



JP0650396

JA
E
A
-
R
e
s
e
a
r
c
h

簡素化溶媒抽出法による U, Pu 及び Np 共回収

—フィード溶液及び洗浄液の高硝酸濃度化に伴う Np の抽出挙動への影響評価—

U, Pu and Np Co-recovery in Simplified Solvent Extraction Process

- The Extraction Behavior of Np at the Condition of High HNO₃
Concentration Feed Solution and Scrubbing Solution -

中原 将海 佐野 雄一 宮地 茂彦 小泉 務 小山 智造 青瀬 晋一

Masaumi NAKAHARA, Yuichi SANO, Shigehiko MIYACHI, Tsutomu KOIZUMI,
Tomozo KOYAMA and Shin-ichi AOSE

東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所
サイクル工学試験部

Nuclear Cycle Engineering Department
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center

June 2006

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に刊行している研究開発報告書です。
本レポート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下さい。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課

Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

This report is issued by Japan Atomic Energy Agency irregularly.

Inquiries about the copyright and reproduction should be addressed to:

Intellectual Resources Section,

Intellectual Resources Department

2-4, Shirakata-shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, JAPAN

Tel. 81 29 282 6387, Fax. 81 29 282 5920

©日本原子力研究開発機構, Japan Atomic Energy Agency, 2006

・簡素化溶媒抽出法によるU, Pu及びNp共回収
—フィード溶液及び洗浄液の高硝酸濃度化に伴うNpの抽出挙動への影響評価—

日本原子力研究開発機構東海研究開発センター核燃料サイクル工学研究所サイクル工学試験部
中原 将海, 佐野 雄一, 宮地 茂彦, 小泉 務, 小山 智造, 青瀬 晋一

(2006年2月13日受理)

先進湿式再処理プロセスに関連して、U, Pu及びNp共回収を目的とした簡素化溶媒抽出法の研究を進めている。この一環として、フィード溶液及び洗浄液の酸濃度を上げることによりフィード溶液中及び遠心抽出器内においてNpの原子価を抽出性であるNp(VI)へ酸化させ、Npのラフィネートへのリーク防止を図った向流多段試験を行った。

本試験は、2005年5月16日から2005年5月20日にかけて高レベル放射性物質研究施設において、「常陽」Mk-I照射済炉心燃料溶解液をフィード溶液として用いた。フィード溶液中のPuの原子価はNO_xガスを吹き込むことによりPu(IV)に調整した。また、フィード溶液及び洗浄液の酸濃度を5.2M及び5Mとすることにより、フィード溶液中及び抽出段においてNp(V)からNp(VI)への酸化反応の促進を試みた。

フィード溶液及び洗浄液の酸濃度増加により、定常時におけるNpの物質収支では、ラフィネートへのリークを僅か1%に押さえることができた。また、プロダクト中のU, Puに対するtotal- γ の除染係数は、 4.2×10^4 であり、過去の試験と比べ高い値を示した。定常時における濃度プロファイルにおいて、抽出部1-5段目及び逆抽出部12-16段目におけるU濃度は比色分析の検出下限値未満となり、Pu濃度については α 線スペクトル分析の結果によるとテイリング現象がみられた。また、定常時に抽出部11-13段目においてサンプリングを行い、MIXSET-Xにより計算された濃度プロファイルとの比較を行った結果、遠心抽出器内においてアキュムレーションを起こしていないことが確認できた。サンプリングにより得られた濃度プロファイルを基に本条件における段効率をMIXSET-Xにより算出した。これら結果より抽出段のU, Pu及びNpの段効率は94%, 97%及び89.5%，洗浄段においては100%, 100%及び98.5%となり、逆抽出段のU, Pu及びNpの段効率は95%, 90%及び88%の値が得られた。

U, Pu and Np Co-recovery in the Simplified Solvent Extraction Process

—The Extraction Behavior of Np at the Condition of High HNO₃ Concentration

Feed Solution and Scrubbing Solution—

Masaumi NAKAHARA, Yuichi SANO, Shigehiko MIYACHI, Tsutomu KOIZUMI,
Tomozo KOYAMA and Shin-ichi AOSE

Nuclear Cycle Engineering Department
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 13, 2006)

Concerning the advanced aqueous reprocessing system, the simplified solvent extraction process for U, Pu and Np co-recovery has been investigated. We carried out the counter-current experiment, which aimed for Np oxidation and extraction by high HNO₃ concentration ([HNO₃]) condition. For preventing Np leakage to the raffinate, feed solution and scrubbing solution with high [HNO₃] were used, which would bring high [HNO₃] in the extraction section and efficient Np oxidation and extraction in this section. In addition, high [HNO₃] in the feed solution could help the pre-oxidation of Np to extractable Np(VI).

The counter-current experiment had been carried out with the dissolver solution of “JOYO” Mk-I irradiated MOX fuel at Chemical Processing Facility from 16th May to 20th May 2005. The Pu valence was adjusted to Pu(IV) by bubbling NO_x gas into the feed solution. In the experiment, it was attempted to oxidize Np(V) to Np(VI) in the feed solution and the centrifugal contactors by adjusting the acidity of the feed solution and scrubbing solution to be about 5.2M and 5M respectively.

