CMPO 含浸吸着材による高レベル放射性廃液核種分離システム

菊池 孝浩^{1,*†}, 後藤 一郎¹, 新井 剛¹, 鈴木 和則¹

Separation System for HLLW by Using CMPO Impregnated Silica Adsorbent

Takahiro KIKUCHI^{1,*†}, Ichiro GOTO¹, Tsuyoshi ARAI¹ and Kazunori SUZUKI¹

¹*Institute of Research and Innovation (IRI), 1201 Takada, Kashiwa-shi, Chiba 277-0861, Japan*

(Received August 25, 2006 and accepted in revised form January 29, 2007)**

The process concept of separation system of high-level radioactive liquid waste (HLLW) using an octylphenyl-*N,N*-diisobutylcarbamoyl phosphine oxide impregnated silica adsorbent (CMPO-adsorbent) was designed for separation of Cs and Sr. The process consists of two separation steps. Each step is composed of three CMPO-adsorbent columns, and the adsorbents are used in rotation for separation of HLLW. That is, the system has six columns. Uranium and Zirconium inhibit the adsorption of minor actinoids (MA) and lanthanoids. Therefore, the adsorption and removal of U and Zr from the HLLW occur in the 1st step. Adsorbed U and Zr are eluted using citric acid. The HLLW from the 1st step is sent to the 2nd step to adsorb MA, lanthanoids and other transition metals. MA and lanthanoids are eluted using 0.01 mol/dm³ HNO₃, and Mo is recovered by using oxalic acid. The process required a large amount of citric acid and oxalic acid, but these eluents can be reused, therefore the amounts of spent acids are reduced. The column adopted a cartridge form in consideration of the exchange of adsorbent. The bed volume of the adsorbent is 0.67 m³/column. The size of separation plant has 60 m length, 80 m breadth and 36 m height.

KEYWORDS: *CMPO impregnated silica adsorbent, high-level radio active liquid waste, separation system*

I. 緒 言

PUREX 再処理施設から発生する高レベル放射性廃液(以下, HLLW)中には, 多数の放射性核種や安定同位体元素が共存しており, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr 等の発熱性核種の崩壊発熱量によりガラス固化体への廃棄物充填量が制約されている。これは, 固化体発熱温度を, ホウケイ酸ガラスの相転移温度と結晶化温度より低くする必要があるためと, 固化体冷却貯蔵や地層処分受け入れ時の崩壊発熱量に制限があるためである。設計基準となるガラス固化体の埋設初期発熱量は, 「我が国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊2 地層処分の工学技術」によれば約350 W/本となっている¹⁾。さらに, 白金族や Mo は, ホウケイ酸ガラスへの溶解度が低く相分の原因となるので^{2,3)}, 均質なガラス固化体製造のためにはそれらの充填量も制限を受ける。また, 燃料の高燃焼度化等に伴い, 使用済核燃料(以下,

SF)中の長半減期元素である Am, Cm 等のマイナーアクチノイド(MA)元素やFP元素の増加により, HLLW 化学組成の多様化や発熱量の増大が予想される。例えば, 燃焼度 45 GWd/t と 70 GWd/t の軽水炉燃料を, 燃料取り出し4年後に再処理した場合の HLLW の発熱量を ORIGEN II 計算コードにより推算すると, 高燃焼度化により約2.8倍大きくなる。Ohtsuka らは, 高レベル放射性廃棄物中の核種を短半減期で高発熱性の Cs・Sr 元素を含む元素群と長半減期の MA を含む元素群に大別し, それぞれを高充填固化し, Cs・Sr 元素については100年程度の間貯蔵期間を設けることで, 処分空間を47%低減できると報告している(燃焼度 45 GWd/t の軽水炉燃料を, 燃料取り出し4年で再処理した場合)⁴⁾。

Ohtsuka らの報告に基づき処分空間を低減するために, 筆者らは Cs・Sr を含む元素群を, MA を含む元素群と分離する核種分離技術について調査し適用成立性を検討した。核種分離技術としては溶媒抽出法である TRUEX-SETFICS 法^{5,6)}が報告されているが, HLLW 中の MA の濃度は相対的に低いので, 溶媒抽出法に代わり抽出クロマト分離法を適用すると, 発生する有機溶媒廃液量を大幅に低減できる可能性があることが報告されている^{7~9)}。筆者

