元素量 燃焼度45000MWd/t, 5年冷却の使用済燃料1tonからの高レベル廃液

| 元素    | 分離前      |         | DF   | 分離後      |        |          |
|-------|----------|---------|------|----------|--------|----------|
|       | モル数(mol) | 重量 (g)  |      | モル数(mol) | 重量 (g) | 組成 (wt%) |
| Am    | 1.865    | 450.45  |      | 1.865    | 450.45 | 70.06    |
| Cm    | 0.1393   | 34.00   |      | 0.1393   | 34.00  | 5.29     |
| La    | 12.00    | 1656    | 5400 | 0.0022   | 0.307  | 0.048    |
| Ce    | 23.21    | 3271    | 560  | 0.0414   | 5.842  | 0.91     |
| Pr    | 10.82    | 1526    | 190  | 0.0569   | 8.029  | 1.25     |
| Nd    | 38.3     | 5550    | 56   | 0.684    | 99.11  | 15.42    |
| Pm    | 0.30     | 44.1    | 37   | 0.0081   | 1.192  | 0.185    |
| Sm    | 7.41     | 1107    | 31   | 0.239    | 35.72  | 5.56     |
| Eu    | 1.26     | 193.1   | 36   | 0.0350   | 5.365  | 0.83     |
| Gd    | 1.00     | 156.4   | 55   | 0.0182   | 2.844  | 0.44     |
| Tb-Yb | 0.0321   | 5.146   | 86   | 0.00037  | 0.0598 | 0.0093   |
| Am+Cm | 2.004    | 484.45  |      | 2.004    | 484.45 | 75.35    |
| 全RE   | 94.33    | 13509.3 |      | 1.085    | 158.47 | 24.65    |
| 総計    | 96.34    | 13993.8 |      | 3.090    | 642.92 | 100      |

以上のDIDPA抽出法についての研究の成果を基に、高レベル廃液からTRU及びUを分離するための抽出プロセスを構築した。ここでの検討ポイントは、DTPAによるAm及びCmの選択的逆抽出工程をどのように組み込むかである。当初は、TRU及びUを一括抽出した後、4M硝酸による逆抽出の前にこの工程を入れるプロセス(1サイクルプロセス)を構築した<sup>11)</sup>。しかし、DTPAによる逆抽出においてエマルジョンを生成しない有機相中元素濃度の限界(限界濃度)が低いことが明らかになった。一括抽出直後の有機相はFeやUをも含むため、このプロセスでは有機相中の元素濃度を下げることが必要であり、単位量の高レベル廃液を処理するのに多量の抽出溶媒を使用しなければならないことが判明した。DIDPA溶媒の抽出容量、エマルジョン生成限界に関するデータを基に計算したところ、4M硝酸でAm、Cm及びランタニドを逆抽出した後、再びDIDPA溶媒でこれらの元素を抽出し(第2サイクル)、次にDTPAによる選択的逆抽出工程を入れるプロセスの方が、総合の溶液取扱量が少ないことがわかった。この考えに基づき構築したDIDPA抽出プロセスのフローがFigure 2-1である<sup>9)</sup>。

このDIDPA抽出分離プロセスの特徴をまとめると次のようになる。

- ・濃縮高レベル廃液を対象としている。
- ・TRUの中で最も高回収率での分離が難しい<sup>11)</sup>Npについて99.95%以上の抽出率で高レベル廃液より分離が可能。

- ・分離対象外ではあるがアクチニドの中で最も存在量の多いUに対しても逆抽出法が開発されている。他のすべての元素の逆抽出も可能で、これにより、溶媒のリサイクル使用が確実なものとなっている。
- ・同一溶媒でAm, Cmとランタニドとの分離も可能。
- ・最も影響が大きいDIDPAの放射線分解生成物はMIDPA ( monoisodecylphosphoric acid、基本的にDIDPAと同様の抽出挙動をとる。) であるが、MIDPA濃度を一定に保つという方針でプロセスが組まれている。(リサイクルされる溶媒の一部を廃溶媒とし、その分MIDPAを含まないDIDPA溶媒を加えている。)
- ・供給液としての高レベル廃液の硝酸濃度を約0.5Mに調整する必要がある。(これは欠点ではあるが、一方で抽出や後のTc-白金族元素及びSr-Csの分離の際妨害となるZr, Moをこの段階で除去できるという利点もある。)

(3) DIDPA抽出分離プロセスの規模の評価

抽出プロセスの規模は、取扱い液量と段数で決定される。取扱い液量については、DIDPA抽出の場合、エマルジョンを生成しない有機相中の元素限界濃度から溶媒の必要量が求められる。評価の結果、燃焼度33,000MWd/tの使用済燃料1tonからの高レベル廃液の場合で、第1サイクル 3.0m<sup>3</sup>、第2サイクル 4.0m<sup>3</sup>の溶媒が必要なことがわかった<sup>6),15),16)</sup>。水相の取扱い液量は、抽出プロセスとして最適な有機相/水相比より求められる。以上の結果とこれまでに決定されている各ステップの必要段数とを合わせて、Figure 2-3に、DIDPA抽出プロセスの規模を示す。この取扱い液量は、ピュアレックスプロセスでの取扱い液量の約30%である。