In the steady state, the Np leakage to the raffinate could be kept under about 1%. The decontamination factor of total-γ was 4.2×10^4 in this experiment, which meant that U and Pu product solution could be decontaminated better than the past experiments. The concentration profiles of U showed that [U] could be kept under the lower analytical limit from 1st to 5th stages in the extraction section and from 12th to 16th stages in the stripping section. The concentration profiles of Pu were estimated [²³⁹Pu+²⁴⁰Pu] measured by α-spectrometry, which showed “tailing”

in the extraction section and scrubbing section. During the experiment, the aqueous phase and organic phase were taken from 11th to 13th in the scrubbing section for measuring [U], [Pu] and [Np]. The results of these analysis indicated that these elements were not accumulated in the centrifugal contactors. The stage efficiencies for these elements were estimated by fitting the concentration profiles calculated by MIXSET-X into the experimental ones. The stage efficiency of U, Pu and Np were evaluated 94%, 97% and 89.5% in the extraction section, 100%, 100%, 98.5% in the scrubbing section and 95%, 90% and 88% in the stripping section respectively.

Keywords : NEXT Process, Neptunium, Simplified Solvent Extraction Process, Stage Efficiency, MIXSET-X, Centrifugal Contactors

This is a blank page.

目次

1. 序論	1
2. 目的	1
3. 試験	1
3.1 試験場所	1
3.2 使用機器	1
3.3 使用試薬	2
3.3.1 照射済燃料溶解液	2
3.3.2 酸濃度・原子価調整	2
3.3.3 溶媒抽出供給液	2
3.4 試験期間	2
3.5 試験方法	2
3.5.1 フィード溶液	2
3.5.2 供給試薬温度	3
3.5.3 供給流量	3
3.5.4 運転時間	3
3.5.5 分析	3
4. 結果及び考察	4
4.1 分析結果	4
4.2 CA-4 セルにおける分光光度計測定	4
4.3 物質収支	5
4.4 除染係数	5
4.5 濃度プロファイル	6
4.5.1 U, Pu 及び Np の濃度プロファイル	6
4.5.2 FP の濃度プロファイル	6
4.6 HNO ₃ による Np の酸化反応	6
4.7 各元素の抽出及び逆抽出挙動	7
4.8 段効率	8
4.9 処理流量	9
5. 結論	9
6. 今後の予定	9
参考文献	11
付録	41

Contents

1. Introduction	1
2. Objects	1
3. Experimental.....	1
3.1 Experimental Place.....	1
3.2 Equipments	1
3.3 Reagents	2
3.3.1 The Dissolver Solution of the Irradiate MOX Fuel	2
3.3.2 Adjusted to Acidity and Pu Valence in the Feed Solution	2
3.3.3 Reagents in the Simplified Solvent Extraction	2
3.4 Experimental Term	2
3.5 Experimental Method	2
3.5.1 Feed Solution	2
3.5.2 Supply Temperature of Reagent	3
3.5.3 Flow Rate.....	3
3.5.4 Operation Time.....	3
3.5.5 Analysis.....	3
4. Results and Discussion.....	4
4.1 Analysis Results	4
4.2 Analysis by Spectrophotometer in CA-4 Cell	4
4.3 Mass Balance	5
4.4 Decontamination Factor	5
4.5 Concentration Profiles	6
4.5.1 U, Pu and Np of Concentration Profiles.....	6
4.5.2 FP of Concentration Profiles	6
4.6 Np Oxidation by HNO ₃	6
4.7 Extraction and Stripping Behavior of Several Elements.....	7
4.8 Stage Efficiency	8
4.9 Flow Rate in Operation.....	9
5. Conclusions	9
6. Further Research Problems.....	10
References	11
Appendix	41

List of Figures

Figure 1. Apparatus for adjusting Pu valence in the feed solution.....	12
Figure 2. Experimental flowsheet.....	13
Figure 3. Reagent supply line system	14
Figure 4. Reagent flow system	15
Figure 5. Absorption spectrum of the feed solution after adjusting Pu valence.....	16
Figure 6. Absorption spectrum of the 15 th stage organic phase in the extraction section.....	17
Figure 7. Absorption spectrum of the 14 th stage organic phase in the extraction section.....	17
Figure 8. Absorption spectrum of the 12 th stage organic phase in the extraction section.....	18
Figure 9. Absorption spectrum of the 11 th stage organic phase in the extraction section	18
Figure 10. Absorption spectrum of the 10 th stage organic phase in the extraction section.....	19
Figure 11. Absorption spectrum of the 5 th stage aqueous phase in the extraction section.....	19
Figure 12. Absorption spectrum of the 10 th stage aqueous phase in the extraction section.....	20
Figure 13. Absorption spectrum of the 12 th stage aqueous phase in the extraction section.....	20
Figure 14. Absorption spectrum of the 14 th stage aqueous phase in the extraction section.....	21
Figure 15. Absorption spectrum of the 15 th stage aqueous phase in the extraction section.....	21
Figure 16. Temperature profile	22
Figure 17. [U], [Pu] and [Np] profiles in the extraction section and scrubbing section (Calculation was carried out with 100% and 100% stage efficiency respectively)	23
Figure 18. [U], [Pu] and [Np] profiles in the stripping section (Calculation was carried out with 100% stage efficiency).....	23
Figure 19. [FP] profiles in the extraction section and scrubbing section (Calculation was carried out with 100% and 100% stage efficiency respectively)	24
Figure 20. [FP] profiles in the stripping section (Calculation was carried out with 100% stage efficiency)	24
Figure 21. [U] profile in the extraction section and scrubbing section (Calculation was carried out with 94% and 100% stage efficiency respectively)	25
Figure 22. [Pu] profile in the extraction section and scrubbing section (Calculation was carried out with 97% and 100% stage efficiency respectively)	25
Figure 23. [Np] profile in the extraction section and scrubbing section (Calculation was carried out with 89.5% and 98.5% stage efficiency respectively).....	26
Figure 24. [U] profile in the stripping section (Calculation was carried out with 95% stage efficiency)	26
Figure 25. [Pu] profile in the stripping section (Calculation was carried out with 90% stage efficiency)	27

Figure 26. [Np] profile in the stripping section (Calculation was carried out with 89% stage efficiency) 27