¹ 勘産業創造研究所

* Corresponding author, E-mail: tkikuchi@iri.or.jp

† 現在, 日本原子力研究開発機構

**本論文は, 「技術報告」として受理・審査された。

らは、*n*-オクチル(フェニル)-*N,N*-ジイソブチルカルバモイルメチルフォスフィンオキサライド (CMPO) をシリカ担体に含浸した吸着材(以下 CMPO 含浸吸着材)を用い、HLLW 中の短半減期発熱性核種(Cs, Sr 群)を中発熱性長半減期核種(MA・ランタノイド群)と分離できることを報告した^{10~12)}。さらに、筆者らは、CMPO 含浸吸着材中に生成した放射線劣化物は、溶離液中に溶出して吸着材中に蓄積しないことを見出した¹²⁾。このことから、溶媒抽出法において、放射線劣化物を有機相から除去するために必要となる、大量のアルカリ洗浄液¹³⁾が発生しないと考えられる。

この CMPO 含浸吸着材を適用した核種分離対象として六ヶ所再処理工場 PUREX ラフィネート廃液を想定した場合、吸着・溶離処理を年間数百回程度繰り返す必要があると考えられる。このため、核種分離プロセスの成立性は、CMPO 含浸吸着材の初期分離性能ばかりでなく、繰り返し使用した場合の性能評価も重要となる。

本報では、CMPO 含浸吸着材を使用した吸着・溶離繰り返し試験の結果^{10,11)}および γ 線照射試験の結果^{10,12)}をもとに、核種分離システム基本フローの構築およびプロセス概念について検討した結果を報告する。

II. 核種分離基本フロー

燃焼度 45 GWd/t の軽水炉燃料 800 t を、PUREX プロセス年 200 日運転で再処理することを前提に、その PUREX ラフィネート廃液に対する CMPO 含浸吸着材による核種分離基本フローを構築した。PUREX ラフィネート廃液量は、SF 溶解液量に相当すると仮定した場合、SF 溶解液中の U 濃度を 1 mol/dm³ と考えると 3,300 m³/y になる^{a)}。この廃液化学組成を、燃料取り出し後 4 年で再処理した場合を想定して ORIGEN II 計算コードをもとに推算した。なお、再処理工場から HLLW への U, Pu の移行率は 0.1% 未満と予想される¹⁵⁾、U と CMPO 含浸吸着材との相互作用は大きく、分離プロセスに大きな影響を及ぼすので、U と Pu が過剰に HLLW へ移行した場合を考え移行率を 0.1% とした。また、Ru の 70% および Mo の

50% は不溶解残渣に移行し HLLW には含まれないものとした。Zr については 10% 程度不溶解残渣に移行すると考えられるが¹⁶⁾、U 同様 CMPO 含浸吸着材との相互作用が大きいので、不溶解残渣移行量は考慮せずに検討した。また、腐食生成物として Fe, Cr, Ni を考慮した。**Table 1** に、SF を年 800 t 再処理した場合の HLLW 中に含まれる元素の推定量を示す。

分離システムフローは **Fig. 1** に示す。各カラムから溶離される溶離液の処理を効果的に行うために、濃縮機による溶離液濃縮処理を併用し、その濃縮能力に対応するためカラムも小型化し 3 塔並列にした。各カラムの吸着材充填量は、模擬 HLLW 吸着試験結果より求めた CMPO 含浸吸着材の MA・ランタノイド吸着容量(吸着材 1 m³ 当たり約 50 mol)等をもとに 0.67 m³/塔(3 塔合計 2 m³)とした。これにより、第 1 塔で吸着処理後この塔で溶離処理を行いながら、第 2 塔で吸着処理ができるので、本来バッチ処理である吸着・溶離処理を連続的な処理にすることが可能である。また、吸着元素回収の際、吸着材に含浸した CMPO の一部は溶離液中に溶解し溶出するので、繰り返し使用に伴い吸着容量が低下する。これを抑制するために、溶離液をあらかじめ CMPO で飽和させておくことが有効である。すなわち、溶離液の供給ラインに CMPO 含浸吸着材を充填した CMPO プレカラムを設置し、このプレカラムに溶離液を通液して CMPO を飽和させ、溶離処理時の吸着塔カラムからの CMPO の溶解・溶出を抑制し、吸着容量を保持する¹⁰⁾。

