

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2002-243890  
(P2002-243890A)

(43) 公開日 平成14年8月28日 (2002.8.28)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マコード* (参考)
G 2 1 C 19/46		G 2 1 C 19/46	M 4 G 0 4 8
C 0 1 G 43/01		C 0 1 G 43/01	P
56/00		56/00	A
G 2 1 F 9/34		G 2 1 F 9/34	C
審査請求 未請求 請求項の数 6 OL (全 5 頁)			

(21) 出願番号 特願2001-42639(P2001-42639)

(22) 出願日 平成13年2月20日 (2001.2.20)

(71) 出願人 000004097

日本原子力研究所  
東京都千代田区内幸町2丁目2番2号

(72) 発明者 館盛 勝一

茨城県那珂郡東海村白方字白根2番地の4  
日本原子力研究所東海研究所内

(72) 発明者 鈴木 伸一

茨城県那珂郡東海村白方字白根2番地の4  
日本原子力研究所東海研究所内

(74) 代理人 100089705

弁理士 社本 一夫 (外5名)

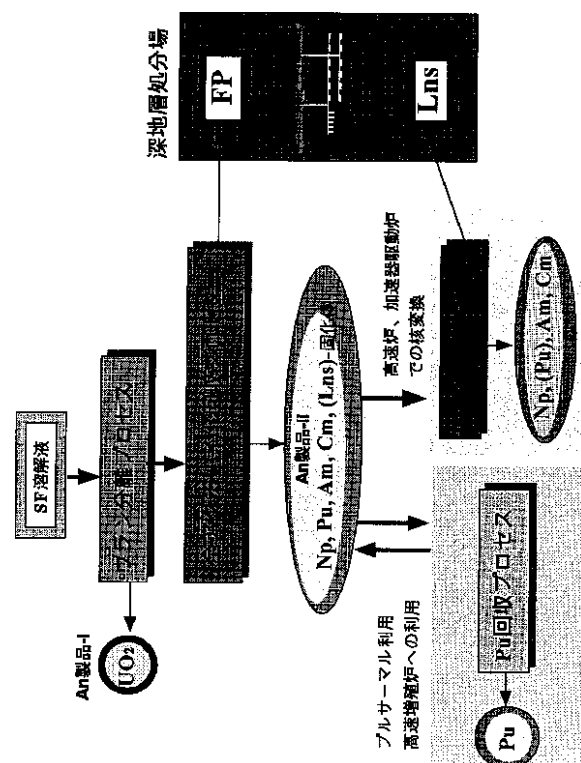
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 使用済核燃料から全アクチノイドを分離・貯蔵・利用する方法

(57) 【要約】

【課題】 核兵器への転用可能な Pu の生産には結付かない、原子力発電炉から発生する使用済核燃料 (SF) の再処理、及びその際に生ずる廃棄物処理並びに処分に  
関するものである。

【解決手段】 発電炉からの使用済核燃料 (SF) の溶解液を対象に、第1抽出段において、ウランのみを分離回収し、第2抽出段において、残り全てのアクチノイド、即ち、ネプツニウム、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムを分離回収し、得られた2種類のアクチノイド溶液であるウラン含有溶液及びアクチノイド含有溶液を別々に脱硝し、溶解性の良い酸化物固体に変換して貯蔵し、その後の需要に備える。



### 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 発電炉からの使用済核燃料 (SF) の溶解液を、第 1 分離段においてウランのみを分離回収し、次の第 2 分離段において残り全てのアクチノイドのみを分離回収し、分離回収されたウラン及びアクチノイド別々に脱硝処理し、それぞれ溶解性の良いウラン酸化物固体又はアクチノイド酸化物固体に変換して貯蔵し、その後の需要に備えることを特徴とする使用済核燃料から全アクチノイドを分離・貯蔵・利用する方法。