List of Tables

Table 1. The composition of irradiated MOX fuel.....	28
Table 2. The composition of the feed solution (estimated value)	29
Table 3. Analysis plan	30
Table 4. Analysis results.....	31
Table 5. Absorbance measured by spectrophotometer in CA-4 cell and concentration	32
Table 6. Mass balances of U, Pu, Np and Cs calculated by MIXSET-X	32
Table 7. Abundance ratios of U, Pu, Np and Cs based on the MIXSET-X calculation	33
Table 8. Mass balances of U, Pu, Np and FPs calculated by experimental values.....	33
Table 9. Abundance ratios of U, Pu, Np and FPs based on the experimental values	34
Table 10. Decontamination factors of FPs and total- γ	34
Table 11. Flow rate changes of 30% TBP/n-DD.....	35
Table 12. Flow rate changes of 5M HNO ₃	36
Table 13. Flow rate changes of 0.02M HNO ₃	37
Table 14. Flow rate changes of 5.2M HNO ₃ or the feed solution	38
Table 15. Flow rate changes of n-DD	39
Table 16. Flow rate changes of 3M HNO ₃	40

This is a blank page.

1. 序論

FBR 実用化戦略調査研究において、New Extraction System for TRU Recovery (NEXT)プロセス [1]と名付けた先進湿式再処理法の研究開発を進めている。NEXT プロセスは、照射済高速炉燃料の溶解液より余剰のウラン(U)を回収する晶析法[2]、U、プルトニウム(Pu)と共にネプツニウム(Np)を共回収する簡素化溶媒抽出法[3,4]及びU、Pu 及びNpを回収した後の抽出残液から抽出クロマトグラフィーによりアメリシウム(Am)及びキリュウム(Cm)を回収するプロセスから構成されている複合工程である。この NEXT プロセスにより安全性の確保、経済性の向上、資源の有効利用、核不拡散、環境負荷低減などの効果が期待されている。

NEXT プロセスの中核をなす簡素化溶媒抽出法は、従来使用されている PUREX 法の Pu 分配工程及び U, Pu 精製工程を削除し、U, Pu そして Np を一括抽出するものであり、高レベル放射性物質研究施設(CPF)ではこれまでに同フローシート中での Np の抽出挙動を中心に研究を行っている。これまでの研究では、フィード溶液を比較的高酸濃度である 5M 程度に調整し、フィード溶液中の Np の原子価を抽出性である Np(VI)へ酸化させることにより溶解液中からの Np の回収を図っている。これにより、約 98% の Np がプロダクト中に回収され、ラフィネートへの Np のリークが 2% 程度に押さえられていることを確認している。このラフィネートへのリークをさらに低減させるため、抽出段における酸濃度を高くすることにより、遠心抽出器内における Np(VI)への酸化反応を促進させることができると考えられる。

本試験では、フィード溶液と共に洗浄液中の硝酸(HNO₃)濃度を高い値に調整することで抽出段の酸濃度を向上させ、遠心抽出器内での Np の酸化反応の促進及びラフィネートへの Np リークの低減を試みた。

2. 目的

フィード溶液及び洗浄液の酸濃度を 5.2M 及び 5M に調整して供給した場合のプロダクトにおける U, Pu 及び Np の回収率、各核分裂生成物(FP)のプロダクトに対する除染係数への影響を評価する。さらに、定常時におけるこれらの元素の濃度プロファイルを取得し、これを用いて段効率を求める。

3. 試験

3.1 試験場所

高レベル放射性物質研究施設 CA-3 セル

3.2 使用機器

・CPF 型遠心抽出器

ロータ径(内径): 27mm

最大水相処理流量: 3000mL/h (有機相 3500mL/h の場合、実験値)

ロータ回転数: 2500–3500rpm

インベントリー: 25mL/段 (ロータ内 15mL, ハウジング部 10mL)

段数: 16 段/1 バンク

- ・定量ポンプ
- ・送液チューブ
- ・ポリタンク
- ・熱電対
- ・ヒーター
- ・温度調節器

3.3 使用試薬

3.3.1 照射済燃料溶解液

2004 年度晶析試験に用いた燃料組成を Table 1 に示す。本試験では、溶解液として晶析試験の母液に硝酸ウラニル(UNH)結晶を溶解したものを使用した。

- ・「常陽」Mk-I 燃料溶解液 2.0L (フィード溶液)

3.3.2 酸濃度・原子価調整

- ・14.6M HNO₃ 0.25L (酸濃度調整)
- ・6M HNO₃ 0.4L (NO_x ガス発生用)
- ・3M NaNO₂ 0.4L (NO_x ガス発生用)
- ・純水 0.4L (トラップ)

3.3.3 溶媒抽出供給液

- ・5M HNO₃ 1.6L (洗浄液)
- ・5.2M HNO₃ 5.8L (模擬フィード溶液)
- ・3M HNO₃ 0.8L (酸濃度調整液)
- ・0.02M HNO₃ 18.0L (逆抽出液)
- ・30%リン酸トリプチル(TBP)/ノルマルドデカン(n-DD) 12.0L (抽出溶媒)
- ・n-DD 0.2L (溶媒洗浄液)

3.4 試験期間

2005.5.16 – 2005.5.20

3.5 試験方法

3.5.1 フィード溶液

「常陽」Mk-I 燃料溶解液を用いた。この溶液において酸濃度を 5.2M, 液量を 2.0L に調整し, フィード溶液として用いた。また, 3M の亜硝酸ナトリウム(NaNO₂) 0.2L と 6M HNO₃ 0.2L とを混合し

