

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。 2001. 6. 6

[技術情報室]

動燃における遠心抽出器開発

ウラン試験結果

1988年9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

係者だけ
なわない
その旨通
さい。

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

開示制限
PNC ZN 8410 88-051
1988年9月

動燃における遠心抽出器開発
ウラン試験結果



実施責任者 林正太郎*, 岸本洋一郎**
報告者 根本慎一*, 川口尊*, 巖渕弘樹*

要旨

本報告書は動燃で実施してきた遠心抽出器の開発経緯とウラン試験結果をまとめたものである。
本試験結果を要約すると

- (1) 動燃で開発してきた遠心抽出器のスループットはこれまでに諸外国で開発してきた抽出器とほぼ同等の能力を有することが判った。
- (2) 滞留時間が約10秒と短いにもかかわらず、ウランの抽出反応はほぼ平衡関係に近い状態で操作できることを確認した。
- (3) 定常状態への立上げは極めて短く、今回の条件下では5~10分間であった。
- (4) MIXSETによって評価した結果、先に求めた段効率を用いることによって、遠心抽出器内濃度プロファイルの実験結果とシミュレーション結果が良く一致することが明らかとなった。

以上従来と異なった構造を特徴とする遠心抽出器によっても十分に使用に耐える性能であることが本試験によって明らかにされた。

* 技術開発部機器材料開発室

** 技術開発部プラント設計開発室

目 次

1. まえがき	1
2. 遠心抽出器の設計方針とウラン試験	3
2.1 開発経緯	3
2.2 遠心抽出器の設計方針	4
2.3 ウラン試験結果	7
2.3.1 ウラン試験の目的	7
2.3.2 試験方法	8
2.3.3 試験結果及び考察	10
3. まとめ	14
写真、図、表	
4. 付録（調査結果の概要）	57
諸外国における遠心抽出器の開発と経緯	
5. 参考文献	99

1. まえがき

使用済燃料溶解液からプルトニウムとウランを抽出し FP から分離する工程、いわゆる主分離工程は高速炉燃料の場合も軽水炉燃料の場合と同様に抽出剤として TBP を用いた溶媒抽出法が採用される見通しである。

溶媒抽出器としての代表的な装置は、ミキサ・セトラ、パルスカラム及び遠心抽出器が知られている。現在稼動中の東海再処理工場ではミキサ・セトラが用いられている。

しかしながら、Pu 含有量及び FP 濃度の高い、高速炉使用済燃料を再処理対象とする場合、臨界安全形状、溶媒劣化の軽減などの観点からパルスカラムや遠心抽出器の採用が望ましいとされてきている。

これまで動燃においては高速炉燃料再処理技術開発の一環としてパルスカラムの技術開発を実施してきた。本開発は 62 年度をもって終了した（東海事業所の EDF-1 におけるウランを用いた開発）。このウラン試験の終了に伴い、新たに遠心抽出器の技術開発を同 EDF-1 施設で開始した。

遠心抽出器の技術開発は 1960 年代より再処理抽出工程への応用を目指し各国で開始された。この中でも特に米国においての開発は他に比べかなり多く実施されていたと判断される。これは報告されているレポートの数が圧倒的に多いことから見ても明らかである。しかしながら、1977 年に打出された米国のカータ大統領の政策（核拡散防止）以降、その煽りを受け本技術に関する、米国からの公開レポート数が激減してきている。

このため動燃で遠心抽出器の開発をスタートさせるに当って調査したレポートはこの年度以前に報告されたものが主である。

遠心抽出器はパルスカラムやミキサセトラに比べ次の点で大きな相異があり、特に燃焼度の高い FBR 燃料の再処理工程で有利とされている。⁽¹⁾

- (1) 接触時間が極めて短く、溶媒劣化が軽減できる。
- (2) 抽出器内の有機相、水相の滞留量が少い。
- (3) 抽出器が小型であるために必要とされる設置面積、空間が少なくて済む。
- (4) 異なった燃料を処理する際に必要な抽出器内のフラッシング液量を減少できる。
- (5) 小型で処理能力が高く、臨界安全設計が容易である。

一方、抽出器のタイプについても数種類開発されてきているが、その中でも代表的なものは SRL タイプ（Savannah River Laboratory で開発）⁽¹⁾、アニュラータイプ（Argonne National Laboratory で SRL 型を改良）⁽²⁾ 及び KfK タイプ（基本的には SRL 型と同じ）⁽³⁾、更にフランスで開発された多段型のローバーテルタイプ⁽⁴⁾などである。

1984 年に米国で開催された “International topical meeting on fuel reprocessing and waste management” では、FBR 燃料再処理用として米国⁽⁵⁾⁽⁶⁾ 及びインド⁽⁷⁾ から報告されている。又、

1986年9月に中国で開催された“International conference on Nuclear and Radiochemistry”においても高レベル廃液からのアクチニド元素の除去に小型アニュラー遠心抽出器を用いた試験の紹介が中国⁽⁸⁾からされている。1979年に報告されたフランスのレポートでも Am, Cm の抽出分離に単段型の遠心抽出器を 6 段使用した報告がなされている。これまでの調査から判断すると、現状の遠心抽出器の開発方向は単段型を組合せた多段型であり、そのタイプもアニュラー型の遠心抽出器に絞られているようである。

近年、再処理施設を始めとし、各種のホット施設の高稼動率を目指し、設備の補修、点検、交換に遠隔技術の導入が図られようとしている。遠心抽出器はそれ自身の性能が高く、かつ小型であるため遠隔メインテナンスがし易いと判断される。

動燃では上述したような技術開発の背景と、これまで動燃ですでに進めてきている遠隔技術開発の状況から、高速炉使用済燃料再処理工程の主分離プロセスに遠心抽出器の採用を目指すこととし、パルスカラムに引続いて遠心抽出器の開発を開始する方針を出した。本報告書は開発に先がけて調査した結果の概要と、動燃で設計・製作した遠心抽出器によるウラン試験の結果をまとめたものである。

2. 遠心抽出器の設計方針とウラン試験

2.1 開発経緯

動燃では昭和 60 年度下期から、遠心抽出器の開発に着手してきているが、これは以下に示すような理由による。

- 詳細については不明であるが 1966 年以来サバンナリバープラントにおいて第 1 サイクルに遠心抽出器が採用されてきており、かつ現在も運転中である。
- SRL で実施した小型遠心抽出器によるプルトニウム還元分配試験では、滞留時間が短いにもかかわらず、 U^{4+} 及び Fe^{2+} で従来のミキサセトラと同等の Pu 還元分配結果を得ている。(ただし FBR 燃料再処理のように高濃度のプルトニウムを対象としたものではない。)
- Ru 及び Zr の除染に対しても高い値が得られている。
- 調査を通して、再処理能力に見合った抽出器サイズ及び構造等がかなり見通せるようになった。
- 故障時のメインテナンスは現状の遠隔技術で対応できると考えられる。
- 再処理工程のみでなく他の分野、例えば溶媒抽出器による群分離、希釈剤洗浄及び溶媒洗浄工程などへも容易に応用できる。
- 抽出工程にかかるコストを低減できる可能性がある。

以上のような理由と遠心抽出器の基本的な特長及び関連技術などから開発着手を決定した。表 - 1 に動燃における遠心抽出器の開発経緯を示したが、大別すると、

- (1) 初期(昭和 60 年度以降下期)における単段型抽出器の設計及び試作、それによる油水分離性能試験
- (2) 多段型抽出器の試作とウラン試験による段効率評価
(昭和 61 年度に実施) ……写真・1 に 6 段型抽出器を示す。
- (3) 連続試験設備の設計・製作及び EDF-1 への据付とウラン抽出連続試験の実施
ロータ、ハウジング及び駆動モータ、方式の改良
(昭和 62 年～) ……写真 2 及び 3 に改良型抽出器、ウラン工学試験設備を示す。
の 3 種に分けることができる。

なお、表 - 2 に示したようにこれらと並行して、EDF-1 ではパラスカラムに関する技術開発が昭和 62 年度まで続けられてきた。このパラスカラム技術はプルトニウム抽出試験用パラスカラムの設計に反映され、現段階では EDF-1 でのウラン試験が終了し、別途プルトニウム抽出試験を開始した所でもある。前述したように、昭和 62 年度から準備してきた遠心抽出器開発用試験設備も、ほぼこのパラスカラム技術開発の終了(EDF-1 でのウラン試験)と共に完了し、EDF-1 でのウランを用いた技術開発は、パラスカラムから遠心抽出器へ移行してきている。

2.2 遠心抽出器の設計方針

これまでの調査結果をもとに、動燃での開発方針『特に抽出器の構造に関する』の検討を行った。なお、その際に対象としたケミカルフローシートは、 240 kg/d 相当の処理能力を有する高速炉燃料再処理の溶媒抽出工程とした。この処理能力は高速炉燃料再処理用パラスカラム技術開発の段階での目標処理能力と同じである。

— ロータサイズについての予備検討 —

図-1に 240 kg/d 相当の処理能力を有するケミカルフローシートを示す。なお、この条件下における抽出器内流量は同図にまとめているように、 $1.5 \text{ l/min} \sim 4.7 \text{ l/min}$ 程度の範囲である。最も低い部分は分配サイクルのウラン抽出部で、逆に最も大きな流量は逆抽出部である。

次表(表-3)には調査結果をもとに作成した遠心抽出器ロータサイズと流量との関係を示したが、これはあくまでも傾向を見出すために行ったもので、各種の条件を統一したデータではない。図-2はこの関係をプロットしたものである。これより遠心抽出器の流量はロータ直徑のほぼ2.7乗の関係で依存すると判断される。なお同図には図-1に示したケミカルフローシートの流量範囲($1.5 \text{ l/min} \sim 4.8 \text{ l/min}$)も表示した。

表-3 ロータ直徑と最大流量⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾⁽¹⁶⁾

ロータ直徑	最大流量	回転数	出典
10インチ (25 cm)	40 ~ 60 gpm (150 l/m ~ 229 l/min)	1750 rpm	SRL DP-841 (1)
5インチ (12.5 cm)	9 ~ 8 gpm (23 ~ 30 l/min)	1800 rpm	SRL DP-370 (10)
4インチ (10 cm)	3.4 gpm (13 l/min)	1765 rpm	ANL (2)
8 cm	7.5 ~ 9.2 l/min	3000 rpm	KfK-989 (3)
2 cm	80 ~ 200 ml/min	6000 rpm	ANL (16)
1インチ (2.5 cm)	200 ~ 300 ml/min	7000 rpm	SRL DP-680 (11)

これによると、 240 kg/d 相当の処理能力が要求されるケミカルフローシートに採用可能な遠心抽出器のロータサイズは

直徑4 cm (流量の最も低い条件) から

直徑7 cm (流量の最も高い条件)

の範囲である。

よって、開発のステップとしては最も小さい、直径4cm、から進め、5cm、8cmとケミカルフローシート条件を満足させるようにした。

なお、抽出器構造に関しては、表-4にまとめたようなこれまでの調査結果（付録に概要を示している）をふまえ、次の様な方針とした。

- (1) ロータサイズについてはフローシート流量条件を満足する同一サイズとする。……仕様の統一、互換性の確保
- (2) 遠隔メインテナンスを考慮し、駆動用モータ及び分離ロータの取りはずしが、独立してできるようにする。……故障時に発生する廃棄物及びコストの低減
- (3) 分離ロータ内界面制御方式については空気ページ方式でなく、半固定方式とする。空気ページ方式は回転軸とのシール、ページラインの設置等が必要であるため。……構造のシンプル化をねらったもの
- (4) ケーシングについては軽量化を図り、かつステージ間の空間を有効利用（サンプリング、パイピングなど）できる構造とする。……コンパクト化、軽量化、機能拡大
- (5) 従来から採用してきたロータ内構造は液のスリップ防止用ブレードをロータの鉛直方向に入れたもので、液はロータ下部より垂直に、ロータ内部を上昇する構造となっている。このため、混合液の分離に作用する距離はロータの長さと一致している。この構造を変え、同一長さのロータでありながら、より長い距離がとれるような構造をねらう。……新規性を持たせる。
以上の方針を基に、これまで開発してきた抽出器断面を図-3に示す。この遠心抽出器の特徴は以下に示すように、

- (1) ロータ内部の分離通路をらせん構造とした。……前述の方針（5）を満足させたもの
- (2) 水相せきを2重管構造とし、内管をねじ込むことによって任意に界面調整ができるようにした。又有機相せきについてはドーナツ状の平板方式とした。……前述の方針（3）を満足させたもの
- (3) ケーシングについては同図に示すように箱型とし、その中に全てのステージを入れ、その間は壁でしきる方式とした。更にその壁には図-5に示すような有水分離せきを設け、仮りにいずれかの段が停止しても、その段を除く他の段で構成される多段型として運転できるようにした。図-4は製作設計の終了した10段型ケーシングの展開図である。……方針の（4）を満足させたもの
- (4) 更に方針（2）を満足させるため、マグネットカップラーの採用を計った。図-5に示すようにマグネット間にはSUSシールを設け、ロータ側からの硝酸、TBP等のモータへの浸入防止も計れる構造とした。

現在、これら全てを設計に反映させたSUS製プロトタイプ機の試作を進めている。なお、本遠心抽出器の構造に関する詳細（設計根拠となった試験結果や解析結果）については別途、技術報

告書にまとめる予定であり、本報告書では重要なポイントの概要のみを記した。

図-6はこれまで試作してきたロータ直経4cmの処理能力試験結果⁽²³⁾である。有機相と水相の流量比が2において最大1ℓ/minの能力を有する。又表-5には5cm, 8cmのロータによる最大処理流量測定結果も合せて示したが、これらは全てロータの回転数3000rpmの条件下で得られた結果である。

表-5 ロータ直経と最大流量

回転数：3000 rpm

TBP/Aq. : 1~2

TBP : 30%, HNO₃ : 0.5 N

	4 cm	5 cm	8 cm
最大流量 (ℓ/min)	1.0	2.3~2.7	6.7~8.3

なお、これらの結果についても図-2にプロットした。同図より、これまで動燃で開発してきた抽出器は諸外国で開発してきた遠心抽出器と同等の能力を有していることが分る。

2.3 ウラン試験結果

これまでの抽出器の開発は、コールドでの TBP-HNO₃系における水力学的な試験が主であり、これらの結果を通じ、ロータ構造、ケーシング構造などの改良を行ってきた。またこのコールド試験の結果を反映させ、ウラン試験用遠心抽出器の試作も並行して実施してきた。

写真-1に本ウラン試験用6段型遠心抽出器を示したが、本抽出器の概略仕様は以下のとおりである。

- (1) ロータサイズ：内径 $\phi 40$ mm SUS 304
：高さ 100 mm
- (2) ケーシングサイズ：外径 約 $\phi 130$ mm アクリル
高さ 約 140 mm
- (3) 相分離用せき：2重管型スライド方式
- (4) インベントリー：有機相+水相 約 100 mL/段×6段
- (5) 滞留時間：5～10秒/段（処理能力によって変る 30～60 kg/d相当時）
- (6) 処理能力：最大 約 100 kgHM/d（第1サイクルの抽出部換算）
- (7) ロータ回転数：任意に選定可能（上記処理能力は 3000 rpm 時）
- (8) 6段ユニットサイズ：600 mm (W) × 350 mm (L)

2.3.1 ウラン試験の目的

今回実施したウラン試験の目的は、第1回目ということもあり、抽出器としての基本的な能力把握に重点をおいた。以下に目的を示す。

- (1) 開発してきた遠心抽出器のウラン抽出、逆抽出に関する段効率を求ること。
- (2) 抽出器の過渡特性、特にスタートアップ時間を調べ、運転条件とインベントリーの関係を明らかにする。
- (3) 計算コード“MIXSET”によるシミュレーション手法の検討

2.3.2 試験方法

本試験で対象とした工程はピューレックスプロセスの第1サイクルの抽出、逆抽出及び第2サイクルの抽出部である。図-7、8及び9にそれぞれの試験フローと条件を示す。

なお、図-7に示した試験条件は以下に示した理由によって決定したものである。

第1サイクルの共除染工程は抽出部、洗浄部更に逆抽出部で構成される。

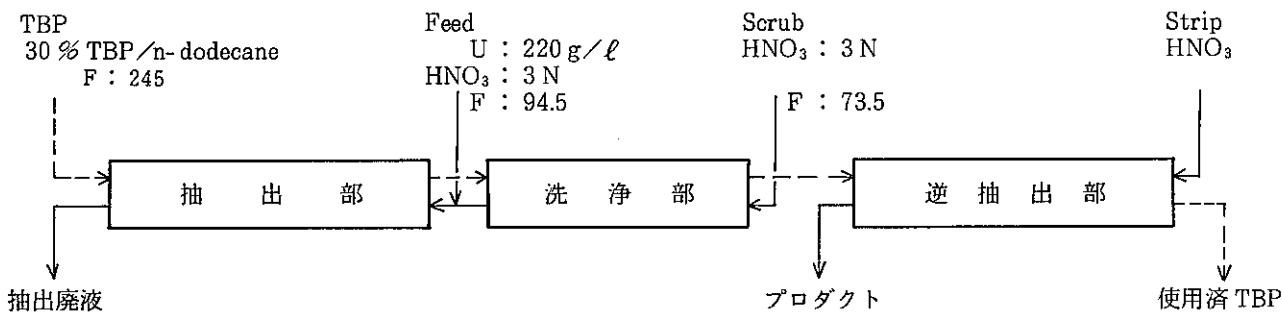


図-10 第1サイクルフローシート

このうち、抽出部に着目した試験を行うには、洗浄部から供給される硝酸を考慮する必要がある。図-7の試験条件は上図(図-10)のフロー条件から求めたものである。

又、逆抽出部に関する試験条件(図-8)ではPu重合防止硝酸の供給を行なわず、ウランの逆抽出特性のみの把握に重点をおいた。従って、通常、逆抽出操作はウラン分配係数の温度依存性(温度上昇に伴って分配係数が低下する)を利用し、加温した希硝酸が逆抽出液として用いられる。しかし本試験では加温せずに室温(22°C)とした。よって、本試験条件は実際の逆抽出操作を考えるとより厳しい側の条件となる。

なお、本逆抽出試験に用いたフィード液(ウランローディングTBP)は、図-7に示した抽出部の試験で得られたウランローディングTBPである。

一方、図-9には第2サイクルの抽出部に主眼をおいた試験条件を示した。フィード液としては逆抽出試験でのウランプロダクト液をそのまま用いた。このプロダクト液中の硝酸濃度は0.2N-0.3Nと低いため、新たに濃度調整用硝酸(13N)を供給し、抽出器内で約3Nに濃度調整をしつつウランの抽出操作を行うことを試みた。

これは、第1サイクルと第2サイクル間に設けられている濃度調整槽を除いた条件での連続運転性を評価するために行ったものである。

以上のような条件をもとに試験はまず①硝酸-TBPラン、②ウランフィードへの切換え、③サンプリング、④硝酸フィードへの切換え、と4ステップでそれぞれ実施した。

なお、抽出器の出口サンプリングはウランフィードしたのち1分間隔で10分間行った。その後、各段から有機相、水相のサンプルを採取した。なお、各段からのサンプリングに際しては

液量、採取時間間隔等、定常状態を乱さないよう特に注意した。

これら3種の試験における流量条件は1段当りの滞留時間を約10秒となるように設定した。

次表に各試験条件での滞留時間を示す。それぞれの運転時間は1時間とした。

表-6 各試験条件下における1段当りの滞留時間

イベントリ：100 ml/段

RUN No	対象工程	滞留時間
1	第1サイクル抽出部	14秒
2	第1サイクル逆抽出部	10秒
3	第2サイクル抽出部	9.4秒

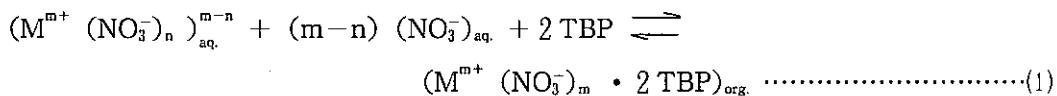
2.3.3 試験結果及び考察

6段型遠心抽出器によるウラン連続抽出試験結果を表-7～12に示す。なお、これらの表は抽出器内各ステージの分析結果（ウラン、酸濃度）とスタートアップ及びシャットダウン時の抽出器出口濃度、経時変化の分析結果をまとめたものである。

更に、図-10～13は上記結果を表わしたもので、図11～12には計算コード“MIXSET”⁽²⁴⁾によるシミュレーション結果も同時に示している。

— 抽出平衡と段効率 —

ところで、今回実施した試験条件は TBP-UO₂(NO₃)₂-HNO₃系であり、ウランは次に示した抽出反応⁽²⁵⁾が成立する系である。



ここで aq. は水相, org. は有機相を表わす。この反応の平衡定数（モル濃度基準）を K_M とすると、(1)式は、

$$K_M = \frac{[M^m + (NO_3)_m \cdot 2TBP]_{org}}{[M^{m+} (NO_3)_n]_{aq}^{m-n} [m - n(NO_3)]_{aq} [TBP]^2} \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

となる。

更に、次式のように、対象イオンの分配係数を

$$E_M = \frac{[M^{m+}(NO_3)_n \cdot 2TBP]_{org}}{M^{m+}(NO_3)_n} \dots \dots \dots \quad (3)$$

とすれば、平衡定数 (K_M) は、

となる。ただし (TBP)₀ は次式から求められる遊離 TBP 濃度である。

$$(TBP)_o = (TBP)_{initial} - (2(u)_o + H_0) \quad \dots \dots \dots \quad (5)$$

又、式上の $(m-n)$ はウラン(VI) の場合 2 が与えられる⁽⁹⁾。坪谷⁽²⁵⁾らは、再処理工程からのネプツニウム回収試験の中で、10% 及び 20% TBP を用い TBP-HNO₃ 系でのウラン分配試験を実施し、0.5 N HNO₃～3 N HNO₃ の範囲における分配データを採取している。坪谷らの結果を表-13、14 及び図-14、15 に示す。

又、(4)式は次のように書くこともできる。

この(6)式に基づき算出した $E_M / (TBP)^2$ と $(NO_3)_{aq}$ の関係を両対数グラフに示したものが図-16である。図中△は10% TBP系、○は20% TBP系のバッチ抽出データを示し、●は本遠心抽出器試験で得た結果から算出した値をプロットしたものである。表-15には算出結果を示した。

これは、バッチ抽出法で得た結果と滞留時間が約10秒と極めて短い遠心抽出器で得られた結果を抽出平衡論的解析手法での比較を試みたものである。

結果をまとめると次のように示すことができる。

- (1) 遠心抽出器内での抽出反応は水相中の NO_3 濃度が $10^{-2} M \sim 4M$ の広い範囲においてもバッチ抽出法と同じ傾向で起こっている。
- (2) バッチ法で求めた値はいずれの場合においても遠心抽出器結果より若干高い。

すなわち、このことは、ミキサ・セトラ用に開発された抽出計算コード“MIXSET”を上記(2)の若干の違いとなる因子を配慮することによって、遠心抽出器用シミュレーションコードとして十分に使用できることを示唆している。

ところで、遠心抽出器の抽出特性の評価基準として段効率(Stage Efficiency)が用いられている。この段効率は、一般に知られている定義のとおりであるが、ANLのG.J. Bernstein⁽¹⁵⁾らによると、

水相を対象

$$E_A = \frac{A_i - A_o}{A_i - A_e} \times 100 \quad \dots \dots \dots \quad (7)$$

有機相を対象

$$E_o = \frac{O_o - O_i}{O_e - O_i} \times 100 \quad \dots \dots \dots \quad (8)$$

なお、i：供給液中のウラン濃度(M)

o：出口液中のウラン濃度(M)

e：相手相の出口濃度と平衡関係にあるもう一方相中のウラン濃度(M)

と示される。つまり、段効率はある任意の段において、供給されたウランが抽出器内で有機相と水相に分配され、得られたそれぞれの液相中濃度と平衡時の分配関係とを比較した結果を表したものと理解することができる。これは、ウランの分配係数に直接影響される値である。すなわち、ウランの分配係数は(4)式に示されるように系の H^+ , TBP, NO_3^- 濃度等他の共存イオンの影響を受けた結果定まる。したがって、段効率で抽出器を評価するには、比較評価する段での、これらのパラメータを揃え、かつ使用する平衡データの条件も揃える必要がある。しかし、現実的には上記条件を統一することは実験上の困難を伴うため、ここでは前述の段効率の算出法ではなく、計算コード MIXSET による濃度プロファイルフィッティング法を試みた。

評価の手法は、MIXSET に内蔵されている抽出平衡式をそのまま用い、計算のインプット条件としては滞留量、温度、各流量、ウラン、 HNO_3 濃度、及び TBP 濃度とした。これらは実際の試験条件をインプットしたものである。以上のような計算条件下で平均段効率（全段同一の段効率）をパラメータとし、濃度プロファイルが試験結果と一致する段効率を求めるという手法をとった。このようにすることによって、例え、反応系のパラメータが変わったとしても、図-16 で比較した手法と同じように、同一の基準のもとで評価できることになる。

RUN-1 の MIXSET によるシミュレーション結果を表-16 に、又、表-17 及び表-18 にはそれぞれ Run-2, Run-3 のシミュレーション結果を示す。なお、これらの結果は上述したように、段効率をパラメータとして求めたものである。

図-17 には Run-1 (抽出部) の計算結果と実験結果を示したが、実験結果は段効率 0.96 ~ 0.98 を用いた計算結果と 10^{-3} g/l ~ 10^2 g/l のウラン濃度範囲で良い一致が見られる。図-10 の濃度プロファイルは段効率を 0.97 とした計算結果と実験結果を示した拡大図である。

又、図-18 には第1サイクルの逆抽出部に相当する条件で実施した Run-2 の結果と計算結果を示している。本計算では段効率のパラメータを 0.8 ~ 1.0 までとっているが、抽出部ほど段効率による差は濃度プロファイル上表われていない。本結果についても上記同様、拡大図を図-11 に示した。0.85 の段効率を与えた計算結果が最も良く、実験結果と一致していることが判る。

一方、第2サイクル部の抽出部を考慮した Run-3 の結果については図-19 に示しているとおりである。本試験は基本的には Run-1 の試験と同じであるため計算パラメータを少なくし、0.95 及び 1.0 の段効率で計算を行った。なお、用いた抽出剤は Run-2 で得た逆抽出剤の TBP で約 0.1 g/l のウランを含んでいる。このため、1 ~ 2 段目において見かけ上テーリングが生じているような濃度プロファイルとなった。

前述同様、本試験結果についても図-12 に計算結果と実験結果の拡大図を示した。段効率として 0.95 を用いた計算結果との一致が見られる。

以上、これまでの結果をまとめると、

- (1) 遠心抽出器は滞留時間が短いにもかかわらず、バッチ法で得られる平衡値にほぼ近い状態で抽出反応を進めることができる。
- (2) これまで求められてきた段効率はある段のウラン分配に注目して算出されてきたが、MIXSET を利用した濃度プロファイルフィッティング法で求めた段効率は濃度レンジの広い範囲 (10^{-3} g/l ~ 10^2 g/l) において良い一致を示す値であることが確認された。
- (3) ミキサセトラ用に開発されたシミュレーションコードでも滞留時間を合せ（抽出器インベントリーと流量を正確にインプットする）上記段効率を用いれば遠心抽出器用コードとして利用できる（ただし、ウラン抽出及び逆抽出部で、他の元素や Pu の還元分配部については未確認）ことが判った。

(4) 逆抽出部については、KfK からの報告⁽³⁾と同じように、抽出部に比べ低い段効率となった。

— 運転立上げ特性 —

図-13 に Run-1, 2 及び 3 の試験で求めた抽出器出口のウラン濃度経時変化を示した。いずれの場合もウラン濃度及び HNO₃ が一定に達するまでの時間は 5 ~ 10 分間である。次表には参考のため液の置換回数をまとめた。

表-19 定常に達するまでの液置換回数

RUN	抽出器 インベントリー	有機相流量	水相流量	滞留時間 (min)	定常到達時間 (min)	置換 回数
1	600 mL	266 mL/min	167 mL/min	1.39	6	4.3
2	600 mL	260 mL/min	380 mL/min	0.94	10	10.6
3	600 mL	232 mL/min	382 mL/min	0.98	5	5.1

これによると、定常に達するまでの目安となる抽出器内液の置換回数は抽出部が 4 ~ 5 回、逆抽出部で 10 回程度であった。しかし本条件はそれぞれ独立して運転した結果であり、用いられるバンク数によってこの値は異なってくる。

3. ま　と　め

遠心抽出器を再処理工程へ採用するための技術開発は1960年代より開始され、すでに約28年が経過している。この間、再処理プラントで実用されているのはサバンナリバープラントのみであり、その実績も22年に達している。諸外国においても再処理での実用段階には達しないが、基礎的な技術開発や、他分野への応用などへの開発が続けられてきている。このことは遠心抽出器の持つ基本的性能がこれらの開発を続けるための大きな魅力となっていることを示すとも判断できる。

一方、この28年間の開発経緯の中で、構造について考えると、遠心力をを利用して密度の異なる2相を分離するための基本的構造は初期にサバンナリバーで採られた方法（たぶんそれ以前に他分野で開発された）、つまり回転体中の液のスリップを無くし、遠心力を液に効率良く伝える方法を各国においてそれぞれ採ってきている。この28年間、ミキシング部とセトラーを分離したり、1軸多段型にするなどの改良や遠隔メインテナンス性を向上させるための改良など確実に進められてきているものの、基本的構造についての改良はされてきていないとも見ることができる。動燃で開発を着手するきっかけについては第2章で述べたとおりであるが、上述した点に着目し、従来と異なる構造を持つ遠心抽出器の開発にもチャレンジしてきた。

本報告書ではこのPNC型遠心抽出器によるウラン試験結果を紹介している。その結果を要約すると、抽出性能については従来から開発されてきている抽出器と同等の能力を有している。かつ処理能力についても同様で十分に使用に耐える性能であることが判った。

また、遠心抽出器は滞留時間が短いにもかかわらず、バッチ法で得た抽出平衡関係にほぼ近い抽出性能で運転される。この関係をより定量的に示すため、シミュレーションコードによって段効率を求めた結果、抽出部においては $10^{-3} \text{ g/l} \sim 10^2 \text{ g/l}$ のウラン濃度範囲で段効率0.95～0.97を得たとともに、かなり高い精度で濃度プロファイルをシミュレーションできることも判った。

一方、今回の場合はバンク単独での試験条件であったが、抽出器の立上げ時間は5分～10分程度であった。このことは遠心抽出器のインベントリーが他の抽出器に比べ極めて少いことから生ずる利点“スタートアップ、シャットダウン速度が短い”を確認したことを示す。

今後、EDF-1では写真3に示した設備を用い工程連続試験を行うとともに、異常運転時における過渡特性の評価試験を実施していく。

また、設計方針を満足させた抽出器の製作（現在製作中）を通じ、製作時に生ずる課題摘出やその解決、より軽量化の対策などを進める。更に製作される上記抽出器の遠隔メインテナンス性を調べるために試験など、これまでの開発の中で実施されていなかった試験を行っていく予定である。

写 真

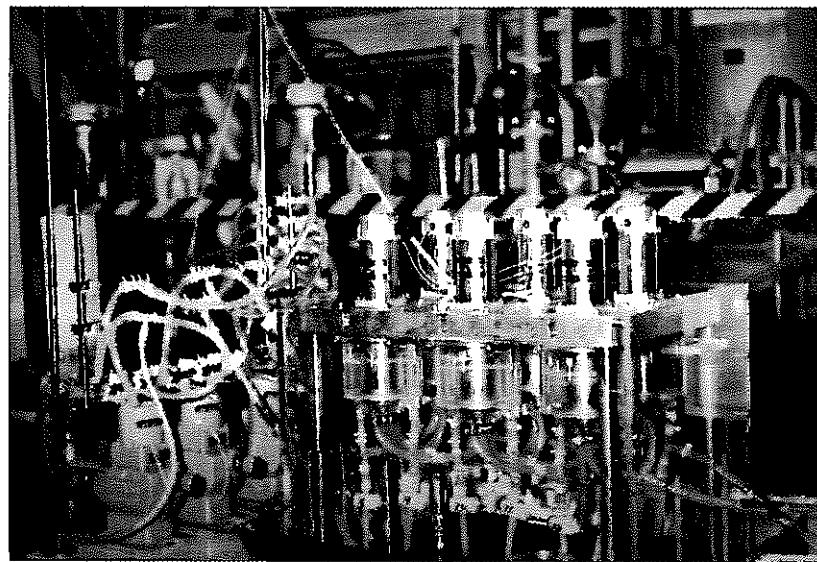


写真1 試作機写真（6段型）

らせん構造及び半固定式せきを特徴とする
4 cm 直径ロータ 6 段型



写真2. 試作機の改良型

(ロータ構造は同じであるが、有機相せき
及びケーシングを改良した4段型抽出器)

