

本資料は 年 月 日付けで登録区分、  
変更する。 2001.6.20  
[技術情報室]

# 高速炉燃料(未照射)の再処理抽出工程確性試験

Flowsheet Study of Aqueous Reprocessing of Unirradiated FBR Fuel

1971年8月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

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

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001

## 高速炉燃料（未照射）の再処理抽出工程確性試験



実施責任者 星野忠也※

報告者 権田浩三※ 安正三※

川島暢吉※ 田中忠三郎※※

期間 1969年4月1日～1971年3月31日

目的 軽水炉（LWR）燃料を対象にしたPurex再処理プラントでの高速炉燃料の再処理（抽出工程）の可能性を検討するため未照射のウラン・プルトニウムを用いた $\alpha$ 確性試験の実施。

要旨 既存のPurex再処理プラントで、FBR燃料を処理する場合、この再処理プラントの本来の目的をそこなわないために、「FBR燃料再処理のためにプラントの設計変更をしない」ことが望ましい。したがって、FBR燃料再処理抽出工程の可能性を検討した本確性試験は、次の制約に留意して実施した。

- (1) FBR燃料の抽出工程のうちプルトニウム精製工程は溶解槽の臨界安全性およびプルトニウム精製工程の処理量からLWR燃料の抽出工程のプルトニウム精製工程をそのまま用いる。
- (2) ウラン・プルトニウムの供給液を除く各種供給液、供給溶媒の種類、濃度はLWR燃料の抽出工程で用いるものをそのまま用いる。
- (3) 抽出工程で用いる各種供給液、供給溶媒の供給口および取出口の変更はしない。
- (4) 各種供給液、供給溶媒の抽出工程への送液流量はLWR燃料の抽出工程で用いるものをそのまま用いる。

FBR燃料のコアを再処理する場合、コアと軸方向のブランケットを共に再処理する場合のいずれもウラン・プルトニウムの回収・分離についてのプラントの設計値を満足した。

※ 技術部 開発研究室 , ※※ 住友金属鉱山 中央研究所

# 目 次

1	ま え お き	1
2	確 性 試 験	4
2-1	フ ロー シ ー ト 条 件 の 設 定	4
2-2	試 験 装 置	5
2-3	確 性 試 験 方 法	12
2-4	供 給 溶 媒 , 溶 液 の 調 整	12
2-5	分 析 法	13
3	確 性 フ ロー シ ー ト	14
4	オ ベ レ ー テ ン グ ・ ダ イ ア グ ラ ム	14
5	結 論	33
6	謝 辞	33
	参 考 文 献	34

## 1 ま え お き

高速炉（FBR）の使用済燃料の再処理を軽水炉（LWR）の使用済燃料を処理するプラントで実施する場合は考えられる。

FBR燃料の想定した燃料要素は、二種類の燃料ピンから構成されており、その一つは炉心燃料（コア）とコアの軸方向のブランケットからなる燃料ピンⅠであり、他の一つは燃料ピンⅠを中心にその半径方向に配置され、燃料ピンⅠの半径方向のブランケットとなる一群の燃料ピンⅡである。

想定したコアの組成は $\text{PuO}_2$ が20%、20%濃縮ウランの $\text{UO}_2$ が80%であり、燃料ピンⅠのブランケットおよび燃料ピンⅡは天然ないし劣化ウランの $\text{UO}_2$ である。

FBR燃料の構成として、燃料ピンⅡは燃料ピンⅠにくらべて圧倒的に多く、また燃料ピンⅡの搬出頻度は燃料ピンⅠのそれにくらべて少い<sup>(2)</sup>。したがって、燃料ピンⅡと燃料ピンⅠとを一緒にした再処理は定状的には考えられず、また燃料組成からみて、この再処理は軽水炉（LWR）燃料の再処理とほとんど同じでありFBR燃料の再処理としての開発対象にはならない。

以上のことから、FBR燃料の再処理は濃縮ウランの回収を目的とした燃料ピンⅠのコアだけの再処理（第1ケース）と濃縮ウランとしてのウランの回収を考慮しない燃料ピンⅠ全体の再処理（第2ケース）が考えられる。

LWR燃料再処理プラントでFBR燃料を再処理する場合、LWR燃料再処理プラント本来の目的を損わないことが望ましい。このため、FBR燃料の再処理のため、プラントの設計変更をしないことが、FBR燃料の再処理の基調としてあげられる。したがって、FBR燃料の再処理抽出工程（共除染、分配、精製工程）にはつぎの諸制約が考えられる。

- (1) 溶解槽ならびに抽出工程の臨界安全面から、FBR燃料の再処理抽出工程でのプルトニウムの処理量をこえない。すなわち、FBR燃料の再処理抽出工程のプルトニウム精製工程としてLWR燃料の再処理抽出工程のプルトニウム精製工程をそのまま用いる。
- (2) ウラン・プルトニウム供給濃度をのぞく、各種供給液、供給溶媒の種類、濃度はLWR燃料の再処理抽出工程で用いるものと同じものを用いる。
- (3) 各種供給溶液、溶媒の供給口および取出口の変更はしない。
- (4) 各種供給溶液、溶媒の供給流量は、動燃プラントのポンプの流量可変領域（±25%）をこえない。

これらの諸制約および燃料組成、燃料形体から、LWR燃料再処理プラントでFBR燃料を再処理する場合の第1および第2両ケースについての1日あたりの処理量がきまる。

第1ケースおよび第2ケースの1日あたりの処理量を対象とした燃料の組成と共に表1に示した。

表1 対象としたFBR燃料の1日あたりの処理量

	第1ケース	第2ケース
燃料形体	コア	軸方向のブランケット
長さ	600 mm	長さ 2×400 mm
径	5.5 mm	径 5.5 mm
燃料組成		
Pu-239	1.80 Kg/要素	≈ 1.80 Kg/要素
240	0.61	0.61
241	0.13	0.13
242	0.06	0.06
u-235	1.68	1.68
236		
238	6.82	90.92
	11.1 Kg/要素	95.2 Kg/要素
処理量	44.4 Kg	≈ 380.8 Kg

表2に示したように、燃料度48,000 MWD/TのFBR燃料のコアで生成する核分裂生成物の全放射線量はβ線量で、LWR燃料で生成する核分裂生成物の全放射線量の3倍である。

一方、コアのLWR燃料に対する希釈率は表1に示した両燃料の1日あたりの処理量からきまり、その値は $1/15^{(3)}$ である。

その結果、LWR燃料再処理プラントの抽出工程でとりあつかうコア中の全放射線量はLWRの抽出工程であつかう全放射線量の $1/5$ になる。

LWR燃料再処理抽出工程にくらべてウラン処理量の少ないFBR燃料再処理抽出工程では、核分裂生成物の除染効果を下げる要因となる遊離の溶媒が多くなることが予想される。したがって、ウラン・プルトニウムの回収率が、FBR燃料再処理抽出工程での設定値を満足するならば、LWR燃料再処理プラントで用いる30v/oリン酸トリノルマリブチル(TBP)より低濃度のTBPを用いることが考慮される。30%以外のTBPを用いることは、さきに述べた制約(2)に反することになるが、軽水炉燃料再処理プラントで溶媒循環系が他の工程と独立している共除染工程にかぎっては、30v/o以外のTBPを用いることに重大な問題は生じないと思われる。しかしながら、溶媒がプルトニウム精製工程と同一循環系統下にある分配工程

表2 LWR燃料および対象としたFBR燃料からの生成放射線量<sup>(3)</sup>

Cooling time (d)	LWR	JEFR (コア)			JEFR (軸方向のブランケット)		
	180	100	180	270	100	180	270
Total $\beta$ Curie/Kg	$4.6 \times 10^3$	$2.2 \times 10^4$	$1.4 \times 10^4$	$1.0 \times 10^4$	$3.5 \times 10^2$	$2.3 \times 10^2$	$1.6 \times 10^2$
Kr — 89	$1.1 \times 10$	$1.4 \times 10$	$1.3 \times 10$	$1.3 \times 10$	$3.8 \times 10^1$	$3.7 \times 10^1$	$3.7 \times 10^1$
I — 129		$5.3 \times 10^6$	$5.3 \times 10^6$	$5.3 \times 10^6$	$1.5 \times 10^7$	$1.5 \times 10^7$	$1.5 \times 10^7$
I — 131	$1.5 \times 10^4$		$1.3 \times 10^2$			$8.9 \times 10^5$	
Ru — 103	$5.5 \times 10$	$9.3 \times 10^2$	$2.3 \times 10^2$	$4.5 \times 10$	$1.4 \times 10$	3.5	$6.7 \times 10^1$
Rh — 103 m	$5.5 \times 10$	* $7.4 \times 10^3$			* $1.3 \times 10^2$		
Ru — 106	$3.9 \times 10^2$	$1.5 \times 10^3$	$1.3 \times 10^3$	$1.1 \times 10^3$	3.7	3.3	2.9
Ce — 141	$3.7 \times 10$	$6.5 \times 10^2$	$1.1 \times 10^2$	$1.5 \times 10$	$1.1 \times 10$	1.9	$2.7 \times 10^1$
Ce — 144	$1.0 \times 10^3$	$2.1 \times 10^3$	$1.7 \times 10^3$	$1.4 \times 10^3$	$4.2 \times 10$	$3.5 \times 10$	$2.8 \times 10$
Zr — 95	$2.5 \times 10^2$	$2.1 \times 10^3$	$9.5 \times 10^2$	$3.6 \times 10^2$	$4.4 \times 10$	$2.0 \times 10$	7.1
Nb — 95	$5.3 \times 10^2$	$3.7 \times 10^3$	$1.8 \times 10^3$	$7.4 \times 10^2$	$7.4 \times 10$	$3.7 \times 10$	$1.5 \times 10$
Sr — 89	$1.4 \times 10^2$	$8.7 \times 10^2$	$3.1 \times 10^2$	$1.0 \times 10^2$	$2.2 \times 10$	7.8	2.5
Sr — 90	$9.6 \times 10$	$9 \times 10$	$9 \times 10$	$9 \times 10$	2.1	2.1	2.1
Cs — 137	$9.0 \times 10$	$1.5 \times 10^2$	$1.5 \times 10^2$	$1.5 \times 10^2$	2.9	2.9	2.9
H — 3							
U — 236							
U-237 (g/Kg)	$3.0 \times 10^{-11}$						
Np-237 (g/Kg)	0.12						
Am-241 (g/Kg)	0.045						
Cm-242 (g/Kg)	$2.0 \times 10^6$						
Pu (g/Kg)	11.1						
Energy (Watt/Kg)	14	89	61	38	1.4	0.92	0.58

\* Cooling 30日以下

では、制約(1)にしたがって30 v/o TBP を用いざるを得ない。

FBR 燃料の再処理抽出工程で、LWR 燃料の抽出工程での除染に関する設計値と同程度の除染効果を得ようとするならば、少くとも FBR 燃料の抽出工程の分配工程で、LWR 燃料の分配工程の除染の設計値を満足しなければならない。