【請求項 2】 発電炉からの使用済核燃料 (SF) の溶解液を、第 1 分離段においてウランをウラン溶液として分離回収し、次の第 2 分離段において残り全てのアクチノイドをアクチノイド混合溶液として分離回収し、これらのウラン溶液及びアクチノイド混合溶液を別々に脱硝処理し、それぞれ溶解性の良いウラン酸化物固体及びアクチノイド酸化物固体に変換して貯蔵し、その後の需要に備えることを特徴とする請求項 1 記載の方法。

【請求項 3】 枝分かれしたアルキル基を有するモノアミド系化合物を用いてウランのみを分離回収し、ジグリコールアミド化合物を用いて残り全てのアクチノイドを分離回収する請求項 2 記載の方法。

【請求項 4】 残りの全アクチノイドが、ネプツニウム、プルトニウム、アメリカシウム及びノ又はキュリウムである請求項 1 乃至請求項 3 のいずれかに記載の方法。

【請求項 5】 プルトニウムの利用又はマイナーアクチノイドの核変換処理の要請がある時は、そのための分離精製サイクルで需要に応じて、アクチノイド酸化物固体からプルトニウムを分離し、又はその固体からランタノイド (Ln) を分離することにより、プルトニウム又はマイナーアクチノイド製品とすることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 4 のいずれかに記載の方法。

【請求項 6】 前記処理で分離回収されたウラン溶液及びアクチノイド溶液は、仮焼脱硝して廃棄物固体として保管処分されることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 5 のいずれかに記載の方法。

### 【発明の詳細な説明】

#### 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、核兵器への転用可能な Pu の生産には結付かない、原子力発電炉から発生する使用済核燃料 (SF) の再処理、廃棄物処理・処分に関するものである。

#### 【0002】

【従来の技術】軽水炉からの SF (使用済核燃料) の再処理工程においては、リン酸トリブチル (TBP) を抽出剤に用いてウラン (U)、プルトニウム (Pu) が製品として分離回収される。残りのアクチノイド、即ちネプツニウム (Np)、アメリカシウム (Am)、キュリウム (Cm) といったマイナーアクチノイド (MA) は高レベル廃液に混入する。但し、Np の一部は Pu 製品などにも混入する。大部分の核分裂生成物と上記 MA を含

む高レベル廃液は、脱硝・濃縮され、ガラス固化体として安定化した後、深地層処分場に処分する。

#### 【0003】

【発明が解決しようとする課題】地層処分される高レベル廃棄物固化体は、MA を含むため、処分後 1000 年以上においては、核分裂生成物 (FP) の放射能毒性の 100 ~ 1000 倍の毒性を有することとなる。従って、MA を除去した処分固化体とすることが出来れば、地球環境に対する長期間の負荷 (放射能毒性) を低減できる。

【0004】また、現在の再処理フローでは、核兵器となり得る核物質としての Pu が必然的に分離回収される。そのため、発電により発生し続ける SF の管理面からの要請に基づく再処理活動と、得られた Pu の発電炉での消費とのバランスが崩れると、いわゆる余剰 Pu が発生し、国際的な疑念や非難を誘発している。

【0005】さらに、現行再処理施設においては、コスト高や廃棄物発生の問題が指摘されている。

#### 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明における第 1 ステップは、放射能毒性がそれほど小さくなく、SF の約 95 wt. % を占めて後のアクチノイド分離に大きな負担となる U のみを、第 1 ステップの抽出工程で分離する。そのため、U (VI) のみを選択的に分離する抽出剤などを用いる。例えば、通常モノアミド化合物は、U と Pu (IV) の両者を抽出するが、モノアミド分子のアルキル鎖に枝分かれを導入すると、錯体形成において立体障害が現れ、(VI) 価の金属イオンに比べ (IV) 価の金属イオンの抽出分配比が大きく減少する。この効果を利用すれば、硝酸溶液系で安定に存在する U (VI) のみを抽出して、Pu (IV) をはじめ MA を全て通過液中に残すことが出来る。分離された U は酸化物に転換して貯蔵する。