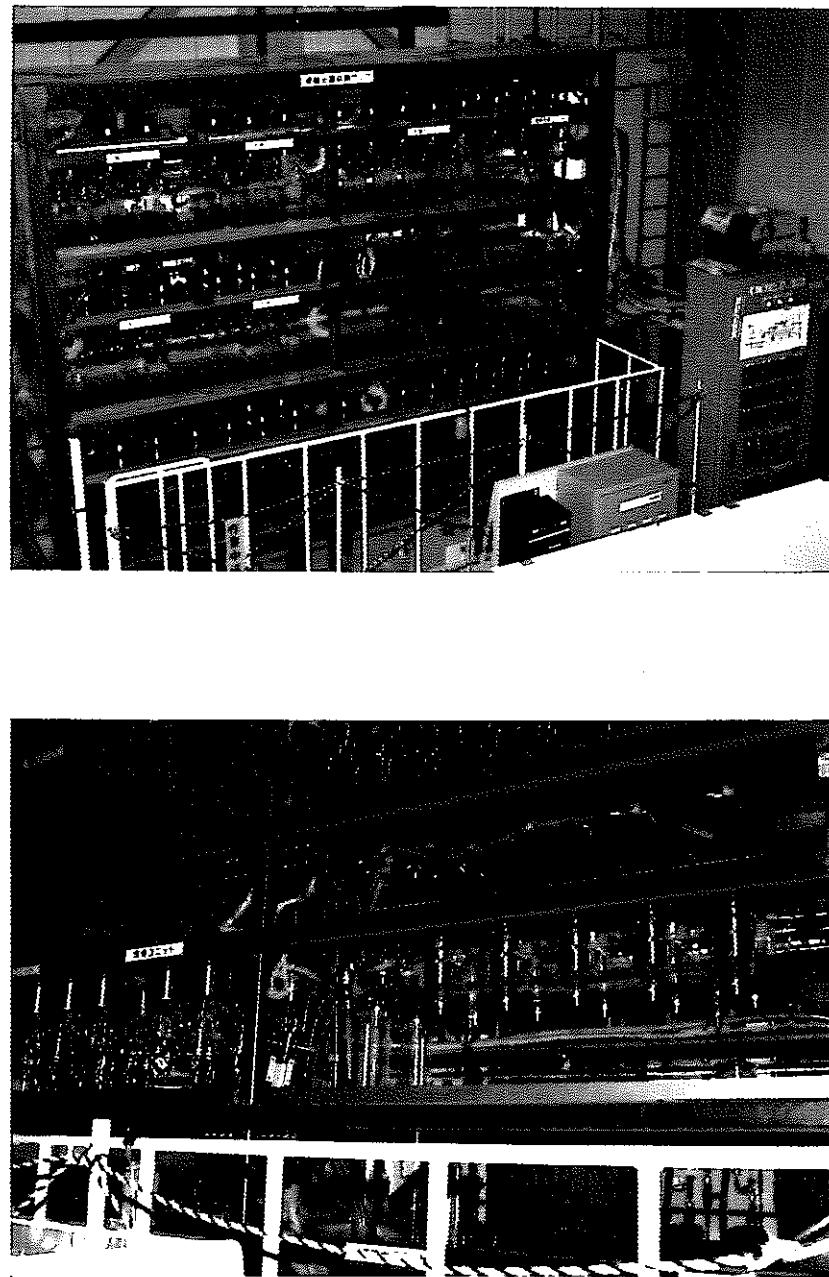
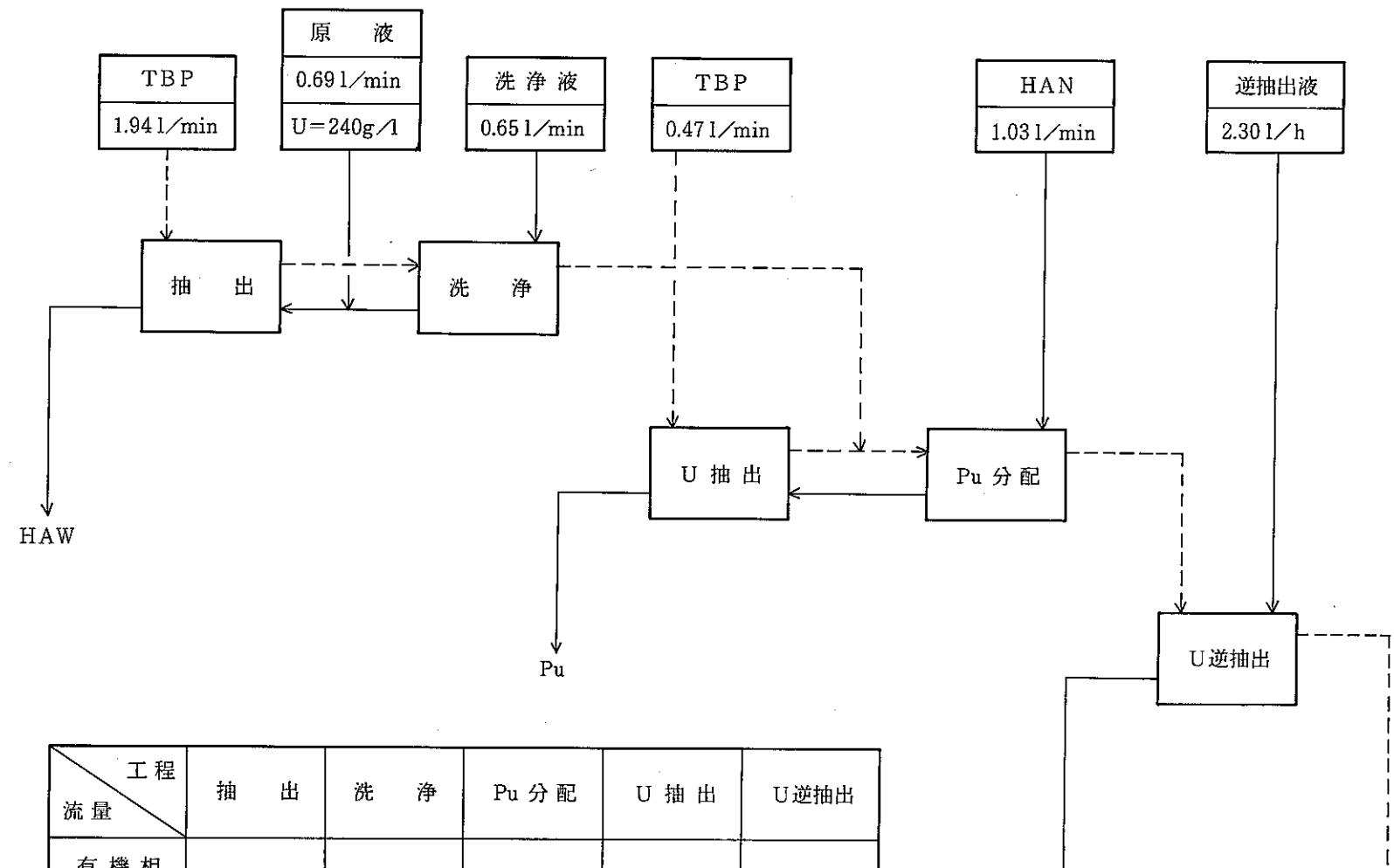


写真3. 開発してきた遠心抽出器のウラン工学試験を行うための
設備(EDF-1に設置されている)

四



工程 流量	抽出	洗净	Pu分配	U抽出	U逆抽出
有機相 (l/min)	1.94	1.94	2.40	0.47	2.40
水相 (l/min)	1.34	0.65	1.03	1.03	2.30

図-1 ケミカルフローシート(第1サイクル分配)の1例

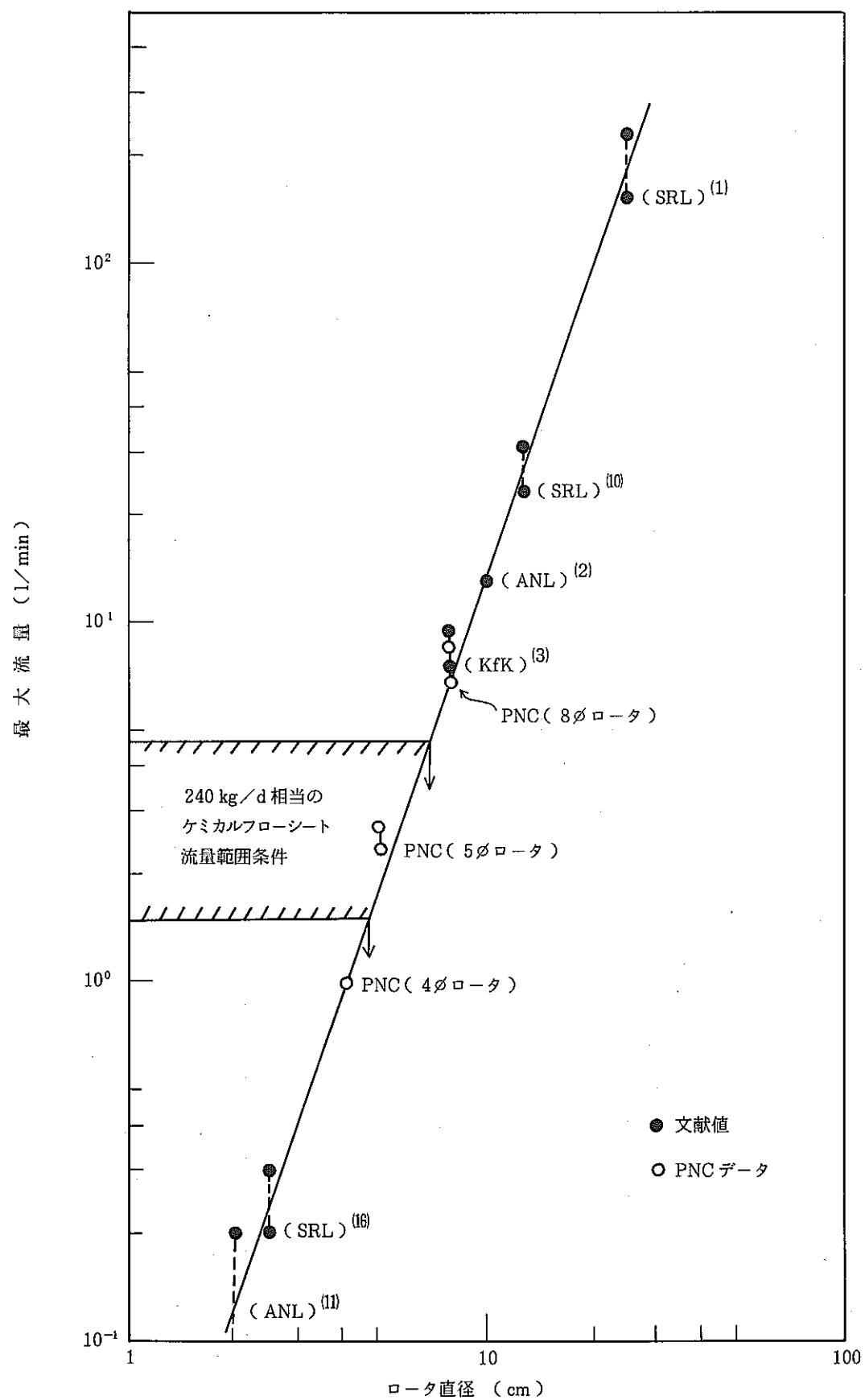


図-2 ロータサイズ(直径)と最大スループットの関係

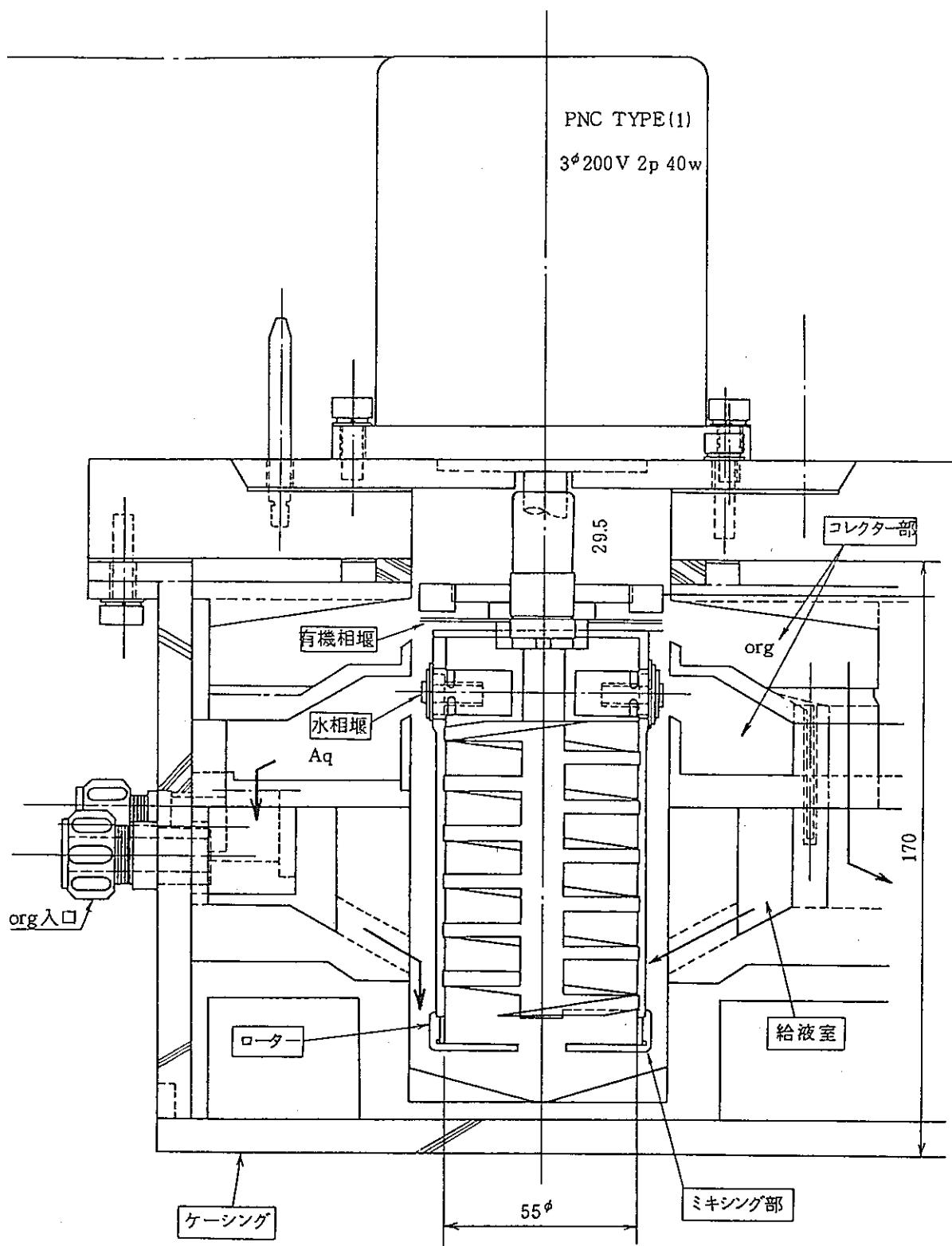


図-3 動燃で開発してきた遠心抽出器断面図

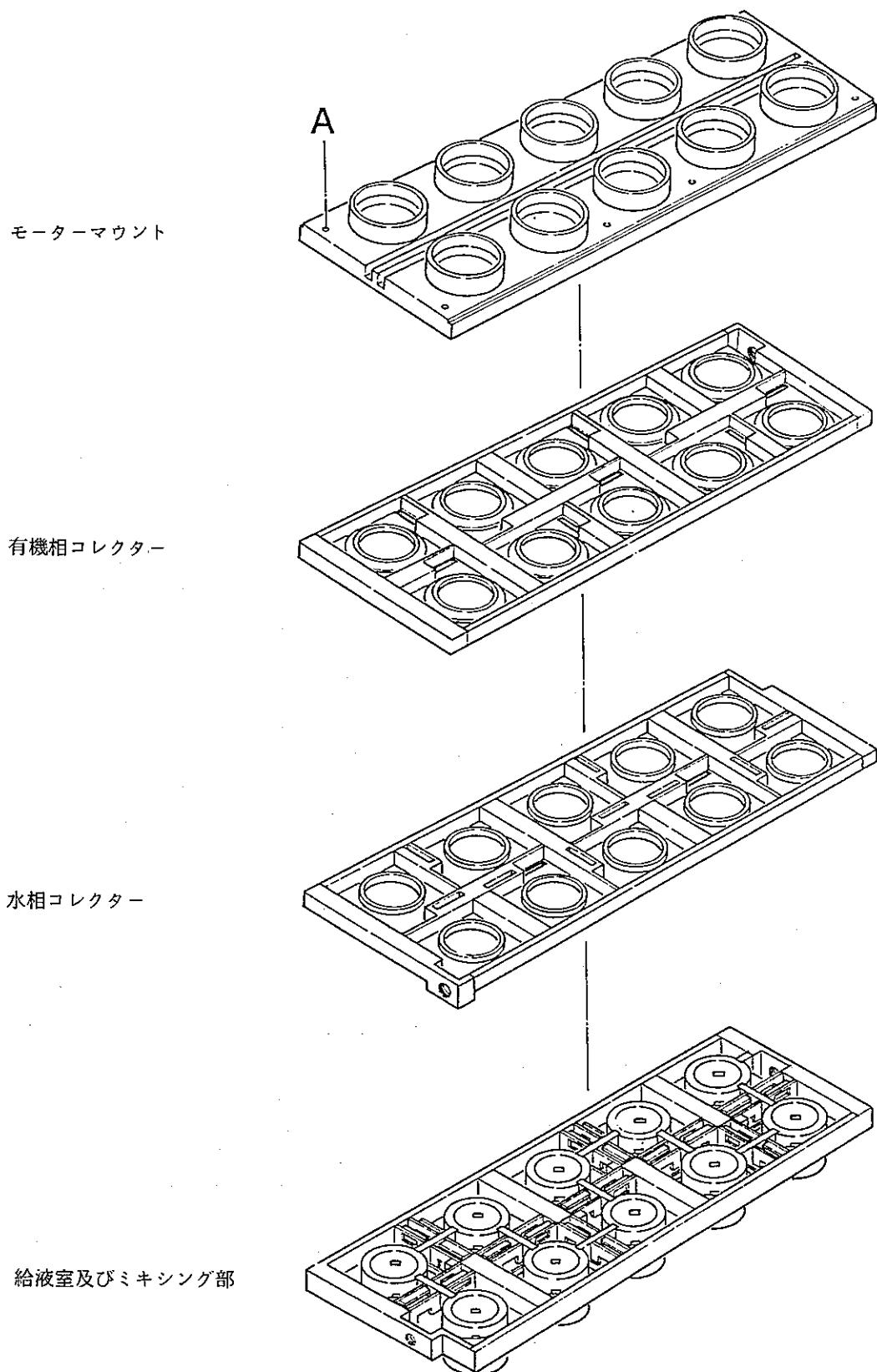


図-4 10段型遠心抽出器の展開図

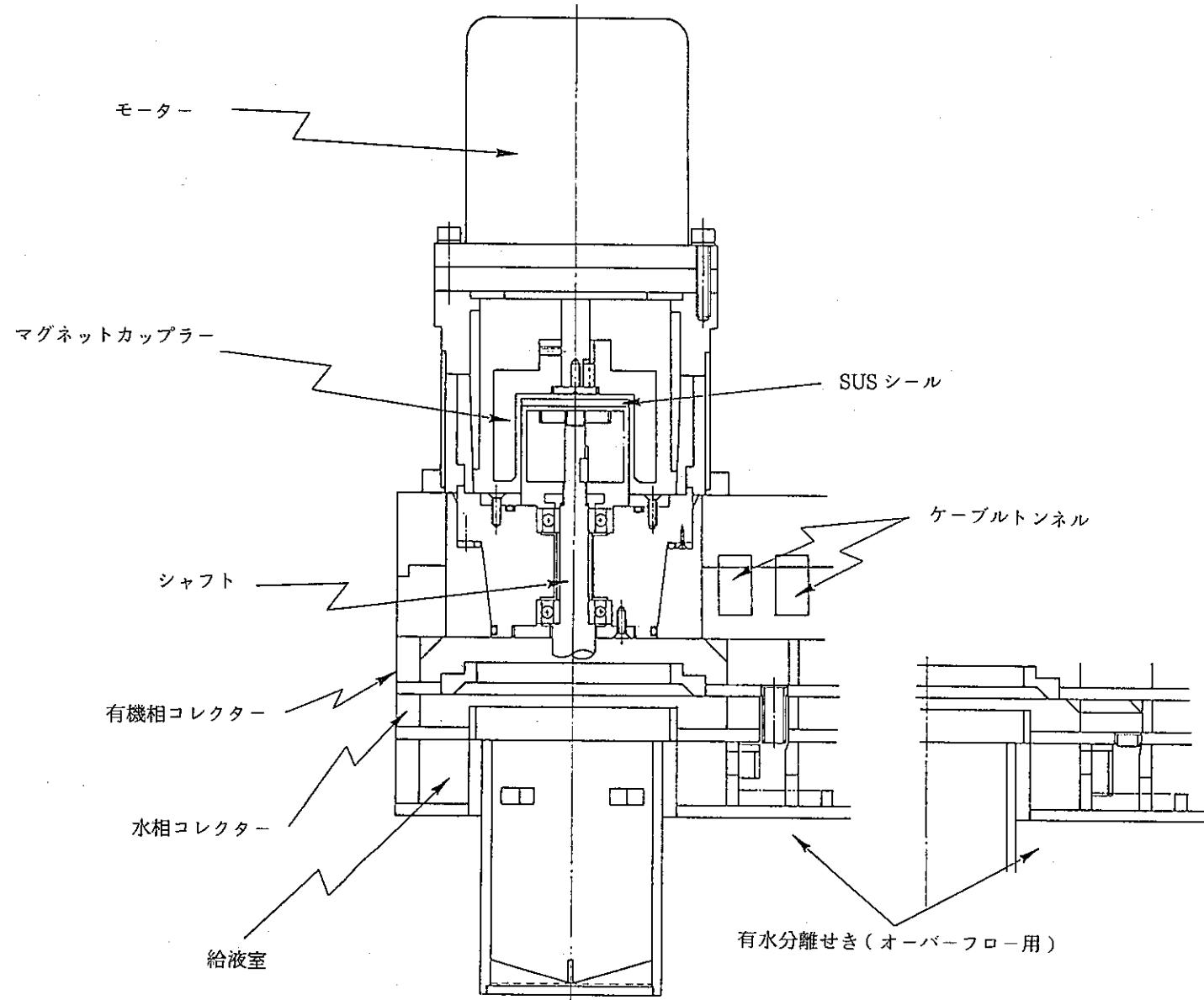


図-5 マグネットカップラーを採用した抽出器断面

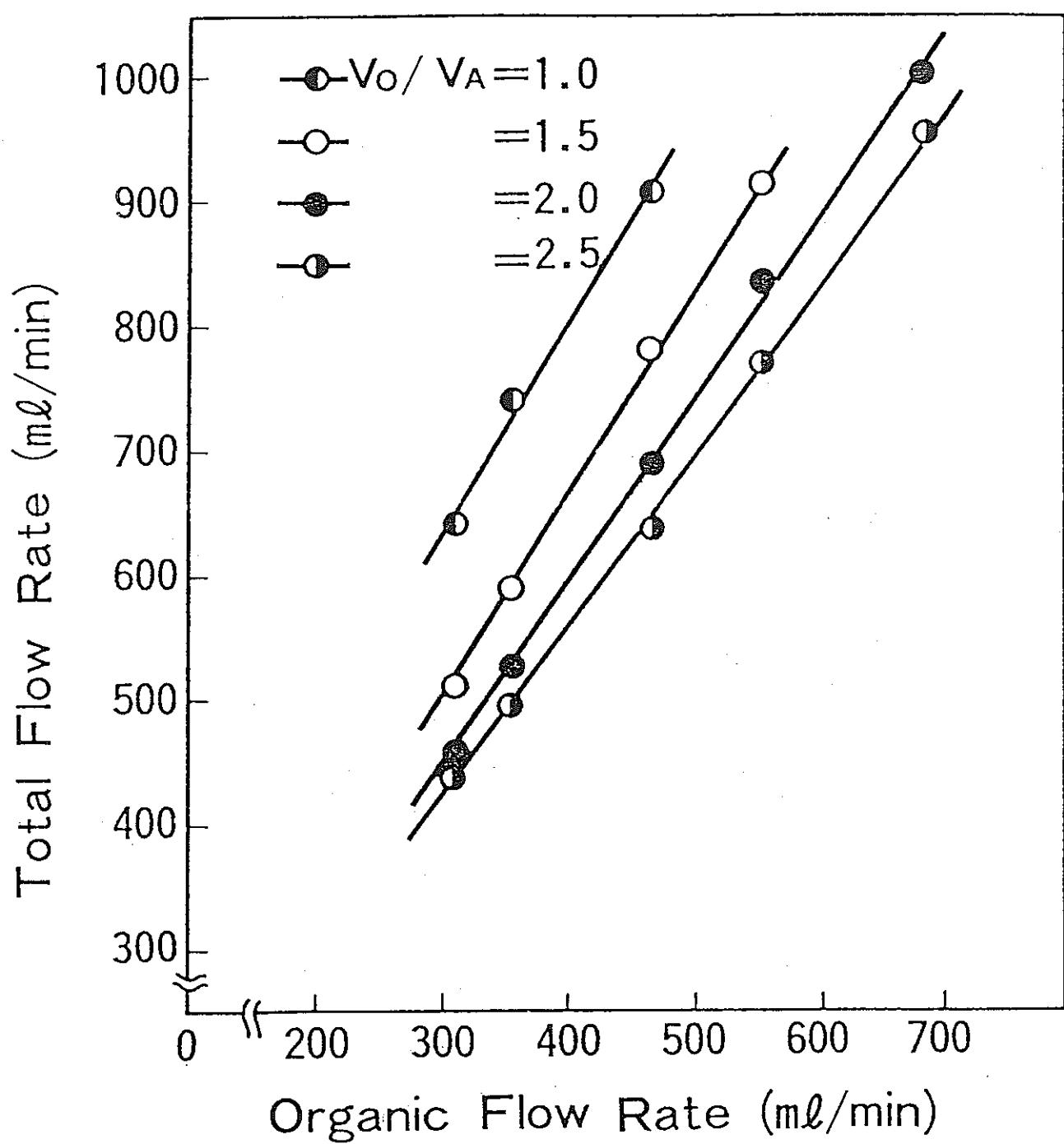
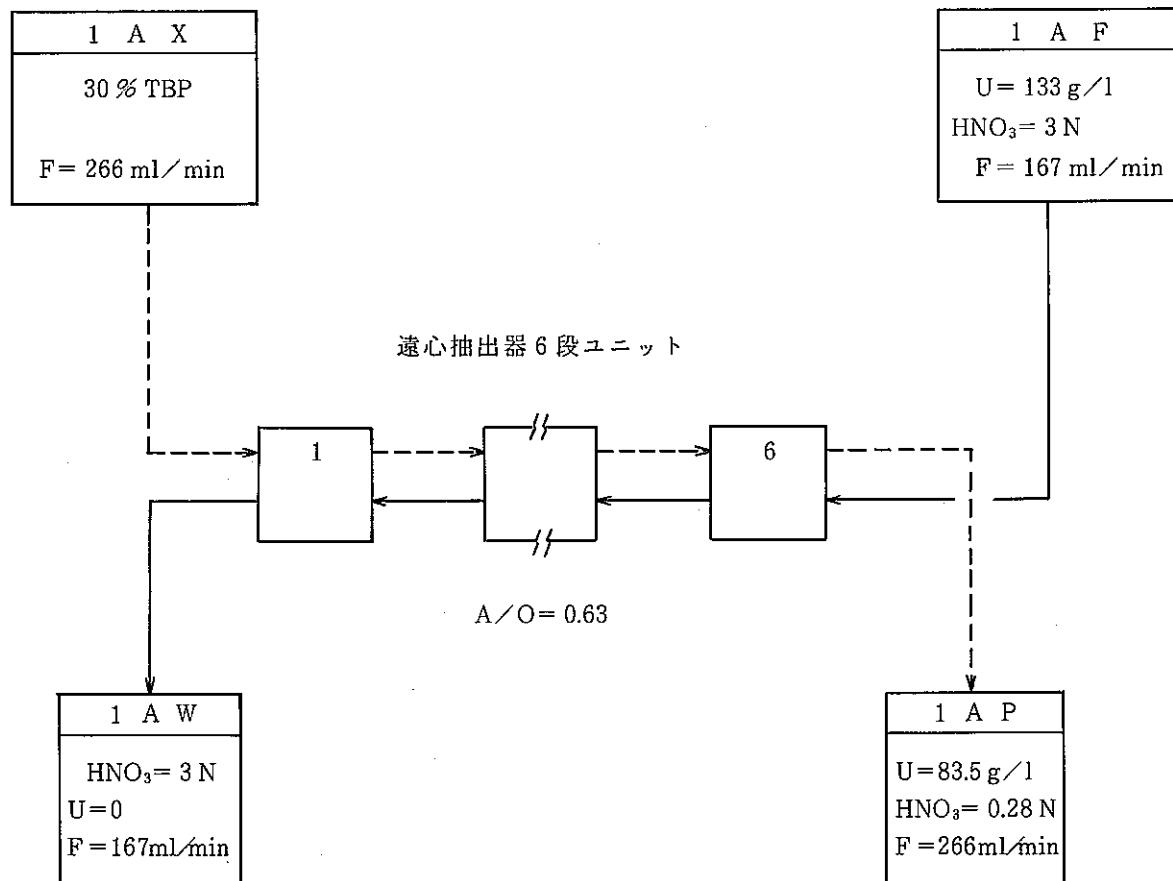


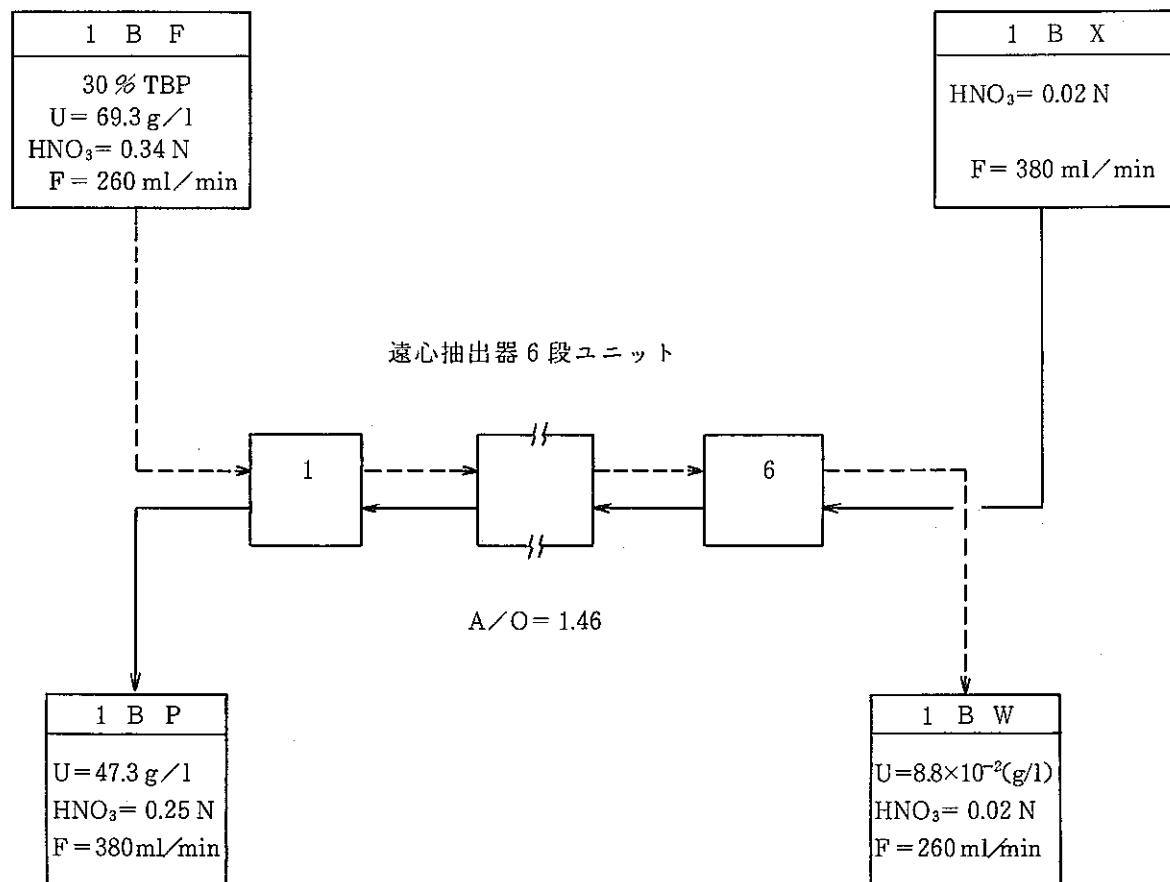
図-6 直径 4 cm ロータによる処理能力



(30 kg/day 相当)