HLLW 中の U, Zr は CMPO との相互作用が大きく、MA やランタノイドの吸着を阻害する。**Figure 2** に、吸

Table 1 Output of HLLW elements based on ORIGENII computer code

Element	Weight (kg/y)	Element	Weight (kg/y)
U	754	Ru	715
Np	542	Rh	454
Pu	42	Pd	1,460
Zr	5,374	Y	510
Sn	92	Am	365
Rb	387	Cm	33
Sr	930	La	1,330
Cs	2,800	Ce	2,596
Ba	1,755	Pr	1,218
Mo	1,822	Nd	4,405
Ag	74	Pm	44
Cd	118	Sm	800
Sb	23	Eu	163
Te	513	Gd	124
Tc	812	Fe	4,800
		Cr	800
		Ni	760

a) PUREX ラフィネート廃液量は、Barnwell の再処理工場の例から SF 溶解液量より 1.3 倍程度多くなると考えられるが¹⁴⁾、本報では SF 溶解液量と同じと仮定した。PUREX ラフィネート廃液量が増加すると、高レベル放射性廃棄物(HLW)核種の濃度は低下するので、1 回当たりの処理廃液量は増えても、処理回数に変化はない(1 回当たりに処理できる廃液量は HLW 核種に対する吸着容量で決まるが、液量増加が 1.3 倍程度であれば、液量の増加に伴う HLW 濃度の低下が吸着容量に及ぼす影響は無視できるため)。処理廃液量が増えることで処理時間は増加するが、吸着分離性能に対して HLLW 供給速度(空間速度)は余裕のある設定なので、処理液量の増加に伴う処理時間の増加は HLLW 供給速度を変更することで対応可能である。また、現状では溶離液量が PUREX ラフィネート廃液量より数倍多く、処理時間の大半を溶離工程が占めている。よって、PUREX ラフィネート廃液量の増加に伴う影響は大きくないと考えられる。

Fig. 2 Adsorption behavior of simulated HLLW with CMPO-adsorbent

Fig. 3 Adsorbed amount of U and Zr with cycled treatment in first CMPO-adsorbent

混合溶液(以下、シュウ酸溶離液)を通過したところ、10、11サイクル目いずれも Mo を始めとする蓄積元素がほぼ 100%回収され、Nd、Mo 吸着容量はほぼ回復した。この結果をもとに、蓄積した Mo の回収のために 3 サイクルに 1 回の頻度でシュウ酸溶離液を用いることにした。なお、この概念検討には含めていないが、必要に応じ分離された MA・ランタノイドから、MA をチアカリックスアレーン含浸シリカ吸着材により回収することもできる¹⁷⁾。

さらに詳細は後述するが、クエン酸およびシュウ酸溶離

Fig. 4 Adsorbed amount of Nd and Mo and elution ratio of these elements with cycled treatment in second CMPO-adsorbent

液はその一部を再利用し、使用量の低減を図る。これらの条件でプロセス概念検討を行った。

III. 運転概要

第 1 CMPO 含浸吸着材カラムは吸着・溶離液を $SV = 2.5/h$ で通過する。模擬 HLLW を使用した試験では、 $SV = 24/h$ までは吸着・溶離性に変化がないことを確認している。SV は年間 800 t 再処理で発生する HLLW 量を、年間 200 日運転で処理できる処理速度より大きくなるように考慮した。U、Zr の溶離にはクエン酸を吸着材容積の 20 倍 (20-bed volume) 通過する。なお、すべての吸着・溶離操作は $50^{\circ}C$ で行うものとする。3 塔の吸着材カラムは交互に再生することで、処理能力 $1 m^3/h$ の濃縮機 2 台で溶離液の濃縮処理に対応する。

