

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第6部門第1区分

【発行日】平成25年8月8日(2013.8.8)

【公表番号】特表2012-531579(P2012-531579A)

【公表日】平成24年12月10日(2012.12.10)

【年通号数】公開・登録公報2012-052

【出願番号】特願2012-516783(P2012-516783)

【国際特許分類】

G 2 1 C 19/46 (2006.01)

【F I】

G 2 1 C 19/46 M

【手続補正書】

【提出日】平成25年6月20日(2013.6.20)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

使用済み核燃料を処理する方法であって、

a) 硝酸中での使用済み核燃料の溶解から生じる硝酸水相に存在するウラン、プルトニウム及びネプツニウムを、同様にこの相に見出されるアクチニド(III)及び核分裂生成物の大部分から除染する工程であって、酸化状態VIのウラン、酸化状態IVのプルトニウム、及び酸化状態VIのネプツニウムを、非親水性かつ有機希釈剤中に少なくとも1つの抽出剤を含有する溶媒相中に共抽出する少なくとも1つの処理と、硝酸水相によりこの共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を洗浄する少なくとも1つの処理とを含むものである工程と、

b) 工程a)の終了時に得られた溶媒相中に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを第1水相及び第2水相に分離する工程であって、前記第1水相は、プルトニウム(ウランとネプツニウムは含まず)、プルトニウム及びウランの混合物(ネプツニウムは含まず)、又はプルトニウム、ウラン及びネプツニウムの混合物のいずれかを含有し、前記第2水相は、ウラン及びネプツニウムの混合物(プルトニウムは含まず)又はウラン(プルトニウムとネプツニウムは含まず)を含有するものである工程と、

c) 工程b)の終了時に得られた第1水相を貯蔵する工程と、

d) 工程c)の終了時に得られた第1水相中に存在するプルトニウム、プルトニウム及びウランの混合物、又はプルトニウム、ウラン及びネプツニウムの混合物のいずれかを、この水相中になおも存在する核分裂生成物から精製する工程であって、プルトニウム及びウランの混合物、プルトニウム、又はウラン及びネプツニウムの混合物のいずれかを含有する水溶液を精製の終了時に得るために、ウランを少なくとも一度添加する処理を含むものである工程と、

e) 工程d)の終了時に得られた水相中に存在するプルトニウム及びウランの混合物、プルトニウム、又はウラン及びネプツニウムの混合物のいずれかを、混合酸化物に混合転換する工程とを備える、方法。

【請求項2】

工程b)の終了時において、第1水相がウラン又はネプツニウムを含むことなくプルトニウムを含有し、第2水相がプルトニウムを含むことなくウラン及びネプツニウムを含有する、請求項1に記載の方法。

**【請求項 3】**

工程 b ) は、

b<sub>1</sub>) 工程 a ) の終了時に得られた溶媒相中に存在するプルトニウムを除去する処理であって、当該プルトニウムは硝酸水相によって酸化状態 III で除去されるものであり、当該硝酸水相は、ウランを還元することなくプルトニウム (IV) がプルトニウム (III) に、かつネプツニウム (VI) がネプツニウム (IV) に還元され得る還元剤を含有するものである処理と、

b<sub>2</sub>) 処理 b<sub>1</sub>) の終了時に得られた溶媒相中に存在するウラン及びネプツニウムを、水相によって除去する処理と、

b<sub>3</sub>) 処理 b<sub>1</sub>) においてプルトニウムに追従して水相に含まれたウラン及びネプツニウムの一部を取り除くために、工程 a ) で使用されたものと同じ組成の溶媒相によって処理 b<sub>1</sub>) の終了時に得られた水相を洗浄する処理とを含む、請求項 2 に記載の方法。

**【請求項 4】**

工程 c ) は、

c<sub>1</sub>) 処理 b<sub>3</sub>) の終了時に得られた水相中に存在するプルトニウム (III) を、酸化状態 IV とする酸化処理と、

c<sub>2</sub>) 酸化処理の終了時に得られた水相を濃縮する処理と、

c<sub>3</sub>) 濃縮された水相を貯蔵する処理とを含む、請求項 3 に記載の方法。

**【請求項 5】**

工程 d ) は、

d<sub>1</sub>) 工程 c ) の終了時に得られた水相中に存在するプルトニウム (IV) を、工程 a ) で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって抽出する処理と、

d<sub>2</sub>) 処理 d<sub>1</sub>) においてプルトニウムに追従して溶媒相に含まれた核分裂生成物を取り除くために、処理 d<sub>1</sub>) の終了時に得られた溶媒相を硝酸水相によって洗浄する処理と、

d<sub>3</sub>) 洗浄された溶媒相中に存在するプルトニウムを硝酸水相によって酸化状態 III で除去する処理であって、当該硝酸水相は、プルトニウム (IV) がプルトニウム (III) に還元され得る還元剤を含有するものである処理と、

