

# 先進的湿式プラントの設計研究(Ⅱ)

## (2) 主分離工程の構成検討

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1997年3月

住友金属鉱山株式会社

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所 技術開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, 4-33 O-aza-Muramatsu, Tokai-mura, Naka, Ibaraki-ken, 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

PNC TJ8010-97-001

1997年3月

## 先進的湿式プラントの設計研究（II） (2) 主分離工程の構成検討

佐藤 金治\*1

### 要 旨

先進的湿式プラントは、高速炉燃料サイクルコストの大幅な低減を目指したプラントであり、晶析法と改良型PUREX法を中心とした再処理工程と、ゲル化転換・振動充填方式による酸化物粒子燃料の製造を行う燃料加工工程とを合体させた、一体型の燃料サイクルプラントである。

本設計研究は、昨年度までに評価・検討したプラントの概念設計研究の成果をもとに、再処理の主分離工程に関して更に詳細な検討を実施することを目的として、以下の検討を実施したものである。

- (1) 除染係数の調査
- (2) 主分離工程の検討
- (3) 昨年度検討の主要機器のCADデータ化

---

本報告書は、住友金属鉱山株式会社が動力炉・核燃料開発事業団から委託を受けて実施した研究の成果である。

契約番号：08C4178

事業団担当部課および担当者：技術開発推進部 アクチニトリサイクルグループ [紙谷 正仁]

\*1) 住友金属鉱山株式会社 エネルギー・環境事業部

## 目 次

1. 緒言 -----	1
2. 除染係数の調査 -----	2
3. 主分離工程の検討 -----	18
3. 1 U/Pu共回収プロセス -----	23
3. 2 U/Pu分離回収プロセス -----	29
3. 3 晶析母液抽出プロセス -----	35
3. 4 U先行抽出プロセス -----	39
3. 5 スクラップ削除型単サイクルプロセス-----	44
4. 計算結果と文献値の比較 -----	48
5. 昨年度検討の主要機器のCADデータ化 -----	51
6. あとがき-----	72
参考文献-----	73

付録1 MIXSET-98に組み込まれているFP、TRU成分の分配係数

## 1. 緒言

先進的湿式MOXプラント（以下、本プラントと記す）は、動力炉・核燃料開発事業団殿（以下、事業団と記す）が、高速炉燃料サイクルコストの大幅な低減を目指して検討を進めているプラントである。

本プラントは、晶析法と改良型PUREX方とを中心とした、高速炉MOX使用済燃料の再処理工程と、ゲル化転換・振動充填方式による酸化物粒子燃料（高速炉用コア燃料およびプランケット燃料）の製造を行う燃料加工工程とを合体させた、一体型の燃料サイクルプラントである。

先進的湿式プラントの設計研究（以下、本研究と記す）は、事業団において検討してきた本プラントの概念をさらに詳細に評価するため、関連する工程・設備等に関する化学工学計算や評価・検討を実施し、最適化したプラント概念として構築することを目的として、1995年度より実施している。

本年度は、以下の項目について検討を実施した。

- (1) 除染係数の調査
- (2) 主分離工程の検討
- (3) 昨年度検討の主要機器のCADデータ化

## 2. 除染係数の調査

各国の再処理工場の抽出工程における除染係数の実績値あるいは設計値などについて、公開文献調査を行い、関連データを収集した。収集した結果は、工場あるいは実施された試験によって目的、処理能力、抽出器、試薬の液性などが異なるため、工場あるいは試験毎にまとめた。

### (1) Barnwell再処理工場[1]

Barnwell再処理工場は1977年に实际上完成したが、米国における民間再処理の無期限停止の決定により、運転されることなくそれ以降の作業は中止された。この工場は、民間のPWR及びBWRからの使用済燃料を処理するために設計されており、最高燃焼度は35,000MWd/MTとされている。図2-1に、Barnwell再処理工場のフローシートを、表2-1にフローシート上の各点における液中核分裂生成物含有量（設計推定値）を示す。この表から、各工程における除染係数を求めた結果を表2-2に示す。これらの値は、設計推定値であるが、Zr/Nb及びRu/Rhについて抽出器単位に比較的細かく除染係数値が設定されている。

### (2) 東海再処理工場

東海再処理工場は、軽水炉燃料を処理する再処理工場である。この工場では、共除染工程とU-Puの分配工程が別々になっている。Yamanaら[2]は、東海再処理工場におけるRu及びZrの除染係数の実績値を報告している。図2-2にRu及びZrの工程内分布を、図2-3に各抽出工程に対する除染係数を示す。これらの値は、工程の構成や実績値と設計値などの違いがあるが、Barnwell再処理工場の設計推定値と比較すると、かなり大きな除染係数値が得られている。

### (3) SAP再処理工場

SAP (Marcoule) 再処理工場は、FBR燃料を処理するために建設された。図2-4にこの工場のフローシートを示す。東海再処理工場と同様に、この工場では、UとPuを分離する前に逆抽出を行い、第2サイクルで分離精製が行われる。この工場でPhenixのFBR燃料を1979～1983年に再処理した際の、核分裂生成物（Zr、Nb、Ru/Rh及び全 $\beta$ 核種）の除染係数の実績値（平均値）が工程毎に報告されている[3]。表2-3にその報告値を示す。FBR燃料と軽水炉燃料との違いがあるものの、SAPにおける除染係数の実績値は、東海再処理工場のそれと比較的近い値であることが分かる。

#### (4) OTL試験

日本原燃サービス(株)が動燃事業団と共同で実施した、東海再処理工場小型試験設備におけるホット試験（OTL試験）では、軽水炉の使用済燃料を用いて溶媒抽出工程に対する試験が行われた。抽出器としては小型ミキサセトラ及びパルスカラム（高さ2.5m）が使用された。フローシート（図2-5～図2-7）は六ヶ所再処理工場のフローを基本としたが、設備の制約などからワンスルーで処理したわけではなく、分割試験という形でデータが採取された。試験結果の一部が公開されている[4]。実液試験で得られた第1サイクル（共除染・分配）のRu及び全FPの除染係数値を表2-4に、U精製サイクルにおけるPu、Np、Ru及び全FPの除染係数値を表2-5示す。また、Pu精製サイクルにおけるRu、Cs及びCeの除染係数を表2-6に示す。これらの結果で特に興味深いのは、U精製サイクルの還元剤の種類がPu及びNpの除染係数に及ぼす影響について報告されていることである。

#### (5) Eurochemic再処理工場

Eurochemic再処理工場は1974年まで運転された再処理工場である。1967年から1968年にかけてヨーロッパのMTR燃料の再処理が行われた時の核分裂生成物の挙動について報告されている[5]。表2-7にこの期間中の第1ウラン抽出工程のZr、Ru、 $\alpha$ 核種及び $\beta$ 核種についての除染係数値を示す。また、表2-8に第2及び第3ウラン精製サイクルのZr、Ru、Np及びPuの除染係数値を示す。なお、表中のH.E.U.はHighly Enriched Uraniumの意味である。各抽出工程における除染係数値には、かなり大きなばらつき（あるいは幅）が見られ、運転条件などによって除染係数が変化することがわかる。

#### (6) La Hargue再処理工場

La Hargue再処理工場には、UP2及びUP3の2つの再処理プラントがある。UP2は1966年に運転を開始し、軽水炉燃料やFBR燃料等様々な燃料の再処理を行い、1994年に処理能力を増強した。一方、UP3は1989年に運転を開始した。表2-9に示すように、UP3における除染係数の設計値及び実績値が報告されている[6]。

#### (7) まとめ

以上の調査の結果を表2-10にまとめた。表中では工程名称を「第1サイクル」などと表記しているが、各再処理施設で設備構成や運転条件などが異なることに注意しなければならない。

表2-1 Barnwell 再処理工場の液中核分裂生成物含有量（設計推定値）

Barnwell 再処理工場の液中核分裂生成物含有量（設計推定値）†

液流番号 (図10.11)	AGNS記号	ルテニウム-ロジウム	ジルコニウム-ニオブ	全核分裂生成物
		供給ウラン 1 kg 当り Ci†		
3A	HAF 製品	1650	1150	5980
3B	HSR	12.2	9.6	24.6
3	HAF	1660	1160	6010
5	HAW	1650	1150	5980
6	HAP	16.4	15.4	34.6
8	HSP	4.16	5.82	10.0
9	POR	0.0128	0.0175	0.0303
11	1 BU	1.61	2.32	4.00
13	1 CW	0.805	1.16	2.00
14	1 CU	0.805	1.16	2.00
24	2 E 製品	1.93 E -4	1.06 E -3	1.26 E -3
27	U 製品	4.80 E -5	3.37 E -5	9.68 E -5
34	2 AW	2.53	3.47	6.00
35	2 AP	0.0252	0.0348	0.0602
37	2 BW	0.0127	0.0174	0.0301
38	2 BP	0.0127	0.0174	0.0301
42	3 AW	0.0126	0.0173	0.0299
43	3 AP	1.26 E -4	1.74 E -4	3.01 E -4
45	3 BW	6.30 E -5	8.70 E -5	1.50 E -4
47, 55	3 BP, 3 PC	6.30 E -5	8.70 E -5	1.50 E -4
製品ウラン 1 g 当り $\mu$ Ci				
27	U 製品	0.048	0.034	0.097
プルトニウム 1 g 当り $\mu$ Ci				
35	2 AP	2460	3400	5880
38	2 BP	1280	1750	3030
43	3 AP	12.8	17.7	30.7
47, 55	3 BP, 3 PC	6.4	8.8	15.2

† データは Buckham [B 21] および Murbach [M 10] からとった。

†† 時間当たりの量に換算するには供給ウラン量 208 kg/h を乗すればよい。

表2-2 Barnwell 再処理工場における核分裂生成物の除染係数（設計推定値）

項目		液流番号	Ru / Rh	Zr / Nb	FP Total
除染 分配 U第1 サイクル	HA(遠心)	3 / 6	101.2	75.7	173.7
	HS塔	6 / 8	3.9	2.6	3.5
	1B塔	(8+9) / 11	2.6	2.5	2.5
	1C塔	11 / 14	2.0	2.0	2.0
	Total(U)	3 / 14	$2.1 \times 10^3$	$1.0 \times 10^3$	$3.0 \times 10^3$
U第2 サイクル	2D&2E	14 / 24	$4.2 \times 10^3$	$1.1 \times 10^3$	$1.6 \times 10^3$
ウラン製品		3 / 24	$8.6 \times 10^6$	$1.1 \times 10^6$	$4.8 \times 10^6$
		3 / 27	$3.5 \times 10^7$	$3.4 \times 10^7$	$6.2 \times 10^7$

表2-3 SAP 再処理工場における各工程の除染係数

DECONTAMINATION FACTORS (average results during high activity feed extraction)  
(activities in mCi.l<sup>-1</sup>)

	Feed	Sortie 1st cycle	FD 1d cycle	Sortie U 2d cycle	FD U 2d cycle	Sortie Pu 2d cycle	FD Pu 2d cycle	Sortie U 3d cycle	FD U 3d cycle	FD Pu total	FD U total
U	118,2	51		30		<5.10 <sup>-3</sup>		40			
Pu	27,8	12		5.10 <sup>-6</sup>		14		< 10 <sup>-7</sup>			
<sup>95</sup> Zr	2000	0,1	6.10 <sup>3</sup>	<10 <sup>-4</sup>	> 600	6.10 <sup>-3</sup>	20	-		1,2.10 <sup>5</sup>	
<sup>95</sup> Nb	800	0,05	5.10 <sup>3</sup>	2.10 <sup>-4</sup>	150	6.10 <sup>-3</sup>	10	-		5.10 <sup>4</sup>	
<sup>106</sup> Ru.Rh	24000	0,66	1,1.10 <sup>4</sup>	2,4.10 <sup>-3</sup>	160	0,01	80	5.10 <sup>-4</sup>	6	8,8.10 <sup>5</sup>	1,05.10 <sup>7</sup>
<sup>125</sup> Sb	2000	-		-		-		-			
<sup>134</sup> Cs	7300	-		-		-		-			
<sup>137</sup> Cs	28000	-		-		-		-			
<sup>144</sup> Ce.Pr	170000	-		-		-		-			
<sup>B</sup> TOTAL	235000	0,85	8,6.10 <sup>4</sup>	2,7.10 <sup>-3</sup>	180	0,022	45	5.10 <sup>-4</sup>	6	3,9.10 <sup>6</sup>	9,3.10 <sup>7</sup>

表2-4 第1サイクルのFP等の除染係数（OTL試験）

		除染係数の試験値
ウランに対して	$^{106}\text{Ru}$	1600～2000
	全FP	15000～18000
プルトニウムに対して	$^{106}\text{Ru}$	860～920
	全FP	7800～8300

表2-5 U精製サイクルのFP等の除染係数（OTL試験）

		Run1	Run2	Run3	Run4
U 精 製 第 2 サ イ ク ル	還元剤	なし	ウラナス & ヒト・ラジン	ヒト・ラジン	HAN + ヒト・ラジン
	Pu	-	> 67	1.6	1.9
	Np	9	5	> 84	> 72
	$^{106}\text{Ru}$	50	> 120	-	-
	全FP	130	> 300	-	-
U 精 製 第 3 サ イ ク ル	還元剤	HAN + ヒト・ラジン	HAN + ヒト・ラジン	ウラナス & ヒト・ラジン	HAN + ヒト・ラジン
	Pu	> 47	> 88	> 41	> 62
	Np	> 130	> 33	> 78	> 62
	$^{106}\text{Ru}$	41	16	-	-
	全FP	41	16	-	-

表2-6 Pu精製サイクルのFP等の除染係数 (OTL試験)

		$^{106}\text{Ru}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{144}\text{Ce}$
Run1	抽出部	34	> 1500	> 130
	FP洗浄部	2.0	> 1.4	> 7.6
	合計	68	-	-
Run2	抽出部	31	> 180	120
	FP洗浄部	1.9	-	> 5.7
	合計	59	-	-

表2-7 第1ウラン抽出工程におけるFPの除染係数 (Eurochemic再処理工場)

核種	$^{95}\text{Zr}$		$^{103+106}\text{Ru}$		$\beta$	$\alpha$
年	1967	1968	1967	1968	1968	1968
HAF/HAP	10~1000	10~90	60~500	60~170		
HAF/HSP	500~8000	70~400	400~200	300~800		
HAF/BXP	500~8000	200~1000	1000~6000	800~3000		
HAF/2AFU	$2 \times 10^5$	$1 \times 10^4$	$2 \times 10^4$	$5 \times 10^3$	$5 \times 10^4$	50

表2-8 Eurochemic再処理工場における精製サイクルの除染係数

AVERAGE DECONTAMINATION FACTORS OBTAINED DURING H.E.U. 1967 AND 1968 CAMPAIGN IN  
2nd EXTRACTION CYCLE AND SILICAGEL COLUMN.

BATCH 2 AF URANIUM	kg. URANIUM	H.E.U. 2nd EXTRACTION CYCLE				RECYCLED EXTRACTION				SILICAGEL COLUMN			
		2 AF / 2 UP				2 BY / 2 BY (rec.)				2 BY (rec.) / 2 UP			
		Pu	Np-237	Zr-95	Ru-103 106	Pu	Np-237	Zr-95	Ru-103 106	Pu	Np-237	Zr-95	Ru-103 106
H.E.U. 1967													
100-500*	54	5***	-	90	60	1.5	1.3	0.5	12	1	13	1.3.10 <sup>3</sup>	2.3
600-1000	69	2.10 <sup>2</sup>	2	2-3	2.10 <sup>2</sup>	5.7	1	1	>1.5	0.03***	>2.5	2.10 <sup>4</sup>	25
1000-1400**	38	8.10 <sup>2</sup>	≥ 10	5-6	5.10 <sup>2</sup>	-	-	-	-	0.5***	≥ 1	3.8.10 <sup>3</sup>	7
Rinsing 1st cycle equipment	3.5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
H.E.U. 1968													
100-1600	99	3.0.10 <sup>2</sup>		30	1.10 <sup>2</sup>	2.1	30	10		1	38	16	

\* In recycling batch 100-500, the Np flowsheet of figure 9 was used.

\*\* Batch 1000-1400 has not been recycled.

\*\*\* Low DF<sub>Pu</sub> due to cross contamination via ventilation system.

\*\*\*\* Low DF<sub>Pu</sub> due to traces Pu from previous LEU campaign.

表2-9 La Hargue再処理工場における除染係数実績値と設計値 (UP3)

T2 1 CUPu	<i>DF <math>\beta\gamma</math></i>  <i>U-Pu separation</i>	<i>Uranium : &gt; 2 10<sup>5</sup></i> <i>Plutonium : &lt; 8 10<sup>4</sup></i>  <i>&lt; 10 <math>\mu\text{gPu/kgU}</math></i>	<i>Design values</i>  <i>DF U : 2 500</i> <i>DF Pu : 1 250</i>  <i>1 mgPu/kgU</i>
T3 2CU  3CU unused most of the time	<i>DF Neptunium</i> <i>DF Plutonium</i> <i>DF <math>\beta\gamma</math></i>	<i>100 - 250</i> <i>non-significant</i> <i>100 - 200</i> <i>&lt; 2 <math>\mu\text{Ci/kgU}</math></i>	<i>Uranium specifications</i>  <i><math>\beta\gamma &lt; 25 \mu\text{Ci/kgU}</math></i> <i><math>\alpha</math> (others than U) &lt; 15 000 dpm/gU</i>
T4	<i>DF <math>\beta\gamma</math></i>	<i>100 - 1 600</i> <i>&lt; 1 <math>\mu\text{Ci/gPu}</math></i> <i>outlet 3 CPu</i>	<i>Plutonium specifications</i>  <i><math>\beta\gamma &lt; 8 \mu\text{Ci/kgU}</math></i>
OWT	<i>DF <math>\beta\gamma</math></i>	<i>Residue rate : 1%</i> <i><math>\beta\gamma &lt; 0,2 \text{ mCi/l}</math></i> <i><math>\alpha = 2 10^{-4} \text{ mCi/l}</math></i>	<i>Design values</i>  <i>Residue rate : 5%</i> <i><math>\beta\gamma &lt; 18 \text{ mCi/kgU}</math></i> <i><math>\alpha &lt; 10^{-2} \text{ mCi/l}</math></i>

表2-10 除染係数調査結果のまとめ

核種	施設	Uに対するDF				Puに対するDF			備考
		第1サイクル	U精製1	U精製2	U Total	第1サイクル	Pu精製	Pu Total	
Ru	Barnwell	2,100	4,200	-	8.6E+6	-	-	-	軽水炉燃料（設計推定値）
	東海	7,600	220	4.1	7.0E+6	7,600	110×44	3.5E+7	第1サイクルは共除染のみ
	SAP	1.1E+4	160	6	1.1E+7	-	80	8.8E+5	FBR燃料
	OTL試験	1.6E+3～2.0E+3	50～>120	16～41	-	860～920	59～68	-	軽水炉燃料・小規模試験
	Eurochemic	5.0E+3～2.0E+4	60～500	-	-	-	-	-	MTR燃料
Zr	Barnwell	1.0E+3	1,100	-	1.1E+6	-	-	-	
	東海	800	2.0E+3	> 6	>1.0E+7	800	200× >200	>3.0E+6	
	SAP	6.0E+3	> 600	-	-	-	20	1.2E+5	
	Eurochemic	1.0E+4～2.0E+5	2～90	-	-	-	-	-	
$\beta$	Barnwell	3.0E+3	1,600	-	4.8E+6	-	-	-	FP Total の値
	SAP	8.6E+4	180	6	9.3E+7	-	45	3.9E+6	
	OTL試験	1.5E+4～1.8E+4	130～>300	16～41	-	7.8E+3～8.3E3	-	-	
	Eurochemic	5.0E+4	-	-	-	-	-	-	
	UP3	> 2.0E+5	100～200	-	-	-	100～1,600	-	実績値の方を記入した
Pu	OTL試験	-	1.6～>67	>41	-	-	-	-	
	Eurochemic	-	200～800	-	-	-	-	-	
	UP3	<0.01mgPu/KgU	non-significant	-	-	-	> 8.0E4	-	
Np	OTL試験	-	5～>84	>33	-	-	-	-	
	Eurochemic	-	2～>10	-	-	-	-	-	
	UP3	-	100～250	-	-	-	-	-	

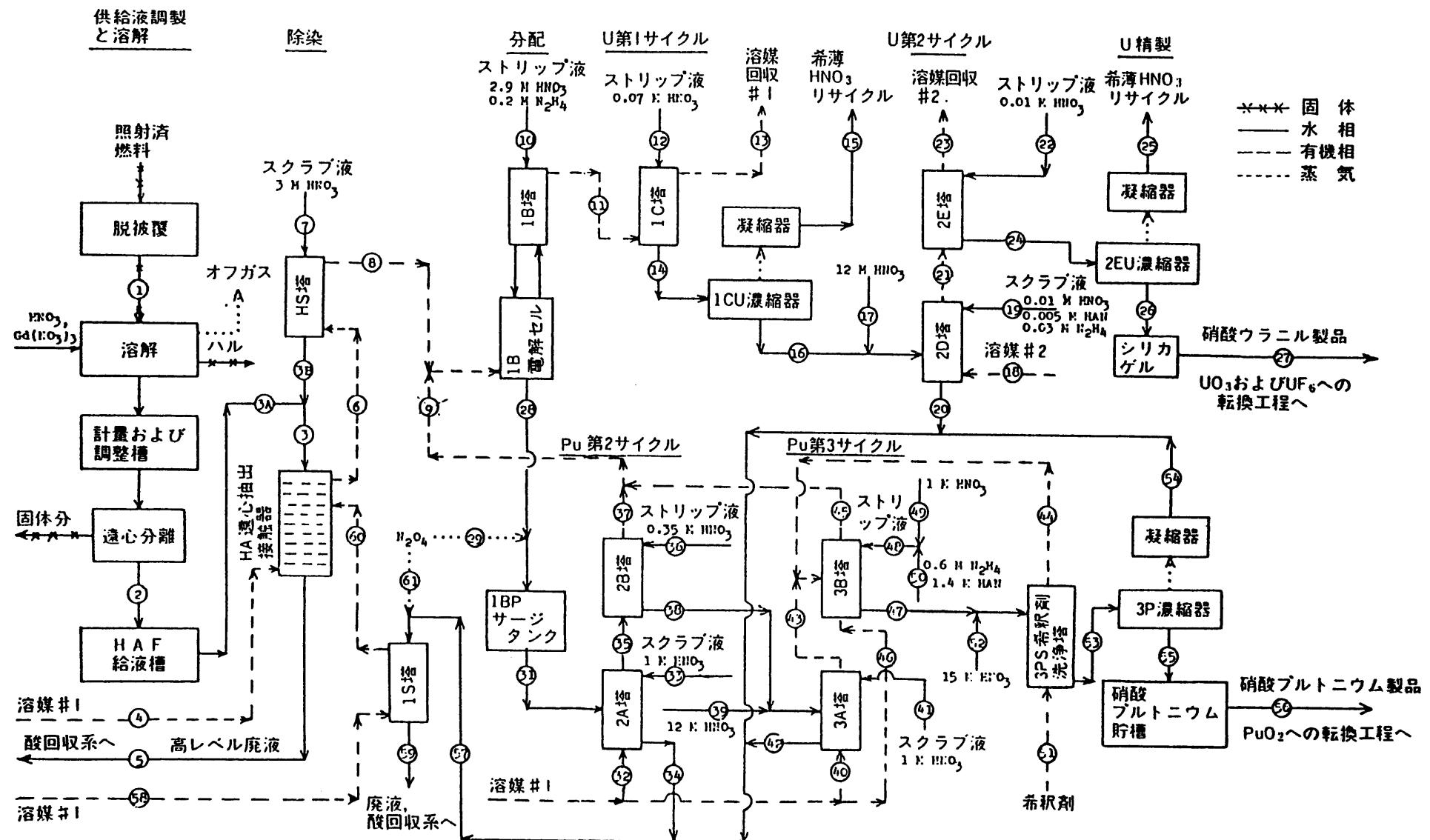


図2-1 Barnwell再処理工場の溶媒抽出部フローシート

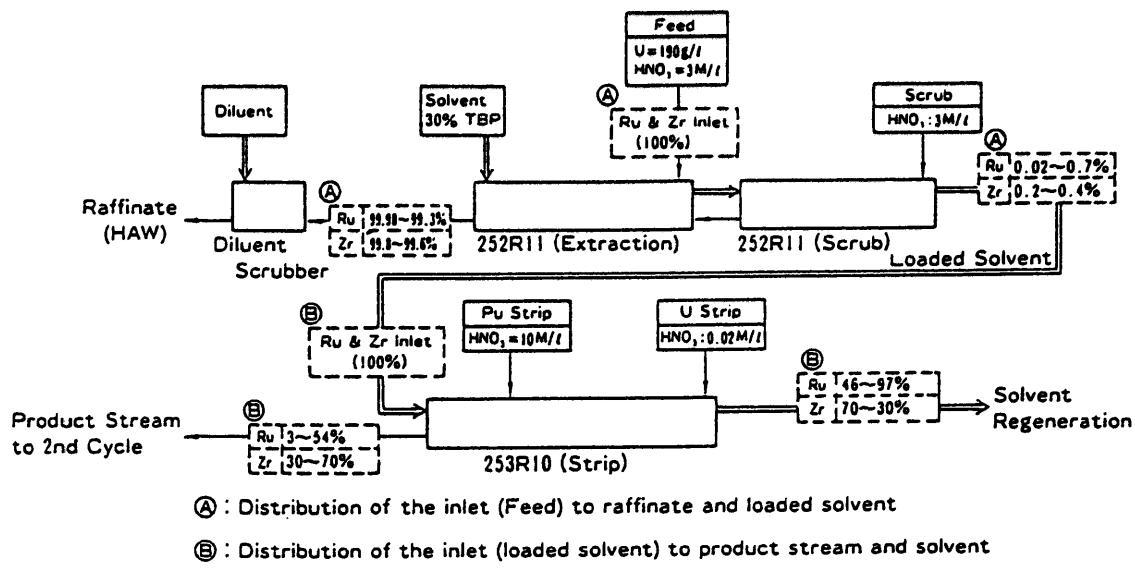


図2-2 東海再処理工場におけるRu及びZrの抽出工程内分布

2nd Extraction Cycle			U-Purification Cycle		Gross DF for U		
Co-decontamination Cycle	for	Ru	$2.2 \times 10^2$	Ru	4.1	Ru	$7.0 \times 10^6$
	U	Zr	$2.0 \times 10^3$	Zr	>6	Zr	$>1.0 \times 10^7$
Ru	$7.6 \times 10^3$	2nd Extraction Cycle			Gross DF for Pu		
Zr	$8.0 \times 10^2$	for	Ru	$1.1 \times 10^2$	Ru	$3.5 \times 10^7$	
		Pu	Zr	$2.0 \times 10^2$	Zr	$>3.0 \times 10^7$	

