

Purexプロセスにおけるジルコニウムの分配

Partition of Zirconium in Purex Process

January 1980

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

TOKAI WORKS

POWER REACTOR & NUCLEAR FUEL DEVELOPMENT CORPORATION

複製あるいは入手については、下記にお問い合わせください。

茨城県那珂郡東海村 〒 319-11

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所技術部研究管理課 ☎ 東海 (02928) 2-1111 内線 238

Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

Enquiries about copyright and reproduction should be addressed to ;

Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation,

Tokai, Ibaraki, Post No 319-11, Japan.

Purexプロセスにおけるジルコニウムの分配

報告者 芝原 鉄朗*

権田 浩三*

期間 1979年4月～1979年12月

目的 Purexプロセスにおけるジルコニウムの濃度プロファイルのシミュレーション

要旨

Purexプロセスにおけるジルコニウムの抽出器内濃度プロファイルを正しくシミュレーションし、プロセスでのジルコニウムの除染係数を正しく予想することは、プロセスの設計ならびに運転にきわめて重要である。ジルコニウムの分配実験例は数多く報告されているが、抽出器内濃度プロファイルを詳細にシミュレーションした例はない。本報告では、段効率について従来から採用されてきた抽出方向についての段効率に代えて逆抽出方向についての段効率を採用し、ジルコニウムの抽出器内の分配特性を検討した。その結果、ジルコニウムの逆抽出方向についての段効率を60%と仮定することによって、ジルコニウムの抽出器内での分配のシミュレーションが精度よく出来ることを確認できた。さらに、トリブチルりん酸(TBP)の分解生成物であるジブチルりん酸(HDBP)がプロセス中に存在する場合には、ジルコニウムがTBPとHDBPにそれぞれ分配すると仮定し、ジルコニウムの抽出器内での分配のシミュレーションを精度よく行うことができた。その結果、高燃焼度の燃料を再処理する場合のジルコニウムの抽出器内での分配および除染係数をより精度よくシミュレーションできるようになった。

Partition of Zirconium in Purex Process

Tetsuro SHIBAHARA* and Kozo GONDA*

Abstract

Many solvent extraction studies of zirconium have been reported. But the partition of zirconium in the process has been scarcely simulated. The simulation of the partition of zirconium in the process is useful not only for the optimum process design of the reprocessing plant but also for the optimization of the operation conditions of the process.

In the studies of the solvent extraction process, the stage efficiency has been defined as the mass transfer to the organic phase from the aqueous phase. In this study, the stage efficiency of zirconium has been defined as the mass transfer to the aqueous phase from the organic phase instead of that to the organic phase from the aqueous phase. Then, the simulation agreed well with the practical partition of zirconium in the process by assuming 60 % of the stage efficiency of zirconium.

When fuels highly burnt up are reprocessed in the process, di-n-butyl phosphate (HDBP) will be produced by the degradation of tri-n-butyl phosphate (TBP). Then, we have estimated the influence of HDBP on the partition of zirconium in the solvent extraction process. In this estimation, we assumed that HDBP and TBP extract zirconium, independently. Also in this case, the simulation agreed well with the practical partition of zirconium in the process.

* Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation,
Tokai, Ibaraki, 319-11, Japan

目 次

1. まえがき	1
2. 照射燃料中のジルコニウムの含有量	2
3. 硝酸溶液中のジルコニウムの化学形態	4
4. ジルコニウムの分配係数	6
4.1 硝酸濃度およびウラン濃度の影響	6
4.2 HDBP 濃度の影響	8
5. 抽出プロセスでのジルコニウムの分配	9
5.1 TBP-炭化水素溶媒系でのジルコニウムの分配	9
5.2 HDBP-TBP-炭化水素溶媒系でのジルコニウムの分配	10
6. 東海再処理工場でのジルコニウムの分配	13
7. 参考文献	15

図 一 覧

図 1	ジルコニウムおよびプルトニウム生成量と燃焼度の関係	16
図 2	ジルコニウム含有量と冷却期間の関係	17
図 3	ジルコニウムの分配平衡定数 K_{Zr} とイオン強度 I の関係	18
図 4	ジルコニウムの分配係数 D_{Zr} と硝酸濃度の関係	19
図 5	ジルコニウムの分配係数 D_{Zr} と有機相のウラン飽和度の関係	20
図 6	ジルコニウムの分配係数 D_{Zr} とHDBP濃度の関係	21
図 7	ジルコニウムの分配係数 D_{Zr} と硝酸濃度の関係—HDBPの影響	22
図 8	ジルコニウムの濃度プロファイル—ウラン飽和度の影響 (1)	23
図 9	ジルコニウムの濃度プロファイル—ウラン飽和度の影響 (2)	24
図 10	ジルコニウムの濃度プロファイル—ウラン飽和度の影響 (3)	25
図 11	ジルコニウムの濃度プロファイル—HDBPの影響 (1)	26
図 12	ジルコニウムの濃度プロファイル—HDBPの影響 (2)	27
図 13	ジルコニウムの濃度プロファイル—HDBPの影響 (3)	28
図 14	ジルコニウムの濃度プロファイル—HDBPの影響 (4)	29
図 15	ジルコニウムの濃度プロファイル—共除染工程 (確性試験)	30
図 16	ジルコニウムの濃度プロファイル—分配工程 (確性試験)	31
図 17	標準抽出条件での濃度プロファイル—第1抽出器 (共除染工程)	32
図 18	標準抽出条件での濃度プロファイル—第3抽出器 (分配工程)	33
図 19	標準抽出条件での濃度プロファイル—第6抽出器 (ウラン精製工程)	34
図 20	標準抽出条件での濃度プロファイル—第8抽出器 (プルトニウム精製工程)	35

1. ま え が き

現在までに、東海再処理工場で処理された使用済燃料は、冷却期間が長いので、半減期の短い ^{95}Zr (65.5日)は検出されていない。したがって、再処理工程におけるジルコニウムの大半を占める ^{91}Zr などの非放射性ジルコニウムを含めた全ジルコニウムの抽出工程での除染係数は全く評価できていない。

本研究は、他の報告中のジルコニウムの分配データを使用して抽出工程におけるジルコニウムの濃度プロファイルのシミュレーションを行ない、除染係数を推定することを目的として実施したものである。本研究では、水相中の硝酸濃度、有機相中のウラン飽和度、ジブチルりん酸(HDBP)などの溶媒損傷生成物の有無など、ジルコニウムの分配を支配する各種の要因をパラメータとしてジルコニウムの分配係数をまとめ、抽出工程におけるジルコニウムの濃度プロファイルのシミュレーションを行うための方法を模索した。

従来から、抽出工程の濃度プロファイルのシミュレーションのために用いられてきた抽出成分についての水相から有機相への抽出率で表わされるMurphreeの段効率の定義の仕方を有機相から水相への抽出率に表現しなおしてシミュレーションを行なうと、シミュレーションと実験結果がよい近似で一致することを見出した。このことは有機相に抽出されたジルコニウムがきわめて有機相から水相へ逆抽出されにくいことを示唆し、かつ抽出工程のシミュレーションのために用いられてきた水相成分を有機相に抽出して求めるという従来からの分配データの実験的測定法が必ずしも妥当ではない成分の存在を示していると考えられる。

以下、ジルコニウムの抽出器内での分配のシミュレーションについて進めてきた方法を中心に、説明する。

2. 照射燃料中のジルコニウムの含有量

ジルコニウムは照射燃料中の核分裂生成物のおもだった核種の1つである。照射燃料の燃焼度と生成するジルコニウムの同位体組成および照射済燃料中の放射性ジルコニウムの放射能と冷却期間の1例をPWR燃料についてORIGEN¹⁾により計算し、表1および表2に示した。表1および表2から、放射性ジルコニウムのうち、⁹³Zrは燃焼度が高くなるにつれて蓄積量は増加するが、半減期が長いので放射能が低いことがわかる。⁹⁷Zrおよび⁹⁸Zrは放射能が強いが、半減期が短いので、照射燃料中の蓄積量は少く、しかも短期間の冷却によって大部分が崩壊する。したがって、再処理工場の抽出工程の放射性ジルコニウムとしては⁹⁵Zrのみを考慮すればよい。その⁹⁵Zrも比較的半減期が短いので(65.5日)、冷却期間の長い使用済燃料中には⁹⁵Zrは検出されない。しかしながら、表1に示すように、照射燃料中で生成するジルコニウムは、非放射性ジルコニウム同位体が主成分であり、これらの安定なジルコニウム同位体が再処理プロセス中に存在する。照射燃料中の全ジルコニウム生成量および⁹⁵Zr生成量と燃焼度の関係をORIGEN¹⁾により計算し、図1に示した。また、照射済燃料の冷却期間と全ジルコニウム含有量、⁹⁵Zrおよびジルコニウムの放射能の関係を図2に示す。図1から、照射燃料中でプルトニウムの約1/3のジルコニウムが生成することがわかる。図2から、放射性⁹⁵Zrは冷却日数とともに急激に減少するが、⁹⁵Zrの崩壊量とはほぼ等しい量の⁹⁰Zrおよび⁹¹Zrが⁹⁰Srおよび⁹¹Yの崩壊により生成するので、冷却日数が増加しても照射済燃料中の全ジルコニウム含有量は、ほぼ一定に保たれることがわかる。

表1 照射燃料中のジルコニウム同位体

		Reactor		PWR							
		²³⁵ U 初期濃縮度		3%							
		比出力		35MWD/T							
		計算コード		ORIGEN							
		同位体組成 (g/MTU)									
燃焼度	MWD/MTU	⁹⁰ Zr	⁹¹ Zr	⁹² Zr	⁹³ Zr*	⁹⁴ Zr	⁹⁵ Zr*	⁹⁶ Zr	⁹⁷ Zr*	⁹⁸ Zr*	Zr-total
3000	1.84×10 ⁻¹	254	70.7	76.6	78.3	50.8	80.1	9.07×10 ⁻¹	8.82×10 ⁻⁴	383	
6000	7.37×10 ⁻¹	76.2	13.7	15.0	15.4	70.0	15.8	8.90×10 ⁻¹	8.77×10 ⁻⁴	747	
9000	1.64	13.4	2.01	2.20	2.28	76.9	23.5	8.81×10 ⁻¹	8.72×10 ⁻⁴	1100	
12000	2.86	1.92	2.63	2.89	3.01	78.9	3.12	8.74×10 ⁻¹	8.68×10 ⁻⁴	1440	
15000	4.39	2.48	3.23	3.56	3.72	79.0	3.87	8.69×10 ⁻¹	8.66×10 ⁻⁴	1770	
18000	6.22	3.03	3.80	4.20	4.42	78.6	4.62	8.64×10 ⁻¹	8.65×10 ⁻⁴	2090	
21000	8.33	3.56	4.36	4.84	5.11	77.9	5.36	8.60×10 ⁻¹	8.64×10 ⁻⁴	2410	
24000	10.7	4.07	4.91	5.44	5.80	77.2	6.09	8.57×10 ⁻¹	8.63×10 ⁻⁴	2720	
27000	13.3	4.55	5.44	6.04	6.48	76.5	6.82	8.55×10 ⁻¹	8.63×10 ⁻⁴	3020	
30000	16.2	5.02	5.95	6.62	7.14	75.8	7.54	8.53×10 ⁻¹	8.63×10 ⁻⁴	3320	

*: 放射性ジルコニウム同位体

表2 照射燃料中のジルコニウムの放射能

Reactor PWR
²³⁵U初期濃縮度 3%
 比出力 35MWD/T
 計算コード ORIGEN

		放 射 能					(Ci/MTU)				
燃焼度 (MWD/MTU)		10,000					30,000				
同位体 冷却期 間(日)		⁹³ Zr	⁹⁵ Zr	⁹⁷ Zr	⁹⁸ Zr	Total	⁹³ Zr	⁹⁵ Zr	⁹⁷ Zr	⁹⁸ Zr	Total
		0		6.27×10^{-1}	1.65×10^6	1.68×10^6	1.68×10^6	5.02×10^6	1.70×10^0	1.60×10^6	1.62×10^6
180		6.28×10^{-1}	2.42×10^5	0	0	2.42×10^5	1.70×10^0	2.35×10^5	0	0	2.35×10^5
400		6.28×10^{-1}	2.32×10^4	0	0	2.32×10^4	1.70×10^0	2.25×10^4	0	0	2.25×10^4
600		6.28×10^{-1}	2.75×10^3	0	0	2.75×10^3	1.70×10^0	2.67×10^3	0	0	2.67×10^3
800		6.28×10^{-1}	3.26×10^2	0	0	3.26×10^2	1.70×10^0	3.16×10^2	0	0	3.18×10^2
1,000		6.28×10^{-1}	3.86×10^1	0	0	3.92×10^1	1.70×10^0	3.75×10^1	0	0	3.92×10^1
1,200		6.28×10^{-1}	4.58×10^0	0	0	5.20×10^0	1.70×10^0	4.44×10^0	0	0	6.14×10^0
1,400		6.28×10^{-1}	5.42×10^{-1}	0	0	1.17×10^0	1.70×10^0	5.30×10^{-1}	0	0	2.23×10^0
1,600		6.28×10^{-1}	-	0	0	6.92×10^{-1}	1.70×10^0	-	0	0	1.76×10^0
1,800		6.28×10^{-1}	-	0	0	6.63×10^{-1}	1.70×10^0	-	0	0	1.71×10^0

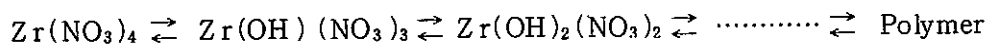
3. 硝酸溶液中のジルコニウムの化学形態

使用済燃料中での核分裂生成物の化学形態は核種によって種々の形態をとり、明確ではない。Hofmann²⁾は生成エンタルピーの検討結果にもとずいてジルコニウムは酸化ジルコニウム ZrO_2 として存在すると報告している。酸化ジルコニウムは化学的に安定であり、鉍酸に溶解しないと言われているが、使用済燃料溶解液である硝酸溶液中にジルコニウムは溶解している。したがって、使用済燃料中では、ジルコニウムは化学的に安定な酸化ジルコニウム ZrO_2 と化学的性質の異なる酸化状態で存在するか、または使用済燃料中に固溶体として存在し、そのため単体として存在する酸化ジルコニウム ZrO_2 と化学的性質が異なるために溶解工程で硝酸に溶解するものと考えられる。

水溶液中では、ジルコニウムは4価の陽イオンの状態で存在することが知られているが³⁾、酸濃度が低いと加水分解を受けやすいため、4価のジルコニウム陽イオンという単純な化学形態のみが存在するということはない。ジルコニウム陽イオンは加水分解を受けて、その結果、種々の陰イオンと結合したり、重合してコロイドを生成するので、使用済燃料溶解液中でのジルコニウムの化学形態については明確でない点が多い。