NO_x ガスを発生させフィード溶液に吹き込むことにより Pu の原子価を Pu(IV)に調整した。なお、試験器具の容量の関係によりフィード溶液を 2 回に分け、NO_x ガスの吹き込みを行った。ORIGEN 2.1 により計算された調整後のフィード溶液組成を Table 2 に、また原子価調整装置の概略図を Figure 1 に示す。

3.5.2 供給試薬温度

逆抽出液(0.02M HNO₃)の供給温度は、60°Cに調整されたセル内恒温槽中を通過させることにより約 45°Cとした。供給温度は、逆抽出部 16 段目において約 45°Cであることを確認した。他の試薬はすべてセル内温度にて供給した。

3.5.3 供給流量

当初予定していたフローシートを用いて酸一溶媒平衡運転を開始したが、廃溶媒出口より水相のエントレインメントが確認された(約 200mL/h)ため、運転を中断した。これを受けて、各供給流量を約 10%低下させたが、この条件においても僅かではあるが廃溶媒側への水相のエントレインメントが認められた(約 80mL/h)。このエントレインメントの全量が 16 段目より供給してある逆抽出液(0.02M HNO₃)の逆流によるものであると想定した場合(この場合、逆抽出液流量は 1918mL/h に低下する)でも、廃溶媒出口における U, Pu 濃度は分光光度計の検出下限値未満であると MIXSET-X[5]の計算により予想されたため、当初予定していたフローシートの流量を約 10%低下させて本運転、押出運転を行った。本試験において実際に運転を実施したフローシートを Figure 2 に示す。また、実験室 A-CA-3 セル間における試薬供給設備接続ライン及び試薬系フローを Figure 3, 4 に示す。なお、処理流量低下の原因については 4.9 項にて考察を行っている。

3.5.4 運転時間

試験は、酸一溶媒平衡運転、本運転、押出運転及び溶媒押出運転の順で行った。

- ・酸一溶媒平衡運転 0.5 時間
- ・本運転 2.75 時間
- ・押出運転 1.5 時間
- ・溶媒押出運転 0.5 時間

酸一溶媒平衡運転終了後、プロダクト受容器を交換し、本運転及び押出運転を行った。また、酸一溶媒平衡運転及び押出運転では模擬フィード溶液として 5.2M HNO₃ を用いた。

3.5.5 分析

フィード溶液については調整前後において、予め U, Pu, Np, FP 及び酸濃度測定を行うとともに、分光光度計測定により Pu(VI)(830nm 付近)の存在の有無を確認した。

本運転開始 120 分を目安に、廃溶媒出口、プロダクト出口、ラフィネート出口、逆抽出部 15, 14, 13 及び 12 段目有機相、装荷溶媒出口、抽出部 15, 14, 13, 12, 11 及び 10 段目有機相、2, 3, 4, 5,

10, 11, 12, 13, 14 及び 15 段目水相よりサンプリングを行った。さらに、押出運転終了後、ラフィネット受容器、プロダクト受容器及び廃溶媒受容器よりサンプリングを実施した。U 濃度については、比色分析、Pu 濃度は比色分析及び α 線スペクトル分析、Np 濃度は α 線スペクトル分析、FP(total- γ)濃度は γ 線スペクトル分析、酸濃度は滴定分析により測定を行った。なお、抽出部 15, 14, 12, 11 及び 10 段目有機相、5, 10, 12, 14, 15 段目水相のサンプルについては、簡易的な分析方法により U 及び Pu の濃度プロファイルの傾向をみるという目的で CA-4 セルに設置してある分光光度計により測定を実施した。この内 12, 14 及び 15 段目水相サンプルは 5M HNO₃ を用いて 2, 5 及び 3 倍に希釈して分析を実施した。各サンプルに対する分析項目を Table 3 に示す。

4. 結果及び考察

4.1 分析結果

Pu(VI)の有無を確認するため酸濃度及び原子価を調整した後、フィード溶液について分光光度計測定を実施した。得られたスペクトルを Figure 5 に示す。Pu(VI)による 830nm 付近の鋭い吸収ピーク[6]はみられず、フィード溶液中に Pu(VI)が存在していないことを確認した。本スペクトルからは Np の原子価は明らかではないが、フィード溶液中に過剰の NO_x ガスを供給したことを考慮すると Np は Np(V)として存在するものと考えられる。

本試験で得られたサンプルの U, Pu, Np 及び酸濃度分析結果、さらに α , γ 線スペクトル分析結果を Table 4 に併せて示す。

本運転開始 120 分後に実施したラフィネット出口、抽出部水相 2—5 段目、逆抽出部有機相 12—15 段目及び廃溶媒出口からのサンプリングより得られたサンプル中における U 及び Pu の比色分析による結果、これらの U, Pu 濃度はともに検出下限値未満(U : <0.03g/L, Pu : <0.2g/L)であった。一方、Pu については比色分析の検出下限値未満と予想される箇所については α 線スペクトル分析を並行して行い、比色分析の検出下限値以下における詳細な濃度プロファイルを取得した。