好ましくは処理 b<sub>3</sub>) の終了時に行なわれ、プルトニウムにウラン (IV) を添加する処理とを含む、請求項 4 に記載の方法。

**【請求項 6】**

工程 b ) の終了時において、第 1 水相がネプツニウムを含むことなくプルトニウム及びウランを含有し、第 2 水相がプルトニウムを含むことなくウラン及びネプツニウムを含有する、請求項 1 に記載の方法。

**【請求項 7】**

工程 b ) は、

b<sub>1</sub>) 工程 a ) の終了時に得られた溶媒相中に存在するプルトニウム及びウランの一部を除去する処理であって、当該プルトニウム及びウランは硝酸水相によってそれぞれ酸化状態 III 及び VI で除去されるものであり、当該硝酸水相は、ウランを還元することなくプルトニウム (IV) がプルトニウム (III) に、かつネプツニウム (VI) がネプツニウム (IV) に還元され得る還元剤を含有するものである処理と、

b<sub>2</sub>) 処理 b<sub>1</sub>) の終了時に得られた溶媒相中に存在するウラン及びネプツニウムを、水相によって除去する処理と、

b<sub>3</sub>) 処理 b<sub>1</sub>) においてプルトニウム及びウランに追従して水相に含まれたネプツニウムの一部を取り除くために、処理 b<sub>1</sub>) の終了時に得られた水相を工程 a ) で使用されたものと同じ組成の溶媒相によって洗浄する処理であって、ネプツニウムに追従して溶媒相に含まれるウランの一部を補うために、ウラン (IV) 又は (IV) を添加して終了してもよい処理とを含む、請求項 6 に記載の方法。

**【請求項 8】**

工程 c ) は、

c<sub>1</sub>) 処理 b<sub>3</sub>) の終了時に得られた水相中に存在するプルトニウム(III)を酸化状態IVとし、ウラン(IV)が当該相中に存在する場合には当該ウラン(IV)を酸化状態VIとする酸化処理と、

c<sub>2</sub>) 酸化処理の終了時に得られた水相を濃縮する処理と、

c<sub>3</sub>) 濃縮された水相を貯蔵する処理とを含む、請求項7に記載の方法。

【請求項9】

工程d)は、

d<sub>1</sub>) 工程c)の終了時に得られた水相中に存在するプルトニウム(IV)及びウラン(VI)を、工程a)で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって共抽出する処理と、

d<sub>2</sub>) 処理d<sub>1</sub>)においてプルトニウム及びウランに追従して溶媒相に含まれた核分裂生成物を取り除くために、処理d<sub>1</sub>)の終了時に得られた溶媒相を硝酸水相によって洗浄する処理と、

d<sub>3</sub>) 洗浄された溶媒相中に存在するプルトニウムを硝酸水相によって酸化状態IIIで除去する処理であって、当該硝酸水相は、プルトニウム(IV)がプルトニウム(III)に還元され得る還元剤を含有するものである処理と、

d<sub>4</sub>) 処理d<sub>3</sub>)においてプルトニウム(III)に追従して水相に含まれたウラン(VI)を取り除くために、処理d<sub>3</sub>)の終了時に得られた水相を工程a)で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって洗浄する処理であって、好ましくは処理d<sub>4</sub>)の終了時において水相にウラン(IV)が少なくとも一度添加される処理とを含む、請求項8に記載の方法。

【請求項10】

工程b)の終了時において、第1水相がプルトニウム、ウラン及びネプツニウムを含有し、第2水相が、プルトニウム又はネプツニウムを含むことなくウランを含有する、請求項1に記載の方法。

【請求項11】

工程b)は、

b<sub>1</sub>) 工程a)の終了時に得られた溶媒相中に存在するプルトニウム、ネプツニウム、及びウランの一部を除去する処理であって、当該プルトニウム、ネプツニウム、及びウランは硝酸水相によってそれぞれ酸化状態III、V及びVIで除去されるものであり、当該硝酸水相は、ウランを還元することなくプルトニウム(IV)がプルトニウム(III)に、かつネプツニウム(VI)がネプツニウム(V)に還元され得る還元剤を含有するものである処理と、

b<sub>2</sub>) 処理b<sub>1</sub>)の終了時に得られた溶媒相中に存在するウランを、水相によって除去する処理とを含む、請求項10に記載の方法。