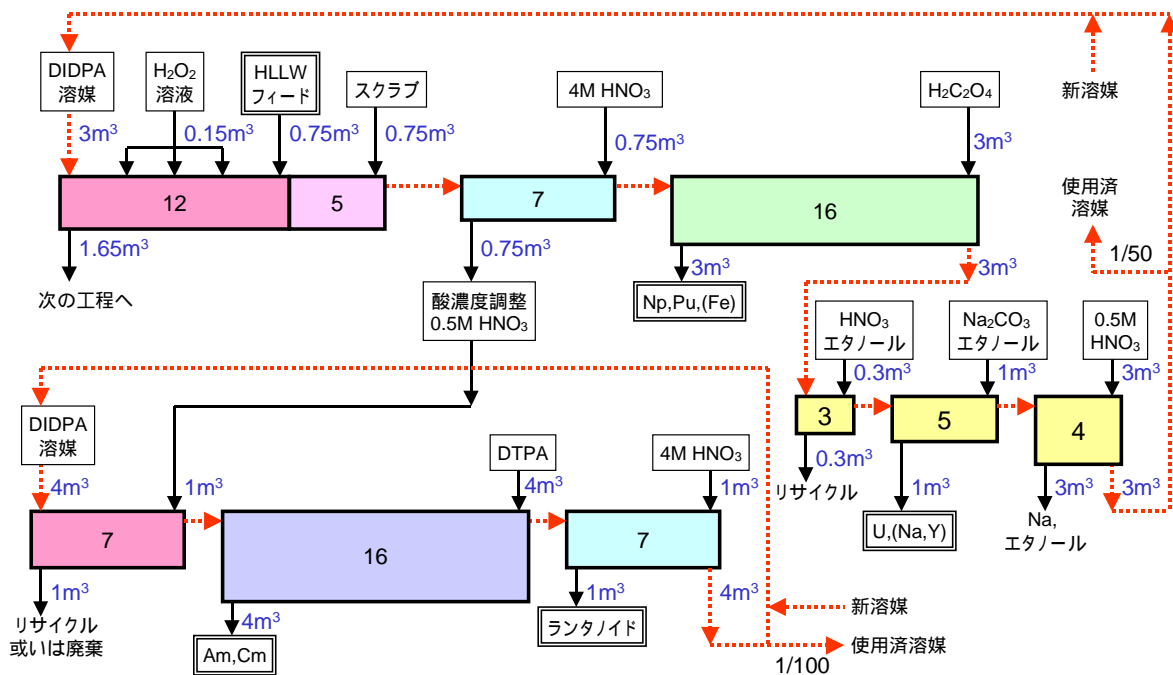


Figure 2-3 DIDPA抽出プロセスの規模

図中の数値：軽水炉使用済燃料(33,000MWd/t) 1tonより発生する高レベル廃液を処理する際の取扱い液量  
太線の長方形は抽出装置を表し、縦が流量に、横が段数に比例させて大きさとした。長方形内の数値は段数。

### 2.1.5 技術的到達度

以上の成果を基に、燃料サイクル安全工学研究施設(NUCEF)のプロセスセル内に設置した群分離試験装置により、実高レベル廃液を用いた試験を実施した。群分離試験装置は2器のミキサーセトラを有し、DIDPA抽出分離工程に関しては、抽出-洗浄、4M硝酸及びシュウ酸による逆抽出の各工程が、実プラントの約1000分の1の規模で試験できる。濃縮高レベル廃液を用いた試験<sup>17)</sup>の結果、Am, Cmについて、99.998%以上の抽出率、99.98%の逆抽出率が得られた。Npの抽出率は98.2%だったが、これは、本試験での操作条件がNpの高回収率での分離に必要な条件を満たしていなかったためである。以前に行ったNpを添加した模擬廃液によるNp抽出試験<sup>12),13)</sup>の結果と今回の試験結果とでは、Npの抽出挙動に差がなく、従って、実廃液からの分離においても最適な抽出条件とすれば、以前のNp抽出試験で得られた99.95%以上という高回収率が達成できると結論した<sup>18)</sup>。シュウ酸による逆抽出工程においては、Npの99.93%以上、Puの99.98%以上が逆抽出された。以上の結果はDIDPA抽出プロセスでの分離目標を満たすものである。しかし、DTPA逆抽出法によるAm, Cmとランタニドの分離については実廃液による試験が実施されていない。

この他、DIDPA抽出プロセスから発生する二次廃棄物(廃溶媒及びNa廃棄物)について評価し、廃棄物中の放射能濃度が廃棄物の一応の区分目安値である1GBq/tより小さいことを示すとともに発生量等を明らかにした<sup>6)</sup>。

以上のように、DIDPA抽出分離プロセスの主工程については分離性能及び成立性を実証した段階に達したと考えるが、分離された各フラクションの精製・処理、二次廃棄物の処理法等については予備的な検討を行った段階にあるので、今後、実験的検討、具体的な検討を行う必要がある。

## 2.2 今後の見通し及び課題

以上のDIDPA抽出分離プロセス研究開発の結果、高レベル廃液からの超ウラン元素及びUの分離について、プロセスの性能を確認し、主工程に対しては実用化への見通しを得たと考える。但し、DTPA逆抽出法によるAm, Cmとランタニドの分離工程及び炭酸ナトリウム溶液によるUの逆抽出工程については十分な向流多段抽出試験がなされていないので更なる検討が必要である。副次的な工程では、Am-CmのDTPA溶液、Np-Puのシュウ酸溶液及びUの炭酸ナトリウム溶液の3種のアクチニド溶液の処理工程、廃溶媒及びNa廃液の処理工程についての検討が課題として残されている。

超ウラン元素の分離を含む群分離プロセス全体について、今後さらに研究開発を実施するに当たっては、オメガ計画チェックアンドレビュー<sup>6)</sup>でも指摘されたように、経済性向上と二次廃棄物発生量低減が要点である。4群群分離プロセス及びこの中のDIDPA抽出分離プロセスでは、濃縮高レベル廃液を対象とすることでプロセス規模の縮小ひいては経済性向上を図っているが、一方で工業的には経済性を悪化させる可能性の高い「沈殿取扱い工程」が必要となっている。

超ウラン元素の抽出分離前の沈殿生成を回避する方法としては、抽出法により沈殿構成元素であるZr及びMoを予め除去する方法、及び高レベル廃液の硝酸濃度を低下させずに超ウラン元素を抽出分離する方法が考えられる。前者に関しては、これまでにDIDPA抽出法の適用<sup>19),20)</sup>及び中性ホスフィン系抽出剤の適用を検討した。後者に関しては、最近原研において超ウラン元素に対し高い抽出能力を示し、ドデカンに溶解可能な三座配位の抽出剤であるN,N,N',N'-tetraoctyl-3-oxapentanediamide (tetraoctyldiglycolamide, TODGA)が開発され<sup>21)</sup>、プロセス開発が開始された段階にある<sup>22),23)</sup>。このTODGA抽出分離プロセス開発を当面の重点課題と位置付けているが、いずれにおいても、沈殿生成回避という考え方の一貫性を保つため、高レベル廃液を濃縮するとしてもある限度があって、抽出プロセスとしてはDIDPA抽出プロセスと比べて規模が大きくなる可能性もある。これと沈殿生成回避という利点とを考慮して、真に経済性向上となるかを十分に評価しなければならない。なお、TODGA抽出法には、DIDPA法のようなリン酸塩廃棄物の発生がないという利点もある。

経済性向上に結びつく抽出分離プロセスの合理化策としては、Am, Cmとランタニドとの分離工程の効率化、合理化も重要である。本分離工程に対する現在の世界的動向は、いわゆるソフトドナー系抽出剤適用によるAm, Cmの選択的抽出である。原研においても検討が進められており、今後の更なる進展が望まれる。