4.2 CA-4 セルにおける分光光度計測定

簡易的な分析方法により U 及び Pu 濃度プロファイルの傾向をみるため、本運転開始 120 分後ににおける抽出部 10, 11, 12, 14, 15 段目有機相及び 5, 10, 12, 14, 15 段目水相からのサンプリングより得られたサンプルについて CA-4 セルの分光光度計にて測定を行った。CA-4 セルに設置してある分光光度計測定より得られた吸収スペクトルを Figure 6—15 に示し、分析値を Table 5 にまとめた。これらのサンプルの内、12 段目有機相、11 段目有機相からのサンプリングより得られたサンプルについては検量線作成のため、比色分析により U 及び Pu の濃度分析を行った。これらの分析結果を用いて吸収スペクトルが得られている一連の有機相中の U 及び Pu 濃度について(1), (2)式より見積もった。一方、吸収スペクトルが得られている水相サンプル中の U 及び Pu 濃度については、検量線作成のため抽出部 5 段目の水相サンプルを比色分析により測定した。しかし、このサンプル中の U 及び Pu 濃度が比色分析の検出下限値未満であったため、有機相サンプルにて得られた式をそのまま使用した。

$$C_{O,U} = 62.683 \times A_{O,U} (429\text{nm}) \quad (1)$$

$$C_{O,Pu} = 6.996 \times A_{O,Pu} (471\text{nm}) \quad (2)$$

ここで、 $C_{O,U}$ 及び $C_{O,Pu}$ は有機相の U 及び Pu 濃度を示し、 $A_{O,U}$ 及び $A_{O,Pu}$ は CA-4 セルの分光光度計により測定された 429nm 及び 471nm における吸光度を表している。

抽出部 10, 11, 12, 14 及び 15 段目の有機相における U, Pu 濃度は、比色分析により測定された抽出部 13 段目の有機相における分析結果とほぼ近い値を示した。しかし、抽出部 5, 10, 12, 14 及び 15 段目水相中における濃度は、抽出部 13 段目の水相における濃度と比較して 2 倍ほど高い値となった。今回の試験では、簡易的な分析方法により濃度プロファイルの傾向を探るため CA-4 セルにて分光光度計測定を実施した。このような簡易的な分析方法においても濃度プロファイルの傾向を掴むことができた。よって今後、この分析に関して更に精度向上に努めることにより、有益な情報を得ることができると思われる。

4.3 物質収支

物質収支の評価にあたっては(3), (4)式より収率を計算した。120 分後における収率 $Y_{120\text{min}}$ は

$$Y_{120\text{min}} = \frac{C_{i,j} \times v_i}{C_{F,j} \times v_F} \quad (3)$$

で計算し、押出後の収率 Y_{SB} については

$$Y_{SB} = \frac{C_{i,j} \times V_i}{C_{F,j} \times V_F} \quad (4)$$

で評価を行った。ここで、 $C_{i,j}$ は出口箇所 i における元素 j の濃度、 v_i は出口箇所 i における出口流量、 $C_{F,j}$ はフィード溶液における元素 j の濃度、 v_F はフィード溶液の供給流量、 V_i は出口箇所 i の液量、 V_F はフィード溶液の液量とする。

本試験結果における段効率を考慮に入れた MIXSET-X の計算結果から算出された U, Pu, Np 及び各 FP 元素の各出口箇所に対する物質収支及び存在比を Table 6 及び 7 にまとめる。定常時、押出運転終了時の分析結果より算出された本試験における U, Pu, Np 及び各 FP 元素の各出口箇所に対する物質収支及び存在比を Table 8 及び 9 にまとめる。

本試験において供給したフィード溶液における各元素の総量を 100%としたとき、本運転開始 120 分後のプロダクトにおける収率は U で 89%, Pu に関しては 95%となつた。これに対し、押出運転後におけるプロダクトの物質収支は U 及び Pu の収率として、Table 8 に示すようにそれぞれ 95%, 110%という値が得られた。Np に関しては、本運転開始 120 分後のプロダクトの収率は 107%であつた。また、押出運転後における Np の収率は 85%であつた。各元素の収率の値は 100%前後の数値であるがこれらは分析上の誤差範囲内であると考えられるため、今回の試験においては、U, Pu 及び Np については損失なく回収できたと思われる。

4.4 除染係数

分析結果よりプロダクト中の U, Pu に対する FP の除染係数 $DF_{P,j}$ を求めた。なお、除染係数は(5)

式より算出した。

$$DF_{P,j} = \frac{\frac{C_{F,j}}{C_{P,U+Pu}}}{\frac{C_{P,j}}{C_{P,U+Pu}}} \quad (5)$$

ここで、 $C_{F,j}$ はフィード溶液中の元素 j の濃度、 $C_{P,U+Pu}$ はフィード溶液中のU+Puの濃度、 $C_{P,j}$ はプロダクト中の元素 j の濃度、 $C_{P,U+Pu}$ はプロダクト中のU+Puの濃度である。

Table 10 に U, Pu に対する FP の除染係数を示す。セシウム(¹³⁷Cs), ユウロピウム(¹⁵⁴Eu 及び ¹⁵⁵Eu)の除染係数は 4.2×10^4 , $>1.8 \times 10^3$ 及び $>6.2 \times 10^3$ となり、total- γ の除染係数は 4.2×10^4 であった。これは、2003 年度に実施した簡素化溶媒抽出試験の値である 2.5×10^4 と比較しても高い数値である。

4.5 濃度プロファイル

4.5.1 U, Pu 及び Np の濃度プロファイル

フィード溶液供給 120 分後に各段よりサンプリングを実施した。また、本試験の条件において MIXSET-X の段効率を 100%として計算を行った。MIXSET-X の計算条件としては、カールスルーエ原子力研究所(KfK)の分配係数計算式を用い、逆抽出液を 45°Cにて供給した際の抽出器内の温度勾配については過去に行ったコールド試験の結果(Figure 16)を参考にした。Figure 17 及び 18 に抽出部及び逆抽出部における U, Pu, Np 及び酸濃度の実験値及び計算値を示す。