注 フローシート上の数値は
試験結果である。

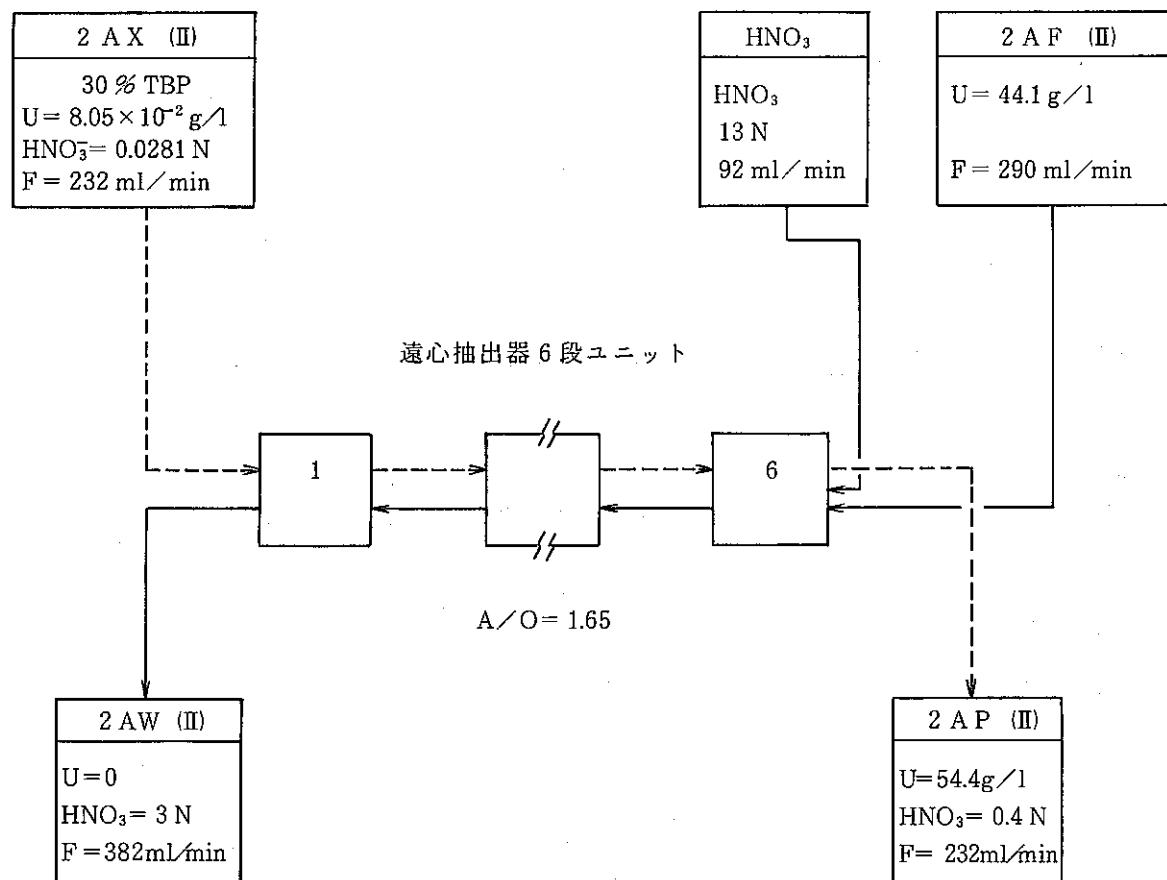
図-7 第1サイクル抽出部試験フロー (Run-1)



(32 kg/day 相当)

(注) フロートシート上の数値は
試験結果である。

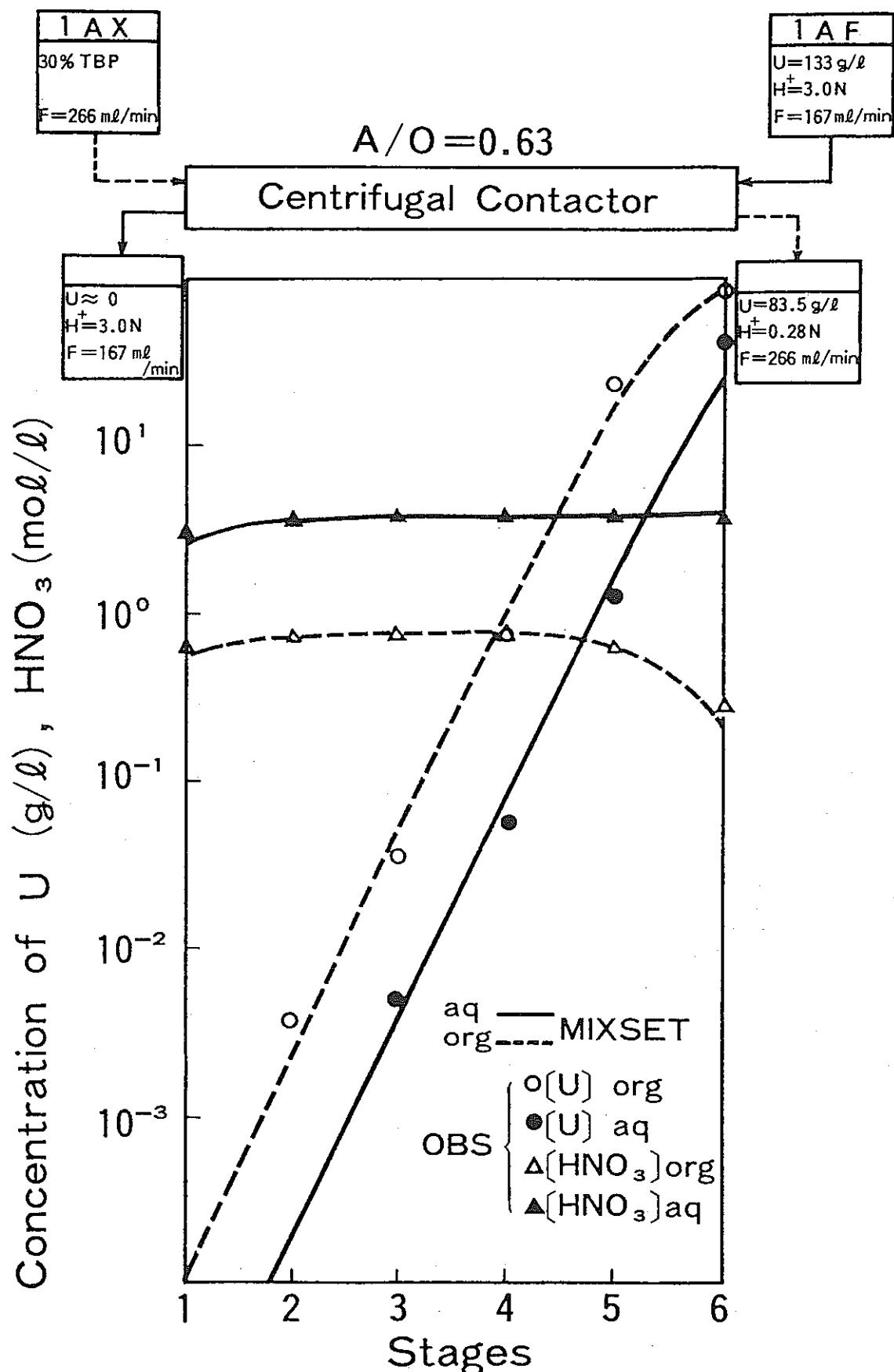
図-8 第1サイクル逆抽出部試験フロー (Run-2)

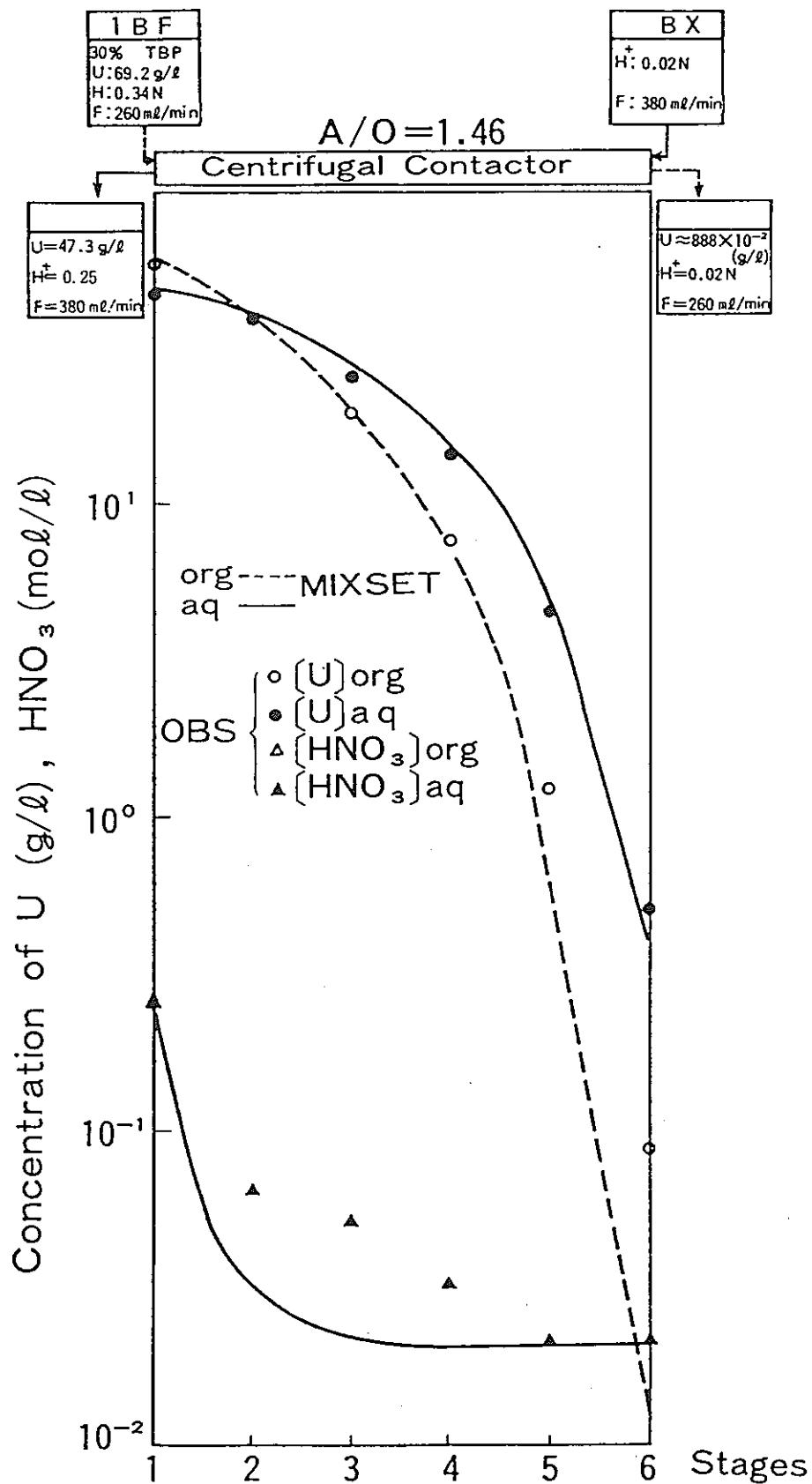


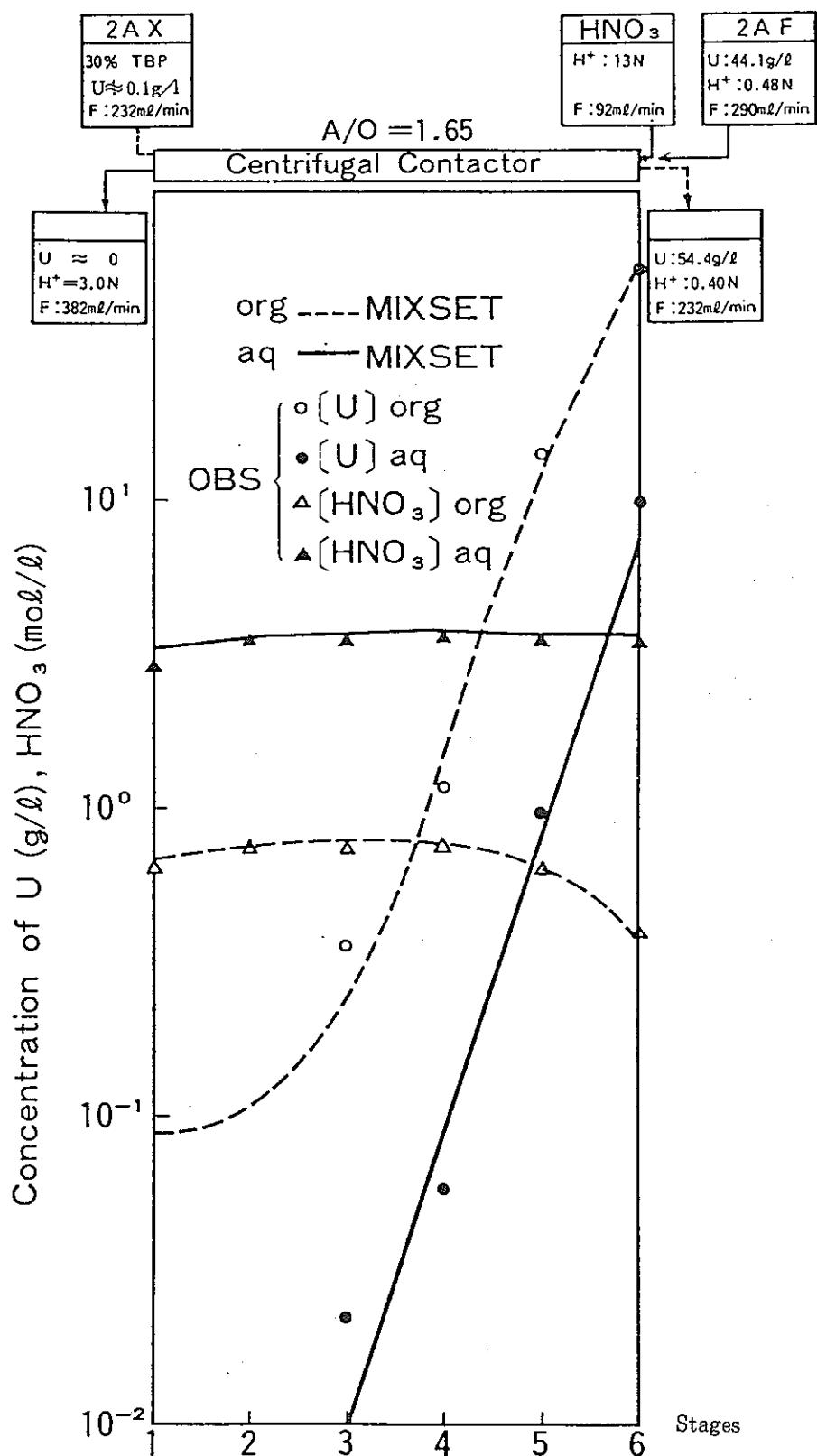
(28 kg/day 相当)

注 フロートシート上の数値
は試験結果である。

図-9 第2サイクル抽出部試験フロー (Run-3)

図-10 ウラン及び HNO_3 の濃度プロファイル(Run - 1)

図-11 ウラン及びHNO₃濃度プロファイル(Run - 2)

図-12 ウラン及び HNO_3 濃度プロファイル (Run - 3)

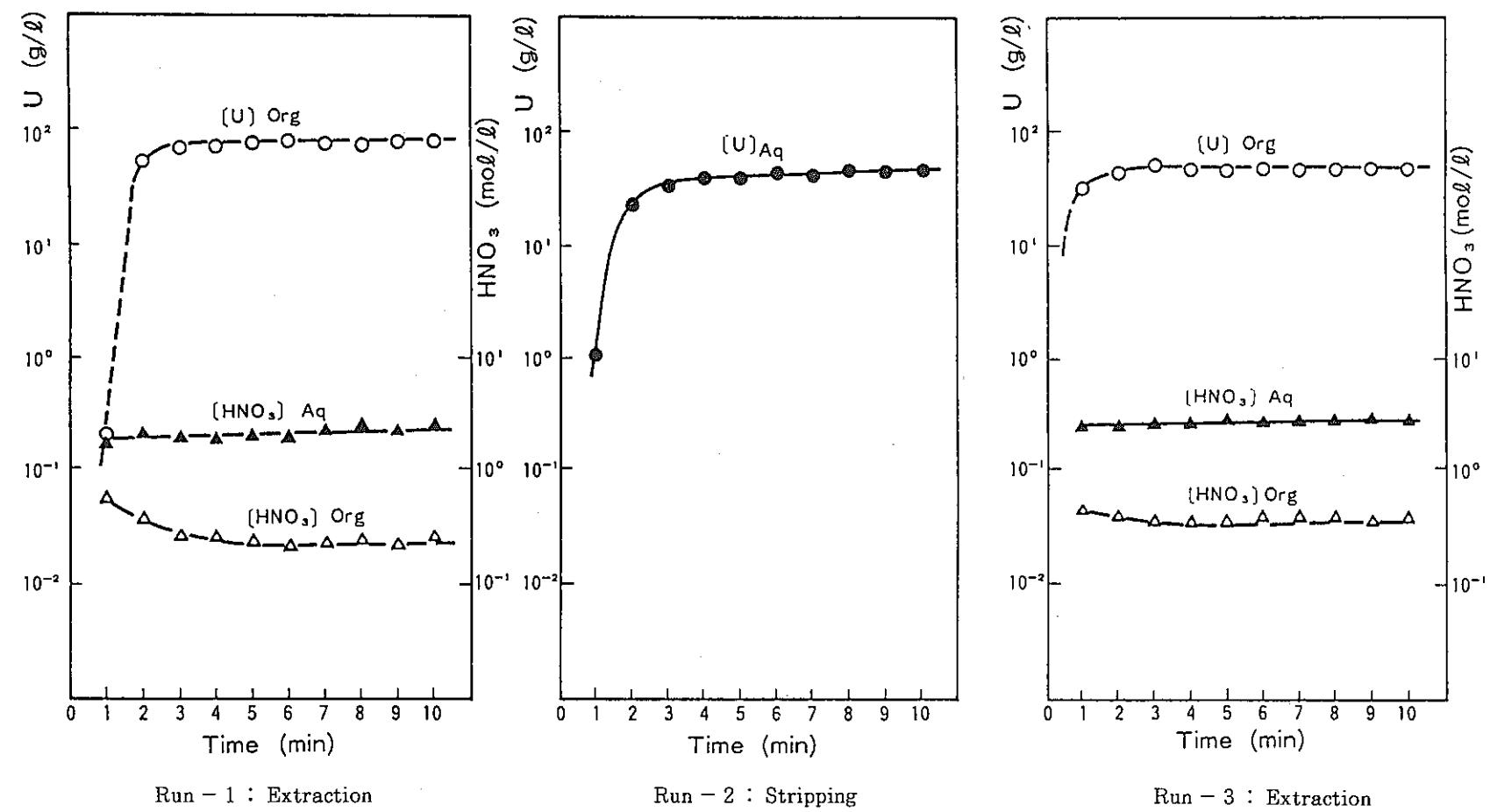
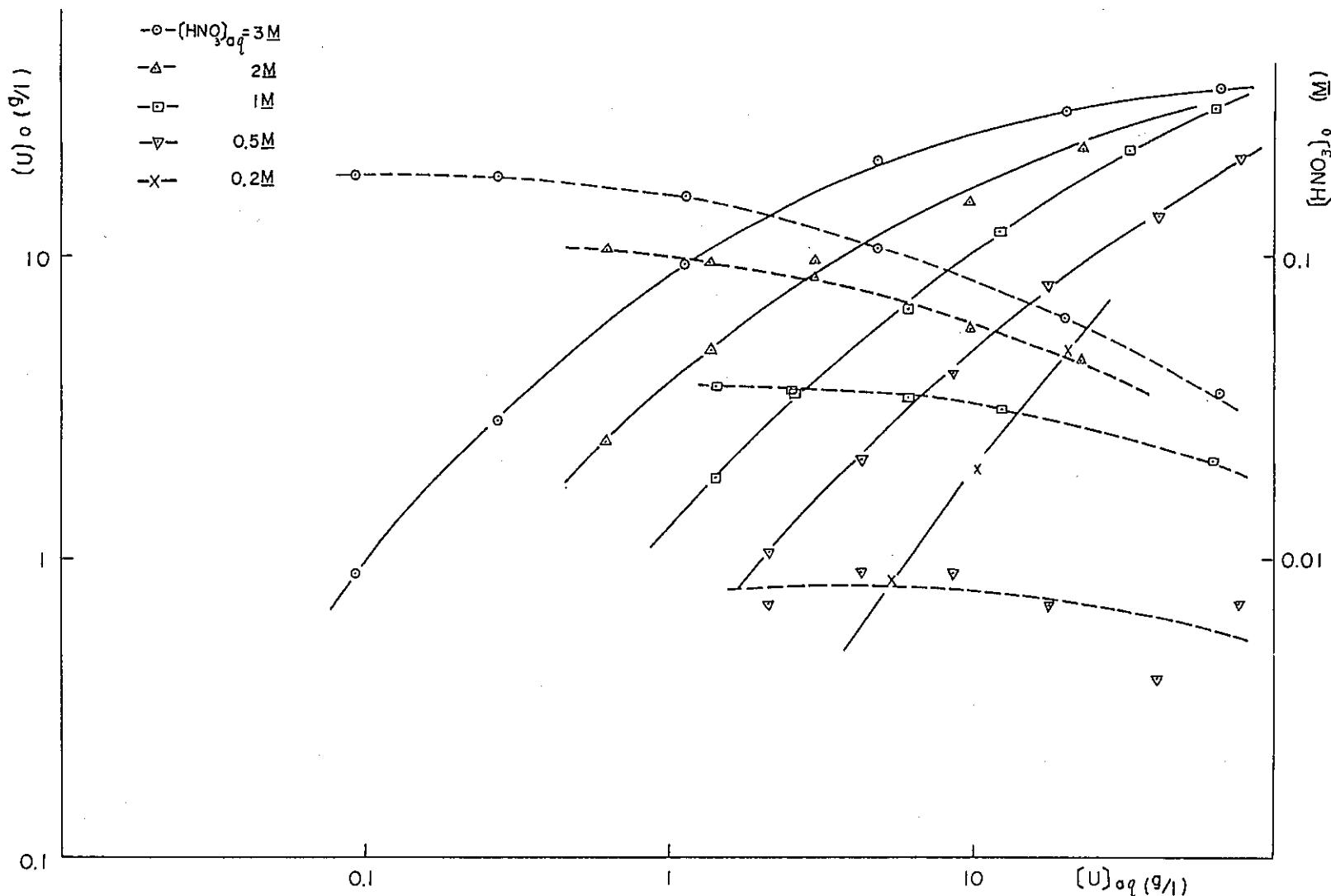
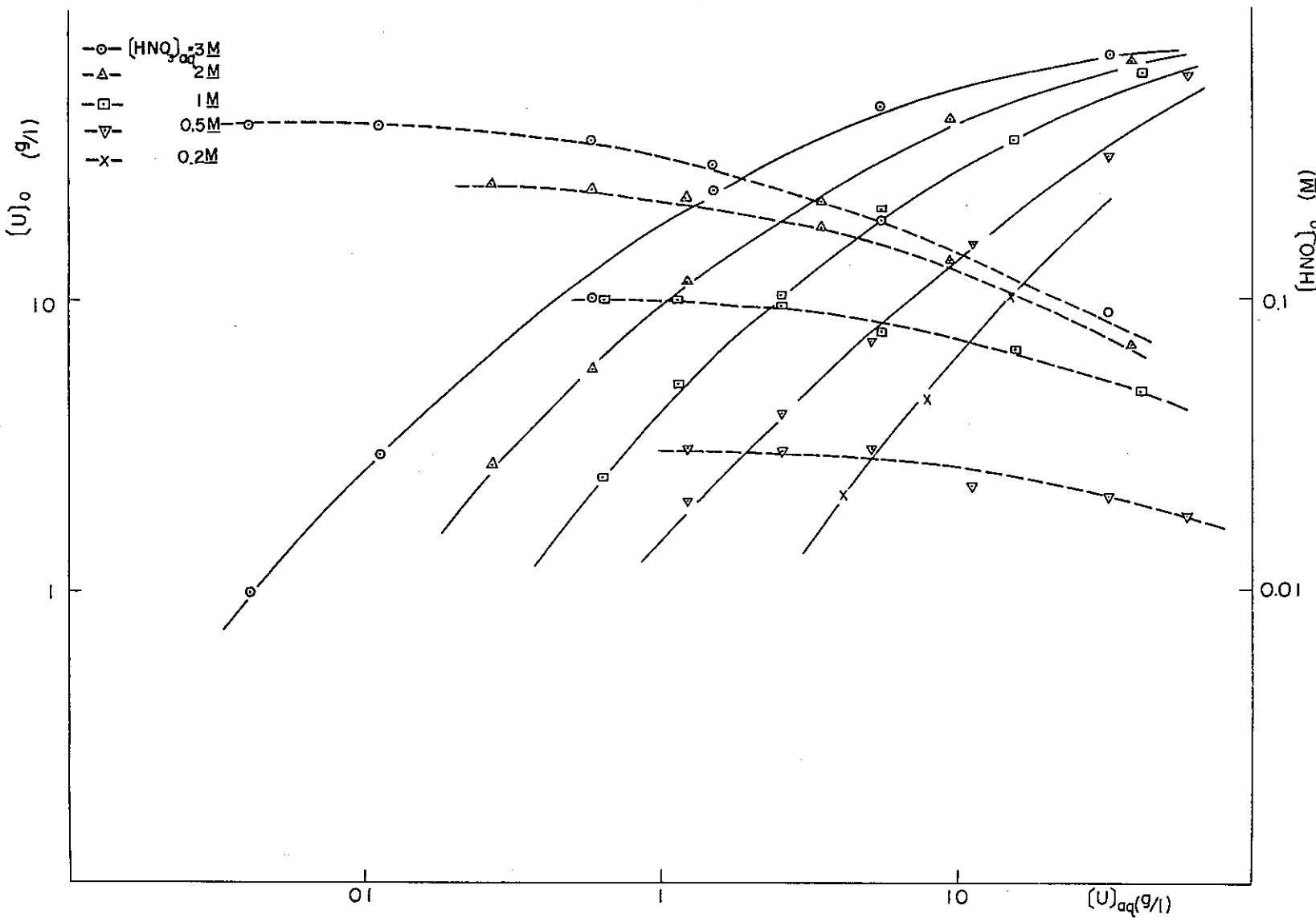


図- 13 抽出器出口濃度経時変化

図-14 塙谷らによって測定された分配データ⁽²⁵⁾Uranium distribution in 10 % (v/v) TBP - HNO₃ system

図-15 坪谷らによって測定された分配データ²⁵⁾Uranium distribution in 20% (v/v) TBP - HNO_3 system

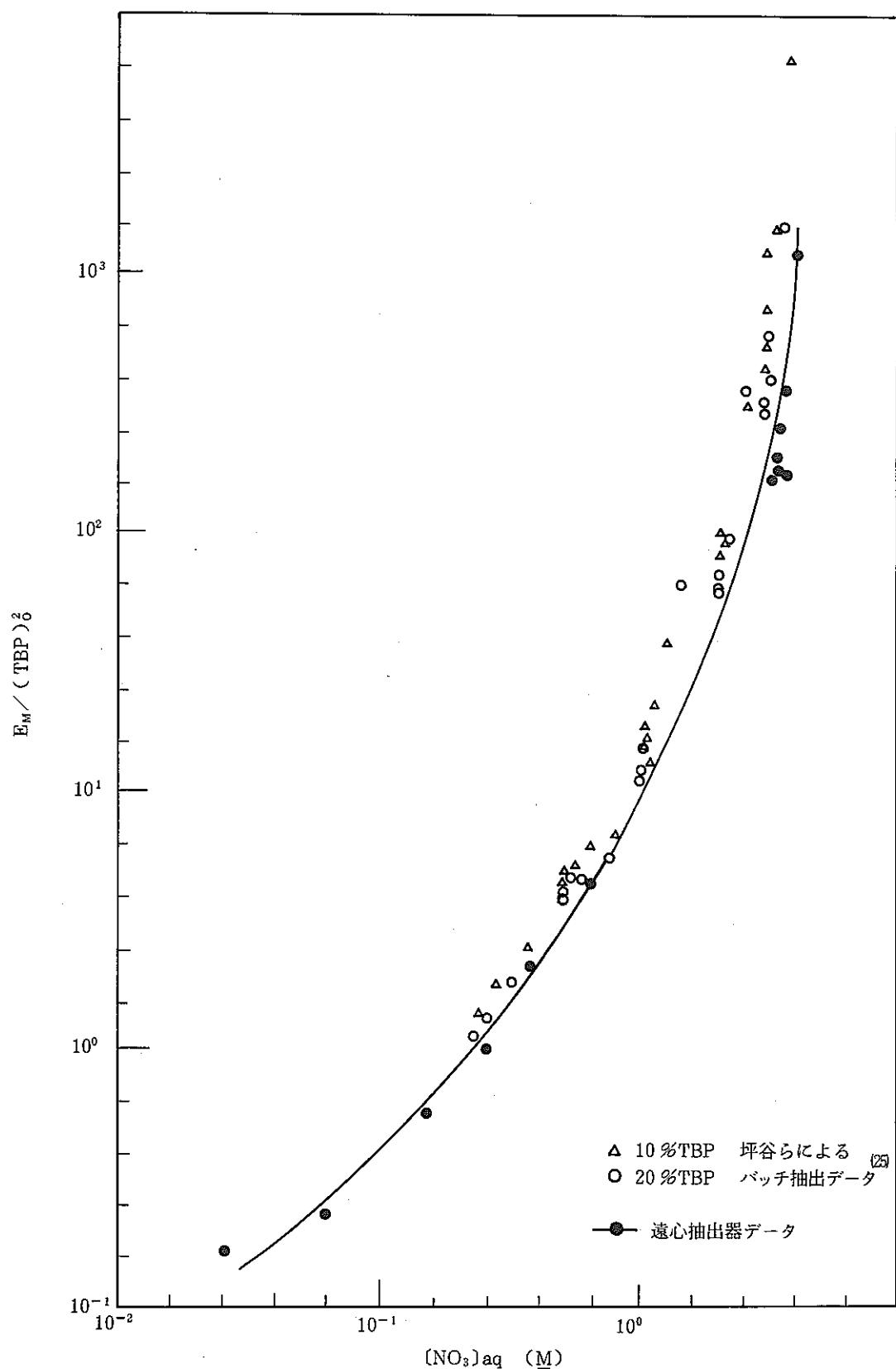
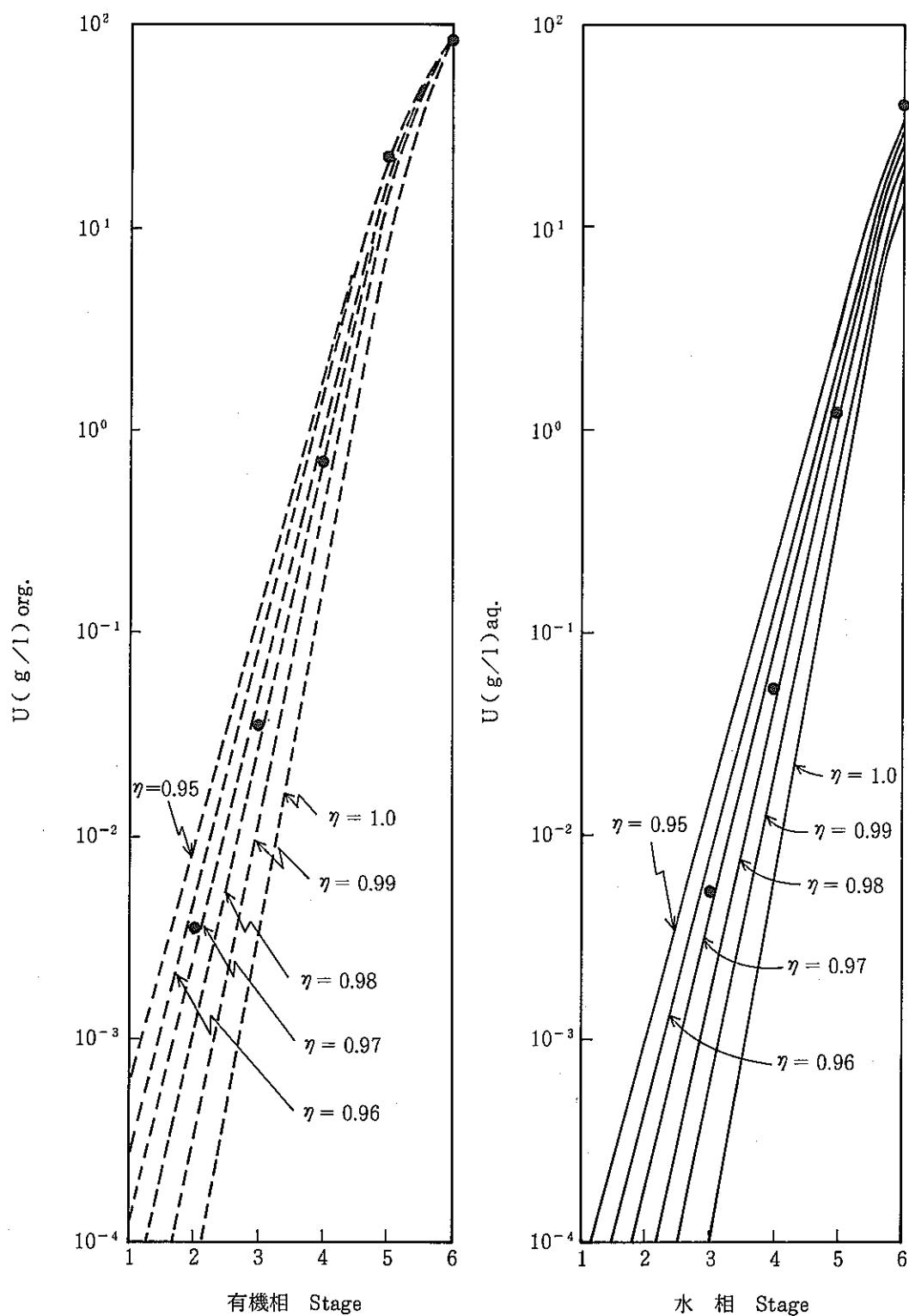