しかしながら、最近、Bauder⁴⁾は硝酸溶液中のジルコニウムの化学形態を表3のようにまとめている。すなわち、ジルコニウム濃度が $10^{-1} \sim 10^{-2}$ mole/lと高い場合には、ジルコニウムは重合体を生成しやすく、硝酸濃度が低いほど重合体の存在比率は高くなる。ジルコニウム濃度が 10^{-2} mole/l以下の場合にも、硝酸濃度が低いと重合体を生成しやすい。硝酸濃度が1~4 Nの範囲では、一般式 $Zr(OH)_m(NO_3)_{4-m}$ で示される単量体が主成分となり、ジルコニウム陽イオンに結合する硝酸陰イオンの数は硝酸濃度とともに増加する。硝酸濃度が4~6 Nの範囲ではジルコニウムは $[Zr(NO_3)_6]^{2-}$ および $[Zr(OH)_2(NO_3)_4]^{2-}$ のような陰イオン団として存在する。

Purex法で軽水炉燃料を再処理する場合には、抽出工程の水相中のジルコニウム濃度は 10^{-2} mole/l以下であり、硝酸濃度は0.02~3.5 Nであるので、Purex法の抽出工程の水相中のジルコニウムは一般式 $Zr(OH)_m(NO_3)_{4-m}$ で示される単量体の混合物と重合体の平衡組成物として存在すると考えてよい。すなわち、Purex法の抽出工程の水相中のジルコニウムの化学形態は次の平衡式で表現できる。



これらの種々の化学形態のジルコニウムの抽出性について、Zaitsevら⁵⁾は、有機相へ抽出されやすい化学形態は $Zr(OH)_2(NO_3)_2$ であり、ジルコニウム陽イオンに結合している水酸イオンの数が増えるのにしたがって抽出性が低下すると報告している。一方、佐藤⁶⁾は、ジルコニウムの分配係数が硝酸濃度の4乗に比例して増加するという実験結果にもとずいて、抽出性のジルコニウムの化学形態は $Zr(NO_3)_4$ であると述べている。

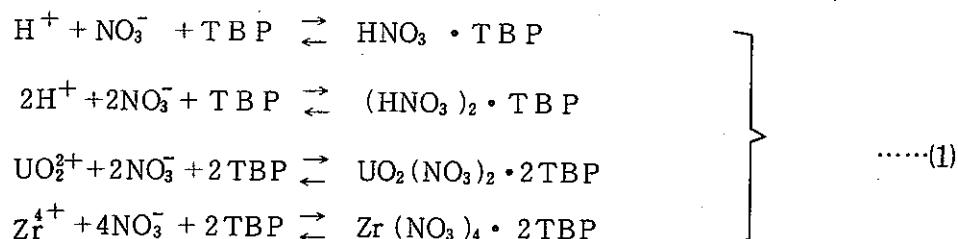
表3 硝酸溶液中のジルコニウムの化学形態

Zr 濃度 (mole/l)	硝酸濃度 (N)	Zr の 化 学 形 態	実験方法
0.08~0.2	1~10	分子量 800~1500 の化学種	拡 散
$10^{-3} \sim 10^{-1}$	2	重合体 (重合度 1~7)	浸 透 圧
$10^{-3} \sim 10^{-1}$	0.1	重合体 (重合度 2.5~7)	浸 透 圧
	1~2 <0.3	$\{Zr(NO_3)\}^{3+}$ $Zr(OH)_4$	抽 出
10^{-6} 10^{-2}	2 H_2O	$\{Zr(NO_3)\}^{3+}$, $\{Zr(NO_3)_2\}^{2+}$ $ZrO(NO_3)_2$	イオン交換
10^{-1}	H_2O	コロイド	イオン交換
10^{-1}	2	$\{Zr_4(OH)_8\}^{8+}$	染料錯体
4×10^{-2}	0.02~0.1	重合体 (重合度 >2)	拡 散
	6	単量体	イオン交換
	0.03~3	加水分解, 重合	
	3	$\{Zr(OH)_{3.84-n}(NO_3)_{0.16}\}^{n+}$	イオン交換
	6	$\{Zr(OH)_{3-n}(NO_3)\}^{n+}$	
	4~6	アニオン $\{Zr(NO_3)_6\}^{2-}$, $\{Zr(OH)_2(NO_3)_4\}^{2-}$	イオン交換 電気泳動
	1~4	$Zr(NO_3)_4$, $Zr(OH)_2(NO_3)_2$ $\{Zr(OH)(NO_3)_2\}^+$, $\{Zr(NO_3)_2\}^{2+}$ $\{Zr(OH)_2(NO_3)\}^+$, $\{Zr(OH)(NO_3)\}^+$	イオン交換
	0.3~3 0.3	$\{Zr_2O_3\}^{2+}$, $\{Zr_3O_5\}^{2+}$, $\{Zr(OH)_3\}^+$ $\{Zr_4O_7\}^{2+}$, $\{(OH)_2Zr-O-Zr(OH)_2\}^{2+}$ コロイド	
0.1	1.5~2.5	4量体	拡 散
10^{-5}	4	$\{Zr(NO_3)\}^{3+}$, $\{Zr(NO_3)_2\}^{2+}$ $\{Zr(NO_3)_3\}^+$, $Zr(NO_3)_4$	抽 出
10^{-10}	>1	Zr^{4+} , $\{Zr(OH)\}^{3+}$	
	0.1~1	Zr^{4+} , $\{Zr(OH)\}^{3+}$ $\{Zr(OH)_2\}^{2+}$, $\{Zr(OH)_3\}^+$	
		$Zr(OH)_4$	
	10^{-4} < 10^{-4}	重合体 コロイド	

4. ジルコニウムの分配係数

4.1 硝酸濃度およびウラン濃度の影響

Purex 法におけるジルコニウムの抽出平衡に関しては種々の提案があるが、有機相に抽出されたジルコニウムの化学形態は $Zr(NO_3)_4 \cdot 2TBP$ であると考えられている。⁷⁾ Adamskii⁸⁾ は、ウランが共存する場合に、次の抽出平衡が成り立っていると述べている。



(1)式の抽出平衡が成り立っている場合には、各成分の平衡定数は(2)~(5)式で表わされる。

$$\tilde{K}_{1H} = \frac{y_{1H}}{x_H \cdot x_{NO_3} \cdot T_f} \quad \dots(2)$$

$$\tilde{K}_{2H} = \frac{y_{2H}}{x_H^2 \cdot x_{NO_3}^2 \cdot T_f} \quad \dots(3)$$

$$\tilde{K}_U = \frac{y_U}{x_U \cdot x_{NO_3}^2 \cdot T_f^2} \quad \dots(4)$$

$$\tilde{K}_{Zr} = \frac{y_{Zr}}{x_{Zr} \cdot x_{NO_3}^4 \cdot T_f^2} \quad \dots(5)$$

\tilde{K}_{1H} : 硝酸(成分1)の見かけの平衡定数

\tilde{K}_{2H} : 硝酸(成分2)の見かけの平衡定数

\tilde{K}_U : 硝酸ウラニルの見かけの平衡定数

\tilde{K}_{Zr} : 硝酸ジルコニウムの見かけの平衡定数

x_H : 水相中の H^+ 濃度 (mole/l)

x_{NO_3} : 水相中の NO_3^- 濃度 (mole/l)

x_U : 水相中の UO_2^{2+} 濃度 (mole/l)

x_{Zr} : 水相中の Zr^{4+} 濃度 (mole/l)

y_{1H} : 有機相中の $HNO_3 \cdot TBP$ 濃度 (mole/l)

$$\begin{aligned}
 y_{2H} &: \text{有機相中の } (\text{HNO}_3)_2 \cdot \text{TBP 濃度 (mole/l)} \\
 y_U &: \text{有機相中のウラン濃度 (mole/l)} \\
 y_{Zr} &: \text{有機相中のジルコニウム濃度 (mole/l)} \\
 T_f &: \text{遊離 TBP 濃度 (mole/l)}
 \end{aligned}$$

Purex法の抽出工程では、ジルコニウムは微量成分であるので、遊離TBP濃度および水相中の NO_3^- 濃度は主成分である硝酸とウランで決まると考えてよい。したがって、遊離TBP濃度および水相の NO_3^- 濃度は(6)および(7)式で表わされる。(6)式の y_{2H} の係数は平衡式からは $\frac{1}{2}$ と考えられるが、Adamskiiらの報告に従って1とした。

$$T_f = T_0 - y_{1H} - y_{2H} - 2y_U \quad \dots\dots(6)$$

$$x_{\text{NO}_3} = x_H + 2x_U \quad \dots\dots(7)$$

$$T_0 : \text{抽出溶媒中のTBP濃度 (mole/l)}$$

(2), (3)および(7)式を(6)式に代入して整理すると、遊離TBPは(8)式で表わされる。

$$T_f = \frac{T_0 - 2y_U}{1 + \tilde{K}_{1H} \cdot x_H \cdot (x_H + 2x_U) + \tilde{K}_{2H} \cdot x_H^2 \cdot (x_H + 2x_U)^2} \quad \dots\dots(8)$$

Adamskiiらは、 \tilde{K}_{1H} および \tilde{K}_{2H} としてそれぞれ0.189および 4.05×10^{-4} の値を実験により得ている。

また、(5)および(7)式よりジルコニウムの分配係数 D_{Zr} は(9)式で表わされる。

$$D_{Zr} = \frac{y_{Zr}}{x_{Zr}} = \tilde{K}_{Zr} \cdot (x_H + 2x_U)^4 \cdot T_f^2 \quad \dots\dots(9)$$

ジルコニウムを微量成分と考えると、ジルコニウム濃度に関係なく、主成分である硝酸とウランの分配値が求められるのでジルコニウムの見かけの平衡定数 \tilde{K}_{Zr} が与えられれば、(8)および(9)式によりジルコニウムの分配係数が計算できる。

Rozenら⁹⁾は、ウランが共存する場合について、微量のジルコニウムの抽出平衡を検討し、図3で示されるジルコニウムの見かけの平衡定数とイオン強度の関係から、(10)式の近似式を導いた。

$$\ln \tilde{K}_{Zr} = 11.516 - 28.424 \cdot I^{1/2} + 17.655 \cdot I - 4.483 \cdot I^{3/2} + 0.433 \cdot I^2 \quad \dots\dots(10)$$

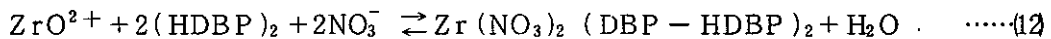
$$I = x_H + 3x_U \quad \dots\dots(11)$$

硝酸およびウランの分配係数をRichardsonら¹⁰⁾の近似式によって計算し、その分配値を用いて、(8)~(11)式により計算したジルコニウムの分配係数と文献値^{4), 7), 8), 11), 12)}の対応を図4および図5に示す。計算値はほぼ満足出来る範囲で文献値と一致した。

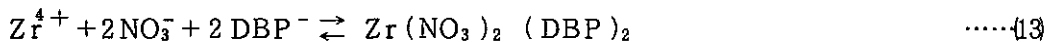
4.2 HDBP濃度の影響

ジブチルりん酸 (HDBP) は、Purex 法の抽出剤である TBP の放射線分解または加水分解によって、Purex 法の共除染工程で約 $10^{-6} \sim 10^{-4}$ mole/l ($0.2 \sim 20$ mg/l) 程度生成し¹³⁾、しかも、生成した HDBP はジルコニウムの除染係数を低下させることが、よく知られている。

Hardy¹⁴⁾ は、HDBP-トルエン溶媒による硝酸溶液からの硝酸ジルコニウムの抽出を検討しているが、そのなかで HDBP 濃度にくらべてジルコニウム濃度が低い場合には、次の抽出平衡式が成り立つと報告している。



しかしながら、同じ報告でジルコニウムの分配係数が HDBP 濃度の二乗に比例するという、図 6 の結果を得ていることおよび、HDBP のトルエン溶液と硝酸ジルコニウムの硝酸溶液を HDBP/Zr = 1 (モル比) で混合した後、トルエン相を新しいジルコニウムの硝酸溶液で洗滌した時に、トルエン相に抽出されたジルコニウムと HDBP の化合物中では、Zr : NO₃ : DBP = 1 : 1.98 : 2.02 であることを赤外吸収スペクトル分析によって確認していることから考えると、ジルコニウムと HDBP の平衡式は、(13) 式と考える方がよいと思われる。



Naylor¹⁵⁾ は、HDBP はウラン、プルトニウムおよびジルコニウムと HDBP/金属イオン = 1 または 2 の化合物を形成するが、軽水炉燃料の Purex 法による抽出工程のように HDBP 濃度が低い場合には、前者の生成が優勢であり、しかもジルコニウムと HDBP の化合物の安定性は他の金属と HDBP の化合物の安定性にくらべて大きく、Purex 法において、有機相へ抽出されたジルコニウムと HDBP の化合物は、有機相から水相へ逆抽出される速度が遅いと述べている。

Ochsenfeld¹⁶⁾ は、HDBP-30% TBP-炭化水素溶媒によって硝酸溶液から抽出されるジルコニウムの化合物の化学形態を Zr(OH)(NO₃)(DBP)₂ であると考えている。

Bauder⁴⁾ は、Purex 法でのジルコニウムの分配係数への HDBP の影響を HDBP 濃度と硝酸濃度を変えて検討し、図 7 の結果を得ている。図 7 の結果から、ジルコニウムの分配係数に及ぼす HDBP の影響を HDBP 濃度と硝酸濃度の関数として表わし、(9) 式を(14) 式に変えて、HDBP が存在する場合のジルコニウムの分配係数を計算した。計算結果を図 7 に、曲線で示す。計算結果と Bauder の実験結果は満足できる範囲で一致した。

$$D_{\text{Zr}} = D_{\text{Zr}}^0 \cdot g(y_{\text{HDBP}}, x_{\text{H}}) \quad \dots(14)$$

D_{Zr}^0 : $y_{\text{HDBP}} = 0$ のときのジルコニウムの分配係数

$g(y_{\text{HDBP}}, x_{\text{H}})$: HDBP の存在するときの補正係数

y_{HDBP} : 有機相の HDBP 濃度 (mg/l)

5. 抽出プロセスでのジルコニウムの分配

5.1 TBP-炭化水素溶媒系でのジルコニウムの分配

軽水炉燃料の再処理では、溶解液中のジルコニウムの濃度は硝酸濃度およびウラン濃度にくらべて低い。したがって、ジルコニウムは硝酸およびウランの分配に影響を与えないと考えて、MIXSET¹⁷⁾によりミキサ・セトラ内の硝酸およびウランの濃度プロファイルを計算できる。この計算結果と(8)~(11)式から、ミキサ・セトラ内の各段でのジルコニウムの分配係数を計算し、MIX-SETによりミキサ・セトラ内でのジルコニウムの濃度プロファイルは計算できる。