4.5.2 FP の濃度プロファイル

Figure 19 及び 20 に本運転開始 120 分後における抽出部及び逆抽出部の MIXSET-X による FP 濃度プロファイルの計算値を示す。なお、MIXSET-X におけるフィード溶液の組成として ORIGEN2.1 の計算より得られたジルコニウム(Zr), テクネチウム(Tc), ストロンチウム(Sr), ルテニウム(Ru), セリウム(Ce), ガドリニウム(Gd)及びフィード溶液の γ 線スペクトル分析より得られた Cs の濃度を用いた。また、Tc に対する分配係数計算式はフランス原子力庁(CEA)により得られたものを用いた。今回は、120 分後における各段での γ 線スペクトル分析を実施しなかったため Zr, Tc, Sr, Ru, Cs, Ce, Gd については計算値のみをプロットしている。

4.6 HNO₃ による Np の酸化反応

Np は、HNO₃ 溶液中において Np(IV), Np(V), Np(VI)の異なる原子価を取りうる。この内 Np(IV), Np(VI)は抽出性であり、Np(V)は難抽出性である。簡素化溶媒抽出法においては Np を U, Pu と共に共回収するため Np の原子価を 30%TBP/n-DD に抽出されうる Np(VI)に調整する。HNO₃ 溶液中において Np は下記の式により Np(V)と Np(VI)の平衡関係が成立する。



また、この反応速度は、HNO₃ 濃度及び亜硝酸(HNO₂)濃度に依存し、下記の式により計算される

[7]。

$$-\frac{d[\text{Np(V)}]}{dt} = \frac{1.8 \times 10^{-3} [\text{H}^+]^{1.3} [\text{NO}_3^-]^2 [\text{HNO}_2] [\text{Np(V)}]}{[\text{HNO}_2] + [\text{Np(V)}]} \quad (7)$$

(7)式は、 HNO_3 濃度及び HNO_2 濃度が高くなると、 HNO_3 による Np(V) の酸化反応速度が上昇することを示している。一方、 HNO_3 濃度及び HNO_2 濃度は(6)式の反応における平衡定数にも影響を及ぼす。(6)式のみかけの平衡定数はこれらの濃度及び Np(V) , Np(VI) 濃度により以下のように決定される[8]。

$$K_{\text{app}} = \frac{[\text{Np(VI)}] \cdot [\text{HNO}_2]^{\frac{1}{2}}}{[\text{Np(V)}] \cdot [\text{HNO}_3]^2} \quad (8)$$

Gourisse の研究[9]によると、酸濃度を 1M から 4M に上昇させるとみかけの平衡定数 K_{app} は 3.2×10^{-4} から 9.3×10^{-4} に増加することが報告されている。また、高 HNO_2 濃度では(6)式の反応式が左側に進み、 Np(V) の酸化反応が抑制される。

本試験においては、 Np のラフィネートへのリークは僅かに 1%であることを考慮すると、本試験条件下において Np(VI) への酸化が促進され、抽出及び逆抽出反応がほぼ完全に進行したものと推察される。すなわち、当初の目的であるフィード溶液及び洗浄液の高酸濃度化により(7)式で示した Np の酸化速度の向上及び(6)式で示した酸化反応の進行が十分に図られたものと考えられる。

4.7 各元素の抽出及び逆抽出挙動

Figure 17 及び 18 に抽出部及び逆抽出部における U , Pu , Np 及び酸濃度をの実験値及び計算値を再度示す。ラフィネート出口、抽出部水相 2–5 段目、逆抽出部有機相 12–15 段目及び廃溶媒出口における U 濃度は、比色分析の検出下限値未満となり、正確な濃度プロファイルを取得することができなかった。抽出部 10–15 段目においては水相に比べ有機相中の U 濃度が十分に大きく、またアキュムレーションも生じていないことが確認できる。

Pu については、ラフィネート出口、抽出部水相 2–5 段目、逆抽出部有機相 12–15 段目及び廃溶媒出口では比色分析の検出下限値未満となったが、これらのサンプルを対象とした α 線スペクトル分析を行い、詳細な濃度プロファイルを調査した。この分析の結果によると、ラフィネート出口、抽出部水相 2–5 段目、逆抽出部有機相 12–15 段目及び廃溶媒出口においてはテイリング現象がみられた。テイリング現象が起こる原因としては、水相中に 30%TBP/n-DD が溶解していることや Pu(IV) 以外の分配係数の低い化学種が共存していること等が考えられる。抽出部 11, 13 段目では U と同様水相より有機相中での濃度が高く、またアキュムレーションを起こすことなく抽出反応が進行していることが確認された。

Np については、 α 線スペクトル分析によりラフィネート出口、抽出部水相 2–4 段目の濃度プロファイルを取得した。この濃度プロファイルをみるとラフィネート出口から抽出部 4 段目にかけて Np 濃度が僅かに上昇しており、TBP により抽出されていることが示唆される。一方、逆抽出部有機相 15 段目、廃溶媒出口では参考値程度ではあるものの、13 段目から 14 段目にかけては、 Np の濃度が

減少していること、アキュムレーションが観察されていないこと、廃溶媒においては検出下限値未満であるということを考慮すると逆抽出反応が進行しているものと思われる。

4.8 段効率

抽出部及び逆抽出部における分析結果より得られた U, Pu, Np 及び酸濃度プロファイルから、本試験における抽出部及び逆抽出部の段効率を MIXSET-X の計算値との比較から見積もった。分配係数計算式については、K_{fK} のものを使用し、逆抽出液を 45°Cに加温した際の抽出器内の温度勾配については、過去に実施したコールド試験の結果を基にした。また、フィード溶液中の Np は全量 Np(V)と仮定して計算を行った。付録に MIXSET-X の入力条件及び入力ファイルを示す。