図2-3 東海再処理工場の溶媒抽出工程でのRu及びZrの除染係数

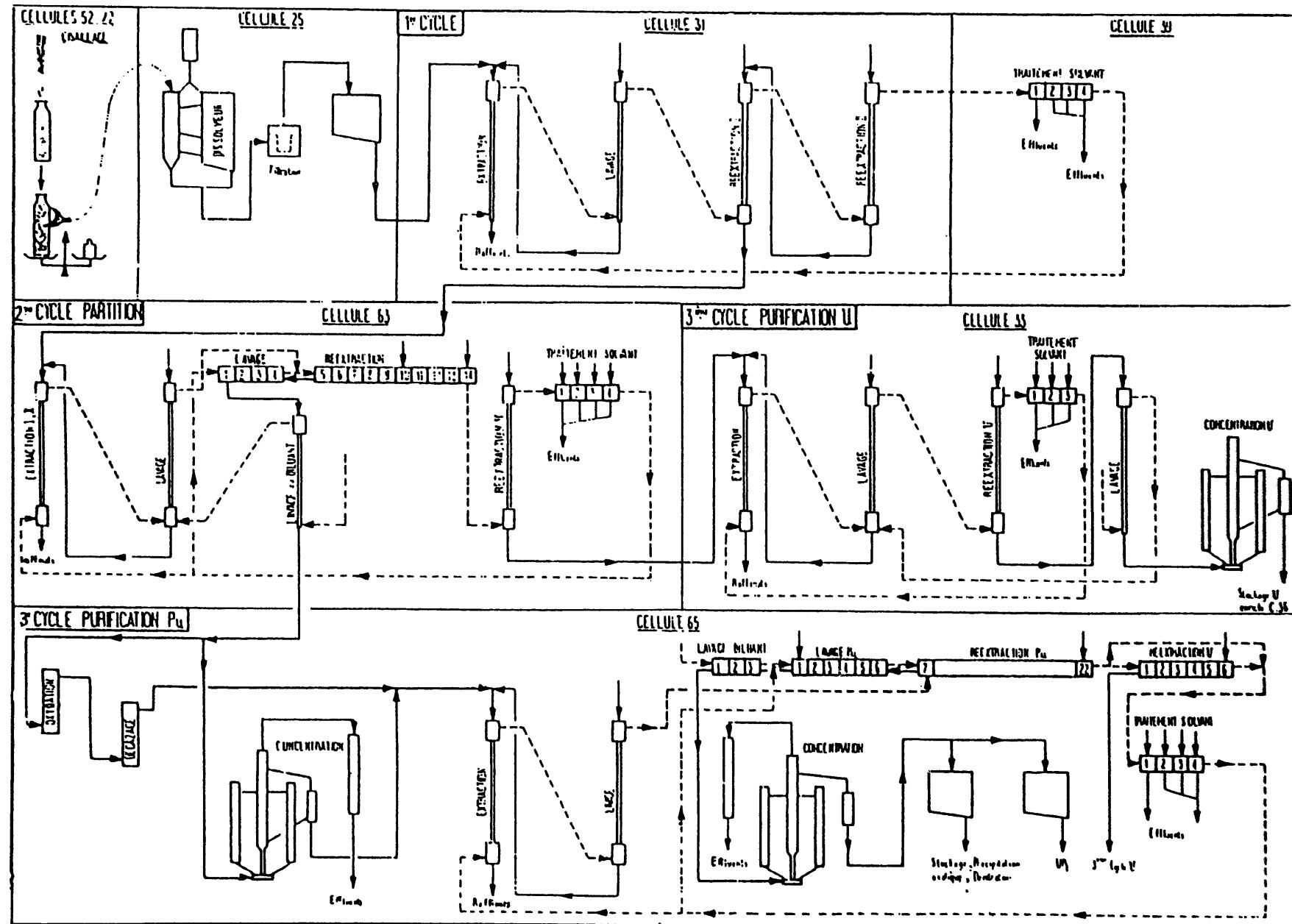


図2-4 SAP再処理工場の概略フローシート

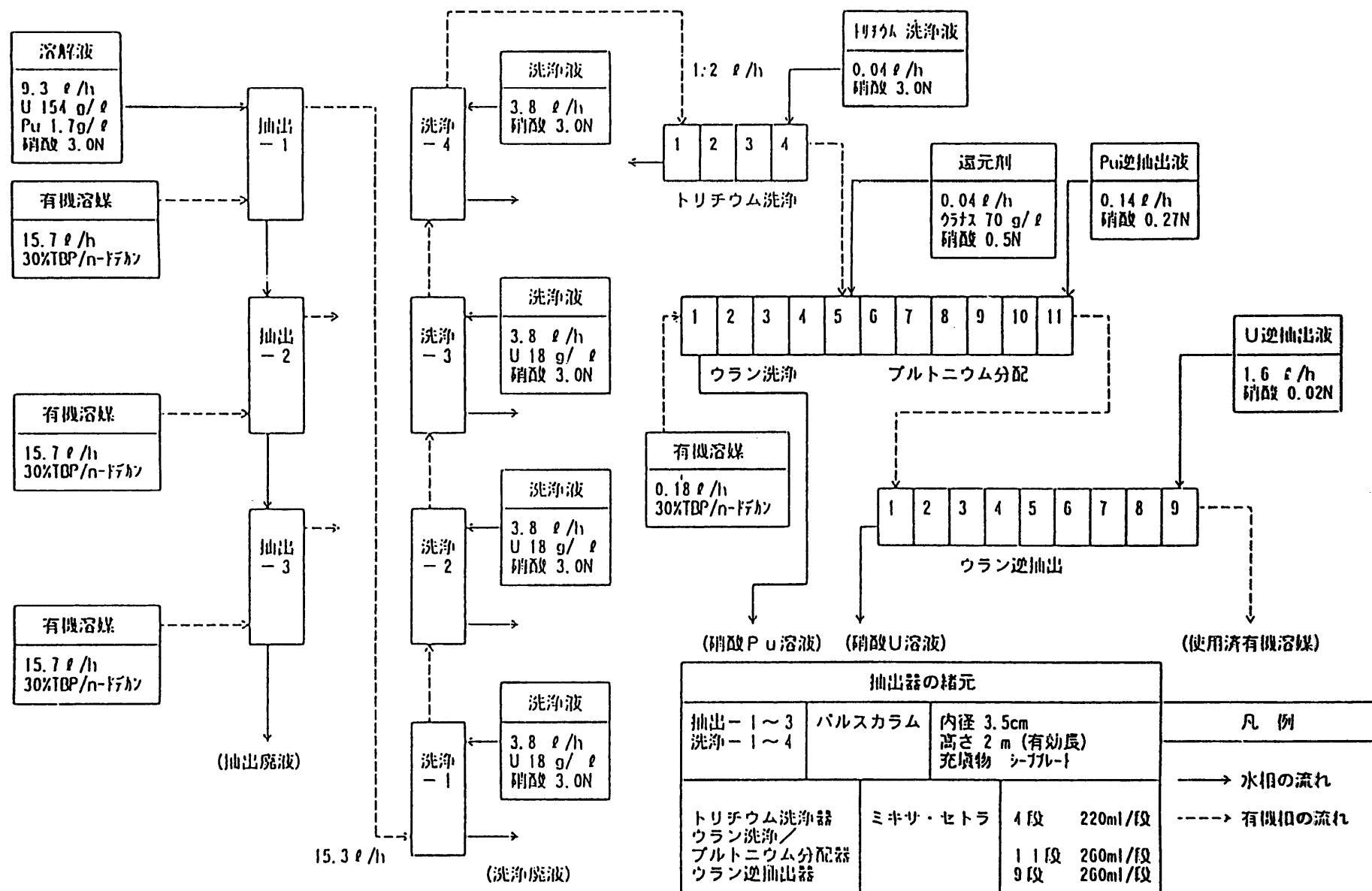
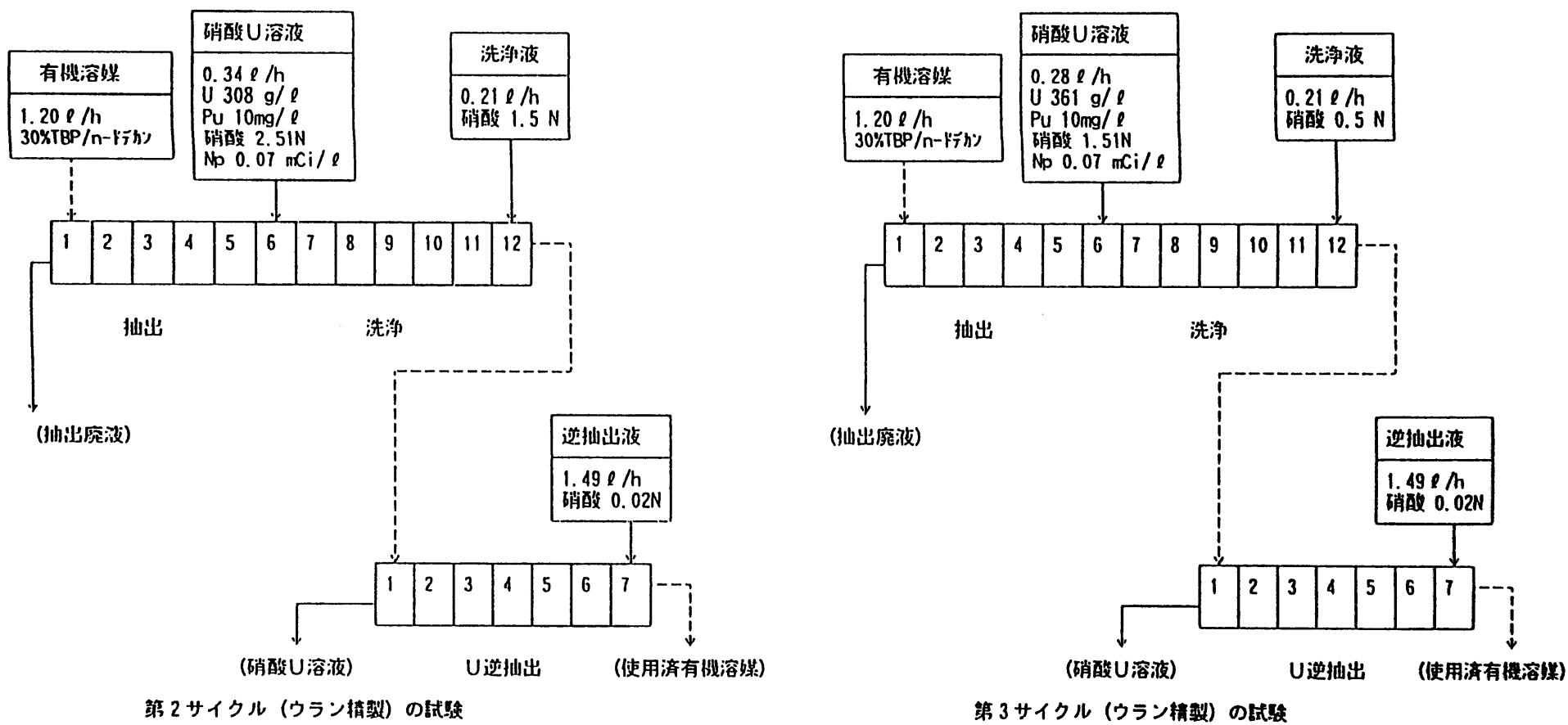


図2-5 OTLホット試験のフロー図（第1サイクル）



凡 例	抽出器の緒元		
→ 水相の流れ	抽出／洗浄器	ミキサ・セトラ	12段 260ml/段
----> 有機相の流れ	U逆抽出器		7段 260ml/段

図2-6 OTLホット試験のフロー図（U精製サイクル）

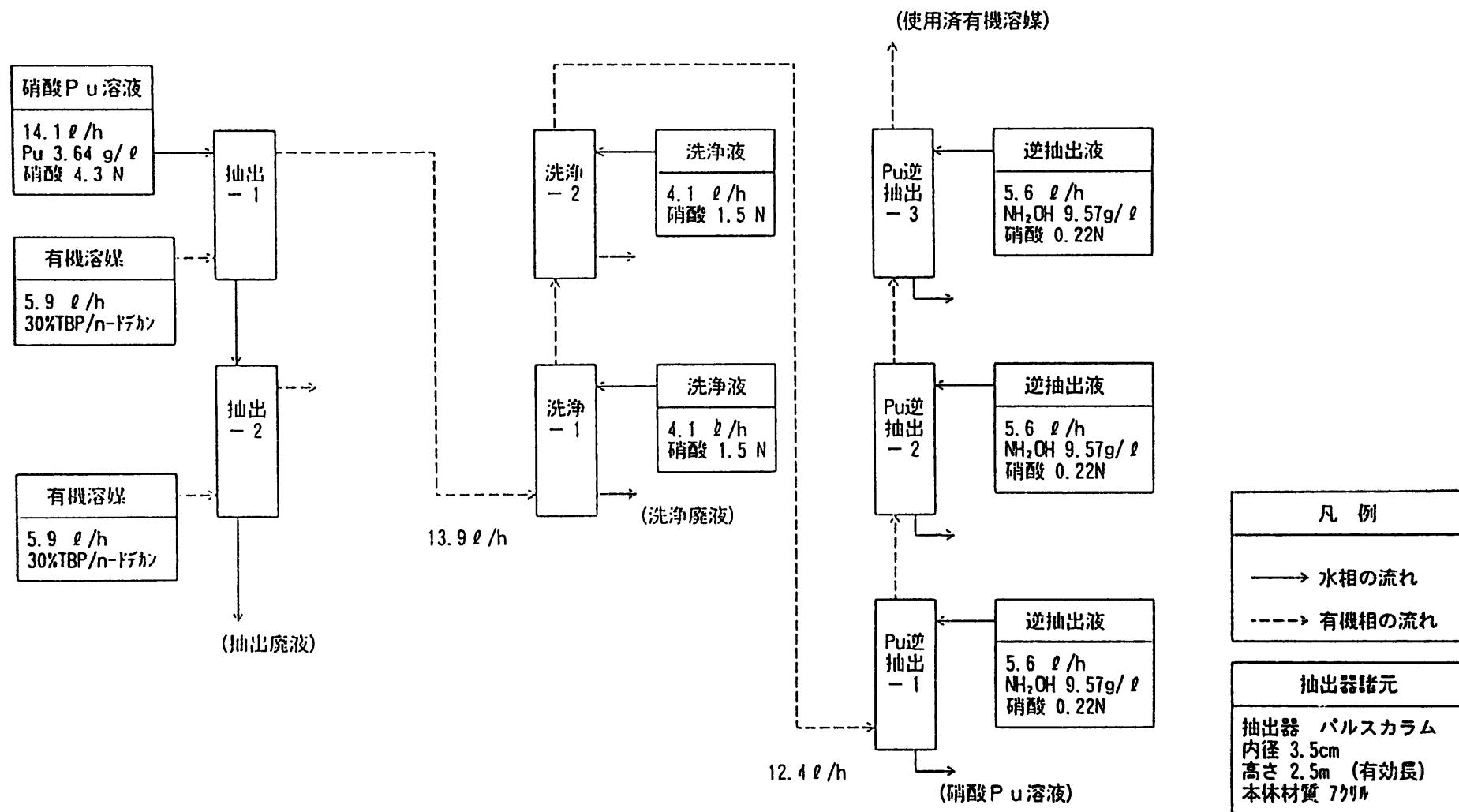


図2-7 OTLホット試験のフロー図 (Pu精製サイクル)

### 3. 主分離工程の検討

主分離工程（清澄液または晶析母液受入～抽出～濃縮～転換工程への払出）において、転換工程への払出条件を一定（300gHM/L）とした場合の設備構成及び運転条件を、以下に示すプロセスについて検討し、ケミカルフローシートとしてまとめた。なお、全てのプロセスはPUREXプロセスを採用するものとした。

抽出工程については、それぞれのケースについて、工程の設備構成、並びに必要な試薬流量、溶媒流量、製品蒸発処理量、廃液委蒸発処理量、貯槽容量を比較した。計算には、既存の抽出計算コード（MIXSET）を用いて、ウラン及びプルトニウムの分離回収性能を評価すると同時に、代表的な核分裂生成物の除染係数を計算した。

#### 1) U/Pu共回収プロセス

- ①共除染・分配、U精製、Pu精製（供給液組成のケーススタディを含む）
- ②共除染・分配、U精製
- ③共除染・分配

#### 2) U/Pu分離回収プロセス

- ④共除染・分配、U精製、Pu精製
- ⑤共除染・分配、U精製
- ⑥共除染・分配

#### 3) 晶析母液抽出プロセス

- ⑦共除染

#### 4) その他のプロセス

- ⑧U先行抽出プロセス
- ⑨スクラブ削除型単サイクル

計算の初期条件となる高速炉使用済燃料の溶解液組成（原料溶液組成）は、事業団殿の指示により決定した。上記9つの計算対象プロセスのうち、⑦の晶析母液を処理するプロセス以外は、同一の組成とした。⑦の晶析母液は、晶析工程によりPu富化度が25%に調整されているものとした。計算に使用した溶解液組成を表3-1に示す。表中の「供給液」は、抽出工程に供給する際の溶解液組成であり、原料液を硝酸又は純水で希釈することを想定した。晶析を行わない原料溶液は、硝酸濃度が2.0Mであるが図3-1に示すようにこの酸濃度領域ではPuのTBPに対する分配係数が低くなる[7]こと、及びU濃度（400g/L）が高いため温度によってはUが析出し配管閉塞等を引き起こす危険があることなどから、硝酸で希釈し硝酸3M、U濃度200g/Lとした溶液を供給液とした。一方、晶析を行った原料溶液は、硝酸濃度が5.9Mと高い。このことが核物質の抽出に特に大きな影響を与えるとは考

えられないが、国内外の再処理工場では5Mを超える酸濃度で再処理が行われた例がないため、純水で若干希釈して5Mまで酸濃度を下げた溶液を供給液とした（この希釈操作で増える抽出廃液量は、たかだか～150L/dayである）。

抽出工程のフローシートは、既存のPUREXプロセスを基本とし、溶媒は全て30%TBPを使用した。各抽出器の段数、試薬の組成、試薬の供給流量等は、計算を実施する過程で適宜設定した。このようなフローシート条件の設定にあたっては、次の2点を選定基準とした。

### 1) 核物質の回収性能

- ・抽出器段数は廃液側へ漏洩する核物質濃度が1mg/Lを下回ってさらに2～3段の余裕がある
- ・Puポリマー生成条件になる点が存在しないこと

### 2) 廃液量の低減化

- ・抽出廃液及び溶媒洗浄廃液

ここで、核分裂生成物の除染係数は判断基準としなかった。つまり、例えば核物質回収の観点から計算条件を変更することによって、除染係数の計算結果が悪化しても段数あるいは洗浄液流量の増加については考えなかった。なお、FP洗浄段の段数は、特に核物質回収などに影響を与えない場合、一律8段とした。FP洗浄液流量は、既存のPUREXプロセスの知見をもとに溶媒流量との関係で設定した。

計算コードMIXSET（MIXSET-98）を使用したため、抽出器はミキサセトラを想定したが、遠心抽出器と考えても計算結果には大差がないものと思われる。計算の入力条件の一つである段効率は、昨年度における計算と同様、抽出部と逆抽出部について0.95とし、これ以外は1.0とした。MIXSET98では、使用する主要成分（硝酸、U、Pu）の分配係数の相関式として、KfK型相関式とHanford型相関式が選択できるが、本作業ではKfK型相関式を選択した。抽出器（ミキサセトラ）の容量は、エンジニアリング的に妥当と考えられる容量を設定した。

MIXSETでは溶媒洗浄部に対する計算ができないため、溶媒洗浄部で全ての成分が洗浄されるものとし、抽出部へ供給される溶媒中の成分濃度は全て0を入力した。また、評価上、溶媒洗浄部の段数は一律5段とし、溶媒洗浄廃液は当該溶媒洗浄工程へ供給される溶媒流量の5%とした。

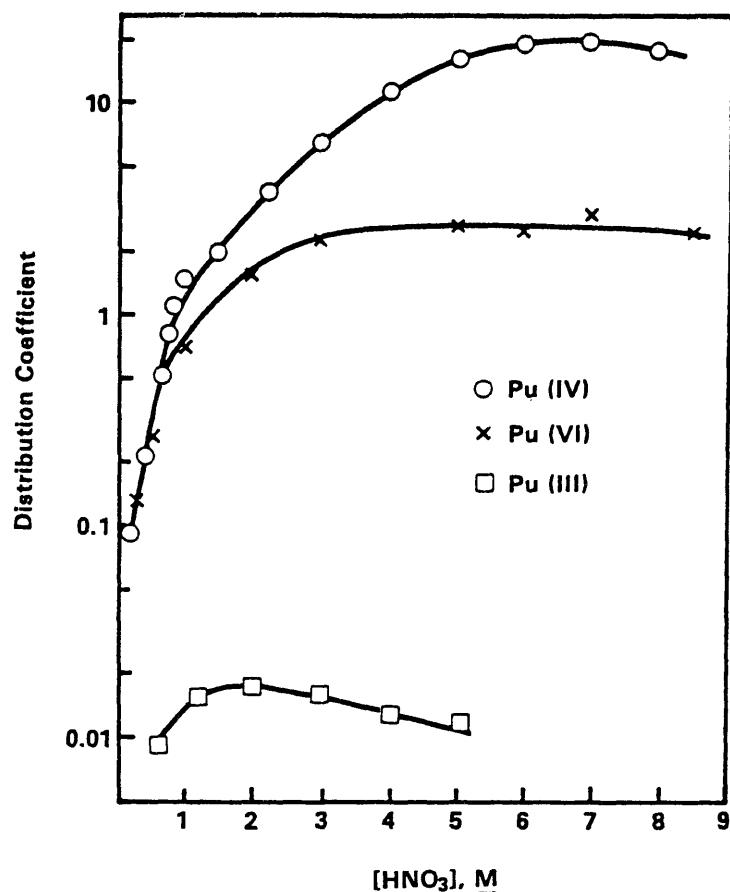
Pu精製部への供給液は、Puの価数を4価にそろえる目的で、一般に再酸化が行われる。この操作によって、Puは全量が4価に、Npは全量が6価になるとした。また、U/Pu分配部で還元剤としてHANを使用する場合には、HANによりNp(VI)がNp(V)に全量還元された（この還元反応がMIXSETに組み込まれていないため）。

製品溶液を転換工程への派出条件である300gHM/Lへの調整、あるいはU精製工程への供給液の濃度調整のために、蒸発濃縮操作が必要になる場合がある。この蒸発濃縮操作については、必要な熱量と相当の蒸気使用料を見積もった。但し、蒸発缶への供給液の温度は30℃、蒸気の入口及び出口温度はそれぞれ130℃及び110℃として計算した。なお、蒸気量の計算については概算値であり、供給液の密度あるいは比熱等の物性値には水の値を用いた。

表3-1 原料溶液及び供給液の組成

		溶解液(晶析無し)		一括晶析(Pu富化度25%)	
原料液 流量	組成	42.3 L/h		33.9 L/h	
		g/day	g/L	g/day	g/L
	U	4.06E+05	4.00E+02	1.58E+05	1.94E+02
	Pu	5.29E+04	5.21E+01	5.29E+04	6.50E+01
	Np	1.43E+02	1.41E-01	1.43E+02	1.76E-01
	Am	1.72E+03	1.69E+00	1.72E+03	2.11E+00
	Cm	1.74E+02	1.71E-01	1.74E+02	2.14E-01
	Sr	4.93E+02	4.86E-01	4.93E+02	6.06E-01
	Zr	2.65E+03	2.61E+00	2.65E+03	3.26E+00
	Tc	8.48E+02	8.35E-01	8.48E+02	1.04E+00
	Ru	3.21E+03	3.16E+00	3.21E+03	3.95E+00
	Cs	4.04E+03	3.98E+00	4.04E+03	4.97E+00
	硝酸	2.00 M		5.90 M	
希釀液 流量	組成	42.3 L/h		6.1 L/h	
		4.00 M-HNO <sub>3</sub>		0.00 M-HNO <sub>3</sub>	
供給液 流量	組成	84.6 L/h		40.00 L/h	
		g/day	g/L	g/day	g/L
	U	4.06E+05	2.00E+02	1.58E+05	1.65E+02
	Pu	5.29E+04	2.61E+01	5.29E+04	5.51E+01
	Np	1.43E+02	7.04E-02	1.43E+02	1.49E-01
	Am	1.72E+03	8.47E-01	1.72E+03	1.79E+00
	Cm	1.74E+02	8.57E-02	1.74E+02	1.81E-01
	Sr	4.93E+02	2.43E-01	4.93E+02	5.14E-01
	Zr	2.65E+03	1.31E+00	2.65E+03	2.76E+00
	Tc	8.48E+02	4.18E-01	8.48E+02	8.83E-01
	Ru	3.21E+03	1.58E+00	3.21E+03	3.34E+00
	Cs	4.04E+03	1.99E+00	4.04E+03	4.21E+00
	硝酸	3.00 M-HNO <sub>3</sub>		5.00 M-HNO <sub>3</sub>	

※不溶解残さ及び晶析(U以外)への移行量は考慮していない



Extraction of plutonium in the III, IV, and VI valency states by 20% tributyl phosphate. (From McKay, H. A. C., and Woodgate, P. R., The extraction of plutonium by tributyl phosphate. I. U.K. At. Energy Res. Establishment Rep. AERE-C/R 994, Her Majesty's Stationery Office, London, England, 1952. With permission.)