0.6g/ℓのジルコニウムを含む模擬溶解液と30% TBP-炭化水素溶媒を用いて、向流型ミキサ・セトラによる共除染工程の抽出実験についてBauder⁴⁾は報告している。模擬溶解液中のウラン濃度が112g/ℓの場合の計算結果およびBauderの実験結果を図8に示す。ミキサ・セトラ内でジルコニウムが抽出平衡状態に到達している(ジルコニウムの抽出段効率100%)と仮定して計算したジルコニウムの濃度プロファイルは、洗滌部では実験値よりも低い値を示した。

Hornerら¹⁸⁾は、30% TBP-ドデカン溶媒と35N硝酸の間のウランの物質移動速度を液滴法により測定し、有機相から水相へのウランの物質移動速度が水相から有機相へのウランの物質移動速度より非常に遅いことを見出ししている。本報告では、ジルコニウムの抽出平衡反応についてウランの抽出平衡反応と同様に、有機相から水相への物質移動速度が水相から有機相への物質移動速度よりも非常に遅いと考え、これをジルコニウムの逆抽出方向(有機相から水相への物質移動)の段効率で表現することにした。

すなわち、Murphreeの段効率の定義を(15)式で表わした。

$$\left. \begin{aligned} E_f &= \frac{y^i - y^{i-1}}{y^* - y^{i-1}} \\ y^* &= D^i \cdot x^i \end{aligned} \right\} \dots\dots(15)$$

- E_f : 逆抽出方向への段効率
 x^i : i 段での水相中の濃度 (mole/ℓ)
 y^i : i 段での有機相中の濃度 (mole/ℓ)
 y^{i-1} : i 段へ流入する有機相中の濃度 (mole/ℓ)
 D^i : 平衡状態での分配係数
 y^* : x^i と平衡状態にある仮定の有機相中の濃度 (mole/ℓ)

ジルコニウムの逆抽出方向への段効率60%と仮定して、模擬溶解液中のウラン濃度が112g

／ ℓ 、140g／ ℓ および200g／ ℓ についてのBauderの抽出実験をシミュレーションした結果を図8～10に示した。第1抽出器では、計算結果とBauderの実験結果はよく一致した。図8～10の実験結果は第2抽出器の逆抽出部でのジルコニウムの分配が第1抽出器の抽出部および洗滌部での分配と同じでないことを示している。すなわち、逆抽出部でのジルコニウムの分配は抽出モデル的に単純に表現できないため、シミュレーションは現在のところ困難である。

5.2 HDBP-TBP-炭化水素溶媒系でのジルコニウムの分配

HDBPの存在する場合には、HDBPの影響を考慮した(14)式によりジルコニウムの分配係数を求めて、MIXSETにより抽出工程でのジルコニウムの濃度分布が計算できる。

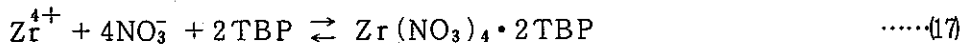
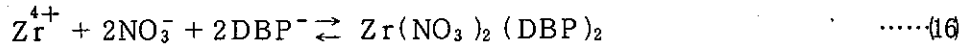
0.6g／ ℓ のジルコニウムを含む模擬溶解液と200mg／ ℓ のHDBPを含む30％TBP-炭化水素溶媒を用いて、向流型ミキサ・セトラによる共除染工程の抽出実験をBauder⁴⁾は報告している。HDBPが存在しない場合と同様に、ジルコニウムを微量成分と考えると、ミキサ・セトラ内の硝酸およびウランの濃度分布を計算した後、(14)式によりミキサ・セトラ内の各段でのジルコニウムの分配係数を求め、MIXSETによりジルコニウムの濃度分布を計算した。ジルコニウムの逆抽出方向の段効率は、HDBPの存在しない場合と同様に、60％と仮定した。計算結果を、Bauderの実験結果とともに、図11および図12に示した。計算結果は実験結果にくらべて多量のジルコニウムの蓄積を示した。

(14)式は、HDBPが存在する場合にも、ウランはジルコニウムの分配係数にHDBPが存在しない場合と同じ機構で影響を及ぼすと仮定して導いたが、Naylorら¹⁵⁾の報告しているように、ジルコニウムとHDBPの化合物の安定性が他の金属とHDBPの化合物の安定性にくらべて大きいとすると、HDBPが存在する場合には、ウランはジルコニウムの分配に対して、HDBPが存在しない場合とはちがった機構で影響を及ぼすことになり、(14)式で計算したジルコニウムの分配係数を用いた計算結果とBauderの実験結果の間に大きな差が生じたものと考えられる。また、Bauder⁴⁾およびHickokら⁷⁾は、ジルコニウム濃度が1g／ ℓ 以上になると、ジルコニウム濃度が増加するにつれて、非抽出性のジルコニウム重合体が増加するため、ジルコニウムの分配係数は減少すると報告しているが、(14)式では、ジルコニウム濃度を考慮していないために、ジルコニウム濃度が高くなった場合には、(14)式で計算されたジルコニウムの分配係数が実際のジルコニウムの分配係数と大きな差を生じ、計算結果と実験結果が一致しなかったとも考えられる。

Bauderの抽出実験では、HDBPはあらかじめ30％TBP-炭化水素溶媒に添加されて抽出部へ供給される。また、ジルコニウムは洗滌部で除染されて、大部分が水相とともに抽出部へ移動する。したがって、ジルコニウムとHDBPはウランの影響を受けずに抽出部で反応する。生成したジルコニウムとHDBPの化合物は、30％TBP-炭化水素溶媒に抽出されやすく⁴⁾、溶媒とともに洗滌部へ移動する。Naylorら¹⁵⁾の報告しているように、ジルコニウムとHDBPの化合物の安定性が他の金属とHDBPの化合物の安定性にくらべて大きいならば、抽出部で生成したジルコニ

ウムとHDBPの化合物は、洗滌部でウランによる大きな影響を受けず大きい分配係数を保ち、HDBPと反応していないジルコニウムだけがウランの影響を受けると考えてもよい。Bauderの抽出実験では、HDBPの含有量はジルコニウムの含有量にくらべて少ない。そこで、Bauderの抽出実験では、ウランの影響を余り受けず、しかも溶媒に抽出されやすいHDBPと反応したジルコニウムと、ウランの影響を受ける未反応ジルコニウムの2種類のジルコニウムが存在すると仮定してもよいと思われる。

ジルコニウムの抽出平衡としては、(16)および(17)式と考えられる。



したがって 2種類のジルコニウムの平衡定数は、(18)式および(19)式で表わされる。

$$\tilde{K}_1 = \frac{y_{1\text{Zr}}}{x_{\text{Zr}} \cdot x_{\text{NO}_3}^2 \cdot P_f^2} \quad \dots\dots(18)$$

$$\tilde{K}_2 = \frac{y_{2\text{Zr}}}{x_{\text{Zr}} \cdot x_{\text{NO}_3}^4 \cdot T_f^2} \quad \dots\dots(19)$$

- \tilde{K}_1 : 平衡反応(16)の見かけの平衡定数
- \tilde{K}_2 : 平衡反応(17)の見かけの平衡定数
- $y_{1\text{Zr}}$: 有機相中の $\text{Zr}(\text{NO}_3)_2(\text{DBP})_2$ の濃度 (mole/l)
- $y_{2\text{Zr}}$: 有機相中の $\text{Zr}(\text{NO}_3)_4 \cdot 2\text{TBP}$ の影響 (mole/l)
- P_f : 未反応HDBP濃度 (mole/l)

(18)式および(19)式から、2種類のジルコニウムの分配係数は、(20)式および(21)式で表わされる。

$$D_{1\text{Zr}} = \frac{y_{1\text{Zr}}}{x_{\text{Zr}}} = \tilde{K}_1 \cdot x_{\text{NO}_3}^2 \cdot P_f^2 \quad \dots\dots(20)$$

$$D_{2\text{Zr}} = \frac{y_{2\text{Zr}}}{x_{\text{Zr}}} = \tilde{K}_2 \cdot x_{\text{NO}_3}^4 \cdot T_f^2 \quad \dots\dots(21)$$

2種類のジルコニウムがそれぞれ平衡状態にある場合には、水相中のジルコニウム濃度は x_{Zr} であり、有機相中のジルコニウム濃度は $y_{1\text{Zr}} + y_{2\text{Zr}}$ であるから、全体としてのジルコニウムの分配係数 D_{Zr} は、(22)式で表わされる。

$$D_{Zr} = \frac{y_{1Zr} + y_{2Zr}}{x_{Zr}} = D_{1Zr} + D_{2Zr} \quad \dots\dots(22)$$

したがって、(22)式に(20)式および(21)式を代入すると、HDBPが存在する場合の抽出工程でのジルコニウムの分配係数は、(23)式で表わされることになる。

$$D_{Zr} = \tilde{K}_1 \cdot x_{NO_3}^2 \cdot P_f^2 + \tilde{K}_2 \cdot x_{NO_3}^4 \cdot T_f^2 \quad \dots\dots(23)$$

(23)式において、第2項は、ジルコニウムが微量成分であるので、HDBPの存在しない場合と同様に、ウランと硝酸の分配値をあらかじめ求めることにより、計算できる。

また、第1項において、未反応HDBP濃度は、(24)式の二次式を解くことにより、計算出来る。

$$2 \cdot \tilde{K}_1 \cdot x_{Zr} \cdot x_{NO_3}^2 \cdot P_f^2 + P_f - P_0 = 0 \quad \dots\dots(24)$$

P_0 : 抽出溶媒中のHDBP濃度 (mole/l)

\tilde{K}_1 は図6に示すHardyらの実験結果¹⁴⁾から推算できる。したがって、ジルコニウムを微量成分と考えて、ウランと硝酸の分配値をあらかじめ計算し、その計算結果を用いて、(23)式と(24)式の反復計算を行なうことにより、HDBPの存在する場合のジルコニウムの分配係数を求めることができる。

ジルコニウムを微量成分と考え、ジルコニウムの分配係数の近似式として(23)式を用いて、MIXSETによりBauderの抽出実験をシミュレーションした結果を、Bauderの実験結果とともに、図13および図14に示した。ジルコニウムの逆抽出方向への段効率は、60%と仮定した。Naylorら¹⁵⁾は、ジルコニウムとHDBPはZr:HDBP = 1:1および1:2の化合物を生成するが、HDBP濃度がジルコニウム濃度にくらべて低い場合には、Zr:HDBP = 1:1の化合物の生成が優勢であると報告している。しかし、本報告では、HDBPが存在する場合のジルコニウムの分配係数の近似式(23)を、ジルコニウムとHDBPは全てZr:HDBP = 1:2の化合物を生成すると仮定して導びいているために、これが計算結果とBauderの実験結果に差を生じた原因の1つと考えられる。また、ジルコニウムとHDBPの平衡反応式(16)では、HDBPは全てH⁺とDBP⁻に解離していると仮定してジルコニウムの分配係数の近似式(23)を導いたが、Bauder⁴⁾がまとめているように、HDBPの解離定数が硝酸濃度、HDBP濃度など種々の影響を受けているならば、HDBPが全てH⁺とDBP⁻に解離していると仮定したことも、計算結果とBauderの実験結果に差を生じた原因と考えられる。

6. 東海再処理工場でのジルコニウムの分配

主工場抽出工程の確性試験は、CEA（フランス原子力庁）のFontenay-aux-Roses 原子力研究所で行なわれた。確性試験には、燃焼度 20,000 MWD / MTU，冷却日数 250日の照射燃料を溶解した後、主要成分を基準濃度に調整した供給液が使用された。

確性試験の共除染工程への供給液の組成の1例を表4に示す。

表4 共除染工程への供給液の組成（確性試験）

成分	濃度
U (g/l)	179.5
Pu (g/l)	2.0
HNO ₃ (N)	3.1
Zr (Ci/l)	44
¹⁰³ Ru (")	1.45
¹⁰⁶ Ru (")	43
Cs (")	6.5
Ce (")	215
Σγ (")	310

確性試験に使用した照射燃料は冷却日数が少ないので、放射性核分裂生成物の含有量は比較的多い。したがって、共除染工程では、TBPの放射線分解により、HDBPが生成すると考えられるが、Hardyら¹³⁾は、Purex法の共除染工程で生成するHDBPの量は約 $10^{-6} \sim 10^{-4}$ mole/l (0.2~20 mg/l)程度であると報告している。確性試験に使用された照射燃料から調製した供給液中のジルコニウムの濃度は、ORIGENにより計算した結果、 4.4×10^{-3} mole/l (0.4g/l)であり、共除染工程で生成すると考えられるHDBP濃度にくらべて大きいので、ジルコニウムの分配へのHDBPの影響は無視してもよいと考えられる。

ジルコニウムの分配へのHDBPの影響を無視し、ウランおよび硝酸を主成分と考えて共除染工程および分配工程の抽出工程の確性試験をシミュレーションした結果を図15および16に、それぞれの確性試験結果^{19), 20)}とともに示した。ジルコニウムの逆抽出方向への段効率、この場合にも、60%と仮定して計算した。確性試験結果では、洗滌部でのジルコニウムの有効洗滌段数は4~5段であり、洗滌部の有機相出口に近い段では、ジルコニウムの洗滌が有効に行なわれていないことを示している。Duncanら²¹⁾は、照射燃料の溶解液中には、約1%の易抽出性ジルコ