本報告は、以上の諸制約に沿って作成された FBR 燃料の再処理抽出工程の予備フローシートのうち、共除染工程と分配工程に関して未照射燃料を用いて実施した予備フローシートを確証する  $\alpha$  確性試験の結果である。尙  $\alpha$  確性試験の予備フローシートは、共除染と分配工程でのウラン・プルトニウムの損失量および分配工程でのウランプロダクト中へのウランの残留量に関する LWR 燃料の共除染と分配工程の設計値にしたがって作成されたものを用いた。<sup>(4)</sup>

この  $\alpha$  確性試験は、核分裂生成物の除染効果を検討するため今後実施する照射済燃料を用いた  $\alpha$  確性試験におけるウラン・プルトニウムの回収および分配に関する基礎的検討資料とするものである。

## 2 確 性 試 験

### 2-1 フローシート条件の設定

図 1 に LWR 燃料再処理プラントでの LWR 燃料再処理の抽出工程フローシートを、EXTRACTION I, II (共除染工程), EXTRACTION III, IV (分配工程) について示した。

表 3 に LWR 燃料再処理プラントの各 EXTRACTION の特性とミキサ・セトラそれぞれでの水相・有機相の接触時間をまとめ、本確性試験のそれらと比較した。

本確性試験で採用した溶媒および各種溶液の供給流量は LWR 燃料再処理プラントの各 EXTRACTION のミキサでの水相・有機相の接触時間に本確性試験でのそれが近い値になるように設定した。表 3 に本確性試験での水相・有機相の接触時間を LWR 燃料再処理プラントのそれと併記した。

本確性試験の共除染工程、分配工程の各抽出バンクに供給するウラン・プルトニウム濃度は、表 1 に示した FBR 燃料の 1 日あたりの処理量と供給流量からきめた。

まえおきで述べた考慮にしたがって、共除染工程での溶媒は 10 v/o TBP を用いたが、分配工程では LWR 燃料再処理プラントと同様、30 v/o TBP を採用した。

各種供給溶液は、EXTRACTION IV のプルトニウム逆抽出 (Pu STRIP) の 0.2 N HNO<sub>3</sub> に Pu (IV) の還元剤である U (IV) の一部を添加した他は、LWR 燃料再処理プラントできめられた濃度に近いものを用いた。

本確性試験で用いたミニ・ミキサ・セトラの段数が 16 段であるため、EXTRACTION I の洗滌部 (SCRUB) を 8 段から 7 段に、EXTRACTION III の抽出部 (EXTRACTION)



表3 LWR燃料再処理プラント抽出部の規模と水相・有機相接触時間

EXTRACTION AND STAGE	FLOWRATES			RATIO			VOLUME		CONTACT TIME OF Aq- Org PHASE IN MIXER			
	Aq	Org	Total	A/O			MIXER	SETTLER	PLANT			
	(ℓ/hr)			プラント	第1 ケース	第2 ケース	(ℓ)	(ℓ)	第1 ケース	第2 ケース	(min)	
I	1~9 EXTRN	224	319	543	0.70	0.52	0.62	12	50	1.32	1.21	1.12
	10~17 SCRUB	67	319	386	0.21	0.12	0.12	12	70	1.86	1.63	1.62
II	5~12 STRIP	370	333	703	1.1	1.2	1.2	12	75	1.02	0.84	0.84
III	1~14 EXTRN	565	370	935	1.5	1.9	1.6	14.5	75	0.93	0.81	0.75
	15~21 SCRUB	50	370	420	0.14	0.16	0.15	12	50	1.71	2.06	1.69
IV	1~4 EXTRN (U)	138	75	213	1.8	2.1	2.1	3.6	16	2.88	2.91	2.94
	5~11 STRIP (Pu)	119	527	646	0.23	0.29	0.25	12	60	1.11	1.23	1.11

を14段から11段に、SCRUBを7段から5段に変更した。

Purex再処理プラントのEXTRACTION IIは45℃に設定されているが、本確性試験はすべて室温で実施した。

本確性試験のEXTRACTION I, IIおよびIIIでのウランおよびプルトニウムの廃液側への漏出量とEXTRACTION IVでのウランプロダクト中へのプルトニウムの漏出量およびプルトニウムプロダクト中へのウランの漏出量の設定値は、LWR燃料再処理プラントでのそれらにしたがった。

## 2-2 試験装置

確性試験装置として、2台のミニ・ミキサ・セトラとこのミニ・ミキサ・セトラにウランプルトニウム溶液を送液するためのミニ・ポンプ1台をグローブボックス内に設置した。グローブボックス外には、配管を経て、ミニ・ミキサ・セトラに各種溶液および溶媒を送液するためのポンプ群を設置した。

ミニ・ミキサ・セトラはフランス、SONAL社製、"melangeure-decanteurs 200-800 type Cyrano"であり、モータ部、ミキシング用インベラ部およびバンク部から構成されている。モーターは50C-100V用、1/50馬力で回転数可変用である。ミキシング用インベラは材質がステンレススチールで、ミキシング用孔あき板の回転翼はバンク部の流体の流れを乱さない3,000rpm以下で運転される。図2にバンク部の概念図を示した。バンクはアクリル樹脂製であり、段数は16段である。総流量、200~800 ml/hrの範囲で使用できる。ミキシング部の容積は6 ml、セトリング部の容積は17 ml、

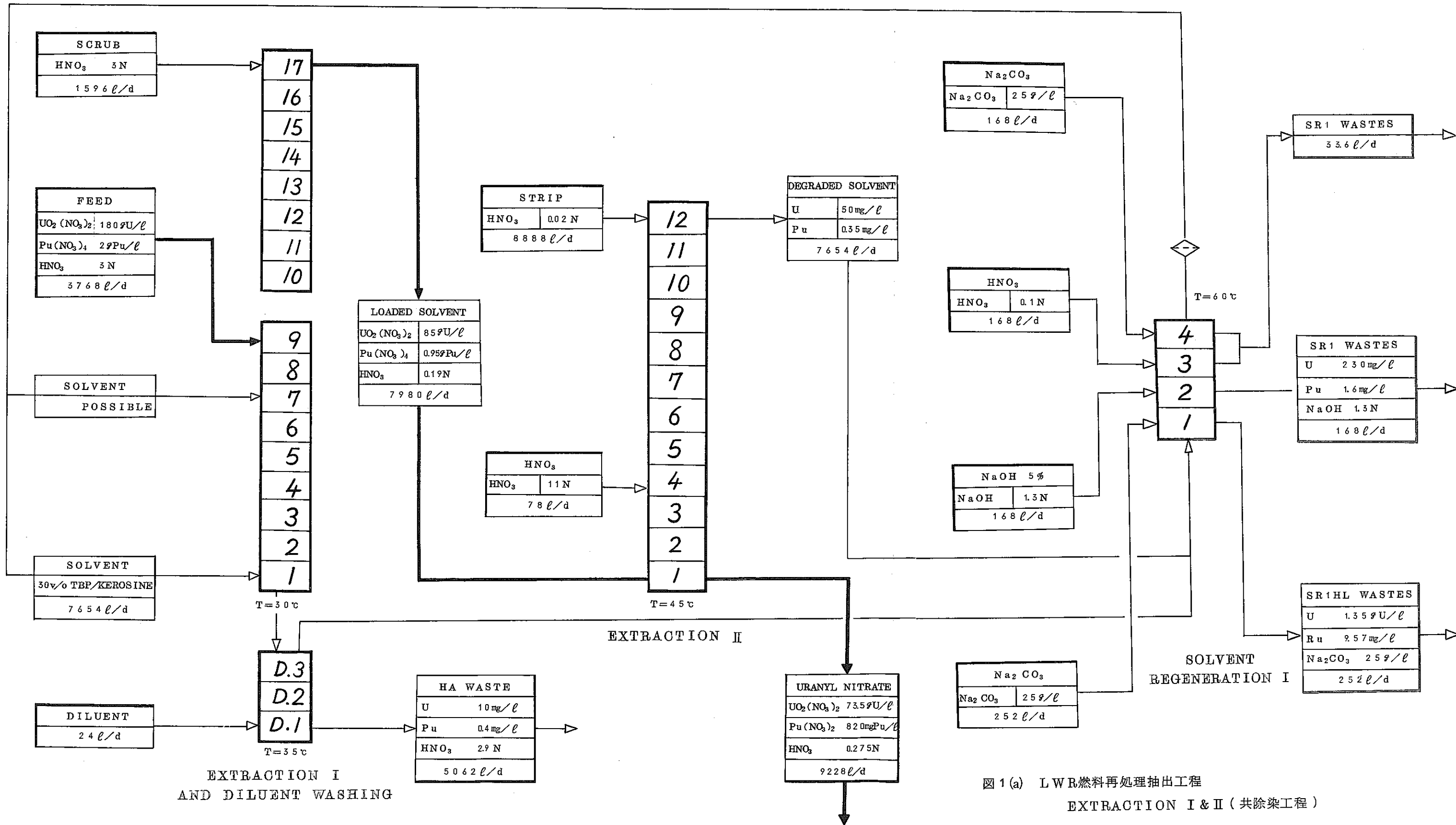
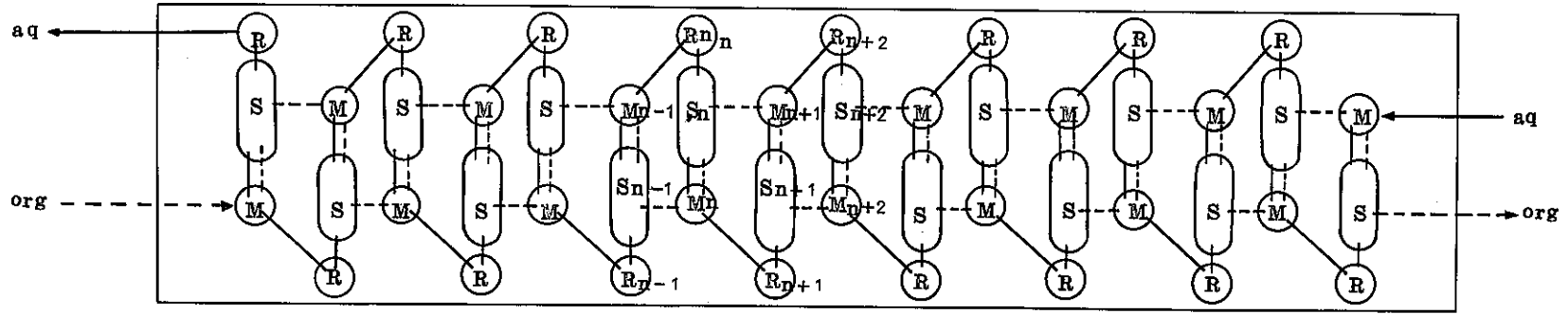
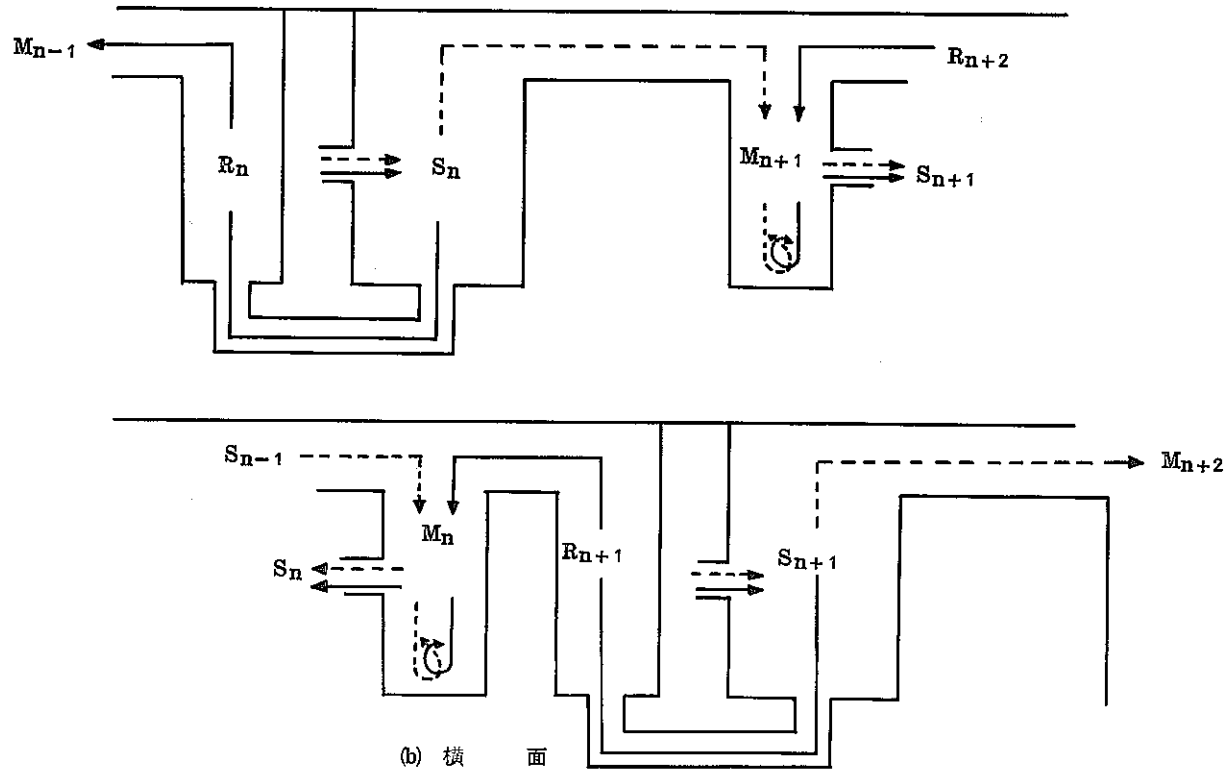


