

JNC TN7600 86-001

~~PNC N7600 86-001~~

本資料は、1986年9月20日付けで登録区分
変更する。

人形峠環境技術センター
環境保全技術開発部 管理課

製錬転換に関するIAEA主催会議報告書(1986年)

I. IAEA, 「Technical Committee Meeting on Advances in Uranium Refining and Conversion」

1986年4月7日～11日

II. 仏, コミュレックス社訪問

1986年4月14日

1986年11月

動力炉・核燃料開発事業団

人形峠事業所



JNC TN7600 86-001
~~JNC N7600 86-001~~

1986年11月

製錬転換に関するIAEA主催会議報告書（1986年）

I. IAEA, 「Technical Committee Meeting on Advances in Uranium Refining and Conversion」

1986年4月7日～11日

II. 仏, コミュレックス社訪問

1986年4月14日

持地敏郎*

要 旨

本報告書は1986年4月にオーストリアのウィーンにて開催された製錬転換に関するIAEA主催会議に関する執事並びにフランスの六フッ化ウラン転換会社「コミュレックス社」との懇談内容をまとめた海外出張報告である。出張先及び出張期間は以下のとおりである。

- (1) IAEAウィーン国際センター（ウィーン） 4/7～4/11
- (2) コミュレックス本社（パリ） 4/14

上記会議は日本の他、イギリス、フランス、カナダのUF₆転換事業国及び南アフリカ、ブラジル、アルゼンチン、中国等のUF₆転換開発途上国を合わせ総勢力14カ国、21件の論文発表及び数件のパネルディスカッションが行われた。また会議終了後、パリのコミュレックス本社を訪問しコミュレックス社のUF₆転換の現状及び将来計画について質問し、説明を受けた。

本報告書にまとめた内容の項目を以下に示す。

- (1) 会議名、参加国、会議目的等
- (2) 発表内容、質疑応答内容等
- (3) コミュレックス社訪問内容

また付録に今後必要と思われる回収ウラン転換に関する発表論文の和訳を付記した。

* 人形峠事業所 資源開発部製錬課

目 次

I. IAEA, 「Technical Committee Meeting on Advances in Uranium Refining and Conversion」

1. 会議名	1
2. 開催期日	1
3. 開催場所	1
4. 参加国	1
5. 会議の目的	1
6. 会議内容	2
7. 日本の発表に対する主な質問とその回答	7
8. 次回会議予定	8
9. 感想	8

II. 仏, コミュレックス社訪問

1. 日 時	9
2. 場 所	9
3. 出席者	9
4. 訪問内容	9
5. 感 想	13

謝 辞

別添一1 発表件名及び発表者

別添一2 コミュレックス社質問事項原文

付 録 再処理回収ウラン転換関係の報告書訳文

1. IAEA, 「Technical Committee Meeting on Advances in Uranium Refining and Conversion」

1. 会議名

Technical Committee Meeting on Advances in Uranium Refining and Conversion

2. 開催期日

1986年4月7日～11日

3. 開催場所

オーストリア, IAEAウィーン国際センター

4. 参加国

アルジェリア(1), アルゼンチン(1), オーストラリア(1), ベルギー(1), ブラジル(1), カナダ(2), 中国(2), アラブ連合(1), フランス(2), 西ドイツ(4), インド(1), イラン(2), イラク(1), 日本(1), 韓国(1), パキスタン(1), 南アフリカ(6), スウェーデン(1), トルコ(1), イギリス(5), ユーゴスラビア(1), 事務局 (IAEA) (2)

以上21カ国, 1機関39名 ()は人数

5. 会議の目的

イエローケーキからウランフッ化物, 二酸化ウラン, 金属ウランなどを生成する製錬・転換は, 各種炉型の異なる原子炉燃料を製造する上で重要な技術となっている。

IAEAでは, 1976年6月にパリにて「an Advisory Group meeting on the production of yellowcake and uranium fluorides」を開催し, その議事内容を1980年に発行した。その後6年の間に, 安全性や経済性の観点からプロセスや装置の改善が進められてきており, また「Advisory Group」からの提案もあり, IAEAではこの度, 本会議の開催を決定した。本会議の目的は, 製錬転換に関する現在までの開発状況をレビューし, 今後の方向性について調査することであり, 以下の観

点に焦点をあてている。

- (1) プロセス改良／新設設備，新プロセス；経済的観点；コンピュータ制御など
- (2) 運転経験；装置，設備の設計，製作；新材料，腐食など
- (3) 品質管理／品質保証；原料／製品品質，仕様；サンプリング，分析
- (4) 廃棄物処理，環境管理；試薬，廃棄物の再利用；廃水処理など
- (5) 規制；環境衛生／安全
- (6) 現状評価と将来予想

6. 会議内容

- (1) 発表件名及び発表者

別添一 1 参照

- (2) 発表内容

発表は以下の分野に大きく分けられ，合計20件の発表が行われた。

- ① イエローケーキの製錬・転換：ブラジル，カナダ，中国，フランス，インド，
イラン，日本，韓国，パキスタン，南アフリカ，
イギリス
- ② 再処理回収ウランの製錬転換：ベルギー，フランス，西ドイツ，日本，イギリス
- ③ 廃棄物管理，規制，環境保全：カナダ（2件），中国

発表内容を全てここで紹介することはできないが，①については転換事業国及び日本からの報告，②については今後の技術開発に必要なため，全て紹介することとする。

- (イ) イエローケーキの製錬転換

- ①カナダ（エルドラド社）

エルドラド社は1983年ブラインドリバー工場，1984年ポートホープ工場を新設した。ブラインドリバー工場ではイエローケーキから UO_3 を生成し，ポートホープ工場では UO_3 から UO_2 及び UF_6 を製造している。これらの新設プラントにおけるプロセスには従来プロセスを改良した点がいくつかあるが，特に大きく異なる点は UO_2 から UF_6 を生成する工程に“湿式プロセス”を採用したこと

である。報告書ではこれらの変更点に特に重点をおき、新プラントプロセスの説明がなされている。

②フランス（コムレックス社）

コムレックス社では1982年硝酸ウラニルを熱分解脱硝して、ペレット用の酸化物を生成する方法を開発した。この方法は使用済燃料を再処理して得られた硝酸ウラニル及び硝酸プルトニウムの混合溶液を熱分解脱硝して、 $UO_2 - PuO_2$ 粉体を生成する方法に適用され「Nitrox Process」と呼んでいる。この方法によれば取り扱いが非常に厳しい規制により管理されているPuを単独に取り扱う必要がないため、プラント内や輸送時における取り扱いの規制が緩和されるといいうメリットがある。報告書では、実験結果及び本プロセスの利点等が述べられている。

③イギリス（BNFL社）

BNFL社のスプリングフィールド工場では40年前からウラン製錬を開始し、その間イエローケーキ85,000tu及び再処理回収ウラン15,000tu（マグノックス炉使用済ウラン）を処理してきた。報告書では、転換施設が転換市場の動向、製品及び原料スペック、環境規制等からいかに変化してきたかを説明している。

④日本（PNC）

動燃事業団ではUF₆転換に関し次の研究開発を行っている。

- (イ) PNC法によるパイロットプラント（200TU/年）でのイエローケーキからUF₆への転換試験
- (ロ) 乾式法による再処理回収ウランのUF₆転換試験（別途報告）

これらの研究開発を通して多くの改良点を見出し、現在、改良PNC法を開発中である。今後、UF₆転換商業工場を建設するためには次の課題が残されているが、これらの問題は再処理、転換、濃縮の各施設を同一サイトにて結合することにより核燃料サイクルコストが低減し、解決されるだろう。

- (イ) 国内UF₆転換市場が小規模なため転換コストが高くなる。
- (ロ) 国内需要に最も適したプロセスを適用しなければならない。

報告書ではPNC法及び改良PNC法の説明並びに国内のUF₆転換事業化政策について述べている。

(ロ) 再処理回収ウランの製錬・転換

①ベルギー

本報告文では、医療用のアイソトープ用に照射体から高濃縮度のウランを回収する研究について述べる。原料となるウランにはフィルタ、ティッシュやプラスチックが含まれているが、ウランについては先ず硝酸にて溶出させる。有機物については過酸化水素で分解し、ろ過後、Purexプロセスに導入する。ウランの抽出にはTBP/ドデカンを用いるが、抽出系統は3系統のミキサセトラから成り立っており、それぞれ8～12槽のミキサセトラがある。

Purexプロセスにより精製されたウランは、グローブボックス内でさらに除染される。TTAを用いてZr, Nb, Puを除去し、製品スペックを満足するウラン溶液とする。さらに過酸化水素を用いUO₄の形態で沈殿させた後、ろ過し、U₃O₈になるまで850℃で焼成させる。この様にして生成したU₃O₈内に含まれる不純物は、照射体の成分スペック（放射能強度<2600 Bq/g (7.0×10^{-2} μ Ci/g), Pu < 1 ppm, B < 1 ppm)を満足する。

現在までのところ、5回の運転で2440gのウランが処理されている。収率は96%であり、製品については分析が行われている。

②フランス（コムレックス社）

1960年代中頃、この施設はUF₆を焼結UO₂へ転換するためのパイロットプラントであった。

1970年、このプラントは改造によりLWRから発生するUNHをUF₆へ転換する設備を建設した。1985年末現在で1300tのウランが転換され、濃縮プラントへ搬出した。軽水炉から生じた回収ウランは

—— 0.9～2.25%の微濃縮ウランである。

—— 不純物を含んでいる。

製品UF₆が再濃縮受け入れ仕様を満足するためには、コムレックスは転換プロセス中で化学的不純物のみならず放射性不純物を除去しなければならない。

この論文は、コミュレックス転換プロセスにおける主要な不純物に観点を当て、その除染効果を議論したものである。

③西ドイツ

使用済LWR燃料の再処理により、ウランとプルトニウムが回収される。装荷したウランの約95%が回収されるが、ウラン中のU235の割合は天然ウランより大きく、約0.8~0.9 wt%である。このウランは再濃縮を経てリサイクルが可能である。

しかしながらこの回収ウラン中には、核分裂生成物とアクチノイドを主とする不純物が含まれ（天然ウランには含まれないか、含まれても極く微量）、以下に示すような問題を引き起こす可能性がある。

—— ハンドリングの問題（人体への放射線の影響）

—— 原子炉へリサイクルした場合の中性子吸収による炉オペレーションの問題

本論文は再処理工程で更に精製することができない不純物について、それら不純物の持つ主な問題点、再精製法の提案（主に転換工程での精製が考えられる。）等を述べたものである。また、現行の製品スペックとその改良についても簡単に触れた。

④イギリス（BNFL社）

30年以上も前よりBNFLのセラフィールド事業所で再処理が行われているが、ここで25,000 t-U程度のウランが照射済ウラン金属燃料（マグノックス）よりUO₃として回収されてきた。濃縮度0.711%以下の劣化ウランがスプリングフィールド事業所で6フッ化ウランに転換され、その後BNFL拡散法プラント又はカペンハーストにあるウレンコ遠心分離法プラントにて濃縮された。この濃縮ウランは現在までに製造されたAGR燃料の75%に相当し、その原子炉稼働率は、非照射ウランから得られた燃料と同等であった。

1990年代の始めには、照射済み酸化燃料（AGRとLWR）の再処理による回収ウランが、セラフィールドのTHORP再処理プラントより大量に発生するだろう。そこでスプリングフィールド事業所では、次のようなプラント計画を考えている。

- a. 拡散法又は遠心分離法濃縮プラントにUF₆を供給する転換施設
- b. 濃縮プラントの製品を転換し、AGR又はPWR燃料集合体を製造する加工施設

報告書では、再処理回収ウランのUF₆への転換についての過去の経験と今後予想される変更点について述べている。

⑤日本(PNC)

動燃事業団は回収ウラン転換技術を確立すること、また将来の国内商用転換工場建設に向けてのスケールアップデータや技術ノウハウを取得することを目的として1981年10月にウラン転換試験設備(CTF-II)を建設した。本設備は動燃事業団再処理工場で処理された再処理回収UO₂を乾式法によりUF₆へ転換するベンチスケール規模(約4tu/年)の設備である。プロセスは主に水和前処理、脱水還元、HFフッ化、F₂フッ化の各工程から成っている。

本設備の主な試験項目は次の通りである。

- (1) 回収ウラン中に極く微量含まれているRu, Zr等の核分裂生成物(F.P)及びPu, Np等の超ウラン元素(TRU)の転換工程における挙動を解明し、除去法を確立する。
- (2) 流動床脱硝法により得られた回収ウランの転換工程における反応性を改善する技術を確立する。

運転開始以来、現在までに約5tuのUF₆を生産するとともに次のことを確認した。

- (1) 回収ウランを水和することにより、転換工程における還元、HFフッ化及びF₂フッ化の反応性は改善される。
- (2) 製品UF₆中のF.P及びTRUの含有量は濃縮施設の受入れスペックを十分に満足している。

7. 日本の発表に対するおもな質問とその回答

(1) 日本のUF₆転換技術開発の現状と今後の課題

- ① フッ化廃液中に含まれる微量のウラン及びフッ素の吸着除去に使用しているキレート樹脂はどのようなものか。

ウランの吸着にはリン酸キレート樹脂、フッ素の吸着には金属分散型キレート樹脂を使用している。これらのキレート樹脂は株式会社ユニチカが開発したものでその商品名はそれぞれ“Unicellex UR3100”及び“Unicellex UR3700”と命名されている。

- ② イエローケーキの精製にアミン溶媒抽出法からイオン交換法に変更するとしているが、溶媒抽出法は全面廃止となるのか、またイオン交換樹脂はどのようなものか。

将来的にはイエローケーキの精製は全てイオン交換法を考えている。また現段階は試験中であるので樹脂のタイプを公表するにはもう少し時間を要する。

- ③ 廃液処理により生じるフッ化カルシウム中に含まれるウラン量はどの位か。またこのフッ化カルシウムの処理はどのようにしているのか。

フッ化カルシウム中のウラン量は約0.5%である。現在はこのフッ化カルシウムは処理されずに保管されているが、今後ウランの回収方法を開発していく予定である。

- ④ F₂フッ化廃ガス処理に使用しているフッ化ナトリウムトラップの代わりに提案しているスクラバはどのようなタイプか。

充填タイプのアルカリ及び水スクラバである。

- ⑤ 再処理回収ウランを天然ウランで希釈してからUF₆転換することを経済的及びその他の理由から提案しているが、その場合のプロセスはPNC法、乾式法のどちらになるのか。

未定である。

その他数件の質問が出された。

(2) 日本における再処理回収ウランの転換

- ① F_2 フッ化塔出口に設置してあるケミカルトラップの充填剤は何か。

フッ化コバルトとフッ化マグネシウムを充填している。

- ② UO_3 の水和前処理は何故室温で実施するのか。

UO_3 の水和物としては、 $UO_3 \cdot 2H_2O$ が後工程の反応性改善に最も適している。我々の実験では室温での水和前処理が最も多くの $UO_3 \cdot 2H_2O$ が得られている。

- ③ UO_2 から UF_4 への転換率はどの位か。

約95%である。

- ④ 再処理回収ウランを転換した UF_6 の濃縮と天然ウランを転換した UF_6 の濃縮は、同じカスケードで行われるのか。

同一カスケードと思われる。

その他数件の質問が出された。

8. 次回会議予定

1989年9月とする。

9. 感想

国際会議への参加は今回が初めての経験であり、とまどうことも数多くあったが、各国の転換技術や今まであまり報告の無かった再処理回収ウラン転換の開発状況を知ることができ、今後の国内における転換技術開発にとって有意義なものと考えられる。また、日本の転換技術は経済ベースにはまだ到達していないが技術的にはかなり進んでいると思われ、特に廃液処理技術については各国から数多くの質問を受けた。

今回、転換事業国である米国が IAEA 事務局の熱心な要請にもかかわらず不参加であったことは唯一残念なことと思われ、次回の会議には是非とも参加してもらいたいものである。

Ⅱ. 仏, コミュレックス社訪問

1. 日 時

1986年4月14日 10:00 ~ 12:00

2. 場 所

コムレックス本社 (パリ)

3. 出席者

コムレックス社: THIRRY BREUILLAC (営業部長)

Rene Romano (Vice president operations)

動燃事業団 : 坪田 浩二 (パリ事務所主査)

持地 敏郎

4. 訪問内容

(1) コミュレックス社紹介

コムレックス社作成の外部向けビデオテープ (日本語版) によりコムレックス社の概要説明があった。

(2) PNCの用意した質問書を基に質疑応答を行った。以下に質問及びそれに対する回答の要点を示す。なお、別添-2に質問事項の原文を示す。

① 再処理回収ウランのUF₆転換について

(イ) 現在までの総転換量及び技術的問題点について

総転換量 : 1200tu

技術的問題点

- 顧客毎のバッチ運転をするためウランロスが多くなる。
- 放射能強度 (α) が天然ウランの2倍程度高くなる。

(ロ) F₂フッ化工程 (UF₄ → UF₆) における放射性不純物の除染係数について

各核種により異なっているが大体20~200程度と思われる。

ハ) F₂フッ化炉（フレイムタワー型反応炉）の反応残渣受槽部の放射能上昇率及び放射線防護対策について

表面線量率：最大許容線量の10倍程度まで上昇する。（しゃへいの無い場合を意味していると推定する。）

防護対策：生物学的防護を行っている。

ニ) 上記フレイムタワー型反応炉の粉体分散機構について

回答なし

ホ) UF₆転換プロセスにおけるウラン回収率及びロス原因について

回収率：98.5%（天然ウラン転換の場合99.5%）

原因

- 顧客毎のバッチ管理を行うため、そのバッチ毎にプロセス機器をclean upすることにより廃棄物へ移行する。
- 放射性不純物に付着して廃棄物として移行する。

ヘ) UREX2000（回収ウラン大型転換プラント）の計画について

運転開始時期：1990年以後

転換処理量：1000tu/年以上（電力会社が決定する。）

ト) UREX2000における脱硝方法について

数ヶ月前に開発した熱分解脱硝法（圧力、温度制御）の採用を予定している。（従来のADU沈殿・焙焼法では行わない。）

チ) 転換コストについて

現在は天然ウラン転換コストの約6倍である。転換規模を拡大することにより2倍程度におさえることは可能であると思う。

天然ウランのUF₆転換について

イ) 今後予定しているプラント改造や容量拡大の計画について

改造：脱硝法をADU法から熱分解脱硝法に変更する。（廃液による公害防止のため。）

容量拡大：回答なし

ロ) 移動床炉（UO₃ → UO₂ → UF₄）の利点について

単純な構造でコンパクトな装置である。処理量は5000tu/年（一塔当り）

イ) 第2フッ化塔 (plate reactor) の構造について

「simple」という回答にとどまった。処理量は1tu/時間/系列×2系列

ロ) UF₆充填48Yシリンダからの均一サンプリング方法について

液体サンプル1kgを採用している。(質問の意図を伝えることができなかったように思う。)分析はASTM分析法に従っている。

③ 政策について

イ) マルベシ工場 (UNH→UF₄) とピエールラット工場 (UF₄→UF₆) に分離されていることによる損失について

一箇所に集中している方が輸送コスト面からも良いと思うが、各工場には次のような利点もある。

・マルベシの気候は水分蒸発が700mm/年と大きく、これはUNHの蒸発濃縮に適している。

・UF₆製品が出荷されるピエールラット工場は濃縮工場に近い。

ロ) 第2プラント新設について

UF₆転換需要が増大すれば現プラントの容量拡大で対応できる。

ハ) 天然ウランと回収ウランを同一サイトで転換する計画及び混合転換の計画について

サイトについては現状通りを考えている。

天然ウラン : UNH→UF₄ (マルベシ)