### 3 . SETFICS 法の開発成果と課題

#### 3.1 研究開発の現状

##### 3.1.1 目的

核燃料サイクル開発機構（以下、機構）は、FBR を中心とした核燃料サイクルの確立を目的として、アクチニドリサイクルに関する研究開発を行い<sup>24)</sup>、現在は実用化戦略調査研究を進めている<sup>25)</sup>。開発目標の一つとして TRU 元素の高速炉を利用した燃焼を挙げており、再処理技術においては、PUREX 法による再処理廃液からのアメリカシウム及びキュリウムの回収、並びにこれらの希土類元素との相互分離技術が課題である。機構は再処理高レベル廃液から Am や Cm を始めとするアクチニド元素を回収する技術として、TRUEX (TRansUranium EXtraction) 法<sup>26)</sup>の適用及び応用に関する研究開発を行った<sup>27), 28)</sup>。TRUEX 法は高酸性溶液から Am や Cm を効率的に抽出することを可能とするが、希土類元素との相互分離ができず改良が強く望まれていた。

TRUEX 法のフローシートに改良を加え、三価のアクチニド元素を希土類元素から分離して回収するプロセスの確立を目指し、SETFICS (Solvent Extraction for Trivalent f-elements Intra-group separation in CMPO-complexant System) 法の研究開発を平成 5 年より進めてきた。本章では、SETFICS 法の開発成果の概要と今後の課題について述べる。

##### 3.1.2 処理対象及び分離目標

処理対象及び分離目標は実用化戦略調査研究の開発目標に基づく。実用化戦略調査研究では、Table 3-1 に示すような FBR 燃料仕様を設計要求事項として設定している<sup>29)</sup>。

燃料サイクルでの回収率は 99～99.9 % としており、分離工程については 99.9 % を開発目標とする。MA と FP の混入率は今後慎重な検討をすべきであるとされているが、表中の数値を用いると、重量による比較では MA : FP = 1 : 0.4～2 となる。

Table 3-1 FBR 燃料に対する設計要求（抜粋）

| 項目       | 仕様                  |
|----------|---------------------|
| 燃焼度      | 15 万 MWd/t 程度（炉心平均） |
| MA 混入率   | 1～5 wt%/HM          |
| FP 混入率   | 2 wt%/HM 以下         |
| 炉外サイクル時間 | 5 年                 |
| 回収率      | 99～99.9 %           |

### 3.1.3 分離プロセスの概要

#### 3.1.3.1 SETFICS 法の原理

抽出溶媒には、二座配位型有機リン抽出剤である CMPO (n-octyl(phenyl)-*N,N*-diisobutyl-carbamoylmethylphosphine oxide) を含む TRUEX 溶媒を用いる。TRUEX 溶媒の組成は、典型的には 0.2 M CMPO - 1.4 M TBP - 炭化水素希釈剤である。Am、Cm 及び核分裂生成物である軽希土について TRUEX 溶媒の選択性は小さいため、分離係数を向上するために水溶性のキレート剤(DTPA; ジエチレントリアミン五酢酸)を併用する。DTPA と三価金属イオン (Am, Cm, Y, Ln) の安定度定数は三価アクチニド (An(III)) との錯体で大きく、これを利用する。TRUEX 溶媒により Ln を抽出し、一方で、DTPA と An(III) の錯体を形成させ An(III) を水溶液中にとどめることで分離を達成する。

DTPA は高レベル廃液のような強酸性溶液中では、酸解離しないために錯形成剤として機能できない。第 1 及び 2 段の酸解離指数がそれぞれ 1.82、2.65 であるので、pH は 2 ないしそれ以上に調整する必要がある。TRUEX 溶媒による抽出は硝酸イオン濃度に依存し、高 pH の溶液から三価金属を抽出するためには硝酸イオンを中性塩として添加しなければならない。

#### 3.1.3.2 フローシート<sup>30)</sup>

TRUEX 法は一般的な向流多段型抽出装置の適用が可能であり、SETFICS 法も同様である。

TRUEX 法のフローシートは、供給液と抽出溶媒を接触する抽出・洗浄部と希硝酸溶液を用いる逆抽出部で構成される。SETFICS 法のフローシートは、TRUEX 法の抽出・洗浄部の後に、装荷溶媒中の硝酸を除去する硝酸逆抽出部、An(III) を選択的に逆抽出する An(III) 逆抽出部が加えられる。最後の逆抽出部は溶媒に残留する Ln を逆抽出するため、Ln 逆抽出部と呼ぶ。SETFICS 法のフローシートを Figure 3-1 に示す。

抽出・洗浄部では、三価金属イオンとともに硝酸が抽出される。この硝酸が An(III) 逆抽出部に流入すると、工程内の pH を低下させ、分離条件を損なうおそれがある。このため、予め装荷溶媒から硝酸を除去する目的で、適当な濃度の中性硝酸塩を含む溶液を供給する硝酸逆抽出部が必要となる。

### 3.1.4 これまでの成果

#### 3.1.4.1 主要元素の分配挙動

##### (1) 希土類元素<sup>31)</sup>

Ce、Nd、Eu 及び Gd を用いて種々の分離条件での分配挙動を調べた。概要を Table 3-2 に示す。分配比に対して最も影響を与える因子は pH である。0.2 M CMPO - 1.0 M TBP in n-dodecane と 0.05 M DTPA - 3 M NaNO<sub>3</sub> 溶液の系における分配比を Figure 3-2 に示す。

Table 3-2 TRUEX 溶媒と DTPA - 硝酸塩溶液系における三価金属の分配挙動

| 因子      | 挙動   |
|---------|--|
| pH      | 増加とともに分配比が約 -3 の傾きで低下する。1.5 以上で分離係数は増大し、1.8 以上でほぼ一定となる。            |
| 硝酸イオン濃度 | 増加とともに分配比が増加する。NaNO <sub>3</sub> 及び硝酸ヒドロキシルアミンの場合、分離係数への影響はほとんどない。 |
| DTPA 濃度 | 増加とともに分配比が約 -1 の傾きで低下する。   |
| 振とう時間   | 1 分以上の振とうでほぼ一定となる。逆抽出は速やかである。                                      |
| 温度      | 増加とともに分配比が低下する。  |
| 硝酸塩の種類  | 陽イオンと DTPA との錯体の安定度定数が影響する。アルカリ土類や Al 塩では分配比が低下する。                 |