图 1(a) LWR燃料再处理抽出工程  
EXTRACTION I & II (共除染工程)

**この頁は PDF 化されていません。**  
**内容の閲覧が必要な場合は、技術資料管理**  
**担当箇所を参照して下さい。**



(a) 上 面



(b) 横 面

図2 “melangeure-decanteurs 200-800 type Cyrano”のバンク概念図

バンクの総容積は400mlである。この総容積は表3からわかるように、LWR燃料再処理プラントの例えばEXTRACTION I の総容積1,214ℓ の約1/3,000, EXTRACTION II の約1/2,600 である。ミニ・ミキサ・セトラの容積6mlはLWR燃料再処理プラントのEXTRACTION I のミキシング部の容積の1/2,000 であり、この比率は他のEXTRACTION についても EXTRACTION IVのウラン抽出部を除いて、等しいかほとんど等しい。

バンクは完全に透明であるため、バンク内部の溶液の色、各段のミキシング部のミキシング状況、セトリング部の溶媒相・水相界面レベルおよび分相状況の観察が容易である。界面の位置は、水相のオーバーフローレベルを調節するステンレス製のレギュレータで各段ごとに調節できる。セトリング部は溶媒相・水相の両相ともに次のミキサー部へオーバーフローする機構になっており、ミニ・ミキサ・セトラの運転終了後、各セトリング部から分析試料を採取する際、隣のセトリング部の水相あるいは有機相と混合しない長所を有する。

ポンプ類は、東京科学精機製CV-1型、富士特殊ポンプ製ミゼットポンプMOO1型およびイギリス、HUGHES社製DCL マイクロポンプシリーズ2型をバンクへの供給流量に応じて使いわけた。

### 2-3 確性試験方法

本確性試験は共除染工程と分配工程を連続でなく、それぞれを単独に実施した。確性試験は、共除染工程および分配工程のそれぞれで設定されているウラン・プルトニウムの回収およびウラン・プルトニウムの相互分離が達成されるまでくり返し実施した。本確性試験では、あらかじめ、ウラン・プルトニウム溶液を除く溶媒および各種溶液を十分にバンク内に供給した後、引続き、きめられた流量でこれら溶媒および各種溶液とウラン・プルトニウム溶液を供給した。各種確性試験は約15時間の連続運転後、バンクから流出する廃液およびプロダクト中のプルトニウム濃度を1時間おきに分析し、プルトニウム濃度が定常になったことを確認した。この後さらに運転を続け、廃液、プロダクト溶液を採取しこれらを定常運転時の廃液、プロダクトの試料とした。この試料を持取した後、ミニ・ミキサ・セトラへの送液とミキシング部のミキシングを同時に止め、各EXTRACTIONの各段の試料を溶媒相と水相を別々に試料瓶に持取し、ウラン・プルトニウム、硝酸等の分析試料とした。

溶媒、溶液の流量測定は、ミニ・ミキサ・セトラの運転中30分毎に実施し、供給流量を一定に保った。

ミキシング部でのミキシングインペラの回転数も流量測定と同様30分毎に測定し、回転数を常に2,500rpmに維持するよう努めた。

### 2-4 供給溶媒、溶液の調整

本確性試験の各EXTRACTIONでウラン・プルトニウムの回収および相互分離の設定値

達成を妨害する要因となった供給溶媒およびウラン・プルトニウム溶液の調整については、あとで考察をすゝるとして、ここでは本確性試験で最終的に採用した供給溶媒、溶液の調整法を述べた。

#### 溶媒, TBP-n-Dodecane

本確性試験で用いた溶媒は、抽出剤としてTBP, その希釈剤としてn-Dodecaneを用いた。確性試験にさきだつて、溶媒は10%炭酸ソーダ、水、および3N硝酸で洗滌しておいた。

#### ウラン・プルトニウム供給溶液

プルトニウムは、確性試験毎に、前回の確性試験で用いたプルトニウムを回収・精製して再使用した。回収したプルトニウムを7N硝酸溶液にし、プルトニウムに対し僅かに過剰の亜硝酸ソーダでプルトニウムの原子価を4価に再調整した後、これを陰イオン交換樹脂カラムに通し吸着させた。プルトニウムと共に樹脂に吸着するウランは、プルトニウム241から生ずるアメリシウム241と一緒に7N硝酸で大部分を洗浄溶離した。溶離液の受器にはあらかじめ濃硝酸を入れておき、受器中の酸濃度を1N以上に保った。新たにウランを加えて調整したウラン・プルトニウムの供給溶液はプルトニウムと当量の亜硝酸ソーダを加え、一夜放置後、確性試験にはいる直前の1時間、空気を通して過剰の亜硝酸を放出した。

#### ウラニル, U(VI)

金属ウランを、酸化剤として過酸化水素を用いて、濃硝酸に加熱溶解し調整した。

#### ウラナス, U(IV)

2N硝酸溶液のウラニルの電解還元で調整した。尚、ウラナスの安定剤として、少量の硝酸ヒドラジンを加えた。

#### TBP・n-Dodecane, U(VI) (酸)

30 v/o TBP系のHNO<sub>3</sub>-U(VI)の水相-溶媒相間の各濃度ダイアグラム<sup>(5)</sup>から硝酸、ウランの抽出条件を求め、所定のTBP・ドデカン・U(VI)(酸)を調整した。

#### 試薬

TBP, ドデカンおよび硝酸は、試薬1級を、その他の試薬は特級のものを用いた。

#### 2-5 分析法

試料の分析は、技術部分析課第3係、再処理分析グループが実施した。その詳細は、東研報にまとめられているので、酸、ウラナス、ウラニル、プルトニウムおよびアメリシウム241それぞれの分析についてその方法のみの記述にとどめた。

硝酸：水酸化ナトリウムによる中和滴定法

U(IV)：水酸化ナトリウム沈澱-重クロム酸カリウム酸化還元滴定法

有機相のU(IV)：鉄変換オルソフェナントリン比色法

- U(V) : DBM比色法  
 Pu : 直接 $\alpha$ カウンテング法  
 $^{241}\text{Am}$  :  $\alpha$ スペクトロメトリー  
 $\text{NH}_2 \cdot \text{NH}_3 \text{NO}_3$  : 水酸化アルカリ滴定法

### 3 確性フローシート

第1ケースおよび第2ケースそれぞれについて実施した共除染工程および分配工程の確性試験で得られたフローシート例を図3～図6に示した。

EXTRACTION I, II, および III について廃液中へのプルトニウムの漏出量が、また、EXTRACTION IV についてウランプロダクト中へのプルトニウムの混入量が図1に示した Purex 再処理プラントの抽出工程で定められている量を上まわる場合があったが、漏出量、混入量は僅かであった。

ウランに関しては、FBR 燃料再処理抽出工程でとりあつかう量は、LWR 燃料再処理の場合に比べて  $1/15 \sim 1/6$  であり、 $10\text{v}/\circ\text{TBP}$  を用いた共除染工程および  $30\text{v}/\circ\text{TBP}$  を用いた分配工程でのウラン損失量およびプルトニウムプロダクト中へのウラン混入量は、Puvex 再処理プラントの設計値を大きく下まわり、全く問題はなかった。

### 4 オペレーティング・ダイアグラム

第1ケースおよび第2ケースそれぞれの EXTRACTION I, III のオペレーティング・ダイアグラムを図7～図14に示した。

オペレーティング・ダイアグラムのウランおよびプルトニウムの漏出量は、LWR 燃料の再処理を目的とした LWR 燃料再処理プラントの設定値にしたがった。

LWR 燃料再処理プラントの設定値を満足するためには、FBR 燃料のウランの抽出 (EXTRACTION I の9段～1段および EXTRACTION III の14段～1段) に必要な抽出段数は、第1ケースで、3段および2段、第2ケースについては、4段および3段であった。プルトニウムの抽出に必要な抽出段数は、第1ケースで、7段および5段、第2ケースについては、8段および5段であった。ただし、プルトニウムの漏出量で LWR 燃料再処理プラントの設定値を満足していない第2ケースの EXTRACTION I では、その抽出段の5以下の水相-有機相の濃度値にかえて、第1ケースの EXTRACTION I の抽出段の5以下の水相-有機相の濃度値を採用した。また、LWR 燃料再処理プラントの設定値を満足しなかった第2ケースの EXTRACTION III では、その抽出段の7以下の水相-有機相の濃度値にかえて、第1ケースの EXTRACTION III の抽出段の7以下の水相-有機相濃度値を採用した。