UF₄→UF₆ (ピエールラット)

回収ウラン : UNH→UF₆ (ピエールラット)

混合転換はコスト高、放射能高につながりデメリットが増えるのみなので考えていない。

ニ) 日本における濃縮原料用UF₆を全て日本国内で転換することについて

コミュレックス社としての意見は無い。電力会社がコメントする問題である。

④ 金属ウラン製造について (質問書には記載していない。)

イ) 金属ウラン製造の目的について

1) 高温ガス炉燃料用

2) レーザー濃縮原料用 (CEA, DOEとの共同研究)

(ロ) 施設容量について

1500tu/年（現在は300～400tu/年で稼働）で現在までに約1000tuの金属ウランを製造している。

(イ) 高温ガス炉用及びレーザー濃縮用金属ウランにおけるスペックの相違点について

各不純物元素毎に定めてあり、どちらが厳しいとは一概には言えない。

（例）Moの場合では、高温ガス炉用では厳しく、レーザー濃縮用では緩い。

いずれの場合においても、純粋なUF₄を用いることが重要である。

⑤ コミュレックス社からの話

転換は化学反応であり、小規模では良好な結果が得られても、大規模で実施した場合には不適切な場合がある。コミュレックス社ではこのような問題に対するknow howを十分に蓄積してきているので、契約に基づいた日本との技術提携にはいつでも応じるつもりである。

5. 感想

コミュレックス社は、パリ中心街から車でおよそ20分程度の距離にある近代的な高層ビル内に設けられている。我々が最初に見せられた紹介用ビデオテープは、驚いたことに日本語版であり、コミュレックス社がいかに日本の転換開発にも関心をはらっているかがわかるような気がする。懇談は約2時間程度と短時間であり、技術的に詳細な議論はできなかったが、動燃側の質問には予想以上に誠意ある回答を示してくれたように思う。彼らとの懇談で強く感じられたことは、当然のことながらコスト意識や情報管理の徹底さであり、我々にとっても重要であることを再認識した。

謝 辞

今回の海外出張が初めてかつ一人旅ということもあって緊張の連続ではあったが、ウィーン、パリの両地において、以下の方々の御便宜、御協力により、無事任務を果たすことができましたことを深く感謝致します。

宇賀神光弘 (日本原子力研究所より I A E A 派遣, 今回の会議の事務局)

吉川 隆志 (動燃国際協力室より I A E A 派遣)

坪田 浩二 (動燃パリ事務所)

また、本報告書付録の作成にあたり、以下の方々の御協力を深く感謝致します。

田中 克幸 (動燃人形峠・製錬課)

天本 一平 (動燃人形峠・製錬課)

吉村 忠宏 (動燃人形峠・製錬課)

菊地 俊明 (動燃人形峠・製錬課)

永崎 隆雄 (動燃本社・環境資源部)

TI-TC-576

TECHNICAL COMMITTEE MEETING ON ADVANCES
IN URANIUM REFINING AND CONVERSION

Vienna, Austria

7-11 April 1986

PROVISIONAL PROGRAMME

No. of Paper IAEA-TC-576	Speaker	Designating Member State/Organization	Title of paper
-----------------------------	---------	--	----------------

MONDAY, 7 April 1986

10:00-10:20

Opening Address, by Mr. J.L. Zhu, Director,
Division of Nuclear Fuel Cycle, IAEA

Note from the Scientific Secretary

10:20-12:40 Session 1.

Refining & conversion of uranium ore concentrates. (Chairman: H. Page)

14	A.W. Ashbrook	Canada	The Refining and Conversion of Uranium Yellowcake to Uranium Dioxide and Uranium Hexafluoride Fuels in Canada: Current Processes.
17	V.K. Kansal	India	Recent advances and present status of uranium refining in India.
20	M. Shabbir	Pakistan	Operating experience of a pilot plant for uranium dioxide production

2:00-5:00 Session 2.

Refining & conversion of uranium ore concentrates. (Chairman: A.G.M. Jackson)

12	H. Page	U.K.	Conversion of uranium ore concentrates and reprocessed uranium to nuclear fuel intermediates at BNFL Springfields. Part (A) :: Uranium ore concentrates.
8	H. Movaseghi	Iran	Purification and Conversion of Uranium From Iron and Thorium Containing Deposits.

No. of Paper IAEA-TC-576	Speaker	Designating Member State/Organization	Title of paper
-----------------------------	---------	--	----------------

Session 2. (Continued)

- | | | | |
|----|------------------------|-----------|---|
| 18 | E.R. Isnardi
(発表中止) | Argentina | PRODUCTION OF UO ₂
EXPLOITATION AND
DEVELOPMENT
PART I. Experience on the
exploitation of a production
plant of UO ₂ starting from
yellowcake purified with TBP
in a nitric environment. |
| 19 | E.R. Isnardi | Argentina | PART II. Development of a
technology to make UO ₂
starting from yellowcake
refined with amines in a
sulphur environment. |

5 : 00— Cocktail Party

TUESDAY, 8 April 1986

9 : 00—10 : 20 Session 3

Refining & conversion of uranium ore concentrates. (Chairman: J.A. Vercellone)

- | | | | |
|----|----------------|----------------------|--|
| 10 | I.S. Chang | Republic of
Korea | Status of Uranium Refining
and Conversion Processes
Technology in Korea. |
| 7 | Takao Nagasaki | Japan | R & D of UF ₆ conversion
in Japan now and subjects in
future. |

10 : 40—12 : 00 Session 4.

Refining & conversion of reprocessed uranium. (Chairman: E. Leyser)

- | | | | |
|---|-------------------|---------|--|
| 1 | P.P.M.H.
Regge | Belgium | Recent Developments in the
Purification of Uranium
recovered from Irradiated
Materials. |
| 6 | Robert Faron | France | The Reprocessed Uranium
Conversion: 10 Years of
Operation of COMURHEX. |

No. of Paper	Speaker	Designating Member	Title of paper
IAEA—TC—576		State/Organization	

2 : 00—4 : 20 Session 5

Refining & conversion of reprocessed uranium. (Chairman : R. Faron)

13	Ernesto Leyser	Germany,F.R.	Problems due to impurities in uranium recovered from the reprocessing of used LWR fuel, from the point of view of recycling.
9	Toshiro Mochiji	Japan	Conversion of Reporcessed Uranium in Japan.
12	H. Page	U.K.	Conversion of uranium ore concentrates and reprocessed uranium to nuclear fuel intermediates at BNFL Springfields. Part (B) : Reprocessed uranium.

4 : 20—5 : 00

Panel discussion I : Process improvements in refining and conversion of reprocessed uranium. (Chairman : R. Faron)

WEDNESDAY, 9 April 1986

9 : 00—12 : 00 Session 6

Refining & conversion of uranium ore concentrates. (Chairman:A.W. Ashbrook)

5	R. Faron	France	NITROX PROCESS : A process developed by COMURHEX OF CONTINUOUS DENITRATION
16	Alcidio Abrao	Brazil	Experience on Yellowcake Refining and its Conversion to Uranium Tetrafluoride at IPEN—CNEN/SP.
11	A.A. Ponelis	South Africa	Conversion of Non—Nuclear Grade Feedstock to UF ₄ .
4	Lebao Cao	People's Republic of China	The Conversion From Uranium Tetrafluoride into Hexafluoride in a Vertical Fluorization Reactor.

No. of Paper IAEA-TC-576	Speaker	Designating Member State/Organization	Title of paper
-----------------------------	---------	--	----------------

2 : 00— 4 : 20 Session 7

Waste Treatment, regulation & environmental health/safety. (Chairman : Lebao Cao)

3	Chang En Zhu	People's Republic of China	The Solvent-containing Resin for Removing Uranium from Effluent of Refining Process.
15	A.W. Ashbrook	Canada	Waste Management in the Refining and Conversion of Uranium in Canada.
2	J.P. Didyk	Canada	The Regulation of Uranium Refineries and Conversion facilities in Canada.

4 : 20— 5 : 00

Panel discussion II : Waste treatment, regulation & environmental health/safety (Chairman : A.W. Ashbrook)

THURSDAY, 10 April 1986

9 : 00—12 : 00

Panel discussion III : Summary of national operating experience and future programme (Chairman : H. Page)

Each participant is invited to present a brief summary of their national development status and future requirements in the area of uranium refining and conversion: name and location of facility, operator, production capacity, input and output fuel material, year of commissioning/expansion etc.

Panel discussion IV : Process improvements in refining and conversion of uranium ore concentrates (Chairman:H. Page)

2 : 00— 5 : 00

Panel discussion V : Summary of the meeting. (Chairman : H. Page)

FRIDAY, 11 April 1986

9 : 00—12 : 00

Summary and Closing of the Meeting. (Chairman : H. Page)

14 April 1986

QUESTIONAIRES

1. UF₆ Conversion of recovered uranium

- (1) Total quantity of LWR fuel that you converted. What is the main technical problem? Corrosion or powder treatment?
- (2) Decontamination factors of radioactive impurities at the fluorination (UF₄ - UF₆)
TRU (Np, Pu, Am, Cm)
FP (Ru, Zr, Nb, Cs)
U₂₃₂ daughter nuclide
- (3) Increased rate of radioactivity around the reactor by frame reactor ash (especially non-volatile radioactive fluoride) and protection way against this increase.
- (4) Powder dispersion system of frame reactor.
- (5) Rate of uranium recovery and the main causes of process loss.
- (6) Present situation of UREX 2000 project and future plan.
- (7) Process of conversion (UNH-UF₆) in the UREX 2000 project [ADU (NH₄)₂ U₂O₇ precipitation and calcination or denitration by thermal decomposition].
- (8) Cost for conversion of recovered uranium and their breakdown.

2. UF₆ Conversion of natural uranium

- (1) Future plan for improvement and increased capacity.
- (2) Advantages of moving bed reductor-hydrofluorinator reactor.
- (3) Structures of plate reactor that you employ in the second stage for fluorination.
- (4) UF₆ uniform sampling method from 48 Y cylinder.

3. Policies

- (1) Is there any disadvantage when your factories are distributed at Malvési and Pierrélatte?
- (2) Your plan to construct the second plant.
- (3) Do you plan to construct at the same site both for natural and recovered uranium plants?
Do you plan to mix the natural uranium with recovered uranium before conversion?
- (4) PNC expects to do all conversion process in Japan importing Uranium as Yellow cake to feed enrichment plant in Shimokita.
Your comment?

付

録

(再処理回収ウラン転換関係の報告書訳文)

- (1) Recent Developments in the Purification of Uranium
recovered from Irradiated Materials. (ベルギー) 付(2)
- (2) The Reprocessed Uranium Conversion: 10 Years of
Operation of COMURHEX. (フランス) 付(18)
- (3) Problems due to impurities in uranium recovered from
the reprocessing of used LWR fuel, from the point of
view of recycling. (西ドイツ) 付(29)
- (4) Conversion of uranium ore concentrates and reprocessed
uranium to nuclear fuel intermediates at BNFL Springfields.
Part (B) : Reprocessed uranium. (イギリス) 付(43)

RECENT DEVELOPMENTS IN THE PURIFICATION
OF URANIUM RECOVERED FROM IRRADIATED
MATERIALS.

P. De Regge, G. Collard, A. Daniëls,
D. Huys, L. Sannen

Studiecentrum voor Kernenergie SCK/CEN
Boeretang, 200, B2400 Mol, BELGIUM

Nuclear Chemistry Department

照射体からのウラン精製に関する最近の進展

要 旨

本報文では、医療用のアイソトープ用に照射体から高濃縮度のウランを回収する研究について述べる。原料となるウランはフィルタ、ティッシュやプラスチックに含まれているが、ウランについてはまず硝酸にて溶出させ、有機物については過酸化水素で分解し、ろ過後Purexプロセスに導入する。ウランの抽出にはTBP/ドデカンを用いるが、抽出系統は3系統のミキサセトラから成り立っており、それぞれ8~12槽のミキサセトラがある。

Purexプロセスにより精製されたウランは、グローブボックス内でさらに除染される。T TAを用いてZr, Nb, Puを除去し製品スペックを満足するウラン溶液を作る。さらに過酸化水素を用いて UO_4 の形態で沈殿させた後、ろ過し、850°Cで U_3O_8 になるまで、仮焼させる。この様にして生成した U_3O_8 内に含まれる不純物は、照射体の成分スペック（放射能強度 $< 2600 \text{ Bq/g}$ ($7.0 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/g}$), $\text{Pu} < 1 \text{ ppm}$, $\text{B} < 1 \text{ ppm}$) を満足する。

現在までのところ、5回の運転で2440gのウランが処理されてる。収率は96%であり、製品については分析が行なわれている。

1. 原料履歴

放射性同位元素の ^{99}Mo , ^{131}I , ^{133}Xe についてはベルギーの国立放射能センタ (IRE) にて高濃縮ウランをターゲットにしたいくつかの異なる原子炉内で製造されている。 ^{235}U の濃縮度は89~93%でありアルミニウム管内に4.2gの金属ウランの状態でおさまられている。照射を終えたウランはIREにてすぐさま $\text{NaOH}-\text{NaNO}_3$ 混合液にて溶解される。これにより、Xeはガスとして、IとMoについてはそれぞれ I^- , MoO_4^{2-} という形態となる。ウラン及び他のFPについては、水酸化物として沈殿するか、もしくはウラン溶液中に残る。殿物についてはグラスファイバーフィルタでろ過後、洗浄される。この際、フィルタについてはポリエチレンのかごの中に集められ、また、溶解槽などの装置を洗浄するため、ティッシュが使われる。140gのウランを処理した後、これらはSUS容器に入れられ、SCK/CEN Molに運ばれる。こうした運転を何年間か行なうと4.5kgの高濃縮ウランが蓄積す

るが、回収・再利用については、経済性や貯蔵量等を考慮して決定される。

2. 原料及び製品の性状

I R Eで作られる原料は、130 gの ^{235}U を含む約160 gのウランのナトリウム溶液であるが、これには35 gのグラスファイバフィルタと80 gのティッシュと20 gのポリエチレンが含まれている。これらは貯蔵中に茶色に変色されている。

U_3O_8 の性状については以下の規定がある。

i) 不純物についてはその全量が2500ppmを超えてはならない。

また各不純物については500ppmを各々超えてはならない。

ii) β - γ 不純物についてはウラン1グラム当り2600 Bq ($7.0 \times 10^{-2} \mu\text{ci}$)を超えてはならない。

iii) Puについては1 ppm以下であり、Puの自発核分裂の速度は 1500min^{-1} を超えてはならない。

3. プロセスフローシート

ウラン溶液の性状、放射能量、 ^{235}U の濃縮度などを考えると、ウラン抽出では形状管理のしやすいPurex法が妥当である。

ここで用いられているミキサセトラの処理能力は500ml/hrであるが溶液/溶媒が1.43になる様、調整されており、溶媒量は200ml/hrとしている。溶媒については3系統の抽出工程にすべて同一の溶液が用いられるという意味あいからその流量比が決定されている。

プロセスフローについてFig 1及びFig 3に示す。

まず、抽出工程では、3.5~4Nのウラン硝酸水溶液(HAF)が30%TBP/ドデカンと接触し、抽出される。この時のHAFの流量は50ml/hrである。抽出により、230g/lのウランが58g/lの濃度でTBP/ドデカン側に移行する。洗浄工程では40ml/hrの硝酸溶液で流量比1.85(硝酸/溶媒)にて洗浄可能であるが、実際には1.5Nの HNO_3 を50ml/hr流すことによってZr, Nbを除去している。また、マテバラについてTable 1に示す。

本プロセスでは、Fig 1に示す様にポンプや貯蔵タンクも必要である。

また、抽出後のFP溶液(HAW)を連続的に蒸発させる装置もあり、蒸発した気体については、凝縮後、低レベル廃液となる。同様にウラン溶液についても2.5lまで濃縮される。このウラン溶液はさらにZr, Pu等を除去するためにグローブボックス内の工程へ運ばれる。ここでは、TTA/キシレンによるバッチによる抽出が行なわれる。抽出後、130g U

に区分けされ、十分に除染された後、バッファー溶液であるアンモニウムアセテートを添加した H_2O_2 溶液にて UO_4 の形態で沈殿・分離され、ろ過・水洗された後、 U_3O_8 に仮焼される。

4. 装 置

4-1 抽出工程 (Hot Cell equipment) など

ウラン溶解等の前処理工程では15cm厚みの鉛のしゃ弊体内で 200×65 のセルを用いて行われる。各工程では、各々マニピレーターが用いられている。また250kgのクレーンも用いられている。

溶解槽については、槽だけでなくオフガス処理系、コンデンサ、NaOH用の真空ポンプも使われている。

抽出工程では、3系統のミキサセトラ群があるが抽出及び洗浄用には8個のミキサセトラ、清澄では12個のミキサセトラがあり、原料供給槽、試薬用などの貯蔵タンクもある。また、高レベル廃液濃縮用と製品ウラン濃縮用に各々蒸発装置がある。溶液の輸送については、真空式かエアリフト式が採用されている。また、ミキサセトラの置いてある区域内には、原料であるウラン溶液をミキサセトラに供給するポンプが据え付けられている。

4-2 グローブボックス内の装置

グローブボックス内には、通常の研究室で用いられる規模の混合・抽出(バッチ)、沈殿、ろ過装置がある。また、 U_3O_8 への仮焼はシリカるつばにより行う。

5. シーケンス (操作の順序もしくは手順)