図3-1 Puの分配係数の硝酸濃度依存性

### 3. 1 U/Pu共回収プロセス

通常の（晶析母液でない）溶解液を供給して、U製品とPu富化度25%のU-Pu混合製品を得るプロセスについて検討した。プロセスの概念フローを図3.1-1に示す。

このプロセスの抽出工程のフローシート条件を、計算コードMIXSET98を用いて検討した。その結果得られた共除染・分配部、U精製部及びPu精製部のケミカルフローシートをそれぞれ図3.1-2、図3.1-3及び図3.1-4に示す。また、このプロセスの諸条件及び除染係数を表3.1-1及び表3.1-2にまとめた。

U精製工程への供給液は、概念フローのように通常蒸発濃縮を行ってU及び硝酸濃度を高めるが、ここでは硝酸濃度を調整する方法を選んだ。これにより、蒸発濃縮に必要な設備及び蒸気の必要がなくなったが、使用する硝酸量とU精製工程からの抽出廃液量が増加することとなった。これらの施設の負荷の増加分は、酸回収工程が負うことになるが、これについてはここでは検討しなかった。

U/Pu溶液の精製工程（U/Pu精製工程）の供給液は、NO<sub>x</sub>ガス（亜硝酸ガス）を吹き込むことにより、Pu及びNpの価数調整を行う（計算ではPuは全量4価、Npは全量6価になるとした）と同時に、硝酸濃度を上昇させる。NO<sub>x</sub>ガスの供給量は溶液中の硝酸濃度が3Mになるように設定した。

抽出プロセスから得られるU製品溶液中のU濃度は69.1g/L、U/Pu製品中のU及びPu濃度はそれぞれ32.3g/L及び10.9g/Lである。転換工程への払出条件（300g-HM/L）への蒸発濃縮に必要な熱量は、U製品溶液で73,000kcal/hおよびU/Pu製品溶液で110,000kcal/hであり、それぞれ必要な蒸気流量は3,600kg/h及び5,300kg/hとなる。

この計算では、Pu/U製品溶液中のPu富化度が25%になるように試薬流量等を調整したが、抽出原料溶液の条件や試薬の組成及び流量の変動によって、Pu/U製品溶液中のPu富化度は微妙に変化する。従って、実際の工程に適用する場合には、Pu富化度のより高い製品溶液を得てU精製部の製品と混合することによりPu富化度を調整する必要があると考えられる。この場合、試薬及び廃液量に若干の変更がある。

表3.1-1 U/Pu共回収プロセスの諸条件一覧

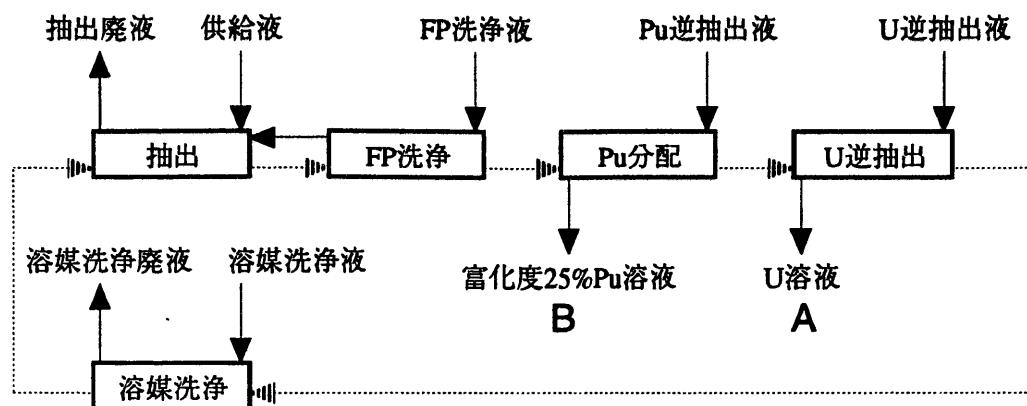
共除染・分配		U精製		Pu精製	
抽出	8 段	抽出	8 段	U/Pu抽出	8 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
FP洗浄	8 段	FP洗浄	8 段	FP洗浄2	8 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
Pu分配	10 段				
ミキサ部	4 L				
セトラ部	20 L				
U逆抽出	10 段	U逆抽出	10 段	U/Pu逆抽出	12 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
溶媒洗浄	3 段	溶媒洗浄	3 段	溶媒洗浄	3 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
溶媒流量(30%TBP)	240 L/h	溶媒流量(30%TBP)	140 L/h	溶媒流量(30%TBP)	220 L/h
硝酸供給量*1	17.5 kg/h	硝酸供給量*2	55.6 kg/h	硝酸供給量	4.66 kg/h
HAN供給量	4.46 kg/h	HAN供給量	- kg/h	HAN供給量	- kg/h
HYD供給量	0.86 kg/h	HYD供給量	- kg/h	HYD供給量	- kg/h
蒸気供給量	- kg/h	蒸気供給量	- kg/h	蒸気供給量	- kg/h
NOx供給量	- kg/h	NOx供給量	- kg/h	NOx供給量	64 kg/h
抽出廃液流量	105 L/h	抽出廃液流量	304 L/h	抽出廃液流量	291 L/h
洗浄廃液流量	12 L/h	洗浄廃液流量	7 L/h	洗浄廃液流量	11 L/h

\*1 供給液の希釀用硝酸を含む

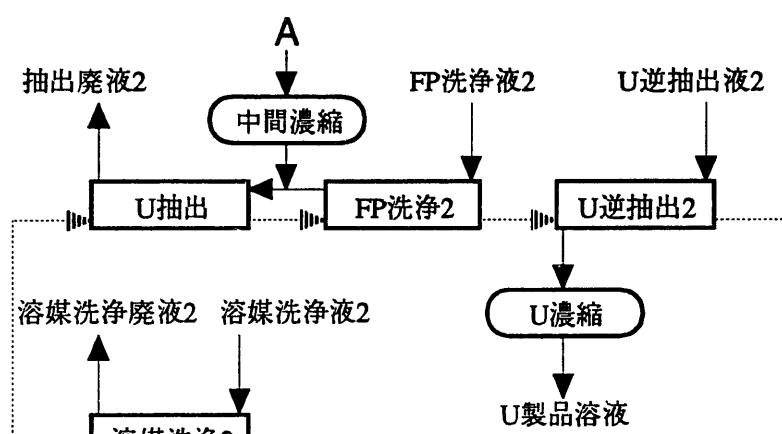
\*2 U精製供給液の酸濃度調整用硝酸を含む

表3.1-2 U/Pu共回収プロセスの除染係数一覧

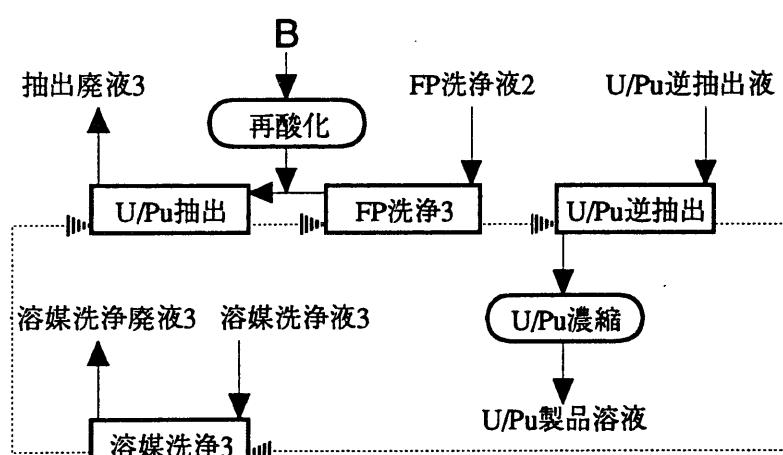
	共除染分配		U精製	U/Pu精製	Total	
	U溶液	U/Pu溶液			U製品	U/Pu製品
U	-	-	-	-	-	-
Pu	6.69E+17	-	1.01E+03	-	6.78E+20	-
Np	9.86E+07	2.15E+00	1.08E+00	1.38E+01	1.07E+08	2.96E+01
Am	-	1.05E+17	-	5.19E+13	-	5.47E+30
Cm	-	9.51E+17	-	3.54E+14	-	3.37E+32
Sr	-	5.95E+26	-	-	-	-
Zr	5.93E+27	1.26E+14	-	1.36E+13	-	1.71E+27
Tc	1.08E+03	1.44E+00	1.26E+01	2.74E+01	1.36E+04	3.95E+01
Ru	1.59E+03	9.46E+01	6.57E+02	1.95E+01	1.05E+06	1.84E+03
Cs	-	9.07E+22	-	-	-	-



a) 共除染・分配

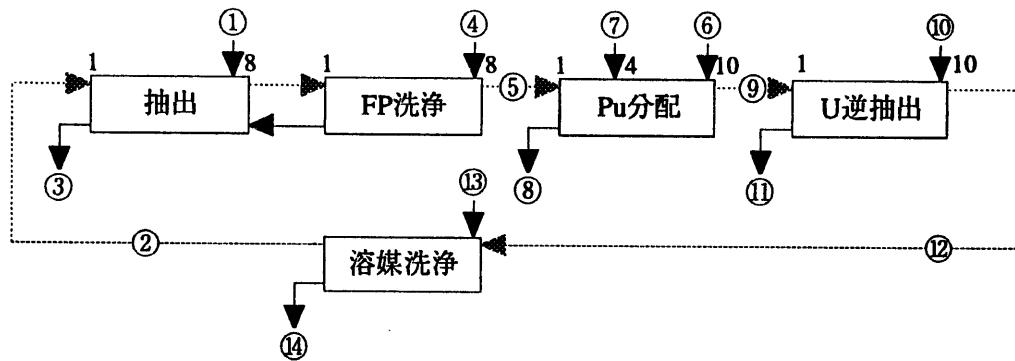


b) U精製



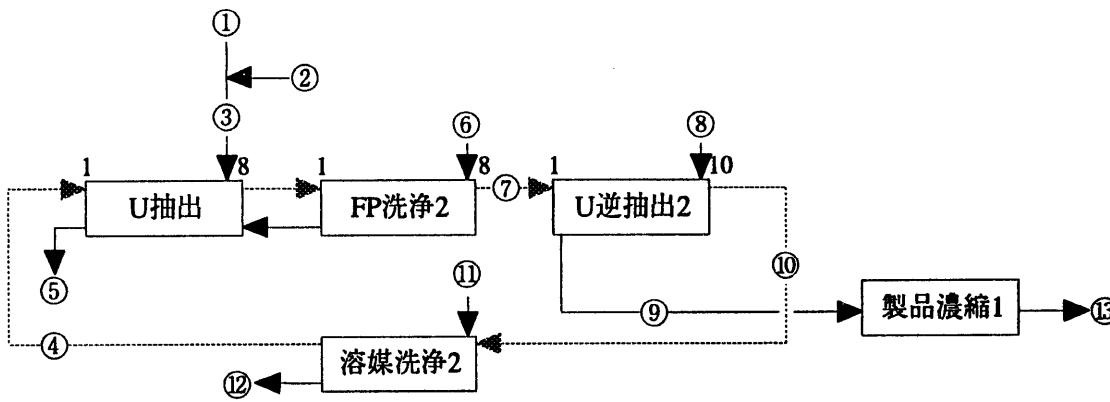
c) Pu精製

図3.2-1 U/Pu共回収プロセスの概念フロー図



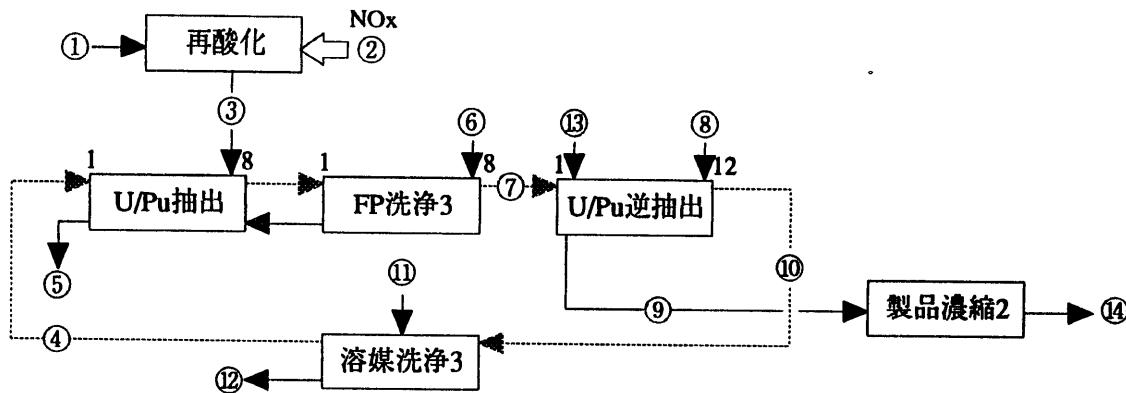
番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
流体名	供給液	供給溶媒	抽出廃液	洗浄液	装荷溶媒	Puストリップ <sup>°</sup>	調整酸	U/Pu溶液	装荷溶媒	逆抽出液	U溶液	溶媒	洗浄液	洗浄廃液
流量	84.6 l/h	240 l/h	104.6 l/h	20 l/h	240 l/h	270 l/h	1 l/h	271 l/h	200 l/h	200 l/h	200 l/h	240 l/h	12 l/h	12 l/h
温度(℃)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	60	60	60		
硝酸(M)	3.0	-	2.4	2.0	0.1/1	0.2	10	0.427	0.0299	0.02	0.0554	0.000413		
U(g/L)	200	-	1.46e-7	-	70.5	-	-	24.2	43.2	-	51.8	8.92e-7		
Pu(g/L)	26.1	-	7.07e-8	-	9.20	-	-	8.15	<1e-10	-	1.01e-17	<1e-10		
Np(g/L)	7.04e-2	-	4.51e-2	-	5.17e-3	-	-	4.68e-3	1.55e-10	-	1.85e-10	1.57e-12		
Am(g/L)	8.47e-1	-	6.85e-1	-	1.29e-18	-	-	1.15e-18	0	-	0	0		
Cm(g/L)	8.57e-2	-	6.93e-2	-	1.45e-20	-	-	1.29e-20	0	-	0	0		
Sr(g/L)	2.43e-1	-	1.97e-1	-	6.60e-29	-	-	5.84e-29	0	-	0	0		
Zr(g/L)	1.31e+0	-	1.06e-1	-	1.68e-15	-	-	1.49e-15	4.44e-29	-	5.72e-29	0.00e+0		
Tc(g/L)	4.18e-1	-	2.30e-1	-	4.69e-2	-	-	4.15e-2	9.42e-5	-	1.00e-4	1.07e-5		
Ru(g/L)	1.58e+0	-	1.24e+0	-	1.62e-2	-	-	2.39e-3	1.35e-2	-	2.57e-4	1.32e-2		
Cs(g/L)	1.99e+0	-	1.61e+0	-	3.54e-24	-	-	3.14e-24	0	-	0	0		
HAN(g/L)	-	-	-	-	-	1.65e+1	-	1.54e+1	-	-	-	-		
HYD(g/L)	-	-	-	-	-	3.20e+0	-	3.19e+0	-	-	-	-		
備考	供給液	30%TBP			30%TBP				30%TBP			30%TBP		7%削廃液

図3.1-2 U/Pu共回収プロセスケミカルフローシート（共除染・分配工程）



番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
流体名	U溶液	調整酸	供給液	供給溶媒	抽出廃液	洗浄液	菱荷溶媒	逆抽出液	精製U	溶媒	洗浄液	洗浄廃液	精製U
流量	200 l/h	84.1 l/h	284.1 l/h	140 l/h	304.1 l/h	20 l/h	140 l/h	150 l/h	150 l/h	140 l/h	7 l/h	7 l/h	34.6 l/h
温度(℃)	60	30	30	30	30	30	30	60	60	60			-
硝酸濃度(M)	0.0554	10	3.0	-	2.85	2.0	0.189	0.02	0.196	0.000413			0.85
U濃度(g/L)	51.8	-	36.5	-	8.20e-6	-	74.1	-	69.1	1.93e-9			300
Pu濃度(g/L)	1.01e-17	-	7.1101e-18	-	6.66e-17	-	1.42e-20	-	1.33e-20	1.18e-31			5.77e-20
Np濃度(g/L)	1.85e-10	-	1.3023e-10	-	8.87e-12	-	2.45e-10	-	2.28e-10	1.68e-13			9.90e-10
Am濃度(g/L)	0	-	0	-	0	-	0	-	0	0			-
Cm濃度(g/L)	0	-	0	-	0	-	0	-	0	0			-
Sr濃度(g/L)	0	-	0	-	0	-	0	-	0	0			-
Zr濃度(g/L)	5.72e-29	-	4.0267e-29	-	3.76e-29	-	0	-	0	0			-
Tc濃度(g/L)	1.00e-4	-	7.03977e-5	-	6.60e-5	-	0.0000117	-	0.0000106	3.44e-7			4.60e-5
Ru濃度(g/L)	2.57e-4	-	1.80922e-4	-	1.66e-4	-	8.38e-6	-	5.22e-7	7.88e-6			2.27e-8
Cs濃度(g/L)	0	-	0	-	0	-	0	-	0	0			-
HAN濃度(M)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-			-
HYD濃度(M)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-			-
備考				30%TBP			30%TBP			30%TBP		TBカリ廃液	

図3.1-3 U/Pu共回収プロセスケミカルフローシート (U精製工程)



番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
流体名	Pu溶液	NOxガス	供給液	供給溶媒	抽出廃液	洗净液	装荷溶媒	逆抽出液	精製Pu	溶媒	洗净液	洗净廃液	調整酸	精製Pu
流量	271 l/h	64 kg/h	271 l/h	220 l/h	291 l/h	20 l/h	220 l/h	200 l/h	200 l/h	220 l/h	11 l/h	11 l/h	3 l/h	28.8 l/h
温度(℃)	30	-	30	30	30	30	30	30	60	60			30	-
硝酸濃度(M)	0.427	-	3.0	-	2.7	2.0	0.342	0.02	0.538	0.000413			10	3.7
U濃度(g/L)	24.2	-	24.2	-	2.29e-7	-	29.8	-	32.3	1.63e-9			-	224
Pu濃度(g/L)	8.15	-	8.15	-	1.42e-6	-	10.0	-	10.9	1.42e-10			-	75.7
Np濃度(g/L)	4.68e-3	-	4.68e-3	-	4.83e-12	-	4.82e-4	-	4.54e-4	6.28e-5			-	0.00315
Am濃度(g/L)	1.15e-18	-	1.15e-18	-	2.07e-21	-	2.73e-32	-	2.96e-32	0			-	2.06e-31
Cm濃度(g/L)	1.29e-20	-	1.29e-20	-	1.51e-23	-	4.48e-35	-	4.86e-35	0			-	3.38e-34
Sr濃度(g/L)	5.84e-29	-	5.84e-29	-	1.05e-32	-	0	-	0	0			-	-
Zr濃度(g/L)	1.49e-15	-	1.49e-15	-	3.04e-17	-	1.34e-28	-	1.46e-28	0			-	1.01e-27
Tc濃度(g/L)	4.15e-2	-	4.15e-2	-	2.14e-2	-	1.91e-3	-	2.02e-3	4.81e-5			-	0.14
Ru濃度(g/L)	2.39e-3	-	2.39e-3	-	1.28e-2	-	1.89e-3	-	1.64e-4	1.74e-3			-	0.00134
Cs濃度(g/L)	3.14e-24	-	3.14e-24	-	9.70e-28	-	0	-	0	0			-	-
HAN濃度(M)	1.54e+1	-	-	-	-	-	-	-	-	-			-	-
HYD濃度(M)	3.19e+0	-	-	-	-	-	-	-	-	-			-	-
備考		NOxガス		30%TBP			30%TBP			30%TBP				

図3.1-4 U/Pu共回収プロセスケミカルフローシート (U/Pu精製工程)

### 3. 2 U/Pu分離回収プロセス

通常の（晶析母液でない）溶解液を供給して、U製品とPu製品を得るプロセスについて検討した。プロセスの概念図を図3.2-1に示す。

このプロセスの抽出工程のフローシート条件を、計算コードMIXSET98を用いて検討した。その結果得られた共除染・分配部、U精製部及びPu精製部のケミカルフローシートをそれぞれ図3.2-2-2、図3.2-3及び図3.2-4に示す。また、このプロセスの諸条件及び除染係数を表3.2-1及び表3.2-2に示す。

U精製工程への供給液は、概念フローのように通常蒸発濃縮を行ってU及び硝酸濃度を高めることもあるが、このプロセスでは前節に述べたU/Pu共回収プロセスと同様に、濃硝酸（10N）を供給して、酸濃度を高めるだけとした。

Pu精製工程への供給液は、前節に述べたU/Pu共回収プロセスと同様に、NO<sub>x</sub>ガスを吹き込むことにより、Pu及びNpの価数調整を行うと同時に、硝酸濃度を調整することとした。

抽出プロセスから得られるU製品溶液中のU濃度は67.6g/L、Pu製品溶液中のPu濃度は31.1g/Lである。転換工程への払出条件（300g-HM/L）への蒸発濃縮に必要な熱量は、U製品溶液で120,000kcal/h及びPu製品溶液で39,000kcal/hであり、それぞれ必要な蒸気流量は6,100kg/h及び2,000kg/hとなる。

表3.2-1 U/Pu分離回収プロセスの諸条件一覧

共除染・分配		U精製		Pu精製	
抽出	8 段	抽出	8 段	抽出	8 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
FP洗浄	8 段	FP洗浄	8 段	FP洗浄	8 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
Pu分配	18 段				
ミキサ部	4 L				
セトラ部	20 L				
U逆抽出1	10 段	U逆抽出2	10 段	Pu逆抽出	10 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
溶媒洗浄	3 段	溶媒洗浄	3 段	溶媒洗浄	3 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
溶媒流量(30%TBP)	315 L/h	溶媒流量(30%TBP)	220 L/h	溶媒流量(30%TBP)	113 L/h
硝酸供給量*1	16.5 kg/h	硝酸供給量*2	82.8 kg/h	硝酸供給量	3.24 kg/h
HAN供給量	1.1 kg/h	HAN供給量	- kg/h	HAN供給量	- kg/h
HYD供給量	0.7 kg/h	HYD供給量	- kg/h	HYD供給量	- kg/h
蒸気供給量	- kg/h	蒸気供給量	- kg/h	蒸気供給量	- kg/h
NOx供給量	- kg/h	NOx供給量	- kg/h	NOx供給量	- kg/h
抽出廃液流量	105 L/h	抽出廃液流量	447 L/h	抽出廃液流量	113 L/h
洗浄廃液流量	16 L/h	洗浄廃液流量	11 L/h	洗浄廃液流量	4 L/h

\*1 供給液の希釈用硝酸を含む

\*2 U精製供給用の酸濃度調整用硝酸を含む

表3.2-2 U/Pu分離回収プロセスの除染係数一覧

	共除染・分配		U精製	Pu精製	Total	
	U溶液	Pu溶液			U製品	Pu製品
U	-	3.13E+05	-	1.00E+00	-	3.13E+05
Pu	1.30E+11	-	1.20E+06	-	1.56E+17	-
Np	7.52E+02	4.83E+00	1.03E+00	4.53E+00	7.78E+02	2.18E+01
Am	-	2.30E+17	-	3.18E+15	-	7.31E+32
Cm	-	2.07E+18	-	4.18E+16	-	8.65E+34
Sr	-	1.30E+27	-	-	-	-
Zr	1.53E+27	2.75E+14	-	6.77E+14	-	1.86E+29
Tc	1.09E+01	4.51E+00	1.05E+01	1.94E+10	1.15E+02	8.75E+10
Ru	9.48E+02	3.99E+03	6.25E+02	2.11E+02	5.92E+05	8.40E+05
Cs	-	4.81E+19	-	-	-	-