第1ケースおよび第2ケース各々の EXTRACTION I のオペレーティング・ダイアグラム

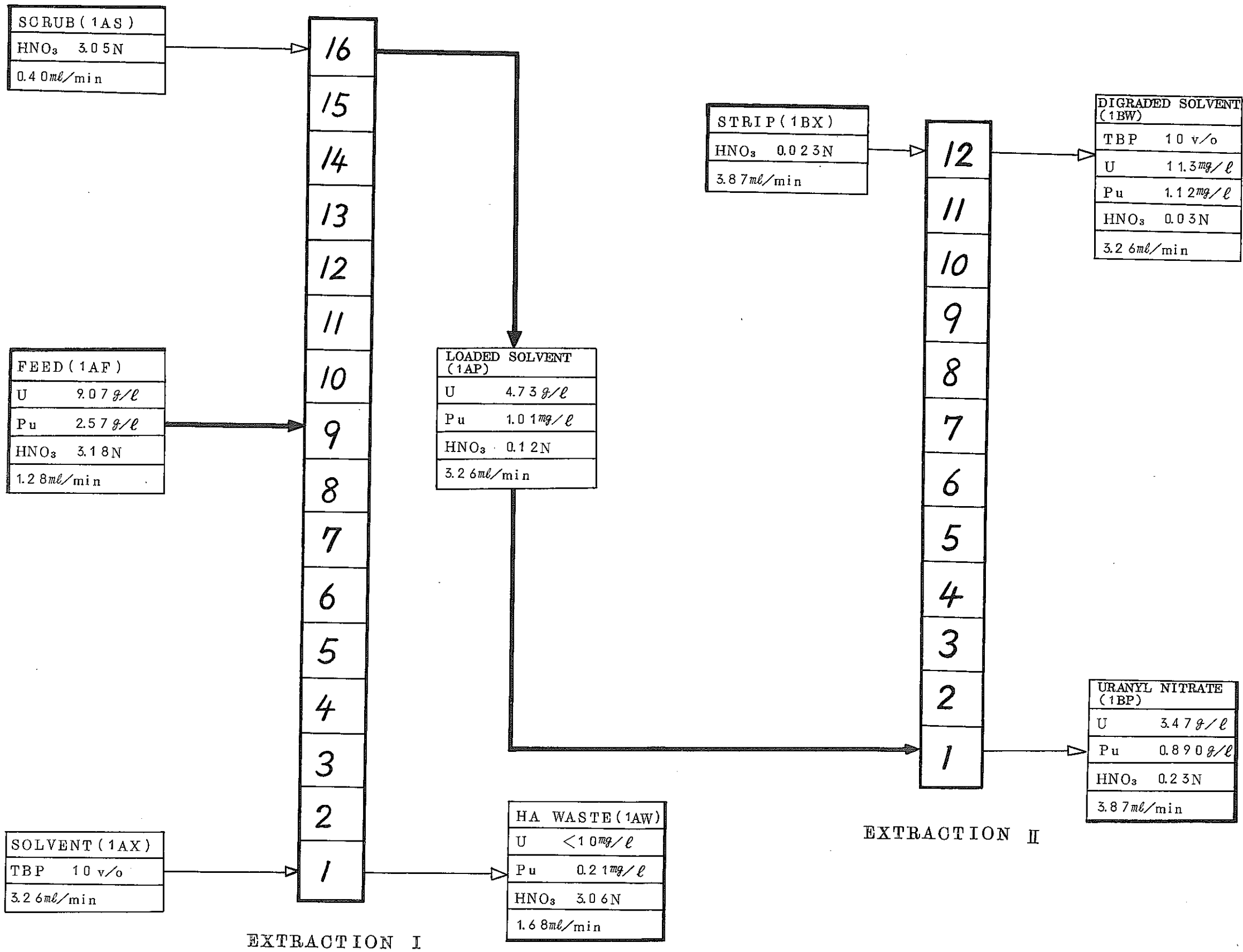
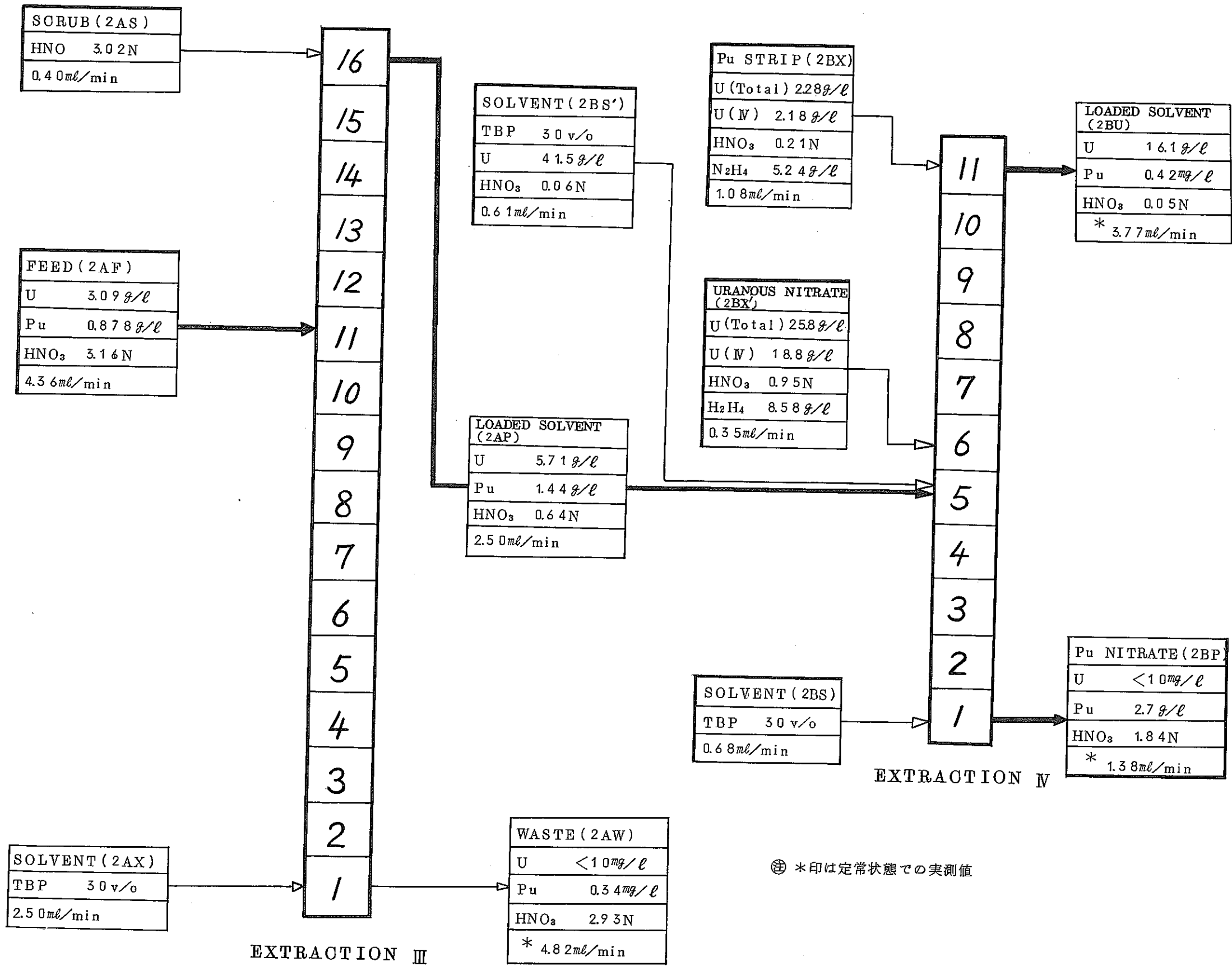


図3 第1ケース, EXTRACTION IおよびII (共除染工程)





⊗ \*印は定常状態での実測値

図4 第1ケース, EXTRACTION IIIおよびIV (分配工程)

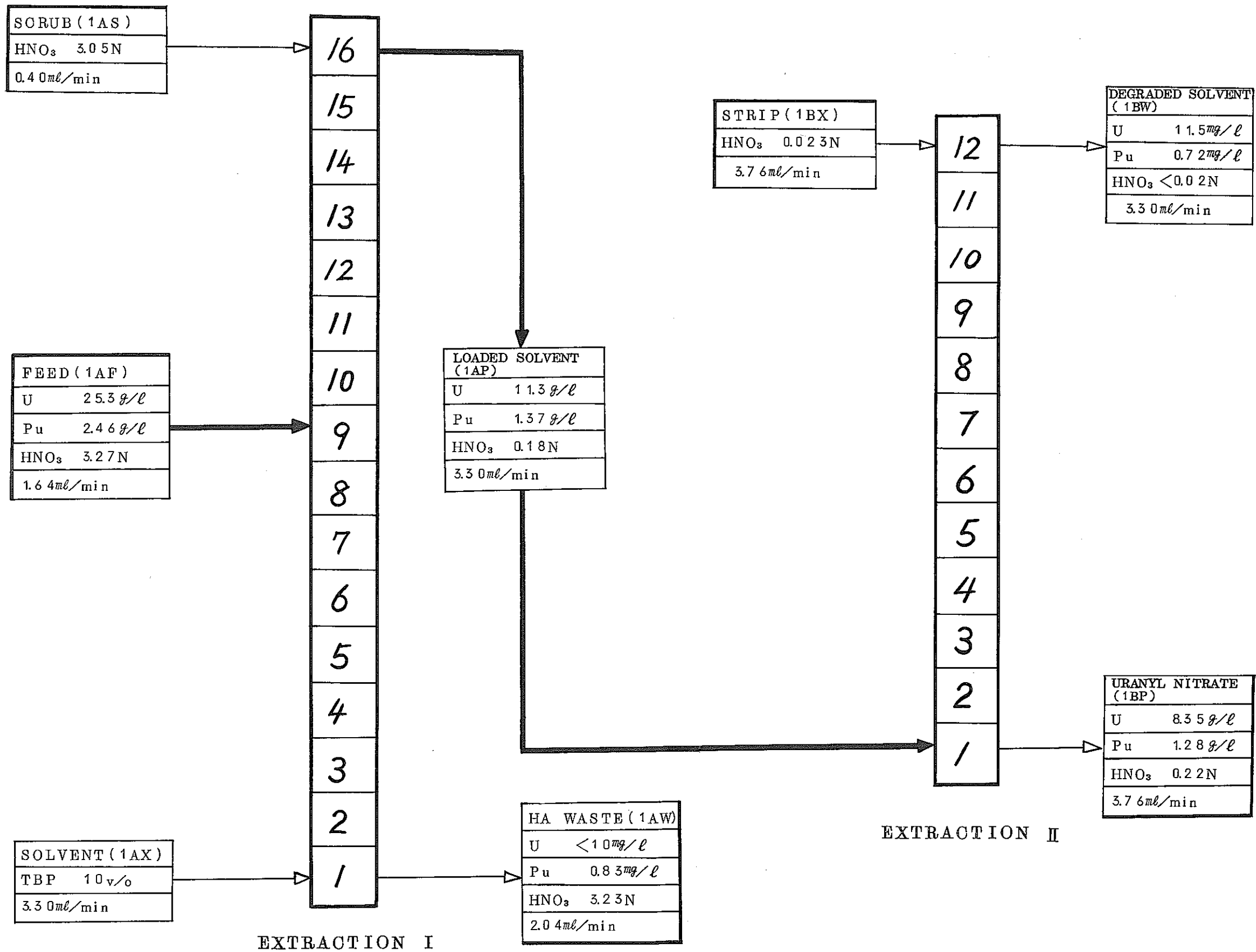


図5 第2ケース, EXTRACTION I および II (共除染工程)