【請求項12】

工程c)は、

c<sub>1</sub>) 処理b<sub>2</sub>)の終了時に得られた水相中に存在するプルトニウム(III)及びネプツニウム(V)をそれぞれ酸化状態IV及びVIとする酸化処理と、

c<sub>2</sub>) 酸化処理の終了時に得られた水相を濃縮する処理と、

c<sub>3</sub>) 濃縮された水相を貯蔵する処理とを含む、請求項11に記載の方法。

【請求項13】

工程d)は、

d<sub>1</sub>) 工程c)の終了時に得られた水相中に存在するプルトニウム(IV)、ウラン(VI)、及びネプツニウム(VI)を、工程a)で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって共抽出する処理と、

d<sub>2</sub>) 処理d<sub>1</sub>)においてプルトニウム、ウラン及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれた核分裂生成物を取り除くために、処理d<sub>1</sub>)の終了時に得られた溶媒相を硝酸水相によって洗浄する処理と、

d<sub>3</sub>) 洗浄された溶媒相中に存在するプルトニウム及びネプツニウムを硝酸水相によっ

てそれぞれ酸化状態 III 及び V で除去する処理であって、当該プルトニウム及びネプツニウムは、プルトニウム (IV) がプルトニウム (III) に、かつネプツニウム (VI) がネプツニウム (IV) に還元され得る還元剤を含有するものである処理と、

d<sub>4</sub>) 処理 d<sub>3</sub>) においてプルトニウム (III) 及びネプツニウム (V) に追従して水相に含まれたウラン (VI) を取り除くために、処理 d<sub>3</sub>) の終了時に得られた水相を工程 a) で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって洗浄する処理であって、好ましくは処理 d<sub>4</sub>) の終了時ににおいて水相にウラン (IV) が少なくとも一度添加される処理とを含む、請求項 12 に記載の方法。

【請求項 14】

工程 d) の終了時に得られる水相がウランとプルトニウムの質量比が、工程 e) により得られる混合酸化物における当該質量比に対応する値を有するように、ウラン (IV) がプルトニウムに添加される、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 15】

工程 d) の終了時に得られる水相がウランとプルトニウムの質量比が、工程 e) により得られる混合酸化物における当該質量比に対応する値を有するように、ウラン (IV) がプルトニウムに添加される、請求項 9 に記載の方法。

【請求項 16】

工程 d) の終了時に得られる水相がウランとプルトニウムの質量比が、工程 e) により得られる混合酸化物における当該質量比に対応する値を有するように、ウラン (IV) がプルトニウムに添加される、請求項 13 に記載の方法。

【請求項 17】

工程 c) の継続期間は、少なくとも 15 日である、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 18】

工程 c) の継続期間は、1 ヶ月から 12 ヶ月である、請求項 17 に記載の方法。

【請求項 19】

処理 c<sub>3</sub>) により貯蔵される水相におけるプルトニウムの含有量が、200 ~ 250 g / L である、請求項 4 に記載の方法。

【請求項 20】

処理 c<sub>3</sub>) により貯蔵される水相におけるプルトニウム及びウランの混合物の含有量が、200 ~ 250 g / L である、請求項 8 に記載の方法。

【請求項 21】

処理 c<sub>3</sub>) により貯蔵される水相におけるプルトニウム、ウラン、及びネプツニウムの混合物の含有量が、200 ~ 250 g / L である、請求項 12 に記載の方法。

【請求項 22】

工程 a) で用いられる溶媒相は、トリ - n - ブチルホスフェートをドデカン中に約 30 / 70 又はこれに略等しい体積比で含有する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 23】

工程 a) は、

使用済み核燃料の溶解から生じる硝酸水相に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、トリ - n - ブチルホスフェートをドデカン中に約 30 / 70 又はこれに略等しい体積比で含有する溶媒相によって共抽出する第 1 の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれた核分裂生成物の一部、特にルテニウム及びジルコニウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは 1 ~ 3 モル / L の硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第 1 の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれたテクネチウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは 3 ~ 5 モル / L の硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第 2 の処理と、

第 2 洗浄処理の終了時に得られた水相中に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、第 1 の共抽出処理で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって共抽出

する処理とを含む、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 24】

処理 b<sub>1</sub>) で使用される硝酸水相は 0.05 ~ 1 モル/L の硝酸を含有し、処理 b<sub>2</sub>) で使用される水相は 0 ~ 0.05 モル/L の硝酸を含有する、請求項 23 に記載の方法。

【請求項 25】

工程 a) は、

使用済み核燃料の溶解から生じる硝酸水相に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、トリ-n-ブチルホスフェートをドデカン中に約 30/70 又はこれに略等しい体積比で含有する溶媒相によって共抽出する第 1 の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれた核分裂生成物の一部、特にルテニウム及びジルコニウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは 1 ~ 3 モル/L の硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第 1 の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれたテクネチウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは 3 ~ 5 モル/L の硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第 2 の処理と、