(2) 希土類元素、Am 及び Cm の分離係数<sup>32)</sup>

ランタニド元素の分配比は原子番号とともに減少する。Y の分配比は Gd と Tb の中間である。分離係数の原子番号依存性を Figure 3-3 に示す。Cm と Eu の Am に対する分離係数は、それぞれ約 0.5、2 である。

(3) 硝酸と三価金属の分離<sup>31)</sup>

装荷溶媒から硝酸を選択的に除去する条件を求めため、計算により逆抽出液の条件を求めた。pH 2 に調整した 0.3 ~ 0.5 M NaNO<sub>3</sub> 溶液が適当である。

## 3.1.4.2 分離機構と性能

(1) 分離機構<sup>32)</sup>

三価金属の抽出は、CMPO による三価金属の抽出、DTPA と金属の錯形成及び DTPA の酸解離を考慮したモデルで説明できる。pH の増加に伴う分配比の減少は、DTPA<sup>5-</sup> イオンの生成と良く相関する。硝酸塩として NaNO<sub>3</sub> や硝酸ヒドロキシルアミンを用いた系では、これら陽イオンと DTPA の錯形成反応は無視できる。

pH 1.8 以上の DTPA が十分に酸解離する条件では、金属 1 及び 2 の相互分離係数  $\alpha_{1,2}$  を次式で近似することができる。

$$\alpha_{1,2} = \frac{D_1}{D_2} = \frac{D_{E_1} K_{C_2} (1 + K_{H_2} [H^+])}{D_{E_2} K_{C_1} (1 + K_{H_1} [H^+])}$$

ここで、 $D_E$  は硝酸溶液からの TRUEX 溶媒による分配比、 $K_C$  は DTPA と金属の錯体の安定度定数、 $K_H$  はプロトンが付加した DTPA 錯体の安定度定数をそれぞれ示す。 $D$  は



TRUEX 溶媒と DTPA 溶液系における分配比である。

(2) 他の抽出剤との比較<sup>33)</sup>

CMPO を TBP、TOPO 及びジアミド (DMDBTDMA) に替え、希土類元素の分離係数を求めた。分離係数を Figure 3-4 に示す。いずれの溶媒も CMPO と同様であり、ランタニドの分配比は原子番号とともに減少する。TBP 及びジアミドは低酸濃度溶液からの抽出力が弱く、高濃度の抽出剤及び塩析剤濃度を必要とする。TOPO の相互分離性能は CMPO に比べて小さい。結果として、比較した抽出剤の中では CMPO が最も分離性能が良いことが分かった。

3.1.4.3 向流多段抽出での分離性能<sup>34), 35)</sup>

Figure 3-1 に示したフローシートを基に向流多段抽出実験を行い、三価アクチニド及び希土類元素の分離性能を調べた。TRUEX 溶媒には 0.2 M CMPO - 1.0 M TBP in n-dodecane を用いた。

高放射性溶液を供給した実験により、主要な成分の分離挙動を求めた。放射性溶液は照射燃料を用いた PUREX 法に関する実験で得られたものである。二回の実験で求めた除染係数を Table 3-3 に示す。La、Ce、Pr 及び Nd は Am 及び Cm と良く分離される。一方で Eu と Sm はかなりの割合で製品に混入する。Y は DTPA 溶液との系での挙動は Am と同様であるが、硝酸溶液からの抽出では分配比が小さく、硝酸逆抽出工程で一部が除去される。結果として希土類元素の約 90 % を除去することに成功した。Cs や Ru 等の他の核分裂生成物は、主に抽出・洗浄部で除去され、除染係数は典型的な TRUEX 工程のものと同等であると考えられる。

これらの実験では、Am や Cm の一部が Ln を含む廃液へと移行した。製品溶液への回収率をより向上するため、希土類元素を用いた向流多段抽出実験を行い、逆抽出条件をさらに検討した。逆抽出液の pH と流量を適切に選定することにより、回収率を向上しうることが分かった。

硝酸逆抽出工程で用いる塩析剤には  $\text{NaNO}_3$  の他に硝酸ヒドロキシルアミンを用いたが、問題なく硝酸を除去することができた。硝酸ヒドロキシルアミンの使用は最終的な廃棄物の減容化に資すると考えられる。

より溶媒中の金属濃度を高めて、処理に要する溶媒量を低減するため、1.4 M 溶媒の適用性を確認した。

3.1.4.4 工学規模での分離フローシートの検討<sup>36)</sup>

Figure 3-1 のフローシートで得られる製品溶液は DTPA と硝酸塩を含む。これらの薬品を再利用し、また、An(III) の転換処理を容易にするためには、TRUEX 法による処理が有用である。製品の pH を 1.5 から 1.0 程度に下げ、典型的な TRUEX 工程に供給すると、製品溶液を希硝酸溶液に転換することができる。抽残液は pH と他の成分濃度を調整して再利用する。PUREX 再処理から TRUEX 工程までの概略的なフローシートを Figure 3-5 に示す。

Table 3-3 向流多段抽出実験での  $^{241}\text{Am}$  の主要成分からの除染係数

| Component         | Decontamination factor |            |
|-------------------|------------------------|------------|
|                   | First run              | Second Run |
| $^{241}\text{Am}$ | 1.0                    | 1.0        |
| $^{106}\text{Ru}$ |                        | > 110      |
| $^{125}\text{Sb}$ |                        | > 700      |
| $^{137}\text{Cs}$ |                        | > 22000    |
| $^{144}\text{Ce}$ | 72                     | > 2600     |
| $^{154}\text{Eu}$ | 1.4                    | 1.9        |
| $^{155}\text{Eu}$ | 1.1                    |            |
| $^{242}\text{Cm}$ | 1.1                    |            |
| $^{244}\text{Cm}$ | 0.95                   | 0.83       |
| La                | 52                     | > 11       |
| Ce                | > 10                   | > 26       |
| Pr                | 28                     | > 28       |
| Nd                | 46                     | > 31       |
| Sm                | 2.3                    | 4.3        |
| Eu                |                        | 1.6        |
| Y                 |                        | 1.3        |

### 3.1.5 技術的到達度

SETFICS 法の基礎となる主要元素の分離挙動、並びに機構を明らかにした。これらの情報に基づき、向流多段抽出法の基本フローシートを得た。高放射性廃液等を用いた実験により、Am 及び Cm を約 90 % の軽希土から分離して回収できることを示した。

工学的に成立せしめるうえで重要と考えられる、高金属装荷フローシートの実現性、回収製品の硝酸溶液への転換、試薬の再利用の見通しを得た。

### 3.2 今後の見通し及び課題

前章での議論から、SETFICS 法は工学規模での向流多段抽出工程に適用しうると考えられる。しかしながら、実用化のためにはまだ解決すべき課題がある。SETFICS 法は TRUEX 法の一つの変法であり、多くの課題は TRUEX 法と共通となる。この観点から課題を整理して Table 3-4 に示す。