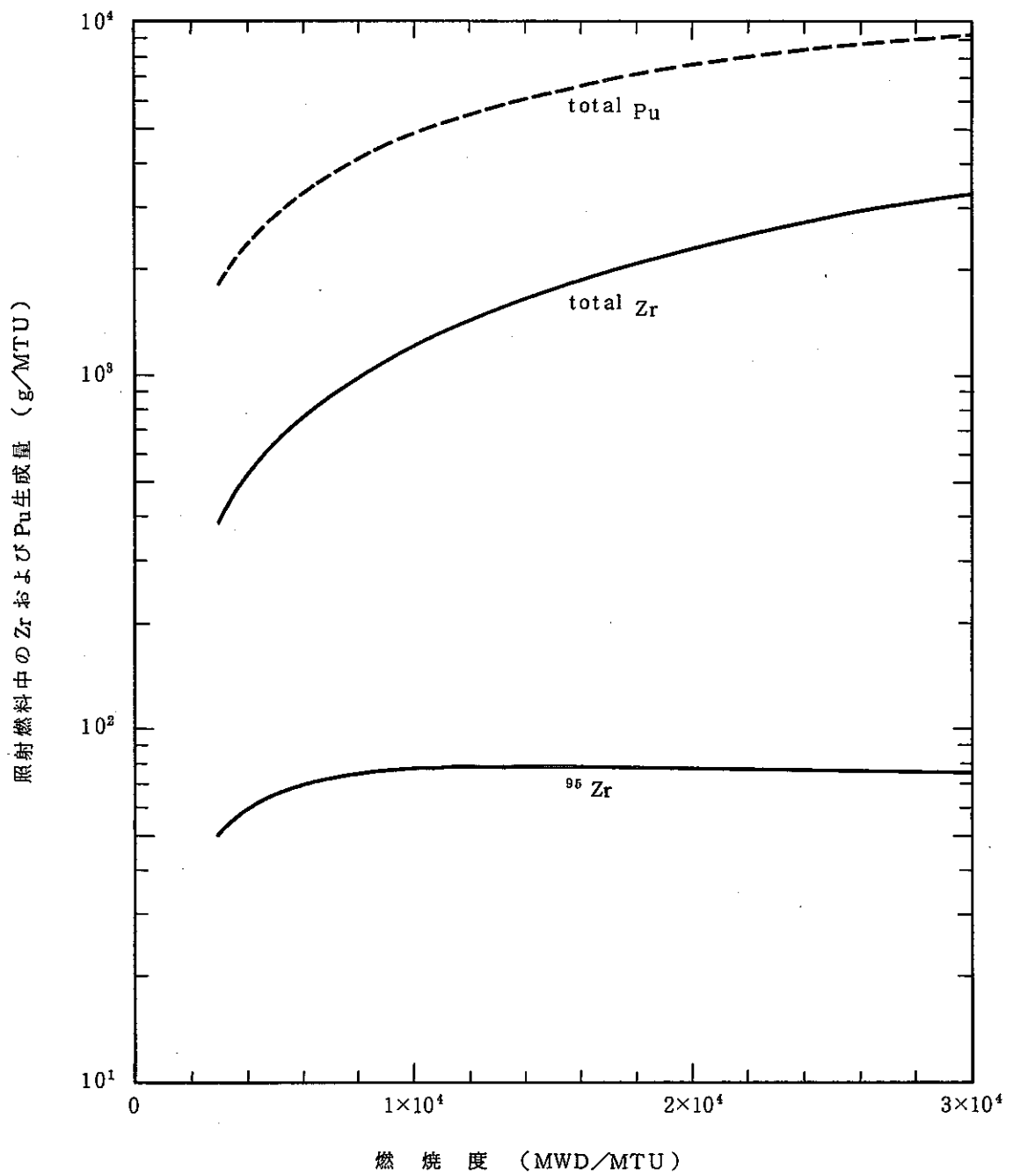
ニウム（分配係数 5 以上）が存在すると報告しているが、本報告のシミュレーションでは、このような易抽出性ジルコニウムの存在を考慮していないために、洗滌部の有機相出口に近い段では、シミュレーション結果と試験結果に差が生じたものと考えられる。シミュレーションにおいては、TBP の分解により生成する HDBP の影響を無視した。大部分のジルコニウムが洗滌された洗滌部の有機相出口に近い段では、HDBP の影響が出現したために、シミュレーション結果と試験結果に差を生じたとも考えられる。

ジルコニウムを微量成分と考え、ジルコニウムの有機相から水相への物質移動速度をジルコニウムの逆抽出方向への段効率として表現することによって、Purex 法の抽出工程でのジルコニウムの濃度プロファイルをほぼ満足できる精度でシミュレーションできることがわかったので、基準燃料（ ^{235}U 初期濃縮度 4%，平均燃焼度 28,000 MWD / MTU）を主工場の標準抽出条件で再処理する場合の抽出工程でのジルコニウムの分配を計算によって求めた。ジルコニウムの逆抽出方向への段効率は、60% と仮定した。図 15 に示した共除染工程の逆抽出部の確性試験結果から、逆抽出部の水相の出口段でのジルコニウムの分配係数は、1 と仮定した。また、第 4 抽出器（分配工程）のプルトニウム逆抽出部の酸濃度は、逆抽出部と同じように低いので、第 4 抽出器でのジルコニウムの分配を計算することは実際的ではないと考え、確性試験結果から第 4 抽出器においては、ジルコニウムは水相プロダクトと有機相プロダクトへ 1 : 1 で分配されると仮定した。主工場の抽出工程でのジルコニウムの分配のシミュレーション結果を、図 17～20 に示した。

これらのシミュレーションにおいては、洗滌部でのジルコニウムの有効洗滌段数、HDBP などの溶媒損傷生成物などによるジルコニウムの分配への影響を無視しているので、シミュレーション結果は、洗滌部の出口に近い段の有機相中では、実際のプロセスでのジルコニウムの濃度よりも低い計算結果を示していると考えられる。したがって、計算によって得られたウランおよびプルトニウムに対するジルコニウムの全抽出工程での除染係数は、それぞれ 6.2×10^{10} および 1.6×10^{10} であるが、ウランについては第 1, 第 3 および第 6 抽出器、プルトニウムについては第 1, 第 3 および第 8 抽出器での洗滌部でのジルコニウムの有効洗滌段数を考慮すると、実際のプロセスでのウランおよびプルトニウムの最終製品に対するジルコニウムの除染係数は、どちらも $10^7 \sim 10^8$ と考えるのが妥当であろう。

7. 参 考 文 献

- 1) M.J. Bell; ORNL-4628 (1973)
- 2) P. Hofmann; KFK 2785 (1979)
- 3) S. Richards; Reactor Handbook 2nd Edition Vol.2 Fuel Reprocessing P.121 Interscience Publishers Inc. New York (1961)
- 4) U. Bauder; Thesis University Heidelberg (1977)
- 5) L.M. Zaitsev, V.M. Klyuchnikov, I.A. Apraksin; Russ. J. Inorg. Chem. Vol.17 P.1446 (1972)
- 6) T. Sato; Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie. Band 367 P.303 (1969)
- 7) R.L. Hickok, R.D. Cannon; IDO-14487 (1959)
- 8) N.M. Adamskii, S.M. Karpacheva, I.N. Melnikov, A.M. Rozen; Radiokhimiya Vol.2 No.4 P.400 (1960)
- 9) A.M. Rozen, M.Ya. Zelivenskii; Radiokhimiya Vol.18 No.4 P.572 (1976)
- 10) G.L. Richardson, J.L. Swanson; HEDL-TME-7531 (1975)
- 11) S. Richards; Reactor Handbook 2nd Edition Vol.2 Fuel Reprocessing P.154 Interscience Publishers Inc. New York (1961)
- 12) K. Alcock, F.C. Bedford, W.H. Hardwick, H.A.C. McKay; J. Inorg. Nucl. Chem. Vol.4 P.100 (1957)
- 13) C.J. Hardy, D. Scargill; J. Inorg. Nucl. Chem. Vol.11 P.128 (1959)
- 14) C.J. Hardy, D. Scargill; J. Inorg. Nucl. Chem. Vol.17 P.337 (1961)
- 15) A. Naylor, M. J. Larkin; Proceeding International Solvent Extraction Conference 1971 Vol.2 P.1356 (1971)
- 16) W. Ochsenfeld, F. Baumgärtner, U. Bauder, H.J. Bleyl, D. Ertel, G. Koch; KFK 2558 (1977)
- 17) 権田浩三, 岡紘一郎, 福田章二 ; PNCT 841-79-26 (1979)
- 18) D.E. Horner, J.C. Mailen; Trans. Am. Nucl. Soc. 1977 No.27 P.484 (1977)
- 19) G. Lefort, P. Miquel, M. De Rubercy; Energie Nucleaire Vol.10 No.3 P.169 (1968)
- 20) Experimental Data for Process Design of the Tokai Reprocessing Plant
- 21) A. Duncan, A. Naylor, B.F. Warner; Solvent Extraction Chemistry of Metals P.3 (1965)