前回の試験では、5—7 段目のサンプリングにおける各元素の濃度プロファイルから U, Pu 及び Np に対する抽出段の段効率は 92.5%, 95%及び 89.5%と見積もられた。この段効率を用いた MIXSET-X の計算結果では 11 段目から 14 段目付近で、有機相中の各元素濃度よりも水相中の各元素濃度の方が大きくなり、各元素ともにアキュムレーションが生じている可能性が示唆された。よって、今回の試験では、抽出部 11 及び 13 段目の水相及び有機相についてサンプリングを行い、各元素について濃度測定を実施した。分析結果をみると 11, 13 段目ともに有機相中の濃度が水相中の濃度を上回っており、アキュムレーションは生じていないことが確認された。この結果は、抽出段と洗浄段において段効率が異なることを示唆しており、本運転時の抽出部及び逆抽出部のサンプリングにより得られた濃度プロファイルを基に、MIXSET-X により本条件での段効率を再度見積もった。実験及び計算より得られた抽出部における U, Pu 及び Np の濃度プロファイルを Figure 21, 22 及び 23 に示す。また、同様に逆抽出部についても Figure 24, 25 及び 26 にそれぞれ示す。

抽出部では、ラフィネート出口、水相 2—5 段目については、U は比色分析の検出下限値未満となつたため水相 5 段目の値を用い、Pu, Np については α 線スペクトル分析により 1—5 段目における濃度プロファイルを考慮した段効率の計算を行うと、抽出段の段効率は U が 94%, Pu は 97%, Np については 89.5%の値が得られた。U の段効率については検出下限値未満の値を使用したため 94%以上の段効率であると思われる。洗浄段においては 11 及び 13 段目の水相及び有機相の濃度を基に段効率の算出を行い、U では 100%, Pu では 100%, Np については 98.5%の値が得られた。

逆抽出部では、プロダクト出口と有機相 12—15 段目及び廃溶媒出口においてサンプリングを実施した。U については有機相 12—15 段目及び廃溶媒出口で比色分析の検出下限値未満となつた。Pu については濃度プロファイルとしては得られているものの有機相 12—15 段目、廃溶媒出口にかけてほぼ一定の値であった。また、Np についてはプロダクト出口、有機相 13 段目及び 14 段目でしか有意な分析結果が得られなかつた。よって、これら逆抽出部の段効率に関しては、U 及び Pu については有機相 12 段目、Np については有機相 13 段目の値を基に算出した。逆抽出部における段効率は、U, Pu 及び Np についてそれぞれ 95%, 90%及び 88%の値が得られた。これらの結果から考慮すると正確な段効率を算出したとは言い難いが、抽出部に比べ逆抽出部の段効率が低いという傾向[10]が確認された。

4.9 処理流量

本試験で実験室 A 及び CA-3 セル内にて供給した試薬の流量変化を Table 11-16 に示す。ポンプ流量に多少のばらつきがあるが、ポンプの性能や読み取り誤差を考慮すると、運転上問題ないと思われる。酸平衡時において、逆抽出部において廃溶媒側へ約 80mL/h の水相のエントレインメントが観察されたが、本運転及び押出運転においての廃溶媒側への水相のエントレインメントは約 105mL/h ほどであった。

本遠心抽出器については、CA-3 セル搬入前にコールド試験を行い、水相の最大処理流量が 3000mL/h であることを確認した。このコールド試験後、耐久性向上のためロータのシャフト部の交換を行い、簡単な通水検査のみでセル内に搬入した。しかし、試験では 2000mL/h 程度の流量でエントレインメントが生じた。この原因を調査するため行ったコールド試験ではブレード部がシャフトに対して垂直とならずに僅な歪みが生じているものを使用した場合、最大処理流量の低下が確認された。さらに、このブレード部の歪みを調整した後運転を開始すると、当初の性能を発揮した。これらのことから、今回のエントレインメントの原因は、ロータのシャフト交換自体に起因するものではなく、交換時にロータ内のブレードの歪みが生じたことによるものと考えられる。

5. 結論

「常陽」Mk-I 燃料溶解液をフィード溶液とした簡素化溶媒抽出試験を実施した。本試験では、フィード溶液及び洗浄液の酸濃度を 5.2M 及び 5M に調整し、Np のラフィネートへのリーク防止を図った。本試験条件において定常時における Np のラフィネートへのリークは僅かに 1% であった。本運転開始 120 分後におけるプロダクト中の U, Pu 及び Np の物質収支は、89%, 95% 及び 107% であり、押出運転後におけるプロダクト中の物質収支は U が 95%, Pu が 110%, Np においては 85% であった。また、今回の試験における total- γ のプロダクトに対する除染係数は 4.2×10^4 であり、過去の簡素化溶媒抽出試験で得られた値の中で最も高い結果となった。本運転開始 120 分後に抽出部及び逆抽出部からサンプリングを実施し、各元素の濃度プロファイルを取得した。U については、ラフィネート出口、抽出部水相 2-5 段目、逆抽出部有機相 12-15 段目及び廃溶媒出口においては比色分析の検出下限値未満であった。Pu, Np については、 α 線スペクトル分析により各濃度プロファイルを得た。これらの濃度プロファイルより抽出段における U, Pu 及び Np の段効率は、それぞれ 94%, 97% 及び 89.5%，洗浄段については 100%, 100% 及び 98.5% となり、また逆抽出段における U, Pu 及び Np の段効率は、95%, 90% 及び 88% と評価された。本フローシートにおける Np の回収は、FBR 実用化戦略調査研究の要求を満足しているが、抽出段の削減等のプロセスの最適化に向けた研究開発を今後も継続して実施していく必要があると思われる。

6. 今後の予定

本研究では、抽出部及び逆抽出部における各元素の段効率を詳細に検討する予定であったが、ラフィネート出口、抽出部水相 2-5 段目、逆抽出部有機相 12-15 段目及び廃溶媒出口において