これらの課題はいずれも重要であるが、プロセスの成立性を大きく左右する廃棄物の低減化に寄与する硝酸塩濃度の低減、高装荷溶媒の開発、また、安全評価に寄与する溶媒劣化について重点を置いて研究開発を進める予定である。

Table 3-4 SETFICS 法の開発課題

| 項目       | 概要  | TRUEX 法との関連      |
|----------|---|------------------|
| 硝酸塩濃度の低減 | ・ 使用する硝酸塩の量を低減するため、DTPA に代わるキレート剤を探索する。   |                  |
| 高装荷溶媒の開発 | ・ より金属を高濃度に装荷できる溶媒を得るため、TBP 及び n-dodecane に代わる有機希釈剤を探索する。                             | 共通               |
| 計算コード    | ・ 主要な成分（アクチニド、核分裂生成物、構造材成分、硝酸、溶媒等）の挙動を予測するコードを開発する。<br>・ シュウ酸、DTPA による錯生成反応のモデル化を要する。 | 硝酸溶液からの抽出については共通 |
| 溶媒劣化・再生  | ・ CMPO の溶媒劣化挙動を調べ、適した再生処理法を確立する。  | 共通               |
| 廃液処理     | ・ CMPO 混合溶媒、DTPA 及び硝酸塩を含む溶液の処理法を確立する。   | 廃溶媒処理は共通         |

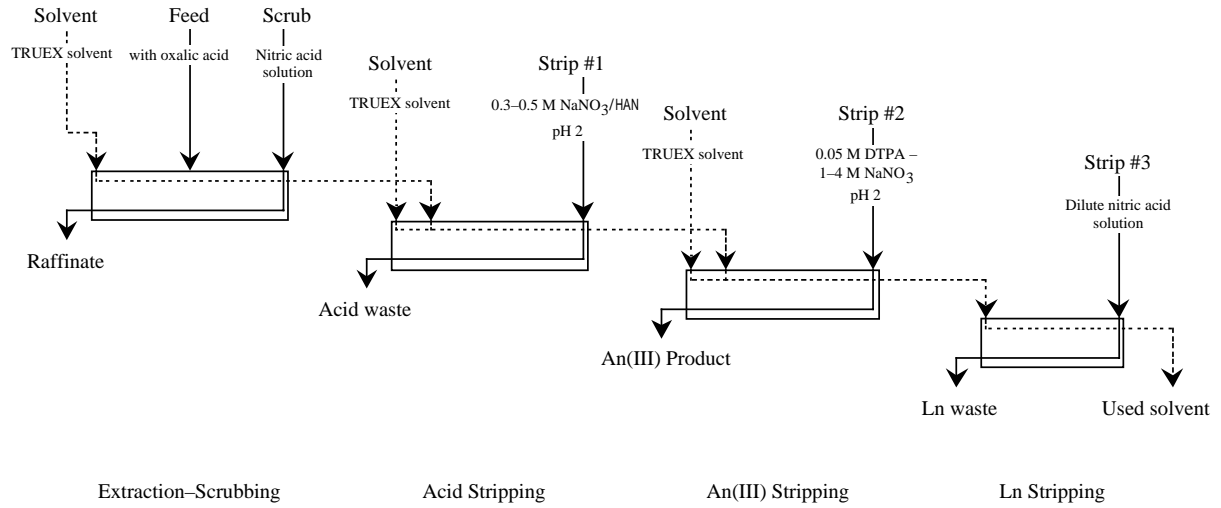


Figure 3-1 SETFICS 法の向流多段抽出の基本フローシート

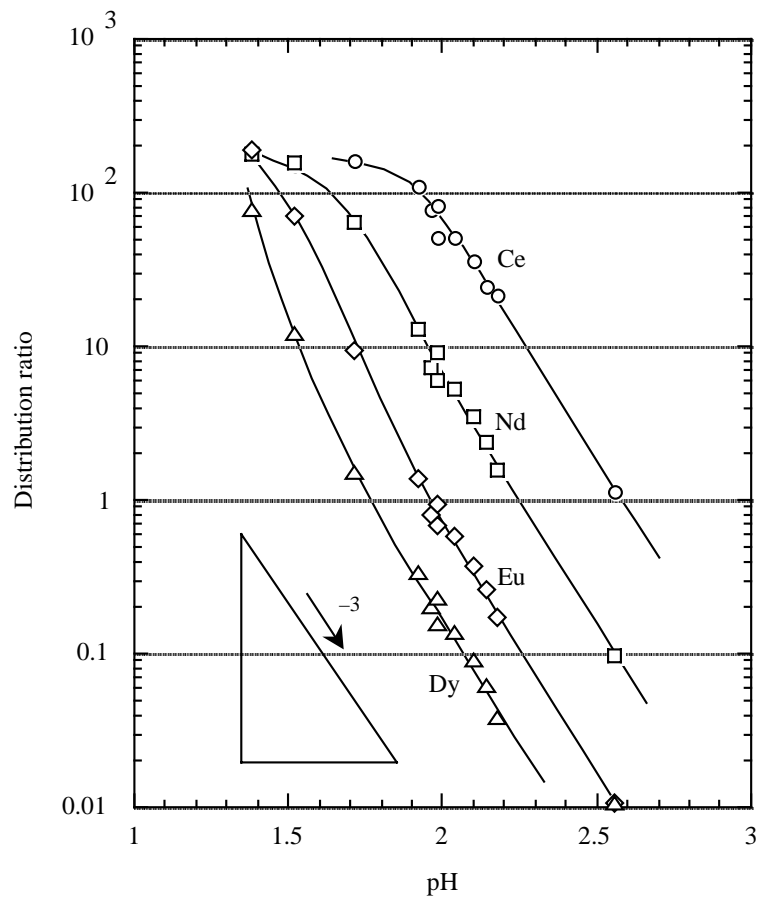


Figure 3-2 ランタニド元素の分配比の pH 依存性  
 有機相 : 0.2 M CMPO - 1.0 M TBP in n-dodecane  
 水相 : 0.05 M DTPA - 3 M NaNO<sub>3</sub>