図-16 バッチ法による抽出平衡と遠心抽出器データの比較



線 : MIXSET による計算結果
 ● : 実験結果

図-17 Run-1 ウラン濃度プロファイル

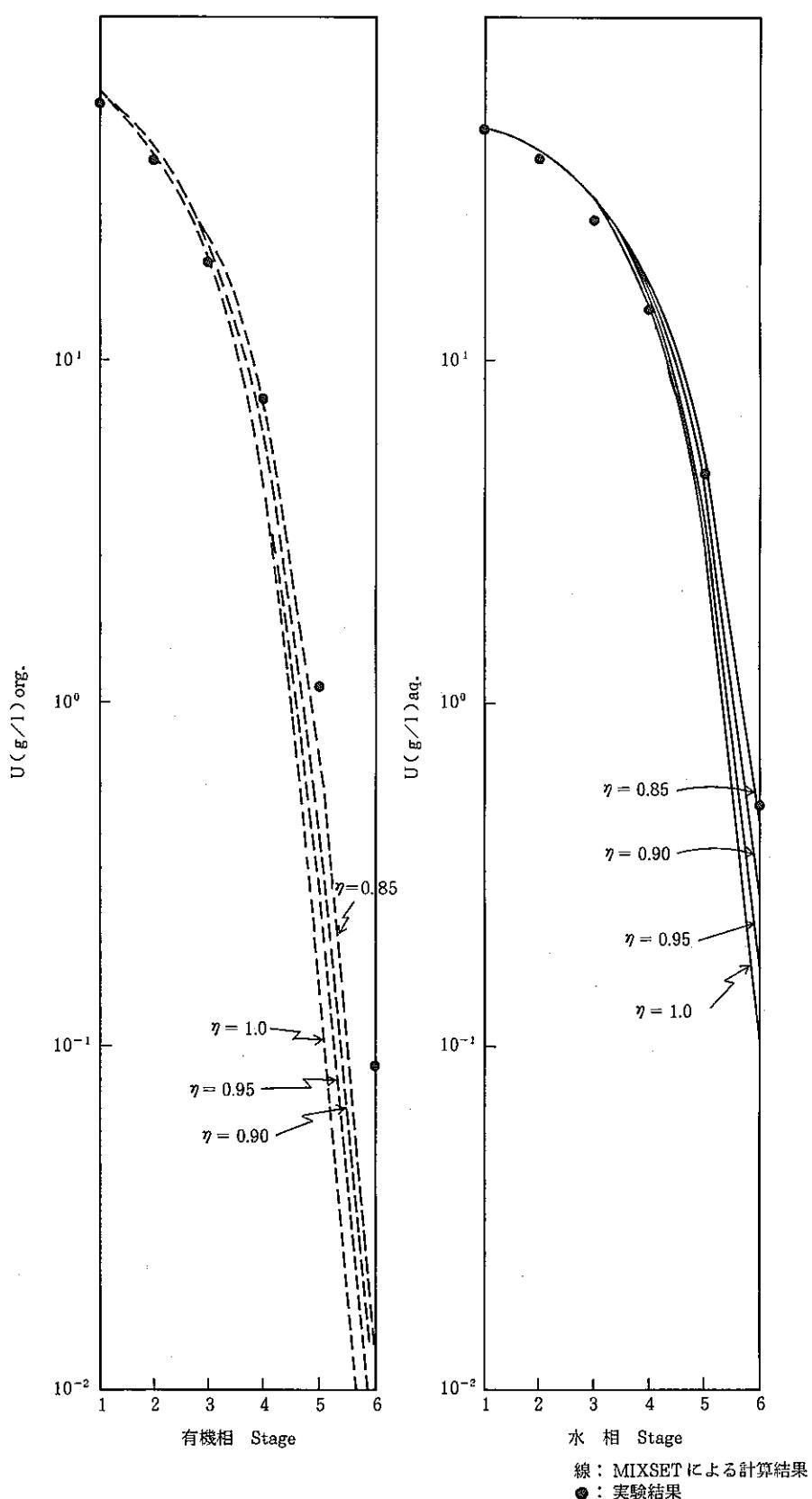


図-18 Run-2 ウラン濃度プロファイル

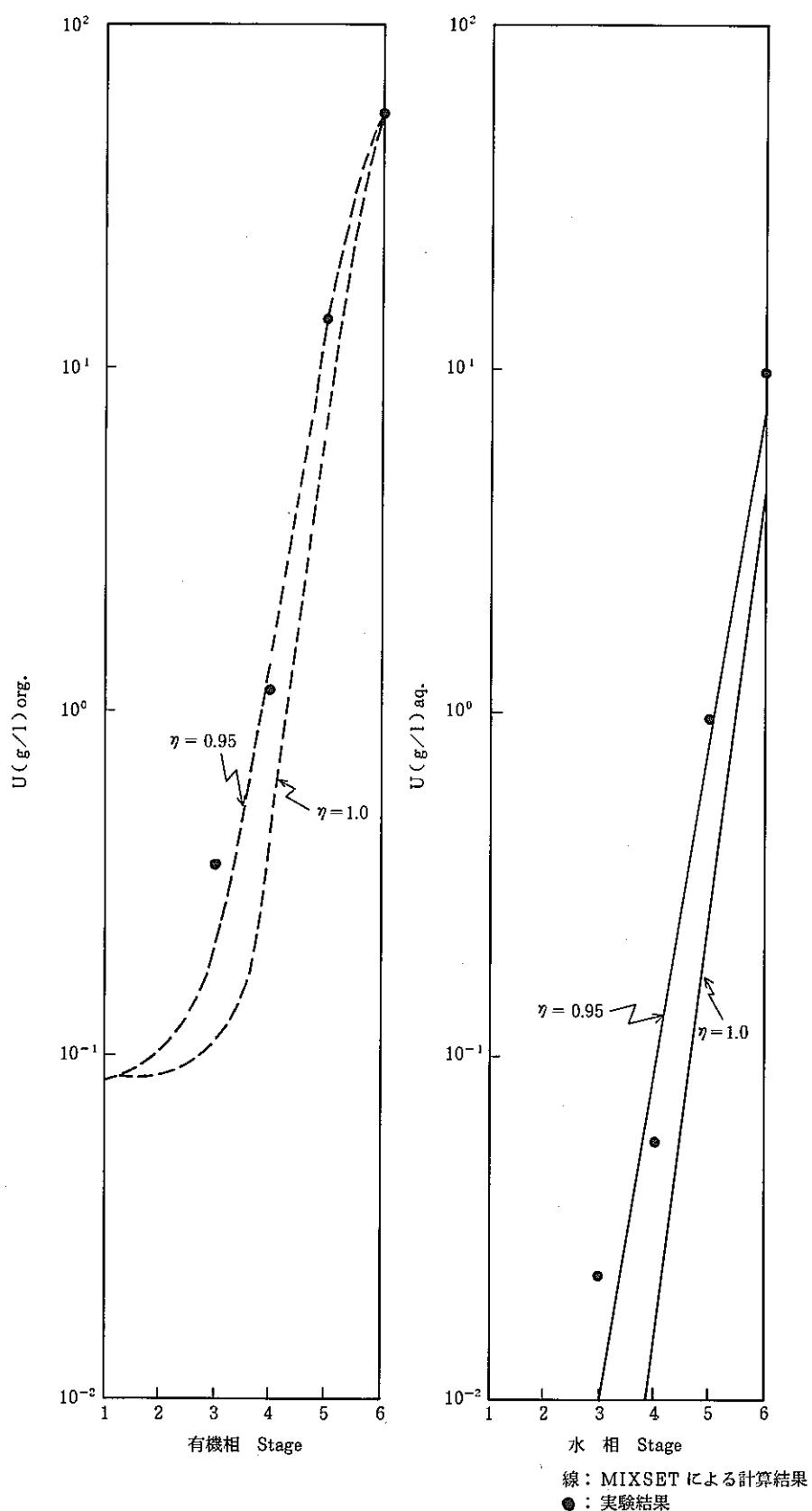


図-19 Run-3 ウラン濃度プロファイル

三

表-1 開発経緯

昭和60年度 (1985)	昭和61年度 (1986)	昭和62年度 (1987)	昭和63年度 (1988)	昭和64年度 (1989)		
単段型の試作 多段ユニット試作 工学設備設計・製作・据付・ウラン試験						
基本的性能確認	抽出器改良	ウラン抽出連続試験（過渡特性）				
<ul style="list-style-type: none"> ●調査 ●油水分離性能 (单段型) 	<ul style="list-style-type: none"> ●多段ユニットによるウラン試験 ●ウラン抽出試験 ●ウラン逆抽出試験 ●段効率把握 	<ul style="list-style-type: none"> ●多段ユニットの改良 ●駆動方式の検討 ●サンプリング方式 ●抽出器交換相互評価 (ORNL/PNC) 	<ul style="list-style-type: none"> ●ウラン抽出過渡特性 			
			<table border="1" style="width: 100px; margin-left: auto; margin-right: auto;"> <tr> <td style="text-align: center;">プロトタイプ機 設 計</td> <td style="text-align: center;">プロトタイプ機 製 作</td> </tr> </table>	プロトタイプ機 設 計	プロトタイプ機 製 作	
プロトタイプ機 設 計	プロトタイプ機 製 作					

表-2 動燃におけるパルスカラム及び遠心抽出器の開発経緯

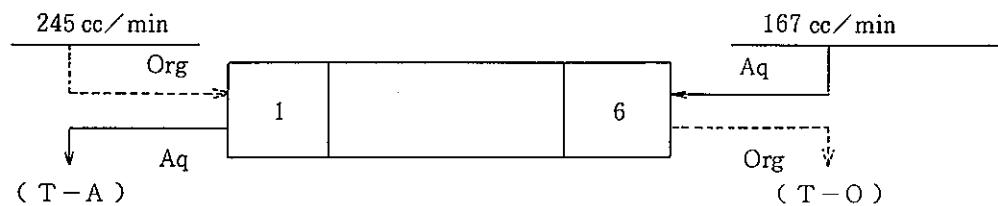
表-4 各国において開発してきた遠心抽出器の特徴

国別 項目	アメリカ		西ドイツ	フランス	インド	スエーデン
	サバンナリバー(SRL)	アルゴンヌ(ANL)				
開発目的	再処理溶媒抽出工程への利用 (ミキサ・セトラと交換)	SRL型抽出器の改良(遠隔メインテンナンス性の向上), 再処理工程用	再処理工程(WAK)用	再処理工程, TRU分離, 希釈剤洗浄	FBR再処理工程用	群分離, 再処理用
抽出器タイプ	ミキサ部, 分離部を設けた2室型	アニュラー型	SRLと同	1軸多段型, 単段型	1軸多段型(フランスと同) アニュラー型(ANLと同)	ミキサ, 分離部独立型
ロータサイズ 直 径	2.5 cm, 12.5 cm, 25 cm	2 cm, 10 cm	8 cm	5.2~67 cm	— 5 cm	—
長 さ	, 15 cm, 47 cm	3.3 cm, 30 cm	13 cm	—	—	—
構 造	ブレード	— ブレードによる	SRLと同	—	—	—
インベントリー	16 ml 1 l —	—	0.84 l	11~10 l	— 200 ml	100 ml
ケー シング 構 造	ミキサ・ロータ分離, ミキサをロータ下部に設けた構造	ミキサ・ロータ分離, ロータ/ケーシング間で混合	SRLと同	たて型多段	—	ミキサ・ロータ独立
多段型	4段, 16段 (ブロック型), 単段をパイピングで多段化	ブロック型, 单段型をパイピングで多段化	单段型をパイピングで多段化	5~8段	1軸3段型	パイピングで多段化
有水分離せき	—, 空気圧による調整法	—, 空気圧による調整法	空気圧法による調整法	空気圧法による調整法	—	—
遠 心 力 (回転数)	—, 300 G (3,000~7,500 rpm), (1,800 rpm)(1,745 rpm)	6,000 rpm, 1,800 rpm~3,500 rpm	3,000 rpm	1,600~200 G 5,000 rpm, (3,600 rpm)	—	~16,000 rpm
メンテナンス法	ロータ抜出し不可	— 上部からロータ抜取り可能	モータをセル外に配置 抽出器本体は直接保守	セル外に軸受 ブーリを配置	—	—
軸 受 位 置	ロータ上部, モータ軸受に直結	ロータ上部, モータ軸受に直結	モータ軸に直結	ロータ上部 駆動はベルト	ロータ軸, 駆動はベルト	—
実 繁 繕	FP, Pu分配試験, SRPの第1サイクル	フローシート研究, ウラン試験のみ	ウラン試験のみ	ウラン試験のみ u精製工程, Am/Cm分離試験	—	TRU分離試験
段 效 率	約100%(ウラン)	85%(ウラン), 約100%(ウラン)	72~100%	約100%	—	100%
濃度プロファイル	Pu, U, FP, あり	ロス率のみ(プロファイル発表されていない)	Uあり, なし(発表されていない)	12段プロファイルあり	—	—
Pu 試 験	実績あり, 有(発表されていない)	無, 無	無	—	—	—
そ の 他	0.2~0.31/min, 20~30l/min, 150~229l/min	0.08~0.21/min, 13l/min	7.5~9.21/min	31/min (15cm径ロータ)	—	ミキシング時間可変型 0.1~20 sec

表-7 第1サイクル抽出部試験結果(Run-1)

ステージ 番号	ウラソ濃度			HNO ₃ 濃度			備考
	有機相 (g/ℓ)	水相 (g/ℓ)	KD _U (有機相/水相)	有機相 (mol/ℓ)	水相 (mol/ℓ)	KD _H (有機相/水相)	
6	83.5	40.8	2.05	0.286	3.68	0.0777	
5	23.3	1.24	18.8	0.642	3.81	0.169	
4	0.725	5.62×10^{-2}	12.9	0.750	3.81	0.197	
3	3.53×10^{-2}	5.32×10^{-3}	6.64	0.740	3.75	0.197	
2	3.80×10^{-3}	4.18×10^{-3}	0.909	0.714	3.60	0.198	
1	—	1.90×10^{-3}	—	0.612	2.98	0.205	

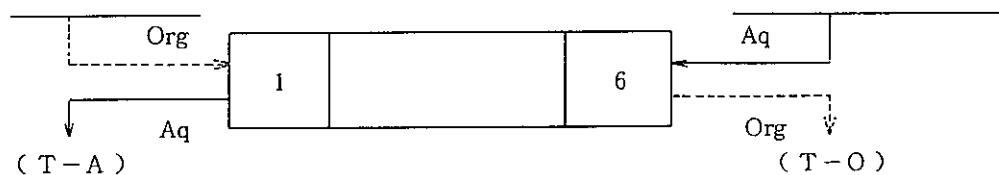
表-8(1) 抽出器出口濃度経時変化



Run No. 1

サンプル No	サンプリング 時刻	(T-A) Aq		(T-O) Org		備考
		U(g/ℓ)	HNO ₃ (mol/D)	U(g/ℓ)	HNO ₃ (mol/D)	
T-1	9:25		1.76		0.460	
T-2	26		1.92		0.642	
T-3	27		1.82		0.637	ウランフィード開始
T-4	36	1.90×10^{-3}	1.88	0.219	0.582	
T-5	37	2.28×10^{-3}	2.19	57.0	0.381	
T-6	38	0	1.98	74.2	0.271	
T-7	39	1.52×10^{-3}	1.90	77.9	0.273	
T-8	40	0	2.00	81.5	0.241	
T-9	41	0	1.96	84.2	0.229	
T-10	42	0.76×10^{-3}	2.29	81.6	0.231	
T-11	43	3.42×10^{-3}	2.50	78.9	0.251	
T-12	44	1.90×10^{-3}	2.23	85.0	0.221	
T-13	9:45	1.52×10^{-3}	2.49	83.4	0.264	
E-4	9:56	1.52×10^{-3}	2.57	87.4	0.236	
E-5	10:17	1.52×10^{-3}	2.59	81.6	0.281	
E-6	10:28	1.90×10^{-3}	2.79	81.6	0.275	
E-7	10:37	1.90×10^{-3}	2.59	81.7	0.256	

表-8(2) 抽出器出口濃度経時変化



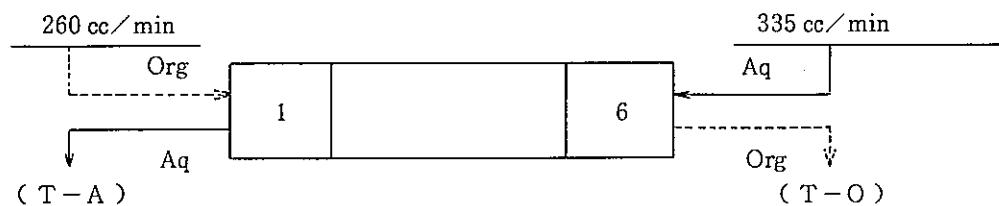
Run No. 1

サンプル No	サンプリング 時刻	(T-A) Aq		(T-O) Org		備考
		U(g/ℓ)	HNO ₃ (mol/l)	U(g/ℓ)	HNO ₃ (mol/l)	
T-21	10:40	0.38×10^{-3}	2.50	71.8	0.306	ウランフィード開始
T-22	41	0.38×10^{-3}	2.70	20.8	0.564	
T-23	42	3.04×10^{-3}	2.56	6.2	0.625	
T-24	43	1.14×10^{-3}	2.44	0.638	0.632	
T-25	44	1.14×10^{-3}	2.73	0.219	0.644	
T-26	45	0.38×10^{-3}	2.68	0.138	0.652	
T-27	46	1.14×10^{-3}	2.49	8.99×10^{-3}	0.648	
T-28	47	0.76×10^{-3}	2.33	5.20×10^{-3}	0.632	
T-29	48	1.14×10^{-3}	2.20	7.59×10^{-3}	0.635	
T-30	10:49	0.38×10^{-3}	2.00	5.89×10^{-3}	0.632	

表-9 第1サイクル逆抽出部試験結果(Run-2)

ステージ 番号	ウラン濃度			HNO ₃ 濃度			備考
	有機相 (g/ℓ)	水相 (g/ℓ)	KD _U (有機相/水相)	有機相 (mol/ℓ)	水相 (mol/ℓ)	KD _H (有機相/水相)	
1	56.8	47.3	1.20	0.033	0.254	0.130	
2	38.5	39.3	0.980	0.007	0.065	0.11	
3	19.4	25.8	0.752	0.007	0.052	0.13	
4	7.65	14.3	0.535	0.006	0.038	0.16	
5	1.12	4.59	0.244	0.004	0.022	0.18	
6	8.88×10^{-2}	0.507	0.175	0.002	0.022	0.091	

表-10 抽出器出口濃度経時変化



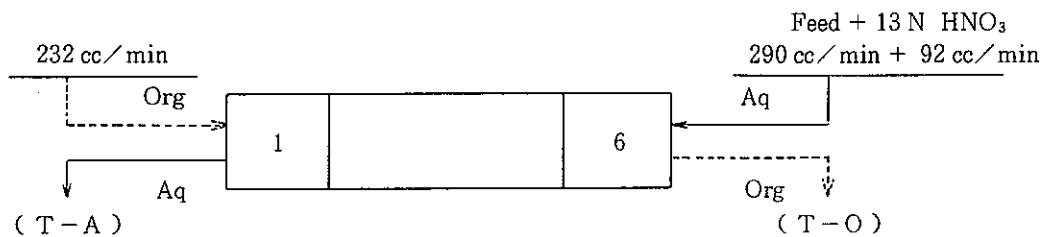
Run No. 2

サンプル No	サンプリング 時 刻	(T-A) Aq		(T-O) Org		備 考
		U(g/ℓ)	HNO ₃ (mol/l)	U(g/ℓ)	HNO ₃ (mol/l)	
T-1	13:34	1.60×10^{-2}	0.249	3.34×10^{-2}	0.026	
T-2	35	7.97×10^{-3}	0.033	0.38×10^{-3}	<0.002	
T-3	36	6.08×10^{-3}	0.028	1.90×10^{-3}	<0.002	
T-4	41	1.12	0.032	0.38×10^{-3}		
T-5	42	23.5	0.213	1.90×10^{-3}		
T-6	43	32.7	0.244	0.76×10^{-3}		
T-7	44	33.7	0.254	8.73×10^{-3}	<0.002	
T-8	45	40.4	0.259	2.28×10^{-2}		
T-9	46	42.7	0.259	3.87×10^{-2}		
T-10	47	39.8	0.254	7.25×10^{-2}		
T-11	48	42.6	0.264	7.48×10^{-2}		
T-12	49	44.9	0.249	0.127		
T-13	13:50	46.0	0.225	0.125	<0.002	
E-4	14:00	46.5	0.249	0.135		
E-5	14:31	47.3	0.239	0.127		

表-11 第2サイクル抽出部試験結果(Run-3)

ステージ 番号	ウラン濃度			HNO ₃ 濃度			備考
	有機相 (g/ℓ)	水相 (g/ℓ)	KD _U (有機相/水相)	有機相 (mol/ℓ)	水相 (mol/ℓ)	KD _U (有機相/水相)	
6	54.4	9.92	5.48	0.395	3.42	0.115	
5	14.0	0.997	14.0	0.646	3.44	0.188	
4	1.17	5.66×10^{-2}	20.7	0.738	3.52	0.210	
3	0.365	2.35×10^{-2}	15.5	0.718	3.42	0.210	
2	(0.327)	(2.58×10^{-2})	12.7	0.724	3.41	0.212	
1	(0.279)	(8.35×10^{-3})	33.4	0.658	2.98	0.221	

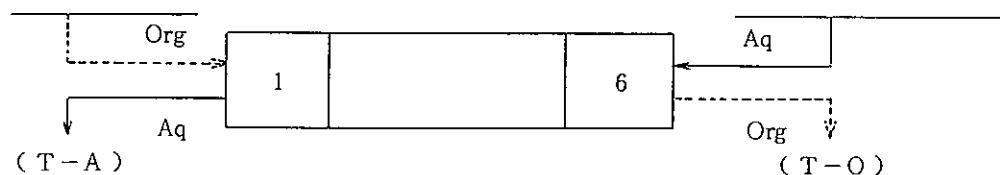
表-12(1) 抽出器出口濃度経時変化



Run No. 3

サンプル No	サンプリング 時 刻	(T-A) Aq		(T-O) Org		備 考
		U(g/ℓ)	HNO ₃ (mol/D)	U(g/ℓ)	HNO ₃ (mol/D)	
T-1	17:01	1.80	2.67	0.145	0.632	
T-2	02	2.51×10^{-2}	2.77	0.190	0.686	
T-3	03	1.14×10^{-2}	2.79	0.200	0.678	
T-4	07	1.29×10^{-2}	2.82	33.9	0.514	
T-5	08	1.44×10^{-2}	2.79	45.2	0.451	
T-6	09	1.29×10^{-2}	2.89	52.8	0.417	
T-7	10	9.11×10^{-3}	2.97	51.8	0.411	
T-8	11	1.22×10^{-2}	3.04	52.8	0.407	
T-9	12	9.49×10^{-3}	3.01	53.7	0.419	
T-10	13	7.59×10^{-3}	3.04	52.3	0.419	
T-11	14	8.35×10^{-3}	3.04	53.7	0.417	
T-12	15	1.25×10^{-2}	3.05	54.4	0.397	
T-13	17:16	1.14×10^{-2}	3.05	52.3	0.421	
E-4	17:22	1.10×10^{-2}	3.02	54.7	0.421	
E-5	17:49	1.29×10^{-2}	3.11	58.1	0.421	

表-12(2) 抽出器出口濃度経時変化



Run No, R

サンプル No	サンプリング 時 刻	(T-A) Aq		(T-O) Org		備 考
		U(g/ℓ)	HNO ₃ (mol/D)	U(g/ℓ)	HNO ₃ (mol/D)	
T-21	17:51	7.59×10^{-3}	3.06	18.6	0.566	
T-22	52	7.97×10^{-3}	3.06	3.46	0.652	
T-23	53	9.49×10^{-3}	3.00	0.494	0.672	
T-24	54	1.03×10^{-2}	2.84	0.325	0.662	
T-25	55	1.25×10^{-2}	2.77	0.259	0.674	
T-26	56	1.03×10^{-2}	2.66	0.193	0.672	
T-27	57	1.06×10^{-2}	2.69	0.217	0.662	
T-28	58	1.22×10^{-2}	2.67	0.212	0.662	
T-29	59	8.73×10^{-3}	2.79	0.183	0.662	
T-30	18:00	9.11×10^{-3}	2.71	0.142	0.666	

表-13 坪谷らによって測定された分配データ⁽²⁵⁾

Results of uranium distribution in aqueous and organic phase

(TBP) 10 % (v/v) ($0.344 \text{ mole} \cdot \text{l}^{-1}$)

$(\text{U})_{\text{aq}}$ (g·l ⁻¹)	$(\text{U})_{\text{org}}$ (g·l ⁻¹)	E_{U}	$(\text{HNO}_3)_{\text{org}}$ (M)	$(\text{TBP})_o$ (mole·l ⁻¹)	$E_{\text{U}} / (\text{TBP})_o^2$	$(\text{NO}_3)_{\text{aq}}$ (M)	Remark $(\text{HNO}_3)_{\text{aq.i}}$ (M)
5.42	0.845	0.16	nil	0.337	1.4	0.246	0.2
10.4	2.00	0.19	nil	0.327	1.8	0.288	0.2
20.9	4.90	0.23	nil	0.303	2.5	0.375	0.2
45.0	3.90	0.087	nil	0.311	0.90	0.578	0.2
2.17	1.05	0.48	0.007	0.328	4.5	0.524	0.5
4.38	2.16	0.49	0.009	0.317	4.9	0.543	0.5
8.60	4.13	0.48	0.009	0.300	5.3	0.576	0.5
17.8	8.07	0.45	0.007	0.269	6.2	0.656	0.5
40.2	13.8	0.34	0.004	0.224	6.8	0.847	0.5
76.8	22.5	0.29	0.007	0.148	13	1.15	0.5
1.51	1.86	1.3	0.037	0.291	15	1.02	1.0
2.56	3.50	1.4	0.036	0.279	18	1.03	1.0
6.16	6.73	1.1	0.031	0.253	17	1.06	1.0
12.6	12.1	0.96	0.031	0.211	22	1.12	1.0
33.8	22.4	0.66	0.025	0.131	38	1.30	1.0
63.7	30.7	0.48	0.021	0.064	1.2×10^2	1.56	1.0
0.629	2.45	3.9	0.11	0.218	82	2.02	2.0
1.38	4.96	3.6	0.095	0.207	84	2.04	2.0
3.02	9.78	3.2	0.085	0.177	1.0×10^2	2.06	2.0
9.88	15.3	1.6	0.057	0.158	64	2.15	2.0
23.3	23.0	0.99	0.045	0.105	90	2.27	2.0
67.6	33.0	0.49	0.027	0.040	3.1×10^2	2.66	2.0
0.093	0.898	9.6	0.188	0.148	4.4×10^2	3.02	3.0
0.278	2.85	10.	0.182	0.138	5.3×10^2	3.03	3.0
1.14	9.38	8.2	0.160	0.105	7.4×10^2	3.06	3.0
4.83	20.8	4.3	0.109	0.060	1.2×10^3	3.14	3.0
20.2	29.8	1.5	0.062	0.032	1.5×10^3	3.31	3.0
64.8	35.7	0.55	0.035	0.009	6.8×10^3	3.71	3.0

表-14 塙谷らによって測定された分配データ²⁵

Results of uranium distribution in aqueous and organic phase

(TBP) 20 % (v/v) (0.688 mole·l⁻¹)

$(U)_{aq}$ (g·l ⁻¹)	$(U)_{org}$ (g·l ⁻¹)	E_U	$(HNO_3)_{org}$ (M)	$(TBP)_o^2$ (mole·l ⁻¹)	$E_U/(TBP)_o^2$	$(NO_3)_{aq}$ (M)	Remark $(HNO_3)_{aq,i}$ (M)
4.18	2.12	0.51	0.007	0.670	1.1	0.235	0.2
7.99	4.55	0.57	nil	0.650	1.3	0.265	0.2
15.4	10.2	0.67	nil	0.602	1.8	0.329	0.2
41.0	9.20	0.22	nil	0.611	0.59	0.544	0.2
1.24	2.04	1.6	0.031	0.540	3.9	0.511	0.5
2.58	4.04	1.6	0.030	0.624	4.1	0.524	0.5
5.04	8.14	1.6	0.031	0.589	4.6	0.543	0.5
11.5	15.5	1.3	0.023	0.535	4.5	0.606	0.5
32.6	30.2	0.93	0.021	0.413	5.5	0.785	0.5
60.2	48.2	0.80	0.018	0.265	11	1.02	0.5
0.628	2.46	3.9	0.099	0.568	12	1.02	1.0
1.16	5.17	4.5	0.099	0.546	15	1.02	1.0
2.58	10.2	4.0	0.094	0.508	16	1.04	1.0
5.53	20.6	3.7	0.077	0.438	19	1.08	1.0
15.9	35.2	2.2	0.067	0.325	21	1.18	1.0
43.9	58.9	1.3	0.048	0.145	62	1.43	1.0
0.273	2.76	10	0.249	0.416	58	2.02	2.0
0.581	5.69	9.8	0.236	0.404	60	2.04	2.0
1.23	11.6	9.5	0.220	0.370	69	2.06	2.0
3.50	21.8	6.2	0.175	0.330	57	2.12	2.0
9.57	40.7	4.2	0.133	0.213	93	2.22	2.0
48.5	66.4	1.4	0.068	0.062	3.6×10^2	2.61	2.0
0.041	0.977	24	0.392	0.288	2.9×10^2	3.02	3.0
0.122	2.99	25	0.385	0.278	3.2×10^2	3.03	3.0
0.584	9.98	17	0.352	0.252	2.7×10^2	3.06	3.0
1.51	23.4	16	0.288	0.203	3.9×10^2	3.14	3.0
5.51	45.8	8.3	0.182	0.122	5.6×10^2	3.28	3.0
32.9	67.1	2.0	0.088	0.036	1.5×10^3	3.60	3.0