反応器	PWR
比出力	35MW/T
²³⁵ U初期濃縮度	3.0%

図1 ジルコニウムおよびプルトニウムの生成量と燃焼度の関係

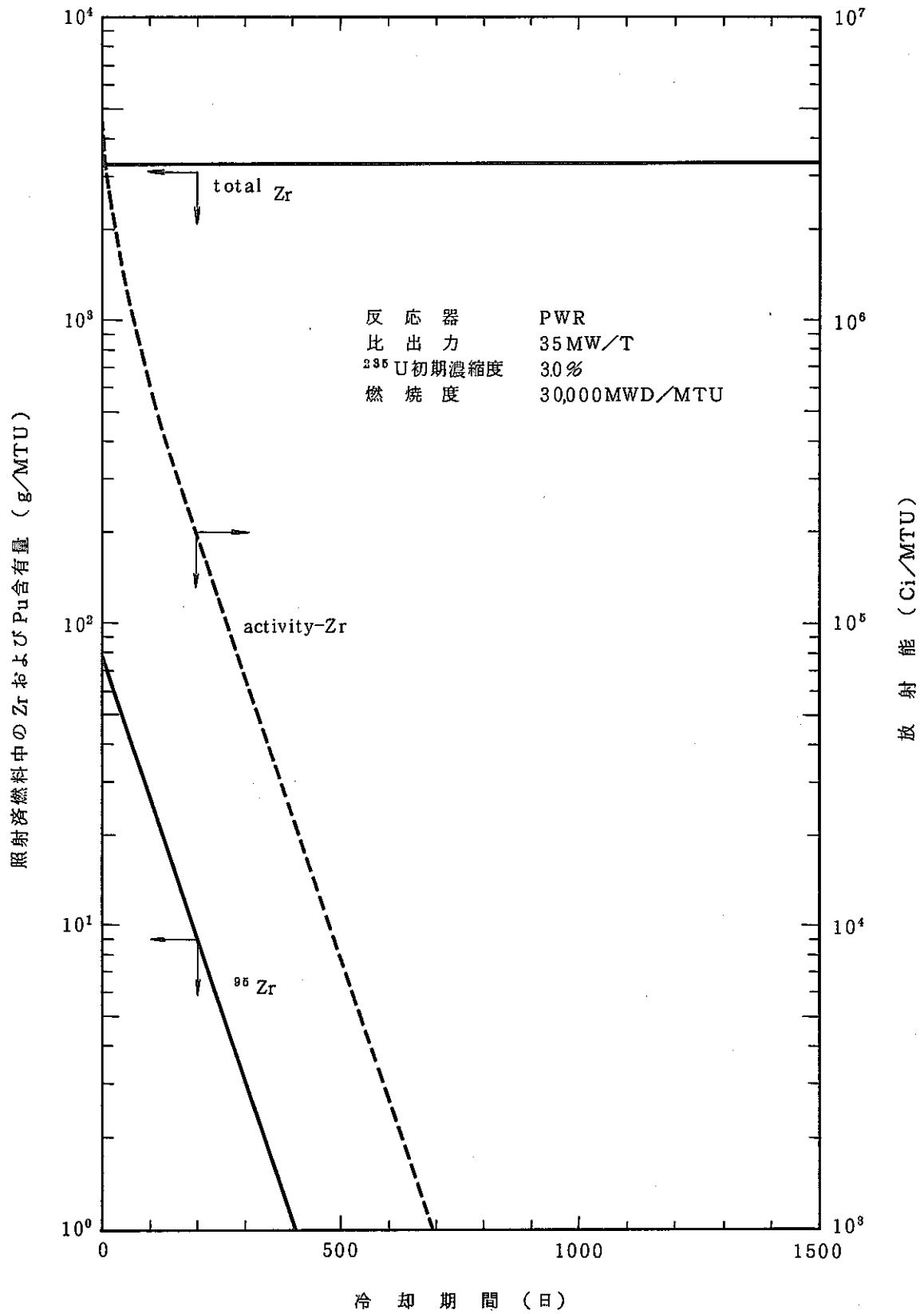


図2 ジルコニウム含有量と冷却期間の関係

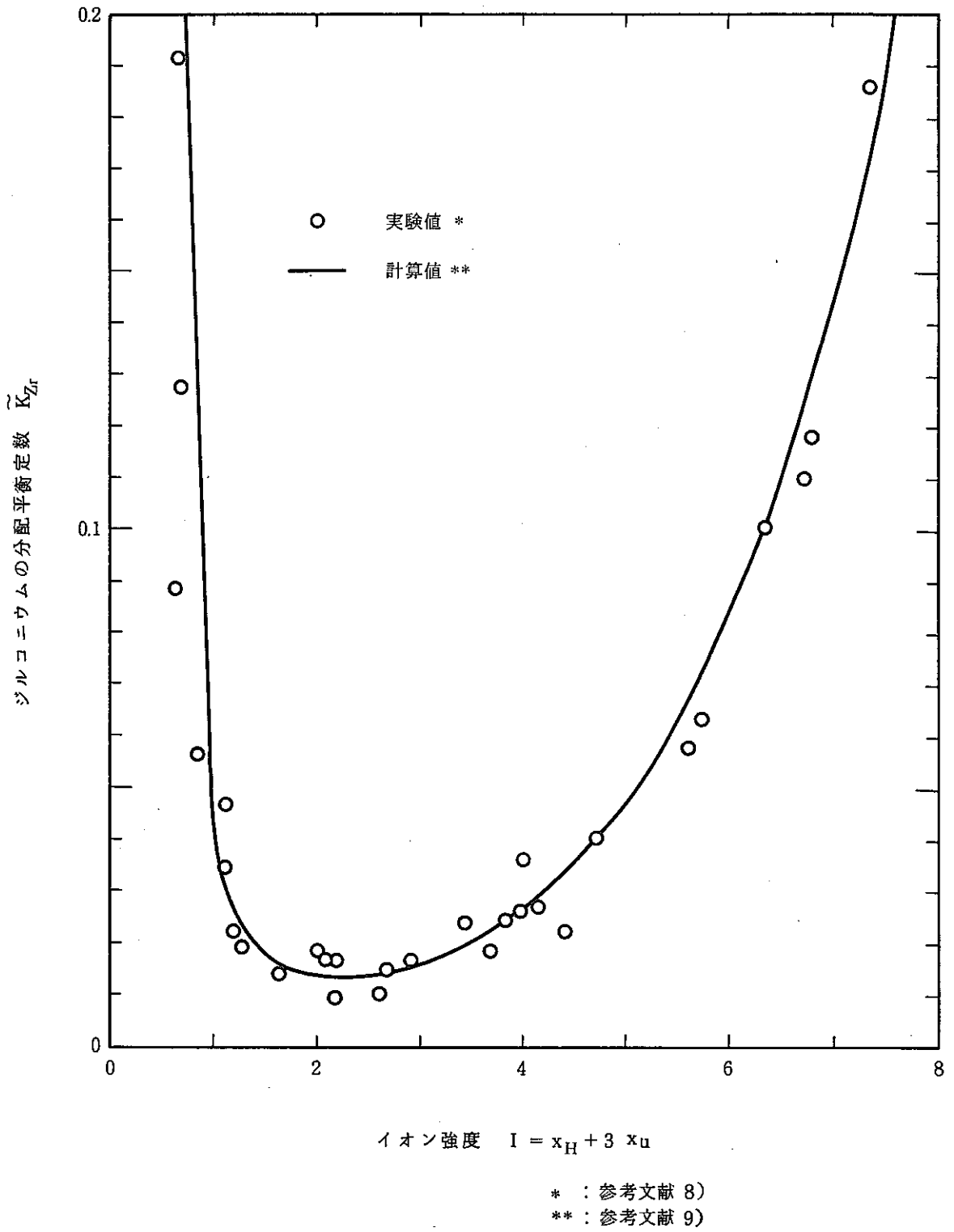


図3 ジルコニウムの分配平衡定数 \tilde{K}_{Zr} とイオン強度 I の関係

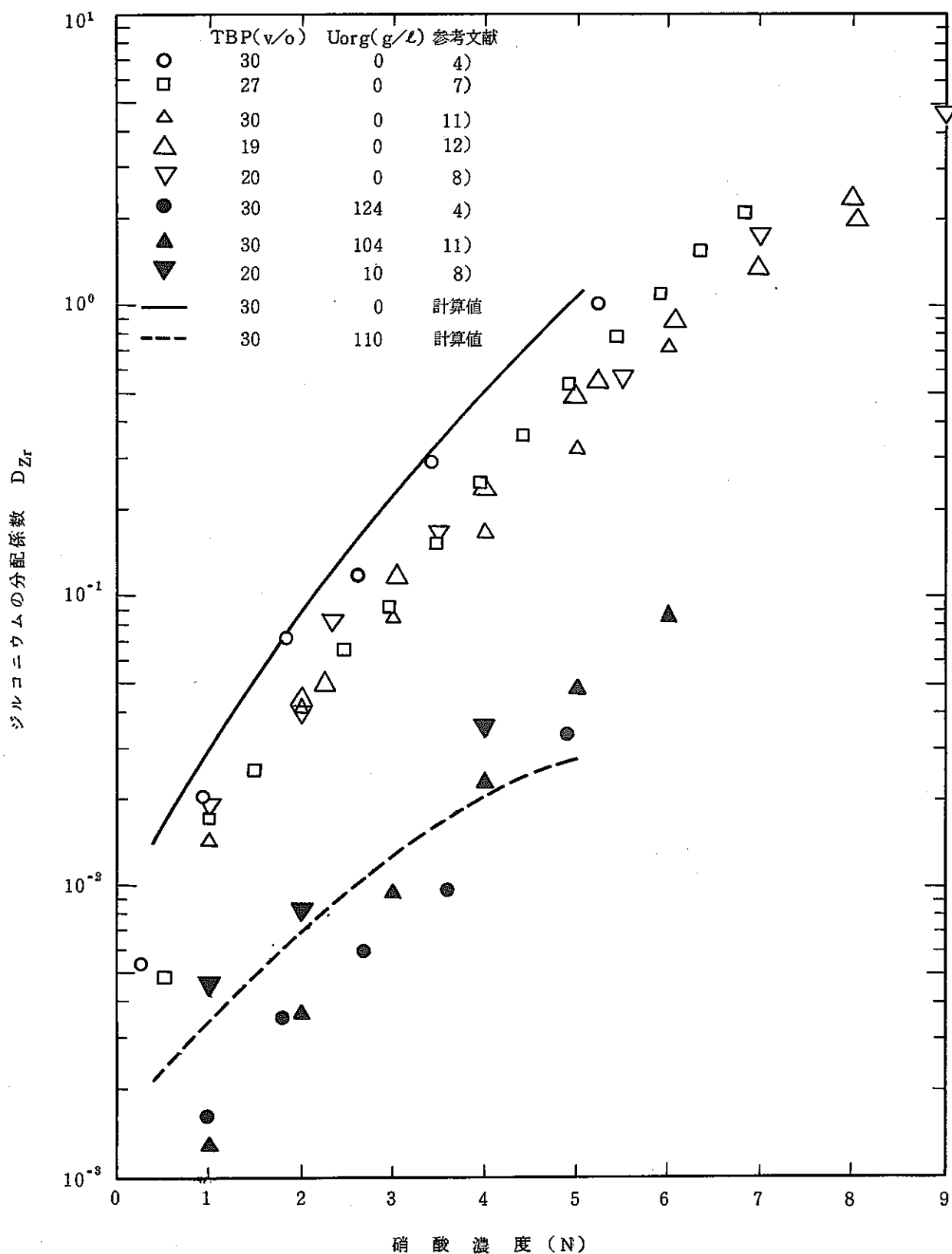


図4 ジルコニウムの分配係数 D_{Zr} と硝酸濃度の関係

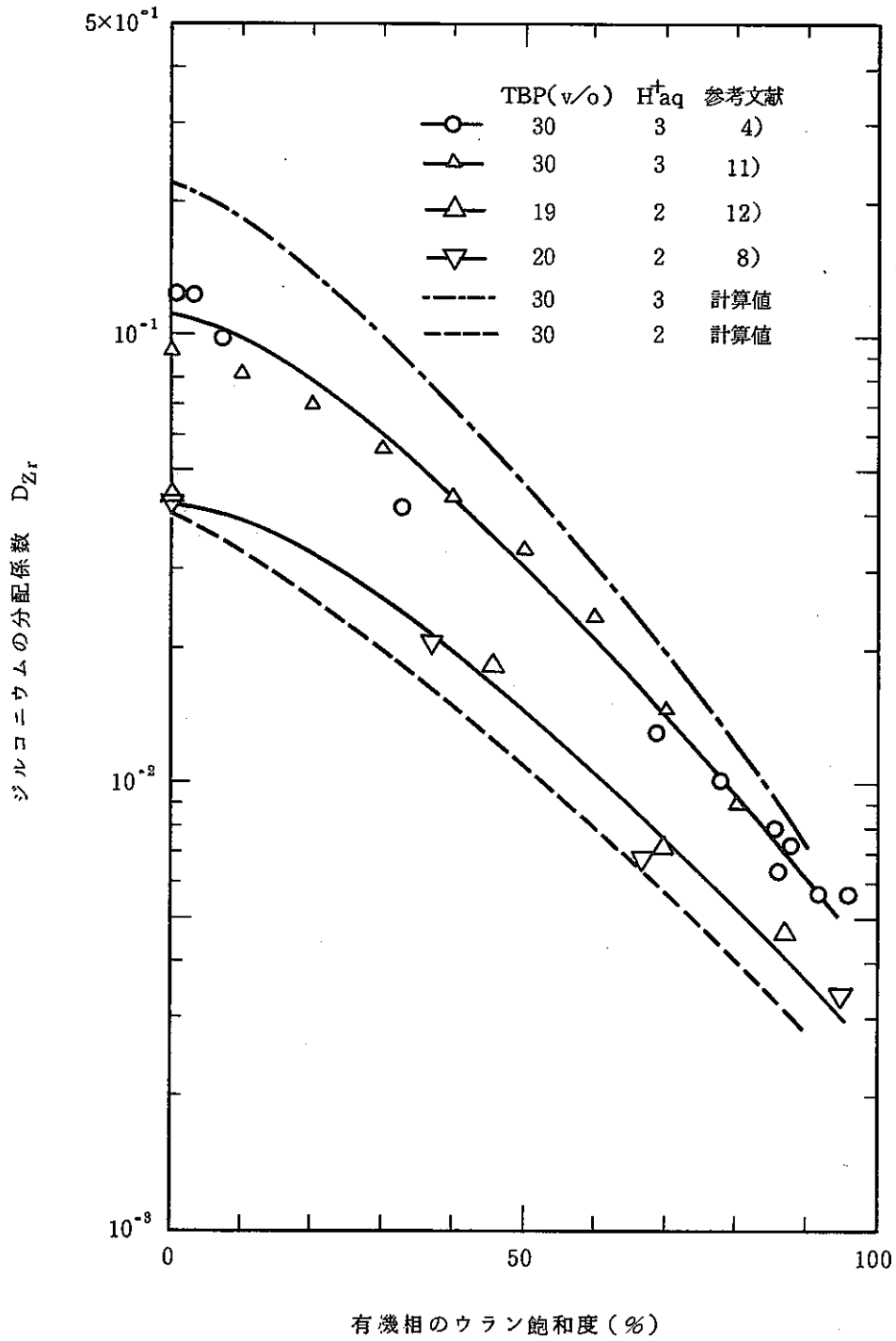


図5 ジルコニウムの分配係数 D_{Zr} と有機相のウラン飽和度の関係

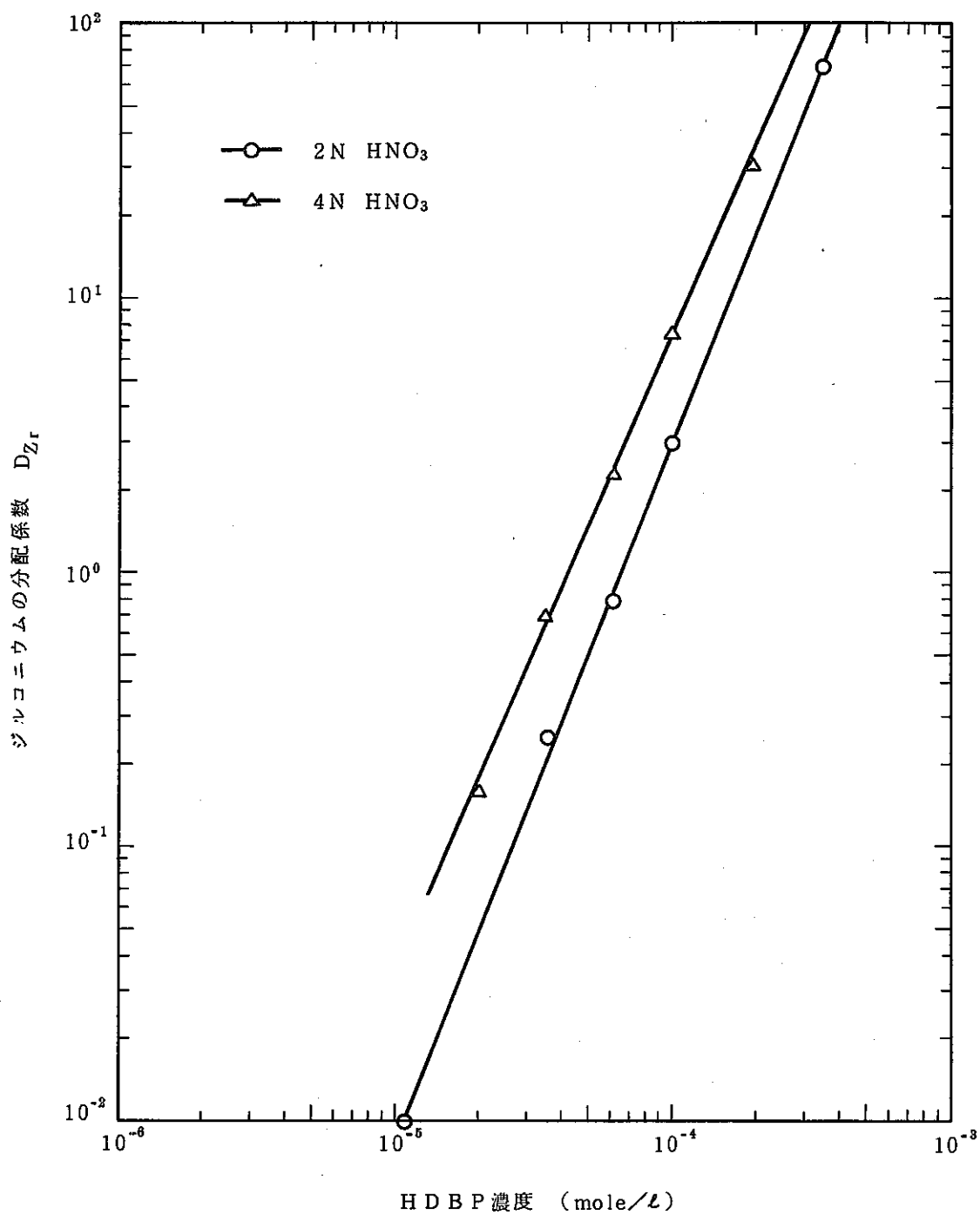
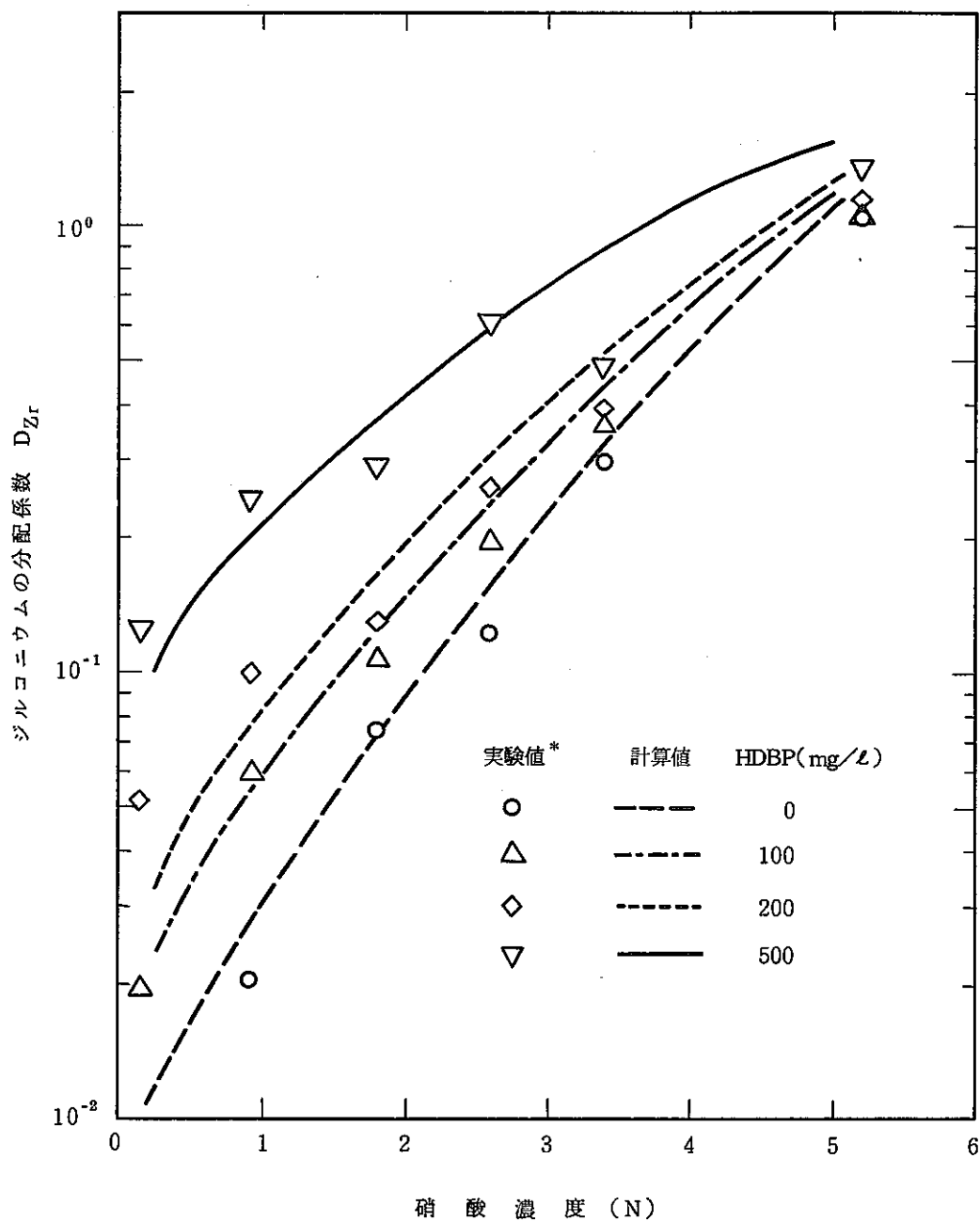
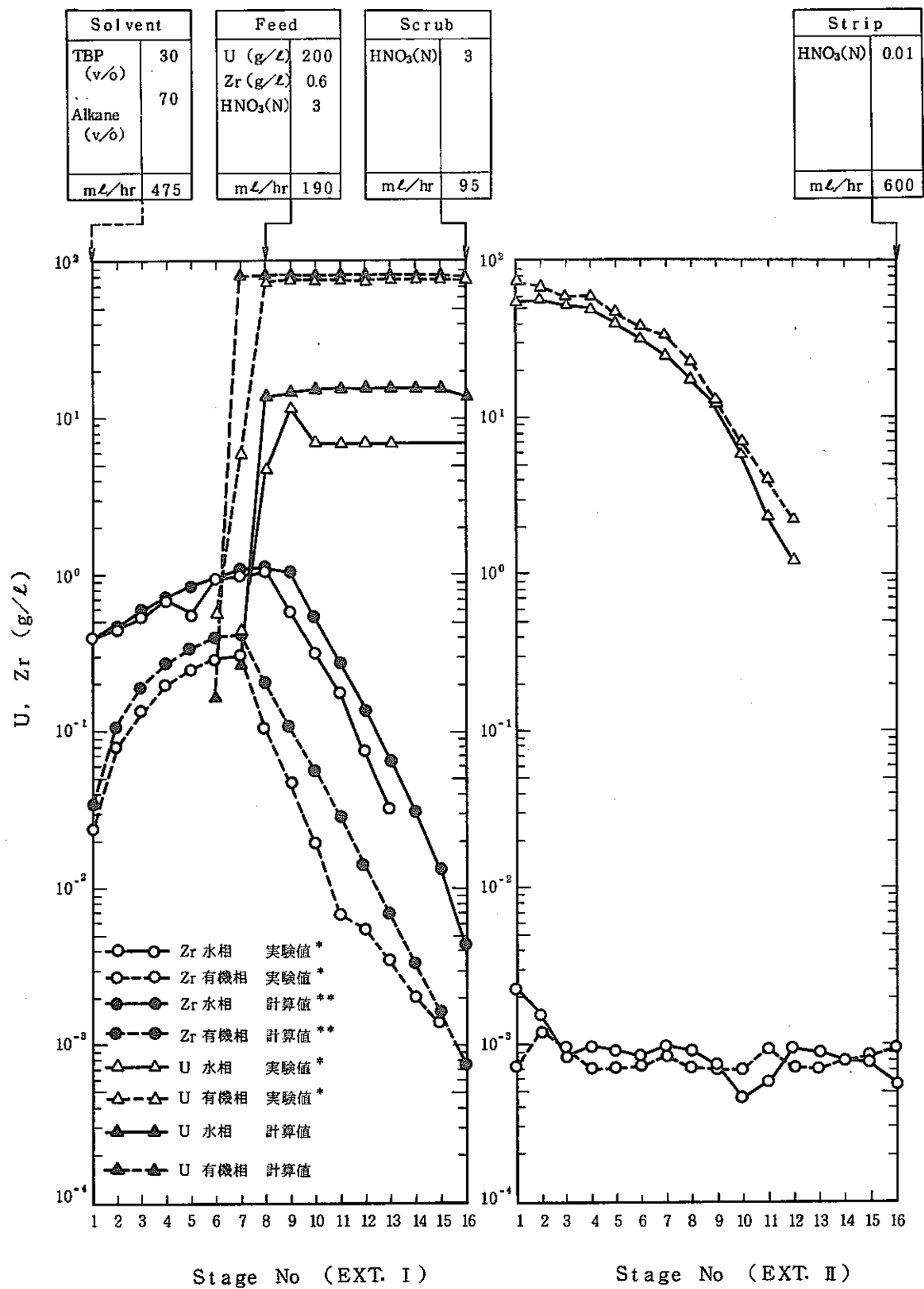