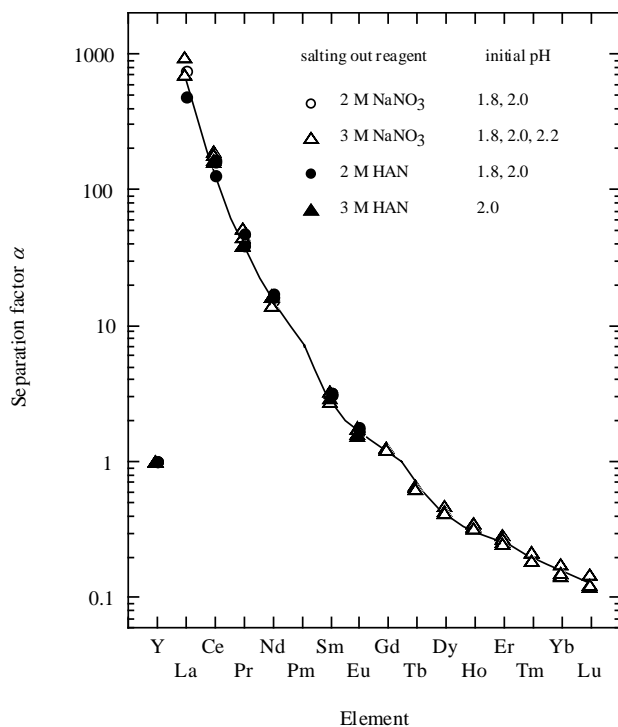


Figure 3-3 種々の水溶液条件におけるイットリウムに対するランタニドの分離係数  
 有機相：0.2 M CMPO - 1.0 M TBP in n-dodecane  
 水相： 0.05 M DTPA - 2 及び 3 M NaNO<sub>3</sub> または硝酸ヒドロキシルアミン溶液（初期 pH 1.8-2.2）

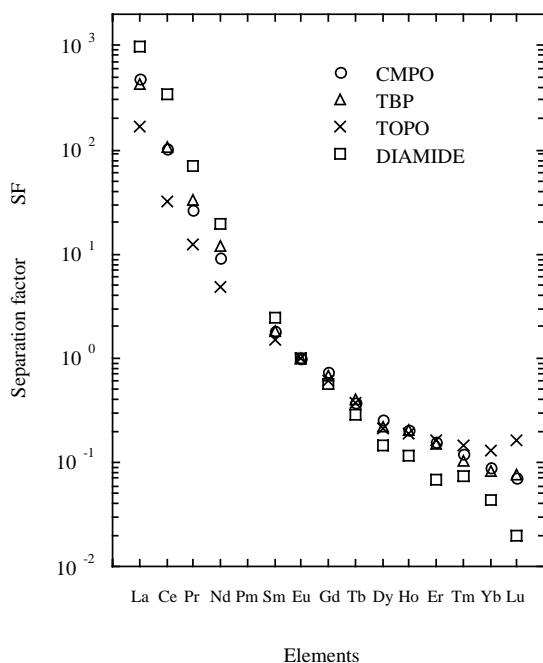


Figure 3-4 種々の 抽出溶媒によるイットリウムに対するランタニドの分離係数  
 CMPO system; 0.2 M CMPO - 1.0 M TBP in dodecane/0.05 M DTPA - 2~3 M NaNO<sub>3</sub>  
 TBP system; 100% TBP/0.05 M DTPA - 5 M LiNO<sub>3</sub>  
 TOPO system; 0.1 M TOPO in dodecane/0.05 M DTPA - 1.5 M NaNO<sub>3</sub>  
 DIAMIDE system; 100% DMDBTDMA/0.05 M DTPA - 6 M NaNO<sub>3</sub>