表-15 Run-1, 2 及び 3 で得たウラン分配データ

U_{org} (M)	U_{Aq} (M)	$(HNO_3)_{org}$ (M)	$(HNO_3)_{Aq}$ (M)	$(TBP)_o$ (M)	$Eu/(TBP)_o^2$	$(NO_3)_{Aq}$ (M)
0.351	0.171	0.286	3.68	0.042	1162	4.02
0.0979	5.20×10^{-3}	0.642	3.81	0.229	358	3.82
3.05×10^{-3}	2.36×10^{-4}	0.750	3.81	0.274	172	3.81
1.48×10^{-4}	2.23×10^{-5}	0.740	3.75	0.289	79.5	3.75
0.239	0.199	0.033	0.254	0.519	4.45	0.652
0.162	0.165	0.007	0.065	0.699	2.01	0.395
0.0815	0.108	—	0.052	0.867	1.00	0.268
0.0321	0.0600	—	0.038	0.966	0.573	0.158
4.70×10^{-3}	0.0193	—	0.022	1.02	0.235	0.0616
3.73×10^{-4}	2.13×10^{-3}	—	0.022	1.03	0.165	0.0263
0.229	0.0417	0.395	3.42	0.177	174.9	3.50
0.0588	4.19×10^{-3}	0.646	3.44	0.266	198	3.45
4.92×10^{-3}	2.38×10^{-4}	0.738	3.52	0.282	260	3.52
1.53×10^{-3}	9.87×10^{-5}	0.718	3.42	0.309	162	3.42

$$30\%TBP = 1.03 \text{ M}$$

表-16 Run-1条件での計算結果(パラメータ:段効率 0.95 ~ 1.0)

Stage Efficiency : 0.95				Stage Efficiency : 0.98			
STAGE	AQUEOUS PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	ORGANIC PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)	STAGE	AQUEOUS PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	ORGANIC PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)
1	2.6888E+00	6.9382E-05	5.8864E-01	1	2.6212E+00	2.9099E-06	5.7519E-01
2	3.6264E+00	9.4490E-04	7.5514E-01	2	3.5734E+00	6.3768E-05	7.4116E-01
3	3.8917E+00	1.3720E-02	7.9252E-01	3	3.8018E+00	1.5981E-03	7.8170E-01
4	3.9513E+00	2.0132E-01	7.6762E-01	4	3.8664E+00	4.1059E-02	7.8387E-01
5	3.9117E+00	2.9022E+00	5.2717E-01	5	3.8699E+00	1.0524E+00	6.5051E-01
6	3.5288E+00	3.3256E+01	1.9518E-01	6	3.6575E+00	2.2726E+01	2.3771E-01
Stage Efficiency : 0.96				Stage Efficiency : 0.99			
STAGE	AQUEOUS PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	ORGANIC PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)	STAGE	AQUEOUS PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	ORGANIC PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)
1	2.6708E+00	2.8701E-05	5.8506E-01	1	2.5850E+00	5.9644E-07	5.6792E-01
2	3.6027E+00	4.4778E-04	7.5149E-01	2	3.4896E+00	1.6310E-05	7.3343E-01
3	3.8678E+00	7.5656E-03	7.9024E-01	3	3.7532E+00	5.3759E-04	7.7465E-01
4	3.9297E+00	1.2962E-01	7.7690E-01	4	3.8189E+00	1.8363E-02	7.8116E-01
5	3.9085E+00	2.1931E+00	5.6588E-01	5	3.8293E+00	6.2912E-01	6.9210E-01
6	3.5724E+00	2.9967E+01	2.0652E-01	6	3.6875E+00	1.8675E+01	2.6048E-01
Stage Efficiency : 0.97				Stage Efficiency : 1.0			
STAGE	AQUEOUS PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	ORGANIC PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)	STAGE	AQUEOUS PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	ORGANIC PHASE (MIXER) HNO ₃ (MOLE)
1	2.6488E+00	1.0186E-05	5.8071E-01	1	2.5338E+00	6.9106E-08	5.5756E-01
2	3.5738E+00	1.8581E-04	7.4697E-01	2	3.4219E+00	2.4919E-06	7.2229E-01
3	3.8387E+00	3.7518E-03	7.8672E-01	3	3.6843E+00	1.1927E-04	7.6425E-01
4	3.9021E+00	7.7159E-02	7.8237E-01	4	3.7511E+00	6.0463E-03	7.7335E-01
5	3.8952E+00	1.5751E+00	6.0745E-01	5	3.7656E+00	3.0972E-01	7.2649E-01
6	3.6166E+00	2.6471E+01	2.2034E-01	6	3.6910E+00	1.4222E+01	2.9265E-01

表-17 Run-2 条件での計算結果(パラメータ:段効率 0.85 ~ 1.0)

Stage Efficiency : 0.85						Stage Efficiency : 0.95					
	AQUEOUS PHASE (MIXER)		ORGANIC PHASE (MIXER)				AQUEOUS PHASE (MIXER)		ORGANIC PHASE (MIXER)		
STAGE	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)		STAGE	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	
1	2.5243E-01	4.7341E+01	2.0998E-02	6.1688E+01		1	2.5245E-01	4.7346E+01	2.0998E-02	6.0916E+01	
2	3.4168E-02	4.2200E+01	2.8079E-03	4.2360E+01		2	3.4184E-02	4.1677E+01	2.8123E-03	4.0185E+01	
3	2.1722E-02	2.8976E+01	1.7150E-03	2.3280E+01		3	2.1741E-02	2.7493E+01	1.6937E-03	2.0140E+01	
4	2.0975E-02	1.5921E+01	1.2923E-03	7.3110E+00		4	2.0975E-02	1.3777E+01	1.1928E-03	4.9643E+00	
5	2.0685E-02	4.9941E+00	6.5286E-04	6.2977E-01		5	2.0632E-02	3.3940E+00	5.3561E-04	2.6546E-01	
6	2.0248E-02	4.2275E-01	2.9079E-04	1.1906E-02		6	2.0183E-02	1.7897E-01	2.6841E-04	3.8938E-03	
Stage Efficiency : 0.90						Stage Efficiency : 1.0					
	AQUEOUS PHASE (MIXER)		ORGANIC PHASE (MIXER)				AQUEOUS PHASE (MIXER)		ORGANIC PHASE (MIXER)		
STAGE	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)		STAGE	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	
1	2.5244E-01	4.7344E+01	2.0998E-02	6.1300E+01		1	2.5245E-01	4.7347E+01	2.0998E-02	6.0535E+01	
2	3.4177E-02	4.1938E+01	2.8102E-03	4.1255E+01		2	3.4187E-02	4.1418E+01	2.8140E-03	3.9148E+01	
3	2.1733E-02	2.8223E+01	1.7048E-03	2.1663E+01		3	2.1745E-02	2.6784E+01	1.6817E-03	1.8709E+01	
4	2.0977E-02	1.4817E+01	1.2427E-03	6.0371E+00		4	2.0971E-02	1.2800E+01	1.1432E-03	4.0684E+00	
5	2.0661E-02	4.1260E+00	5.9018E-04	4.0788E-01		5	2.0603E-02	2.7821E+00	4.8869E-04	1.7428E-01	
6	2.0214E-02	2.7450E-01	2.7719E-04	6.6865E-03		6	2.0154E-02	1.1764E-01	2.6233E-04	2.3344E-03	

表-18 Run-3 条件での計算結果(パラメータ:段効率 0.95, 1.0)

Stage Efficiency : 0.95						Stage Efficiency : 1.0					
	AQUEOUS PHASE (MIXER)		ORGANIC PHASE (MIXER)				AQUEOUS PHASE (MIXER)		ORGANIC PHASE (MIXER)		
STAGE	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)		STAGE	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	HNO ₃ (MOLE)	U(VI) (G/L)	
1	3.2722E+00	3.1018E-03	6.9645E-01	8.8770E-02		1	3.2276E+00	3.0741E-03	6.8870E-01	8.7573E-02	
2	3.6831E+00	3.5688E-03	7.6346E-01	1.0099E-01		2	3.6337E+00	2.8142E-03	7.5596E-01	8.8567E-02	
3	3.7237E+00	1.0990E-02	7.6835E-01	2.2470E-01		3	3.6746E+00	3.4167E-03	7.6218E-01	1.0839E-01	
4	3.7267E+00	8.6121E-02	7.5587E-01	1.4538E+00		4	3.6784E+00	1.5458E-02	7.6067E-01	4.8849E-01	
5	3.7191E+00	8.3258E-01	6.5628E-01	1.2045E+01		5	3.6775E+00	2.4630E-01	7.2375E-01	7.1519E+00	
6	3.6587E+00	7.2649E+00	3.7857E-01	5.5240E+01		6	3.6550E+00	4.2982E+00	4.5201E-01	5.5241E+01	

4. 付録（調査結果の概要）

諸外国における遠心抽出器の開発と経緯

4.1 米 国

前述したように米国においては Savannah River Laboratory (SRL) と Argonne National Laboratory (ANL) が遠心抽出器開発の中心を成していたと考えられる。1960 年代～1970 年代にかけてこの両機関からの遠心抽出器に関する技術報告がかなり多くされている。

—SRL における開発—

図 4.1 で SRL で 1962 年当初開発された抽出器の断面図を示す。⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾ ロータの直径は臨界安全の観点から中性子毒を含まない材料の場合、7 インチの上限を越えないことを考慮し、5 インチと設計された。ロータの長さは 6 インチである。

この抽出器を用いて 6 % TBP - 0.5 M HNO₃ 系での水力学的試験が実施された。図 4.2 には結果の 1 例を示したが、回転数をパラメータとして最大処理流量を求めたものである。

最大流量は回転数に対して 0.8 乗の直線関係が得られている。また分離部の容積は約 1 ℥ で、その他の部分（混合部等）は 0.5 ℥ であり、滞留時間は最大流量条件下で約 5 秒である。この結果を一般的なミキサセトラと比べると 1 / 20 ~ 1 / 50 になると紹介されている。図 4.3 は同抽出器の鳥瞰図である。翌年の 1963 年には直径 10 インチロータ 6 段から成るユニットの開発⁽¹¹⁾を行っている。ロータの長さは $18\frac{3}{4}$ インチで、そのうち $4\frac{1}{2}$ インチはせき部である。図 4.4 に 6 段型ユニットのプロトタイプ機の写真及び図 4.5 にその配置図を示す。この段階で使用された材料は SUS 304 であり、モータは 3 相、440 V の 5 馬力で回転数 1745 rpm で使用された。ロータ内分離部の平均遠心力は 300 G である。図 4.6 に示した結果は水相 / 有機相流量比をパラメータとして処理流量を求めたものである。これは取出された有機相中、水相中のエントレインメントが 0.5% 及び 2% での値である。更にウランの抽出試験においては 89 ~ 90% の段効率を得ており、抽出部として 5 段を用いた結果、水相ストリームへのウランロスは 0.0008% であった。なお、段効率は抽出部の方が逆抽出部より高い値が得られており、この結果は別途実施した 16 段ミニチュア遠心抽出器によって得られた結果と一致する。この 16 段型ミニチュア遠心抽出器はほぼ同時期に各種元素の抽出効率を求めるために開発されたものである。⁽¹¹⁾ 図 4.7 に上部から見た 16 段抽出器の図を示したが、特徴は分離ロータ径が 3 / 4 インチで、滞留量も 10 ml / 段と小さく、かつギヤによって全てのロータ及びミキサが駆動できるようになっていることと、それらを個々に取出せるようになっていることである。図 4.8 及び図 4.9 に示した結果は 4 段型のミニチュア遠心抽出器によって得られたウラン抽出段効率で、回転数をパラメータとして表わしたものである。この 4 段型抽出器は 16 段型を設計するために用いられ、ロータ径は 1 インチ、かつ滞留量は 16 ml / 段である。本試験によって、1 段当りの滞留時間が 3 秒となる条件下でのウラン

抽出段効率 95% が確認されている。

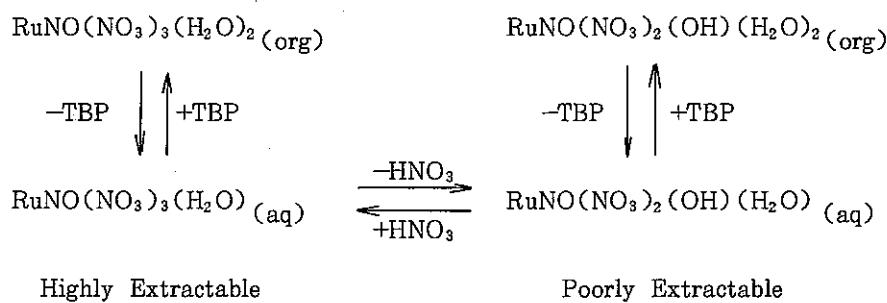
一方、次の年の 1963 年には上記 16 段型のミニチュア遠心抽出器を用い、FP の抽出・洗浄に関する試験及び Pu/U の分配試験が実施された。これまでに FP 及び Pu/U 分配に関する報告がなされてなく、かつ滞留時間が 4 秒以下といった条件下でプルトニウムの還元分配の可能性について未だ実証されていなかったために、これらの試験が実施された。図 4.10 に本試験のフローシートを、表 4.1 には試験条件を示す。

結果を要約すると、1 段当り 4 秒の滞留時間の条件下で得た結果は通常のミキサセトラを用いて得られた結果と一致していた。

なお、図 4.11 に示すように 1 A バンク（抽出・洗浄バンク）におけるルテニウムの除染係数は温度依存性を受け、35 ~ 40°C の温度では 600 であったが、55 ~ 65°C となると 10^4 に上昇する。又プルトニウムの還元分配に関しては供給液中の NO_2 濃度が重要で、共存 NO_2 を分解したのちフィードすることによって、プルトニウムの還元分配が有効に起こることが確認されている。用いた還元剤はスルファミン酸第 1 鉄及びウラナスであり、両者に大きな差は見られず、ウランプロダクトへのプルトニウムの混入量は 0.05% 以下であった。プルトニウム分配部の濃度プロファイルを図 4.12 に示す。この他本試験の一環として、照射レベル、溶媒飽和度及び溶媒の質（照射溶媒、未照射溶媒）などについての影響も調べられている。

更に、ルテニウム除染係数の温度依存性について次のように説明している。

洗浄部におけるルテニウムの分配係数（有機相濃度 / 水相濃度）は 37°C で約 0.4 であった。この値は流量比（有機相 / 水相）5.7 を考慮すると抽出されることになり洗浄効果がない。これに対して 65°C 条件下における分配係数は 0.1 であり、十分に洗浄効果が生じ除染係数も 300 増大した。ルテニウムのトリニトラトニトロシル錯体の化学から TBP への抽出反応は次に示すように、



トリニトラトニトロシルルテニウムはジントラトニトロシルよりも TBP への抽出性が高い。更に表 4.2 には、

表 4.2⁽¹²⁾ Properties of Trinitrato Nitrosyiruthenium

Temp, °C	Organic-to-Aqueous Distribution Coefficient		Half-time for Conversion of RuNO(NO ₃) ₃ to RuNO(NO ₃) ₂ ^(a) , min	
	Experimental	Calculated	Experimental	Calculated
37	0.42	0.47	> 0.06	1.45
55	—	0.19	—	—
65	0.1	0.08	> 0.06	0.15

(a) RuNO(NO₃)₂ has a much lower organic-to-aqueous distribution coefficient than RuNO(NO₃)₃.

ジニトラニトロシルルテニウムへの変還速度と分配係数の温度依存性を示した。これからルテニウムの除染係数は高温で、かつ滞留時間の短い抽出器の場合、トリニトラニトロシルルテニウムに支配される。高除染係数を得るにはより洗浄段を増せば良いことになる。

以上のように SRL では 1960 年代にかなり活発に開発が進められていた。一方、1984 年に開催された American Nuclear Society では最近の SRL における遠心抽出器運転状況が紹介されている。それによると、1960 年代初期に、それまでサバンナリバープラントで使用されてきたミキサセトラに替り遠心抽出器を使用するとの目的で遠心抽出器が開発された。この抽出器は 1966 年に第 1 サイクル部に設置され現在まで運転されてきている。採用されている抽出器は図 4.5 に示した抽出器と同じタイプである。図 4.13 にはサバンナリバープラントのフローシートを示す。遠心抽出器は本図に示してあるように第 1 サイクル部に採用されている。

一方、図 4.14 には採用されている抽出器のフローパターンを示した。図 4.15 は追って述べるが、SRL 型を基に ANL で改良された抽出器の断面図である。又、ORNL からも遠心抽出器を用いた再処理計画の紹介がされている。⁽⁶⁾⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾ これによると、ORNL では FFTF (Fast Flux Test Facility) の燃料を対象とし 60 KHM/d (6 MTHM/y) の能力を有する BRET (Breeder Reprocessing Engineering Test) を Richland の近くに建設する計画であり、その目的は高速炉燃料再処理技術の実証と開発とされている。なお、採用予定の遠心抽出器は、ANL、SRL と同様のものである。抽出剤としては 30% TBP-70% n-dodecane が使われ、ケミカルフローシートは、(1)共除染、(2) Pu/U 分配、(3) U 精製、(4) 2 サイクルの Pu 精製、の 5 サイクルで構成される。

- ANL における開発 -

これまで開発されてきた SRL 型遠心抽出器の改良を目的として開発を開始した。⁽²⁾ その改良のポイントは、(1)ミキシング室とミキシング用インペラ及びフィールドノズルを除去しロータとケーシング間のギャップで混合するようにした。これに伴ってフィールドノズルをケーシング下部から側面に変更した点、(2)これによってロータの軽量化を図り、バランシングをとり易くした。これらの改良により、遠隔メンテナンス性の向上につながった。図 4.16 には SRL 型と ANL で開発された遠心抽出器の断面図を示す。

1970 年に製作した抽出器は直径 4 インチのロータで高さが 12 インチ⁽¹⁵⁾ であり、アニユラー型遠心抽出器と呼ばれた。界面制御については SRL 型と同じ方法で空気圧コントロール方式が採用された。(回転軸の上部から軸の中心に設けられた通路を通しそき室内の圧力を調整する方法)。

処理能力についても 2000 rpm で 20 ~ 35 ℓ / min であり、更に 3500 rpm では 50% ほど上昇するものであった。この能力は基本的に SRL 型と同等である。

ロータは 1 馬力、1800 rpm の市販スピンドルモータに直結され、吊り下げられるように取付けられた。本抽出器のサイズはプルトニウム含有量の高い FBR 燃料再処理を目的として臨界安全の観点から決定されたものである。表 3, 4 及び 5 にはウラン抽出段効率を示したが、この効率は次式によって求められたものである。

水相を対象とした場合、

$$E_A = \frac{A_i - A_o}{A_i - A_e} \times 100$$

ここで、

A_i : 供給水相中のウラン濃度 (M)

A_o : 水相出口中のウラン濃度 (M)

A_e : 運転時の有機相出口濃度と平衡関係にある水相中のウラン濃度 (M)

一方、有機相を対象とした場合、

$$E_o = \frac{O_o - O_i}{O_e - O_i} \times 100$$

ここで、

O_o : 有機相出口中のウラン濃度 (M)

O_i : 供給有機相中のウラン濃度 (M)

O_e : 運転時の水相出口濃度と平衡関係にある有機相中のウラン濃度 (M)

表 4.3⁽¹⁵⁾ Stage Efficiencies in Uranium Extraction
(Annular Mixing Mode)

Aqueous Phase : 0.410 M U, 0.88 M HNO₃

Organic Phase : 0.100 M U, 0.046 M HNO₃ in 30% TBP in n-dodecane

Aqueous-Organic (A/O) : 1

Rotor Speed, rpm	Total Flowrate, gpm	E _A , Z	E _o , Z	E _{Ave} , Z
2000	4	113	100	107
2500	4	105	98	101
3000	4	105	97	101
3000	7	98	94	96
3500	7	97	97	97

表 4.4⁽¹⁵⁾ Stage Efficiencies in Uranium Mtripping
(bypass line closed, annular mixing mode)

Aqueous phase : 0.049 M HNO₃

Organic phase : 0.304 M U and 0.42 M HNO₃ in 30% TBP in n-dodecane

Aqueous-to-Organic (A/O) Ratio : 1

Run	Rotor Speed, rpm	Total Flowrate, mpm	E _A , Z ^a	Z _o , Z ^b	E _{ave} , Z ^c
USA-1 a	2000	4	104	100	102
USA-1 b	2500	4	96	103	99
USA-1 c	3000	4	113	105	109
USA-1 d	3000	7	114	100	107
USA-1 e	3500	7	102	106	104

^aStage efficiency based on aqueous samples.

^bStage efficiency based on offorganic samples.

^cAverage of E_A and E_o.

表 4.5⁽¹⁵⁾ Stage Efficiencies in Uranium Stripping
(bypass line open, annular mixing mode)

Aqueous Phase : 0.049 M HNO₃

Organic phase : 0.304 M U and 0.42 M HNO₃ in 30% TBP in n-dodecane

Aqueous-to-Organic (A/O) Ratio : 1

Run	Rotor Speed, rpm	Total Flowrate, gpm	E _A , Z ^a	E _o , Z ^b	E _{ave} , Z ^c
USA-2 a	2000	4	100	94	96
USA-2 b	2500	4	105	103	104
USA-2 c	3000	4	103	101	102
USA-2 d	3000	7	104	106	105
USA-2 e	3500	7	102	107	104

^aStage efficiency based on aqueous sample analyses.

^bStage efficiency based on organic sample analyses.

^cAverage of E_A and E_o.

なお流量が 4 gpm の時の滞留時間は約 2 秒で、7 gpm 時のそれは 1.1 秒である。いずれのケースにおいても平均段効率は約 100% と高い。

一方、1980 年の "Separation science and Technology" に ANL から報告された文献によると、ANL では上述したようなプラントスケールの抽出器の製作と併行してラボスケールのアニュラー型多段抽出器の製作も行っており、ラボスケールの抽出器はフローシートの研究に使われた。そのロータ直径は 2 cm で、かつケーシングとロータ間のギャップつまりミキシング部は 0.5 cm である。図 4.17 にラボスケールの抽出器写真を示す。図 4.18 には試験フローシートと条件を示した。本条件に基づき実施したウラン試験の結果の 1 例として、表 4.6 に各段の水相ウラン濃度を示す。これによると、抽出段効率の平均は $85 \pm 2\%$ である。

一方、図 4.19 には逆抽出濃度プロファイルを SEPHIS 計算結果と共に示した。逆抽出部の段効率は手計算結果によると $85 \pm 15\%$ であった。

表 4.6⁽¹⁶⁾ Stage-to-Stage Results for Uranium Extraction Test

Stage	Uranium Concentration, <u>M</u> , in Aqueous Exit Stream	Stage Efficiency, %
1	3.3×10^{-5}	86
2	2.2×10^{-4}	87
3	1.6×10^{-3}	83
4	8.8×10^{-3}	86
5	5.55×10^{-2}	83
6	2.5×10^{-1}	87
Average stage efficiency		85 ± 2

4.2 西ドイツ⁽³⁾

西ドイツにおける第1再処理プラント "WAK" の運転開始を1970年として建設を進めていた時点に、高燃焼度の使用済燃料を再処理する場合の問題として溶媒劣化や除染係数の低下が心配されていた。このような問題に対応するための遠心抽出器開発情報が1969年に報告されている。⁽³⁾ WAKで採用するミキサセトラの滞留時間は15分であり、第1サイクルのFP濃度の高い部分に滞留時間の短い遠心抽出器を採用することに利点ありとされていた。また、処理能力が高く、小型であるがゆえに臨界安全の点でも遠心抽出器は利点があるともされていた。図4.20にWAKのフローシートを示す。

WAKで開発した遠心抽出器はSRL型抽出器の改良型である。特に大きな違いは、駆動部であるモータを遮へいの外に出した点である。その他としてはロータ直径を80mmとしたような違いはあるが、基本的にはSRL型と同じである。断面図を図4.21に、仕様を表4.7に示す。

表4.7⁽³⁾ Characteristics of the Prototype of Centrifugal Contactactor

rotor (diameter)	80 mm
rotor (length)	130 mm
r_o^* (organic weir)	16 mm
r_a^* (aqueous weir)	19 mm
r_a^* (aqueous weir with air control)	26 mm
hold up, mixer	0.12 liters
hold up, settler	0.72 "
hold up, overall	0.84 "
centrifugal field	400 g
power requirement per stage	500 W
rotor speed	3000 rpm
material (SS)	DIN 14541

ウラン試験には図4.22に示したWAKの第3サイクルフローシートが用いられた。図4.23, 4.24に抽出、逆抽出に関する結果を示したが、抽出部についてはほぼ100%の段効率が得られている。

しかしながら、逆抽出部では72%にしか達しなかった。この理由は物質移動速度の違いによるもので、通常逆抽出操作に使用されている50~60°Cの条件に比べ、今回の逆抽出操作は22°Cを行った。このため物質移動の速度が遅かった可能性があると説明している。

4.3 インド⁽⁷⁾⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾

高速炉燃料再処理用溶媒抽出器として、遠心抽出器を開発対象とする方針が決定されている。最初の試みとして単段型抽出器の試作が行なわれ、水力学的試験を通じ設計データを採取するための研究が実施された。

なお、この抽出器のロータサイズは直径 5 cm でホールドアップが 200 ml であり、アニューラータイプにも変更できるように配慮されたものであった。駆動部、シール方法の検討などを通し、現段階では図 4.25 に示すようなアニュラー型遠心抽出器が開発されている。

一方、1981 年にロンドンで開催された会議⁽¹⁷⁾においては、上記単段型抽出器と共に多段型抽出器の開発についても紹介され、図 4.26 に示した 1 軸 3 段型の抽出器が開発されている。本抽出器は水力学的試験、物質移動に関する試験を経て、ホットセル内での信頼性評価を行うための長時間運転を行う段階に達している。

4.4 その他（スエーデン、フランス）

スエーデンにおいては再処理高レベル廃液中に含まれている超ウラン元素の分離研究に遠心抽出器が用いられている。いわゆる“群分離研究”である。群分離研究の詳細について触れるることはさけるが、J.O. Liljenzin⁽¹⁹⁾ らのレポートによると、高レベル廃液中の超ウラン元素を分離し、炉内で消滅することによって長期間に渡る高レベル廃棄物のリスクは劇的に減少するとされている。これまで模擬高レベル廃液にアクチニドや FP を混ぜ、ラボスケールのミキサセトラを用いた試験がされてきている。しかし実高レベル廃液を対象とすると放射線による損傷の影響が生じる。これを解消するため遠心抽出器が良いとされ分離技術の紹介がなされている。なお、ここで使用されている抽出器はミキサ部とセトラ部が分離されセトラ部に遠心分離が採用されているタイプである。(MEAB-Type) 本抽出器の段効率は 100% で、エントレインメントも 0.01% 以下と低い。

更に、特徴はミキシング時間が 0.1 ~ 20 秒まで可変できることである。材質は遠心分離部がチタン (Pd で安定化したチタン) でその他はステンレス製で作られた。図 4.27 に写真を示す。本抽出器はすでに原子力化学分野や、小規模再処理試験に使われてきている。表 4.8 には J.O. hiljenzin らが紹介している遠心抽出器の比較表を示す。

表 4.8⁽¹⁹⁾ Commercial Centrifugal Extractors and Mixer—Centrifugal Separators

Manufacturer	Savannah River Lab ^a		Robatel SLPI, Genas, France ^b			MEAB ^c
	SRL—small	SRL—large	LS 324	LX 208 N	BXP 320	H—33
Type	Sharples-type separator with inlet mixing chamber, pneumatic interface control		Stacked stages of mixing chambers and disc type separating chambers	Sharples-type with inlet mixing chambers		Baffle separator and external mixer
Stages per unit	1	1	4	8	1	1
Max. capacity, m ³ /h ^d	0.5	14	1.6	0.2	6	0.3
Holdup volume, liter	0.2	30	~ 10	0.37	17	0.1
Rotational speed, rpm	1800	1700	1700—3400	600—3600	2900	≤ 16.000
Centrifugal force, g	430			37—1300		
Mixing time, s/stage ^e	0.5	0.6	~ 0.5		~ 1	~ 0.1—20
Holdup time, s, total	5	6	22		10	1

^aE. I. duPont de Nemours, Savannah River Laboratory, Aiken, S.C.; commercialization uncertain (23, 24).

^bRobatel et Mulateur, Genas, France (25).

^cMEAB Metallextraktion, V. Frolunda, Sweden (26).

^dNormal conditions may be 1/2 maximum capacity.

^eWhen not given in literature assumed to be 1/10 of holdup time per stage.

更に、彼らは遠心抽出器を用いた場合のプラントサイズ、操作コストの評価も行っており、それによると、ミキサセトラ又はパルスカラムを採用したプラントに比べ1/10～1/20にサイズが減少でき、かつコストについても1/5程度の運転コストとなるとしている。

フランスについてはローバーテル型の1軸多段型抽出器が良く知られている。動燃でもローバーテル社製の8段型抽出器(LX-208 N)を過去に購入し1977年の原子力学会でウランの抽出特性を報告⁽²⁰⁾している。

一方、1979年に開催されたAmerican chemical Societyにフランスから遠心抽出器によるAm-Cmの分離研究が報告されている。⁽²¹⁾ここで使用された抽出器はラボスケールで物質移動と精製プロセス研究のために開発された単段型(EC 8-1)であり、ミキシング部と分離部が観察できるように配慮されている。図4.28に開発されたEC 8-1型抽出器を示す。ミキシング部の容積は1cm³で全ホールドアップが8cm³であるが、試験の中でエントレインメントを防止するためセトリング部を10cm³に変更されている。

ロータの回転数は 3600 rpm でこれはロータ内界面位置にかかる遠心力が 200 G に相当する。使用された抽出剤は対象元素が Am (U) - Cm の分離であるため TBP ではなく、HDEHP (bis (zethyl hexyl) phosphoric acid, Topo (tri n-octyl Phosphine oxide, HD (DIBM) P (bis (2,6 dimethyl 4 heptyl) phosphoric acid で、希釈剤としては Hyfrane 130 が用いられた。

更に、フランスからは、希釈剤洗浄に遠心抽出器の使用が試みられ、ラボスケールの抽出器による試験結果が紹介されている。⁽²²⁾ 再処理工程の水相ラフィネートに含まれる有機物 TBP の分解物で MBP や DBP)，及び TBP の溶解物、約 10^{-3} M は核物質のロスを増大させたり、DF を低下させたり、不溶解性の沈殿をもたらしたりするため、除去しなければならないとされている。除去方法としてはこれまでスチームストリップ法と希釈剤洗浄法が調べられてきている。このうち希釈剤洗浄法ではミキサセトラを用いほとんどの TBP を効果的に除去できることが判っている。しかしながら処理量を増加させた時の技術的問題を配慮し、遠心抽出器による試験が試みられてきた。

試験には 4 段の抽出器が用いられ、水相としてウラン逆抽出液 (HNO_3 : 0.07 M, UO_2 70 g / l TBP: 200 mg / l) の液が使われた。ミキシング時間は 1 段当たり 2, 5 及び 10 秒である。代表的な濃度プロフィルを図 4.29 に示す。表 4.9 にはミキシング時間と残留 TBP 濃度を示す。

表 4.9⁽²²⁾ Effect of mixing time on diluent washing with a four-stage centrifugal contactor bank

Aqueous phase
0.07 M HNO_3 -
 $70 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1} \text{ UO}_2^{++}$ - $200 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1} \text{ TBP}$
Organic phase : Hyfrane 120
 $\theta = 21^\circ\text{C}$
 $dA/dO = 10$

mixing time			
seconds	2	5	12
mean D TBP	15	30	70
final			
aqueous TBP concentration	40	4	2.5
mg $\cdot \text{l}^{-1}$			

水相中に含まれる有機物の希釈剤への物質移動はやや遅いが、TBP の分配係数がかなり高いため、遠心抽出器による処理も十分考えられるとしている。

表-1 Solvent Extraction Flowsheet

Bank	Temp, °C	Impeller Speed, rpm	Bowl Speed, rpm	Stream	Entry Stage	Flow		Composition
						Relative	cc/min	
1A	Variable(a)	4000	7000	1AF	A-8	100(b)	11(b)	Nominal: 1.5M UO ₂ (NO ₃) ₂ , 1M HNO ₃
				1AX	A-16	374(c)	41.2	30 vol % TBP - "Adakane 12"(d)
				1AS	A-1	67	7.4	3M HNO ₃
1B	40 ± 5	4000	7000	1AP	B-8	-	-	-
				1BX	B-1	50	5.5	Variable(a)
				1BS	B-16	160	17.6	30 vol % TBP - "Adakane 12"
				1BX'	B-9	Variable(a)	-	Variable(a)
1C	35 ± 3	4000	7000	1BU	C-16	-	-	-
				1CX	C-1	710	78	0.025M HNO ₃

(a) Variations are given in Table II.

(b) Flow when 1AF composition was nominal; varied (see Table II) when composition was not nominal.

(c) Adjusted to control saturation; see Table II.

(d) Trademark of Archer-Daniels-Midland Co.