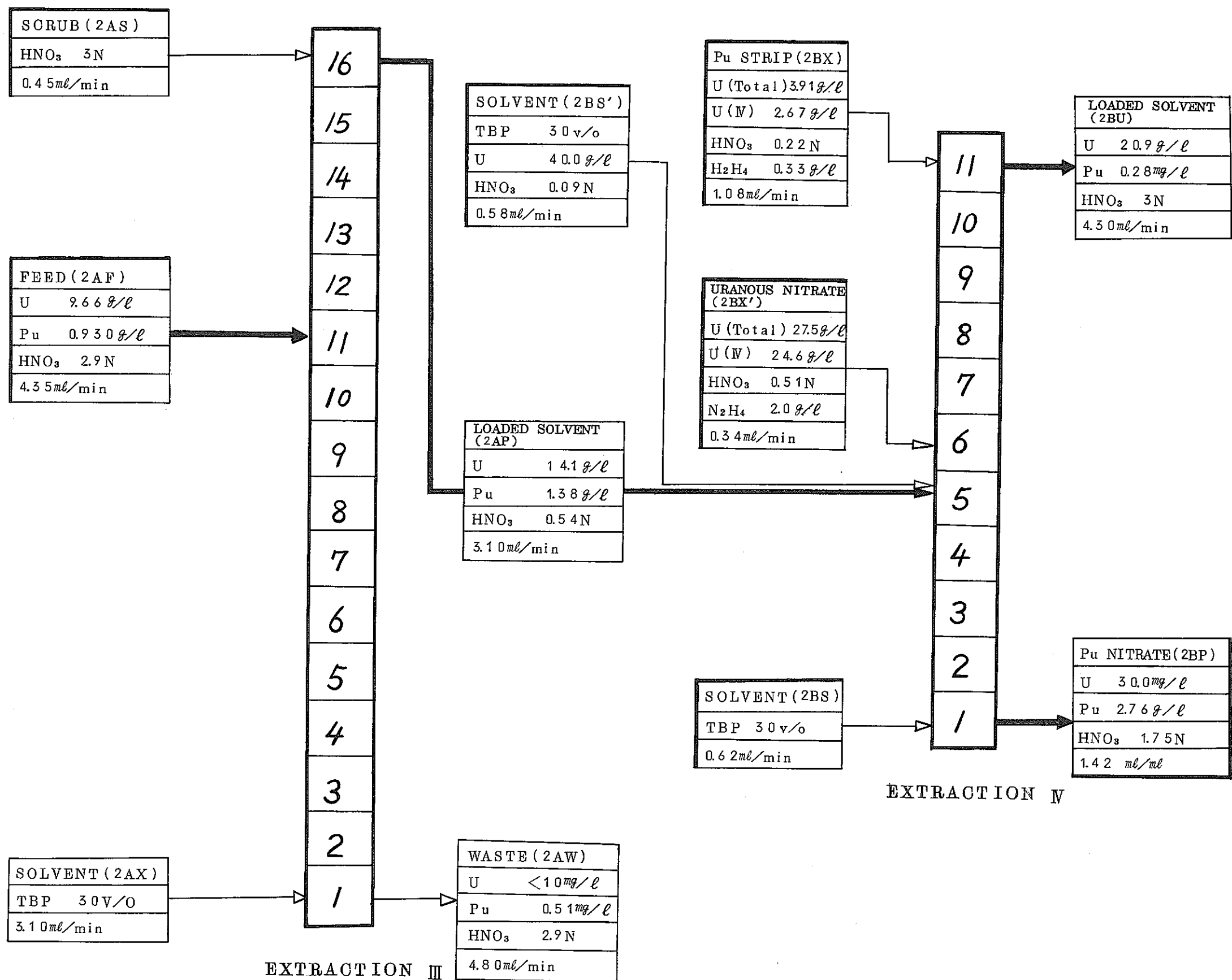


図6 第2ケース, EXTRACTION IIIおよびIV (分配工程)

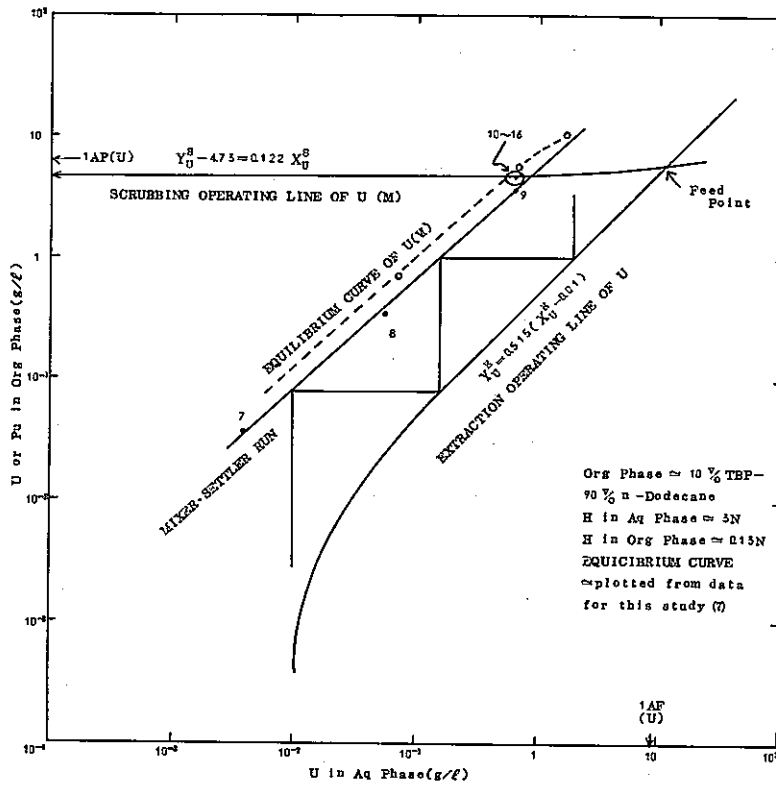


図7 第1ケース, EXTRACTION I (U)

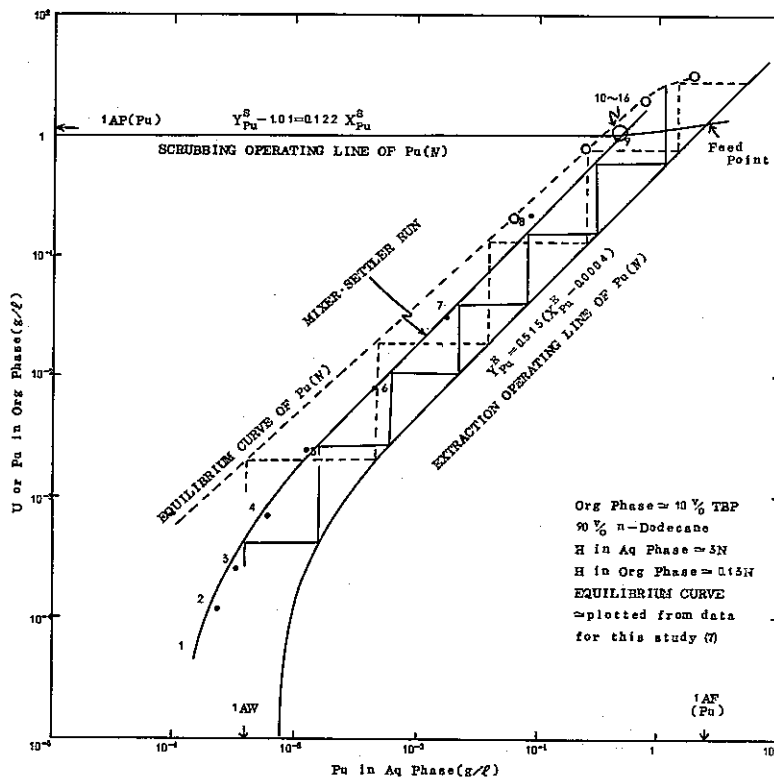


図8 第1ケース, EXTRACTION I (Pu)

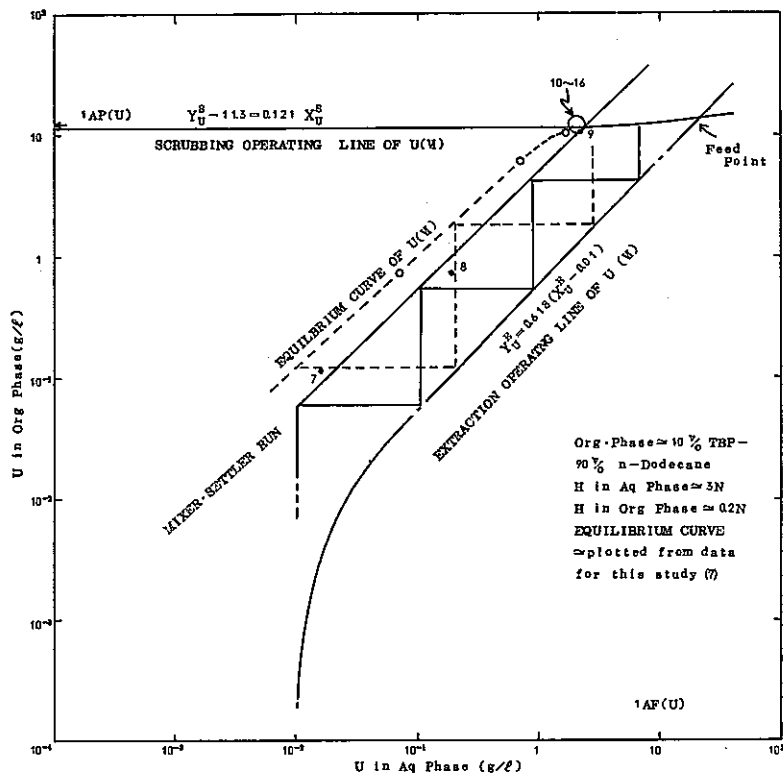


図9 第2ケース, EXTRACTION I (U)

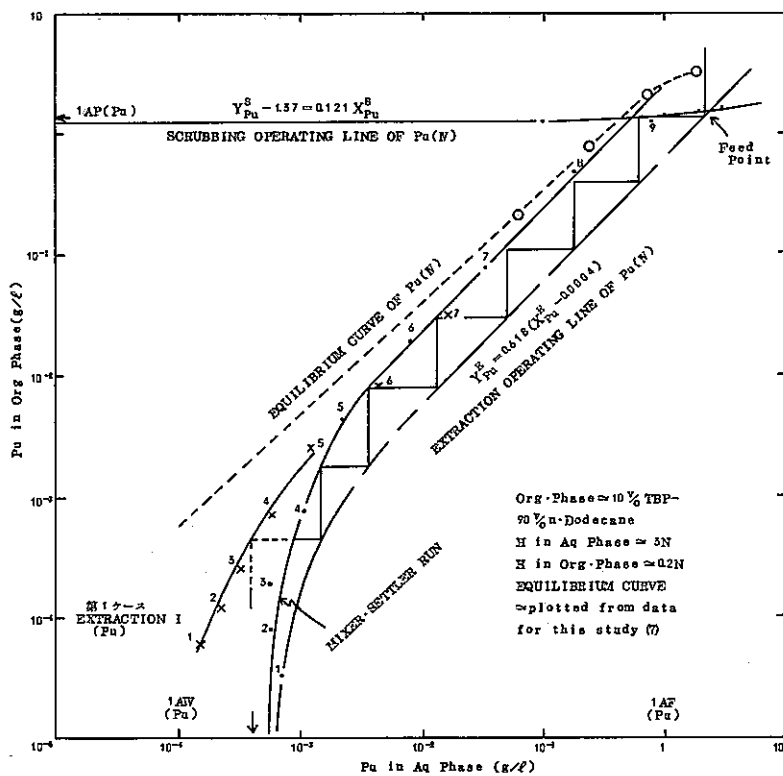


図10 第2ケース, EXTRACTION I (Pu)