本工程におけるシーケンスを以下に示す。

5-1 原料ウラン供給係

Fig. 2 にブロックフローシートを示す。

I REからの原料ウラン溶液は9Mの HNO_3 により溶解・溶出されるが、この時、フィルタ等は 2.2μ のろ紙により分離する。これらは乾燥後、最初に原料が入っていた容器に房される。また、ウラン溶出液についてはU含有量が2%以下になる様に調整する。これは、 $^{144}Ce-Pr$ を用いて測定を行う。

次に、有機分を分解するため H_2O_2 が添加される。3の後 $0.4 \mu m$ のフィルタで2回ろ過される。この時1回の処理量は $550 g \text{ }^{235}U$ であり、容器4~5個分の原料ウランに対応する。最後にウラン濃度として0.9M、 HNO_3 として3.5~4Mの溶液 2.5ℓ が調

整される。これらの調整は1回1回行なわれるため比較的ゆっくり行なわれる。調整後の溶液の性状をTable IIに示す。

5-2 抽出系

抽出については実際の稼動が50hr, 調整が8hrである。抽出のフローシートをFig3に示す。試薬等についてはエリア外からポンプで送られる。高レベル廃液については100ml/hrの速度で蒸発される。放射能により分解した物質や有機物については、沸騰した酸中で次第に分解され、特に泡の生成や急激な反応をすることはない。体積についてはナトリウム塩があるためある程度まで減少したらこれ以上には減少しない。従ってHAWの貯蔵時にはシステムが閉塞してしまうのを防ぐようにしなくてはならない。また、放射能等によりガスが発生しフィードラインにそれが見られるため、HAFフィードタンクとポンプの間にガス抜きがもうけられている。

有機相には境界相においてクラッドの生成及びFPの抽出が生じないようにしている。従って、抽出工程では特に問題となるようなことはない。また、洗浄工程では、Zr, Nbの除染率を高めるために54°Cで運転されている。

抽出系の製品ウラン溶液は、連続的に蒸発・濃縮され濃度が約1モルに調整される。蒸発開始後、FPの蓄積と酸濃度の上昇につれて泡が発生する。微量のHNO₃と有機物については、沸騰酸中で急激に分解されはじめる。それにより、泡は完全に消滅する。

また、抽出時には、失火を防ぐために運転中はセル内に窒素を導入する。この様にして生成したウラン溶液の成分についてTable IIに示す。Table IIを見てわかる様にPuについては抽出時にウランと同様の挙動を示すため原料中のPu量とあまり大差ない。

5-3 Zr, Puの除去

以上の工程から出るウラン溶液については、放射能濃度、化学成分の点でスペックを満足するものではないが、それを取り扱ううえでは特に遮幣をする必要性はない。ウラン溶液中に含まれるZr, Puについては、沈殿法による精製ではウランと共沈してしまうため、本方法を用いることはできない。そこで、これらについては抽出法を用いるが、図4にフローシートを示す。

図4に示す様に、抽出ではTTA/キシレン溶液を用いる。まず、特にZrを除去するために、溶液/溶媒を10程度にしてバッチ操作を行う。次に、ヒドロキシルアミン-硝酸溶液とHNO₃の混合溶液を使って、Puを4価にした後、酸度を1N以下にしTTA/

キシレン溶液（溶液比20：1）にてPuの抽出を行う。

本工程において生成したウラン溶液の成分についてTable IIに示す。

5-4 H₂O₂によるウラン沈殿

次にZr, Puを除去したウラン溶液にH₂O₂を加えウランを沈殿物として回収するが、過酸化水素法には、溶解している金属イオンを除去することができるというメリットがある。本法にはいくつかの方法があるが、ここでは以下の方法を用いた。

まず、ウラン溶液に緩衝剤としてアンモニウムアセテートを加えPH=2.8とする。この段階で赤みがかかったオレンジ色のウランを若干含んだ沈殿が生成する。ウランの含有量は30~35W%である。次にこの溶液をろ過し、H₂O₂を1.2ml/guになるまでゆっくり加えていく。この様にするとうランの沈殿物が生成するが、溶液のpHも最終的には1.2程度となる。こうして生成した明るい黄色の沈殿物を沈降させ、硝酸アンモニウム、アンモニウムアセテート及び過剰のH₂O₂を含む溶液で数回洗浄する。この様にするとう、沈殿物は目開7μmのろ紙で簡単にろ過できる。最後に上記の洗浄剤を除去するために水で洗浄を行う。これを室温にて乾燥後、シリカ製のピーカに入れ850°C、16時間仮焼しU₃O₈とする。

5-5 収率と物質収支

原料である照射係のウランが1つのステンレスの収容器内に何グラム入っているかが明らかにされている訳ではないが、平均値としては、IREにより報告されている。

まず、ウランの収率について言えば、溶解時のサンプリング（ウラン濃度と酸濃度の分析）で4~6gのウランがロスされる。また、高レベル廃液中に3g程度、他の廃液中に極微量のウランが含まれる。

抽出系でのエリア内での収率は約98.5%であり、TTA/キシレン抽出時に2g、赤みがかかったオレンジ色の沈殿物中に3~4gのウランがロスする。ろ過と洗浄では平均的に0.2gのウランがロスし、最終製品のサンプルで3~4gのウランがロスする。この様にするとう、ウラン収率は約96%となる。

全体的なマテバラは、原料成分量が不正確であり、またエリア内の貯蔵タンクの容量が不正確なため、算出することができない。

6. 最終製品の性状

最終製品の性状については、何回か運転したがあまり整合性がない。これは、特に洗浄

工程や、Pu除去、U沈殿では原料の性状に合わせて運転していることや、最終製品の純度を高める改良していることが原因となっている。ただし、現在得られている製品ウランの性状は以下の様である。

6-1 製品中のウラン含有量と濃縮度

U₃O₈中のウラン含有量はU₃O₈基準で理論量(U₃/U₃O₈)である0.8466に対して0.3%の誤差内に入っている。また²³⁵Uは92W%である。また²³⁴Uも0.7W%含まれているが、²³⁴Uのα分析値を各プロセス毎に分析し、プロセスの解析に用いている。

6-2 放射能純度

現在のところ、スペックである2600Bq/guは満足している。しかしながら、運転初期には、⁹⁵Nb (3200Bq/gu以上)、¹⁰⁶Ru (>500Bq/gu)、¹²⁵Sb (>1200Bq/gu)、¹³⁷Cs、¹⁴⁴Ce (>3900Bq/gu)、¹⁵⁴Eu (>1100Bq/gu)が検出された。Puについても運転当初は>60ppmであったのが現在では<1ppmである。Puの娘核種については、検出されていない。ただし、Thについては10~60ppm含まれている。

6-3 化学的純度

化学成分についてはスペックを満足しているが、いくつかの元素についてマス分析により10ppm以上含有されていることがわかっている。Zrについては、運転当初400~500ppm含まれており問題であったが、現在では、<10ppmである。同様にPについては80~5ppm以下、Clについては5~70ppm含まれている。またSについて50~150ppm含まれていることがわかっている。このS分については、どこからコンタミしているのかわかっていないが、TTAの放射能分解も考えられている。Bについてもスペックが2.5ppmに対し<1ppmである。製品仕様について表IVに示す。

7. ま と め

照射体からのウランの分離・回収について比較的簡単な方法を用いて行った。これは、Purex法とTTA/キシレン抽出法の組み合わせたものであり、本方法でPu及び何種類かのFPが除去できることがわかり、DFも10⁵~10⁶であることが示された。さらにH₂O₂を加えることでさらに純度が上がり、しかもろ過しやすい沈殿物が得られることがわかった。現在までのところ、2.5kgが処理されているが、特にプロセス上問題になること

は起こっていない。また、ウラン収率は約96%である。このウラン損失のうち、約半分は、
サンプリングと分析廃液中への流出によるものである。プロセス廃液等、回収不能分はく
0.5W %である。

TABLE I : Flow sheet characteristics for the decontamination cycle

Stream	1	2	3	4	5	6	7	8
Code	HAF	HAS	HAX	HAW	HAP	HCX	HCP	HCW
Flow (mlh ⁻¹)	50	40 (50)	200	90	200	285	285	200
U conc. (M)	1.35	—	—	—	0.34	—	0.237	—
U conc. (g l ⁻¹)	320	—	—	—	80	—	56	—
H ⁺ (M)	4	3(1.5)	—	3.6 (2.7)	0.05	0.01	0.01	—
TBP (vol.%)	—	—	30	—	30	—	—	30

TABLE II : Characteristics of the Process Solutions

Typical values of current runs

	HAF Feed Solution	HCP Decontaminated Product Solution	Final Uranium Solution
Volume (ml)	2100	2475	2475
U $g\ l^{-1}$	259	214	214
Pu $mg\ l^{-1}$	25	14	< 1
$^{144}Ce\ Bq\ l^{-1}$	$1.19 \cdot 10^{12}$	n. d.	n. d.
$^{144}Pr\ Bq\ l^{-1}$	$1.19 \cdot 10^{12}$	n. d.	n. d.
$^{137}Cs\ Bq\ l^{-1}$	$1.94 \cdot 10^{10}$	n. d.	n. d.
$^{106}Ru\ Bq\ l^{-1}$	$5.62 \cdot 10^{10}$	$3.36 \cdot 10^6$	$\sim 2.00 \cdot 10^6$
$^{125}So\ Bq\ l^{-1}$	$4.07 \cdot 10^9$	n. d.	n. d.
$^{95}Zr\ Bq\ l^{-1}$	n. d.	$2.71 \cdot 10^6$	$\sim 3.00 \cdot 10^4$
$^{95}Nb\ Bq\ l^{-1}$	n. d.	$1.15 \cdot 10^6$	$1.15 \cdot 10^6$
$^{154}Eu\ Bq\ l^{-1}$	n. d.	$2.53 \cdot 10^5$	$2.53 \cdot 10^5$

n. d. not determined.

TABLE III : Waste Stream Characteristics

Stream	Distillate HAF	Distillate Uproduct	Organic phase HCP	HAW
Volume (ml)	6850	14 500	11 050	2800
U mg l ⁻¹	2.7	10.4	97	< 1300
Pu mg l ⁻¹	0.0021	0.0006	0.035	< 1
¹⁴⁴ Ce Bq l ⁻¹	1.50 10 ⁷	8.4 10 ⁶	2.6 10 ⁶	1.38 10 ¹²
¹⁴⁴ Pr Bq l ⁻¹	1.50 10 ⁷	8.4 10 ⁶	2.6 10 ⁶	1.38 10 ¹²
¹³⁷ Cs Bq l ⁻¹	6.5 10 ⁵	5.4 10 ⁵	n.d.	3.9 10 ¹⁰
¹⁰⁶ Ru Bq l ⁻¹	2.44 10 ⁶	3.9 10 ⁵	9.2 10 ⁶	7.0 10 ¹⁰
¹²⁵ Sb Bq l ⁻¹	7.6 10 ⁵	8.9 10 ⁴	1.18 10 ⁵	n.d.
⁹⁵ Zr Bq l ⁻¹	n.d.	n.d.	6.7 10 ⁵	n.d.
⁹⁵ Nb Bq l ⁻¹	n.d.	n.d.	6.3 10 ⁵	n.d.

n.d. not determined.

TABLE IV : Typical End Product Specifications

Uranium batch UT4-020

	Atom percent		
$^{234}\text{U}/\text{U}$	0.706	Weight U_3O_8	: 151.46 g
$^{235}\text{U}/\text{U}$	92.199	Weight % U	: 84.54 g
$^{236}\text{U}/\text{U}$	0.690	Uranium	: 128.044 g
$^{238}\text{U}/\text{U}$	6.405		
Atomic Weight : 235.237			

Impurities

Radioactive	Bq / g U	$\mu\text{Ci} / \text{g U}$	Chemical	$\mu\text{g} / \text{g U}$ ($1\sigma = \pm 50\%$)
^{95}Zr	< 185	< 5.0×10^{-3}	Li	< 0.002
^{95}Nb	< 1110	< 3.0×10^{-2}	B	0.083
^{106}Ru	< 315	< 8.5×10^{-3}	Na	0.61
^{137}Cs	< 85	< 2.3×10^{-3}	Al	2.0
$^{144}\text{Ce-Pr}$	< 370	< 1.0×10^{-2}	Si	0.22
^{154}Eu	< 1130	< 3.1×10^{-2}	P	1.6
			Ca	1.1
			Ti	0.030
			V	< 0.001
			Cr	0.079
			Mn	0.013
			Fe	0.89
			Co	0.072
			Ni	0.56
			Cu	0.006
			Zn	0.096
Actinides			Ag	0.047
	$\mu\text{g} / \text{g U}$		Sn	2.4
Pu	< 1		Ba	< 0.010
Th	1.1		Pb	< 0.10
			S	53
			Cl	5.8
			K	18
			Zr	2.6

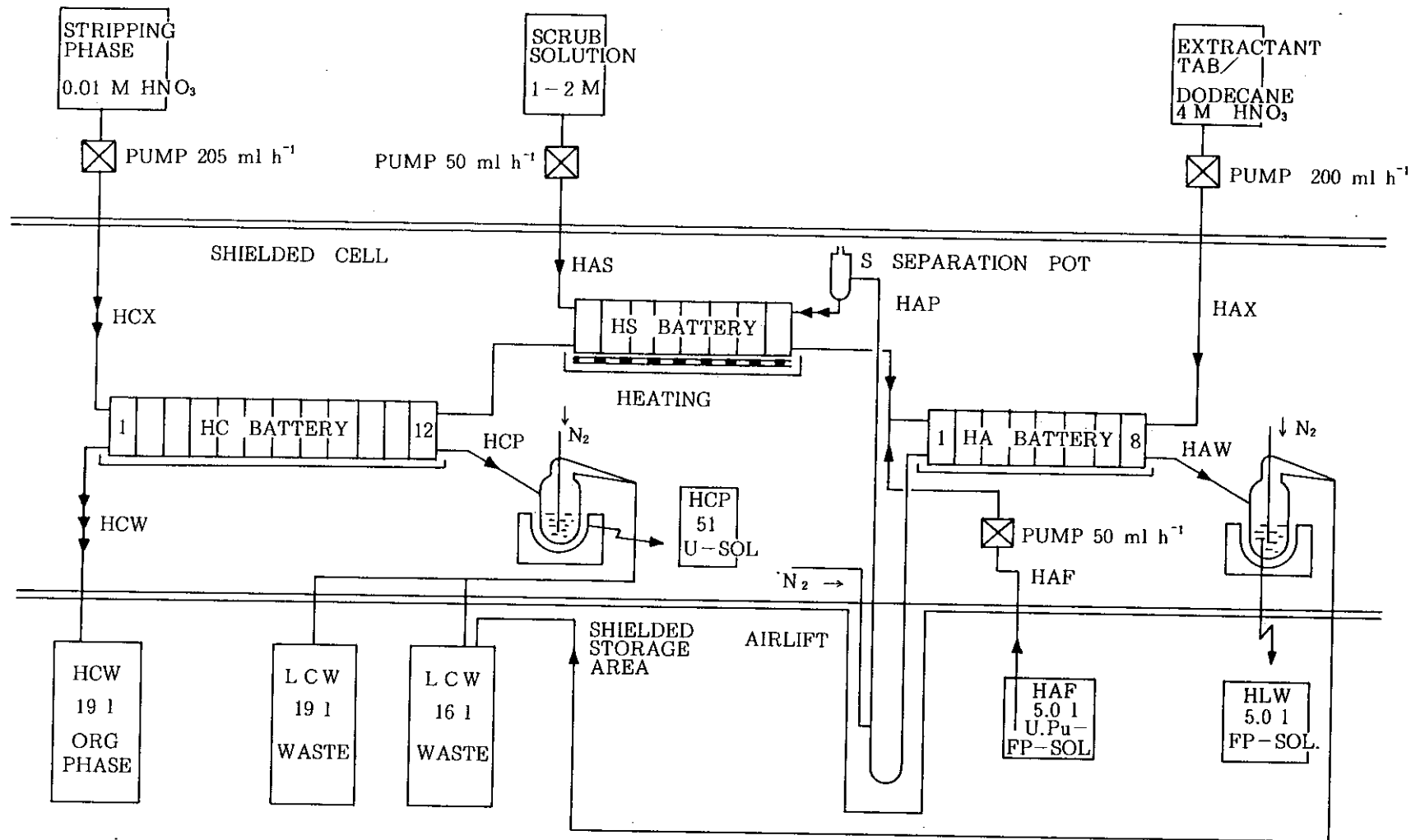


FIG. 1 : EXTRACTION FLOW SHEET AND AUXILIARY EQUIPMENT

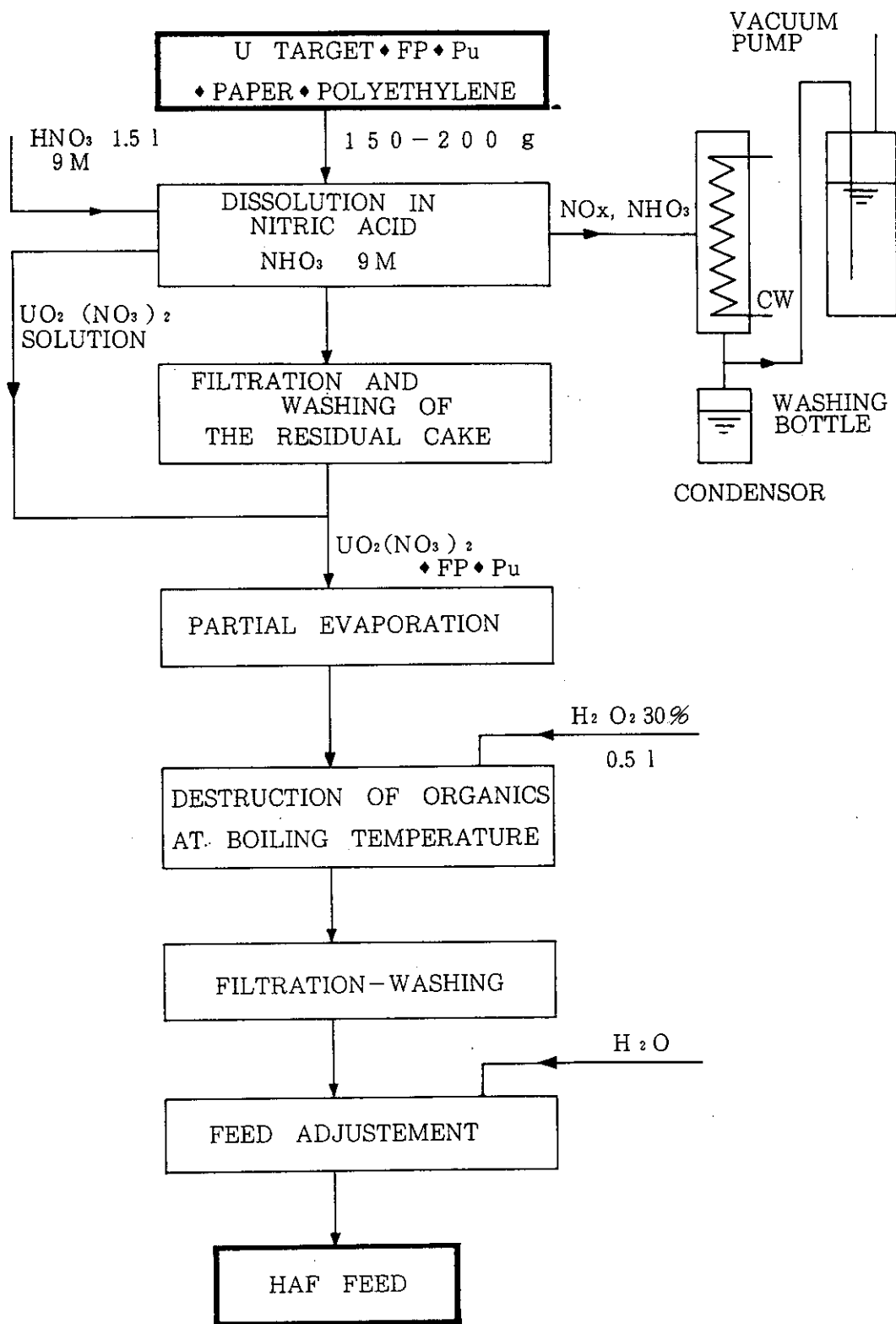


FIG. 2 : BLOCK DIAGRAM OF THE HAF PREPARATION FROM THE URANIUM TARGET

(7-16)