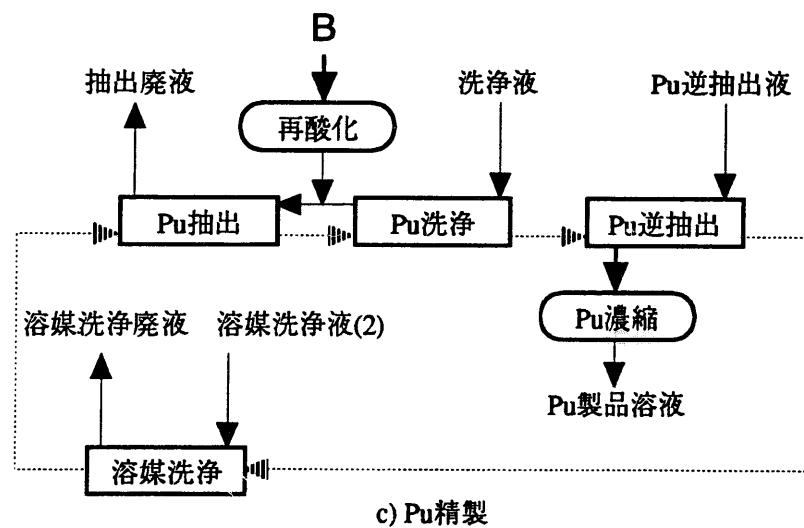
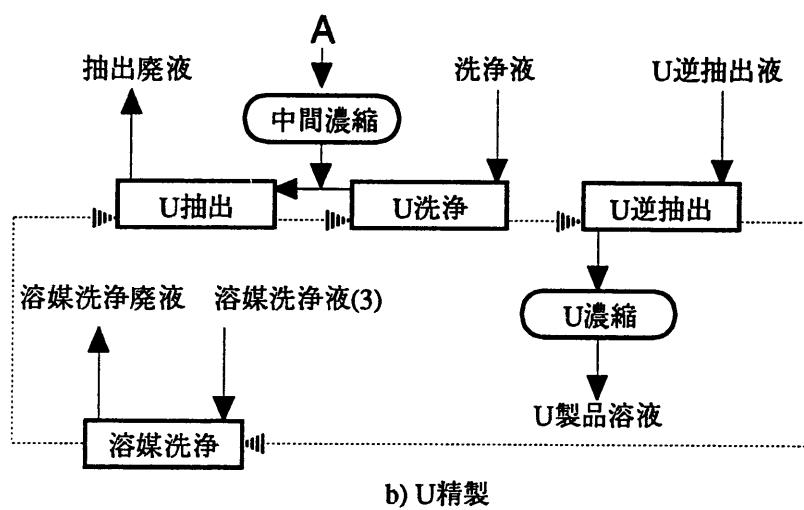
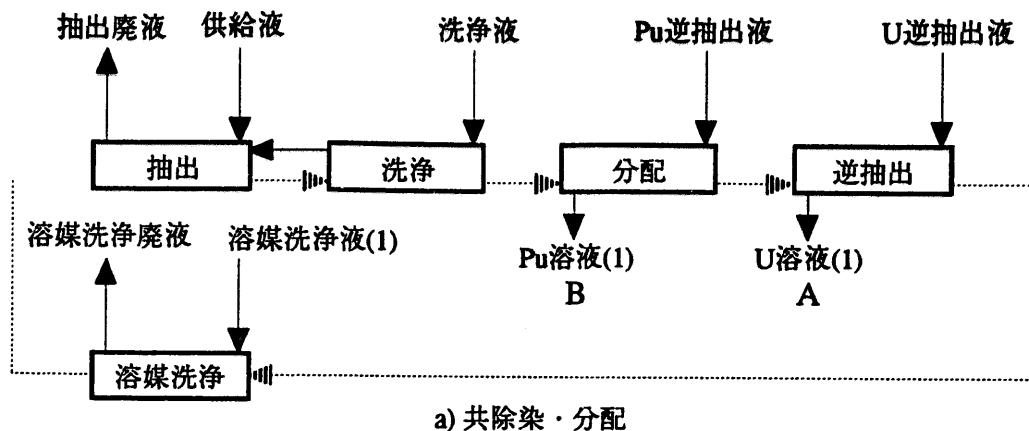
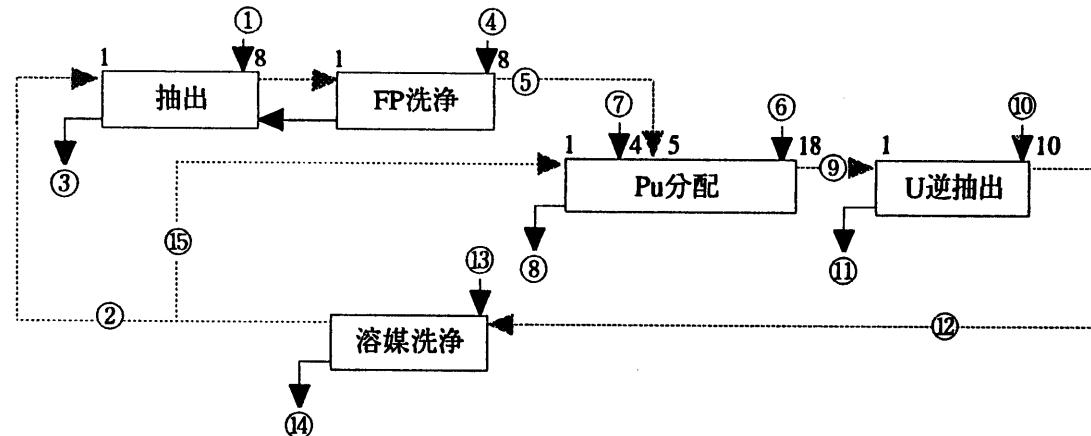
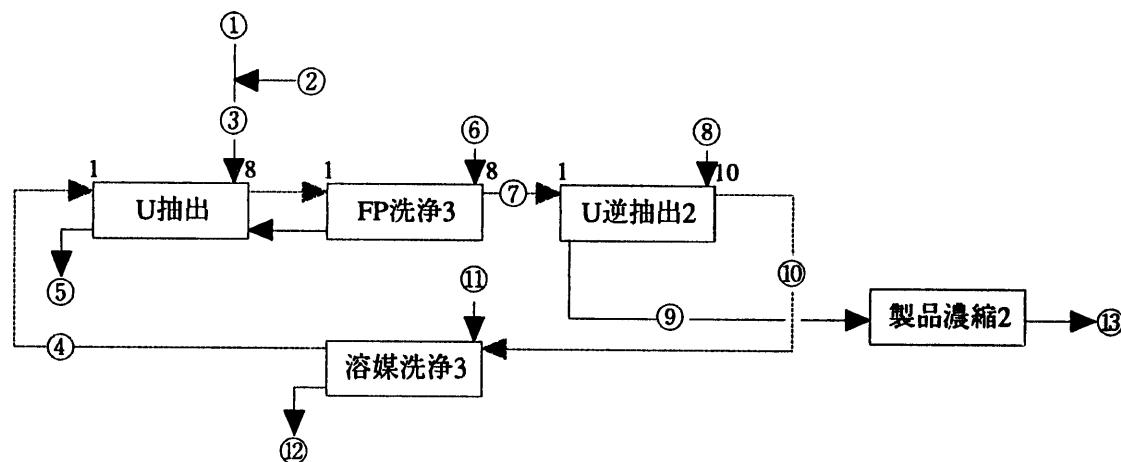


図3.2-1 U/Pu分離回収プロセスの概念フロー図



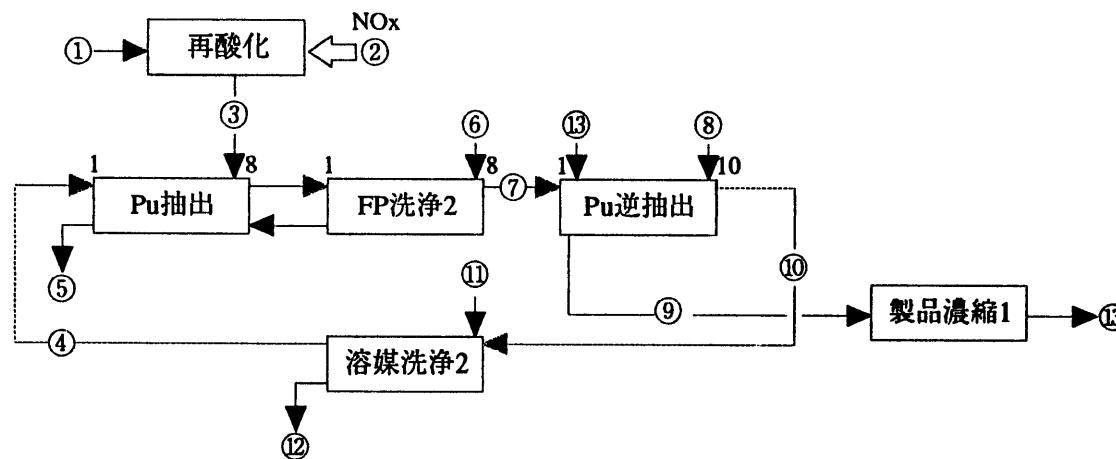
番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
流体名	供給液	供給溶媒	抽出廃液	洗浄液	装荷溶媒	Puストリップ*	調整酸	Pu溶液	含U溶媒	逆抽出液	U溶液	溶媒	洗浄液	洗浄廃液	補助溶媒
流量	84.6 l/h	240 l/h	104.6 l/h	20 l/h	240 l/h	110 l/h	3 l/h	113 l/h	315 l/h	300 l/h	300 l/h	315 l/h	16 l/h	16 l/h	75 l/h
温度(℃)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	60	60	60			30
硝酸(M)	3	-	2.42	2	0.171	0.15	10	0.926	0.0178	0.02	0.0383	0.000413			-
U(g/L)	200	-	1.46e-7	-	70.5	-	-	0.000477	53.7	-	56.4	6.23e-10			-
Pu(g/L)	26.1	-	7.07e-8	-	9.20	-	-	19.5	5.39e-11	-	5.66e-11	<1e-20			-
Np(g/L)	7.04e-2	-	4.51e-2	-	5.17e-3	-	-	1.09e-2	2.53e-5	-	2.64e-5	1.28e-7			-
Am(g/L)	8.47e-1	-	6.85e-1	-	1.29e-18	-	-	2.75e-18	0.00e+0	-	0	0			-
Cm(g/L)	8.57e-2	-	6.93e-2	-	1.45e-20	-	-	3.09e-20	0.00e+0	-	0	0			-
Sr(g/L)	2.43e-1	-	1.97e-1	-	6.60e-29	-	-	1.40e-28	1.12e-31	-	0	0			-
Zr(g/L)	1.31e+0	-	1.06e+0	-	1.68e-15	-	-	3.56e-15	2.11e-16	-	2.41e-28	0e+0			-
Tc(g/L)	4.18e-1	-	2.30e-1	-	4.69e-2	-	-	6.92e-2	2.40e-3	-	1.08e-2	6.75e-4			-
Ru(g/L)	1.58e+0	-	1.24e+0	-	1.62e-2	-	-	2.96e-4	1.27e-2	-	4.70e-4	1.18e-2			-
Cs(g/L)	1.99e+0	-	1.61e+0	-	3.54e-24	-	-	3.09e-20	5.33e-27	-	0	0			-
HAN(g/L)	-	-	-	-	-	9.90e+0	-	6.49e+0	-	-	-	-			-
HYD(g/L)	-	-	-	-	-	6.40e+0	-	5.88e+0	-	-	-	-			-
備考	供給液	30%TBP		30%TBP				30%TBP			30%TBP		7ルカリ廃液	30%TBP	

図3.2-2 U/Pu分離回収プロセスケミカルフローシート（共除染・分配工程）



番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
流体名	U溶液	調整酸	供給液	供給溶媒	抽出廃液	洗浄液	装荷溶媒	逆抽出液	精製U	溶媒	洗浄液	洗浄廃液	精製U
流量	300 l/h	127 l/h	427 l/h	220 l/h	447 l/h	20 l/h	220 l/h	250 l/h	250 l/h	220 l/h	11 l/h	11 l/h	56.3 l/h
温度(℃)	60	30	30	30	30	30	30	60	60	60			-
硝酸濃度(M)	0.0383	10	3.0	-	2.86	2.0	0.187	0.02	0.184	0.000413			8.17e-1
U濃度(g/L)	56.4	-	39.6	-	6.70e-6	-	76.9	-	67.6	9.7e-11			3.00e+2
Pu濃度(g/L)	5.66e-11	-	3.9765e-11	-	3.8e-11	-	6.4e-17	-	5.64e-17	2.56e-29			2.50e-16
Np濃度(g/L)	0.0000264	-	1.85e-5	-	6.28e-7	-	1.91e-6	-	0.0000306	0.0000076			1.36e-4
Am濃度(g/L)	0	-	0	-	0	-	0	-	0	0			-
Cm濃度(g/L)	0	-	0	-	0	-	0	-	0	0			-
Sr濃度(g/L)	0	-	0	-	0	-	0	-	0	0			-
Zr濃度(g/L)	2.41e-28	-	1.6932e-28	-	1.61e-29	-	1.83e-30	-	0	0			-
Tc濃度(g/L)	1.08e-2	-	7.59e-3	-	6.53e-3	-	1.36e-4	-	1.23e-3	1.03e-3			5.46e-3
Ru濃度(g/L)	4.70e-4	-	3.30e-4	-	3.09e-4	-	0.0000764	-	9.02e-7	0.0000135			4.00e-6
Cs濃度(g/L)	0	-	0	-	0	-	0	-	0	0			-
HAN濃度(M)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-			-
HYD濃度(M)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-			-
備考				30%TBP			30%TBP			30%TBP		7%水廃液	

図3.2-3 U/Pu分離回収プロセスケミカルフローシート (U精製工程)



番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
流体名	Pu溶液	NOxガス	供給液	供給溶媒	抽出廃液	洗浄液	装卸溶媒	逆抽出液	精製Pu	溶媒	洗浄液	洗浄廃液	調整酸	精製Pu
流量	113 l/h	65 kg/h	113 l/h	70 l/h	133 l/h	20 l/h	70 l/h	70 l/h	71 l/h	70 l/h	3.5 l/h	3.5 l/h	1 l/h	7.4 l/h
温度(℃)	30	-	30	30	30	30	30	30	60	60			30	
硝酸濃度(M)	0.926	-	3.0	-	2.7	2.0	0.332	0.02	0.487	0.000457			10	4.7
U濃度(g/L)	0.000477	-	0.000477	-	1.92e-11	-	7.71e-4	-	7.60e-4	2.56e-13			-	7.33e-3
Pu濃度(g/L)	19.5	-	19.5	-	2.54e-5	-	31.5	-	31.1	1.29e-12			-	3.00e+2
Np濃度(g/L)	1.09e-2	-	1.09e-2	-	2.89e-9	-	1.76e-2	-	3.84e-3	1.37e-2			-	3.70e-2
Am濃度(g/L)	2.75e-18	-	2.75e-18	-	2.34e-18	-	1.40e-33	-	1.38e-33	0			-	1.33e-32
Cm濃度(g/L)	3.09e-20	-	3.09e-20	-	2.62e-20	-	1.20e-36	-	1.18e-36	0			-	1.14e-35
Sr濃度(g/L)	1.40e-28	-	1.40e-28	-	1.19e-28	-	0	-	0	0			-	-
Zr濃度(g/L)	3.56e-15	-	3.56e-15	-	3.04e-15	-	8.51e-30	-	8.39e-30	0			-	8.09e-29
Tc濃度(g/L)	6.92e-2	-	6.92e-2	-	5.88e-2	-	5.77e-12	-	5.69e-12	3.99e-16			-	5.49e-11
Ru濃度(g/L)	2.96e-4	-	2.96e-4	-	2.29e-4	-	4.37e-5	-	2.24e-6	4.14e-5			-	2.16e-5
Cs濃度(g/L)	3.09e-20	-	3.09e-20	-	6.39e-24	-	0	-	0	0			-	-
HAN濃度(M)	6.49e+0	-	-	-	-	-	-	-	-	-			-	-
HYD濃度(M)	5.88e+0	-	-	-	-	-	-	-	-	-			-	-
備考		NOxガス		30%TBP			30%TBP			30%TBP		7%カリ廃液		

図3.2-4 U/Pu分離回収プロセスケミカルフローシート (Pu精製工程)

### 3. 3 晶析母液抽出プロセス

晶析母液を供給して、Pu富化度25%のU-Pu混合製品を得るプロセスについて検討した。プロセスの概念図を図3.3-1に示す。

このプロセスの抽出工程のフローシート条件を、計算コードMIXSET98を用いて検討した。その結果得られた共除染・分配部、U精製部及びPu精製部のケミカルフローシートをそれぞれ図3.3-2に示す。また、このプロセスの諸条件及び除染係数を表3.3-1及び表3.3-2に示す。

逆抽出部では、還元剤としてHANを使用した。HANは逆抽出部の最終段から供給する計算も行ったが、MIXSETの計算では最終段にHANを供給すると逆抽出性能が悪く、有機相の供給段に近い位置に入れることとした。なぜ最終段にHANを供給すると逆抽出性能を悪く計算するかについては不明である。

抽出プロセスから得られるU/Pu製品溶液中のU濃度は62.9g/L Pu濃度は21.0g/Lである。転換工程への払出条件（300g-HM/L）への蒸発濃縮に必要な熱量は110,000cal/hであり、必要な蒸気流量は5,500kg/hとなる。

表3.3-1 晶析母液抽出プロセスの諸条件一覧

共除染	
抽出	8 段
ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L
FP洗浄	8 段
ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L
U/Pu逆抽出	10 段
ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L
溶媒洗浄	3 段
ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L
溶媒流量(30%TBP)	105 L/h
硝酸供給量	5.41 kg/h
HAN供給量	0.33 kg/h
HYD供給量	0.06 kg/h
蒸気供給量	- kg/h
NOx供給量	- kg/h
抽出廃液流量	60 L/h
洗浄廃液流量	5.25 L/h

表3.3-2 晶析母液抽出プロセスの除染係数一覧

	共除染工程
	U/Pu製品
U	-
Pu	-
Np	5.00E+00
Am	8.78E+22
Cm	1.93E+24
Sr	2.74E+31
Zr	3.65E+18
Tc	6.59E+00
Ru	3.23E+03
Cs	1.18E+27

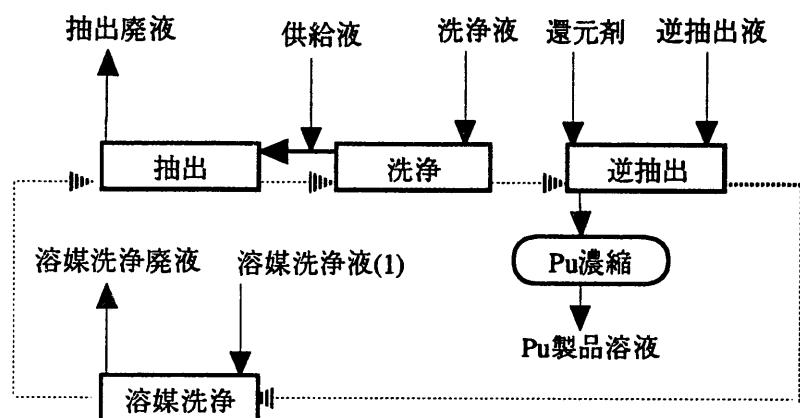
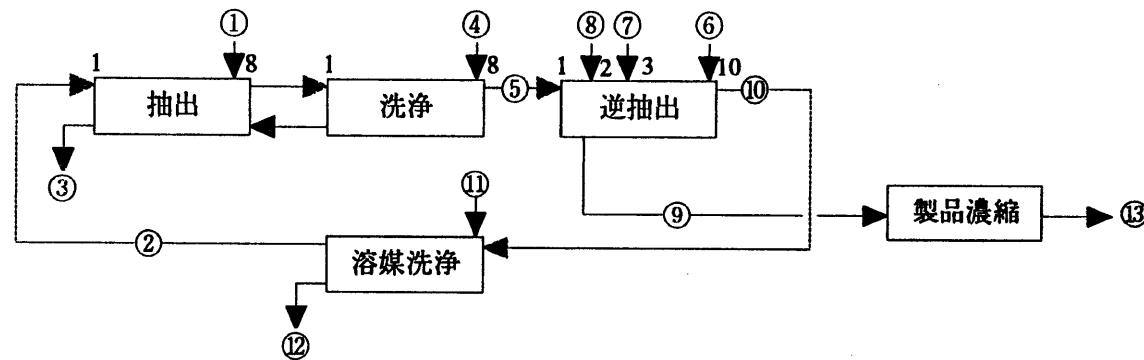


図3.3-1 晶析母液回収プロセスの概念フロー図



番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
流体名	供給液	供給溶媒	抽出廃液	洗浄液	装荷溶媒	逆抽出液	調整酸	調整酸	U/Pu溶液	溶媒	洗浄液	洗浄廃液	U/Pu溶液
流量	40 l/h	105 l/h	60 l/h	20 l/h	105 l/h	190 l/h	10 l/h	5 l/h	205 l/h	105 l/h	12 l/h	12 l/h	29 l/h
温度(℃)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30			-
硝酸(M)	5.0	-	3.6	1.5	0.12	0.02	0.2	10	0.39	4.5688e-4			2.7
U(g/L)	165	-	2.1276e-7	-	62.86	-	-	-	10.75	1.3153e-18			75.1
Pu(g/L)	55.1	-	1.8276e-7	-	20.99	-	-	-	32.2	2.2925e-10			224.9
Np(g/L)	1.49e-1	-	7.93e-2	-	1.14e-2	-	-	-	5.81e-3	7.30e-6			4.06e-2
Am(g/L)	1.79e+0	-	1.19e+0	-	7.77e-24	-	-	-	3.98e-24	0			2.78e-23
Cm(g/L)	1.81e-1	-	1.21e-1	-	3.57e-26	-	-	-	1.83e-26	0			1.28e-25
Sr(g/L)	5.14e-1	-	3.43e-1	-	7.14e-33	-	-	-	3.66e-33	0			2.56e-32
Zr(g/L)	2.76e+0	-	1.84e+0	-	2.88e-19	-	-	-	1.47e-19	0			1.03e-18
Tc(g/L)	8.83e-1	-	4.99e-1	-	5.11e-2	-	-	-	2.61e-2	3.89e-5			1.83e-1
Ru(g/L)	3.34e+0	-	2.22e+0	-	3.92e-3	-	-	-	2.02e-4	3.53e-3			1.41e-3
Cs(g/L)	4.21e+0	-	2.81e+0	-	1.35e-27	-	-	-	6.93e-28	0			4.84e-27
HAN(g/L)	-	-	0	-	0	-	3.30e+1	-	6.85e-1	0			4.79e+0
HYD(g/L)	-	-	0	-	0	-	6.40e+0	-	3.10e-1	0			2.16e+0
備考	供給液	主溶媒	抽出廃液	洗浄液		逆抽出液	還元剤		Pu溶液	使用済溶媒			7Mガラス液

図3.3-2 晶析母液抽出プロセスケミカルフローシート（共除染工程）

### 3. 4 U先行抽出プロセス

その他のプロセスとして、U先行抽出プロセスについて検討した。U先行抽出プロセスは通常の供給液に還元剤（HAN）を添加し、Puの価数を3価に調整した上で抽出工程への供給液とする。これにより、通常の共除染工程の抽出部でPuを抽出廃液側へ追い出してUだけを選択的に回収し（U回収部）、抽出廃液からPuを回収する（Pu回収部）。U回収部では、溶媒中のU負荷度（飽和度）を高めることにより、除染性能を高める。Pu回収部は近年研究が進められている群分離プロセスを適用することも考えられるが、ここでは通常のPUREXプロセスを適用して、Puを選択的に回収するプロセスについて検討した。このプロセスの概念図を図3.4-1に示す。

このプロセスの抽出工程のフローシート条件を、計算コードMIXSET98を用いて検討した。その結果得られたU回収部、Pu回収部のケミカルフローシートをそれぞれ図3.4-2及び図3.4-3に示す。また、このプロセスの諸条件及び除染係数を表3.4-1及び表3.4-2に示す。

抽出プロセスから得られるU製品溶液中のU濃度は84.6g/L、またPu製品溶液中のPu濃度は27.6g/Lである。転換工程への払出条件（300g-HM/L）への蒸発濃縮に必要な熱量はU製品溶液で92,000kcal/h、Pu製品溶液で45,000kcal/hであり、必要な蒸気流量はそれぞれ4,600kg/hおよび7,500kg/hとなる。

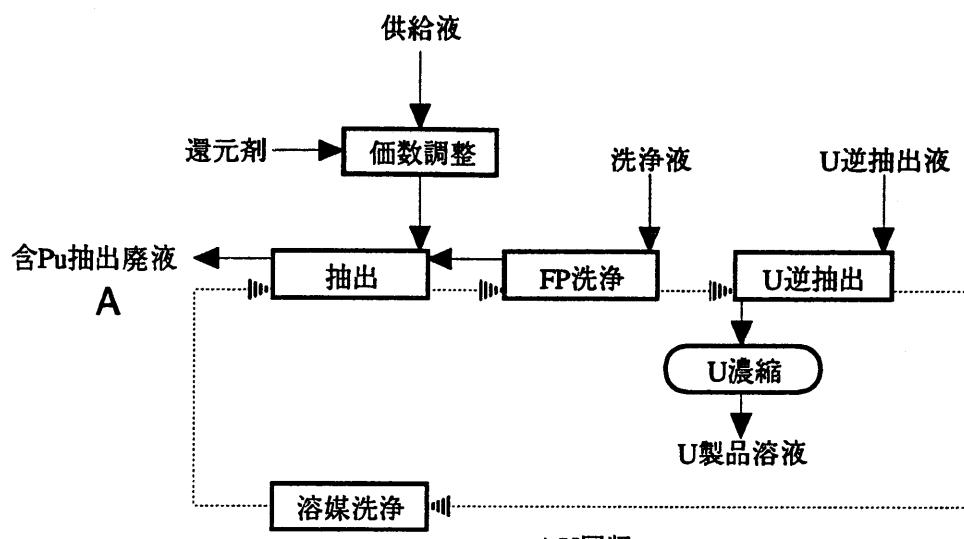
表3.4-1 U先行回収プロセスの諸条件一覧

U回収部		Pu回収部	
抽出・分配	8 段	抽出	8 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
FP洗浄	8 段	FP洗浄	8 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
U逆抽出	10 段	Pu逆抽出	8 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
溶媒洗浄	3 段	溶媒洗浄	3 段
ミキサ部	4 L	ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L	セトラ部	20 L
溶媒流量(30%TBP)	178 L/h	溶媒流量(30%TBP)	75 L/h
硝酸供給量*	13.4 kg/h	硝酸供給量	1.4 kg/h
HAN供給量	1.2 kg/h	HAN供給量	- kg/h
HYD供給量	0.2 kg/h	HYD供給量	- kg/h
蒸気供給量	- kg/h	蒸気供給量	- kg/h
NOx供給量	- kg/h	NOx供給量	- kg/h
抽出廃液流量	104.6 L/h	抽出廃液流量	115 L/h
洗浄廃液流量	8.9 L/h	洗浄廃液流量	3.75 L/h