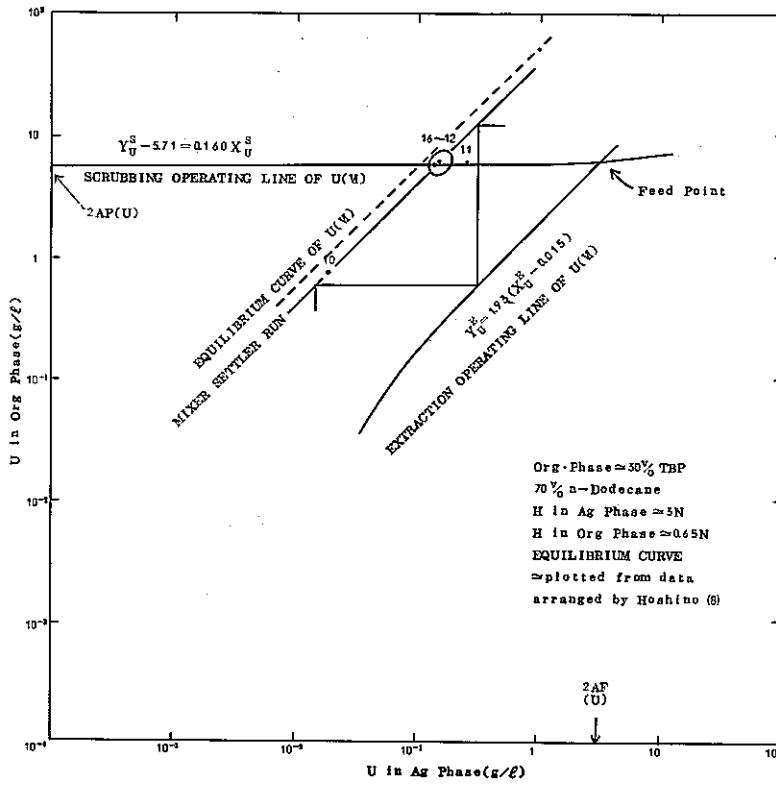


図 11 第 1 ケース, EXTRACTION III (U)

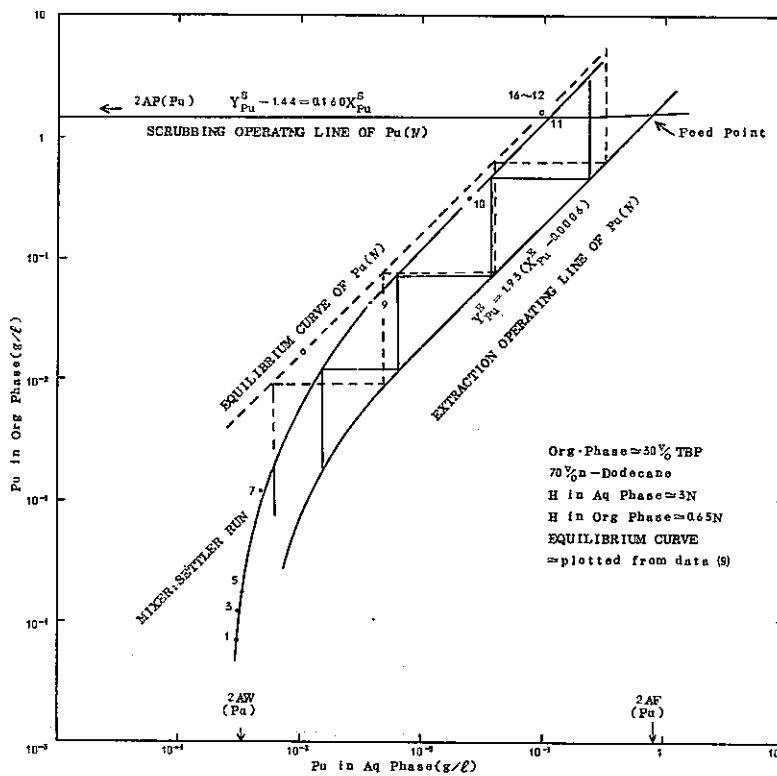


図 12 第 1 ケース, EXTRACTION III (Pu)

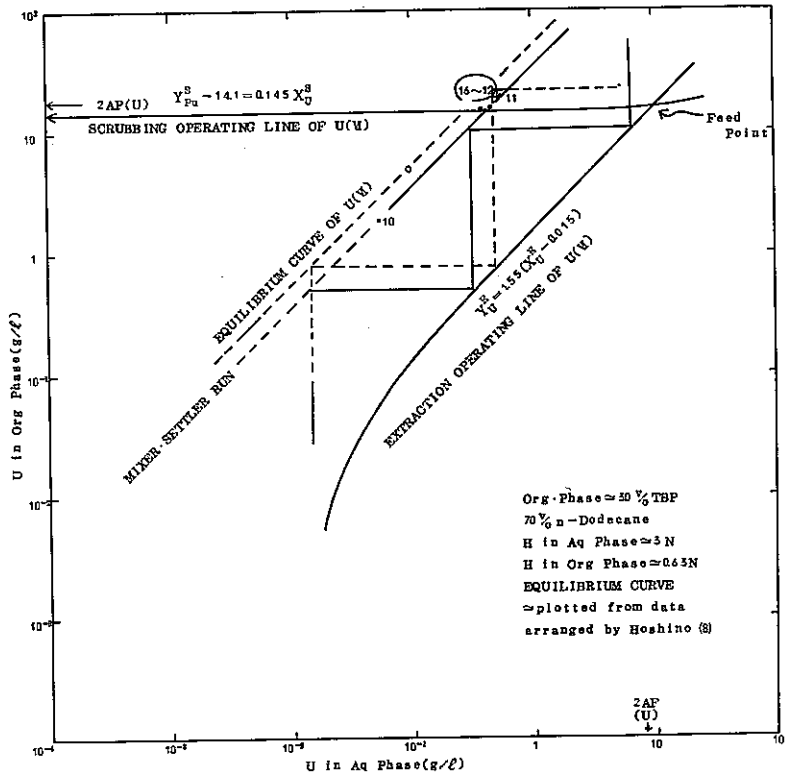


図 13 第 2 ケース, EXTRACTION III (U)

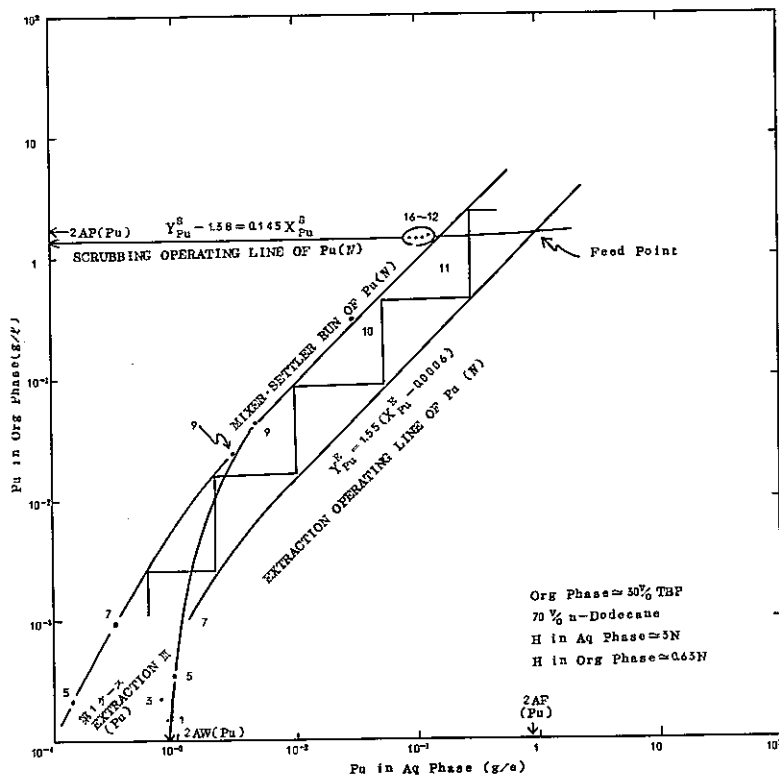


図 14 第 2 ケース, EXTRACTION III (Pu)

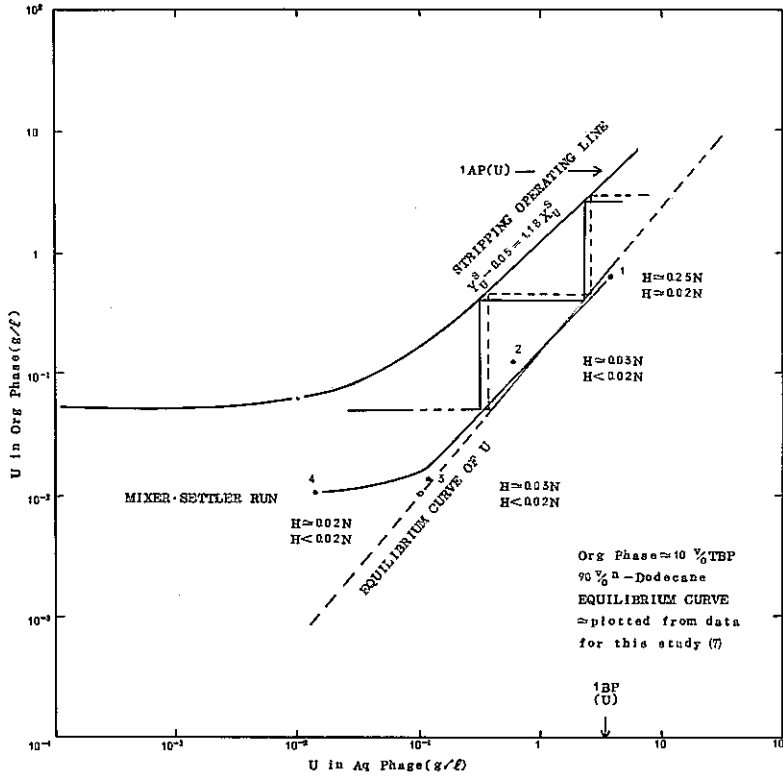


図 15 第 1 ケース, EXTRACTION II (U)