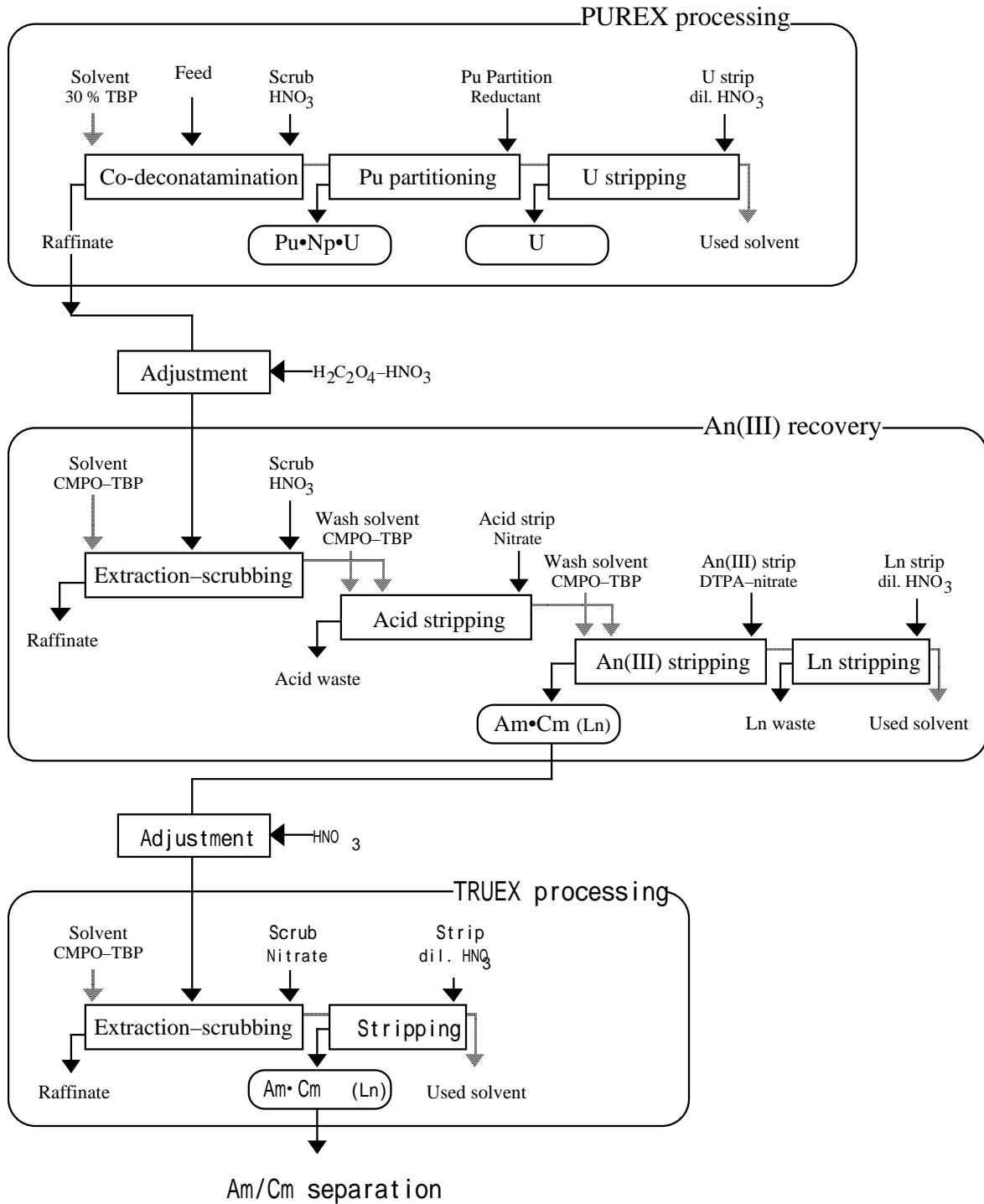


Figure 3-5 PUREX 法を含む分離フローシート

## 4 . おわりに

本報告書では、第2章において原研で研究開発されているDIDPA抽出分離プロセスについて、第3章においてサイクル機構で研究開発されているSETFICSプロセスについて、それぞれ総合的に評価した。これらの評価から、本共同研究「高レベル廃液からのアクチニド分離プロセスの研究」における主たる目的である共通的な課題を抽出すると以下のような具体的な項目が挙げられよう。

- ・ 硝酸塩(Na廃棄物)の量の低減法
- ・ 溶媒リサイクル技術
- ・ 試薬再利用法
- ・ 廃溶媒処理法 (DIDPA及びCMPOは、酸性、中性の違いはあるものの、共に有機リン化合物であり、同一の処理法が適用できると考えられる。)
- ・ DTPA廃液の処理法
- ・ シュウ酸の分解処理法
- ・ 分離されたアクチニド溶液の処理法

要するに、アクチニド分離の主工程は異なっているが、分離後の処理、副次的な工程では多くの共通的な課題が存在することになる。

工学実証規模に移すための共通的な開発要件としては、上記の課題を解決すると共に、副次的な工程を含むプロセス全体についてある程度の規模で一貫した試験を実施することが必要である。ここでの試験規模は、現状の実験室規模よりは大きい必要があるが、パイロットプラント規模(例えば実プラントの数分の1から数十分の1)程には大きくなくてもよいと考えられる。両プロセスの細かい試験条件は異なるが、施設としては共通にできる可能性が高い。

さらに、プロセス全体について高い視点から評価すると、経済性向上と二次廃棄物発生量低減の2項目が重要である。これらは、「高レベル廃液からのアクチニド分離」が高レベル廃棄物の処理処分システムの合理化を目指している以上、常に課題としての認識されなければならない。DIDPA抽出分離プロセス及びSETFICSプロセス共に、置かれている状況は同一である。経済性向上と二次廃棄物発生量低減を目指し、プロセス主工程が大きく改良・変更されることもあり得る。原研におけるTODGA抽出法のアクチニド分離への適用がその例である。こういった場合においても、副次的な工程では多くのプロセスで共通の課題が存在すると考えられ、それを十分に把握して研究開発を進めることが肝要である。

以上を念頭に置き、より合理的で効率的なアクチニド分離プロセス開発のため、今後も継続して研究開発を推進することが望まれる。

## 5 . 参考文献

1. M. Kubota, H. Nakamura, S. Tachimori, T. Abe, H. Amano : “Removal of Transplutonium Elements from High-Level Waste”, IAEA-SM-246/24 (1981).
2. M. Kubota, I. Yamaguchi, K. Okada, K. Nakano : “Partitioning of High-Level Waste as Pretreatment in Waste Management”, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 26, 551 (1984).
3. S. Tachimori, A. Sato, H. Nakamura : “Extraction of Lanthanoids(III) with Di-isodecyl Phosphoric Acid from Nitric Acid Solution”, J. Nucl. Sci. Technol., 15, 421 (1978).
4. S. Tachimori, H. Nakamura : “Extraction of Some Elements by Mixture of DIDPA-TBP and Its Application to Actinoid Partitioning Process”, J. Nucl. Sci. Technol., 19, 326 (1982).
5. M. Kubota, S. Dojiri, I. Yamaguchi, Y. Morita, T. Kobayashi, S. Tani : “Development of a Partitioning Method for the Management of High-Level Liquid Waste”, Proc. of the 1989 Joint Int. Waste Management Conf., Oct 22-28, 1989, Kyoto, Japan Vol. 2, p.537 (1989).
6. 原子力委員会 原子力バックエンド対策専門部会, “長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方”(平成12年3月31日)および参考資料(2000).
7. Y. Morita, M. Kubota : “Extraction of Pentavalent Neptunium with Di-isodecyl phosphoric Acid”, J. Nucl. Sci. Technol., 24, 227 (1987).
8. Y. Morita, M. Kubota : “Extraction of Neptunium with Di-isodecyl Phosphoric Acid from Nitric Acid Solution containing Hydrogen Peroxide”, Solvent Extr. Ion Exch., 6, 233 (1988).
9. Y. Morita, T. Fujiwara, K. Shirahashi, M. Watanabe, R. Tatsugae, M. Kubota : “Diisodecylphosphoric Acid, DIDPA, as an Extractant for Transuranium Elements”, Proc. of Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Systems (GLOBAL '95), Sep. 11-14, 1995, Versailles, France Vol. 2, p.1163 (1995).
10. 龍ヶ江良三、白橋浩一、久保田益充 : “群分離法の開発：DIDPA溶媒からのウランの逆抽出法”, JAERI-Research 95-011 (1995).
11. M. Kubota, I. Yamaguchi, Y. Morita, Y. Kondo, K. Shirahashi, I. Yamagishi, T. Fujiwara : “Development of a Partitioning Process for the Management of High-Level Waste”, Proc. of Int. Conf. and Technology Exhibition, Future Nuclear Systems: Emerging Fuel Cycles and Waste Disposal Options (GLOBAL '93), Sep. 12-17, 1993, Seattle, USA, Vol. 1, p.588 (1993).
12. Y. Morita, S. Tani, M. Kubota : “Separation of Neptunium from High-Level Waste by Extraction with Diisodecyl Phosphoric Acid”, Solvent Extraction 1990 (Proc. of ISEC'90), Elsevier, Part A, p.585 (1992).
13. Y. Morita, S. Tani, M. Kubota : “Separation of Transuranic Elements from High-Level Waste by Extraction with Diisodecyl Phosphoric Acid”, Proc. of the 3rd Int. Conf. on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management (RECOD'91), April 14-18, 1991, Sendai, Japan, Vol.1, p.348 (1991).
14. 近藤康雄、藤原 武、森田泰治、久保田益充 : “群分離法の開発：群分離プロセスの化学工学的試験 - 溶媒抽出工程試験装置による連続抽出試験”, JAERI-Tech 94-008 (1994).
15. 森田泰治、久保田益充 : “湿式群分離と廃棄物”, 放射性廃棄物研究, 2, 75 (1996).
16. M. Kubota, Y. Morita : “Preliminary Assessment on Four Group Partitioning Process Developed in JAERI”, Proc. of Int. Conf. on Future Nuclear System (GLOBAL '97), Oct. 5-10, 1997, Yokohama, Japan, Vol. 1,