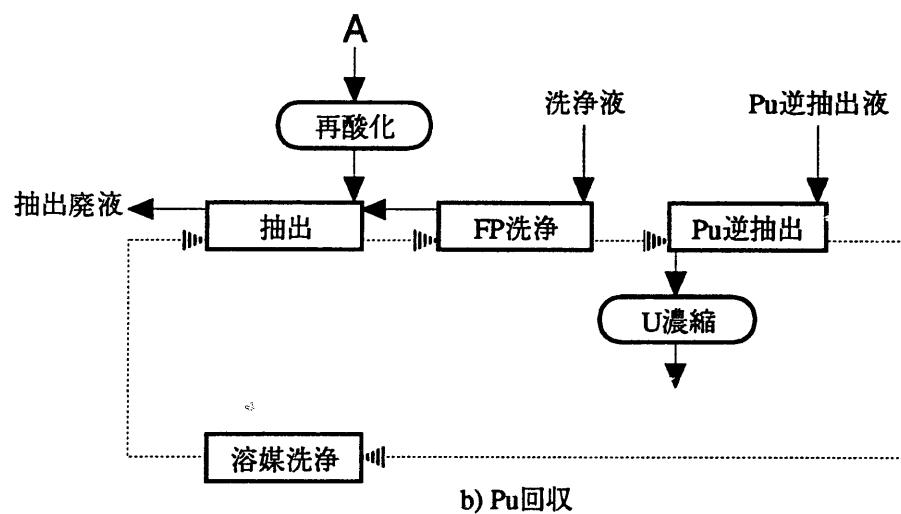
\* 供給液の希釈用硝酸を含む

表3.4-2 U先行抽出プロセスの除染係数一覧

	分配・U精製		Pu 精製	Total	
	Pu溶液	U溶液		Pu製品	U製品
U	5.01E+08	-	1.00E+00	5.01E+08	-
Pu	-	1.41E+14	-	-	1.41E+14
Np	1.11E+00	9.98E+00	1.14E+03	1.27E+03	9.98E+00
Am	1.00E+00	5.25E+22	1.37E+11	1.37E+11	5.25E+22
Cm	1.00E+00	4.27E+23	5.36E+11	5.36E+11	4.27E+23
Sr	9.97E-01	1.23E+31	4.50E+24	4.48E+24	1.23E+31
Zr	9.99E-01	9.62E+17	1.39E+12	1.39E+12	9.62E+17
Tc	1.37E+00	3.75E+00	1.44E+08	1.97E+08	3.75E+00
Ru	9.98E-01	6.37E+03	1.83E+02	1.83E+02	6.37E+03
Cs	9.99E-01	7.72E+25	1.32E+23	1.32E+23	7.72E+25

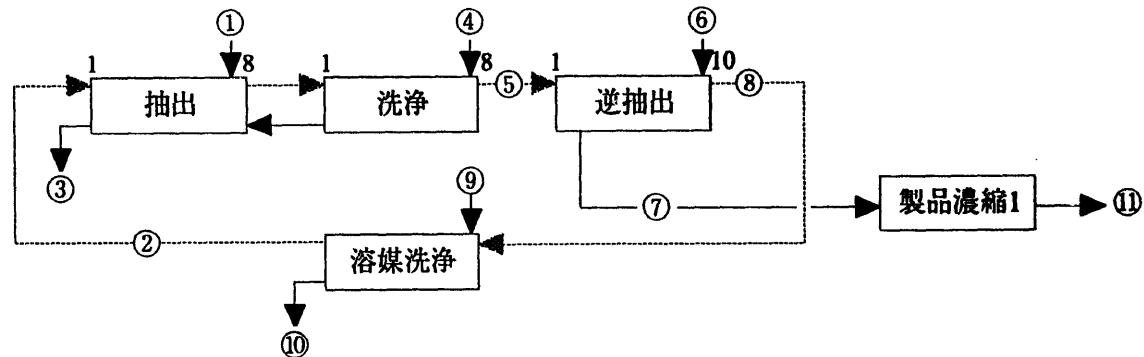


a) U回収



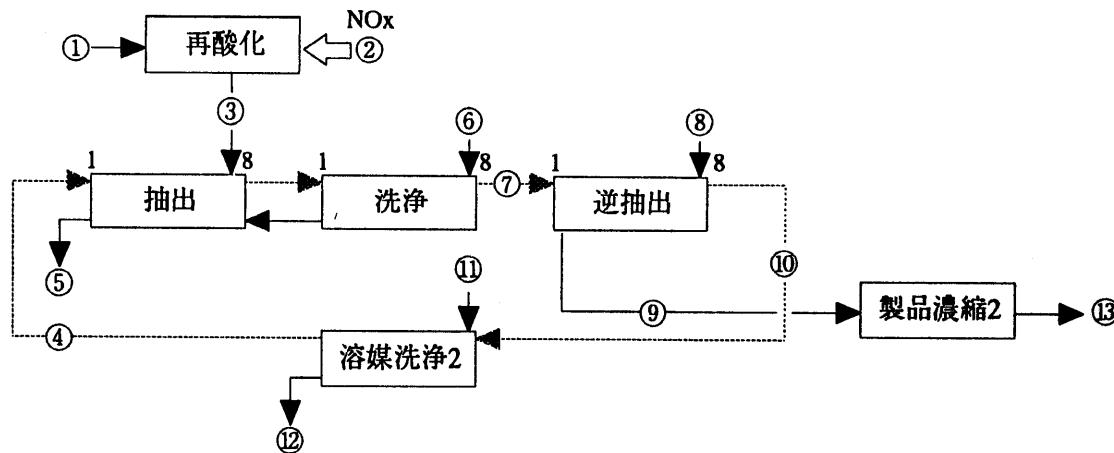
b) Pu回収

図3.4-1 U先行抽出プロセスの概念フロー図



番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
流体名	供給液	供給溶媒	含Pu廃液	洗浄液	装荷溶媒	逆抽出液	U溶液	溶媒	洗浄液	洗浄廃液	U溶液
流量	84.6 l/h	178 l/h	104.6 l/h	20 l/h	178 l/h	200 l/h	200 l/h	178 l/h	12 l/h	12 l/h	56.4 l/h
温度(℃)	30	30	30	30	30	30	60	60			-
硝酸(M)	3.0	-	2.6	-	0.12	0.02	0.13	0.0004			0.46
U(g/L)	200	-	3.23e-7	-	95.1	-	84.6	1.23e-9			300
Pu(g/L)	26.1	-	21.1	-	8.81e-14	-	7.84e-14	0			2.78e-13
Np(g/L)	7.03e-2	-	5.12e-2	-	3.35e-3	-	2.98e-3	1.01e-6			1.06e-2
Am(g/L)	8.47e-1	-	6.85e-1	-	7.68e-24	-	6.83e-24	0			2.42e-23
Cm(g/L)	8.57e-2	-	6.93e-2	-	9.53e-26	-	8.49e-26	0			3.01e-25
Sr(g/L)	2.43e-1	-	1.97e-1	-	9.43e-33	-	8.39e-33	0			2.98e-32
Zr(g/L)	1.31e+0	-	1.06e+0	-	6.47e-19	-	5.76e-19	0			2.04e-18
Tc(g/L)	4.18e-1	-	2.46e-1	-	5.43e-2	-	4.72e-2	1.24e-3			1.67e-1
Ru(g/L)	1.58e+0	-	1.28e+0	-	1.59e-3	-	1.05e-4	1.47e-3			3.72e-4
Cs(g/L)	1.99e+0	-	1.61e+0	-	1.22e-26	-	1.09e-26	0			3.87e-26
HAN(g/L)	1.44e+1	-	1.16e+1	-	0	-	0	0			-
HYD(g/L)	2.80e+0	-	2.26e+0	-	0	-	0	0			-
備考	供給液	主溶媒	Pu溶液	洗浄液		逆抽出液	U溶液	使用済溶媒	YHガ廃液		

図3.4-2 U先行抽出プロセスケミカルフローシート (U回収)



番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
流体名	含Pu廃液	NOxガス	供給液	供給溶媒	抽出廃液	洗浄液	装荷溶媒	逆抽出液	Pu溶液	溶媒	洗浄液	洗浄廃液	Pu溶液
流量	104.6 l/h	50 kg/h	104.6 l/h	75 l/h	114.6 l/h	10 l/h	75 l/h	80 l/h	80 l/h	75 l/h	11 l/h	11 l/h	7.4 l/h
温度(℃)	30	-	30	30	30	30	30	30	30	30			-
硝酸濃度(M)	2.6	-	2.8	-	2.49	2.0	0.371	0.02	3.68e-4	4.57e-4			0.004
U濃度(g/L)	3.23e-7	-	3.23e-7	-	1.98e-15	-	4.5e-7	-	4.22e-7	6.22e-15			4.59e-6
Pu濃度(g/L)	21.1	-	21.1	-	1.89e-6	-	29.4	-	27.6	2.97e-10			300
Np濃度(g/L)	5.12e-2	-	5.12e-2	-	4.67e-2	-	6.24e-5	-	5.85e-5	5.81e-24			6.36e-4
Am濃度(g/L)	6.85e-1	-	6.85e-1	-	6.25e-1	-	6.99e-12	-	6.56e-12	0			7.13e-11
Cm濃度(g/L)	6.93e-2	-	6.93e-2	-	6.33e-2	-	1.80e-13	-	1.69e-13	0			1.84e-12
Sr濃度(g/L)	1.97e-1	-	1.96e-1	-	1.79e-1	-	6.12e-26	-	5.73e-26	0			6.23e-25
Zr濃度(g/L)	1.06e+0	-	1.06e+0	-	9.67e-1	-	1.07e-12	-	1.00e-12	6.32e-31			1.09e-11
Tc濃度(g/L)	2.46e-1	-	2.46e-1	-	2.24e-1	-	2.39e-9	-	2.24e-9	8.57e-13			2.43e-8
Ru濃度(g/L)	1.28e+0	-	1.28e+0	-	1.07e+0	-	1.43e-1	-	9.14e-3	1.32e-1			9.93e-2
Cs濃度(g/L)	1.61e+0	-	1.61e+0	-	1.47e+0	-	1.69e-23	-	1.59e-23	0			1.73e-22
HAN濃度(M)	1.16e+1	-	1.16e+1	-	1.06e+1	-	0	-	-	0			-
HYD濃度(M)	2.26e+0	-	2.26e+0	-	2.07e+0	-	0	-	0	0			-
備考		NOxガス		30%TBP	抽出廃液	洗浄液		逆抽出液	Pu溶液	使用済溶媒	7M-HCl廃液		

図3.4-3 U先行抽出プロセスケミカルフローシート (Pu回収)

### 3. 5 スクラップ削除型単サイクルプロセス

その他のプロセスとして、スクラップ削除型単サイクルプロセスについて検討した。スクラップ削除型単サイクルプロセスの概念図を図3.5-1に示す。このプロセスでは、通常供給液の抽出部の後段に設置されるFP洗浄部を削除して、抽出後すぐにPu分配を行う。さらに、Pu分配部では供給試薬の流量および濃度を調節してPu溶液側にPu富化度25%のU/Pu混合溶液を回収する。

このプロセスの抽出工程のフローシート条件を、計算コードMIXSET98を用いて検討した。その結果得られたケミカルフローシートをそれぞれ図3.5-2に示す。また、このプロセスの諸条件及び除染係数を表3.5-1及び表3.5-2に示す。

抽出プロセスから得られるU/Pu製品溶液中のU濃度は24.2g/L、Pu濃度は8.1g/Lであり、U製品溶液中のU濃度は49.4g/Lである。転換工程への拡出条件（300g-HM/L）への蒸発濃縮に必要な熱量は、U製品溶液で110,000kcal/hおよびU/Pu製品溶液で150,000kcal/hであり、必要な蒸気流量はそれぞれ5,500kg/hおよび7,500kg/hとなる。

表3.5-1 スクラブ削除型単サイクルプロセスの諸条件一覧

共除染	
抽出	8 段
ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L
Pu分配	10 段
ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L
U逆抽出	10 段
ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L
溶媒洗浄	3 段
ミキサ部	4 L
セトラ部	20 L
溶媒流量(30%TBP)	240 L/h
硝酸供給量*	15.0 kg/h
HAN供給量	4.46 kg/h
HYD供給量	0.86 kg/h
蒸気供給量	- kg/h
NOx供給量	- kg/h
抽出廃液流量	84.6 L/h
洗浄廃液流量	12 L/h

\* 供給液の希釀用硝酸を含む

表3.5-2 スクラブ削除型単サイクルプロセスの除染係数一覧

	共除染	
	U製品	U/Pu製品
U	-	-
Pu	6.05E+17	-
Np	1.04E+08	1.23E+00
Am	7.06E+29	1.34E+03
Cm	3.51E+31	1.05E+03
Sr	5.95E+40	1.86E+04
Zr	1.74E+16	7.00E+02
Tc	8.31E+02	2.46E+00
Ru	6.34E+03	4.20E+02
Cs	2.42E+38	3.51E+03

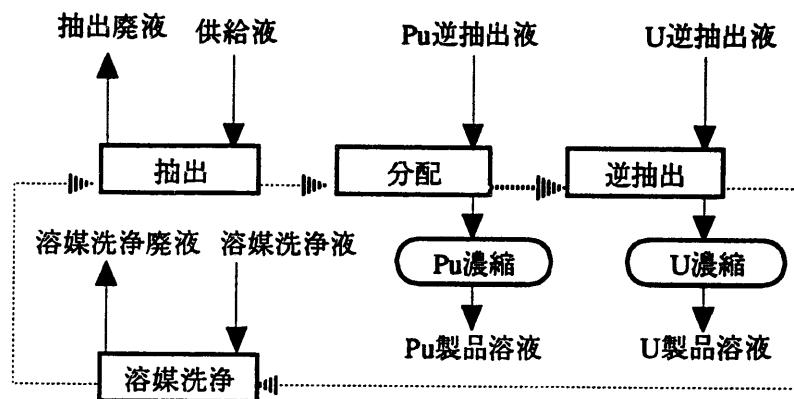
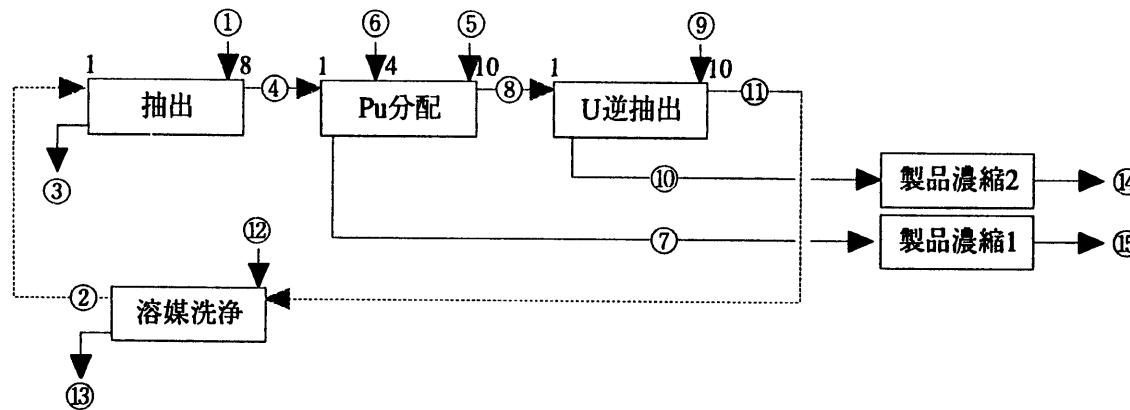


図3.5-1 スクラップ削除型単サイクルプロセスの概念フロー図



番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
流体名	供給液	供給溶媒	抽出廃液	菱荷溶媒	Puストリップ*	調整酸	U/Pu溶液	菱荷溶媒	逆抽出液	U溶液	溶媒	洗浄液	洗浄廃液	U溶液	U/Pu溶液
流量	84.6 l/h	240 l/h	84.6 l/h	240 l/h	270 l/h	1 l/h	271 l/h	240 l/h	210 l/h	210 l/h	240 l/h	12 l/h	12 l/h	34.6 l/h	29.2 l/h
温度(℃)	30	30	30	30	30	30	30	30	60	60	60			-	-
硝酸(M)	3.0	-	2.5	0.18985	0.2	10	0.44	0.03	0.02	0.05	4.1307e-4			0.33	4.11
U(g/L)	200	-	1.1371e-7	70.5	-	-	24.2	43.2	-	49.4	2.2155e-9			300	224
Pu(g/L)	26.1	-	3.5543e-8	9.2	-	-	8.1	9.3262e-18	-	1.0658e-17	1.4448e-31			6.473e-17	76
Np(g/L)	7.04e-2	-	1.32e-2	2.02e-2	-	-	1.79e-2	1.48e-10	-	1.67e-10	1.69e-12			1.01e-9	0.17
Am(g/L)	8.47e-1	-	8.46e-1	2.22e-4	-	-	1.97e-4	2.59e-31	-	2.96e-31	0			1.80e-30	1.83e-3
Cm(g/L)	8.57e-2	-	8.56e-2	2.89e-5	-	-	2.56e-5	5.28e-34	-	6.04e-34	0			3.67e-33	2.37e-4
Sr(g/L)	2.43e-1	-	2.43e-1	4.61e-6	-	-	4.08e-6	8.83e-43	-	1.01e-42	0			6.13e-42	3.79e-5
Zr(g/L)	1.31e+0	-	1.31e+0	6.59e-4	-	-	5.84e-4	1.63e-17	-	1.86e-17	0			1.13e-16	5.42e-3
Tc(g/L)	4.18e-1	-	2.48e-1	5.99e-2	-	-	5.30e-2	1.20e-4	-	1.24e-4	1.09e-5			7.54e-4	4.92e-1
Ru(g/L)	1.58e+0	-	1.57e+0	4.79e-3	-	-	1.17e-3	3.46e-3	-	6.15e-5	3.41e-3			3.74e-4	1.09e-2
Cs(g/L)	1.99e+0	-	1.99e+0	2.00e-4	-	-	1.77e-4	1.78e-39	-	2.03e-39	0			1.23e-38	1.64e-3
HAN(g/L)	0	-	0	0	1.65e+1	-	1.54e+1	0	-	0	0			-	
HYD(g/L)	0	-	0	0	3.20e+0	-	3.19e+0	0	-	0	0			-	
備考	供給液	主溶媒	抽出廃液		Pu抽出液		Pu溶液		U逆抽出液	U溶液	使用済溶媒		アルカリ廃液		

図3.5-2 スクラブ削除型単サイクルプロセスケミカルフローシート（共除染工程）

#### 4. 計算結果と文献値の比較

3章で検討した各プロセスの諸条件を比較して表4-1に示す。また、ケミカルフローシートから得られる、除染係数の一覧を表4-2に示す。表4-2には、2章で調査した文献値も同時に示した。除染係数の文献値が存在する核種が限られているために、計算結果と比較可能なデータは少ないが、Zr、RuあるいはNpについては一部比較ができる。

第1サイクルにおけるZrの除染係数は、Eurochemicの $10^5$ という高い値を除いては実績値で800～6,000程度の値が報告されている。計算結果の場合、従来のPUREX法と特に違ひがないU/Pu分離回収プロセスでは $10^{14}$ ～ $10^{27}$ と極めて高い除染係数を与えた。精製工程についても、文献値では概ね $10^2$ ～ $10^3$ のオーダーの除染係数が報告されているが、計算ではやはり $10^{14}$ 以上の値が得られている。Zrは溶媒の劣化生成物であるDBPが存在する系では、分配係数が高くなることが知られているが、本計算ではこの効果を無視している。このことが、計算結果と実績値との大きな差異の一因であると考えられる。

Ruの除染係数は、第1サイクルで $10^3$ ～ $10^4$ のオーダーの実績値が報告されている。計算結果でもこれと同じオーダーの除染係数が得られた。第1サイクル（共除染・分配）の計算結果のうち、最も除染係数の高いプロセスはU先行抽出プロセスであった。これは、共除染部で溶媒に対するUの飽和度を高くした結果、Ruの抽出に寄与するフリーTBP濃度が低下し、Ruの抽出が抑制されたためだと考えられる。精製工程におけるRuの除染係数は、文献値ではBarnwellの設計推定値を除いて $10^0$ ～ $10^2$ のオーダーであるのに対して、計算値は $10^1$ ～ $10^2$ の値が得られた。

Npの除染係数は、第1サイクルに対する文献値が存在しないが、計算値は $10^0$ ～ $10^7$ の極めて広い範囲の値が得られた。しかし、試薬流量や濃度などに多少の違いがあったとしても、これほど大きな差異が表れることは考えにくい。計算コードに組み込まれている分配係数の相関式（付録1参照）に問題があると思われる。

これら以外の個々の核種の除染係数については、文献値が存在しないが、 $\beta_\gamma$ あるいはFP Totalとしての除染係数データが報告されている。このようなオーバーオールの除染係数の実績値は、第1サイクルで $10^3$ ～ $10^5$ （UP3は $>2 \times 10^5$ ）、U精製工程で $10^2$ 、Pu精製工程で $10^0$ ～ $10^2$ の値が報告されている。これに対して、計算結果は第1サイクルについてはSr、Cs等に対して $10^{10}$ 以上の除染係数、Tcに対して $10^0$ ～ $10^3$ の除染係数を示している。

昨年度選定した、晶析母液抽出プロセスの除染係数は、従来のプロセスで得られるPu製品の除染係数に比べて、どの核種についても概ね $10^1$ ～ $10^2$ 程度低い値が得られた。一方、スクラップ削除型単サイクルプロセスの場合、U製品側は比較的高い除染係数が得られたが、Pu製品側の除染係数はかなり低い値が得られた。

表4-1 各プロセスの諸条件の比較

プロセス名	項目 工程	抽出器 段数	溶媒流量 30%TBP	硝酸 供給量*1	HAN 供給量	HYD 供給量	蒸気 供給量	NOx 供給量	抽出廃液 流量	洗净廃液 流量
		-	L/h	kg/h	kg/h	kg/h	kg/h	kg/h	L/h	L/h
U/Pu共回収 プロセス	共除染・分配	39	240	17.5	4.46	0.86	-	-	105	12
	U精製	29	140	55.6	-	-	3600	-	304	7
	U/Pu精製	31	220	4.66	-	-	5300	64	291	11
	合計	99	600	77.76	4.46	0.86	8900	64	700	30
U/Pu分離回収 プロセス	共除染・分配	47	315	16.5	1.1	0.7	-	-	105	12
	U精製	29	220	82.8	-	-	6100	-	447	11
	U/Pu精製	29	113	3.24	-	-	2000	65	113	4
	合計	105	648	102.54	1.1	0.7	8100	65	665	27
晶析母液抽出 プロセス	共除染	29	105	5.41	0.33	0.06	5500	-	60	5.3
U先行抽出 プロセス	U回収	29	178	13.4	1.2	0.2	4600	-	105	8.9
	Pu回収	27	75	1.4	-	-	2200	50	115	3.8
	合計	56	253	14.8	1.2	0.2	6800	50	220	12.7
スクラップ削除 型単サイクル プロセス	共除染・分配	31	240	15	4.46	0.86	13000	-	84.6	12



## 5. 昨年度検討の主要機器のCADデータ化

昨年度の設計研究において機器概念を作成した主要機器について、CADデータ化を行った。

表5-1にCADデータ化を行った機器を示す。

表5-1 CADデータ化を行った機器

工程	機器	鳥瞰図	3次元元図
抽出工程	抽出器	図5-1	図5-11
抽出工程	溶液受入供給槽	図5-2	図5-12
抽出工程	溶媒受槽	図5-3	図5-13
製品蒸発工程	製品蒸発缶	図5-4	図5-14
HAW蒸発濃縮工程	HAW蒸発缶	図5-5	図5-15
アセスオフガス処理工程	オフガス洗浄塔	図5-6	図5-16
極低レベル廃液濃縮工程	廃液濃縮缶	図5-7	図5-17
低レベル廃液濃縮工程	廃液濃縮缶	図5-8	図5-18
中レベル廃液濃縮工程	廃液濃縮缶	図5-9	図5-19
中レベル廃液濃縮工程	廃洗浄液電解槽	図5-10	図5-20