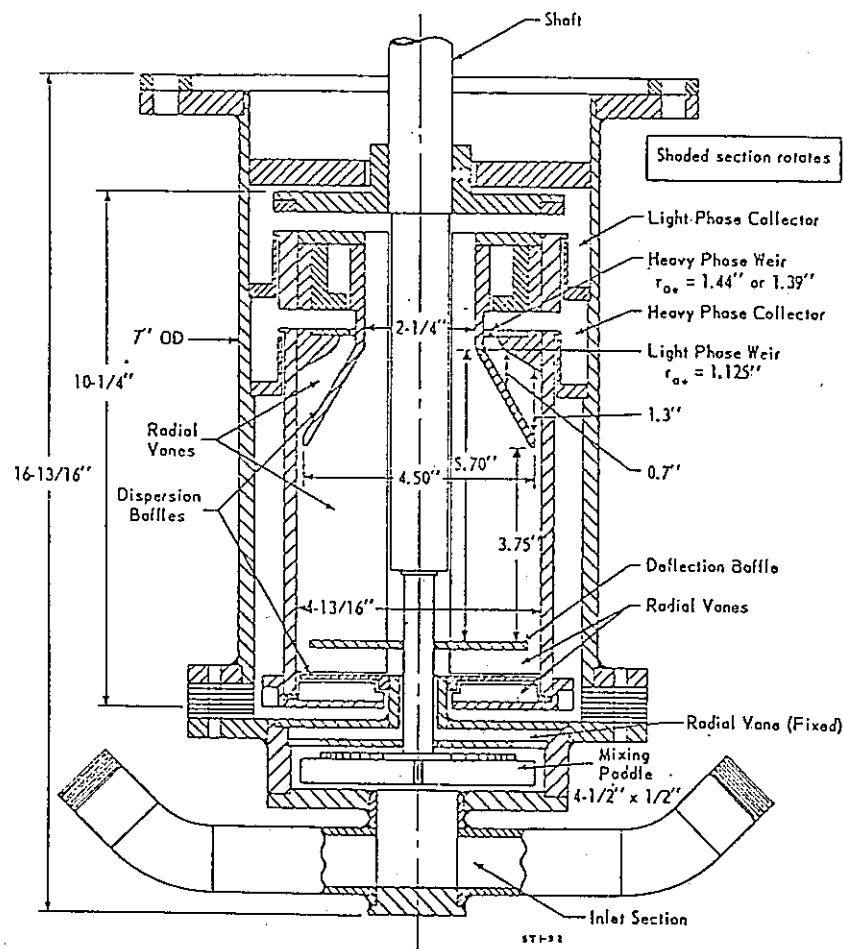


図 4.1⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾ Centrifugal Contactor

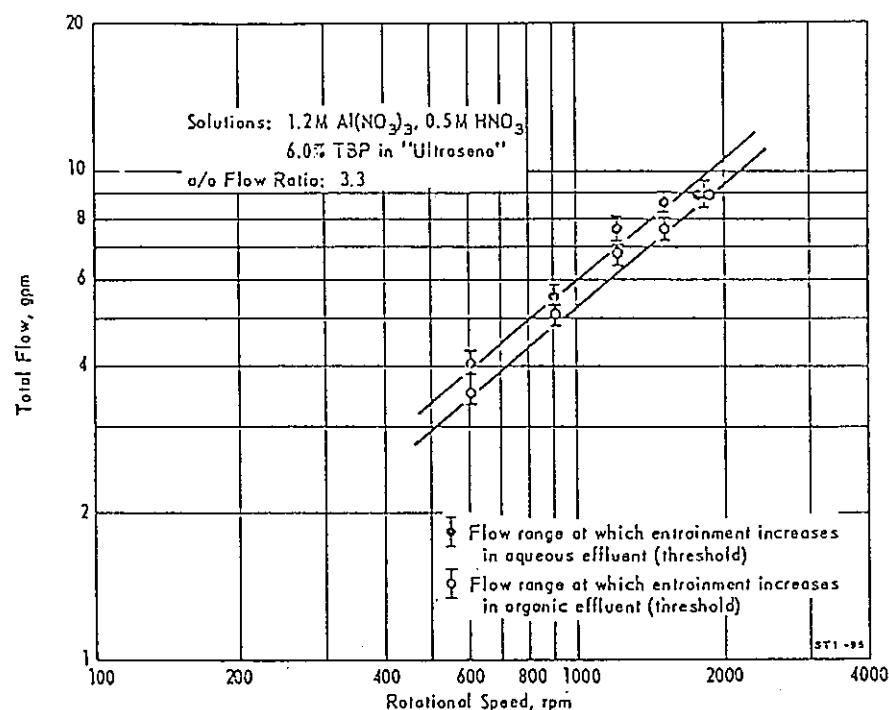


図 4.2 ⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾ Maximum Throughput as Function of Rotational Speed

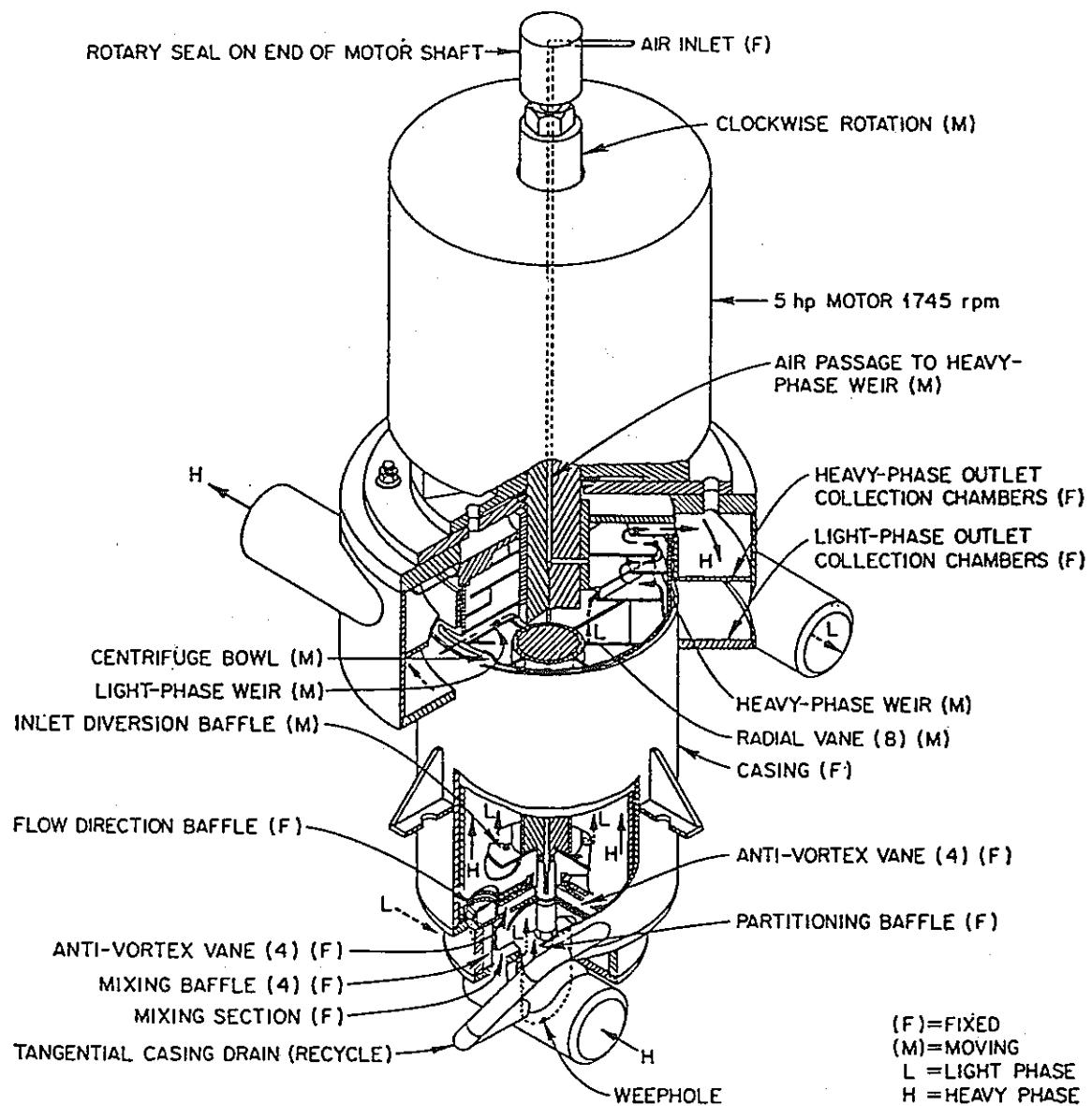


図 4.3⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾ Sectional view of one stage of a centrifugal solvent-extraction contactor

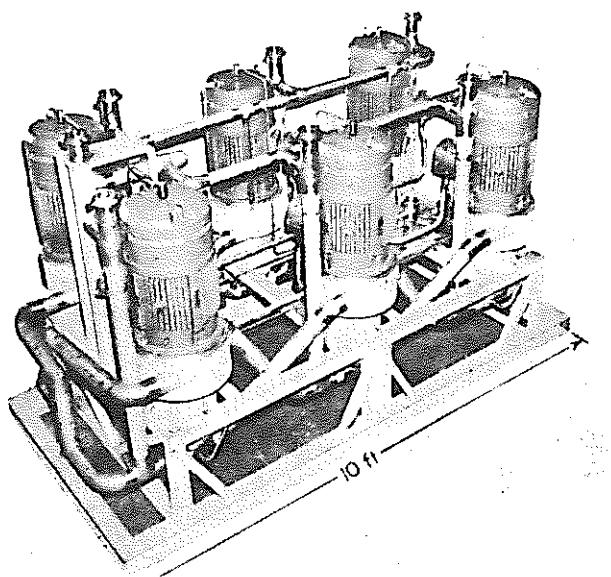
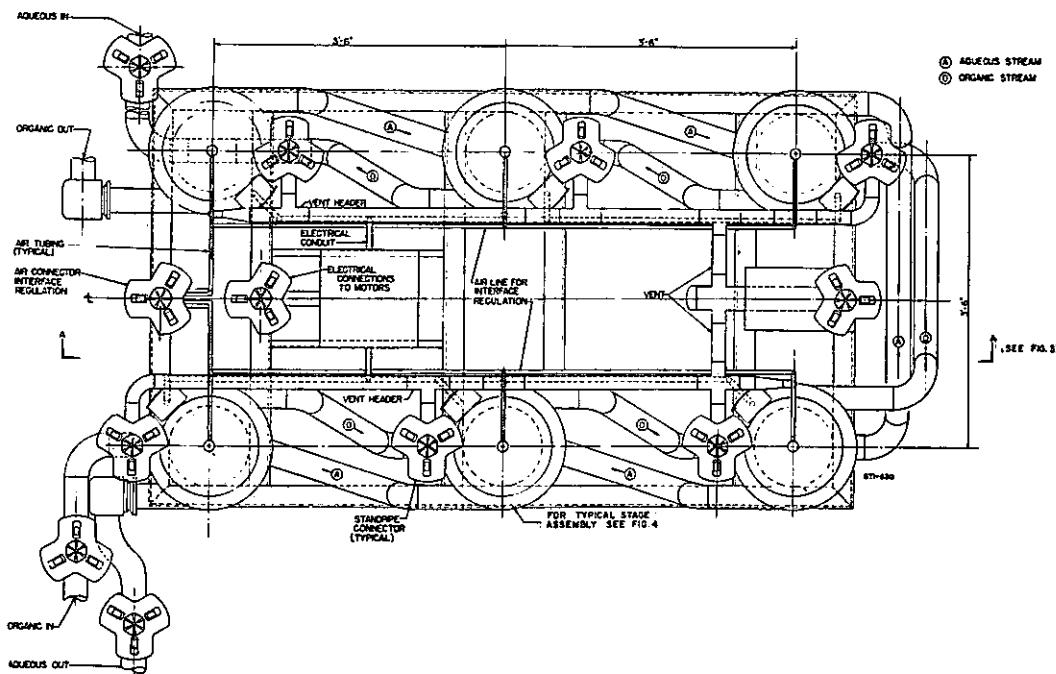
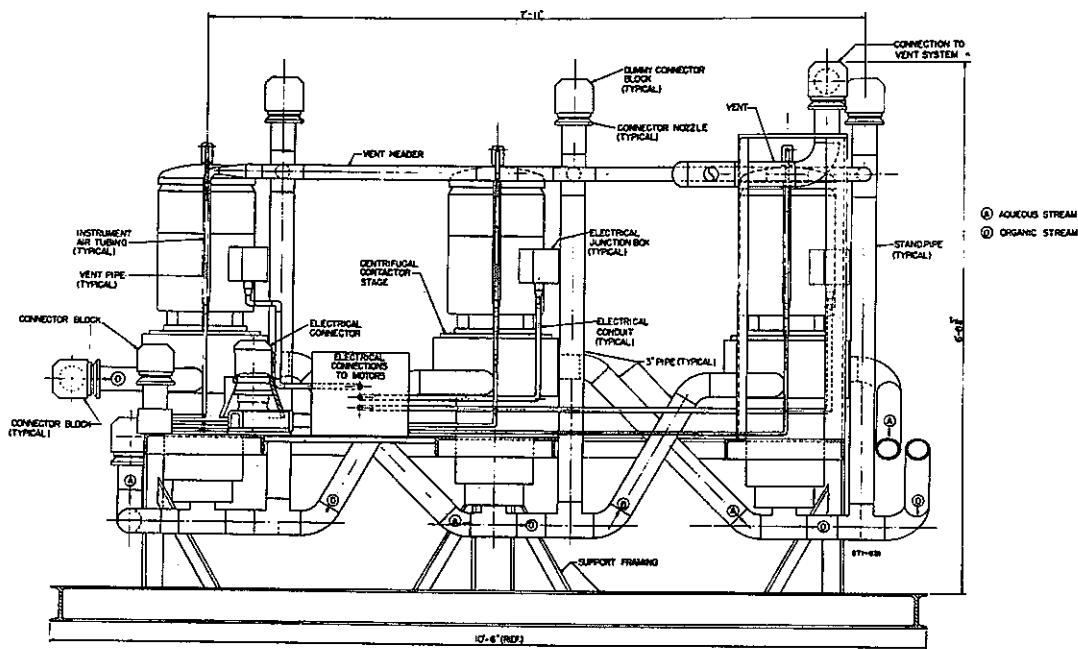


図 4.4⁽¹⁾ Prototype six - stage centrifugal contactor



DETAILS OF SIX-STAGE CENTRIFUGAL CONTACTOR--PLAN VIEW



DETAILS OF SIX-STAGE CENTRIFUGAL CONTACTOR--ELEVATION VIEW

囗 4.5⁽¹⁾

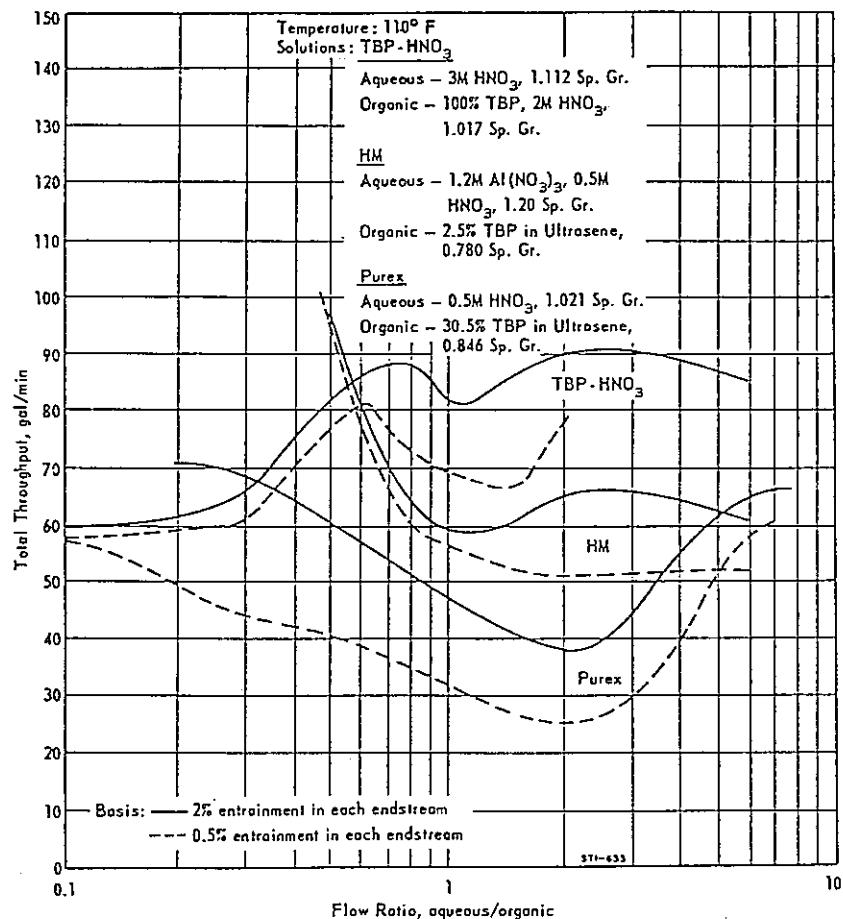


図 4.6⁽¹⁾ Hydraulic capacity of centrifugal contactor

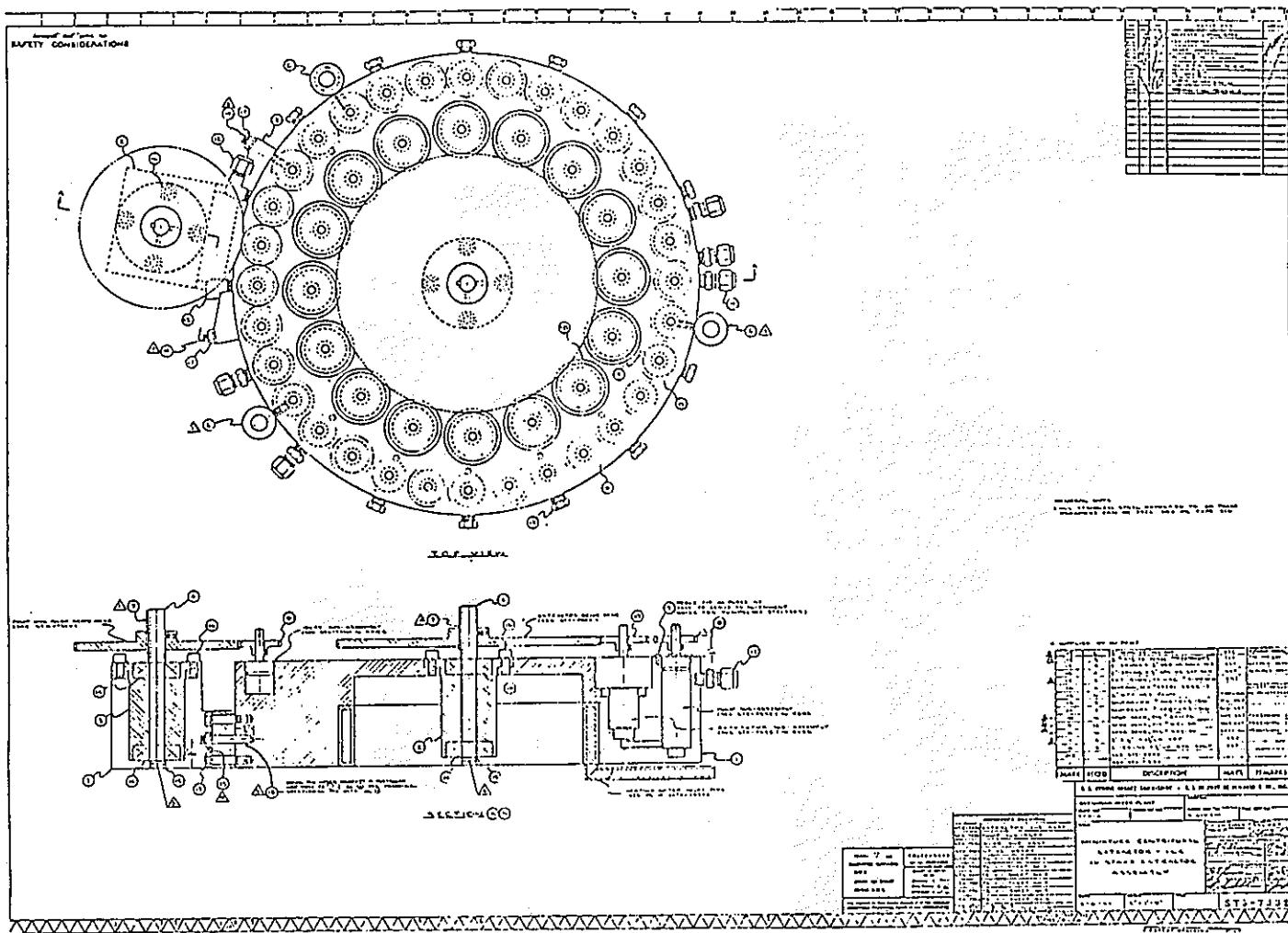
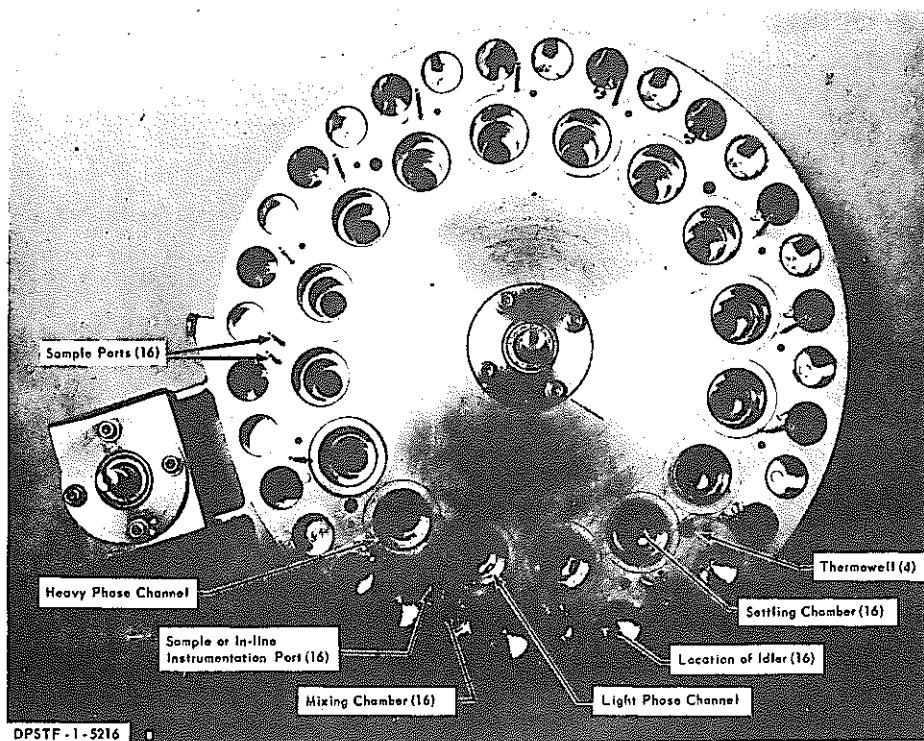
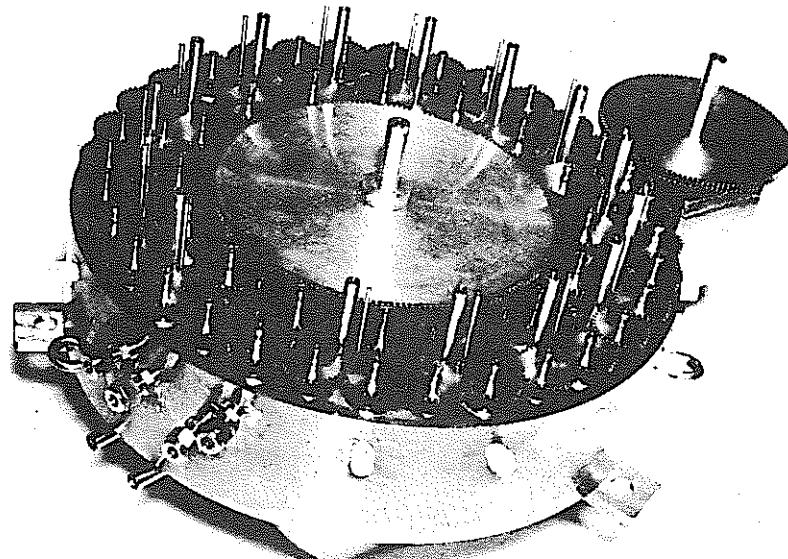


図 4.7⁽¹⁾ Final design – 16 stage contactor



HOUSING OF 16-STAGE CONTACTOR



DPSTF - 1 - 6640

ASSEMBLED 16-STAGE CONTACTOR

図 4.7 (1)