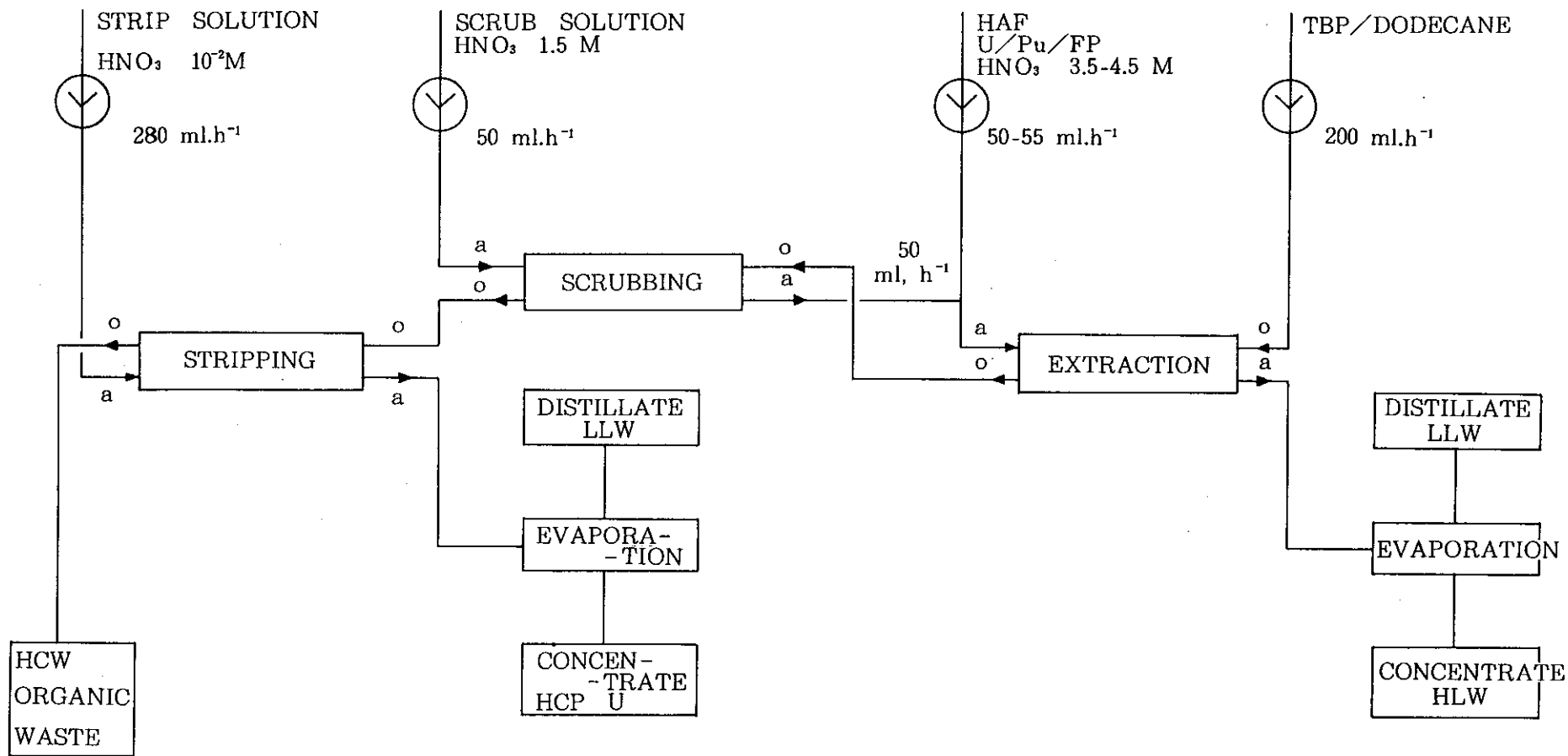


FIG. 3 : FLOW SHEET OF THE LIQUID-LIQUID EXTRACTION FOR THE GROSS PURIFICATION OF URANIUM

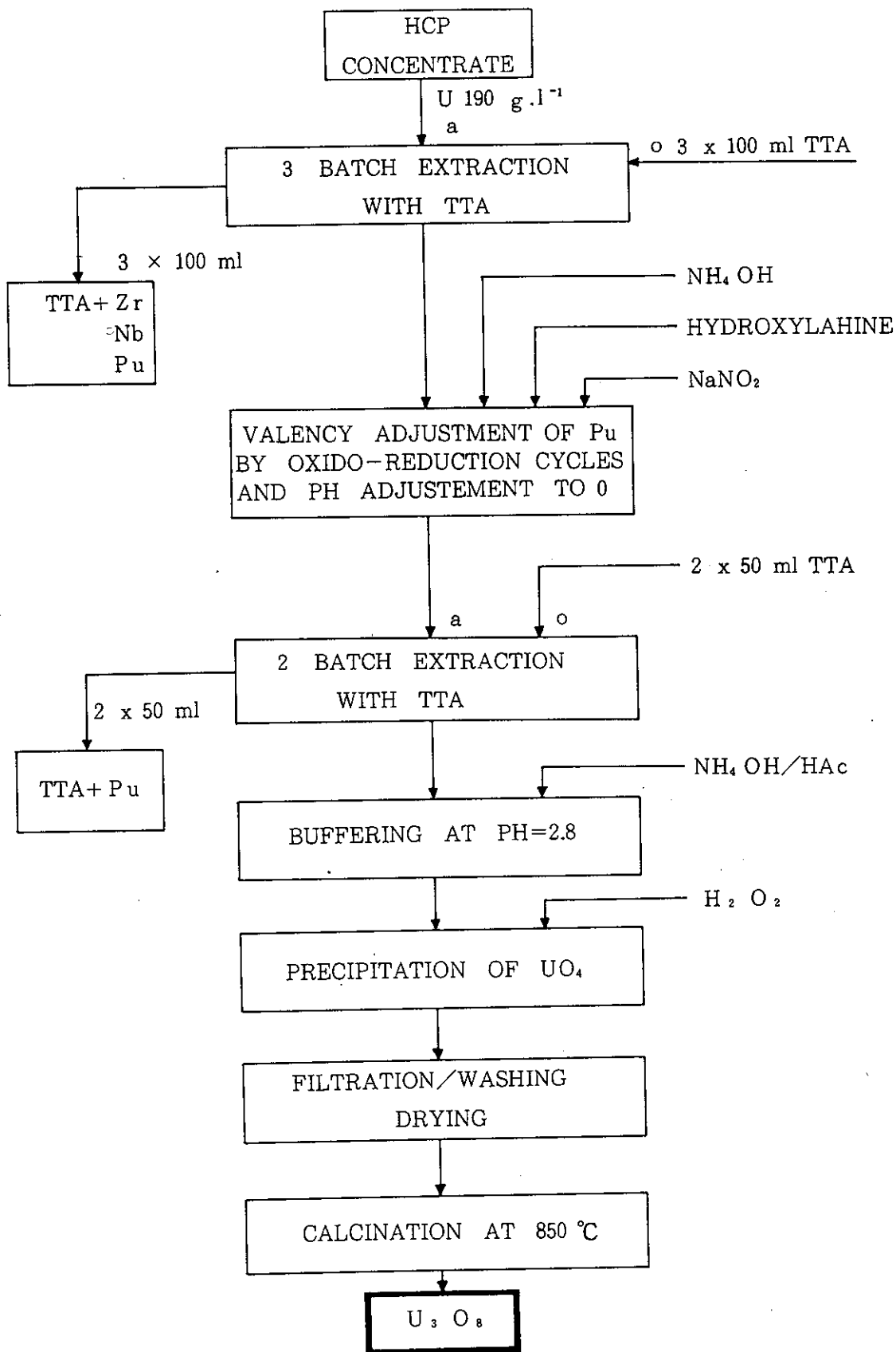


FIG. 4 : BLOCK DIAGRAM OF THE FINAL PURIFICATION OF URANIUM

THE REPROCESSED URANIUM CONVERSION
10 YEARS OF OPERATION OF COMURHEX.

Robert FARON RF

COMURHEX

Pierrelatte Plant

P.O. Box 29

26700 PIERRELATTE

FRANCE

要 旨

1960年代中頃、この施設はUF₆を焼結UO₂へ転換するためのパイロットプラントであった。

1970年、このプラントは改造によりLWRから発生するUNHをUF₆へ転換する設備となり、1985年末現在で、1300tのウランが転換され、製品UF₆は濃縮プラントへ搬出した。軽水炉から生じた回収ウランの転換は

——原料は濃縮度0.9～2.25%の微濃縮ウランである。

——回収ウランは不純物を含んでいる。

製品UF₆が再濃縮受け入れ仕様を満足するためには、コミュレックスは転換プロセス中で化学的不純物のみならず放射性不純物を除去しなければならない。この論文は、コミュレックス転換プロセスにおける主要な不純物に観点を当てそれらに対する除染効果を議論したものである。

1. 微減損硝酸ウラニルのUF₆への転換 (Fig 1 参照)

1970年以來、コミュレックスではフランスの黒鉛—ガス炉より生じた再処理回収硝酸ウラニルをUF₆へ約10000tu転換してきた。これは微減損ウランで、いくつかの注意がとられているが、通常の転換プラントでの処理が可能である。

1-1 高濃縮UF₆のUO₂への転換

この設備は1967年に高濃縮UF₆を焼結UO₂へ“deconversion”するために建設されたものである。

容 量 : 数kgu/hr

総生産量 : 200kgu (1967～1970)

プロセス : 湿式 (Fig 1 参照)

1-2 微濃縮UF₆のUO₂への転換

1969～1970年に3.5%U-235のUF₆を湿式プロセスにより deconversion した。

容 量 : 8kgu/hr

総生産量 : 60t/u

1-3 微濃縮硝酸ウラニルの UO_2 への転換 (Fig 2, 3参照)

1970年, 設備は再処理回収硝酸ウラニルの UF_4 への転換用へ改造され, UF_4 から UO_2 へのフッ化プラントが建設された。

容 量 : 200 t u/y (30kgu/hr) 当初

400 t u/y (60kgu/hr) 1986年

2. プロセス説明

UNH から UF_4 までは UNH 受入後次の管理を行っている。

- 化学的要素 (U量, 不純物)
- 放射能強度 (α , β , γ)

2-1

UNH は沈殿槽へ送られ, アンモニア溶液と反応し ADU 沈殿を生じる。この反応は温度と PH 測定によりコントロールされている。

2-2

第2ステップは真空ろ過機によるろ過で, 固液分離され, ADU は混合機へ供給される。 ADU は揺変する性質のため, ADU スラッジを次工程へ metering ポンプで吹き上げることは可能である。

2-3 ADU の UO_2 への仮焼・還元

乾燥, 仮焼及び還元は電気炉で加熱されたロータリキルンで行なわれる。初めに ADU は乾燥され, 次に UO_3 への仮焼そしてアンモニア分解により得られた水素ガスのカウンタカレントにより UO_2 へ還元される。このロータリキルンの温度は入口 $130^\circ C$ で出口 $650^\circ C$ である。

2-4 HF フッ化

第1ロータリキルンから UO_2 はエアバルブを通して第2ロータリキルンへ供給される。その後, HF フッ化がスクリュウの中で完了する。 HF はスクリュウの出口から供給される。 UF_4 はエアバルブを通してドラム缶へ収納される。

2-5 F_2 フッ化

UF_4 は粉碎後, dosing スクリュによって UF_4 と F_2 の割合を制御しながらフレームリアクターに供給される。これは過剰 F_2 の最大有効利用率を得るためであるが, F_2 利用率は100%とはならず, 少量の未反応生成物, UO_2F_2 , U_2F_9 , U_4F_{17} , U

F₆などがドラム缶に蓄積する。UF₆は焼結モネルフィルタにより固気分離され、未反応物質は上記蓄積物が500μレムに到達するまではフレームリアクタにリサイクルされる。固気分離されたUF₆は直列に連なった2基のコールドトラップにより約-40°Cで固化捕集される。

コールドトラップの容量が満杯になると、冷却が止められ温水によりUF₆は浄化し特定の輸送用コンテナに充填される。

3. 再処理回収ウランにおけるコミユレックス社の経験

3-1

ピエールラット工場では1972年以来軽水炉使用済燃料を処理した再処理回収ウランを転換し現在までの処理量は40バッチ、1300tuである。これらのバッチは15000から33000MWD/Tまで各種燃焼度のものを含んでいる。これらの使用済燃料は再処理前に3年から6年間冷却プールで貯蔵されている。これらの炉装荷時のU-235濃縮度は2～4%である。以上のことから回収ウランのタイプもいろいろなものが存在する。

U-235濃縮度 : 0.7～2%

U-232含有量 : 0.03～0.15ppm/U-235

U-236含有量 : 0.135～0.435%/U-235

これらのいろいろなバッチを通して、この分野においてコミユレックス社は多くの経験を蓄積してきた。そして我々は最近、バッチタイプによる特性についての研究を行った。この研究により、U-232含有量は燃焼度と再処理前の冷却期間の両方の関数であることがわかった。しかし測定結果はいつも理論値よりは低いように思われる。

(例) 33000MWD/T, 3年冷却後のLWR燃料の同位体組成

同位体	重量%
U-232	10 ⁻⁷ (100ppb/U235)
U-233	10 ⁻⁶ (1ppm/U235)
U-234	0.02
U-235	0.09
U-236	0.4

3-2

回収ウランは、また α 、 β 、 γ 放射能を持っている。

α 放射能は一般にはNp、Pu、Am、Cmの超ウラン元素によるものであるが、実際にはPu、Np-237により発生している。

β 放射能は核燃料サイクルにおいて複雑な挙動をする揮発性フッ化物や酸フッ化物を生じるRu-106から発生するものである。

γ 放射能はU-232の娘核種で短半減期のTl-208から生じる。

3-3 ウラン同位体の影響

• U-232はPu-236の崩壊により生成し、 α 、 β 、 γ 放射能を有する娘核種を持っている。今まで、DOEはU-232のスペックを0.110ppm (U-232/U-235)としてきた。この値は冷却期間の増加と高燃焼度化により将来変更されるものと考えられる。したがって、濃縮事業者のU-232スペックを採用することが必然的である。我々はこの値は、ASTM Nuclear 委員会で定めている現行の基準より3倍高くすることができるだろうと考えている。

我々は核燃料サイクル（転換、濃縮、燃料加工）におけるU-232の娘核種の変化も考慮しなければならない。第1番目の娘核種Th-228 ($T_{1/2}=1.91$ 年)はUF₆から除去（ろ過）され得る不揮発性フッ化物を生成する。

- 回収ウラン中のU-233は極めて低濃度で、濃縮スペックをはるかに下回っている。
- U-236は燃焼度の上昇により増大する。燃焼度が33000MW D/Tに到達すると回収ウラン中のU-236はU-235濃度の50%になるか又はそれ以上になる。

U-236は中性子吸収断面積が大きく、原子炉内でNp-237やU-232のような人工核種生成する。中性子を吸収することからLWRにおいてはU-235濃縮度を過剰にしてやる必要がある。その過剰の割合は、U-236 1%につき、U-235約0.5%である。

- U-234は回収ウランの放射能を妨害し、また低度合ではあるが中性子毒でもある。

4. 除染効果

4-1 硝酸ウラニルからUF₆への転換においてはウラン同位体の変化は無いことは明白である。というのは、ウラン同位体のスペックは硝酸ウラニルとUF₆とで同じだからである。

4-2 プロセス中の除染効果は金属不純物あるいは放射性不純物についてである。

(ここでは金属不純物については述べない。)

第1段階、即ち硝酸ウラニルからUF₄までは、精製効果は無い。全ての不純物はウランとともに析出する。

全ての化学的化合物はほとんどウランと同じ挙動をする。

第2段階、即ちUF₄からUF₆へのF₂フッ化ではかなりの除染効果を見ることが出来る。

4-3 α放射能

The ratio elements は2つのグループへ分けられなければならない。α線を放出するNp, Puのような超ウラン元素はUF₆から除去できる。これらの化合物は原子価最大では六フッ化物となり、これらの物理的性質はUF₆に近いが、F₂フッ化速度は、特にPuにおいては非常におそい。そしてこれら六フッ化物はフッ素圧減少下では不安定であり低原子価の固体に変化しやすい。故にこれらの大部分はフレイム塔底部やフィルタで捕集された反応残渣や粉塵の中に含まれている。