第 2 CMPO 含浸吸着材カラムは、 $SV = 3/h$ で吸着・溶離処理する。MA・ランタノイド等を吸着させ、Cs、Sr、白金族元素廃液は通過液として回収される。溶離処理では $0.01 mol/dm^3$ 硝酸を 5-bed volume 通過して、MA 等の吸着元素を分離する。Mo は 3 サイクルに 1 回シュウ酸溶離液を 5-bed volume 通過して回収する。

IV. 物質収支

1. 核種分離工程の物質収支

模擬 HLLW を使用した吸着・溶離試験の結果^{10,11)}と γ 線照射による吸着容量の低下^{10,12)}を加味して、Table 1 に示した核種の物質収支を検討した。Figure 5 に、核種分離工程のカラム通過液および各溶離液の核種の組成を示す。なお、Pu と Np の吸着・溶離挙動は確認していないので U と同じと仮定した。第 1 工程では、CMPO と親和性の大きい、U、Zr を HLLW から吸着分離することが主

Fig. 5 Chemical composition of each solution from separation process

Fig. 6 Elution curve by using citric acid and oxalic acid

眼となる。ほぼすべての U, Zr と少量の白金族および Mo がカラムに吸着し、他の元素群は通過して第 2 工程に送られる。吸着した U, Zr 等はクエン酸により溶離される (Eluent 1)。第 2 吸着材カラムを通過した液には高発熱性核種である Cs, Sr が全量含まれ、また白金族元素の約 70%, Fe 等の腐食性元素や Y 等の一部が含まれる (Passage)。Fe や Y は、単独では CMPO 含浸吸着材へ相

当量吸着させることが可能であるが、MA・ランタノイド等と比べ CMPO 含浸吸着材への吸着性が低いため、MA・ランタノイド共存下では、一部が吸着されず通過液側へ移行する。吸着元素群のうち、MA・ランタノイドはほぼ全量が 0.01 mol/dm³ 硝酸により溶離される (Eluent 2)。この溶液には吸着材へ吸着した一部の Fe, Y および Pd や Ru も含まれる。Pd や Ru は、硝酸溶液中で種々の

化学形態を取るため、通過液や各溶離液に分散してしまう。Mo は約 5% が 0.01 mol/dm^3 硝酸溶離液に含まれる。 0.01 mol/dm^3 硝酸溶離液で溶離できない元素はシュウ酸溶離液で回収される (Eluent 3)。

2. クエン酸・シュウ酸溶離液の再利用¹¹⁾

U, Zr や Mo を回収するために、大量のクエン酸やシュウ酸が必要となる。その量は、クエン酸で 3.5 t/d 、シュウ酸で 0.8 t/d と推定される。**Figure 6** に、クエン酸、シュウ酸溶離液による、全元素を合わせた溶離曲線を示す。クエン酸溶離液の結果は、Fig. 6(a)に示す。クエン酸通液後 1.2-bed volume で溶離金属濃度は最大となり、吸着した元素の約 65% は、2.5-bed volume 分の通液で溶離している。残りの元素は、テーリング部分で回収される。このテーリング部分の全金属濃度は、 500 ppm に満たない。同様に、Fig. 6(b)に示すシュウ酸溶離液では、吸着した元素の約 75% が、2-bed volume 分の通液で溶離し、テーリング部分の全金属濃度は $1,000 \text{ ppm}$ 以下である。

金属濃度の低い、テーリング部分を溶離液として再利用できれば、溶離に使用するクエン酸やシュウ酸の量を低減できる。クエン酸溶離液の 75% (5-bed volume 以降の溶離液) およびシュウ酸溶離液の 60% (2-bed volume 以降の溶離液) を再利用した場合の、再利用回数と 1 日当たりのクエン酸、シュウ酸使用量の関係を **Fig. 7** に示す。溶離液を 1 回再使用する、すなわち溶離液を 2 度使用することで、クエン酸使用量は 1 日当たり 3.5 t から 2.2 t まで低減できる。さらに 2 回再使用 (計 3 度使用) した場合、ク