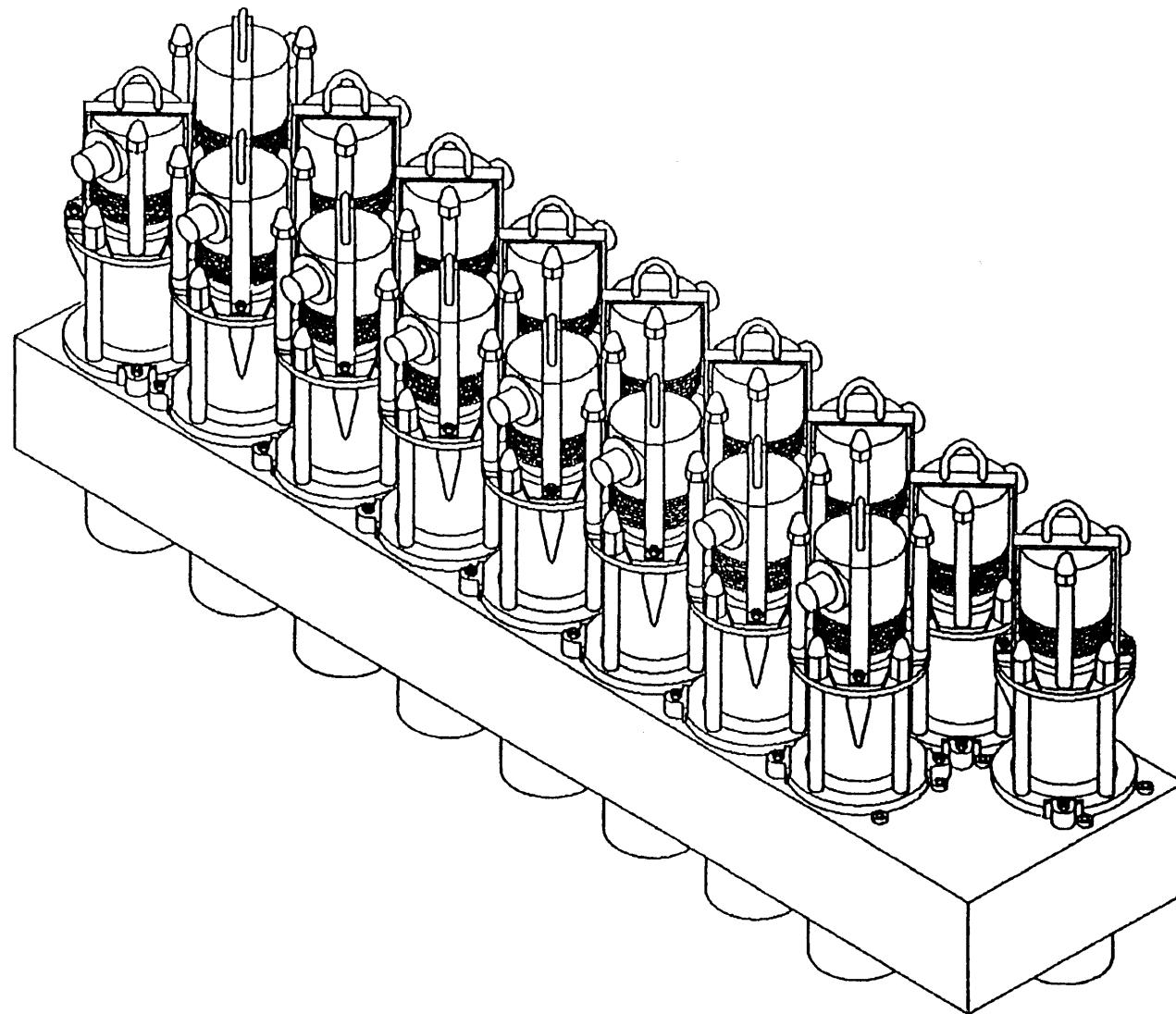


図 5 - 1 鳥瞰図（抽出工程；抽出器）

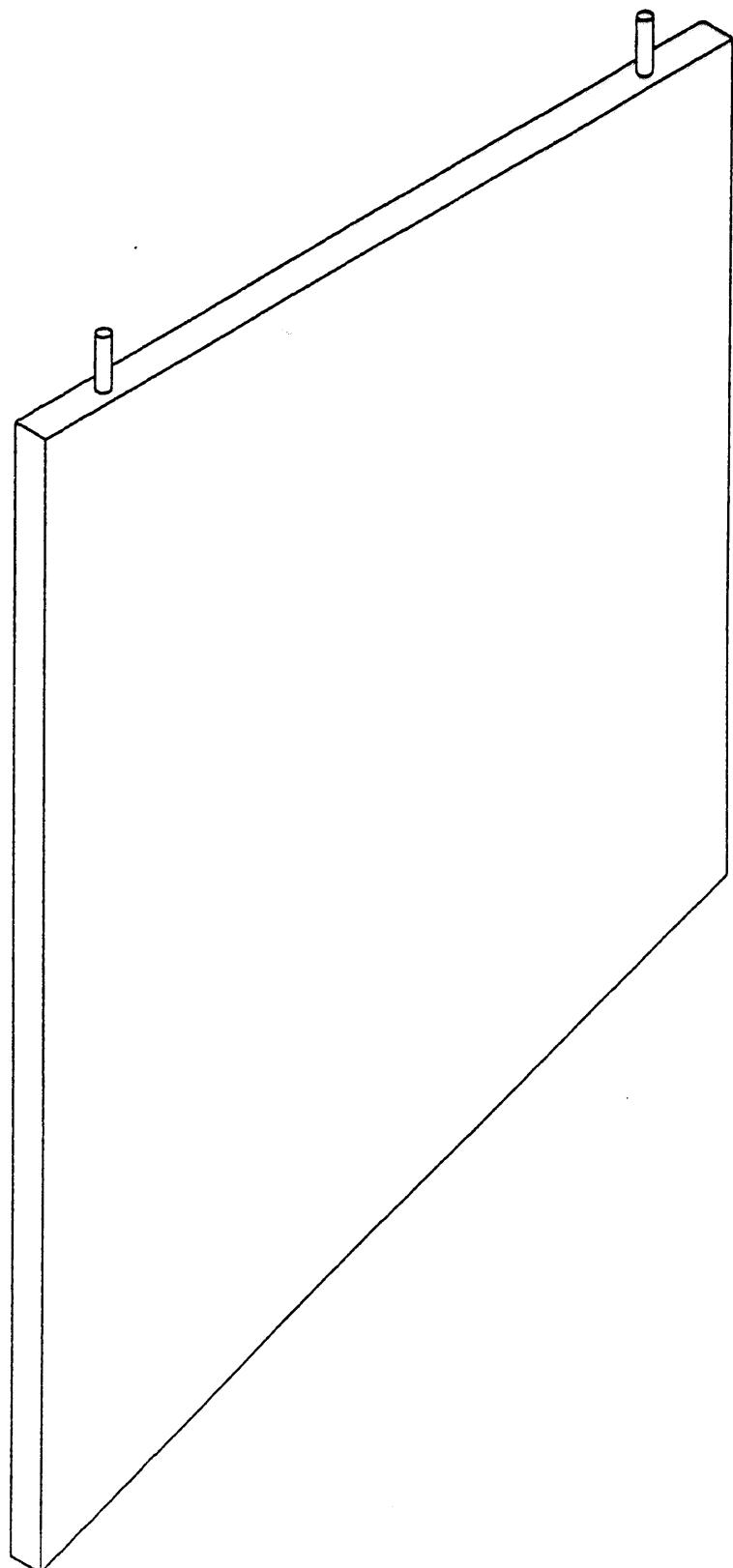


図 5-2 鳥瞰図（抽出工程；溶液受入供給槽）

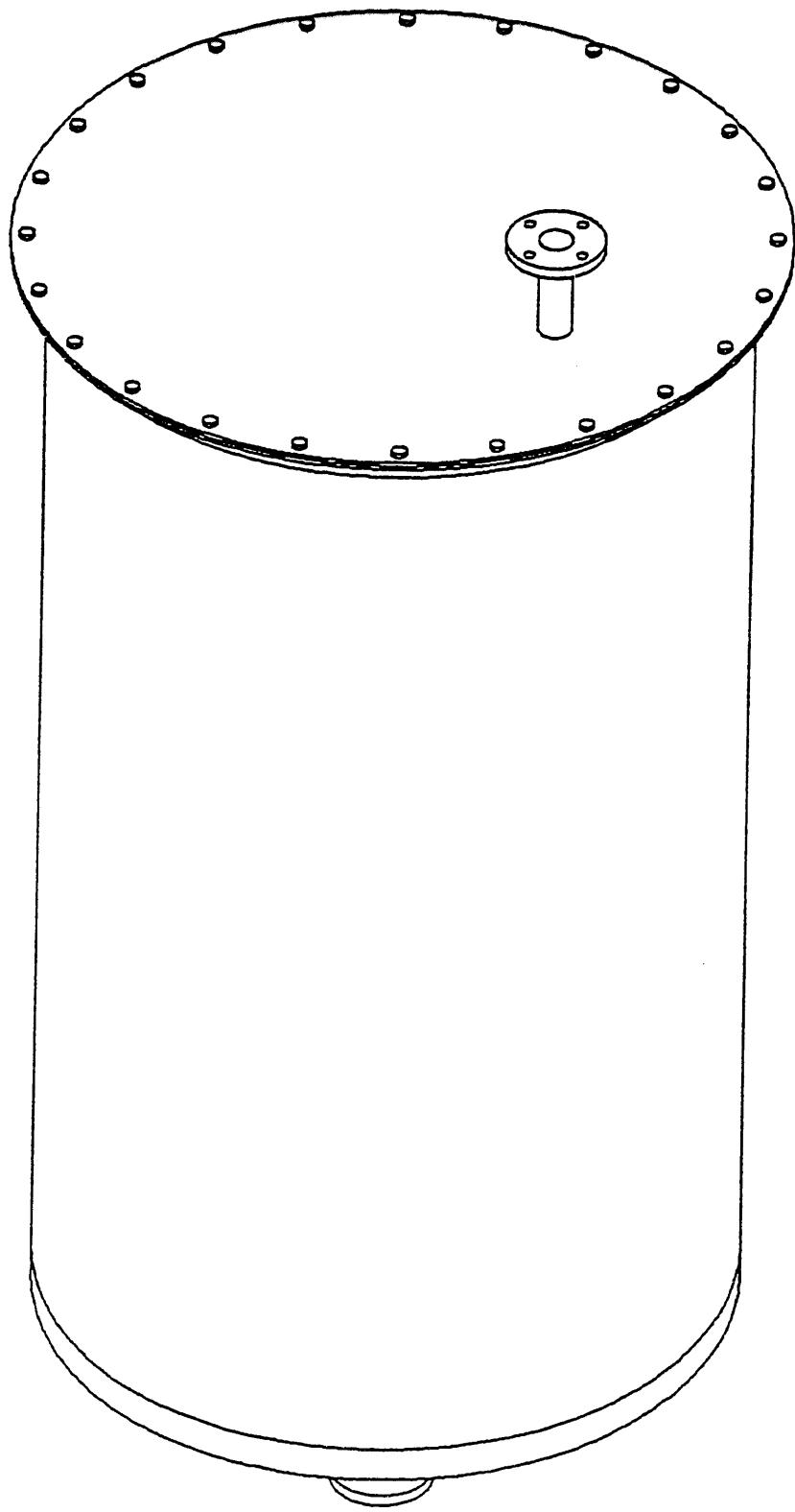


図 5-3 鳥瞰図（抽出工程；溶媒受槽）

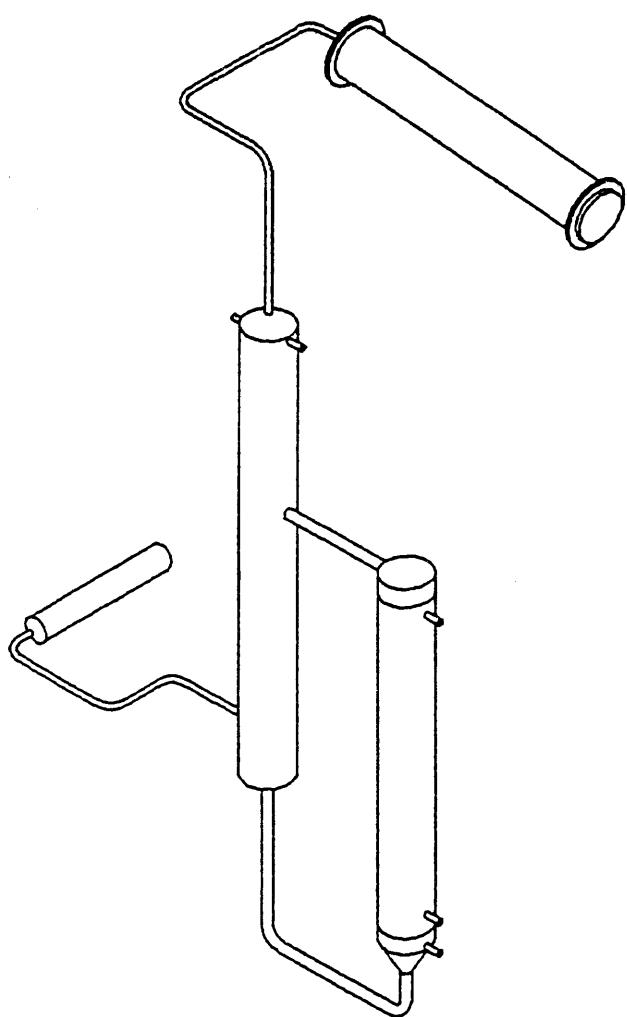


図 5-4 鳥瞰図（製品蒸発工程；製品蒸発缶）

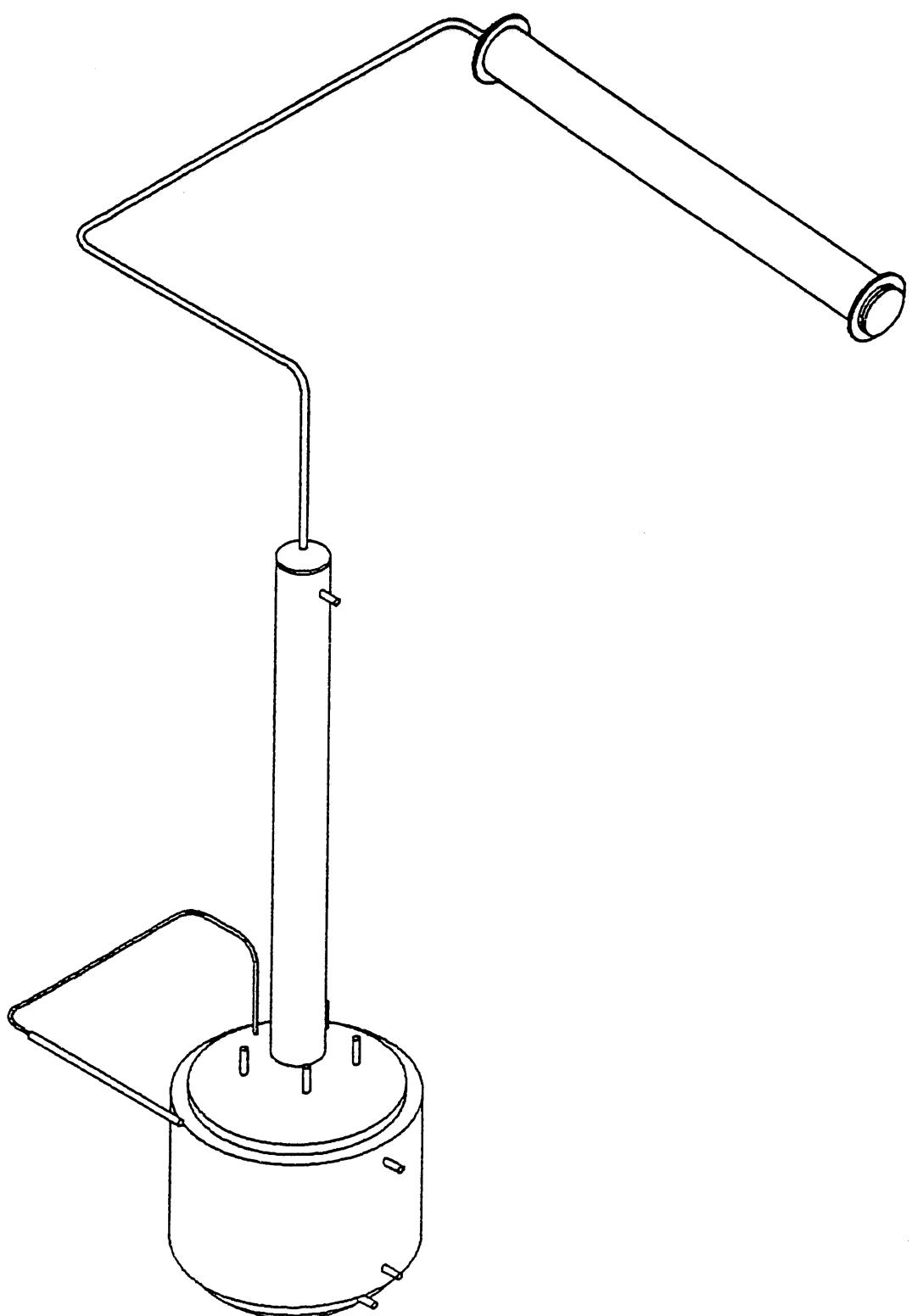


図5-5 鳥瞰図 (HAW蒸発濃縮工程; HAW蒸発缶)