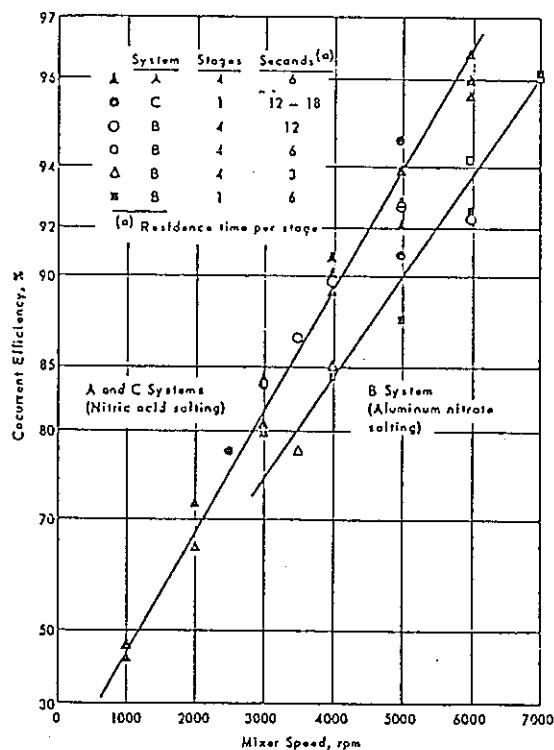


图 4.8⁽¹⁾ Effect of mixer speed on efficiency of mini centrifugal contactor

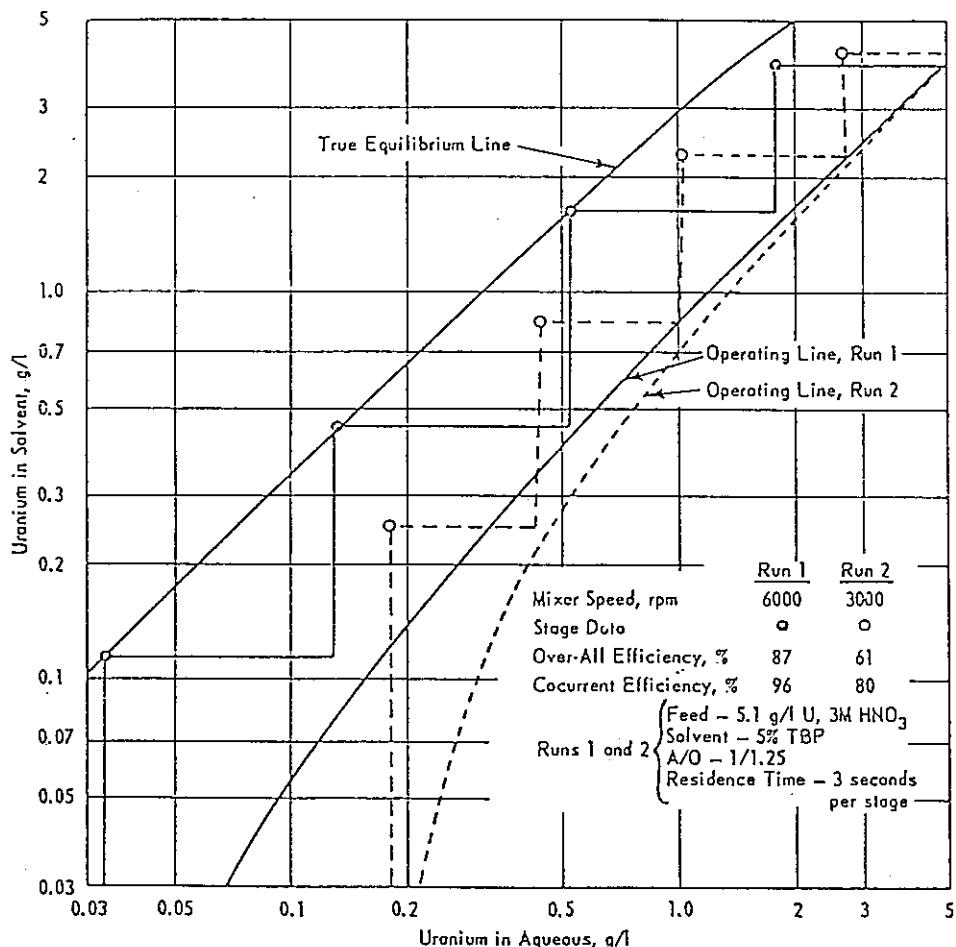


図 4.9 ⁽¹⁾ McCabe - thiele diagrams for uranium transfer

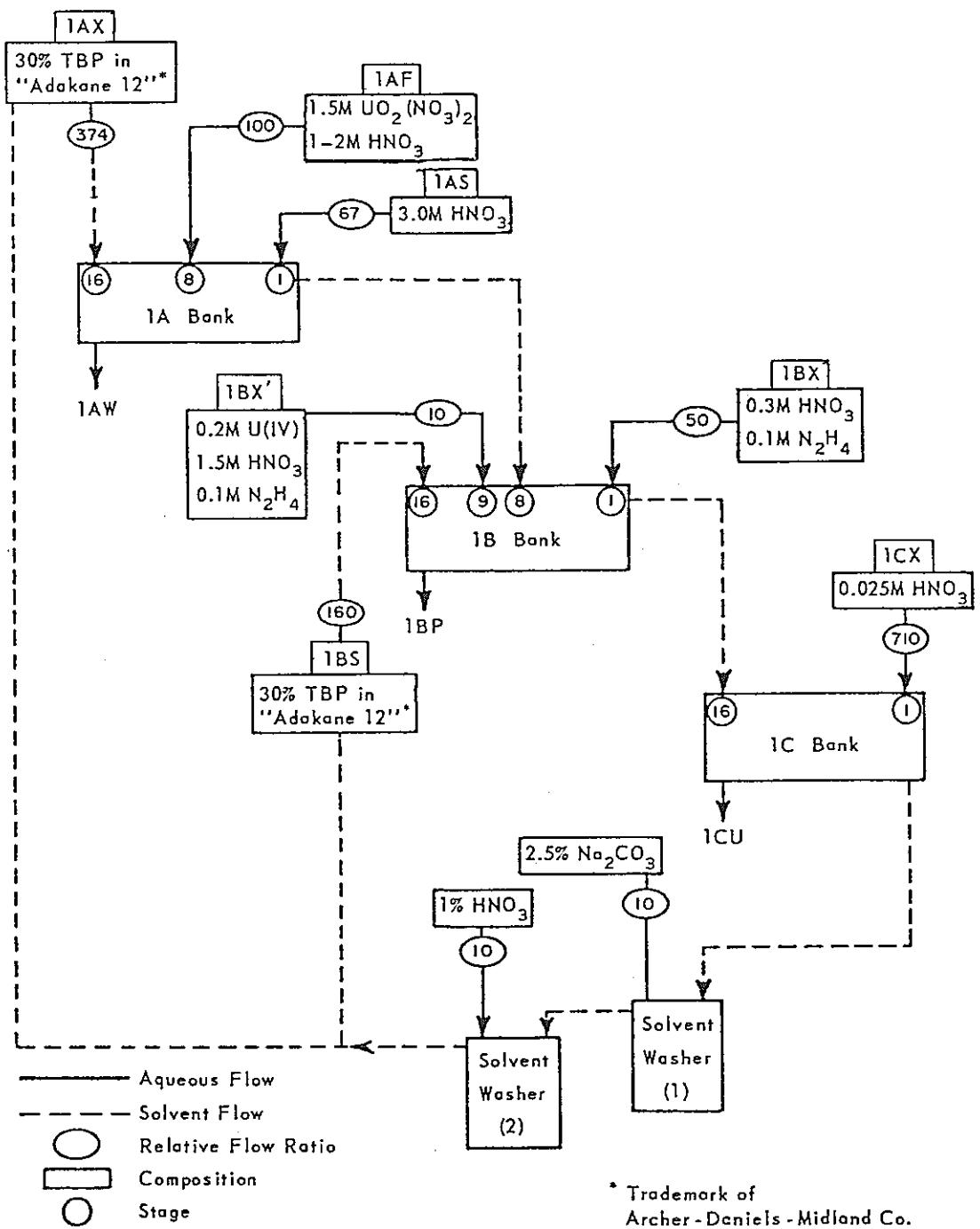


図 4.10⁽¹²⁾ Flow diagram

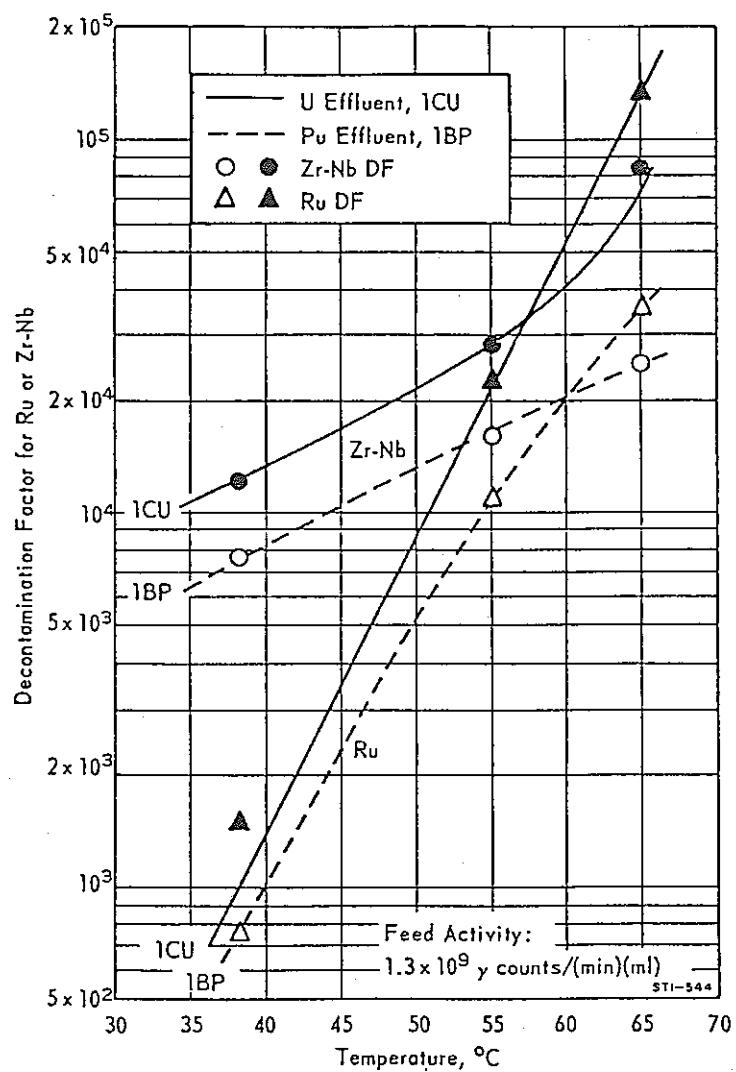


図 4.11⁽¹²⁾ Effect of temperature on decontamination

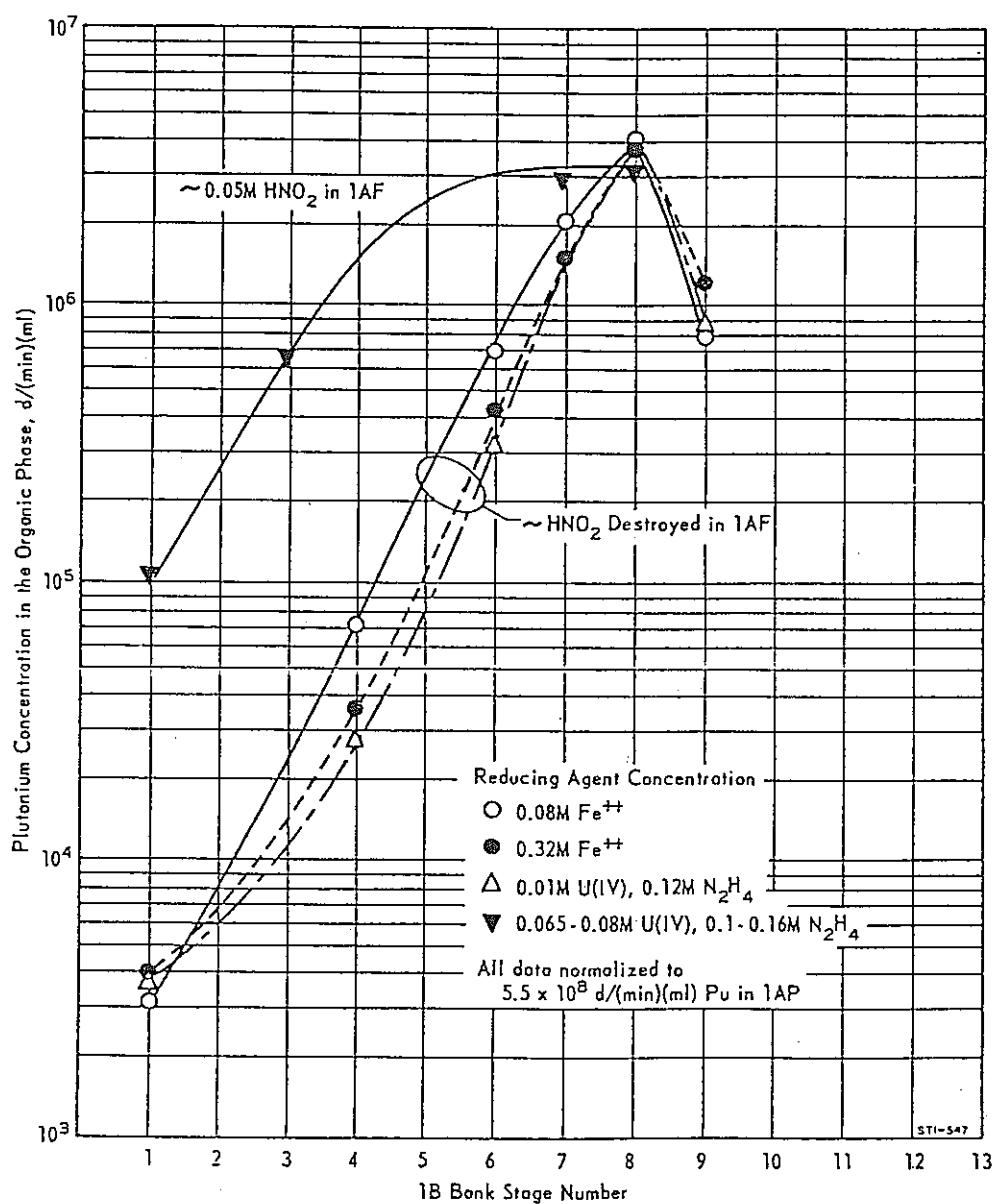
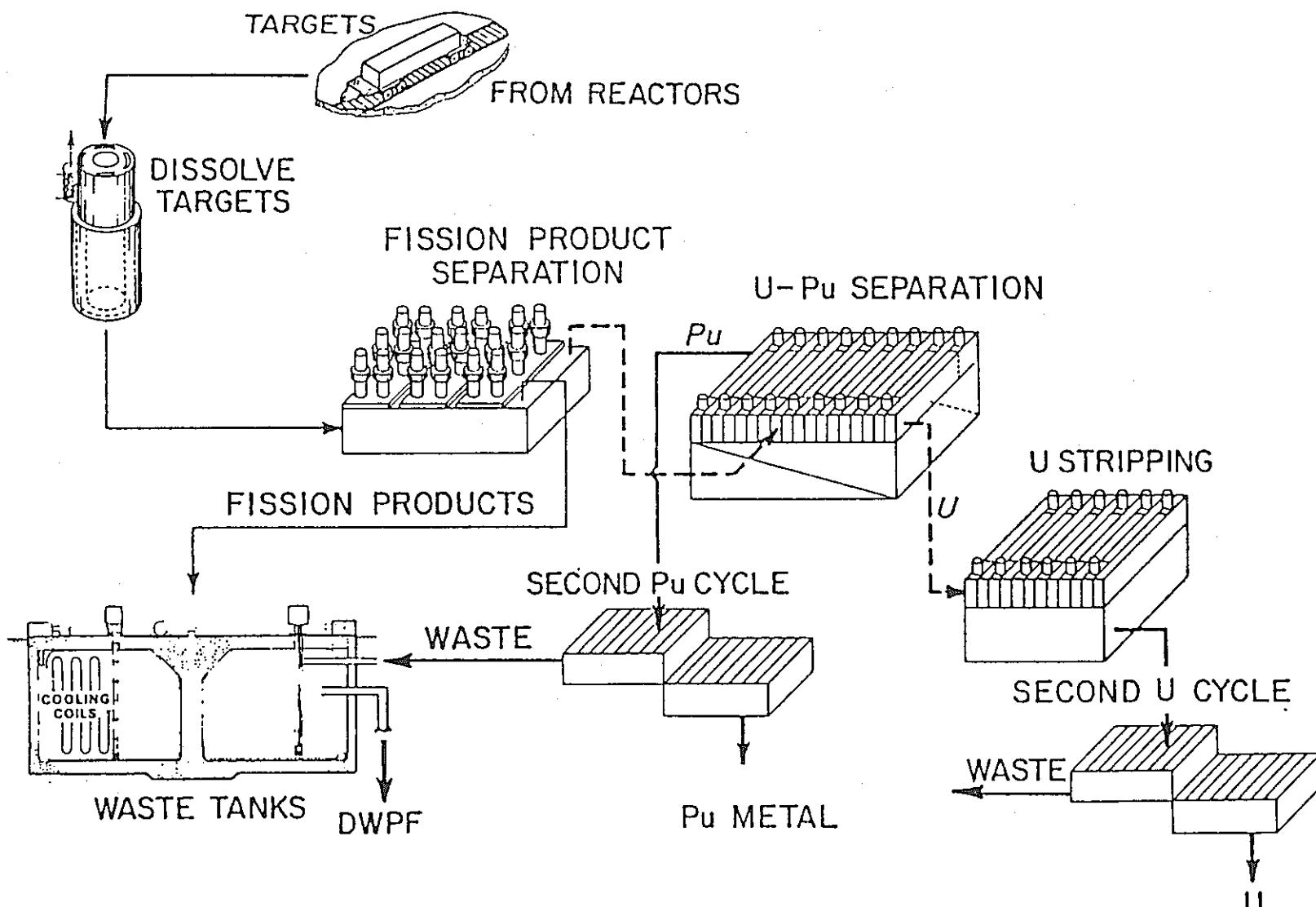


図 4.12 (12) Plutonium partitioning profiles

図 4.13⁽⁵⁾ Purex process

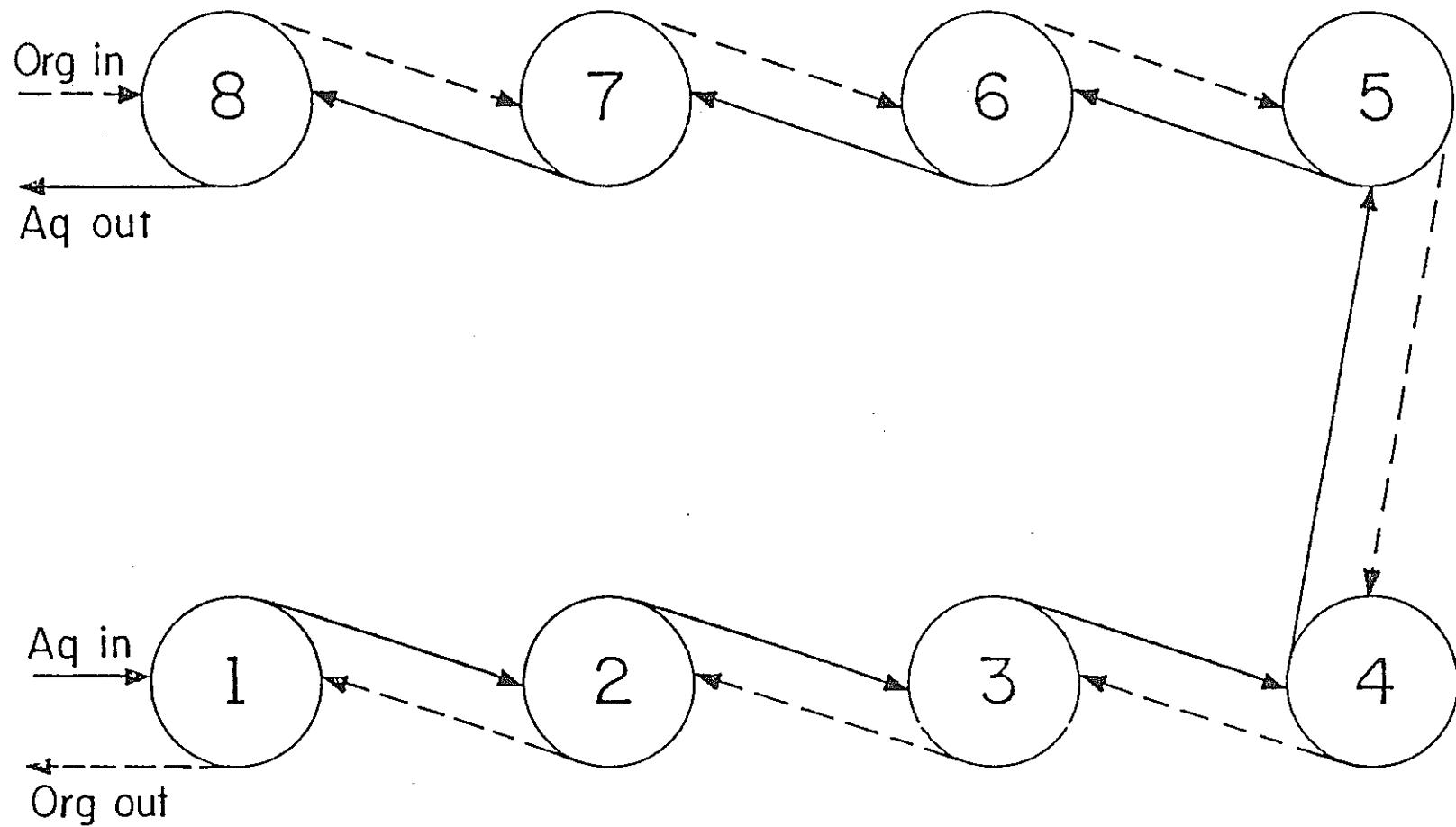


図 4.14⁽⁵⁾ Flow pattern

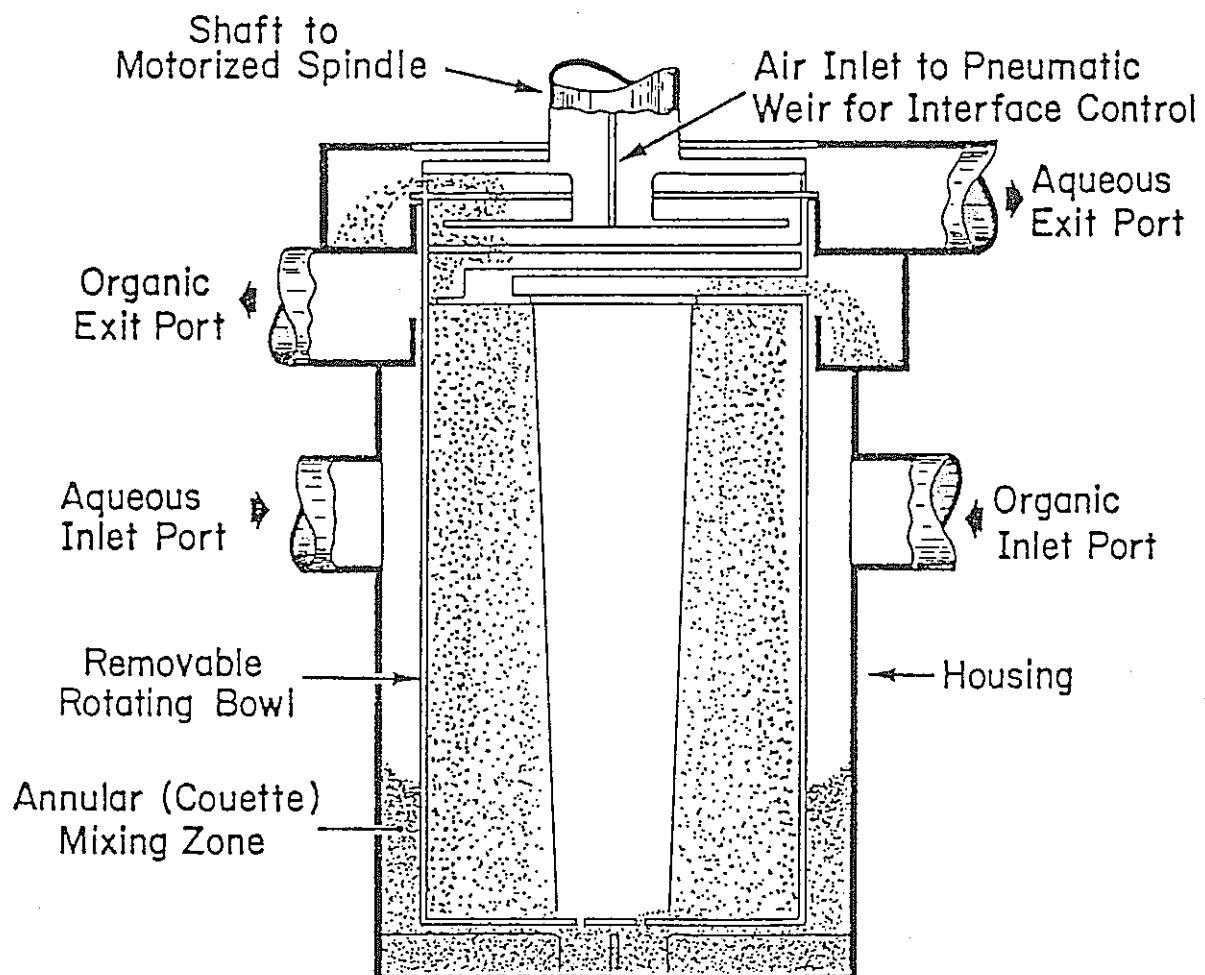
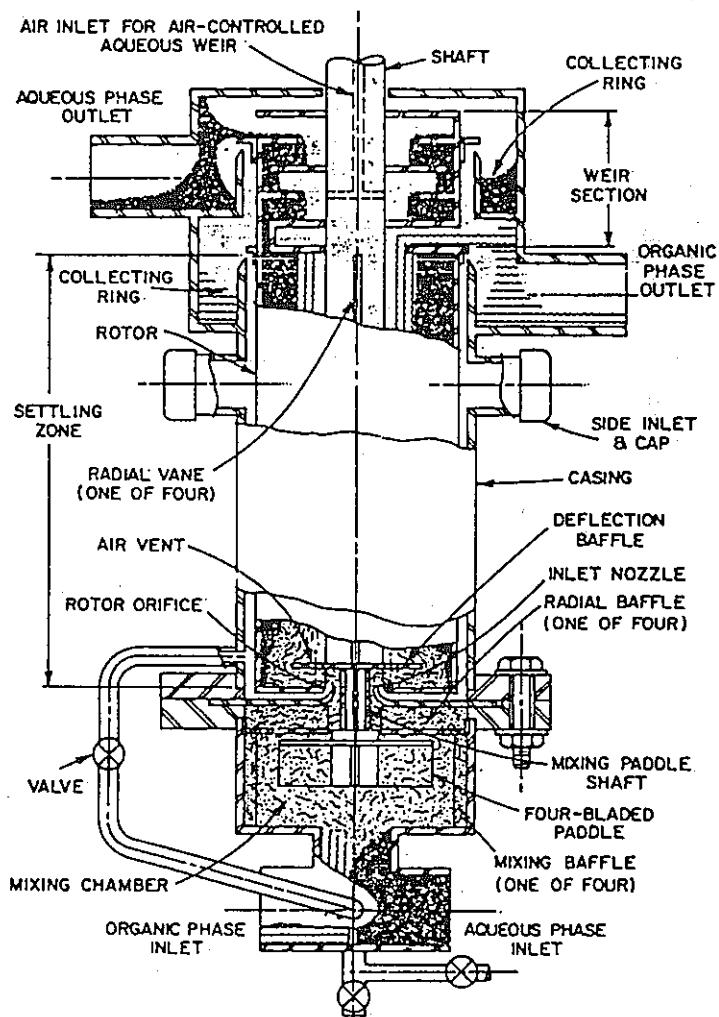
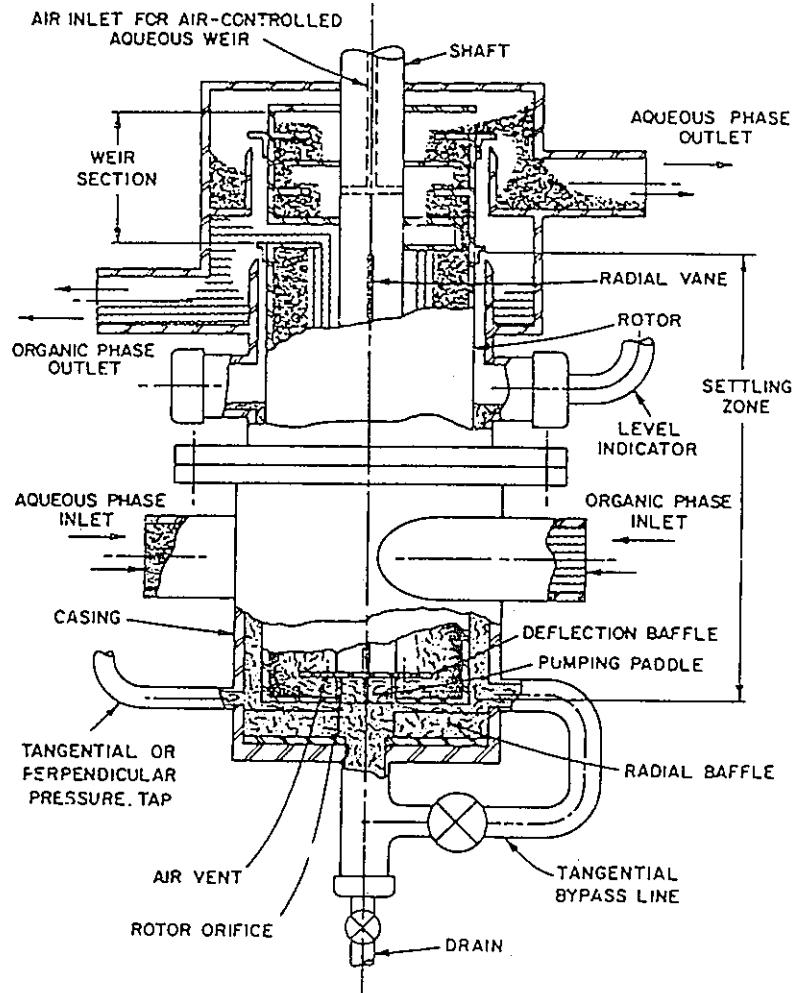


図 4.15⁽⁵⁾ Advanced contactor



Experimental Long-Rotor Centrifugal Contactor
(Savannah River Type)



Schematic Drawing of Annular Centrifugal Contactor (ANL)

図 4.16 SRL 型及び ANL での改良抽出器⁽²⁾⁽¹⁵⁾

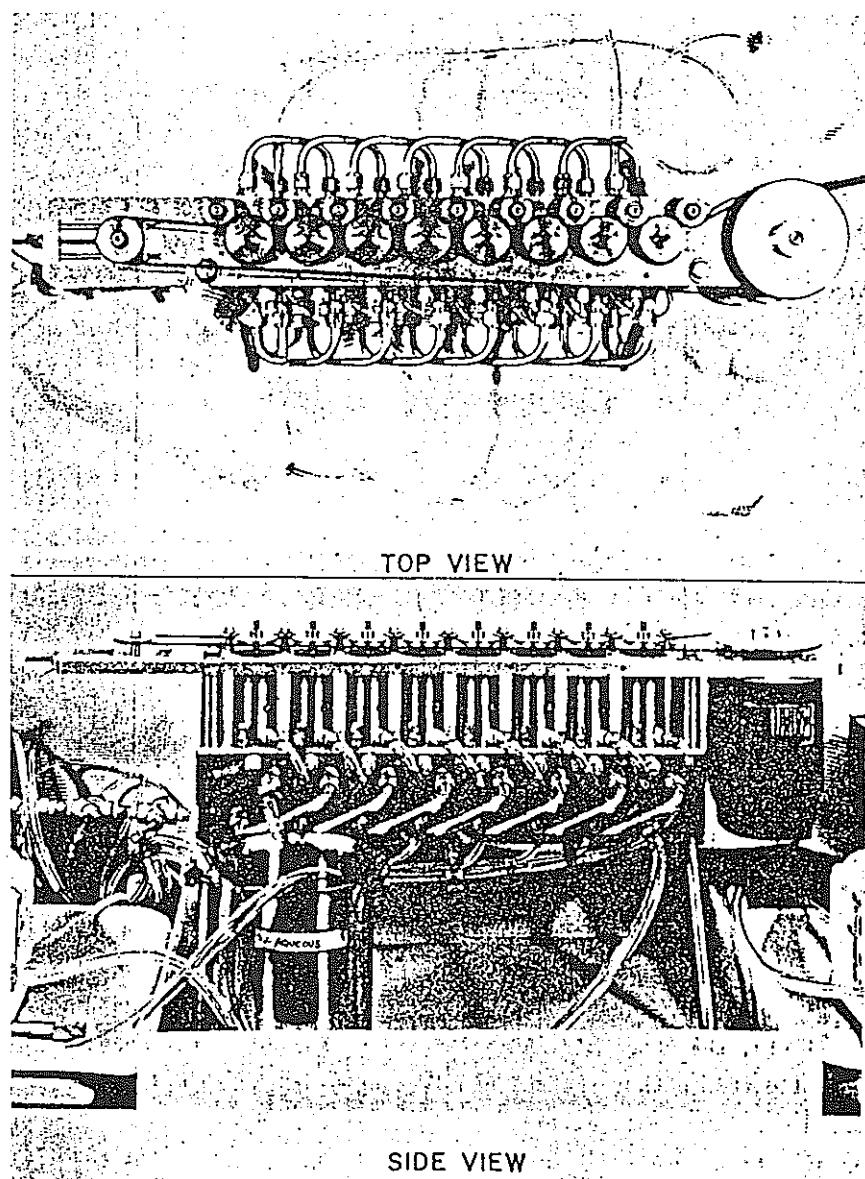
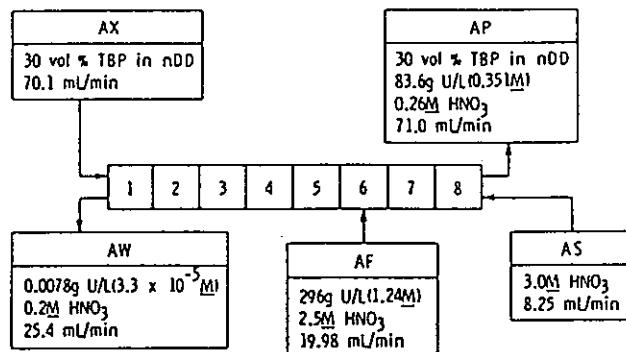


图 4.17⁽¹⁶⁾ Eight - stage miniature contactor

ANNULAR CENTRIFUGAL CONTRACTORS

EXTRACTION/SCRUB TEST (A-BANK)



STRIPPING TEST (C-BANK)