エン酸使用量は 1 日当たり約 1.8 t となり、再利用しない場合と比較し半減できる。同様にシュウ酸使用量は 1 回再利用で 0.6 t/d 、2 回再利用で 0.5 t/d となり、再利用しない場合 (0.8 t/d) の約 60% となる。しかし、いずれの溶離液も再使用回数をこれ以上に増やすと低減効果は小さくなる。

Fig. 7 Effect of eluents reuse on citric acid and oxalic acid usage

Fig. 8 Elution curves of various elements with reused eluents

Figure 8に、使用済みクエン酸およびシュウ酸溶離液のテーリング部分を再利用した時の溶離曲線を示す。この際、再利用する溶離液はテーリング部分だけなので必要な溶離液量が不足する。この不足分は新たな溶離液と、再利用する溶離液を混合して使用した。Figure 8(a)には、クエン酸溶離液再利用の結果を示す。最初と1回および2回の再利用におけるU, Zr溶離曲線はほぼ一致した。Figure 8(b)は、第2 CMPO 含浸吸着材を想定した溶離試験の結果である。Nd等の溶離には0.01 mol/dm³ 硝酸を再利用せずに使用し、Mo等の溶離に際してシュウ酸を再利用したが、初回と再利用時の溶離曲線はほとんど一致しており、クエン酸、シュウ酸ともに再利用が可能であることがわかる。

前述のように溶離液はCMPOで飽和させるが、この溶離液中のCMPOは吸着材と相互作用することなしに、溶離液中に溶存していると考えられる。各溶離液に対するCMPO溶解量はリン換算で約20 ppmである。クエン酸およびシュウ酸溶離液を2回再利用(計3度使用)した場合の各溶離液の使用量は、クエン酸溶離液(Eluent 1)で6,100 m³/y, 0.01 mol/dm³ 硝酸溶離液(Eluent 2)で10,770 m³/y, シュウ酸溶離液(Eluent 3)で2,145 m³/yであるので、各溶離液に含まれるCMPO由来のリンの量は、それぞれ122 kg/y, 215 kg/y, 43 kg/yとなる。

V. 吸着材寿命

1. 廃吸着材発生量

CMPO 含浸吸着材は、 γ 線照射線量の増加に伴いオクチルフェニルホスフィン酸(OPP)を経由してリン酸に分解し、照射線量2 MGy付近でのMA・ランタノイドの吸着容量は初期吸着容量の約80%, Uの吸着容量は約85%にまで低下する^{10,12)}。この、照射線量が2 MGyに達した時点で吸着材を交換すると、吸着・溶離処理可能回数および廃吸着材発生量は、1処理当たりの照射線量で決まる。1処理当たりの照射線量は、線量率と処理時間すなわちSVに依存するので、SVと廃吸着材発生量の関係を調べた。廃吸着材発生量推定のベースとなる吸着処理時の線量率は、HLLWの発熱量から計算した。具体的にはORIGEN II計算コードをもとに、1 MTU当たりの核種の発熱量を推定し(2,800 W/MTU)、ここからU濃度を1 mol/dm³と仮定したSF溶解液のU, Puを除く核種発熱量を計算し(0.66 W/dm³)、1 Wh/dm³=3,600 GyであるのでHLLWの1時間当たりの線量率は2,400 Gy/hと推算した。溶離時の線量率は、第1 CMPO 含浸吸着材では吸着核種がUとZrであり発熱量はほとんど無視できるので0とした(CMPOの分解の主原因は、水や硝酸が γ 線により分解して生成したラジカルによると推定し、 α 線の影響は考慮しなかった)。第2 CMPO 含浸吸着材では、吸着処理時の線量率は2,400 Gy/h, MA・ランタノイド溶離での線量率は、Cs, Sr, 白金族元素が除去されているので