もし微量のPuやNpが液体UF₆中に存在する場合は、これらはコンテナに充填する前に焼結モネル合金の2μのフィルタに通過することにより除去できる。

4-4 β, γ放射能

Ru, Tc (Zr, Nb, Cs) のような核分裂生成物、またはTh (Pa . . .) のような娘核種 (filiation products) はβ及びγ線を生じる。これらの物質の挙動はそれぞれの蒸気圧により異なっている。ルテニウムやテクネシウムのフッ化物はUF₆とほぼ同じ蒸気圧であり、除染効果はほとんどない。

その他の元素のフッ化物は不揮発性であるため、粉塵と一緒に捕集される。

4-5

プロセスの開始部分でのα放射能が15000 dpm で始まるとき、製品のα放射能はおよそ150dpm であるので除染係数は約100である。一方、β及びγ線の除染係数はもっと低い(2~4)。コミプレックスによって開発されたプロセスは回収ウランを年間400t 転換し、精製することができる。回収ウランのU-235最大濃縮度は2.25%で、製品UF₆は現在の濃縮プラントの要求を満たしている。

10ton 以上のプロセスの収率はウラン収支の観点において約99.5%で固定されているが、このうちウランの約1%は粉塵として排出される。粉塵中のこの1%のウラン排出物は

“賈物”であり、我々は転換工転中でUF₆の品質改善をはからなければならない。

要するに、量については、直接回収されるUは、98～98.5% UF₆と1%ダスト生成物である。

これらの粉塵に関して、最善の解決策は、それらを最終的に好条件で貯蔵するために廃棄物を特別な方法で処理することである。

5. コミュレックスによる硝酸ウラニルの受入れ

5-1

一般的には標準仕様はASTMであるが、それらのうちいくつかは精密に規定されなければならない。コミュレックス社の提案は1000tあまりの運転経験の後の明文“購入者と製造者との間で合意した値”について、 α 、 β 及び γ 放射能だけに関するいくつかの情報を与えることができる。

5-2 α 放射能

我々は工場における空気汚染はいかなる場合においても75～76 PCi/m³以下でなければならないと考えている。天然ウランの場合は120 PCi/m³ (1.2×10^{-10} μ Ci/cm³)以下としている。この数字を得るために、 α 放射能は制限され、また3グループの元素から評価されなければならない。Pu-238, Pu-239～242, Np-237のような超ウラン元素による α 放射能は11000 dpmを超えてはならない。U-232の α 放射能は46300 dpm以下、Am-241, Cm-241～242及びU-232の全娘核種(Th228, Ra224, Rn220, Po216, Bi212, Tl208)による α 放射能は25000 dpmより低くしなければならない。

最大許容濃度での計算において、各グループ毎の重量は次の通りである。

ウラン元素 : 60%

超ウラン元素 : 25%

U-232 : 7%

daughter products of U232 and Am + Cm : 8%

5-3 β and γ activity

作業者を放射線から効果的に防護するために、核分裂生成物による全放射能を30 μ Ci/kguに制限したい。(γ : 13 μ Ci/kgu, β : 17 μ Ci/kgu)

現在までにラアーグ再処理工場より受入れている硝酸ウラニルはこの仕様を願慮して

いる。

これらの条件で我々は容認転換コストで公称生産量を保証できる。

6. 結 論

コミュレックス社は、ピエールラットに1000—1200tu/年の公称能力を持つ転換工場，UREX2000，の建設を考えている。コミュレックスではすべてにこの新工場の詳細な工学研究を実施し，予備フィジビリティースタディを実行した。

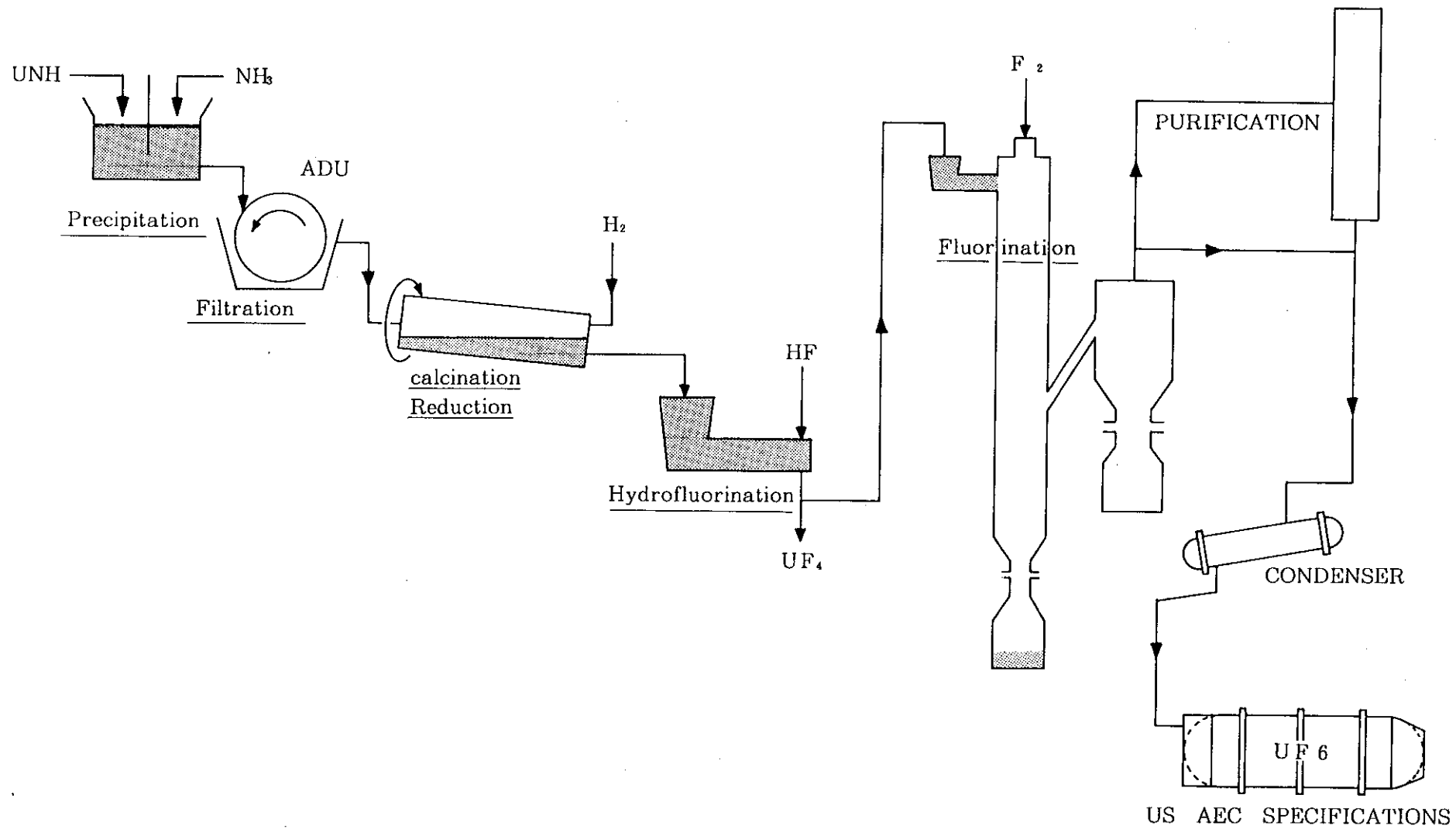


Fig. 1 : URANIUM FROM REPROCESSING

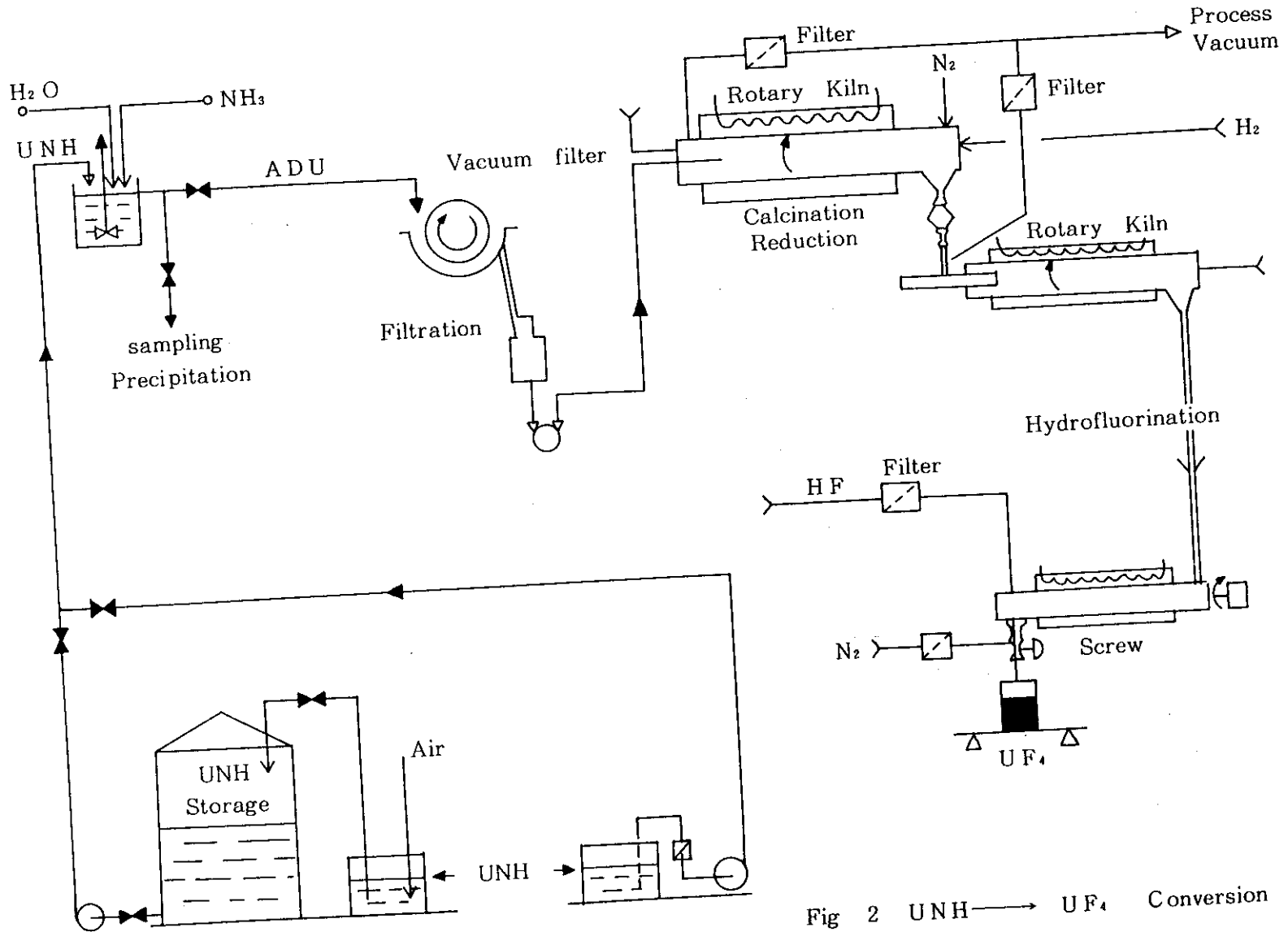


Fig 2 UNH → UF₄ Conversion

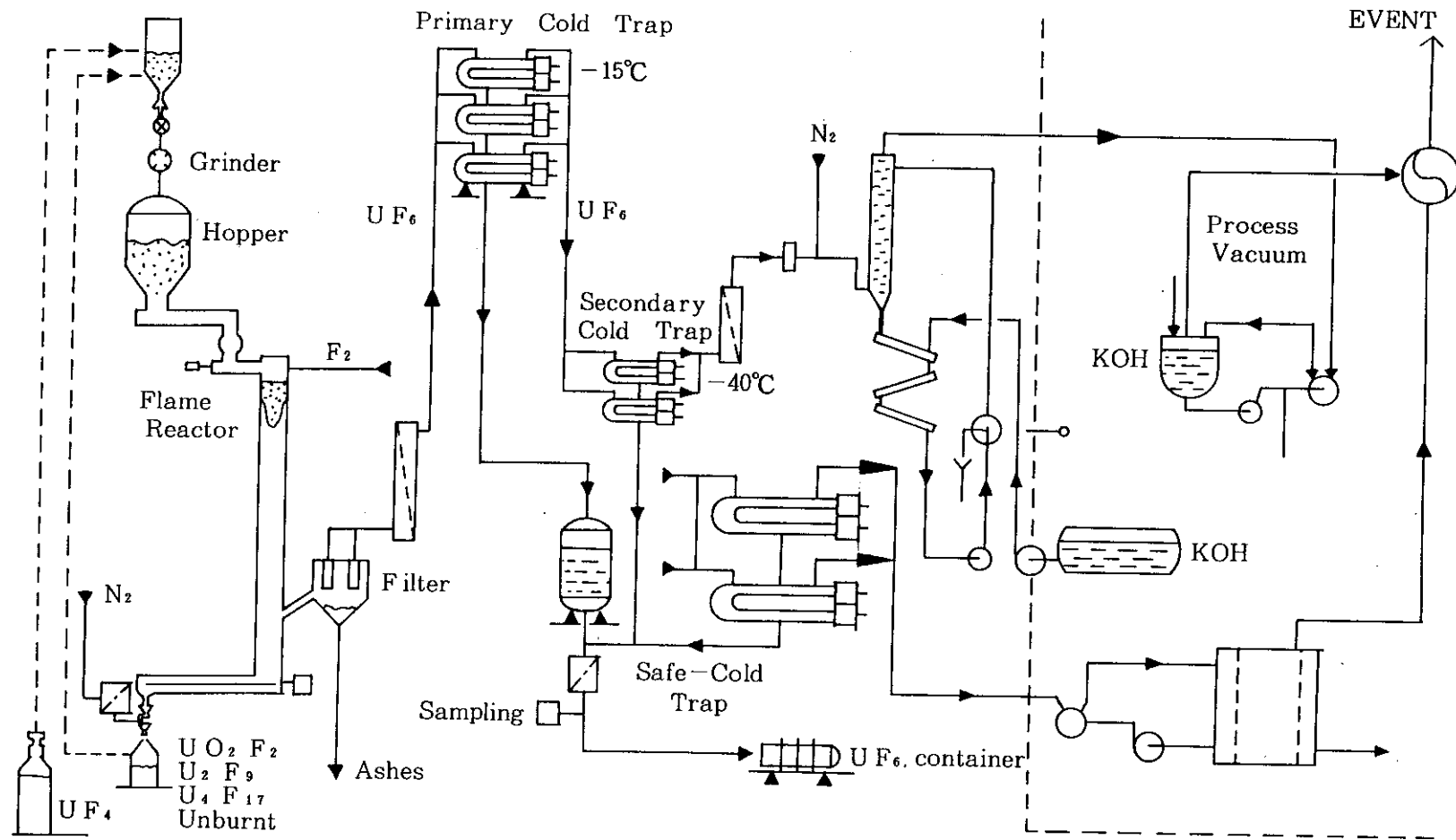


Fig 3 CONVERSION $UF_4 \rightarrow UF_6$

Problems due to impurities in uranium recovered from the reprocessing
of used LWR fuel, from the point of view of
recycling.

Ernesto Leyser

Deutsche Gesellschaft für

Wiederaufarbeitung von

Kernbrennstoffen mbH (DWK)

Hamburger Allee 4

D-3000 Hannover 1

F . R . G .

要 旨

使用済LWR燃料再処理により回収されたウランを再濃縮を経てリサイクル利用する場合、ウラン中に含まれる不純物（主に核分裂生成物とアクチノイド）がリサイクルの各工程で問題を引き起こす可能性がある。

これらはハンドリングの問題（人体への放射線の影響）やU236による中性子の吸収等のような技術的な問題である。

ここでは、不純物による問題とともに不純物のレビューも行った。

生成物のスペックと、精製（もし可能なら）についての考察も実施したが、スペックの変更については現在ASTMで論じられている。

精製が必要と考えられる場合は、経済的な観点から、リサイクルのどの工程で実施するかを見きわめることがきわめて重要である。

1. 序

使用済LWR燃料の再処理により、ウランとプルトニウムが回収される。装荷したウランの約95%が回収されるが、ウラン中のU235の割合は天然ウランより大きく、約0.8～0.9WT%である。このウランは再濃縮を経てリサイクルが可能である。

しかしながら、この回収ウラン中には核分裂生成物とアクチノイドを主とする不純物が含まれ（天然ウランには含まれないか、含まれても極く微量）、以下に示すような問題を引き起こす可能性がある。

——ハンドリングの問題（人体への放射線の影響）

——原子炉へリサイクルした場合の中性子吸収による炉オペレーションの問題

本論文は、再処理工程で更に精製することができない不純物について、それら不純物の持つ主な問題点、再精製法の提案（主に転換工程での精製が考えられる）等を述べたものである。また現行の製品スペックとその改良についても簡単に触れた。

2. 回収ウランに含まれる不純物とそれらが引き起こす問題

2・1 核分裂生成物

現行のスペックは、核分裂生成物の β 、 α 線強度を aged 天然ウランの強度と比較している。aged 天然ウランとは、精製により壊変生成物を除去し、短寿命の壊変生成物であるTh234, Pa234, Th231を平衡にさせるため少なくとも一ヶ月間貯蔵した天然ウランであり、以下に示す放射線強度を持つ。

α 線：0.68 μ Ci/gHM (2.52 $\times 10^4$ Bq/gHM)

β 線：0.68 μ Ci/gHM (2.52 $\times 10^4$ Bq/gHM)

γ 線：0.16 μ Ci/gHM (5.92 $\times 10^3$ Bq/gHM)

このaged 天然ウランの放射線強度と使用済LWR燃料の核分裂生成物の強度を比較することによって、再処理工程でどれだけの除染係数をとればよいか分かる。次表は3種類の燃焼度のLWR燃料の冷却期間1年と2年のものについて、除去すべき除染係数の値をまとめたものである。

燃焼度 (MWd/kgHM)	冷 却 期 間 1 年		冷 却 期 間 2 年	
	DF (β)	DF (γ)	DF (β)	DF (γ)
30	2.0×10^6	5.1×10^6	1.0×10^6	3.0×10^6
36	2.1×10^6	6.8×10^6	1.1×10^6	4.0×10^6
40	2.3×10^6	8.0×10^6	1.17×10^6	4.8×10^6

表より除染係数の値は $1 \times 10^6 \sim 8 \times 10^6$ の間であることがわかるが、再処理プラントでは一般に核分裂生成物を除染係数約 10^7 (個々のFPとしてではない) で除去できるため、燃焼度40000MWd/kgで冷却期間がわずか一年間の燃料でも核分裂生成物に関してはスペックを満たすことが明らかである。