【0007】ところで Np は硝酸溶液中で Np (V) と Np (VI) として存在するので、Np (VI) は U (VI) と共に抽出されてしまう。それを避けるためにここでは、還元剤を添加して Np は全て抽出されない Np (V) に揃える。還元剤としてはロシアの K o l u t u n o v らによって開発されたヒドラジン系化合物やヒドロキシルアミン系化合物がある。

【0008】第 2 ステップは、残り全てのアクチノイド (Np, Pu, Am, Cm) の共抽出である。例えば、三座のジグリコールアミド化合物 (DGA) を用いれば、硝酸濃度が 1 M 以上の水溶液から全てのアクチノイドを効率良く抽出できる。ただし、DGA はランタノイド (III) : Ln (III) をも抽出するため、得られるプロダクト液中にはアクチノイドと Ln が含まれる。この製品は、貯蔵のため硝酸溶液を仮焼して酸化物とする。その後の化学処理を考慮すれば、仮焼温度は低くして、酸化物の再溶解が容易にできるように考慮す

る。

【0009】以上の操作では、SF中に含まれる大部分のFPが廃液中に残されるので、これを安定化すれば、アクチノイドを含まない固体廃棄物として処分できる。上記2つのステップでは、ウラン(An製品-I)とその他の全アクチノイド(-Ln)混合体(An製品-II)のみが得られるので、「SFの廃棄物処理活動」と位置づけた本発明のプロセスを実行する事は、核兵器への転用可能なPuの生産には結びついていない。An製品-IIは、複雑な組成を有し、強い放射線源(ガンマ線、中性子線)である事から、貯蔵庫からの窃盗や核兵器への転用は非常に困難である。

【0010】An製品-IIのその後の利用オプションには二つが考えられる。その第1は、国内情勢においてPuのエネルギー利用の必要(プルサーマル利用や高速増殖炉での燃焼)が生じた時、An製品-IIから必要量のPuのみを分離回収してそれに当てる。そのための分離法としては、既存の溶媒抽出法(TBP抽出、モノアミド抽出等)がある。その際も還元剤を添加してNpは全て抽出されないNp(V)に揃える必要がある。

【0011】その第2は、将来的に廃棄物対策としてのアクチノイド核変換処理(加速器駆動炉や高速増殖炉での燃焼)が採用される時、An製品-II中にLnが含まれる際にはそれを除去する必要がある。その際は、窒素ドナー等のソフト配位子を用いて、要請に応じたAnとLnの分離操作を行う。

【0012】

【発明の実施の形態】以上の処理フローを図1に基づいて説明する。使用済核燃料(SF)の硝酸溶解液から、「ウラン分離プロセス」においてU(VI)を分離回収し、酸化物に転換して「An製品-I」(UO<sub>2</sub>)を得る。次に上記プロセスの抽出残液を「全アクチノイド回収プロセス」で処理して、Np, Pu, Am, Cm, (-Lns)を分離回収する。それらを固化体に転換して「An製品-II」を得る。FPのみが含まれるこのプロセスからの抽出残液は、廃棄物として固化処理後、深地層処分場に処分される。

【0013】また、軽水炉でのプルサーマルあるいは高速増殖炉でのPu利用の必要性が生じた時は、「An製品-II」を溶解し、TBPやモノアミドを用いる「Pu回収プロセス」によりPuを分離回収し、利用に供する。同様に、加速器駆動炉や高速炉により、アクチノイドの核変換処理を行う必要が生じたならば、「An製品-II」を溶解後、「N-ドナ-プロセス」においてアクチノイドのみを分離回収する。このプロセスは、マイナーアクチノイドに同伴しているランタノイド(Lns)の除去が主要な目的である。除去されたLnsは、他のFPと同様に固化後、深地層処分される。