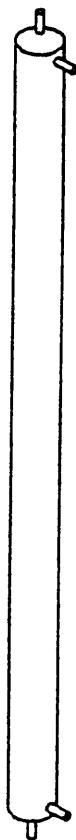


図 5-6 鳥瞰図（プロセスオフガス処理工程；オフガス洗浄塔）

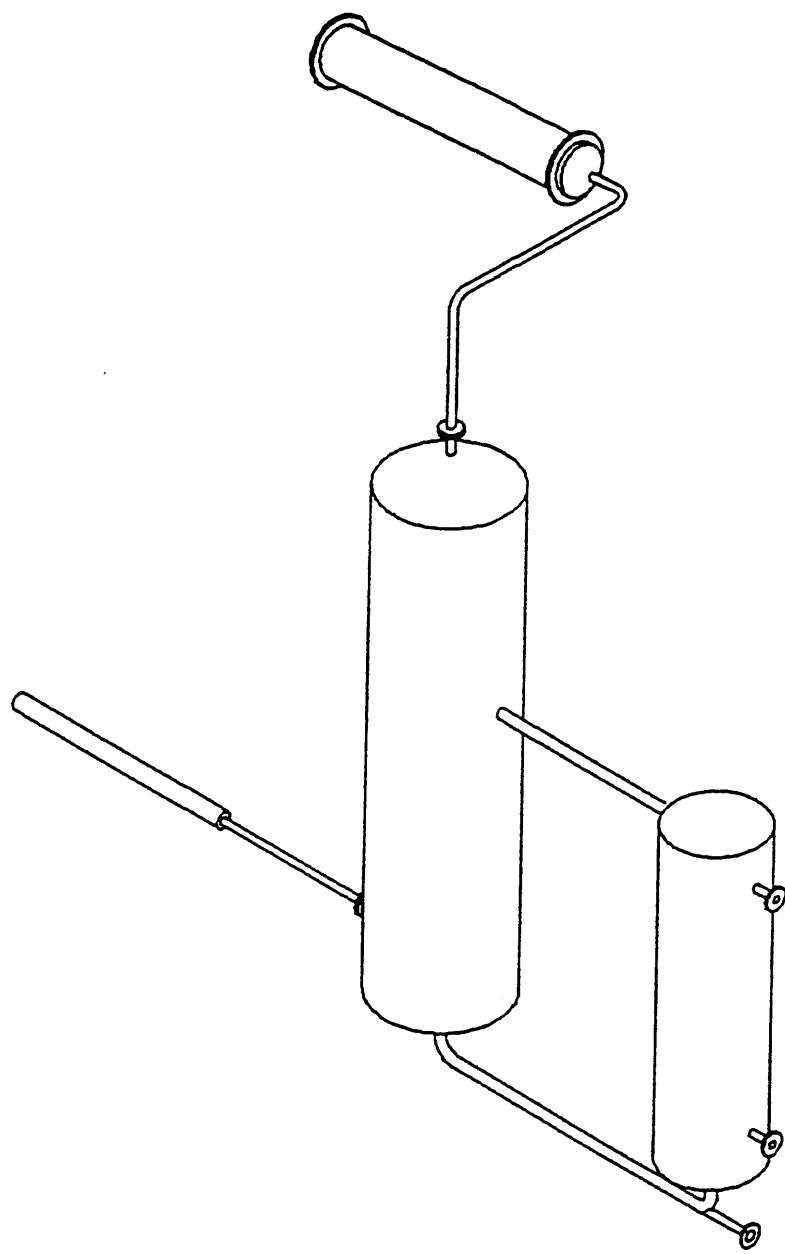


図 5 - 7 鳥瞰図（極低レベル廃液濃縮工程；廃液濃縮缶）

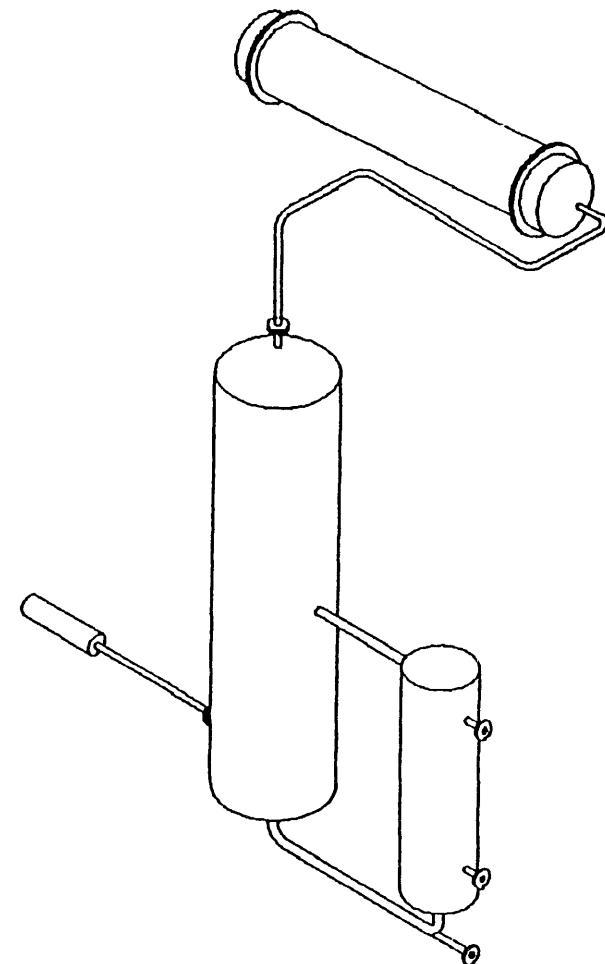


図 5-8 鳥瞰図（低レベル廃液濃縮工程；廃液濃縮缶）

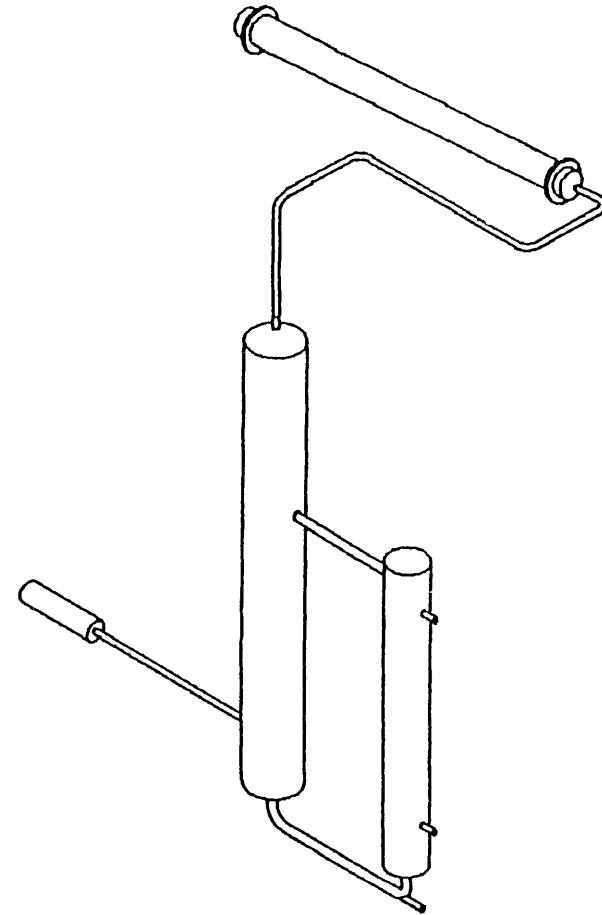


図5-9 鳥瞰図（中レベル廃液濃縮工程：廃液濃縮缶）

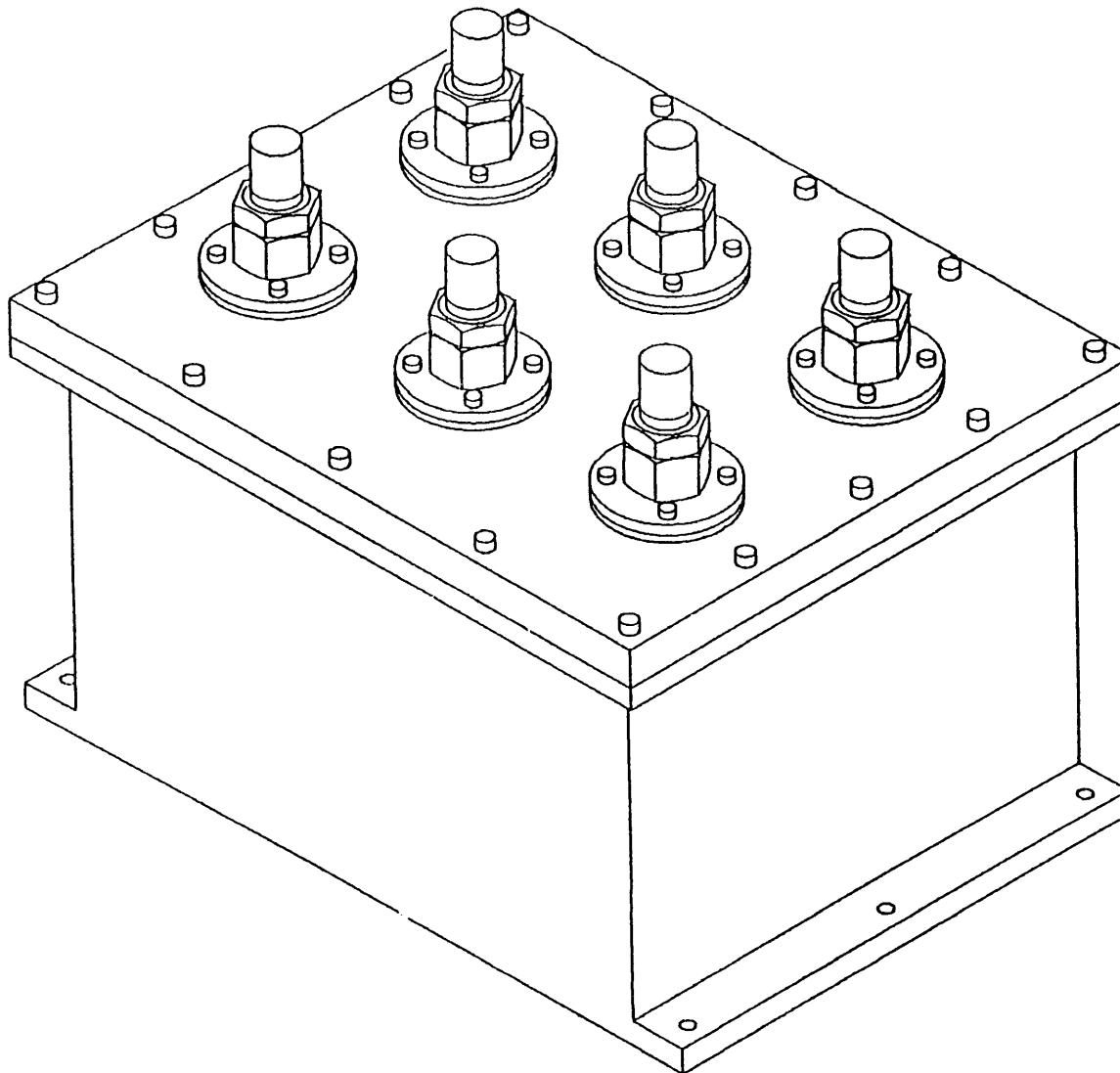


図 5-10 鳥瞰図（中レベル廃液濃縮工程；廃洗浄液電解槽）

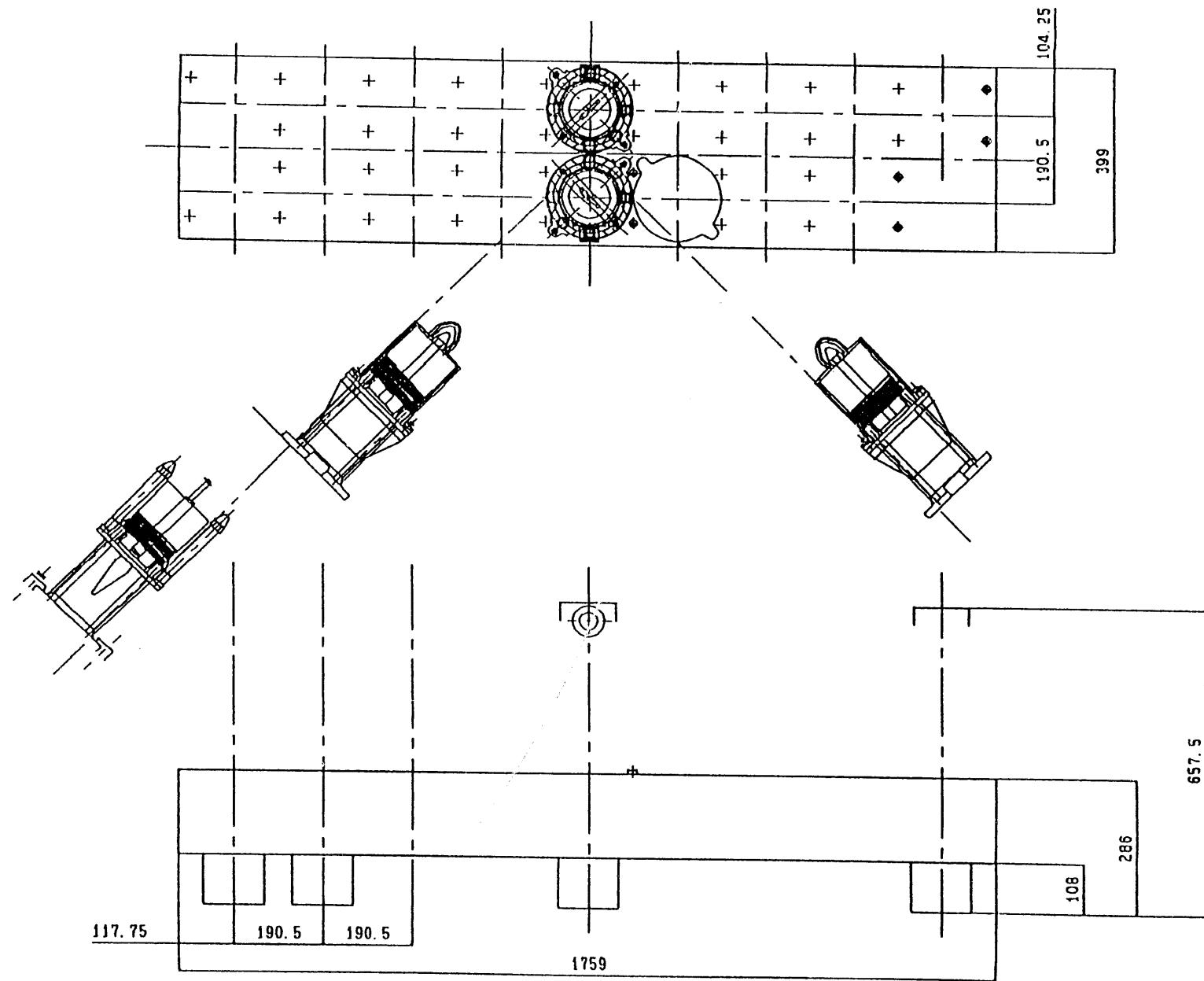


図5-11 3次元元図（抽出工程；抽出器）

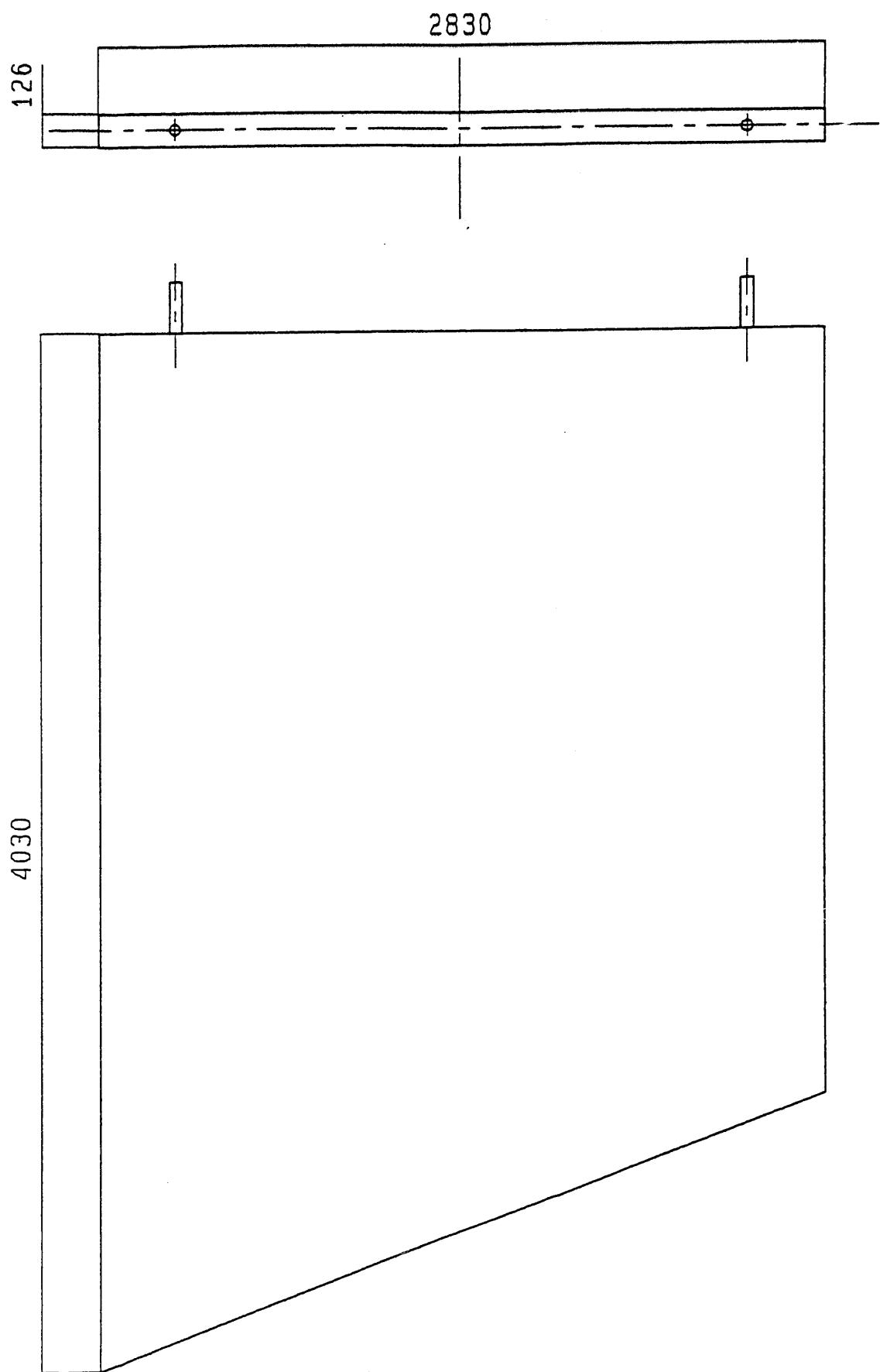


図 5 - 1 2 3 次元元図 (抽出工程 ; 溶液受入供給槽)

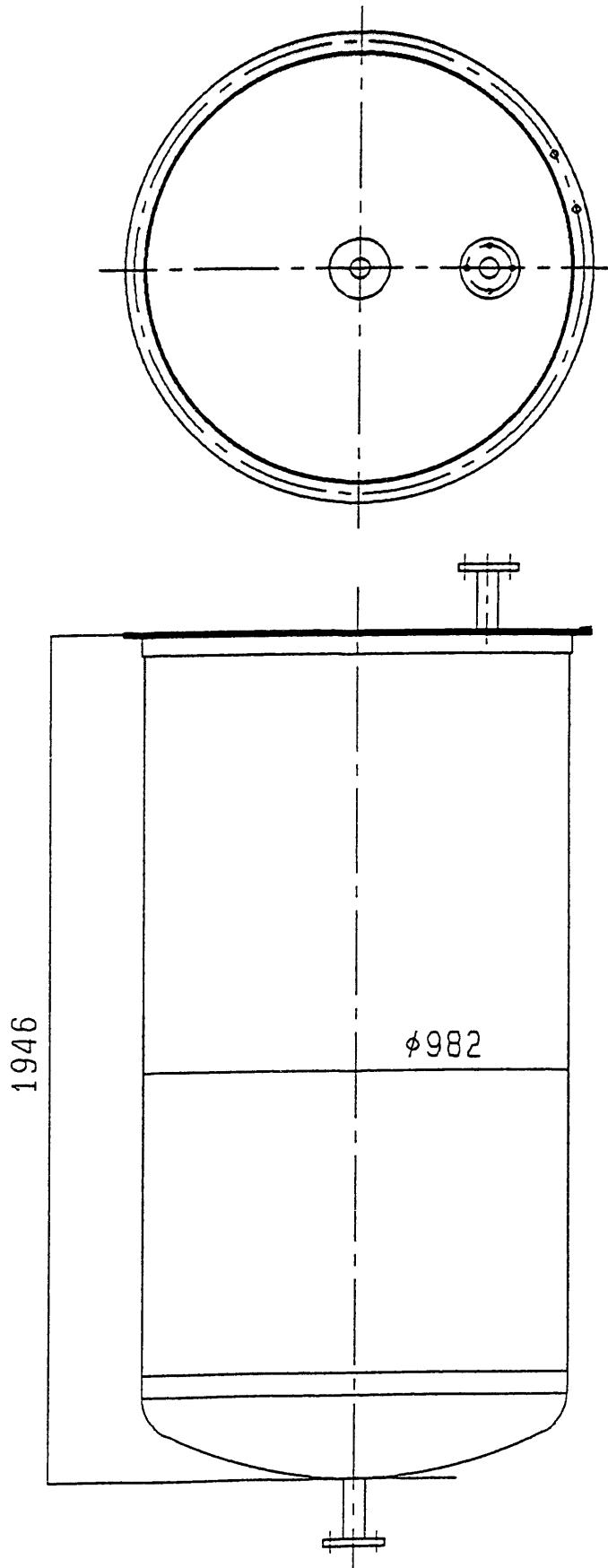


図 5 - 1 3 3 次元元図 (抽出工程 ; 溶媒受槽)

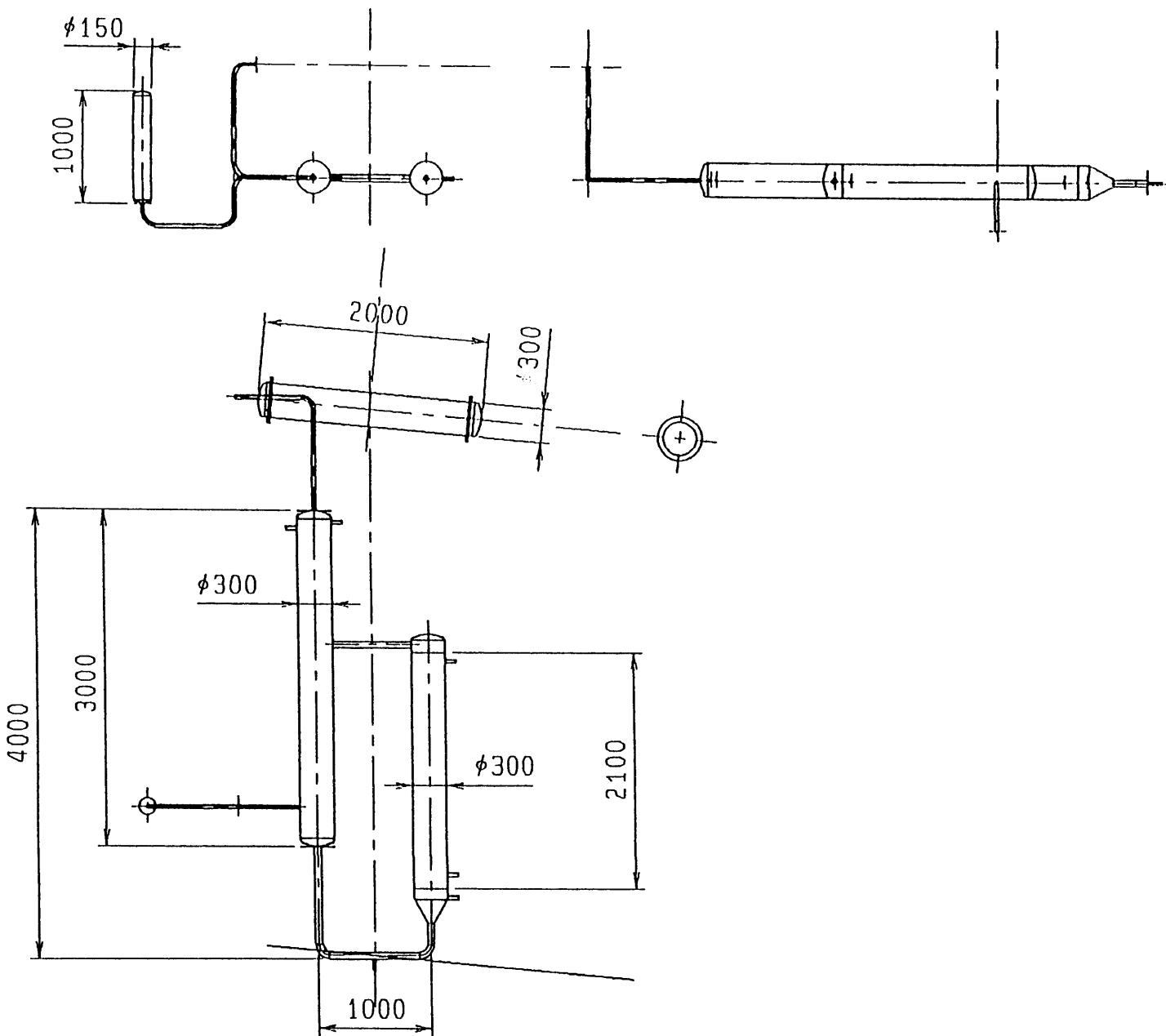


図 5-14 3次元元図（製品蒸発工程；製品蒸発缶）

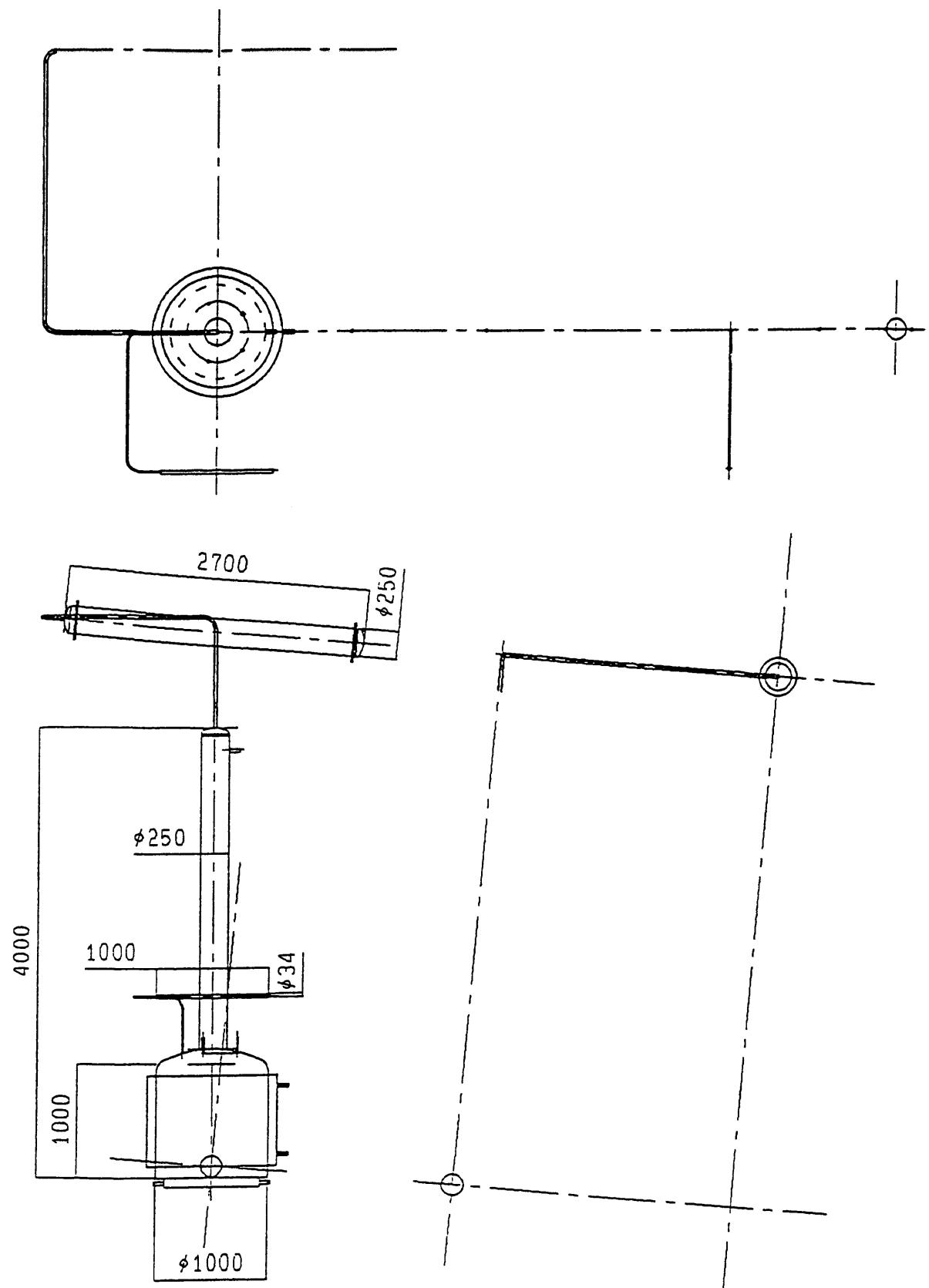


図 5-15 3次元元図 (HAW蒸発濃縮工程 ; HAW蒸発缶)