Fig. 9 Effect of space velocity on amount of spent adsorbents

Fig. 10 Outline drawings of adsorption cartridge

920 Gy/h, Mo溶離での線量率はCs, Sr等のほかにMA・ランタノイドも除去されているので440 Gy/hと推定した。これらをもとにしたSVと廃吸着材発生量の関係をFig. 9に示す。SVが大きいほど1処理当たりの照射線量が低下するので、より多くの吸着・溶離処理を行うことが可能となり廃吸着材量が減少する。第2カラムからの廃吸着材量が多いのは、溶離処理時の照射線量が第1カラムより大きいためである。ここでは、吸着・溶離処理において第1 CMPO 含浸吸着材のSVは2.5/h, 第2 CMPO 含浸吸着材では3/hに設定したので、第1カラム

からの廃吸着材発生量は 0.7 t/y, 第 2 カラムからは 2 t/y となり, 総廃吸着材発生量は年 2.7 t と推算される。

2. 吸着材の交換方法

劣化した CMPO 含浸吸着材は, 新規吸着材に取り替える必要がある。その交換方法として, カートリッジ方式を検討した。カートリッジ式カラムはカートリッジ部分とこれを収容する収納容器部分から構成される (Fig. 10)。カートリッジサイズは, CMPO 含浸吸着材の必要容量, 空間速度, 圧損およびカートリッジ交換時のハンドリング性を考慮し, 700 mm ϕ $\times$ 1,750 mm (内容積 0.67 m³) とした。この CMPO 含浸吸着材では, 通液線速約 12 cm/min までほとんど圧力損失が生じない (直径 10 mm ϕ $\times$ 高さ 500 mm カラムによる小規模試験の結果) が, カートリッ

ジ径が 700 mm ϕ であれば SV = 2.5~3/h の範囲で線速は 7~9 cm/min にできるので, カートリッジ方式での運転は可能であると考えられる。カラム本体の大きさはカートリッジを収容でき, 遠隔操作取り出しに十分な空間のある 950 mm ϕ $\times$ 2,222 mm とした。CMPO 含浸吸着材内での通液偏流を避けるため, カラム下部から液を供給し, カラム上部からオーバーフローさせる構造とし, カラム内部の液温を 50°C に保持するために外側に温水ジャケットを設ける構造とした。

VI. 分離工程の建屋空間内の配置概念

以上の結果をもとに分離工程の建屋空間内の配置概念を検討した。Figure 11 に, 2 階平面配置概念図と断面図を示す。なお, 検討に当たっては, C4 セル-C4 セル間, C4

Fig. 11 Plot plan drawing around adsorbent column

セル-C3 ルーム間の床および壁厚は 2 m とし, C3 以下 ルーム-ルーム間の床および壁厚は 1 m とした。また, ユーティリティ(冷却水, 蒸気, 圧縮空気, 温水等)は建屋外から適宜供給されるものとし, 本建屋内はユーティリティを分配するための設備のみ設置するものとした。高放射能廃液移送にはエアジェットサイフォン方式を, カラムへの供給液, 溶離液洗浄液の切り換えはバルブフィード方式を適用した。建屋内の設備配置は, 上層階に溶離溶離液等の試薬供給設備, 2 階に第 1, 第 2 吸着設備の両方を配置し, 着材カラムの搬入・搬出は, マニピュレーターを用いて 1 階を経由して行われるものとした。なお, 第 1, 第 2 CMPO 含浸吸着材カラムともに充填量は 0.67 m³ (0.33 t) で, 予備カラムを 1 塔ずつ設け, 計 8 塔設置する。廃液濃縮工程関連設備は地下階に配置される。建屋規格は概略縦 60 m × 横 80 m × 高さ 36 m (地上 5 階, 地下 2 階) の施設になった。

VII. 結 言

CMPO 含浸吸着材を使用した吸着・溶離繰り返し試験の結果および γ 線照射試験の結果をもとに高レベル放射性廃棄物固化体発生量を低減するため核種分離プロセス概念について検討した。また, 溶離液処理の方法や使用済み吸着材の発生量, 吸着材カラム交換方法に, さらに主要設備の配置および規模について検討した。