図6 ジルコニウムの分配係数 D_{Zr} と HDBP 濃度の関係



* : 参考文献 4)

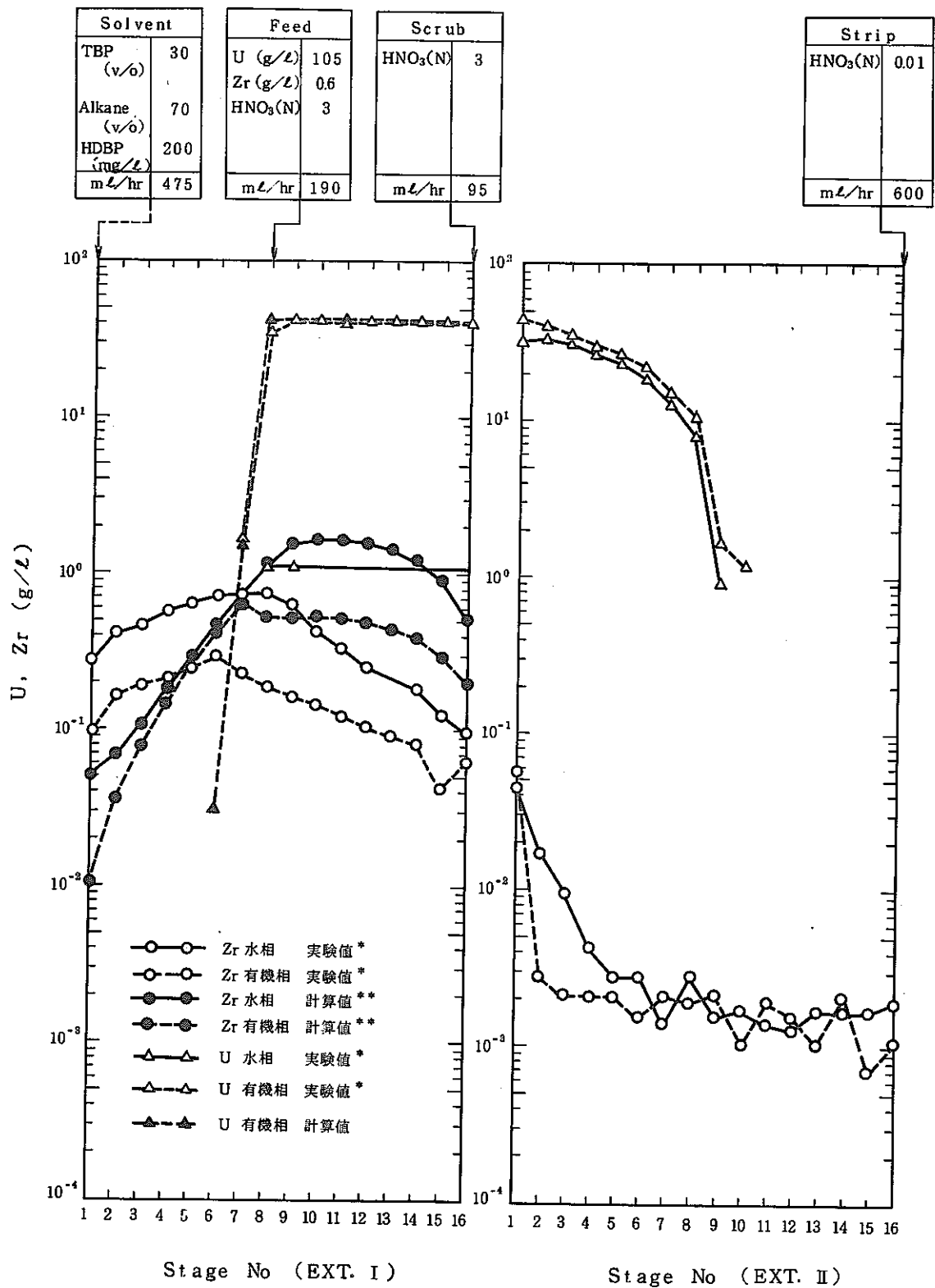
図 7 ジルコニウムの分配係数 D_{Zr} と硝酸濃度の関係 - HDBP の影響



* : 参考文献 4)

** : ジルコニウムの逆抽出方向の段効率 60%

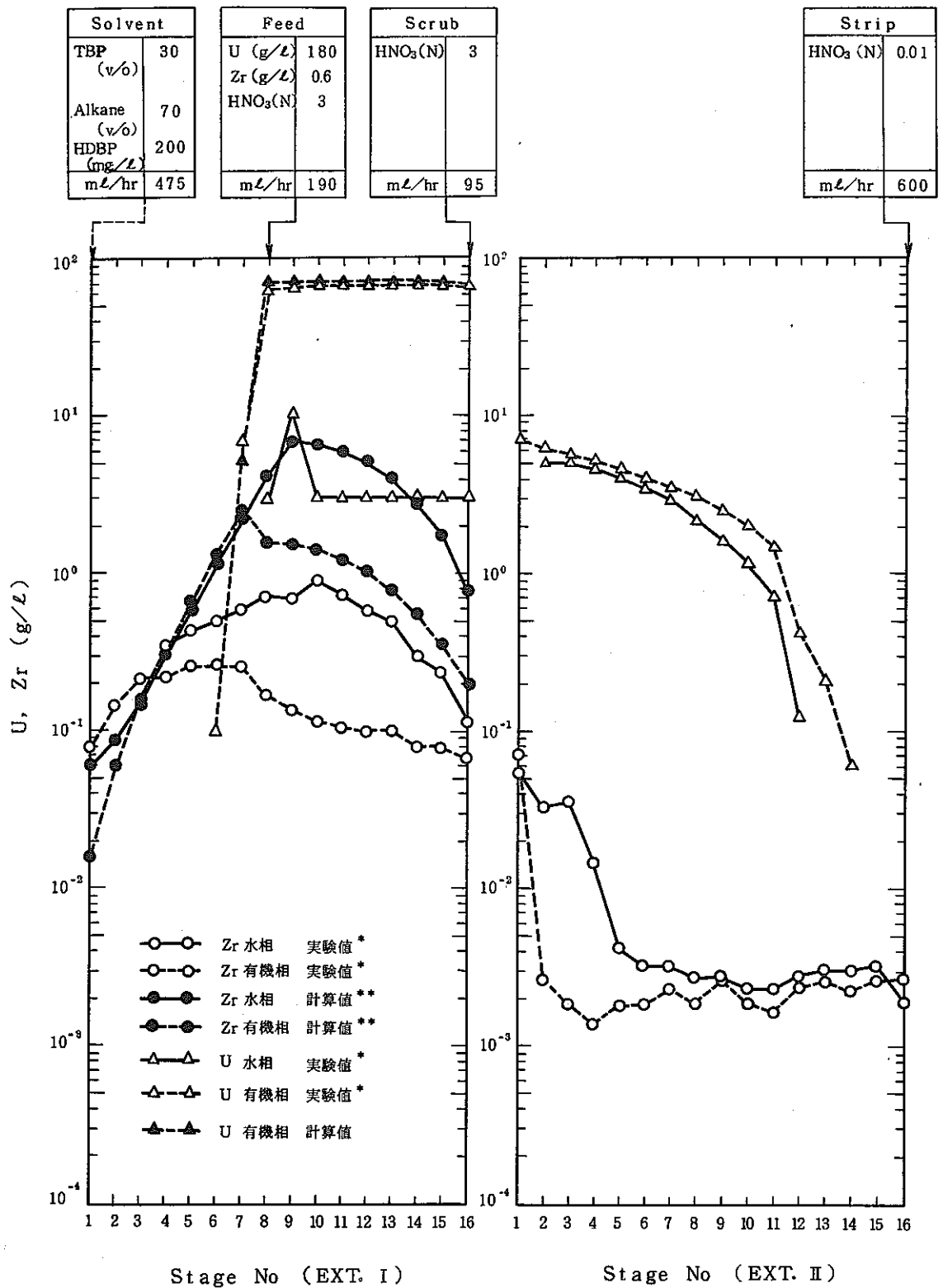
図 10 ジルコニウムの濃度プロファイル—ウラン飽和度の影響 (3)



* : 参考文献 4)

** : ジルコニウムの逆抽出方向の段効率 60%

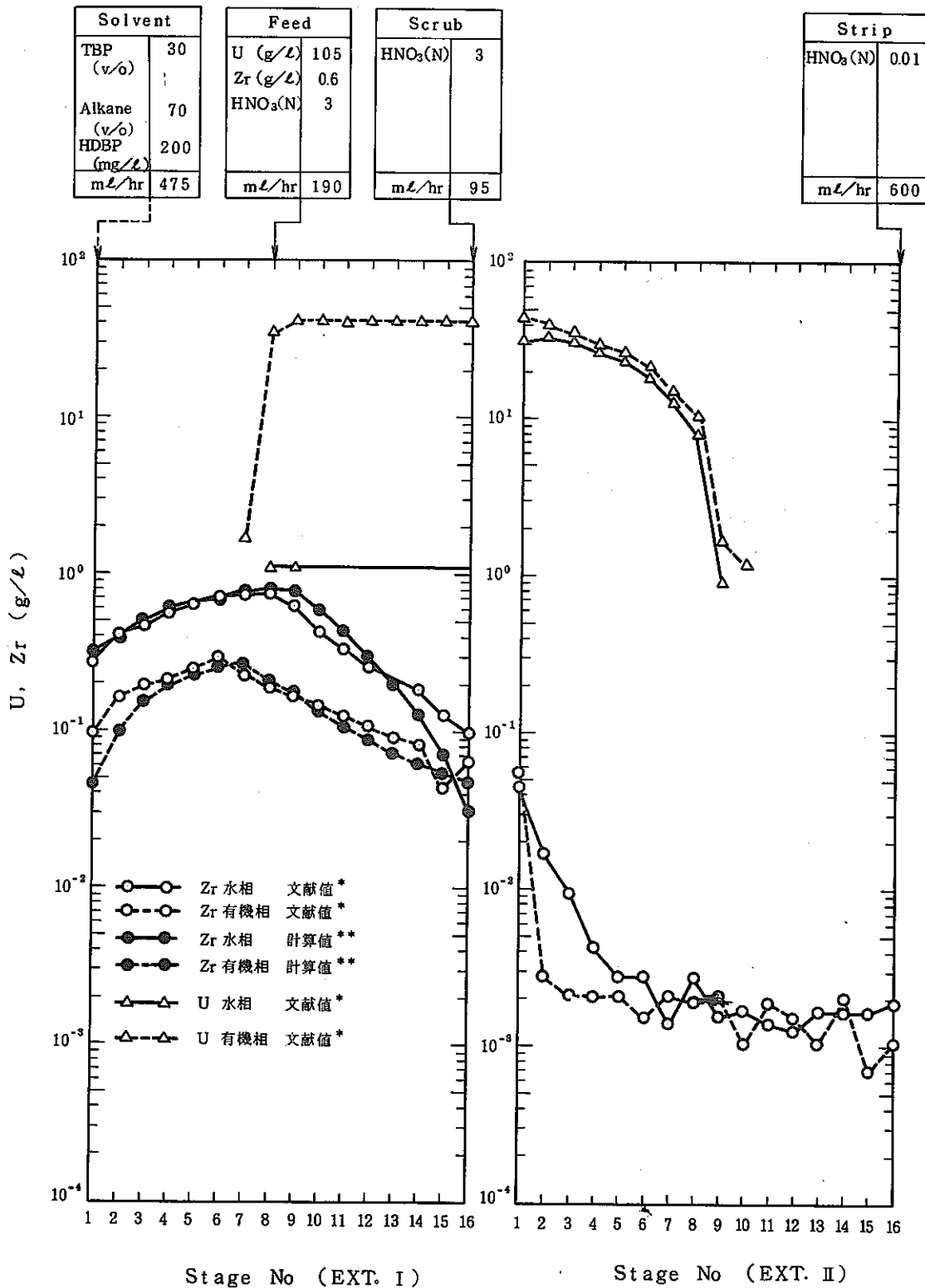
図 11 ジルコニウムの濃度プロファイル-HDBPの影響(1)