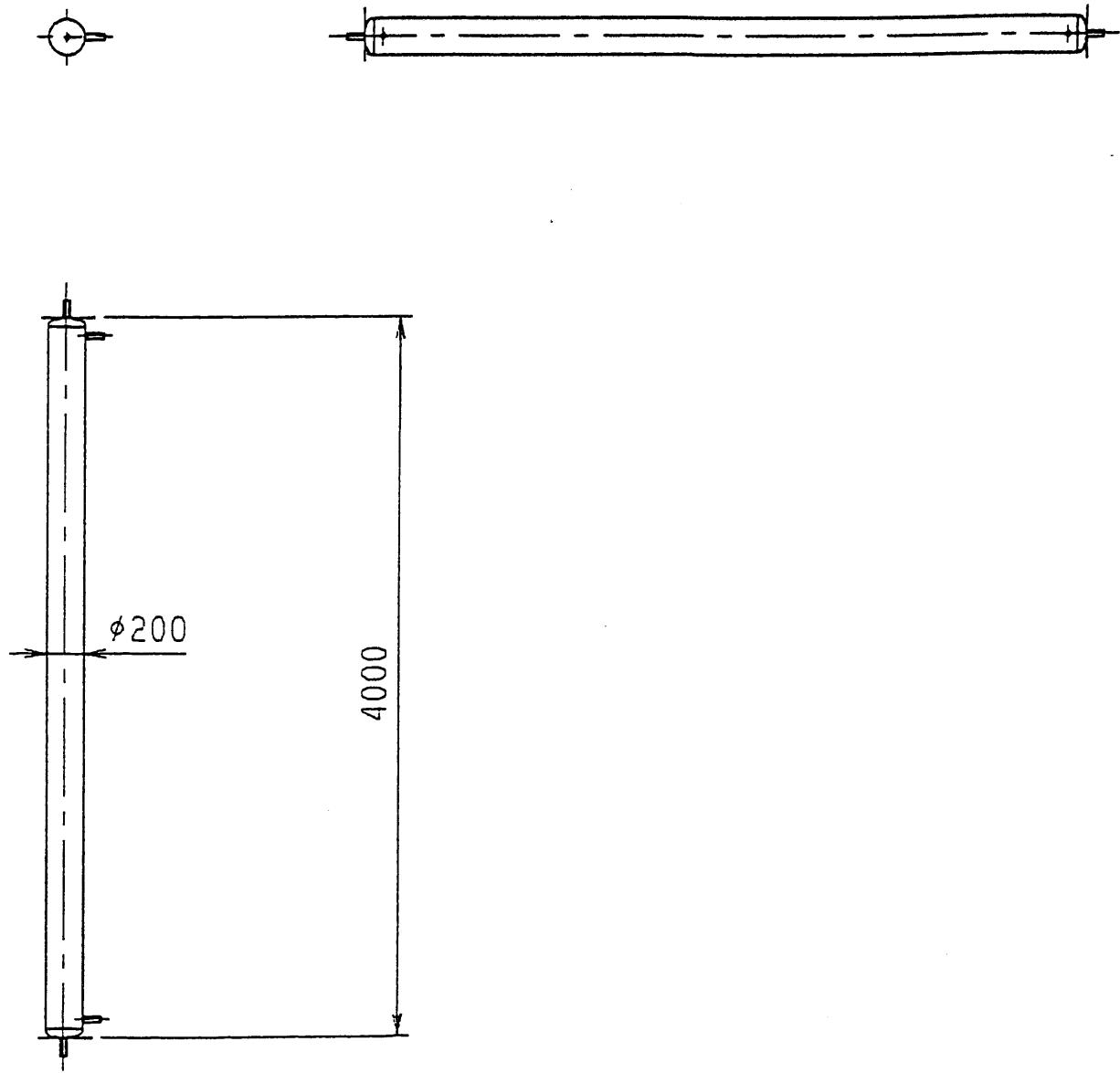


図 5-16 3次元元図（プロセスオフガス処理工程；オフガス洗浄塔）

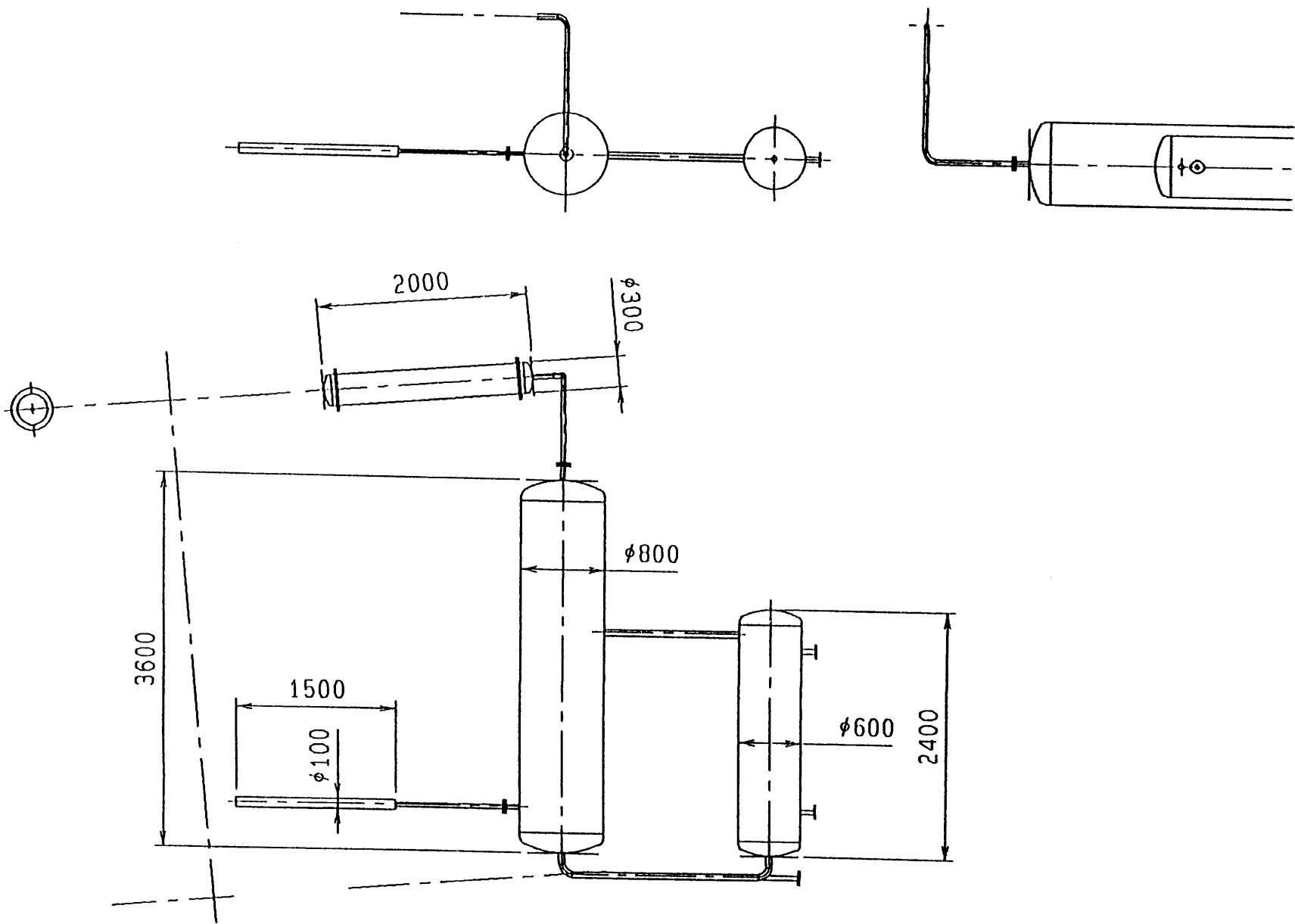


図 5-17 3次元元図（極低レベル廃液濃縮工程；廃液濃縮缶）

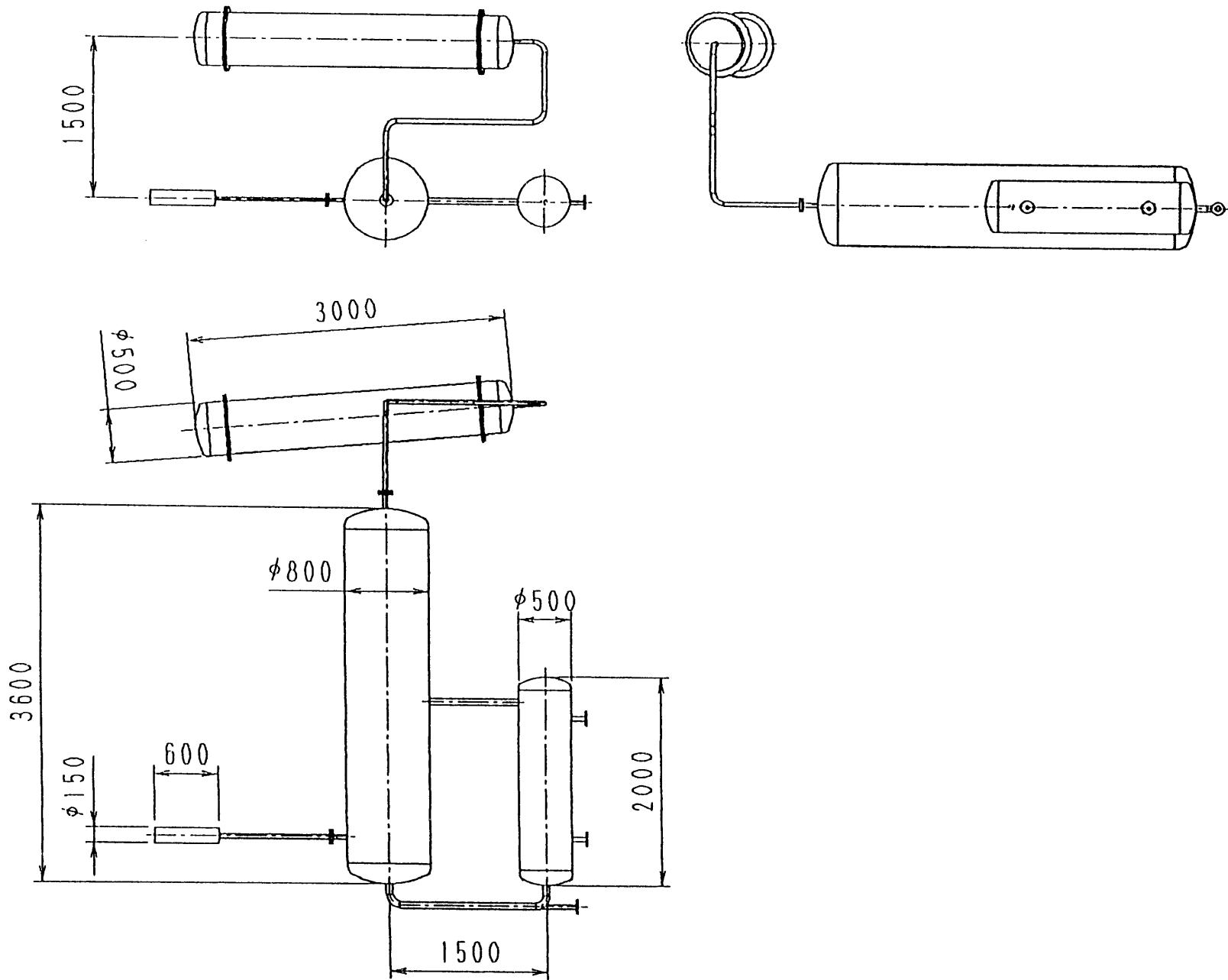


図 5-18 3次元元図（低レベル廃液濃縮工程；廃液濃縮缶）

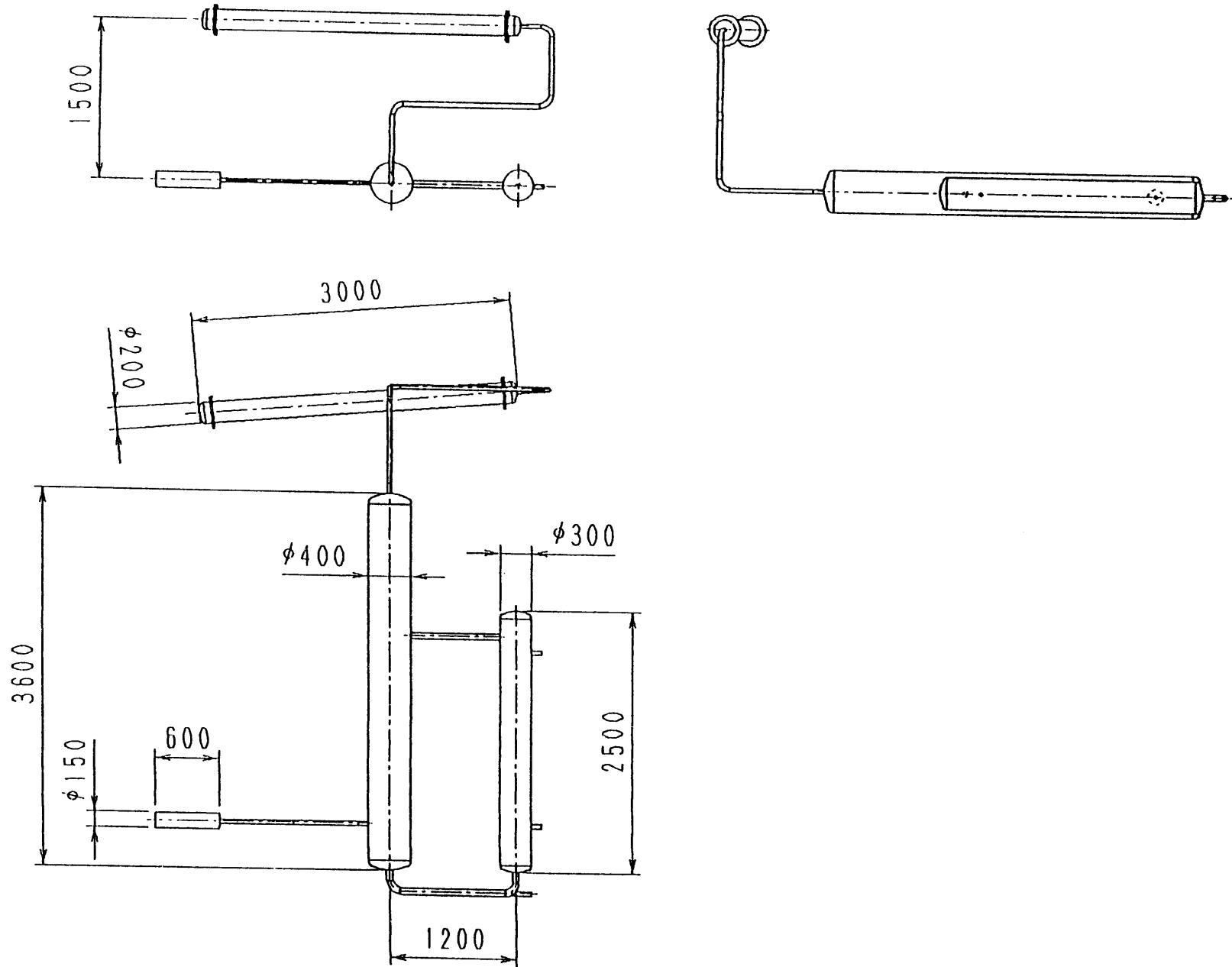


図 5-19 3次元元図（中レベル廃液濃縮工程：廃液濃縮缶）

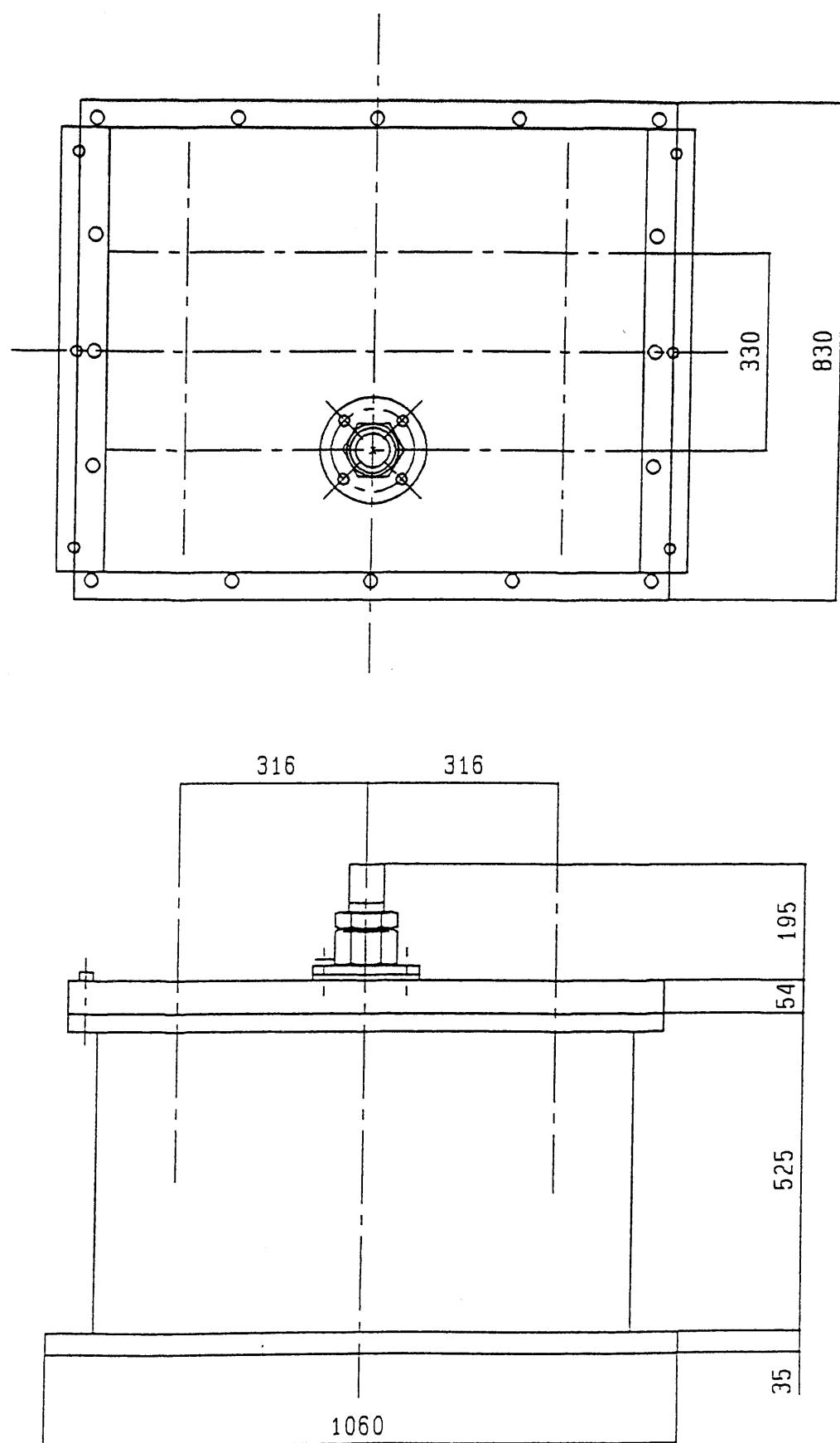


図 5-20 3次元元図（中レベル廃液濃縮工程；廃洗浄液電解槽）

## 6. あとがき

「先進的湿式プラントの設計研究」は、事業団が高速炉燃料サイクルコストの大幅な削減を目指して検討を進めている本プラントに関して、プラントの概念をさらに詳細に評価するために、関連する工程・設備等に関する化学工学計算や評価・検討、プラント概念の構築を目的に実施したものである。本年度は、計算コードを用いて主分離工程についての除染性能を含む評価を実施するとともに、文献調査により得られた国内外の除染性能データと比較した。また、昨年度に機器概念を作成した主要機器のC A Dデータ化を行った。

本研究の成果として、下記の項目が特記される。

- ① 既存のプロセスを含め、広くプロセススタディを行い、計算コードを用いて各プロセスの除染性能を評価した。その結果、昨年度選定した晶析母液抽出プロセス製品では、従来のプロセスの製品に比べ概ね $10^1 \sim 10^2$ 程度低い除染係数が得られた。
- ② 文献調査により得られた国内外の除染性能データと比較した結果、ZrやNpの評価結果は、実績値と大きな差異があったが、Ruについては概ね一致した。
- ③ 昨年度に機器概念を作成した主要機器のC A Dデータ化を行った。

最後に、本設計研究の実施に当たり、技術打ち合せ等で熱心に御教示・御指導をいただいた、動力炉・核燃料開発事業団の関係各位に対して、ここに厚くお礼申し上げる。

## 参考文献

- [1] 清瀬 量平 訳, 「燃料再処理と放射性廃棄物管理の化学工学」原子力化学工学第IV分冊, 日刊工業新聞社 (1984), p59
- [2] H. Yamana, et al., "Result of 106Ru and 95Zr Decontamination Studies in the Co-decontamination Cycle of the Tokai Reprocessing Plant," ISEC'90 (1990) p657-662
- [3] M. M. Charvillat, et al., "A Five Years Experience of Pulse Columns Extraction Cycles for the Reprocessing of Fast Breeder Reactor Fuels at the Marcoule Pilot Plant (SAP)," EXTRACTION '84 (1984) p1-17
- [4] 三菱重工(株)他, 「再処理施設のせん断処理、溶解、分離、精製並びに酸及び溶媒の回収施設におけるFP等の挙動」 JNFS R-91-002 (1991)
- [5] C. J. Joseph, et a., "The Reprocessing Campaigns for Highly Enriched Uranium During 1967 and 1968 at Eurochemic," ETR-238, Sept. 1969
- [6] D. Alexandre, et al., "Operational Performance of the Reprocessing Plants of COGEMA La Hague Site," RECOD'94 (1994)
- [7] W. W. Schulz, L. L. Burger and J. D. Navratil, "Science and Technology of Tributyl Phosphate" Volume III, CRC Press (1984) p14

## 付録 1

MIXSET-98に組み込まれているFP、TRU成分の分配係数

## 付録1

### MIXSET-98に組み込まれているFP、TRU成分の分配係数

ここでは、本作業で使用した抽出計算コードMIXSET-98コード内で使われている微量成分の分配係数相関式を記載した。なお、相関式の出典などは計算コードのマニュアルからは読みとれず不明である。一連の相関式中の記号は、以下のとおり。

D : 分配係数(-)

[H] : 水相中硝酸濃度(M)

[NO<sub>3</sub>] : 水相中硝酸根濃度(M)

Tf : フリー-TBP濃度(M)

Pf : DBP濃度(M)

[U]<sub>org</sub> : 有機相中ウラン濃度(M)

Sr(II) 反応式  $\text{Sr}^{2+} + 2 \text{NO}_3^- + 2 \text{TBP} = \text{Sr}(\text{NO}_3)_2 \text{2TBP}$

分配係数  $D = \exp\{ 1.0226[\text{NO}_3] - 9.052 + 2.3303[\text{NO}_3]^{-1} - 1.2659[\text{NO}_3]^{-2} \} \text{Tf}^2$

Zr(IV) 反応式  $\text{Zr}^{4+} + 2 \text{NO}_3^- + 2 \text{DBP}^- = \text{Zr}(\text{NO}_3)_2(\text{DBP})_2$

$\text{Zr}^{4+} + 4 \text{NO}_3^- + 2 \text{TBP} = \text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \text{2TBP}$

分配係数  $D = D_{\text{DBP}} + D_{\text{TBP}}$

$D_{\text{DBP}} = 7.5427 \times 10^7 [\text{NO}_3]^2 \text{Pf}^2$

$D_{\text{TBP}} = \exp\{ 11.156 - 28.424 I^{1/2} + 17.655 I - 4.483 I^{3/2} + 0.433 I^2 \} \text{Tf}^2$

Tc(VII) 反応式  $\text{UO}_2^{2+} + \text{NO}_3^- + \text{TcO}_4^- + 2 \text{TBP} = \text{UO}_2(\text{NO}_3)(\text{TcO}_4) \text{2TBP}$

分配係数  $D = \exp( 0.341 + 0.573 \ln[\text{U}]_{\text{org}} - 0.832 \ln[\text{NO}_3] )$

Ru 反応式 ①  $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_2 + 2 \text{TBP} = \text{RuNO}(\text{NO}_3)_2 \text{2TBP}$  シニトラト錯体

②  $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_3 + 2 \text{TBP} = \text{RuNO}(\text{NO}_3)_3 \text{2TBP}$  トリニトラト錯体

③  $\text{RuNO}(\text{NO}_2)_2 + 2 \text{TBP} = \text{RuNO}(\text{NO}_2)_2 \text{2TBP}$  シニトロ錯体

存在比 ①  $F_1 = 1.61511 [ - \exp\{ -0.112066 ([\text{H}] + 0.61049) \} ]$

$+ \exp\{ -0.0069 ([\text{H}]^2 + 0.85399) \} ]$

②  $F_2 = 0.0799708 ([\text{H}] + 2.20226) \exp\{ 2.693115 / ([\text{H}] + 2.20226) \}$

- 0.586792

付録 1

$$\textcircled{3} F_3 = 0.489439 \exp\{ 0.234436 / ([H] + 0.493768) \} - 0.488788$$

※ その他は、 $1 - F_1 - F_2 - F_3$  で求める

分配係数 ①  $D = K_1 \text{Tf}^2$  ジニトロ錯体

$$K_1 = \exp( 0.3044 [\text{NO}_3] - 1.4419 [\text{NO}_3]^2 + 1.8536 [\text{NO}_3]^3 - 1.7247 )$$

$$0 < [\text{NO}_3] < 2.1$$

$$K_1 = \exp( -0.1549 [\text{NO}_3] - 1.0514 ) \quad 2.1 < [\text{NO}_3]$$

②  $D = K_2 \text{Tf}^2$  トリニトロ錯体

$$K_2 = \exp( -13.911 [\text{NO}_3]^2 + 8.524 [\text{NO}_3] + 3.447 ) \quad 0 < [\text{NO}_3] < 0.4$$

$$K_2 = \exp( -13.911 [\text{NO}_3]^2 + 8.524 [\text{NO}_3] + 3.447 ) \quad 0.4 < [\text{NO}_3] < 6$$

③  $D = K_3 \text{Tf}^2$  ジニトロ錯体

$$K = \exp( 0.3707 [\text{NO}_3] + 0.6187 - 0.02096 [\text{NO}_3]^{-1} )$$


---

Cs(I) 反応式  $\text{Cs}^+ + \text{NO}_3^- + \text{TBP} = \text{CsNO}_3 \text{TBP}$

$$\text{分配係数 } D = \exp( 0.33114 [\text{NO}_3] - 7.1608 - 0.444 [\text{NO}_3]^{-1} ) \text{Tf}$$


---

Ce(III) 反応式  $\text{Ce}^{3+} + 3 \text{NO}_3^- + 3 \text{TBP} = \text{Ce}(\text{NO}_3)_3 3\text{TBP}$

$$\text{分配係数 } D = \exp( 1.3771 [\text{NO}_3] - 4.3411 - 0.41314 [\text{NO}_3]^{-1} ) \text{Tf}^3$$


---

Np(IV) 反応式  $\text{Np}^{4+} + 4 \text{NO}_3^- + 2 \text{TBP} = \text{Np}(\text{NO}_3)_4 2\text{TBP}$

$$\text{分配係数 } D = K_1 \exp( -K_2 [\text{U}]_{\text{org}}^2 + K_3 [\text{U}]_{\text{org}} )$$

$K_1$ 、 $K_2$ 、 $K_3$ は次の表より求める

[H]	1.0	2.0	3.0	3.5
K1	0.722845	2.00	3.20	5.00
K2	12.254	15.856	19.649	20.41
K3	-0.76722	-0.76696	0.70824	0.70772

Np(V) 反応式  $\text{NpO}_2^{+} + \text{NO}_3^- + \text{TBP} = \text{NpO}_2(\text{NO}_3) \text{TBP}$

$$\text{分配係数 } D = \exp[ -5.53012 \exp\{ -3.25909 \exp( \ln[\text{H}] - 2.33874 ) \} ]$$

Np(VI) 反応式  $\text{NpO}_2^{2+} + 2 \text{NO}_3^- + \text{TBP} = \text{NpO}_2(\text{NO}_3)_2 \text{TBP}$

$$\text{分配係数 } D = K_1 \exp( -K_2 [\text{U}]_{\text{org}}^2 + K_3 [\text{U}]_{\text{org}} )$$

$K_1$ 、 $K_2$ 、 $K_3$ は次の表より求める

付録 1

[H]	1.0	2.0	3.0	3.5
K1	4.57168	9.29807	12.2062	15.622
K2	50.66	11.562	10.912	10.76
K3	-2.7184	-0.69003	-0.71674	-0.79823

Am(III) 反応式  $\text{Am}^{3+} + 3 \text{NO}_3^- + 3 \text{TBP} = \text{Am}(\text{NO}_3)_3 \text{3TBP}$

分配係数  $D = 0.0174 [\text{NO}_3]^{2.37} \text{Tf}^3$   $0 < [\text{NO}_3] < 2$

$D = 0.00151 [\text{NO}_3]^{5.69} \text{Tf}^3$   $2 < [\text{NO}_3] < 6$

Cm(III) 反応式  $\text{Cm}^{3+} + 3 \text{NO}_3^- + 3 \text{TBP} = \text{Cm}(\text{NO}_3)_3 \text{3TBP}$

分配係数  $D = 0.0115 [\text{NO}_3]^{2.31} \text{Tf}^3$   $0 < [\text{NO}_3] < 2$

$D = 0.000617 [\text{NO}_3]^{6.45} \text{Tf}^3$   $2 < [\text{NO}_3] < 6$