以下に核分裂生成物のうち重要な元素について解説する。

——Zr95 (半減期=64日)

硝酸ウラニル (以下UNHと称す) 中で β , γ 線双方を持つものであるが、再処理工程の Purex 法で除去しにくい。

不揮発性フッ化物をつくるため、リサイクルの転換工程で主に問題になると予想されるが、再処理前に十分に冷却期間を設けることで問題はなくなる (西ドイツのWAK工場では7年の冷却期間を予定している)。

——Tc99 (半減期= 2.1×10^5 年)

Tc99は長寿命の β 放射核であり、プロダクトに移行する傾向がある。これはフッ化物であるTcF₆の蒸気圧が高いため (図1参照) で、UF₆ 中に移行し、濃縮工場の問題を起こす可能性がある。

——Ru106 (半減期=368日)

主にUNH中で β , α 線を発するが、冷却期間を長くすることで問題は少なくなる。さらに、RuF₆の蒸気圧がUF₆よりも3桁程度低いことから、転換工程で大きな除染が可能である。

2・2 TRU化合物

UNH中のTRU化合物の α 線強度は15000dpm/guと規定されている。

UF₆中では1500dpm/guとされているが、特にNpF₆とPuF₆がUF₆とほぼ同じ蒸気圧を持ち(図1参照)、製品UF₆中に移行しやすいことから、高すぎると考えられている。NpF₆とPuF₆は金属表面に触れると容易に不揮発性の四フッ化物に変わるが、これらは濃縮工程のフィード部分や遠心機等に蓄積することが考えられ、長期的に問題となるであろう。(※Uranitからの非公式情報による。)

以下に重要なTRU化合物について解説を加える。

— Np₂₃₇ (半減期 = 2×10^6 年)

NpはUNH中でTRU α 線を持ち、濃縮プラントにおいて上記のような問題を起こすことが考えられるが、ウランと化学的性質が類似しているため、Purexプロセスで分離することが困難である。

— Pu (半減期 Pu₂₃₈ = 87.7年, Pu₂₃₉ = 2.4×10^4 年, Pu₂₄₀ = 6.6×10^3 年)

UNH中の α 線強度に大きく影響し、上記のように濃縮工場の問題となる。

— Am, Cm (半減期 Am₂₄₁ = 433年, Am₂₄₃ = 7.4×10^3 年, Cm₂₄₂ = 163日)

UNH中の α 線強度にある程度影響する。Am₂₄₁濃度はPu₂₄₁の β 壊変のため、冷却期間とともに増加する。

Amに比較してCmの壊変は早い。

TRU化合物の全 α 線強度のスペックである1500dpm/guの値を実現するためには、再処理工場でPu, Am, Cmに対して約 10^6 の除染係数をとる必要がある。

カールスルーエの再処理パイロットプラント(WAK)のUNH中のTRU化合物の含有割合は、

Np : 60%

Pu : 34%

Am, Cm : 6%

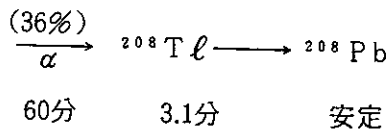
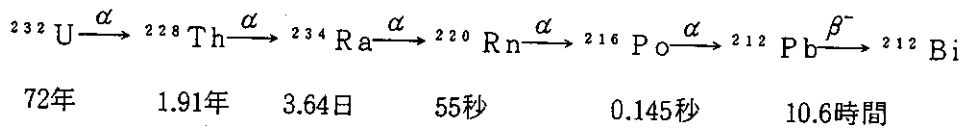
であり、Npの除去をまず考えるべきである。

2・3 ウラン同位体

ウラン同位体は化学的には分離できないため、それらが引き起こす問題を回避するためには、リサイクルプロセスを賢明に選択する他にないが、このことは将来同位分離の特性を持つレーザー法の登場によって変わる可能性がある。

——U232（半減期=70年）

U232は壊変生成物であるTl 208が強いγ線を発するため、リサイクルの全ての工程に大きく放射線の影響を与えるが、濃縮工程においてはU232の最初の壊変生成物であるTh228がフッ化物として固化するため、特に大きく影響する。



現行のU232のスペックは0.11ppm/U235とかなり厳しい値である。U232濃度は、図2に示すように燃焼度と装荷時の濃縮度の関係から求められる。

——U233（半減期=1.6×10⁵年）

この同位体はスペックの項で解説する。しかし、濃度が低いためリサイクル中では問題はない。

——U234（半減期=2.4×10⁵年）

天然ウラン中には約0.0055%含まれるが、燃焼後は約0.013%に増加する。U234はウランのα線強度の80%を持つため、主に燃料加工工程で問題となる。

——U236（半減期=2.3×10⁷年）

U236は、原子炉中でU235の中性子吸収によって生成する。図3には、U236濃度を燃焼度と残留U235濃度をパラメータにして示す。プロセス中では問題はないが、中性子吸収剤であることから、リサイクルするためにはU235濃縮度を高めておく必要がある。回収ウランのU236濃度にかかわらず、U235濃縮度は天然ウランの場合よりも0.15%高くする必要がある。

3. スペック、スペックの修正と再処理ウランの再精製の提案

LWR燃料のスペックに関しては、U232のようにスペックが厳しすぎるものや、Tc99のように寛大すぎてスペックを引き下げるべきもの等があり、ここ数年来の問題であった。

また、一般に製品ウランの再精製はたいへん高価となることが知られており、再精製に関しては、他の工程で経済的に精製ができないかどうかを見極めることが重要な課題である。

3・1 揮発性フッ化物を生成する元素と同位体

これらは製品UF₆に同伴するため、濃縮及び燃料加工工程で問題となる。揮発性フッ化物を生成する元素は大きく2つのグループに分けることができる。

(a) U235との比で規定される元素：Cr, Mo, Va, W, U233, U232

	US-DOE UNHスペック	US-DOE UF ₆ スペック	ASTMの提案 UF ₆ スペック
Cr	3000 ppm / U 235	1500 ppm / U 235	現 行 通 り
Mo	500 ppm / U 235	200 ppm / U 235	"
W	500 ppm / U 235	200 ppm / U 235	"
Va	500 ppm / U 235	200 ppm / U 235	"
U 233	500 ppm / U 235	500 ppm / U 235	"
U 232	0.11 ppm / U 235	0.11 ppm / U 235	0.3~0.5 ppm / U 235

WAK再処理プラントの経験では、U232を除いたすべての核種についてUNH中のスペックをその約半分の値であるUF₆のスペック程度に抑えることが可能である。

U232のスペックに関しては、ASTMによって0.11ppm/U235から0.3ppm/U235へ、最近では更に0.5ppm/U235にまで引き上げる提案がなされた。0.5ppm/U235という値は、図2より明らかなように、装荷時濃縮度が4%、燃焼度が50000 MWd/t HMの燃料がリサイクル可能となる数字である。これだけ濃度が高くなると、壊変生成物の放射線による影響が大きくなることが考えられるが、UF₆のシリンダー間の気送や濃縮工程や燃料加工工程への供給の際等に不揮発性フッ化物となる壊変生成物のほとんどは除去できるであろう(2・3参照)。これらはUF₆シリンダー洗浄液に移行し、放射線廃棄物となる。

(b) 全ウランに対する比で規定される元素

Sb, Br, (C, P, Si), 全ハロゲン, Nb, Ru, S, Ta, Ti

これら元素については問題はなく、従って現行のスペックを変更する必要性はない。

3・2 不揮発性フッ化物をつくる元素 (As, Al, Ba, Be, Bi, Cd, Ca,

Cm, Fe, K, Li, Mg, Mn, Na, Ni, Pb, Sn, Sr, Th, Zn, Zr)

Zrを除いて(2・1参照), 問題はない。

3・3 ホウ素換算 (B, Cd, Co, Eu, Gd, Li, Sm)

合計で8 ppm/Ut_{tot}であり, 容易に達成できる値である。

3・4 TRU化合物α線強度

一般に認められている濃縮前におけるTRU化合物のα線強度はUNH中で15000dpm/g Ut_{tot}, UF₆中で1500dpm/g Ut_{tot}であるが, 濃縮工程で, この値が大きすぎるということがわかり, US-DOEではUF₆中のスペックを25dpm/g Ut_{tot} ($1.1 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/gU}$)に引き下げる提案を行った。しかしこのスペック値は分析限界値程度であることから, 非現実的なものである。

一方, 転換工程では, TRU化合物を除染係数10以上で分離できることがわかっており, また高性能フィルタ(例えばNiウール)を用いることにより, 更に効率を上げることができる。ASTMでは, これらのことを勘案した上で200dpm/g Ut_{tot}程度の値が妥当であることが承認された。TRU化合物をUNH中で除去することは, 付加的な精製システムを要することから経済的でない。

3・5 核分裂生成物のβ, α線強度

	US-DOE UNHスペック		US-DOE UF ₆ スペック	
	γ ($\mu\text{Ci/kgU}$)	β ($\mu\text{Ci/kgU}$)	γ ($\mu\text{Ci/kgU}$)	β ($\mu\text{Ci/kgU}$)
(a) Ruによる放射能が全F.Pの75%よりも小さくない場合	320	1,360	32	68
(b) Ruによる放射能が全F.Pの75%よりも小さい場合	160	680		

唯一の問題はTc99 (2・1参照) であるが、古いUS-DOEでは単独のスペックがないため、1978年にUS-DOEは濃縮前のTcのスペックを0.4ppm/Uと規定した。

転換工程において、Tc99は揮発性フッ化物TcF₆ (UF₆中へ移行：図1参照) となるが、このTcF₆は不安定な物質で、かなりの量が不揮発性化合物に変化することから転換工程で大部分のTcは除去できると考えられる。また再処理のUNH中のスペックは8ppm/Uである。これらの問題はいまだにASTMにおいて討論中である。

3・6 再濃縮UF₆のスペック (RBUによる)

燃料加工側から規定されたもので、これらのスペックは濃縮度が最大5%U-235までのものに適用される。

3・6・1 揮発性フッ化物をつくる元素

(a) U235との比で規定される核種

	RBUスペック (ppm/U235)
Cr	1,000
Mo	1,000
W	1,000
Va	1,000

濃縮前のUF₆のスペックと比較して特に問題はない。これは最悪のケース (すべてが濃縮ウラン側へ移行するケース) でも、不純物の量は濃縮前と同量であるのに対し、U235は濃縮することによって平均で3~5倍濃度が増加することによる。実際には若干の不純物が濃縮工程のテイルUF₆側へ移行するであろう。

(b) 全ウラン量との比で規定される核種

合計で300ppmを超えない。

大部分の核種が濃縮のテイル側へ移行すると考えられるため、問題は起こらないであろう。

3・6・2 ウラン同位体

—U232 : 20ng/g U

濃縮前のU232量は約0.5ppm/U235である。

— U234 : 全ウランに対して0.13wt%

現行の経験値によるが、問題にならないであろう。

3・6・3 不揮発性フッ化物をつくる核種

合計量が全ウランに対して300ppmを超えてはならない。これらも特に問題はない。

3・6・4 TRU化合物

γ 線強度が25Bq/g Uを超えてはならない。これは1500dpm/g Uと等価であり、濃縮前のUF₆スペックと同じである。

3・6・5 核分裂生成物

β 線強度が1000Bq/g Uを超えてはならない (leading 核種: Tc99, Cs137, Ce144, Ru106, Rh102)。これは27 μ Ci/kg Uと等価であり、現行の濃縮前におけるUF₆スペックより2.5倍小さい値である。濃縮中にこの分の除染ができるはずである。

3・6・6 Th228

Th228のスペックは 8.4×10^{-5} μ g/g Uである。

Th228はU232の最初の壊変生成物であり、また濃縮工程では主に固体フッ化物として析出する。このことより、回収ウランは濃縮後燃料加工に送る前2~3ヶ月以上貯蔵すべきでないことがわかる。

4. 西ドイツでのウランリサイクル実績

西ドイツにおいて200kgの再処理回収ウランを再濃縮し、リサイクルした。この回収ウランは1983年にObrigheim発電所に装荷されたが、発電中に問題はなかった。

但し、この回収ウランは1977年に閉鎖されたGundremmingenのA発電所からのもので、燃焼度はわずか18000MWd/t Uであり、従って燃料加工工程での臨界管理は必要としかかった。また不純物の一部 (主にU232の壊変生成物とFPと考えられる) はAUCの汚過液へ移行した。

商業規模での回収ウランのリサイクルを実施するため、Neckarwestheim発電所に8つの燃料アセンブリーをリサイクルさせる計画がある。このためNeckarwestheim発電所の燃料を再処理して得られたウラン13トン COMURHEXプラントでUF₆に転換し、AlmeleのURENCOプラントで再濃縮を行った。現在HanauのRBUで4アセンブリー

が燃料に製造され、今年の6月に発電所に装荷される予定である。

また一方、Karlsruhe付近のWAK再処理工場でNeckarwestheimの燃料を再処理して7トンのウランを回収したが、これは今年の春にCOMURHEXで転換し、夏にURENCOで再濃縮し、秋に燃料加工のためにRBUに払い出す予定である。この4アセンブリーの燃料は1978年にNeckarwestheim発電所に装荷されるであろう。

これらの回収ウランは再処理前の段階で、 $30\sim 33\text{gwd/t U}$ の燃焼度に達していた(2～3年冷却)。

5. 結 論

使用済LWR燃料から再処理により回収されるウランは、再濃縮を経てリサイクルが可能であるが、不純物のあるものは後工程で問題を引き起こす可能性があるため、それらを除去する対策が必要となる。

再処理工場で不純物を更に精製することは経済的にコスト高となり、リサイクルの経済的利点が少なくなることが知られているが、このウランの再精製は他のリサイクル工程(主に転換)で効果的に、かつ比較的低コストで実施可能である。UF₆の容器間の移動や各工程のフィード部分などで、同位体のあるものを効果的に精製することも可能である。