【0014】

【実施例】(実施例1) 1mol/dm<sup>3</sup>(以下Mと略す)DH<sub>2</sub>EHA(N,N-dihexyl-2-ethylhexanamide)のドデカン溶液5mlとトレーサー量のU(VI), Pu(IV)を含む種々の濃度の硝酸水溶液5mlをガラス容器内、25で激しく攪拌し、分配平衡に達した時のそれぞれの分配比D<sub>M</sub>(各金属の有機相濃度と水相濃度の比)の硝酸濃度依存性を図2に示す。図から、UとPuの分離の程度を表す分離係数(D<sub>U</sub>/D<sub>Pu</sub>)の値で、硝酸濃度1M前後では2桁、3Mでは1桁という結果がわかる。これは1回の平衡であるので、多段抽出においては十分な分離が可能となる。

【0015】(実施例2) 0.1MTODGA(N,N'-tetraoctyl-3-oxapentanediamide)のドデカン溶液5mlとトレーサー量の各種アクチノイドイオンを含む種々の濃度の硝酸水溶液5mlをガラス容器内、25で激しく攪拌し、分配平衡に達した時のそれぞれの分配比D<sub>M</sub>の硝酸濃度依存性を図3に示す。この結果から、TODGAにより、ほとんど全てのアクチノイドが抽出される事がわかる。

【0016】(実施例3) 実施例2と同様の系における各種核分裂生成物元素の分配比D<sub>M</sub>の硝酸濃度依存性を図4に示す。この結果から、核分裂生成物の中ではEu(III)とZr(IV)がTODGAによく抽出される事がわかる。そこで、水溶液に0.2Mシュウ酸を添加したところ、Zr(IV)の分配比のみがは約10<sup>-3</sup>に減少し、1以下となった。従って、ランタノイドのみがアクチノイドに同伴して抽出される。

【0017】

【発明の効果】使用済み核燃料が廃棄物として適切に処理され、核不拡散政策に沿った形でアクチノイドの分離・貯蔵・利用を進めることが出来る。即ち、保障措置上重要な核物質の単離や余剰プルトニウムの発生は起きない。さらに、発生する高レベル廃棄物はアクチノイドを含まないので、より合理的な処分が出来る。

【図面の簡単な説明】

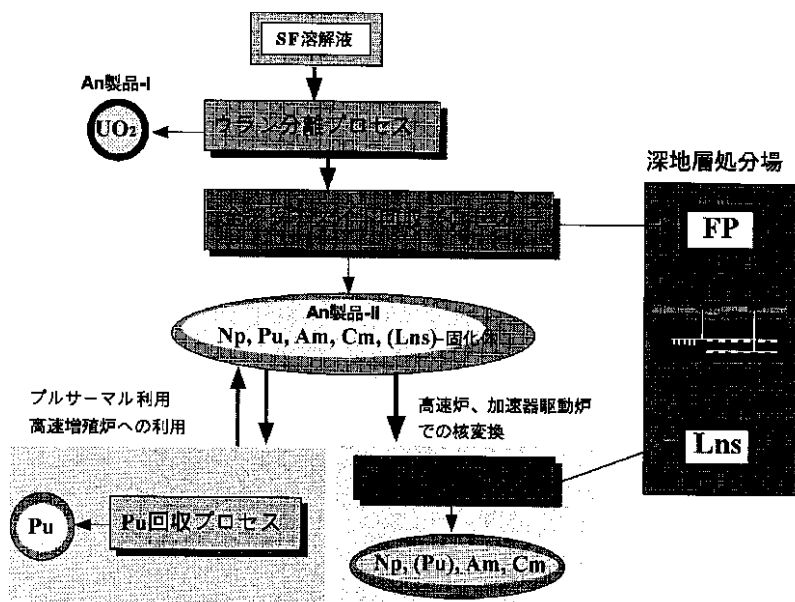
【図1】 本発明における使用済み核燃料(SF)の処理フローを示す図である。

【図2】 25における1Mモノアミド(DH<sub>2</sub>BHA)-n-ドデカンによるU(VI), Pu(IV)の分配比(D<sub>M</sub>)の硝酸濃度依存性を示し、両者の分離が可能であることを示す図である。