第 2 洗浄処理の終了時に得られた水相中に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、第 1 の共抽出処理で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって共抽出する処理とを含む、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 26】

処理 d<sub>2</sub>) で使用される硝酸水相は 1 ~ 3 モル/L の硝酸を含有し、処理 d<sub>3</sub>) で使用される硝酸水相は 0.05 ~ 2 モル/L の硝酸を含有する、請求項 25 に記載の方法。

【請求項 27】

工程 a) は、

使用済み核燃料の溶解から生じる硝酸水相に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、トリ-n-ブチルホスフェートをドデカン中に約 30/70 又はこれに略等しい体積比で含有する溶媒相によって共抽出する第 1 の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれた核分裂生成物の一部、特にルテニウム及びジルコニウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは 1 ~ 3 モル/L の硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第 1 の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれたテクネチウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは 3 ~ 5 モル/L の硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第 2 の処理と、

第 2 洗浄処理の終了時に得られた水相中に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、第 1 の共抽出処理で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって共抽出する処理とを含む、請求項 7 に記載の方法。

【請求項 28】

処理 b<sub>1</sub>) で使用される硝酸水相は 0.05 ~ 1 モル/L の硝酸を含有し、処理 b<sub>2</sub>) で使用される水相は 0 ~ 0.05 モル/L の硝酸を含有する、請求項 27 に記載の方法。

【請求項 29】

工程 a) は、

使用済み核燃料の溶解から生じる硝酸水相に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、トリ-n-ブチルホスフェートをドデカン中に約 30/70 又はこれに略等しい体積比で含有する溶媒相によって共抽出する第 1 の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれた核分裂生成物の一部、特にルテニウム及びジルコニウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは 1 ~ 3 モル/L の硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第 1 の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれたテクネチウムを

取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは3～5モル/Lの硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第2の処理と、

第2洗浄処理の終了時に得られた水相中に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、第1の共抽出処理で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって共抽出する処理とを含む、請求項9に記載の方法。

【請求項30】

処理d<sub>2</sub>)で使用される硝酸水相は1～3モル/Lの硝酸を含有し、処理d<sub>3</sub>)で使用される硝酸水相は0.05～2モル/Lの硝酸を含有する、請求項29に記載の方法。

【請求項31】

工程a)は、

使用済み核燃料の溶解から生じる硝酸水相に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、トリ-n-ブチルホスフェートをドデカン中に約30/70又はこれに略等しい体積比で含有する溶媒相によって共抽出する第1の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれた核分裂生成物の一部、特にルテニウム及びジルコニウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは1～3モル/Lの硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第1の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれたテクネチウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは3～5モル/Lの硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第2の処理と、

第2洗浄処理の終了時に得られた水相中に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、第1の共抽出処理で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって共抽出する処理とを含む、請求項11に記載の方法。

【請求項32】

処理b<sub>1</sub>)で使用される硝酸水相は0.05～1モル/Lの硝酸を含有し、処理b<sub>2</sub>)で使用される水相は0～0.05モル/Lの硝酸を含有する、請求項31に記載の方法。

【請求項33】

工程a)は、

使用済み核燃料の溶解から生じる硝酸水相に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、トリ-n-ブチルホスフェートをドデカン中に約30/70又はこれに略等しい体積比で含有する溶媒相によって共抽出する第1の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれた核分裂生成物の一部、特にルテニウム及びジルコニウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは1～3モル/Lの硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第1の処理と、

ウラン、プルトニウム、及びネプツニウムに追従して溶媒相に含まれたテクネチウムを取り除くために、共抽出処理の終了時に得られた溶媒相を好ましくは3～5モル/Lの硝酸を含有する硝酸水相によって洗浄する第2の処理と、

第2洗浄処理の終了時に得られた水相中に存在するウラン、プルトニウム、及びネプツニウムを、第1の共抽出処理で使用されたものと同じ組成を有する溶媒相によって共抽出する処理とを含む、請求項13に記載の方法。

【請求項34】

処理d<sub>2</sub>)で使用される硝酸水相は1～3モル/Lの硝酸を含有し、処理d<sub>3</sub>)で使用される硝酸水相は0.05～2モル/Lの硝酸を含有する、請求項33に記載の方法。

【請求項35】

工程b)の終了時に得られる第2水相中に存在するウランを精製する処理をさらに含む、請求項1に記載の方法。

【請求項36】

使用済み核燃料は酸化ウラン燃料、又はウラン・プルトニウム混合酸化物燃料である、請求項1に記載の方法。