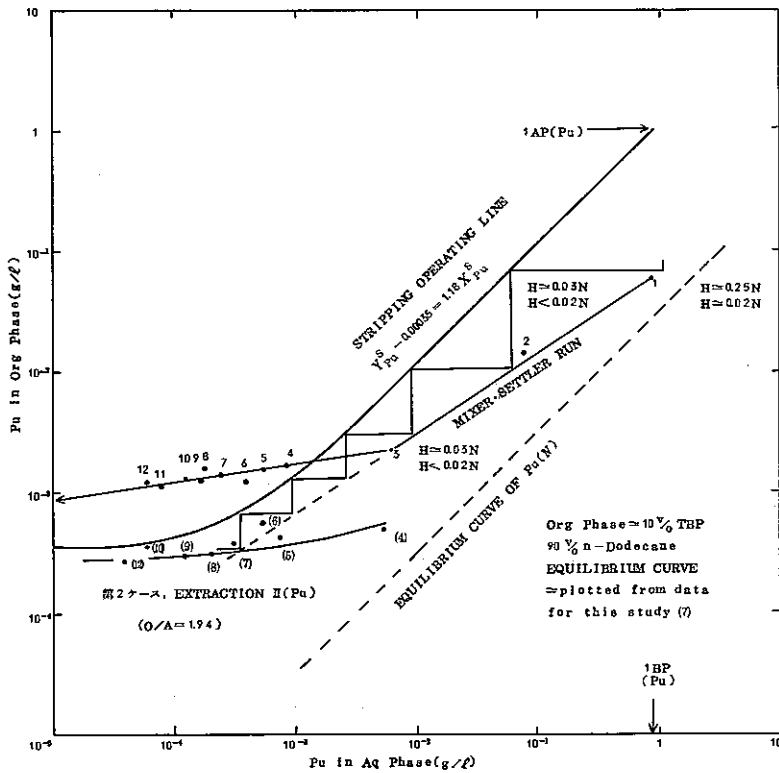


図 16 第 1 ケース, EXTRACTION II (Pu)



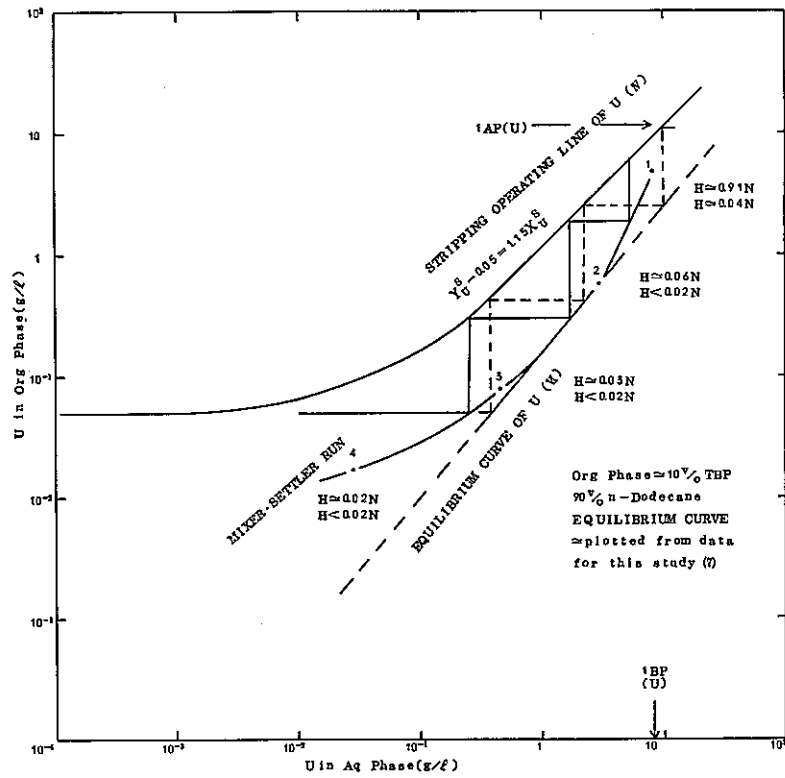


図 17 第 2 ケース, EXTRACTION II (U)

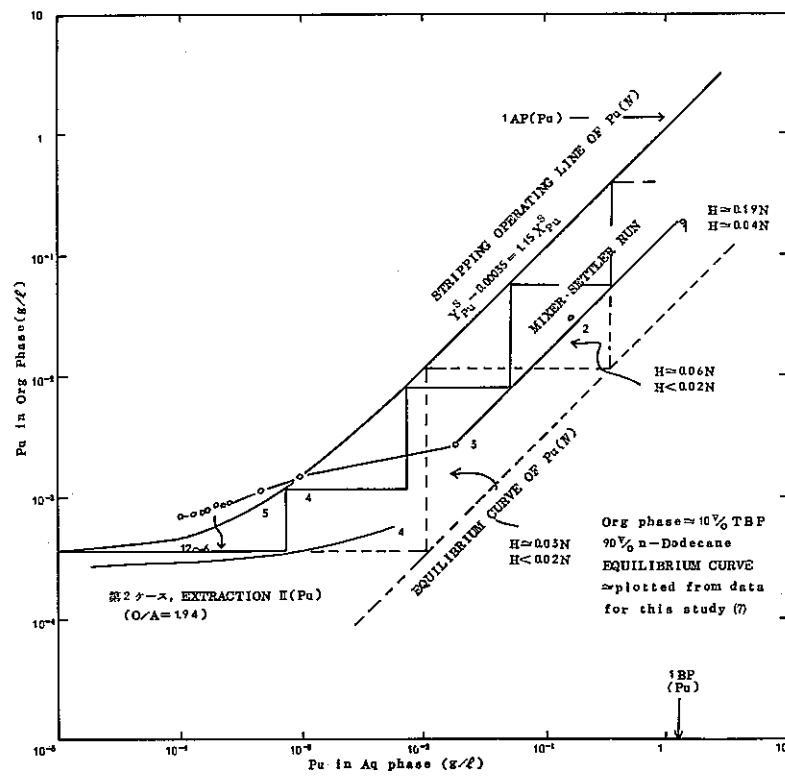


図 18 第 2 ケース, EXTRACTION II (Pu)

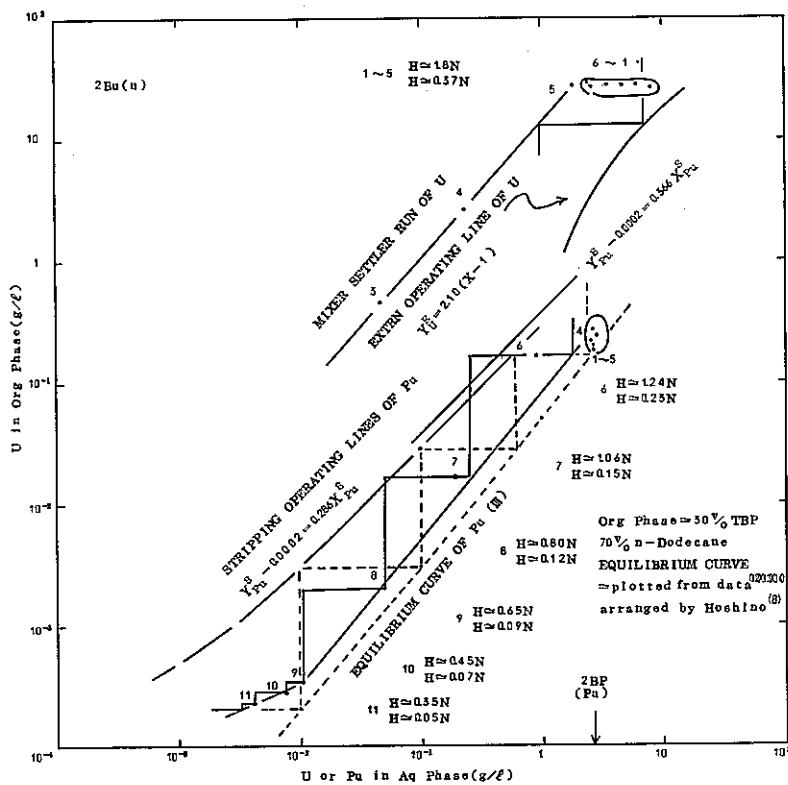


図 19 第 1 ケース, EXTRACTION N (U or Pu)

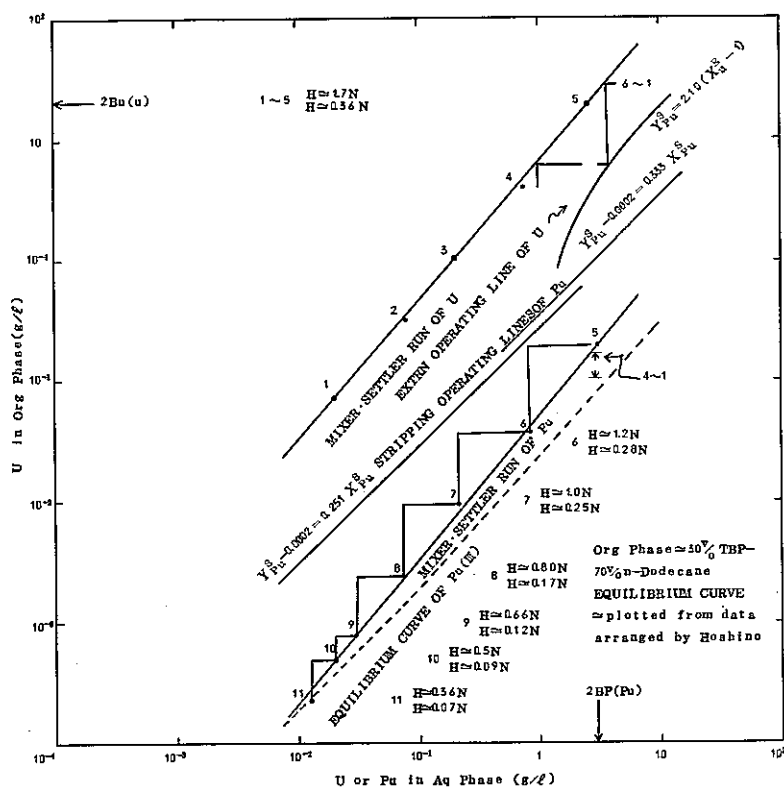


図 20 第 2 ケース, EXTRACTION N (U or Pu)

を図 15～図 18 に示した。

第 1 ケース、第 2 ケース共に、プルトニウムに関して、LWR 燃料再処理プラントの EXTRACT ION II の設計値を満足しなかった。しかしながら、第 2 ケースについて有機相-水相の流量比 O/A を大きい方に変えて実施した RUN でも、有機相廃液中へのプルトニウムの漏出が動燃再処理プラントの EXTRACT I ON II の設計値を十分に満足している場合がある。したがって、この結果を第 1 ケース、第 2 ケースの EXTRACT I ON II の逆抽出部の 4 段目以降について用い、LWR 燃料再処理プラントの設計値を満足するための第 1 ケース、第 2 ケースの逆抽出に必要な段数を求めた。その段数は 5 段ないし 6 段であった。ウランに関しては、第 1 ケースは 3 段、第 2 ケースは 4 段の逆抽出で LWR 燃料再処理プラントの EXTRACT I ON II の設計値を満足する結果を得た。

10 v/o TBP を用いた EXTRACT I ON I でのウランの抽出段効率は、第 2 ケースの結果から約 75%、プルトニウムの抽出段効率は、第 1 ケースの結果から約 70% と推定された。