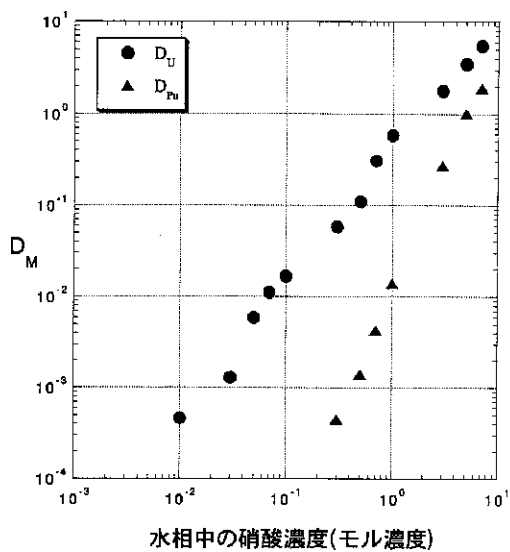
【図3】 25における0.1MTODGA-n-ドデカンによる様々なアクチノイドイオンの分配比(D<sub>M</sub>)の硝酸濃度依存性を示す図である。

【図4】 25における0.1MTODGA-n-ドデカンによる様々な核分裂生成物金属イオンの分配比(D<sub>M</sub>)の硝酸濃度依存性を示す図である。

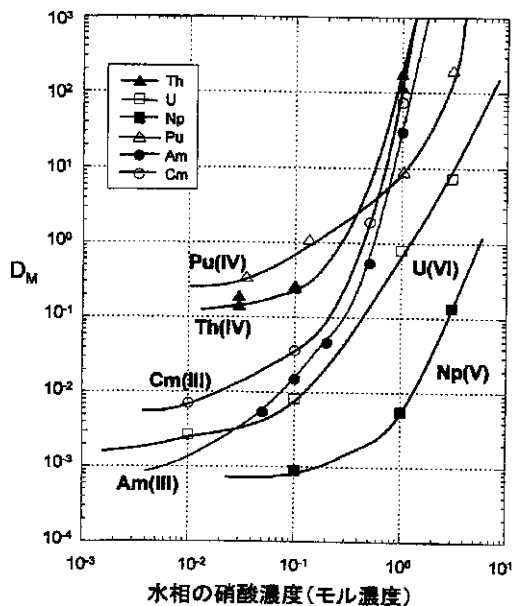
【図1】



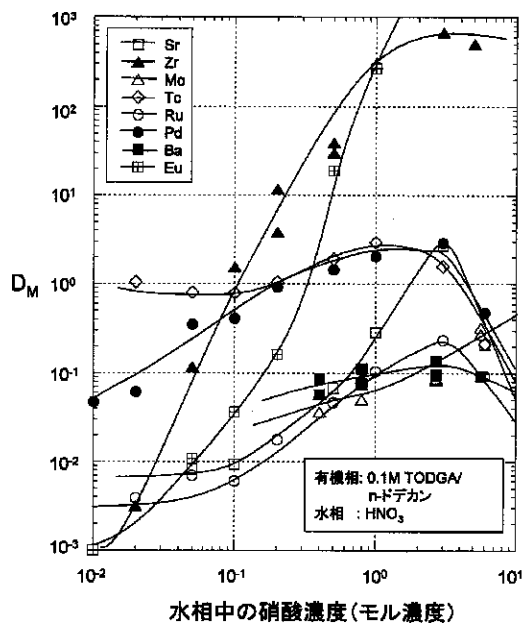
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 佐々木 祐二

茨城県那珂郡東海村白方字白根2番地の4  
日本原子力研究所東海研究所内

Fターム(参考) 4G048 AA01 AB08 AE02