* : 参考文献 4)

** : ジルコニウムの逆抽出方向の段効率 60%

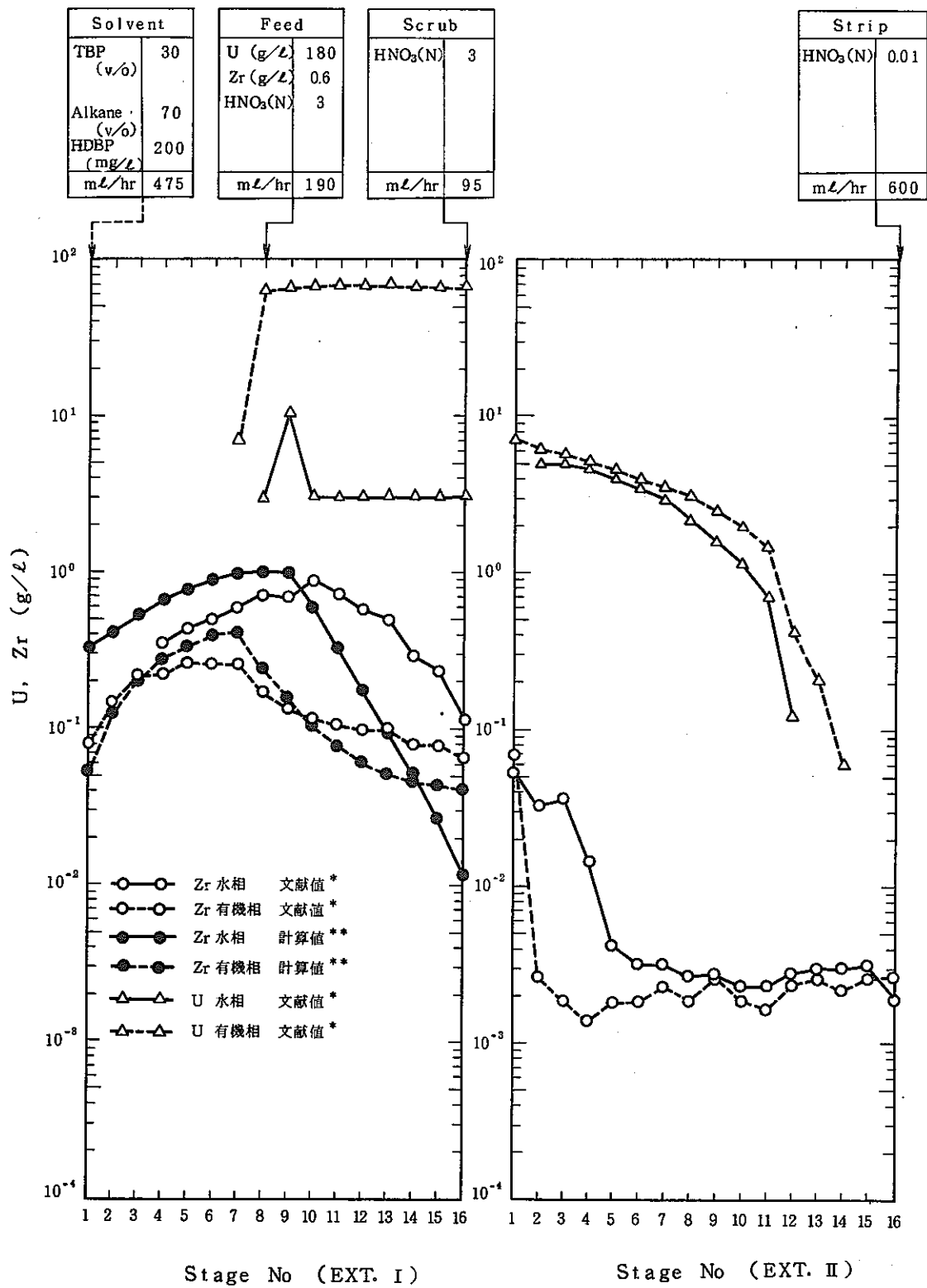
図 12 ジルコニウムの濃度プロファイル—HDBPの影響(2)



* : 参考文献 4)

** : ジルコニウムの逆抽出方向の段効率 60%

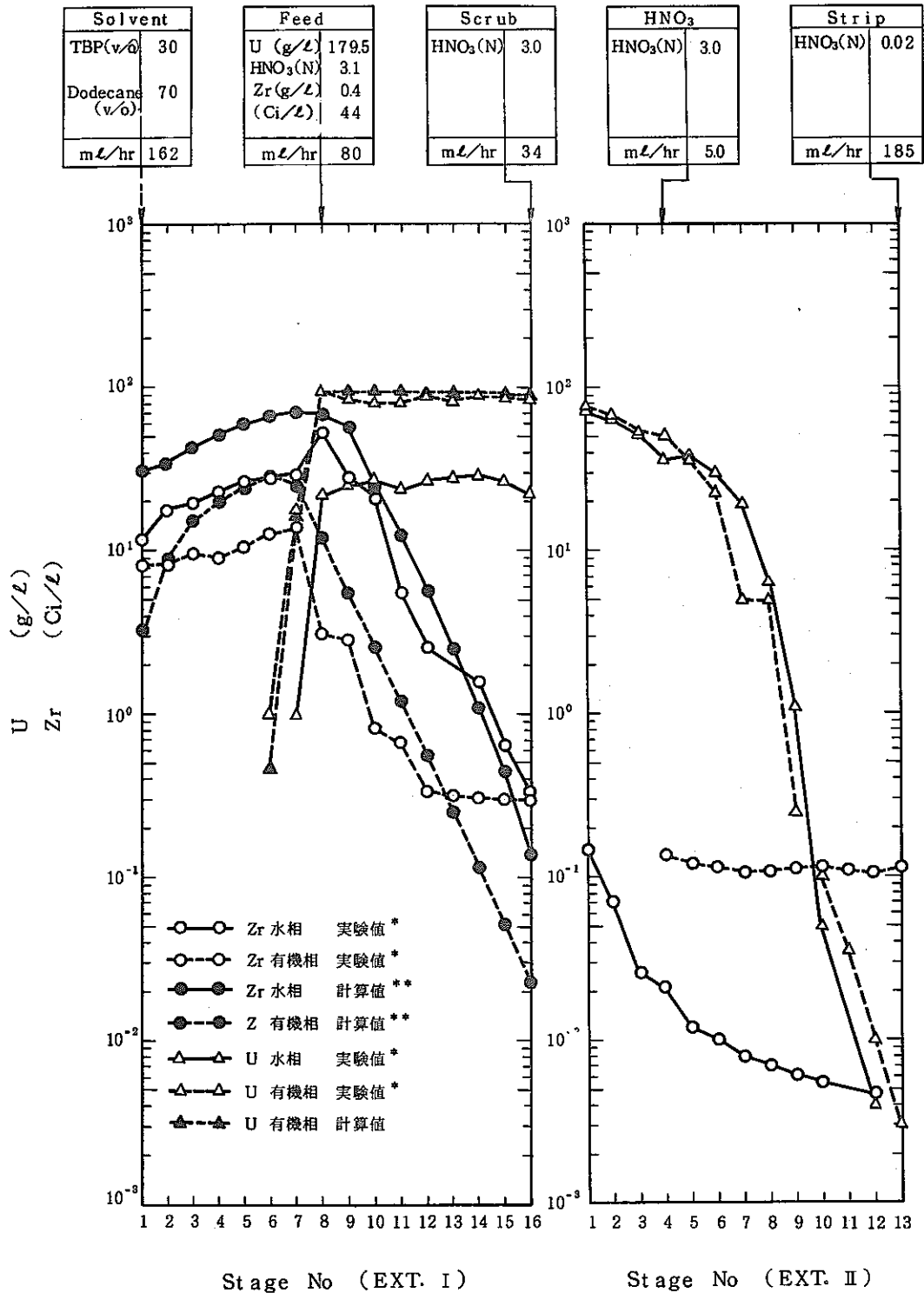
図 13 ジルコニウムの濃度プロファイル—HDBP の影響 (3)



* : 参考文献 4)

** : ジルコニウムの逆抽出方向の段効率 60%

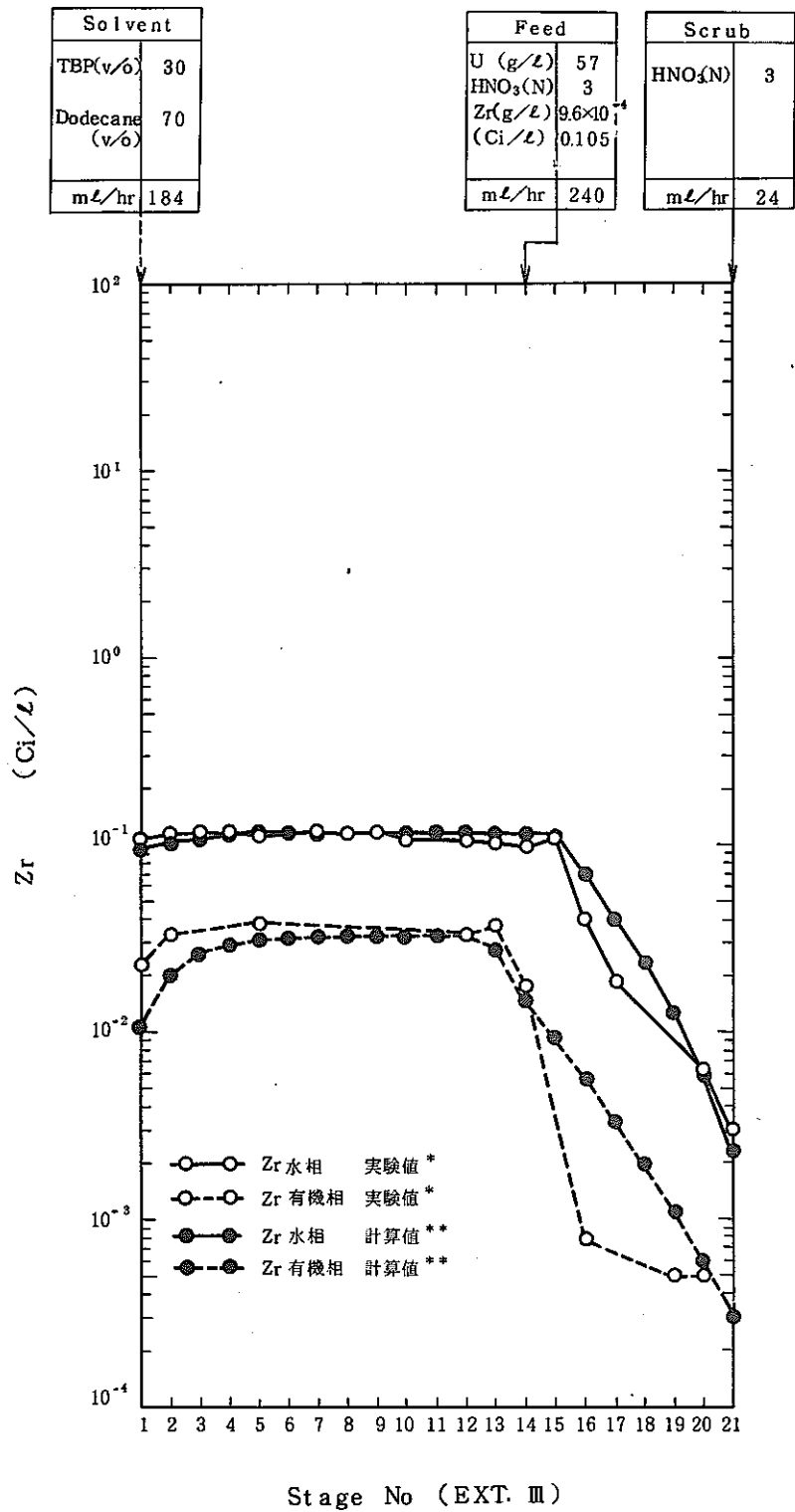
図 14 ジルコニウムの濃度プロファイル—HDBP 濃度の影響 (4)



* : 参考文献 19)

** : ジルコニウムの逆抽出方向の段効率 60%

図 15 ジルコニウムの濃度プロファイル-共除染工程 (確性試験)



* : 参考文献 19)

** : ジルコニウムの逆抽出方向の段効率 60%

図 16 ジルコニウムの濃度プロフィール—分配工程 (確性試験)