これらの問題は、再処理、リサイクルを予定している国々によって、慎重に調査されるべきである。

以 上

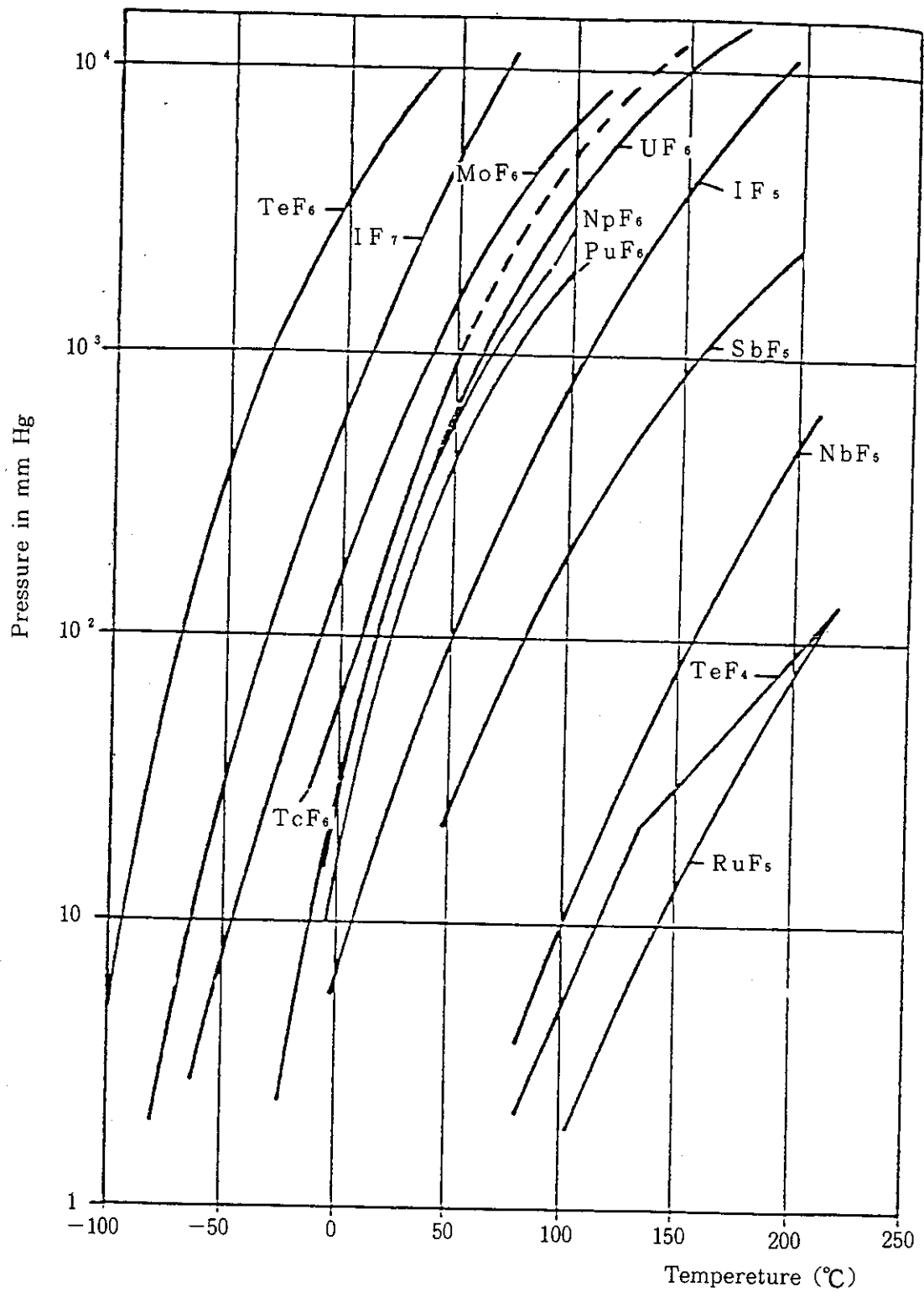


Fig. 1 : Vapour pressures of volatile fluorides

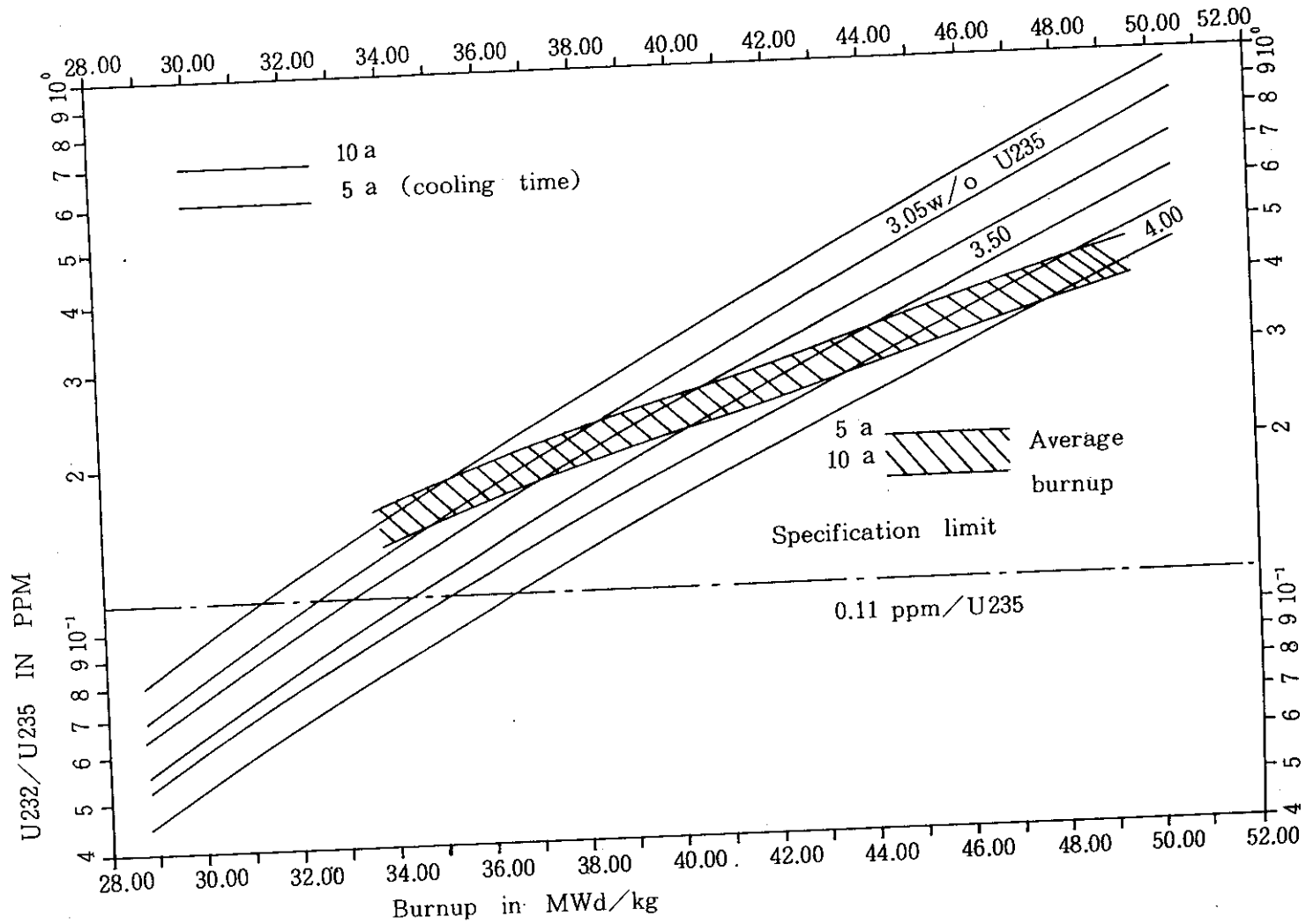


Fig. 2: Amount of U_{232} particles as a function of burnup and initial U_{235} enrichment Basis Origen P=36MW/kg cooling times 5 to 10 years

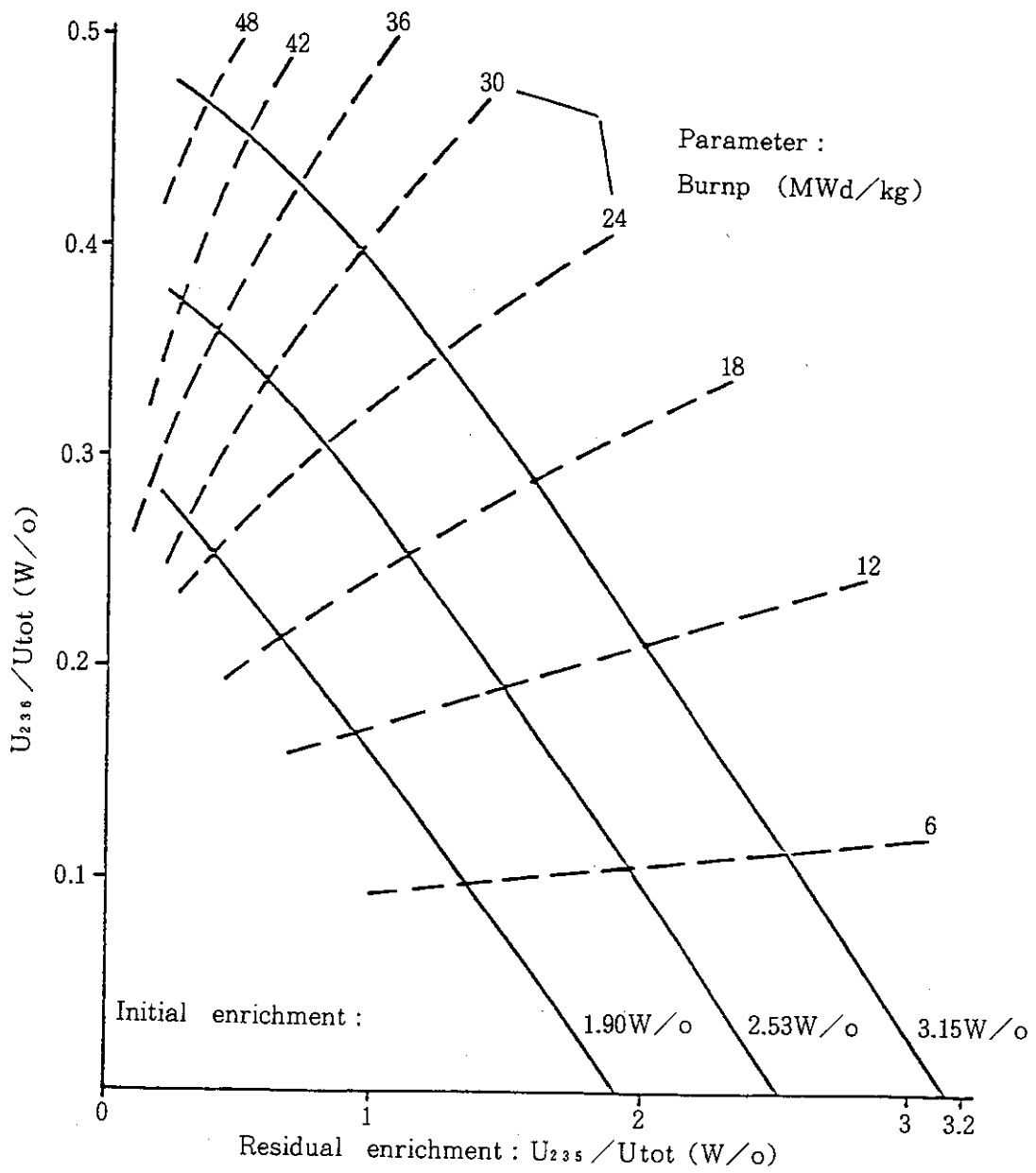


Fig. 3 : U_{236} contents as a function of residual U_{235} enrichment for PWR fuel

CONVERSION OF URANIUM ORE CONCENTRATES
AND REPROCESSED URANIUM TO NUCLEAR FUEL
INTERMEDIATES AT BNFL, Springfields.

Dr. H. Page
U.K.

スプリングフィールドBNFLにおける核燃料への ウラン精鉱と再処理ウランの転換

B編 再処理ウラン

1. 緒言

30年以上も前よりBNFLのセラフィールド事業所で再処理が行われているが、ここで25,000 t U程度のウランが照射済ウラン金属燃料（マグノックス）より UO_3 として回収されてきた。0.711%以下のU-235を含有する原子炉劣化ウランと同等物である15,000 t U以上のウランがスプリングフィールド事業所で六フッ化ウランに転換され、その後BNFL拡散法またはカペンハーストにあるウレンコ遠心分離法プラントにて濃縮された。この濃縮ウランは現在までに製造されたAGRの燃料の75%に相当し、その原子炉稼働率は非照射ウランから得られた燃料と同等であった。

1990年代の初めには、照射済み酸化燃料（AGRとLWR）の再処理により回収されるウランがセラフィールドのTHORPプラントより大量に発生するであろう。核燃料サイクルにこのウランを返すために、プラントがスプリングフィールド事業所で次のように予定されている。

- (a) 拡散法または遠心分離法プラントに供給するのに適した UF_6 にウランを転換する。
- (b) 濃縮プラントの製品を転換し、AGRまたはPWR燃料集合体に加工する。

本稿は、再処理ウランの UF_6 への転換についての過去の経験と将来遭遇するであろう変化について述べている。

2. 照射済みマグノックス燃料の再処理から回収されたウランの転換

2-1 プロセスの概要と運転経験

照射済みマグノックス燃料の再処理によって生産された精製硝酸ウラニルを UF_6 に転換するために使用されているプロセスプラントは、従来よりウラン精鉱より得られた精製硝酸ウラニルを転換するために使用されているプラントと似通っている。このプロ

セスプラントについては前稿の「参考1, 2」に十分に述べられており、次のような主要なステージにより基本的には成り立っている。

- (i) multi-effect climbing film 蒸発塔での精製硝酸ウラニルの連続蒸発。
- (ii) 三酸化ウランを生産するため、一段流動床での熔融した硝酸ウラニル6水塩の連続脱硝。
- (iii) 四フッ化ウランを生産するための一段流動床でのバッチ運転による還元とHFふっ化。
- (iv) 六フッ化ウランを生産するための一段流動床での四フッ化ウランの連続フッ化。

再処理マグノックス劣化ウラン(MDU)の転換初期の頃には、次工程のスプリングフィールドの転換工場への供給原料は、濃縮度0.4~0.6%のU-235を含有する約250g-U/lのMDU純水硝酸ウラニルより成り立っていた。この液体は、セラフィールドからスプリングフィールドにステンレス製輸送容器で運搬され、UN→UF₆処理流動床プラントへ供給された。しかしながら、スプリングフィールドの第2ウランプラントの立上げ直後スプリングフィールドで開発されたものと同一の蒸発と脱硝設備がセラフィールドに設置された。1964年以降、全てのMDUUO₃は再処理側で生産されており、50ガロン軟鋼ドラム缶に適当に密封貯蔵した後、UF₆に転換するためにスプリングフィールドに陸上輸送される。

スプリングフィールドに導入した第1ロータリキルンが好成績であったので、第2のそのようなプラントでは最近、経済性と安全性の理由により時代遅れとなった流動床還元及びHFふっ化に替わって、ロータリキルンを導入中である。それ故に、将来のMDU転換キャンペーンは長年確立してきた流動床技術に代わって、ロータリーキルン技術が組み入れられるであろう。

セラフィールドで生産されたMDUUO₃の大半が、AGR燃料に最終的に加工するためコペンハーゲンの拡散法プラントで濃縮されてきたが、少量の低濃縮物は拡散法プラントの最近の閉鎖に先立って、貯蔵用に振り向けられた。この貯蔵物は、将来のMDU転換キャンペーンからの発生物とみなして、目下ウレンコ遠心分離法プラントに供給されている。

MDUの転換に関するBNFLの経験のほとんどは、AGR燃料用としてのものではあるが、小量の準天然ウランが、再処理MDUと照射済酸化燃料の再処理から得られたウランとの混合によって生産されてきている。その二成分を硝酸ウラニル溶液で混合することがスプリングフィールドで行われてきた。この天然ウラン相当の液体は、前述したように従来法であるUNを金属にする工程によって金属ウランに転換された。いかなる不測の事態も、マグノックス燃料製造中やその後の擬似天然金属ウランの第2照射サイクル中において生じなかった。

2-2 保健物理学と安全対策

2-2-1 放射線医学上の危険性の原因

スプリングフィールドでの UO_3 を UF_6 に加工する工程においては、主要な放射線医学上の危険性はウラン粉塵吸入の可能性が考えられる。危険性の1つはMDU転換時、超ウラン元素が存在していることによる。これらの元素は質量的には取るに足らないものではあるが、それらの高い放射能によって、放射能の誘導空中濃度(DAC)の主要割合を占める。超ウラン元素によるDACの割合を完全なものにするためには、重要な問題が生じないレベル以内に、ウラン中の超ウラン元素の量を制限することである。

MDUにおける残留核分裂生成物の存在は、制限されない限り、許容することのできないほどの外部放射線レベルに到達することもある。経験では、ドラム缶または反応槽の表面において1時間当たり15ミリレムまでが、重要な個人被ばくを与えないことがわかっている。このレベルは、スプリングフィールド転換工程において許容できる放射線レベルの限度として規定されてきた。

MDUを転換する時の UO_3 から UO_6 への工程におけるプラントでの注目すべき主要な放射性核種は、

超ウラン元素 …………… プルトニウム, ネプツニウム
残留核分裂生成物 …………… ルテニウム106

である。

U-232の崩壊生成物であり、比較的低燃焼したマグノックス燃料の再処理から得られたMDU中のTh-228の濃度は、保健物理学的に重要な問題となるレベル以下である。

2-2-2 保健物理学と安全経験

— UO_2 を UF_4 に転換するステージ

粉体輸送と反応系がすべて完全に密封されている流動床を用いた UO_2 を UF_4 に転換するステージでは、顕著な空気汚染や外部被ばく線量率の問題は発生しなかった。同様に、将来のロータリキルンを用いる UO_2 を UF_4 に転換するステージにおいても、いかなる支障も見出せないであろう。

— UF_4 を UF_6 に転換するステージ

もとの UO_2 中に存在する極く微量のプルトニウムとルテニウムは、フッ素フッ化塔内残留物または塔フィルター残留物であるフッ化カルシウム固体微粒子に付着して、流動床より時々除去される。この重要性は、 UF_4 を UF_6 に転換する反応が、これらの核種を非常に効果的に除染することである。

MDU 転換キャンペーンの間、固体残留物の流動床からの除去は一時封じ込めや、汚染防護用圧力スーツの着用及び放射線被ばくの制限管理を含む保健安全課の管理技術に従ってなされている。残留物は小型の軟鋼ドラム缶に密封され、 UF_4 から UF_6 へ転換するステージで除去される短命の U-238 の娘核種が平衡状態になるまで適当に貯蔵した後、残留物は会社の廃棄物施設へ輸送される。

— 総括

再処理運転で回収されたウラン中の超ウラン元素アルファ線放出核の濃度は十分低く、スプリングフィールドでの転換ステージにはほんの限られた放射線医学的な影響しか与えない。

同様の説明を主要な核分裂生成汚染物、即ち、長半減期を持つ軟ベータ線放出核である Tc 99 と、短半減期ガンマ線放出核の Ru-106 (その娘核種による) について述べる事ができる。

MDU 原料の場合、再処理プラントの UO_2 製品の一時貯蔵とキャンペーンの適切な日程の設定が UO_2 から UF_6 へ転換するステージにおける Ru-106 の放射線医学的な影響を有効に取り除いた。

2-3 品質

MDU の 15,000 t 以上はスプリングフィールドの転換ステージにて処理されてきた。

主要な関心事は、残留核分裂生成物の濃度と超ウラン元素アルファ放射能であった。

スプリングフィールドでは、主としてネプツニウムによる非常に高いレベルの超ウラン元素アルファ放射能の下で UO_3 の転換が特に行われた。

ネプツニウムのほとんどは除去することができ、濃縮工場へネプツニウムを持ち込むことを防ぐことができることがわかった。ネプツニウムの除去の初歩的な方法が流動床系内のフッ化カルシウムに吸着させることであることが再び示された。残留するネプツニウムは特殊なトラップにて除去され、さらに濃縮プラントで供給する時に UF_6 輸送シリンダより気化する際に除染が行われた。これらの試みは、濃縮プラントへ供給するための UF_6 転換用の再処理プラントのウラン製品の仕様の必要条件を実証するものであった。

3. 照射済み酸化物燃料（AGR, LWR）の再処理から回収されたウランの転換

3-1 保健物理学と安全対策

U-234, U-235及びU-238のような天然のウラン同位体に加えて、その他の同位体が照射中及び照射後の核燃料中にできる。これらは主としてU-232, U-233及びU-236であり、U-232が転換における保健物理学的問題に最大の影響力を持っている。

前述したように、比較的低い燃焼をしたマグノックス燃料中にはU-232が低レベルでしかないので、MDU転換の保健物理学上の問題は、主としてプルトニウムやネプツニウムのような残留超ウラン元素アルファ線放出核やルテニウムのような残留核分裂生成物にあることを意味する。しかしながら、BNFLは目下セラフィールドの熱中性子炉酸化物燃料再処理プラント（THORP）で UO_3 として生産される予定となっている酸化物燃料再処理ウラン（ORP）の転換用の新しい専用プラントをスプリングフィールドに建造することを計画している。スプリングフィールドの転換工場は、THORPから受託できるように1990年代の初めの同時運転が計画されている。その後ウレンコ遠心分離法工場で濃縮されたORP UF_6 からAGR及びPWR燃料を生産するための総合的な燃料製造工場がスプリングフィールドに設置されることが考えられている。

3-1-1 ORPウランの特性

より高燃焼したAGR及びLWR酸化物燃料の再処理回収ウランを処理する転換プラントのいくつかの問題点について、ORPウランと非照射または天然ウラン（NI

U) との基本的な相違を比較することによって、以下に論じてみる。

— ウラン-232

天然ウラン中には存在しないこの同位体は、種々の経路(図1)によって形成される。全ての主要なウラン同位体が、照射後、U-232を生じる根源であるということがわかる。ORPウラン中のU-232の蓄積は次のようないくつかの要因による。

(i) 燃料製造のUF₆揮発工程と照射開始との経過時間

(ii) 燃料の燃焼度

(iii) 再処理前の冷却時間

(iv) 照射前のU-232, U-234, U-235及びU-236の濃度

ORPウラン中のU-232の代表的な濃度は、ウランベースで数 ppb 程度である。U-232は72年の半減期を持っており、複雑な崩壊連鎖(図2)の親核種である。その直接の娘核種であるTh 228は、1.9年の半減期を持っており、これはその後の娘核種の半減期がおおよそ分または日オーダーであるため、これと比較すると長い半減期である。それ故にTh-228の娘核種の濃度は、Th 228が親核種から化学的またはフッ化物揮発工程によって分離された時点からの時間の関数として決まる。Th 228をその親核種U-232から分離した後のTh 228の蓄積を次表に示す。