本研究は, 経済産業省資源エネルギー庁からの委託調査事業である「地層処分技術調査等(処理技術高度化調査)」の一環として, 平成12年度から平成16年度にかけて実施した研究成果に基づくものであり, ご協力いただいた関係各位に対して謝意を表します。

— 参考文献 —

- 1) 藤田朝雄, 清水和彦, “高レベル放射性廃棄物地層処分の工学技術,” 資源と素材, **117**[10], 794 (2001).
- 2) 田川博彰, “高レベル放射性廃棄物固化化に関する研究 : I,” 横浜国大環境研紀要, **8**, 89 (1982).
- 3) L. L. Hench, D. E. Clark, A. B. Harker, “Review nuclear waste solids,” *J. Mater. Sci.*, **21**, 1457 (1986).
- 4) H. Ohtsuka, K. Suzuki, “A relation between high loading of

HLW and space reduction of disposal,” *Proc. GLOBAL 2005*, Tsukuba, Japan, Oct. 9–13, 2005 Paper No. 499 (2005).

- 5) 森田泰治, 館盛勝一, 駒 義和, 他, 高レベル廃液からのアクチニド分離プロセスの研究, JAERI-RESEARCH-2002-017 (2002).
- 6) T. Takata, Y. Koma, K. Sato *et al.*, “Conceptual design study on advanced aqueous reprocessing system for fast reactor fuel cycle,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **41**[3], 307 (2004).
- 7) Y.-Z. Wei, M. Kumagai, Y. Takashima *et al.*, “Studies on the separation of minor actinides from high-level waste by extraction chromatography using novel silica-based extraction resins,” *Nucl. Technol.*, **132**, 413 (2000).
- 8) 韋 悦周, 駒 義和, 新井 剛, 他, “シリカ担持型 CMPO 吸着材の基礎特性に関する試験研究,” 日本原子力学会和文論文誌, **1**[4], 432 (2002).
- 9) 駒 義和, 高田 岳, 佐藤浩司, “先進湿式再処理プラントの概念検討(1)—MAREC 法による Am 及び Cm の回収,” 日本原子力学会「2004年春の年会」要旨集, F50 (2002).
- 10) T. Kikuchi, I. Goto, K. Suzuki, “Separation of heat release nuclides in HLW by CMPO impregnated silica ion-exchanger,” *Proc. 9th Int. Conf. on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation*, Oxford, UK, Sept. 21–25, 2003, Paper No. ICEM03-4635 (2003).
- 11) I. Goto, T. Kikuchi, K. Suzuki, “Partitioning of HLLW by CMPO impregnated silica adsorbent,” *Proc. GLOBAL 2005*, Tsukuba, Japan, Oct. 9–13, 2005, Paper No. 409 (2005).
- 12) T. Kikuchi, I. Goto, K. Maruyama *et al.*, “Durability of CMPO impregnated silica adsorbent under irradiation conditions,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **43**[5], 562 (2006).
- 13) J. N. Mathur, M. S. Murali, P. B. Ruikar *et al.*, “Degradation, cleanup, and reusability of octylphenyl-*N-N'*-diisobutylcarbamolymethyl phosphine oxide (CMPO) during partitioning of minor actinides from high level waste (HLW) solutions,” *Sep. Sci. Technol.*, **33**[14], 2179 (1998).
- 14) M. Benedict, T. H. Pigford, H. W. Levi, 原子力化学工学第 IV 分冊 燃料再処理と放射性廃棄物管理の化学工学, 日刊工業新聞社, 61, 168 (1983).
- 15) 日本原燃編, “再処理施設における放射性核種の挙動,” JNFS R-91-001改 1, 15, 18 (1996).
- 16) 塚田毅志, 高橋恵樹, L. Koch, 他, PUREX 再処理条件下における高燃焼度 UO₂ 燃料および MOX 燃料の溶解特性, 電力中央研究所柏江研究所研究報告, T97082, 71 (1998).
- 17) T. Kikuchi, I. Goto, K. Suzuki, “Effect of irradiation on adsorption performance of Thiocalix [4] arene impregnated silica adsorbent,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **43**[6], 690 (2006).