30 v/o TBP を用いた EXTRACT I ON III でのウランの抽出段効率は、第 2 ケースの結果から約 85%、プルトニウムの抽出段効率は、第 1 ケースの結果から約 75% と推定された。

10 v/o TBP を用いた EXTRACT I ON II でのウランの逆抽出段効率は、第 1 ケース、第 2 ケース共に、ほぼ 100% であり、プルトニウムの逆抽出段効率は、第 2 ケースの結果から、約 50% であった。

以上に述べた EXTRACT I ON I, II, III および後に述べる IV でのウランおよびプルトニウムの抽出に要した抽出段数と抽出段効率を表 4 にまとめた。

図 8, 10, 12 および 14 にみられるように、EXTRACT I ON I, III の抽出部の 5 段～1 段にかけて、水相中のプルトニウム濃度が最大  $2 \text{mg}/\ell$  より低くなるにつれて、プルトニウムのみかけの分配係数がさがりプルトニウムの抽出効率が悪くなり、いわゆるテーリング現象が起きている。また、図 16 および 18 にみられるように逆抽出部の 4 段以降で、有機相中のプルトニウム濃度が  $1 \text{mg}/\ell$  以下になると逆抽出効率が著しく悪くなり、テーリング現象が起きている。テーリング現象が起きているプルトニウム濃度範囲では、プルトニウム 241 から生ずるアメリカウム 241 を差引き補正したプルトニウム濃度を用いているので、テーリング現象は抽出部に供給するプルトニウム溶液中のプルトニウムで抽出性の悪い化学種に起因しているのか、あるいは水相中に溶存し得る溶媒のプルトニウム錯体に起因していることによると考えられる。以上のことをまとめてみると、次のように要約されよう。

- (i) EXTRACT I ON I, III バンクに供給する Pu(IV) と異なった原子価のプルトニウムの存在
- (ii) EXTRACT I ON I, III バンクに供給するプルトニウム中の加水分解種の存在

表 4 FBR燃料再処理抽出工程での  
抽出必要段数および抽出段効率

ケース	抽出区分	プラント設計段		確性試験設定段		確定必要段数 (推定段)		段 効 率 (%)		
第 1	EXTRN I	17	EXTRN SCRUB	9 8	16	EXTRN SCRUB	9 7	U EXTRN Pu EXTRN	3 7	NOT ESTIMATED 70
	EXTRN II	12	STRIP	12	12	STRIP	12	U STRIP Pu STRIP	3 5~6	100 NOT ESTIMATED
	EXTRN III	21	EXTRN SCRUB	14 7	16	EXTRN SCRUB	11 5	U EXTRN Pu EXTRN	2 5	NOT ESTIMATED 75
	EXTRN IV	11	U EXTRN Pu STRIP	4 7	11	U EXTRN Pu STRIP	4 7	U EXTRN Pu STRIP	2 8	NOT ESTIMATED 50
第 2	EXTRN I	17	EXTRN SCRUB	9 8	16	EXTRN SCRUB	9 7	U EXTRN Pu EXTRN	4 8	75 NOT ESTIMATED
	EXTRN II	12	STRIP	12	12	STRIP	12	U STRIP Pu STRIP	4 5~6	100 50
	EXTRN III	21	EXTRN SCRUB	14 7	16	EXTRN SCRUB	11 5	U EXTRN Pu EXTRN	3 5	85 NOT ESTIMATED
	EXTRN IV	11	U EXTRN Pu STRIP	4 7	11	U EXTRN Pu STRIP	4 7	U EXTRN Pu STRIP	2 8	NOT ESTIMATED 50

(iii) TBP 中の DBP, MBP の存在

Pu (IV) の不均化反応の平衡定数は、常温で、種々の硝酸濃度に対して測定されている平衡定数値<sup>(10)</sup>から外埠して得られたる規定硝酸溶液での不均化反応の平衡定数は  $1 \times 10^{-30}$  であるため、EXTRACTION I および III のバンクに供給する Pu (IV) 中に Pu (III) および Pu (V) はほとんど生成されず、とくに (i) に由来する抽出性の悪い Pu (III) がテーリング現象の要因になっているとは考えられない。さらに水相にくらべて酸濃度の低い 10 v/o TBP 中においても、Pu (IV) の不均化反応は、一昼夜の経過時間では認められず、確性試験実施の時間範囲内では、テーリング現象の要因となる程の Pu (III) は生成しない。

各確性試験にさきだって行なった Pu (IV) 溶液の調整段階では、プルトニウムはイオン交換樹脂カラムから溶離する際にイオン交換樹脂上で 0.2 N 硝酸と接する以外はすべて 1 N 以上の硝酸と接触させた。したがって、(ii) の加水分解種が生ずるとするならば、溶離の段階で生ずる可能性が大きい。

TBP 中のリン酸ジブチル (DBP)、リン酸モノブチル (MBP) が水相に可溶のプルトニウム錯体を形成するならば、これが EXTRACTION I および III の抽出部での水相中へのプルトニウムの漏出の要因になっていると考えられる。また、この錯体は、EXTRACTION II での逆抽出効率をも著しく狙害すると考えられる。さきに述べた洗滌法で前処理した溶媒でも、TBP を水蒸気蒸留<sup>(11)</sup>、n-Dodecane を蒸留して低留分を除去して調整した溶媒でも、

EXTRACTION I での逆抽出のテーリング現象は避けられなかった。(iii)の因子、すなわち TBP のエステル結合の一部が切断されて生成する DBP あるいは MBP がテーリング現象の一要因になっているならば、これは溶媒の前処理の段階で 3 N 硝酸で洗滌あるいは洗滌溶媒の長期保存に大きく起因していると考えられる。このことは、3 N 硝酸で洗滌後、一週間放置した溶媒を用いた確性試験において、EXTRACTION I のテーリング現象が大きいことから推察される。

第 1 ケースおよび第 2 ケースのそれぞれの EXTRACTION IV のオペレーティング・ダイアグラムを図 19, 20 に示した。

ウランの抽出段は両ケース共に、2 段でプラントの設計値を十分に満足した。プルトニウムの逆抽出で設計値を満足するためには、両ケース共に 8 段が必要であった。

LWR 燃料を対象とした動燃再処理プラントではプルトニウムの逆抽出段は 7 段であるが、本報告の場合ウランの処理量が、LWR 燃料を対象としたプラントの場合にくらべて  $1/18 \sim 1/6$  と圧倒的に少い。したがって、TBP 中へのウランの負荷効果で Pu(III) の分配係数が LWR 燃料の再処理の場合より 1 桁大きくなる FBR 燃料の再処理の場合に、LWR 燃料プラントの EXTRACTION IV のウランプロダクト側へのプルトニウムの漏出の設計値にしたがうならば、EXTRACTION IV のプルトニウム逆抽出段をもう 1 段ないし 2 段増やすか、2 BX の流量を上げることが必要である。EXTRACTION IV の全プルトニウムの逆抽出段効率は第 1 ケースについて、ほぼ 50 ~ 60% であった。

この結果は、10 vol% TBP を用いた第 2 ケースの EXTRACTION I の Pu(IV) の逆抽出効率 50% にほとんど等しい。Pu(IV) の U(IV) による還元は有機相であることが本確性試験の EXTRACTION IV の 6 段から 11 段までの有機相中および水相中の Pu(IV) の還元率から推察される。表 5 に第 1, 第 2 両ケースについて EXTRACTION IV の有機相、水相の Pu(IV) の還元率と有機相中の U(IV) の量を示した。EXTRACTION IV のプルトニウムの逆抽出段効率は、水相中の還元率から、9 段まではほとんど Pu(III) のものとみてよいと思われる。10 段、11 段では Pu(III) の再酸化が起っており、逆抽出段効率は 6 段から 9 段までのそれにくらべて著しく悪い。

プルトニウムを用いなくて実施した分配工程の確性試験で、プルトニウムを加えた場合のプルトニウムの 6 当量にあたる U(IV) のうち、3 当量がバンク内で酸化される<sup>(15)</sup>という。これは、U(IV) が有機相中で空気あるいは酸素によって酸化されることに起因していると思われる。<sup>(16)</sup>本確性試験の分配工程では、LWR 燃料再処理プラントの設計値にしたがって、Pu(IV) の 6 当量の U(IV) を用いたが、第 1, 第 2 両ケース共にウランプロダクト中およびプルトニウムプロダクト中に回収された U(IV) は、Pu(IV) の 2 当量であった。これらのことから、本確性試験の分配工程では、Pu(IV) の還元のために当量の U(IV) が消費されていることにな

表5 分配工程のプルトニウム還元率

段	水相中の Pu(III) (%)		有機相中の Pu(III) (%)		有機相中の U(IV) g/l	
	第1ケース	第2ケース	第1ケース	第2ケース	第1ケース	第2ケース
6	96	89	16	75	1.15	0.91
7	89	100	33	72	2.18	0.83
8	98	100	55	80	2.60	1.32
9	100	100	97	100	3.31	2.11
10	97	100	49	87	1.40	1.20
11	91	100	25	95	0.63	0.67

り、EXTRACTION IV の 10, 11 段以外 Pu(III) の再酸化はほとんど起っていないことがわかった。

## 5 結 論

本確性試験の結果、FBR燃料の再処理抽出工程は、LWR燃料再処理プラントの分配工程のプルトニウム逆抽出段を1~2段ふやすことによって、LWR燃料再処理プラントのウランプルトニウムの回収・相互分離に関する設計値を満足する抽出工程が実施出来ることが確かめられた。

本確性試験の結果、分配工程のEXTRACTION IV のウラン抽出段は2段で充分であるので、EXTRACTION IV のウラン抽出段をプラントの設計段4段から2段にすることによって、プルトニウムの逆抽出段を2段ふやすことができる。またウランプロダクト中で設計値をこえるプルトニウムの漏出があってもウラン精製工程で補えれば、以上に述べた考慮は必要ない。

## 6 謝 辞

本確性試験の分析を担当した技術部分析課、宮原顕治、大峰守、大内与四郎、入之内重徳および上田和隆の諸氏に感謝します。

参 考 文 献

- (1) 石川寛；日本原子力学会誌 11, 691(1969)
- (2) 水田浩；覚書
- (3) Sato S. et al; IAEA Panel on Reprocessing of Highly Irradiated Fuels, Vienna, 27~30 May 1969
- (4) 星野忠也；未発表
- (5) 坂倉敏雅等；東資-20(1965)
- (6) 鈴木進等；PNCT-3087(1967), PNCT-3124(1967)
- (7) 坪谷隆夫等；未発表
- (8) 星野忠也等；PNCT 3165(1969)
- (9) CODDING J.W. et al; Ind. Eng. Chem. 50, 145-52(1958)
- (10) MINER F.J. et al; B256 Chem. Rev. [3] 299-315(1966)
- (11) ALCOCK K. et al; Trans, Faraday Soc, 52, 39(1956)
- (12) CARLESON; J. Inorg. Nucl. Chem, 12, 136(1959)
- (13) SHEVCHENKO; Atomnaya Energ., 6, 426(1958)
- (14) 辻野毅等；PNCT-61(1966)
- (15) 星野忠也等；PNCT-3090(1967)
- (16) SALOMON L, et al; ETR-136(NP-17741)(1969)