分離後の時間	平衡率 (%)
1 ヶ月	3
1 年	33
4 年	83
10 年	100

平衡状態ではTh 228の放射能はU-232と同じであり、又、その娘核種の放射能もそれぞれ等しい。ただしRn 220は希ガスであるため、これ以降の娘核種はRnの物質中への封じ込め具合や物質の化学形により変わってくる。

それ故に、U-232の年間摂取限度は、長期間身体に留まる向骨性物質である短命な娘核種が存在するために、U-234, U-235及びU-238に比べてより制限されている。

U-232の親核種の一つであるTi-238は、非常に透過性の強い2.6 MeVのガンマ

線を放出しており、それは、余分な独立した放射線医学的な危険性を伴っている。例えば、この娘核種の増加は10年間貯蔵した後に最大に達する。それは、ORPウランからのガンマ線量率が非照射ウランのガンマ線量率よりも2ケタ以上の大きさとなっていることである。ガンマ線放出娘核種の分離は、 UO_3 から燃料にする工程中の多くの段階でできるため、ガンマ線量率の増加はこれらの工程間の時間間隔に影響される。

—ウラン-234

この同位体は非常射ウランに0.005%含まれており、各濃縮プロセスで濃縮される。ORP中の典型的な濃度は0.02%であり、さらに濃縮を行うことによって0.13%に増加する。注意が払われる理由は、アルファ線の比放射能が2～3倍増加するので、空中放射能に重要な影響を与えるからである。

—ウラン-235

酸化炉からの平均取り出しU-235濃度は約0.9%と考えられており、この平均の範囲は0.6～1.2であると考えられている。

—ウラン-236

この同位体は天然にはなく、中性子捕獲によるU-235より生み出される。それは主として中性子毒として作用するため、余分な濃縮をする必要がある。ORP燃料サイクルでは、そのため経済上のペナルティを科している。

—超ウラン元素アルファ線放出核

これらは照射中に中性子捕獲と崩壊連鎖により発生する。これらは、再処理後の微量のネプツニウムとプルトニウムの残留物より成り立っており、両同位体とも影響力を少なくするため十分に低い濃度にされてORPウラン中に存在している。

—核分裂生成物

これらは主として再処理後のORPウラン中に残留しているルテニウムとテクネチウムのトレースである。Ru-106は、(その娘核種によって)ウランのガンマ放射能を増加させる短半減期(1年)の同位体である。Tc-99は長半減期の軟ベータ放出核である。

3-1-2 ORP転換プラント設計の保健物理学的見地

スプリングフィールド転換プロセスでORPウランを用いることによる保健物理学

上の問題点の詳細な研究によりU-232濃度の増加は次の結論を導いた。

- (i) アルファ線放出娘核種の空气中放出制限値をさらに厳しくする必要があり、
- (ii) 2.6MeVのガンマ線放出をするTI-208娘核種によるガンマ線量率を増加させる。

外部及び内部放射線量が法的な必要条件を満足し、BNFLの政策指針に合致するためには、転換プロセスにおける大規模な遮蔽材の使用や遠隔操作機器の製作をすることを必要とした。従来よりの機器のbackfittingは除外され、フルスケールプラント計画へと続き、それは、ORP UO_3 をUF $_6$ に転換するための専用プラントを設置することを決断させた。

ORP UF_6 生産のための流動床系の選択は、大半の非ウラン不純物が流動床の充填材であるフッ化カルシウムに吸着されることにより除去されるであろうことを意味している。全ての残留プルトニウムとウラン崩壊生成物及びほとんどのルテニウムとネプツニウムは、それらの除去、貯蔵及び最終的な廃棄の特殊な処理設備を要する流動床充填剤の中に固定されるであろう。類似の設備が輸送用シリンダー洗缶設備や、ネプツニウムとプルトニウムのトラップから発生した残留物を処理するために設置されるであろう。

3-2 ORPウラン転換、BNFLの計画

3-2-1 計画評価

BNFLはORPウランをAGR又はPWR燃料集合体に加工し、リサイクルするに当り、次の2つの基本的目的を考えていた。

- (i) 放射線吸入量がBNFL政策指針に一致し、法令の限度内であることを確認すること。
- (ii) ORPウランの再利用に対する経済性が、できる限り早く再利用を採用することの実用性を説得するのに十分に魅力的なものであることを確認すること。

再利用に関する保健物理学的な研究によれば、非照射ウランと比較して余分な費用が、余分な遮蔽、封じ込め及び取り扱いの制約に係る付加的なプラントの複雑性

に含まれていることを指摘した。それにしても、実質的な加工割増し金が非照射ウランと比較されているにもかかわらず、再処理に対する強い経済的な誘因がある。

プロジェクト評価行使研究の初期において、精製硝酸ウラニルを加工燃料にする総合工程のいくつかのステージでORPウランと非照射ウランを混合する可能性が考えられた。しかしながら、これはダウンストリームプラント全てをORPウランに適合することを必要としたので、混合の概念は却下された。専用概念はORPウランを最小限量の加工装置に制限されることを認めている。そして、再処理ウランを処理するために特に設計されたモジュールを適応することができるウレンコ遠心分離法濃縮技術に、特によく適している。

スプリングフィールドに新しくORP専用の転換工場を建設することがBNFLの現在の考えであり、1990年代の初めには、セラフィールドでTHORPを同時に委託するという流れに沿っている。しばらく後には濃縮されたUF₆から加工したAGR及びPWR燃料にするOROウランを加工するために設計された燃料製造工場が委託されるであろうことが予想される。

3-2-2 ORPウラン転換技術

スプリングフィールドにおける転換工場のレファレンス設計は、次のような性格のものである。

- (i) 年間650 t-U単位がTHORPの平均生産高に大まかに一致しており、同時にそれが系内に供給される予定である。
- (ii) 転換ユニットは、最大1.3%のU-235を含有するUO₃の供給を引き受ける予定である。この仕様はTHORP製品の95%以上を含んでおり、より高いU-235濃縮度による形状配置制限とブレンディングによる濃縮分離作業ロスのバランスを考慮て得られたものである。
- (iii) プラントは、プラント自体によって受ける平均年間有効線量平衡（つまり外部及び内部放射線量の合計のこと）を年間0.5レム（5ミリシーベルト）以下に制限するように設計される予定である。

硝酸ウラニルの蒸発と脱硝

THORPのウラン精製部門で生産された純水な硝酸ウラニルの蒸発と脱硝は、セ

ラフィールドのTHORP複合工場の中のプラントで行われる予定である。

必要なU-235濃縮度の調整を行った後硝酸ウラニル溶液は、形状的に安全な一般連続蒸発塔の中に供給される。1000 g U/lまで硝酸ウラニル蒸発塔で濃縮された生成物は、それから形状的に安全な電氣的に加熱した流動床で300℃にて連続的に脱硝される。脱硝ステージのUO₃製品つまり自由流動粉体は脱硝塔から貯蔵ホップへ輸送する間に前冷却され、それからスプリングフィールドへ輸送するためのドラム缶に詰められる。

ORPUO₃からUF₆への転換

ORP転換プラントは前稿で大まかに述べたようなUF₆プラントとは異なっており、つまり、

(i) ホップ、反応塔、凝縮器、コールドトラップ、スクラバー等全てのプロセス機器は形状的に安全な設計である。

(ii) 先に論じたような増加した放射線医学的な危険性に対して適している遮蔽材、容器及び遠隔操作が大幅に使用される予定である。この増加した危険性の特例としては、高燃焼のORPウランの処理において、残留超ウラン元素アルファ放射核と核分裂生成物、明らかにU-232であるウラン同位体の崩壊娘核種を蓄積したF₂フッ化炉内のフッ化カルシウムを取り扱う場合である。

(iii) 適切に遮蔽された専用工場において、ORP輸送サイクルにおけるUF₆シリンダが定期的に洗缶されることが予定されている。洗缶施設では、各洗缶サイクルの間、シリンダから除去された主としてU-232娘核種であるガンマ線放出固体残留物の固着している機器の清浄もなされることが予定されている。

3-3 ウラン再利用と廃棄物処理

3-3-1 濃縮ウラン残留物回収プラント (EURRP)

各種の残流物を含有している濃縮ウランが、スプリングフィールドで行われる多様な範囲の加工運転により発生する。これらの残留物は、従来質量管理によるバッチ運転プラントで回収されてきた。最近、新しいプラントが建設され、安全性は形状管理に基づいている。濃縮ORP再利用物の処理も可能である新しいプラントは1~5%の濃縮範囲で残留物を加工することに利用されることになり、またウラン計量の今日の

の標準に従って系内貯蔵施設を利用してきた。可能な所であれば、回収プロセスは連続である。新しい回収プラントのもう一つの要点となる特徴は全ての運転員区域が非常に低い空気汚染レベルとなるように設計されていることであり、このことは事実上、機器を全て小室の中に設置することで達成された。

使用されたプロセスは、基本的には現存するプラントに使用されているものや、汚染残留物に使用されている標準的な湿式プロセス及び非汚染残留物のための乾式プロセスに類似している。そして主要な最終製品は精製二酸化ウランである。

回収プロセスにおける第1段階は、硝酸溶解に伴う不純残留物の前処理である。汚れた硝酸ウラニルは、パルスコラムを使用した溶媒抽出によって精製される。ここでパルスコラムを二基使用し、一基は抽出、逆抽出用、二基目は逆洗用に使用される。

重ウラン酸アンモニウム (ADU) は、純水なUN溶液から沈殿される過されたものである。その後、ADUは UO_2 に還元できるような U_3O_8 になるように焙焼される。汚染されていないきれいな残留物は、ベルト炉を含む酸化又は酸化/還元プロセスという方法によって全ての回収プロセスへまとめることも可能である。この残留物回収プラントはスプリングフィールドの施設にとって大きな付加をしたものである。プラントの全体的な大きさは60m×53mである。供給原料の純水度と濃縮度にもよるが、年間40～70 t Uの濃縮残留物を処理する能力がある。

3-2-2 濃縮ORP残留物の再利用

不合格になったペレット、削りかす等のようなORP燃料製造プロセスからの固体残留物は、U-232の増殖に関する最適時間でのEURRPにおける回収及びORP燃料製造キャンペーンによって回収されたORPウランのその後の戻しが予定されている。

3-3-3 ORP液体廃棄物

ORP残留物の処理から発生するEURRP抽出廃液の流れは、前稿で述べたようなUOC精製プラント廃液を処理するように計画された系の専用施設におけるキャンペーンベースで除染される予定となっている。処理後の液体廃棄物は、その区域の河川の排水基準に適する予定である。

3-3-4 ORP固体廃棄物

ORP固体廃棄物は、運転予想規模によると年間50 t以下の中レベル廃棄物となる。これらの発生物は管理されたNIREXの用地のひとつに廃棄されることになる。

4. 概 要

BNFLは、新燃料中に回収ウランを再利用する相当な経験をもっている。1990年代の初めにTHORP再処理プラントが運転に入ることになっているが、その暫く後には、BNFLは転換、濃縮及び燃料製造またはORPウランを含む幅広い再利用サービスを提供できるように計画している。

REFERENCES

- [1] ROGAN, H. "Production scale processes and plants in the United Kingdom - The conversion of uranium ore concentrates to unclar grade uranium hexafluoride and to uranium dioxide". IAEA Study Group Meeting on the Facilities and Technology needed for Nuclear Fuel Manufacture, August 1972.
- [2] PAGE, H. "United Kingdom experience of production of uranium fluorides". Proceedings of an IAEA Advistory Group Meeting, Paris, June 1979.

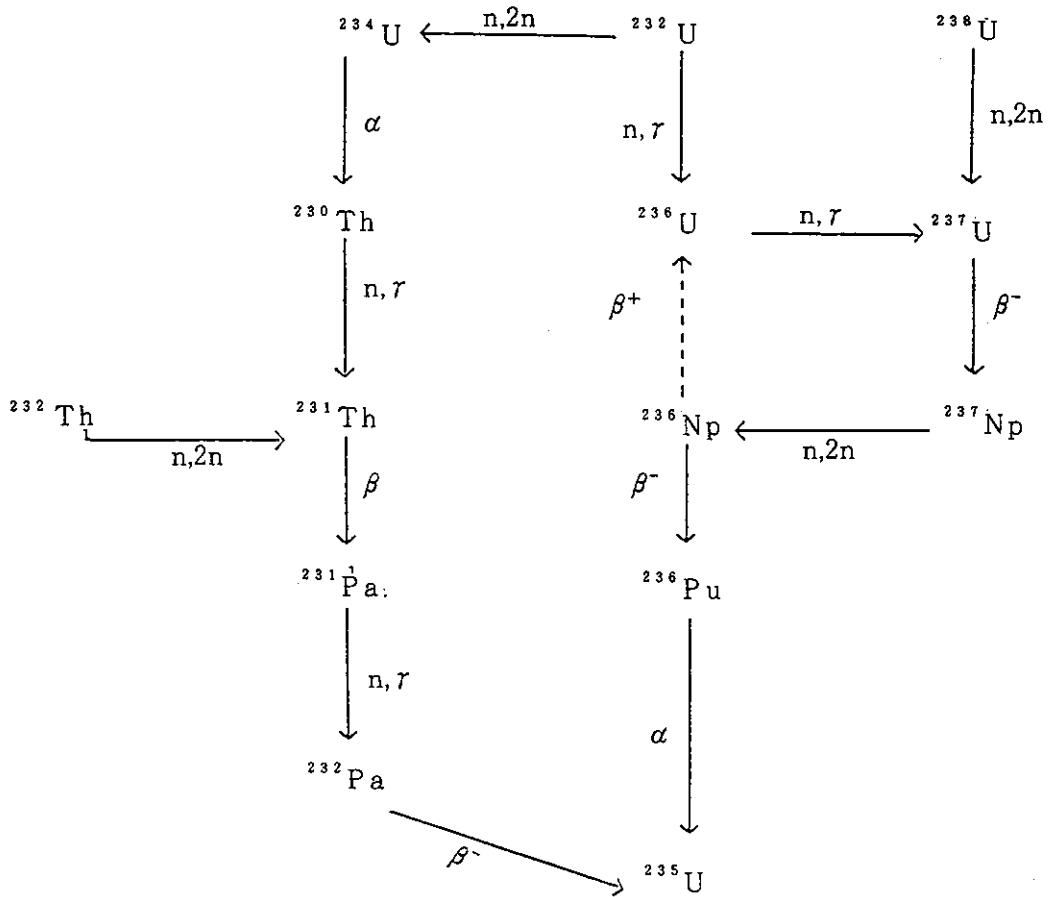


FIGURE 1 : PRODUCTION ROUTES FOR ^{232}U

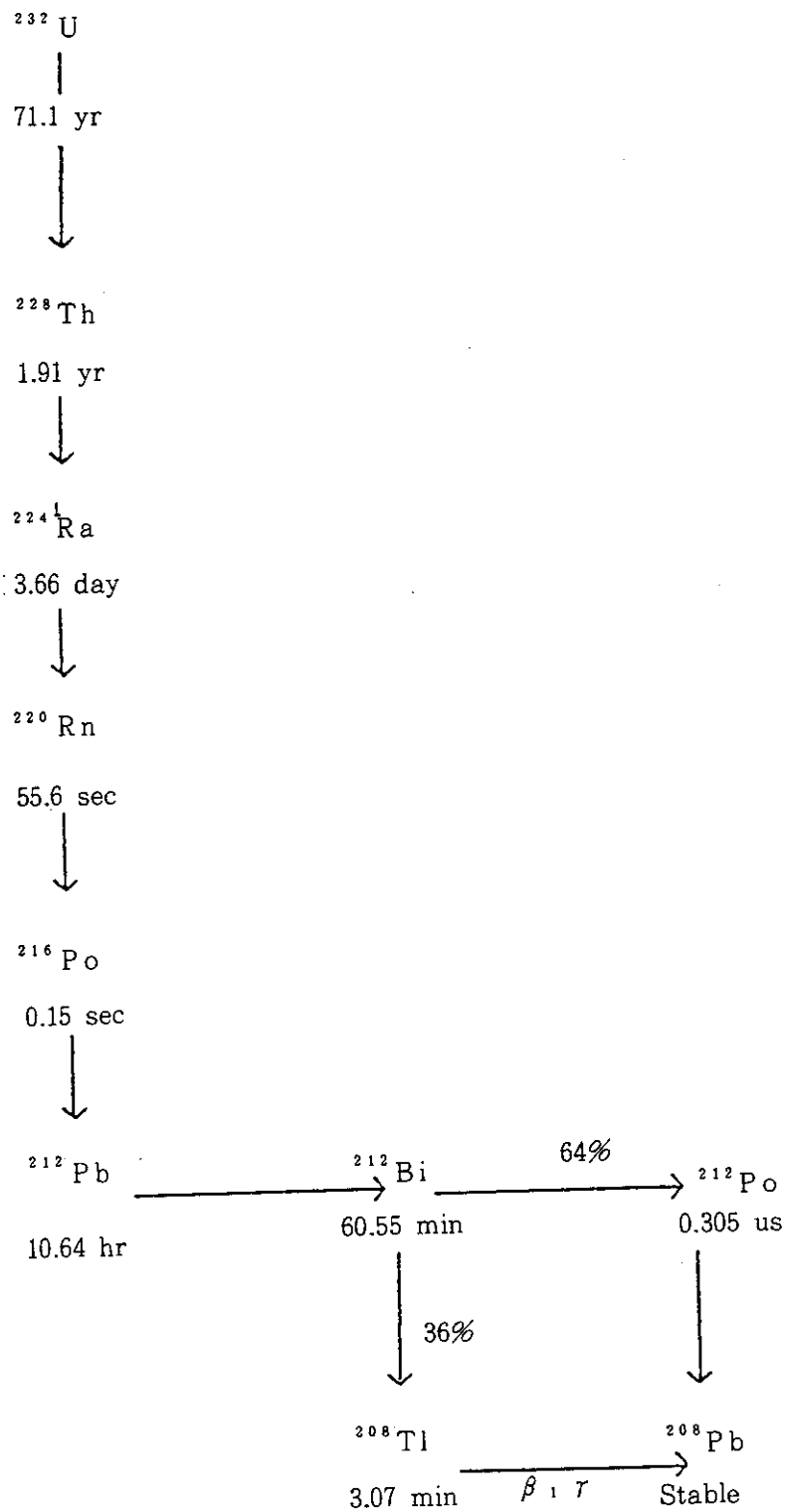


FIGURE 2 : DECAY OF ^{232}U