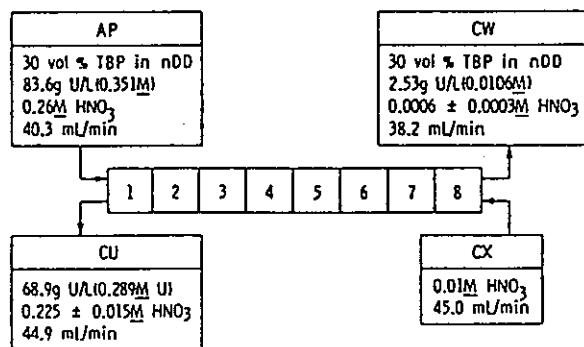


図 4.18 ⁽¹⁶⁾ Purex flow sheets for eight-stage mass transfer efficiency tests

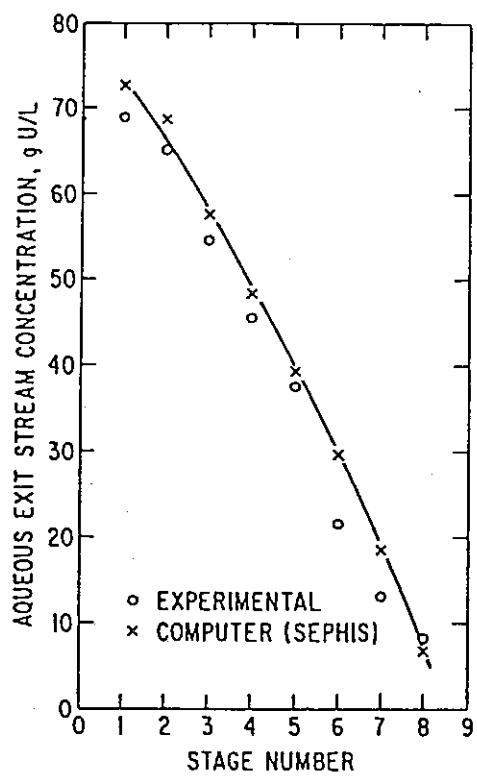


図 4.19⁽¹⁶⁾ Results of eight-stage stripping test

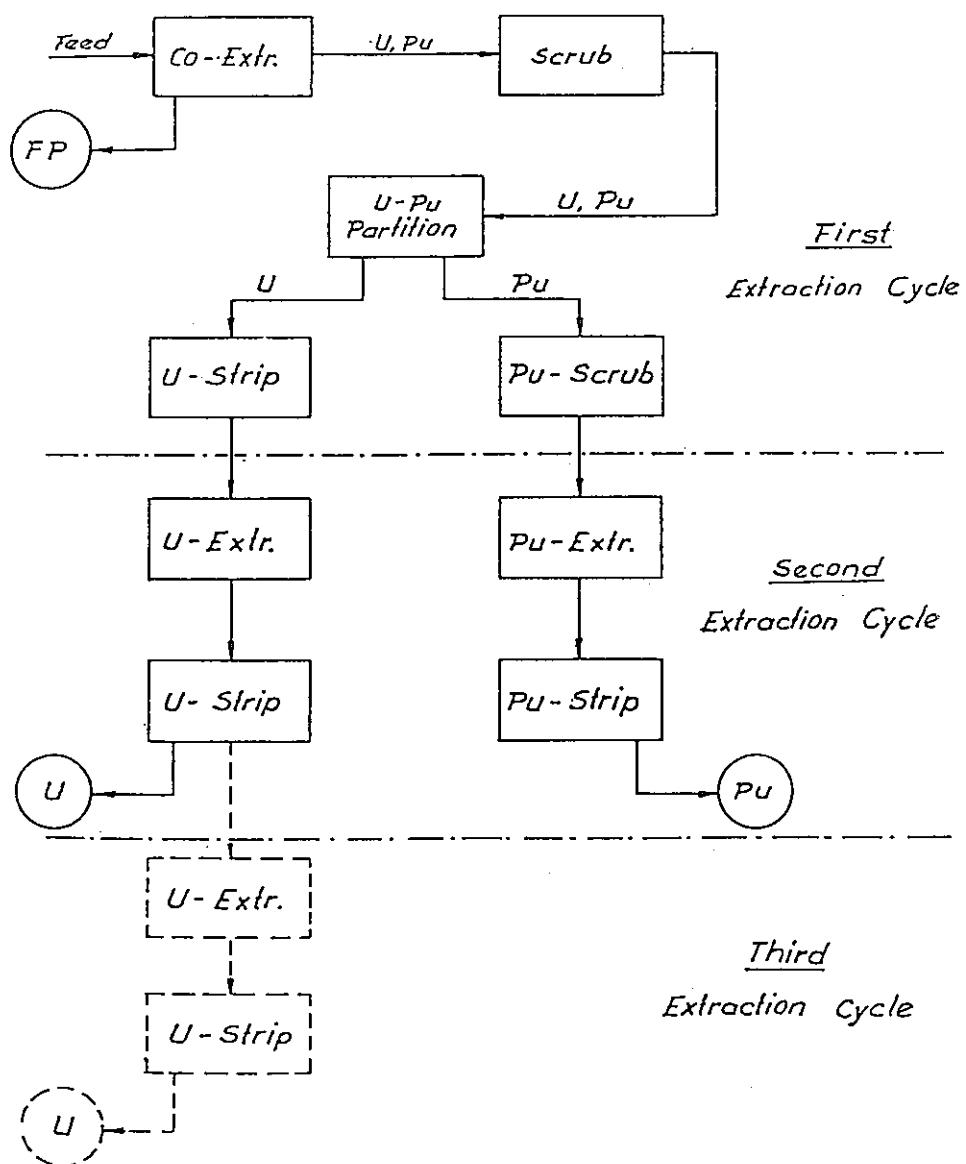


図 4.20⁽³⁾ Schematic flow sheet of WAK extraction cycles

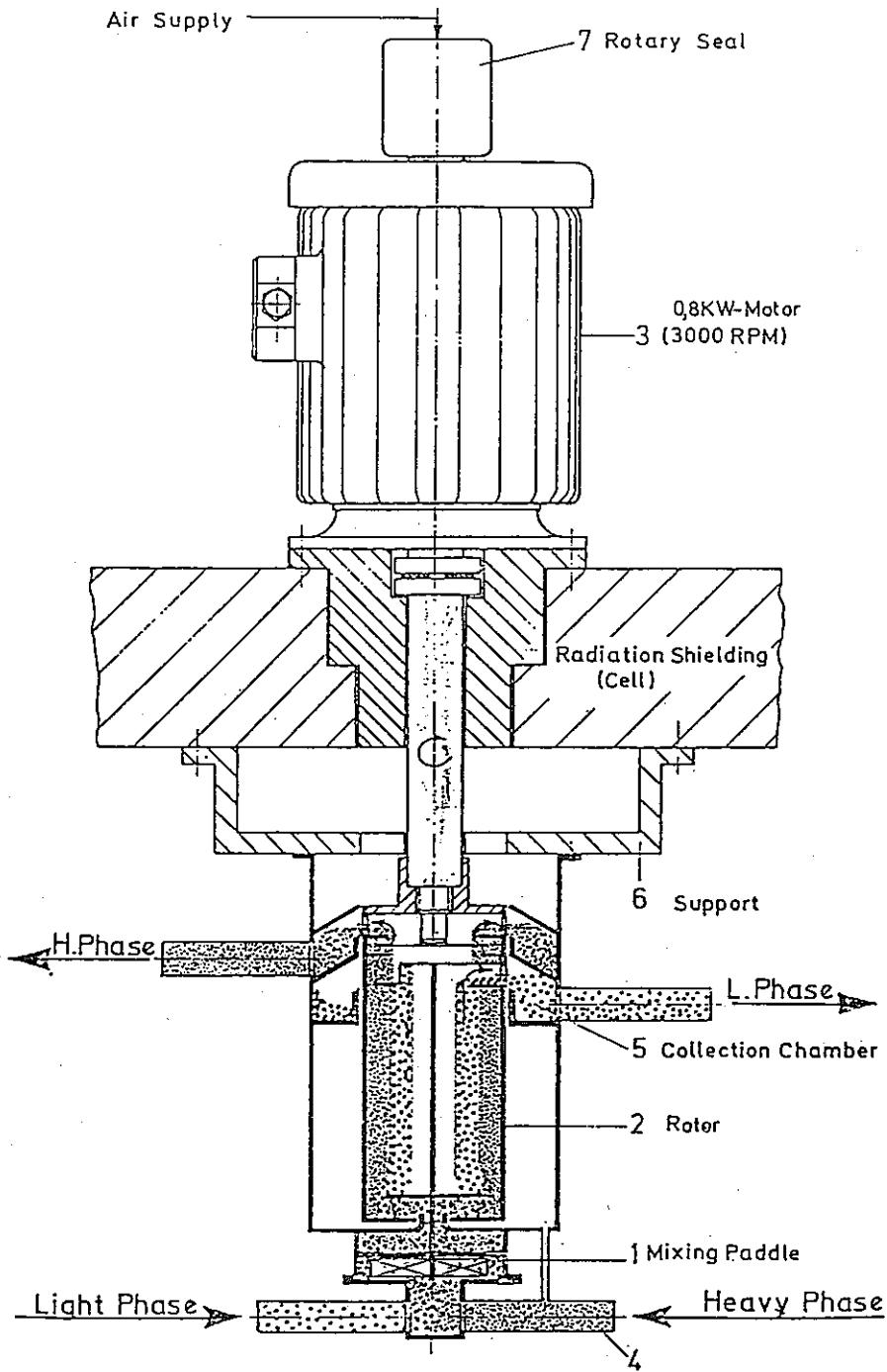


図 4.21⁽³⁾ Centrifugal extractor stage

- 91 -

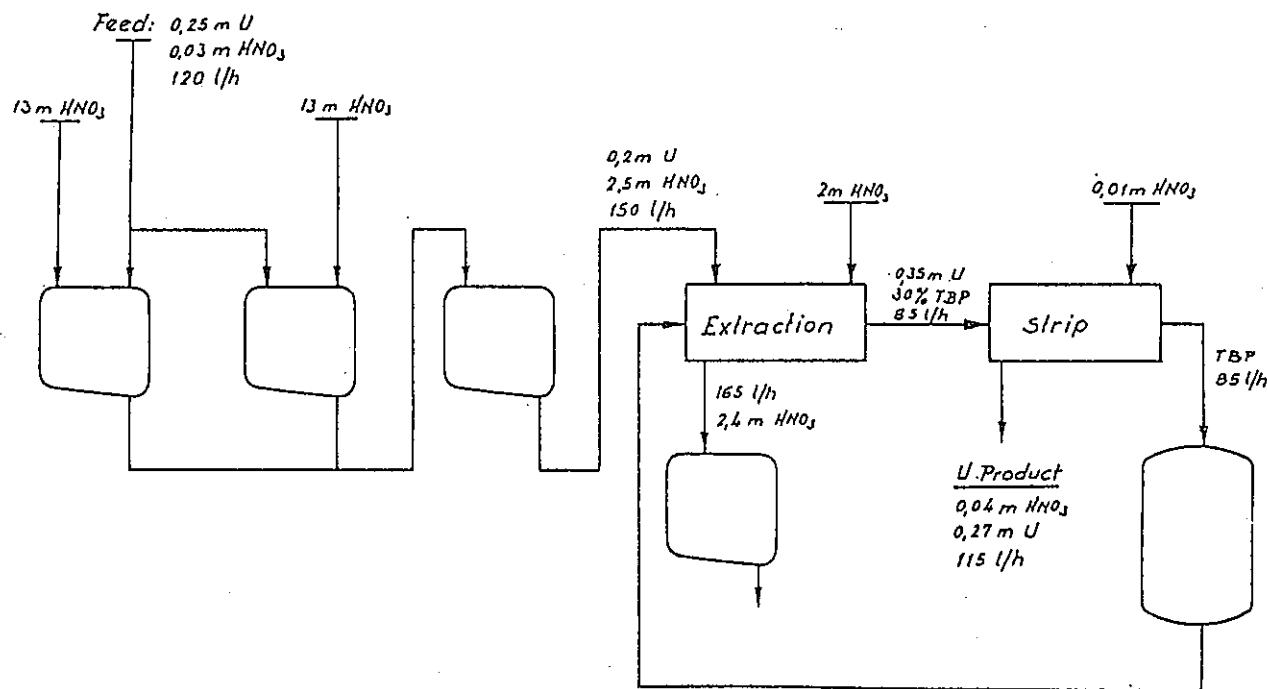


図 4.22 ⁽³⁾ Third uranium extraction cycle with centrifugal extractor test batteries

30% TBP/SST
 25M HNO₃/0.198M U

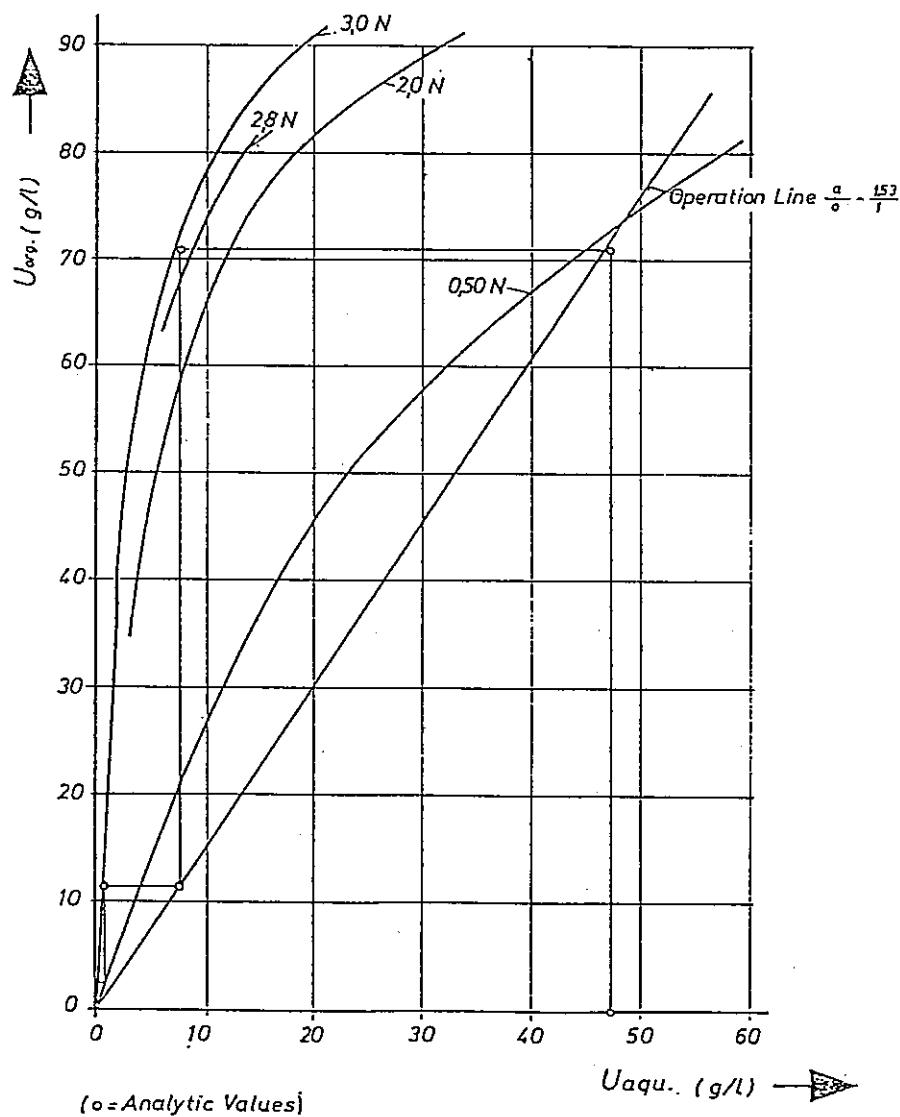
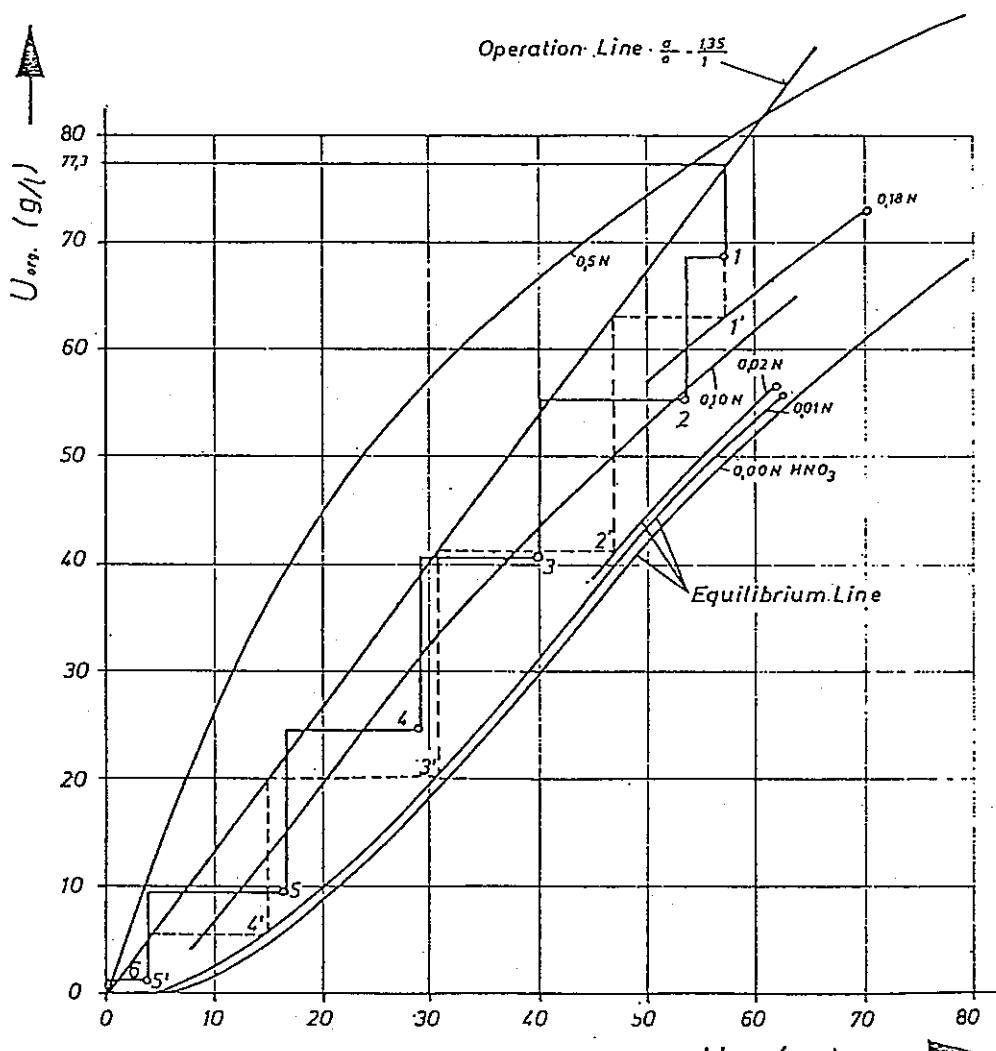


図 4.23 ⁽³⁾ Uranium extraction operating diagram

30% TBP/SST ~ 0.325 M U
0.22 M. HNO₃



(o = Analytic Values)

図 4.23⁽⁸⁾ Uranium stripping operating diagram

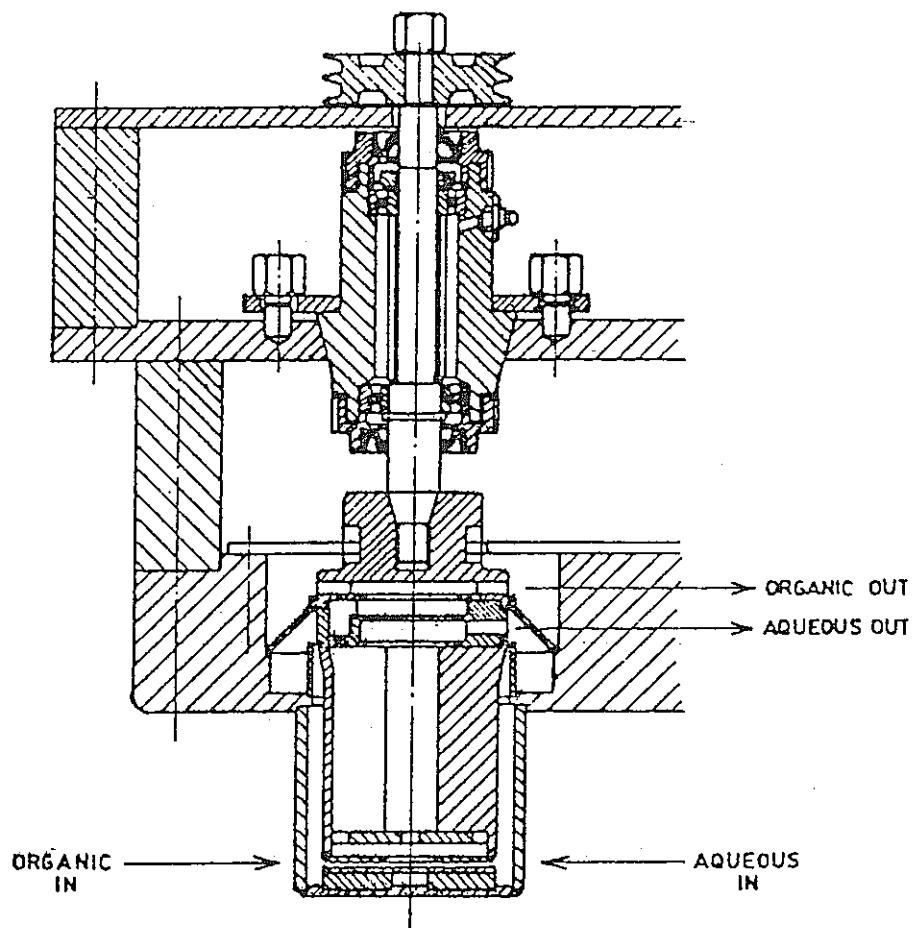


図 4.25⁽⁷⁾ Annular centrifugal contactor

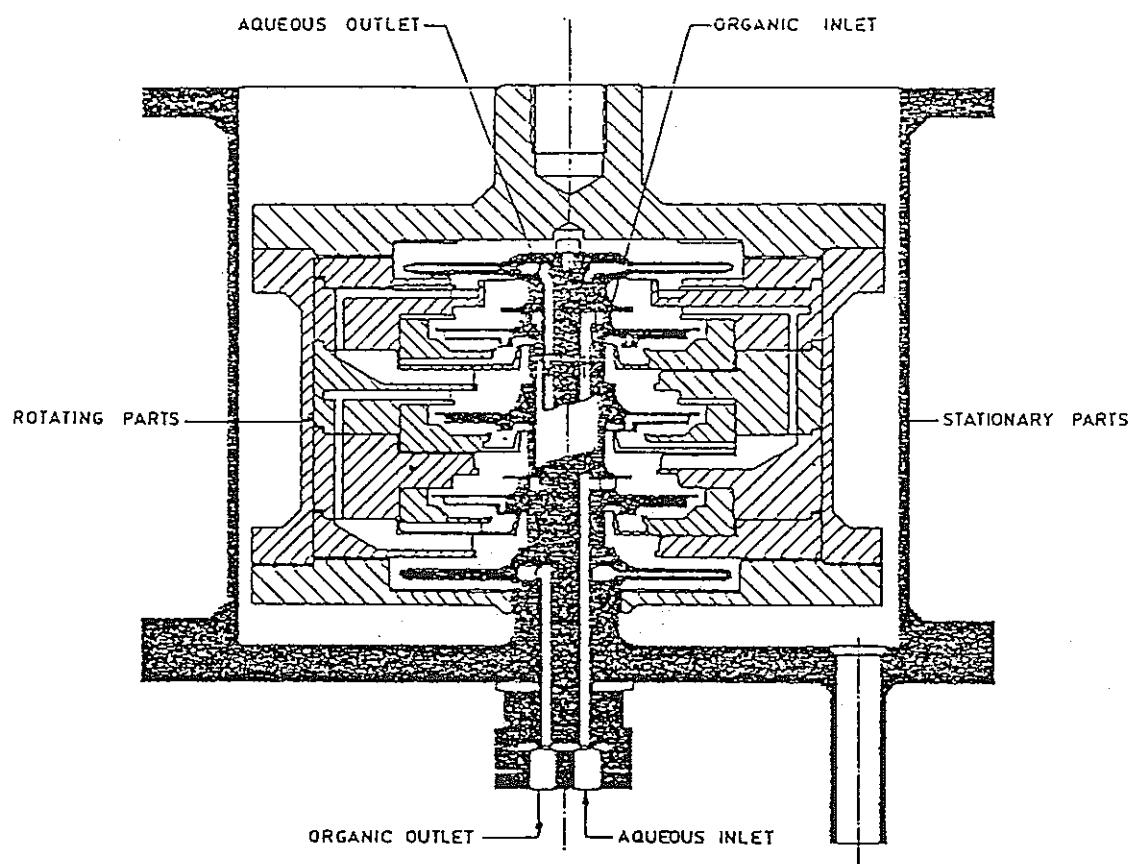


図 4.26 ⁽¹⁷⁾ III stage centrifugal contactor

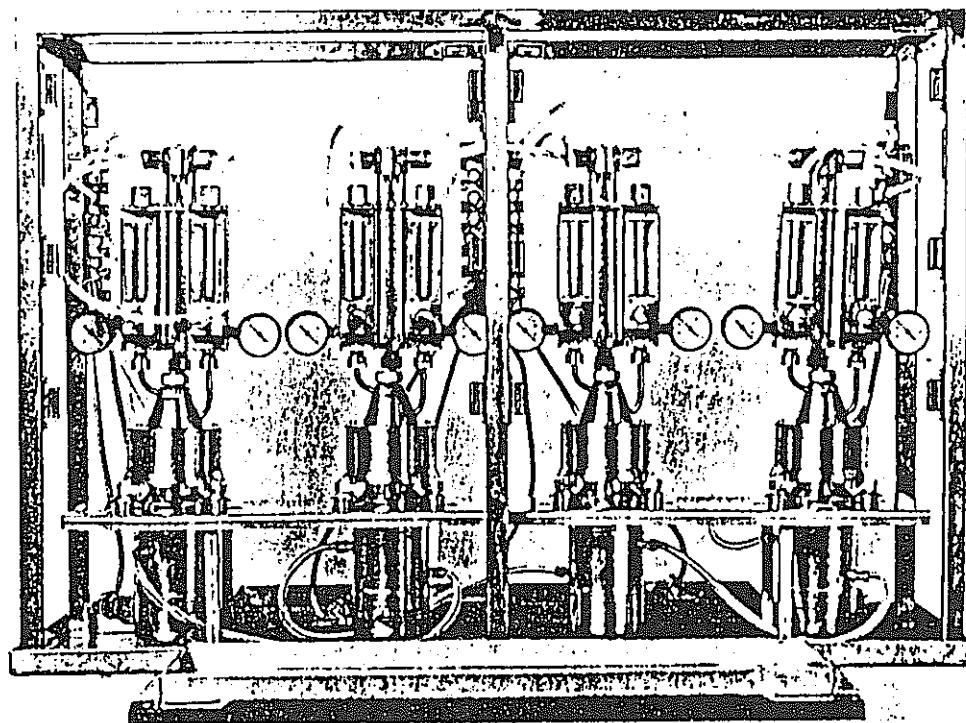


图 4.27⁽¹⁹⁾ Four-stage battery of MEAB H-10 centrifugal separators
and Kenics static mixers

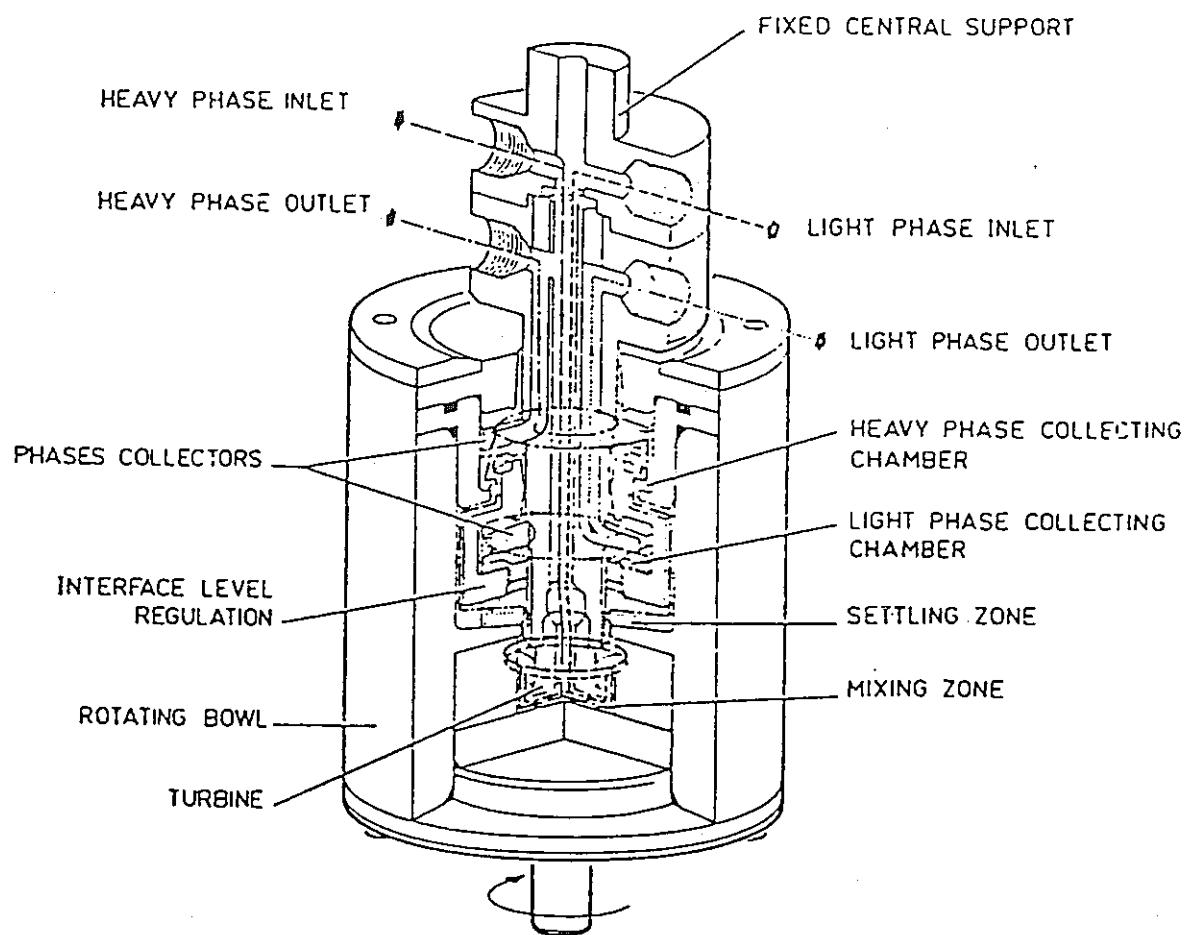


図 4.28⁽²⁾ Flow diagram of phases in the EC 8-1 extractor

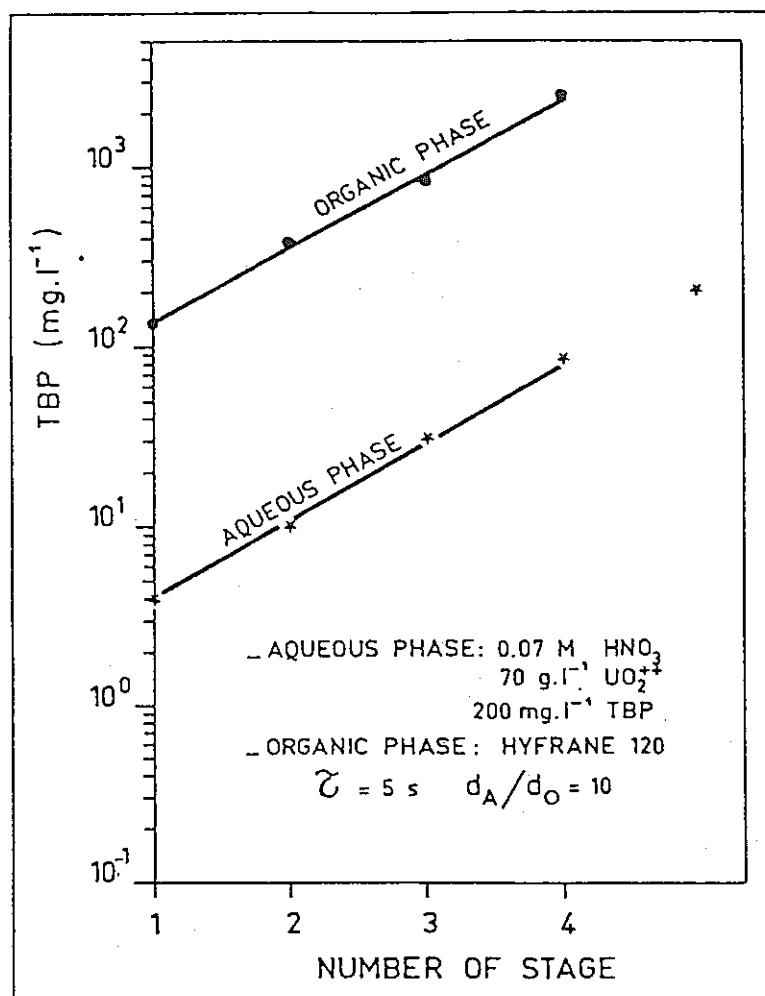


図 4.29 ⁽²⁾ TBP concentration profiles in the four-stage centrifugal contactor bank

5. 参 考 文 献

- (1) Albert A. Kishobaugh Performance of a multi-stage Centrifugal Contactor, October 1963, DP- 841
- (2) G. J. Bernstein, R. A. heonard, etal
An improved annular centrifugal contactor for solvent extraction reprocessing of Nuclear Reactor fuel.
84 th National meeting American Institute of Chemical Engineers Atlanta, GA. February 26 – March 1, 1978
- (3) B. F. Roth, W. Knoch, Fast Contactors in the WAK 1969, KFK 989
- (4) P. Michel, M. Tarnero, J. Dollfus
Study of laboratory Aqueous Reprocessing processes Centrifugal Extractor Tests, CEA – N – 1241, 1968
- (5) Michael E. Hodges Hydraulic performance of a multistage array of advanced centrifugal contactor, American Nuclear Society, International meeting Fuel reprocessing and Waste management August 26 – 29, 1984
- (6) Carl A. Burgess, S. A. Meacham
The Breeder reprocessing Engineering Test.
American Nuclear society, August 26 – 29. 1984
- (7) P. G. Selvaraj, M. Venkataraman and G. R. Balasubramanian Development of equipment for fast reactor fule reprocessing (INDIA) .
American Nuclear society, August 26 – 29. 1984
- (8) Zhu Yongjun etal,
The Removal of actinides from high level Radioactive waste by TRPO Extraction The extraction of Americium and some lanthanides from nitric acid Solutions.
International Conference on Nuclear and Radiochemistry, September 1 – 5 , 1986 Beijing, China.
- (9) Justin T. Long Engineering for Nuclear fuel Reprocessing.
- (10) Donald S. Webster, Savanna River laboratory Clifton h. Williamson and James F.ward, Savanna River plant.
Hydraulic perfomance of a 5 –inch Centrifugal Contactor, August 1962, DP- 370
- (11) Alfred S. Jennings
A miniature Centrifugal Contactor, March 1962, DP- 680

- (12) C. S. schlea, H. E. Henry, M. R. Caverly and W. J. Jenkins
Purex process performance with short—Residence Contactors, September 1963, DP— 809
- (13) William D. Burch ORNL
Status of the Breeder Fuel Cycle in the United States Solvent Extraction and Ion Exchange in the Nuclear Fuel Cycle, editors D. H. Logsdail and A. L. mills, 1985
- (14) W. D. Burch ORNL
Advanced concepts under development in the United states breederfuel reprocessing program,
Fast Reactor Fuel Cycles, London 9 — 12 November 1981 British Nuclear Energy society London, 1982
- (15) G. J. Bernstein, D. E. Grosvenor, J. F. Lenc and N. M. Levitz Development and performance of high—Speed Annular Centrifugal contactor, January 1973, ANL— 7969
- (16) R. A. Leonard, G. J. Bernstein, A. A. Ziegler and R. H. Pelto, ANL
Annular Centrifugal Contactors for solvent Extraction Separation science and technology, 15 (4) , pp. 925 — 943, 1980
- (17) G. R. Balasubramanian
Reprocessing of fast reactor fuels and the Indian approach to it
Fast Reactor Fueles, London 9 — 12 November 1981
- (18) G. R. Balasubramanian
The Current Status of Fast Reactor Fuel Reprocessing programme in India and the Future plans Solvent Extraction and Ion Exchange in the Nuclear fuel Cycle, 1985
Editors : H. D. Logsdail et al.
- (19) J. O. Liljenzin, J. Ryberg and G. Skarnemark
Department of Nuclear Chemistry, Chalmers University of Techology Fack, 41296 Göteborg, Sweden Reducing The Long—Term Hazard of Reactor waste Through Actinide Removal and Destruction in Nuclear Reactors.
Separation science and Techology, 15 (4) , pp. 799 — 824, 1980
- (20) 河本, 平山, 武田ら (動燃)
遠心速抽出器の特性試験 原子力学会年会 J 10, 1977
- (21) C. Musikas, M. Germain and A. Bathellier.
Americium—Curium Separation by means of selective extraction of hexavalent americium using a centrifugal contactor.
American Chemical Society—Symposium seris, 1979 Chemical Society, Japan Chemical Society meeting Honolulu, April 1 — 6 , 1979 CEA—CONF 4718

(22) M. Germain and P. Pluot

Commissariat à l'Energie Atomique DGR/SEP Boite Potale NO. 6 92260 Fontenay Aux
Roses, France Diluent Washing of Aqueous phase using Centrifugal Contactors.

(23) 河田ら, 遠心速抽出器の開発—ウラン試験結果—(動燃)

日本原子力学会「62年年会」J 28, 1987年4月1日~3日, 名大

(24) 権田ら, Purex プロセス計算コード Revised MIXSET PNC T 841 - 79 - 26

(25) 坪谷, 根本, 星野 再処理工程におけるネプツニウムの回収(I)

TBP-U-HNO₃系におけるNp(IV), Np(VI)の分配 PNC T 841 - 71 - 34