- p.458, (1997).
17. 森田泰治、山口五十夫、藤原 武、小泉治徳、佐々木祐二、館盛勝一：“NUCEFにおける群分離試験の成果と今後の展開”，第5回NUCEFセミナーワーキンググループ編、“第5回NUCEFセミナー講演報文集, 2000年2月18日、東海研究所、東海村”，JAERI-Conf 2001-015, p.24 (2001).
  18. Y. Morita, I. Yamaguchi, T. Fujiwara, H. Koizumi, M. Kubota; "The First Test of 4-Group Partitioning Process with Real High-Level Liquid Waste", Proc. of the Int. Conf. on Future Nuclear Systems (GLOBAL'99), Aug. 30 – Sep. 3, 1999, Jackson Hole, USA, (published in CD-ROM) (1999).
  19. K. Shirahashi, Y. Morita, M. Kubota：“Extraction Behavior of Molybdenum and Zirconium with Diiso-decylphosphoric Acid from Nitric Acid Solution”, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 185, 173 (1994).
  20. 白橋浩一、森田泰治、久保田益充：“群分離法の開発：ジルコニウムとモリブデンのDIDPA抽出剤からのシュウ酸溶液による逆抽出挙動”，JAERI-Research 95-012 (1995).
  21. Y. Sasaki, Y. Sugo, S. Suzuki, S. Tachimori：“The Novel Extactants, Diglycolamides, for the extraction of Lanthanides and Actinides in HNO<sub>3</sub> – n-Dodecane System”, Solvent Extr. Ion Exch., 19, 91 (2001).
  22. Y. Morita, Y. Sasaki, S. Tachimori：“Development of TODGA Extraction Process for High-Level Liquid Waste - Preliminary Evaluation of Actinide Separation by Calculation”, Proc. of Int. Conf. on “Back-End of the Fuel Cycle: From Research to Solution” (GLOBAL2001), Sept. 9-13, 2001, Paris, France, Paper No.036 (published in CD-ROM) (2001).
  23. Y. Morita, Y. Sasaki, S. Tachimori：“Actinide Separation by TODGA Extraction”, The 3rd NUCEF Int. Symp. NUCEF 2001, October 31 - November 2, 2001, Tokai, Japan, Paper No.S-11, JAERI-Conf 2002-004 (2002).
  24. 山名元,野村茂雄,山村修：“先進的 MOX 燃料リサイクル技術開発”, エネルギーレビュー, 16(4), 12-17 (1996).
  25. 野田宏,可児吉男：“高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究”, - フェーズ I 成果の概要 -”, 日本原子力学会誌, 43(9), 858-861 (2001).
  26. E. P. Horwitz, D. G. Kalina, H. Diamond, G. F. Vandegrift, W. W. Schulz, “The TRUEX Process – A Process for the Extraction of the Transuranic Elements from Nitric Acid Wastes Utilizing Modified PUREX Solvent”, Solvent Extr. Ion Exch., 3(1&2), 75-109 (1985).
  27. M. Ozawa, S. Nemoto, A. Togashi, T. Kawata, K. Onishi：“Partitioning of Actinides and Fission Products in Highly-active Raffinate from Purex Process by Mixer-settlers”, Solvent Extr. Ion Exch., 10(5), 829-846 (1991).
  28. M. Ozawa, Y. Koma, K. Nomura, Y. Tanaka：“Separation of Actinides and Fission Products in High-level Liquid Wastes by the Improved TRUEX Process”, J. Alloy. Comp., 271-273, 538-543 (1998).
  29. 佐藤和二郎,佐賀山豊,小島久雄,古平清,野田宏,稲垣達敏：“FBR サイクルの実用化戦略調査研究の現状,(2) 開発目標と設計要求”, 日本原子力学会「2000 年春の年会」,総合報告 3 (2000).
  30. Y. Koma, T. Koyama, Y. Tanaka：“The Concept of Separation Process for Recovery of Americium and Curium”, International Conference on Future Nuclear Systems, Global 97, October 5-10, 1997, Yokohama, Japan, Vol. 1, 598-603 (1997).

31. Y. Koma, M. Watanabe, S. Nemoto, Y. Tanaka : "Trivalent f-Element Intra-group Separation by Solvent Extraction with CMPO-complexant System", J. Nucl. Sci. Technol., 35(2), 130-136 (1998).
32. Y. Koma, T. Koyama, Y. Tanaka : "Enhancement of the Mutual Separation of Lanthanide Elements in the Solvent Extraction Based on the CMPO - TBP Mixed Solvent by Using a DTPA - Nitrate Solution", J. Nucl. Sci. Tech., 36(10), 934-939 (1999).
33. S. Miyahara, Y. Koma, T. Koyama, H. Funasaka : "The Intra-group Separation Mechanism of the Rare Earth Elements in the Neutral Extractant-DTPA Systems", Summer University on Separation of Long Lived Radionuclides, Méjannes-le-Clap, Gard, France, September 27 - October 2 (1999).
34. Y. Koma, M. Watanabe, S. Nemoto, Y. Tanaka : "A Counter Current Experiment for the Separation of Trivalent Actinides and Lanthanides by the SETFICS Process", Solvent Extr. Ion Exch., 16(6), 1357-1367 (1998).
35. M. Ozawa, Y. Koma, K. Nomura, Y. Tanaka : "Separation of Actinides and Fission Products in High-level Liquid Wastes by the Improved TRUEX Process", J. Alloy. Comp., 271-273, 538-543 (1998).
36. Y. Koma, T. Koyama, Y. Tanaka : "Recovery of Minor Actinides in Spent Fuel Reprocessing Based on PUREX Process", The 5th International Nuclear Conference on Recycling, Conditioning and Disposal, RECOD 98, October 25-28, 1998, Nice Acropolis Convention Center, France, Vol. 1, 409-416 (1998).