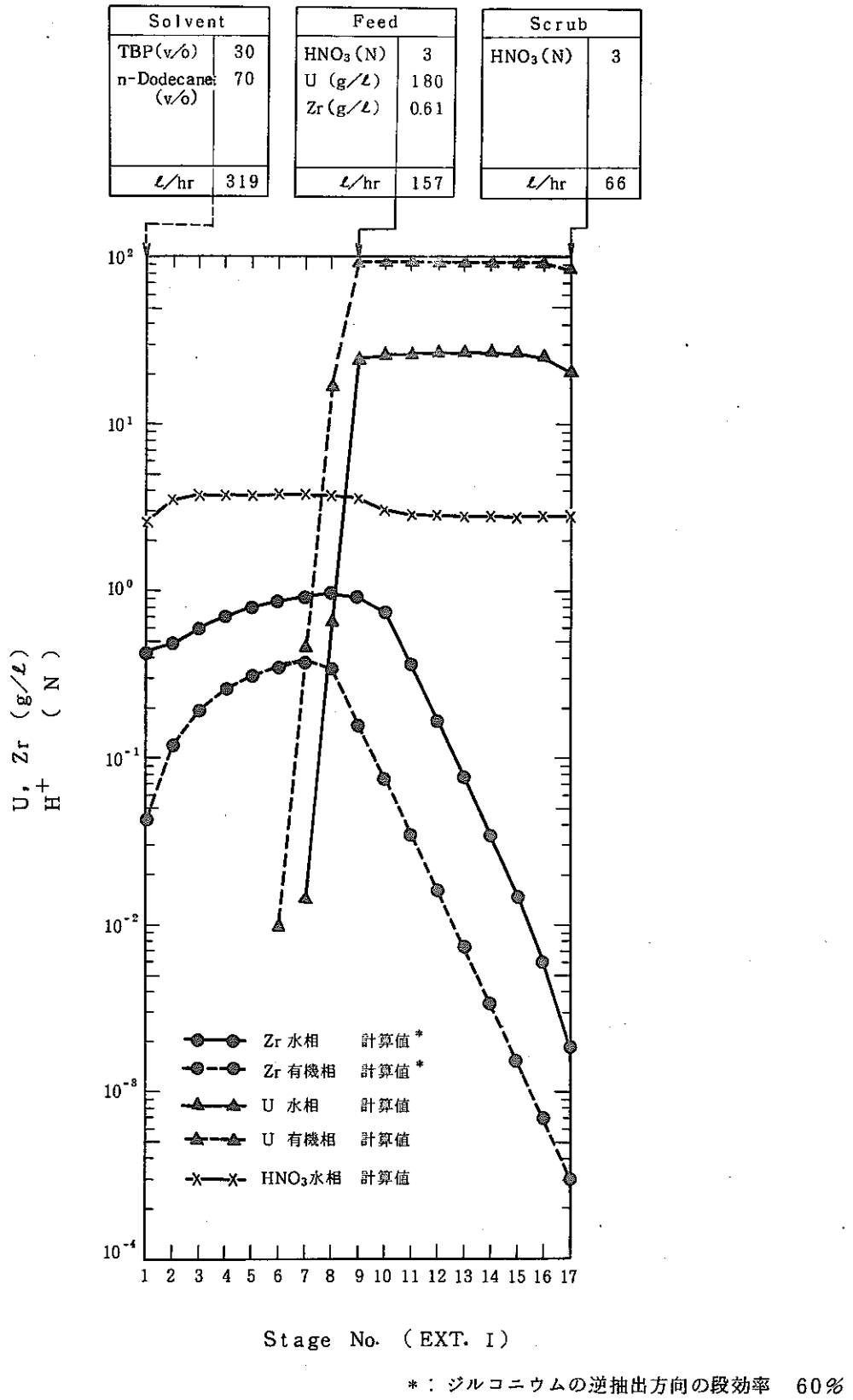
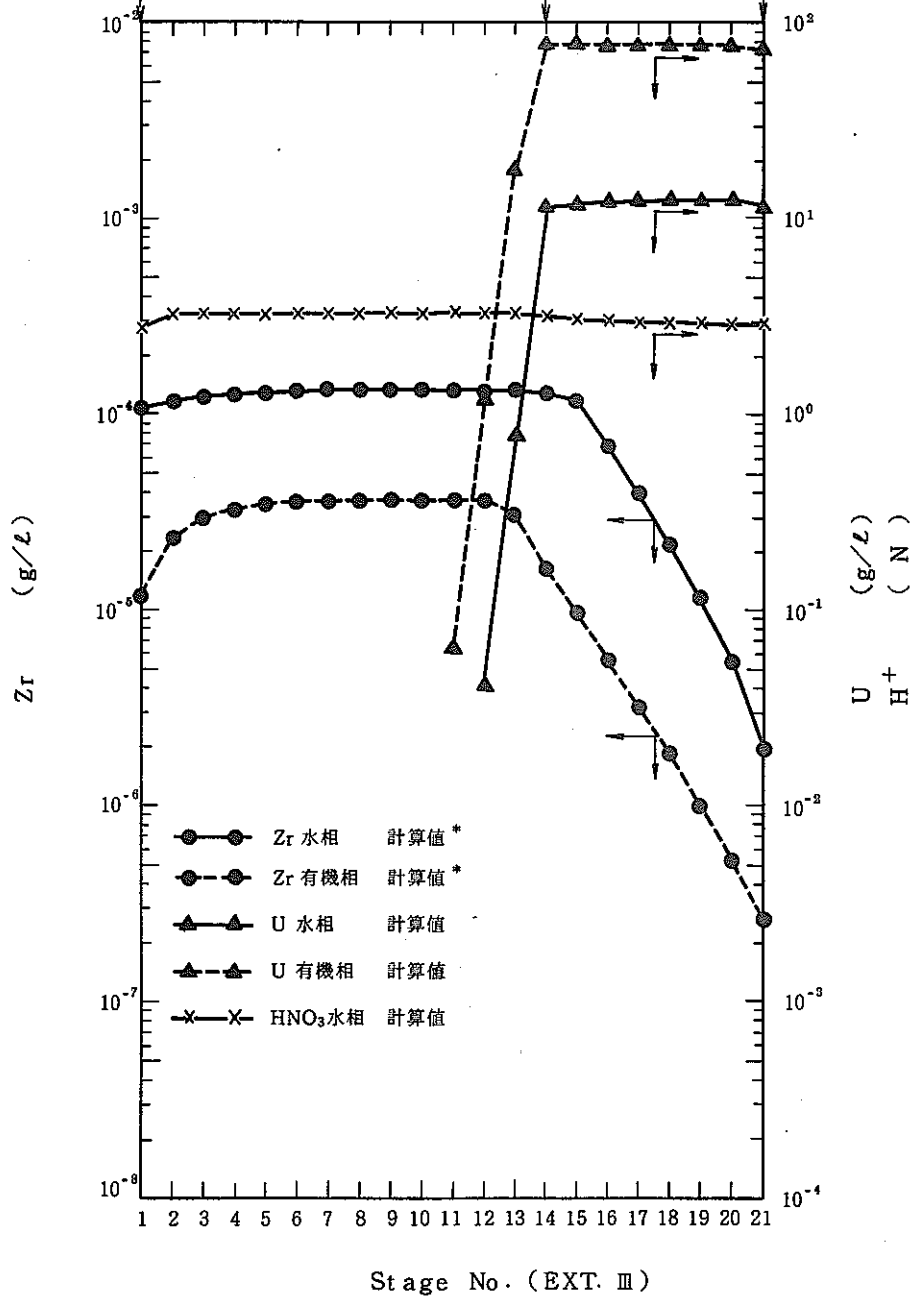


図17 標準抽出条件での濃度プロファイルー第1抽出器（共除染工程）

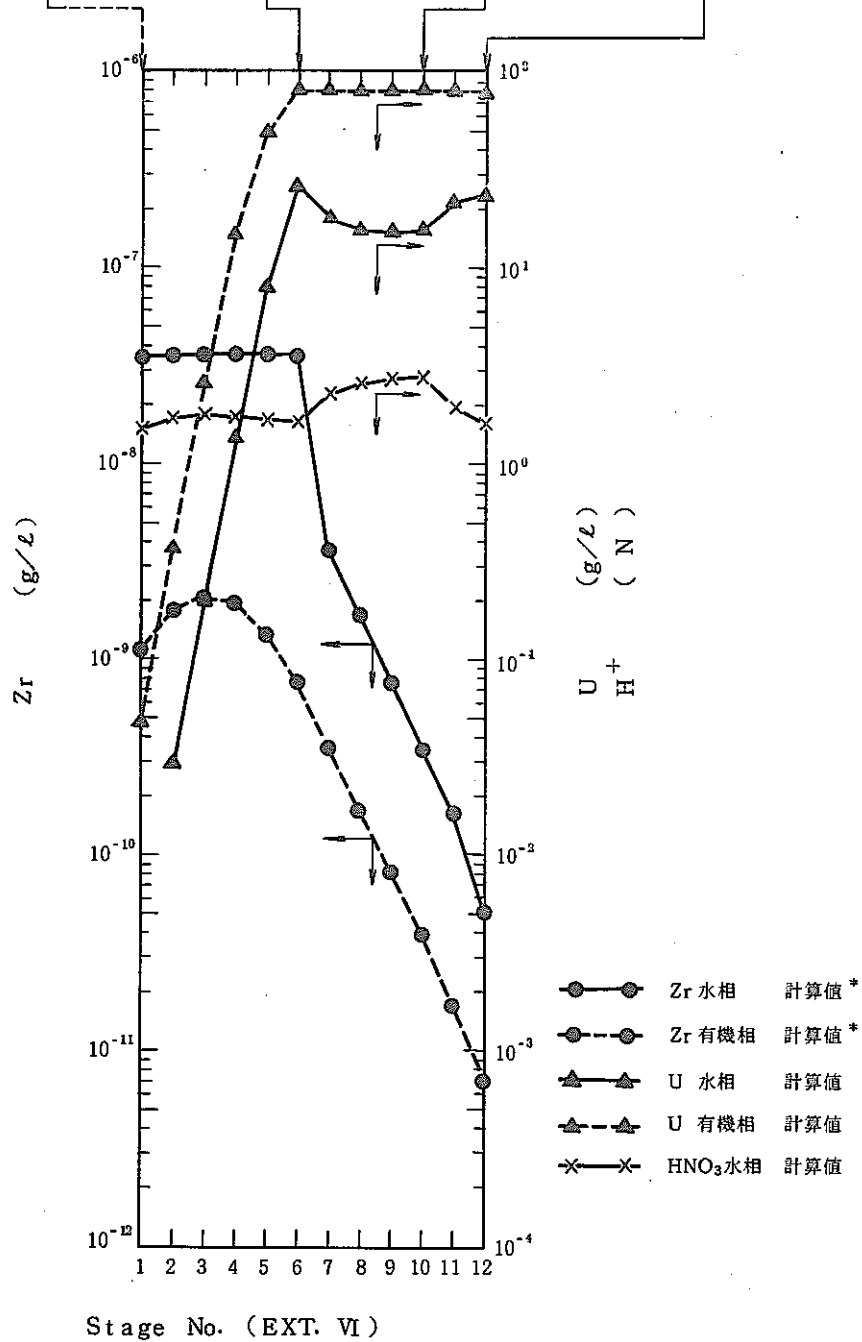
Solvent		Feed		Scrub	
TBP (v/v)	30	HNO ₃ (N)	3	HNO ₃ (N)	3
n-Dojecane (v/v)	70	U (g/L)	548		
		Zr (g/L)	1.2×10^{-4}		
L/hr	370	L/hr	515	L/hr	50



*: ジルコニウムの逆抽出方向の段効率 60%

図18 標準抽出条件での濃度プロファイルー第3抽出器(分配工程)

Solvent		Feed		HNO ₃		Scrub	
TBP(v/o)	30	HNO ₃ (N)	1.5	HNO ₃ (N)	13.5	HNO ₃ (N)	1.5
n-Dodecane(v/o)	70	U(g/L)	46			U(g/L)	1.24
		Zr(g/L)	3.99 × 10 ⁻⁸				
ℓ/hr	413	ℓ/hr	699.5	ℓ/hr	6	ℓ/hr	80.5



* : ジルコニウムの逆抽出方向の段効率 60%

図 19 標準抽出条件での濃度プロファイル-第6抽出器(ウラン精製工程)

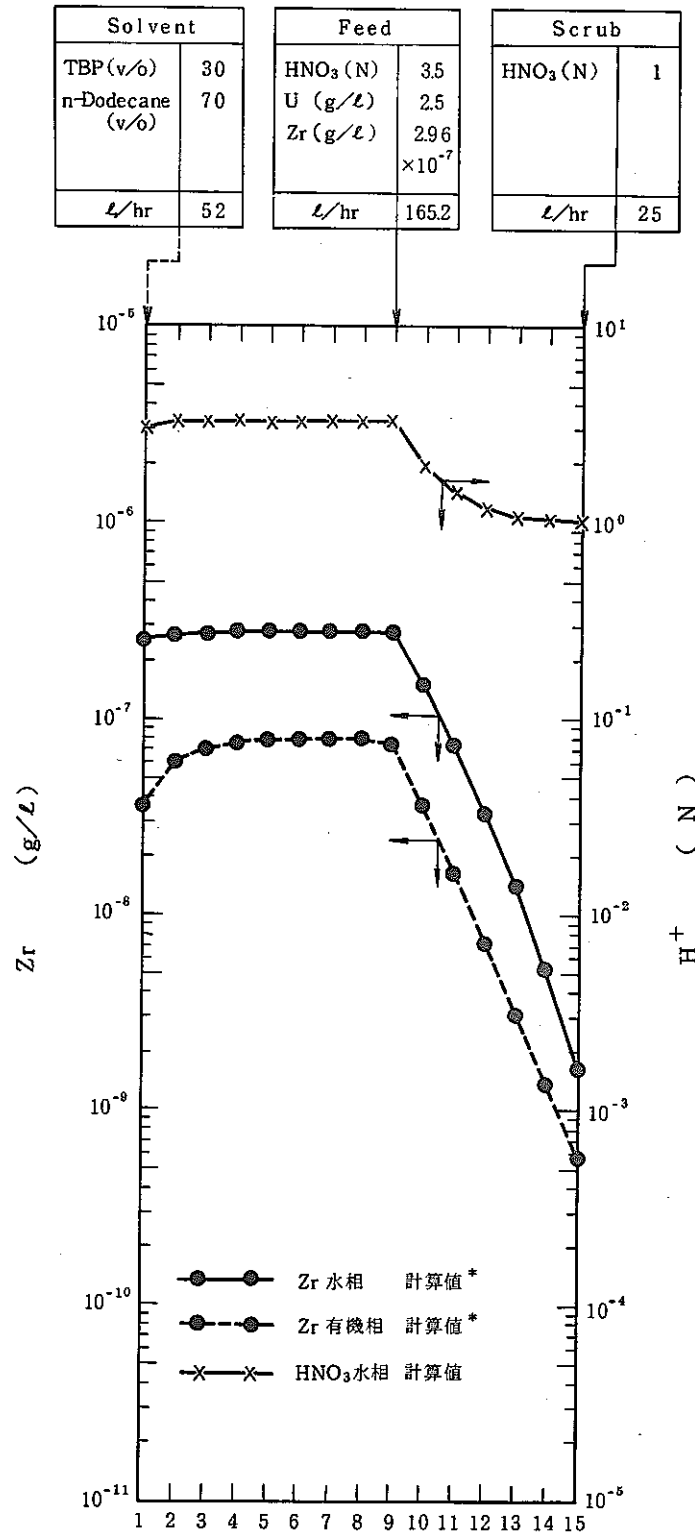


図20 標準抽出条件での濃度プロファイルー第8抽出器（プルトニウム精製工程）