U が比色分析の検出下限値未満となったこと、また Pu についてはテイリング現象がみられたこと等が要因となって正確な段効率を評価することが困難であった。今後、低濃度領域における U の分析方法の改良やサンプリングを行う段の見直しを行い、正確な段効率を評価する必要がある。また、これに関連して今回みられたテイリング現象が試験環境に起因するものかどうか併せて検討していく余地がある。Np の抽出及び逆抽出挙動については、理論を構築し、起きている現象の解析を行うことが必要である。

参考文献

- [1]T. Takata, Y. Koma, K. Sato, M. Kamiya, A. Shibata, K. Nomura, H. Ogino, T. Koyama and S. Aose : “Conceptual Design Study on Advanced Aqueous Reprocessing System for Fast Reactor Fuel Cycle”, J. Nucl. Sci. Technol., **41**(3), 307 (2004).
- [2]K. Yano, A. Shibata, K. Nomura, T. Koizumi and T. Koyama : “Uranium Crystallization for Dissolver Solution of Irradiated FBR MOX Fuel”, Proc. GLOBAL 2005, Tsukuba, Japan, Oct. 9-13, 2005, 118 (2005).
- [3]Y. Sano, M. Kamiya, A. Shibata, T. Koizumi and T. Koyama : “NEPTUNIUM CO-RECOVERY WITH URANIUM AND PLUTONIUM IN NEXT PROCESS”, Proc. ISEC’05, Beijing, China, Sep. 19-23, 2005, B201 (2005).
- [4]M. Nakahara, Y. Sano, Y. Koma, M. Kamiya, A. Shibata, T. Koizumi and T. Koyama : “Actinides Recovery by Solvent Extraction in NEXT Process”, Proc. GLOBAL2005, Tsukuba, Japan, Oct. 9-13, 2005, 262 (2005).
- [5]内藤大志, 須藤俊幸, 麻川和裕, 柏木栄介 : “抽出計算コード(MIXSET-X)”, 核燃料サイクル開発機構 研究報告., JNC TN8400 99-005 (1999).
- [6]中井敏夫, 斎藤信房, 石森富太郎編: “無機化学全書 XVII-2 プルトニウム”, 丸善株式会社., (1976).
- [7]J. P. Moulin : “CINETIQUES DES REACTIONS D’OXYDO-REDUCTION DU NEPTUNIUM EN SOLUTION NITRIQUE”, Thèse Doctorat d’état, Rapport CEA-R-4912 (1978).
- [8]O. Tochiyama, Y. Nakamura, Y. Katayama and Y. Inoue : “Equilibrium of Nitrous Acid-Catalyzed Oxidation of Neptunium in Nitric Acid-TBP Extraction System”, J. Nucl. Sci. Technol., **32**(1), 50 (1995).
- [9]D. Gourisse : “Oxidation du neptunium(V) par les solutions aqueuses d’acide nitrique en présence d’acide nitreux”, J. Inorg. Nucl. Chem., **33**, 831 (1971).
- [10]佐野雄一, 小山智造, D. Fox and R. J. Taylor : “単段小型遠心抽出器による U(VI)の抽出及び逆抽出試験—インライン吸光度測定による段効率の評価—”, 日本原子力学会 2004 年秋の年会要旨集, H45 (2004).

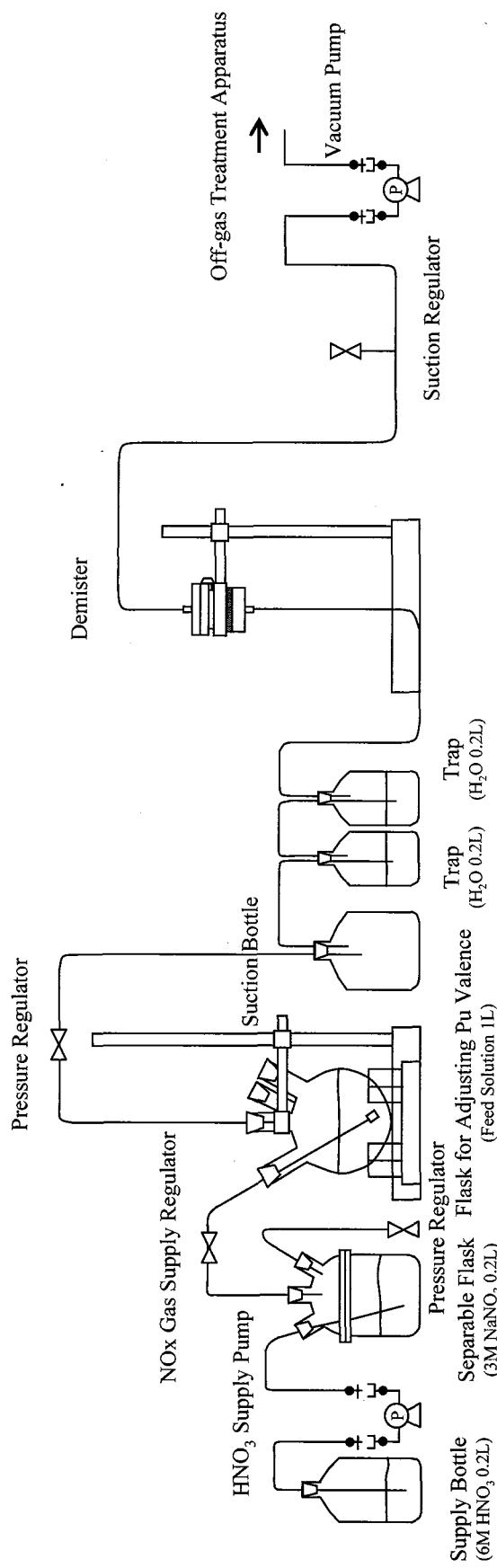


Figure 1. Apparatus for adjusting Pu valence in the feed solution

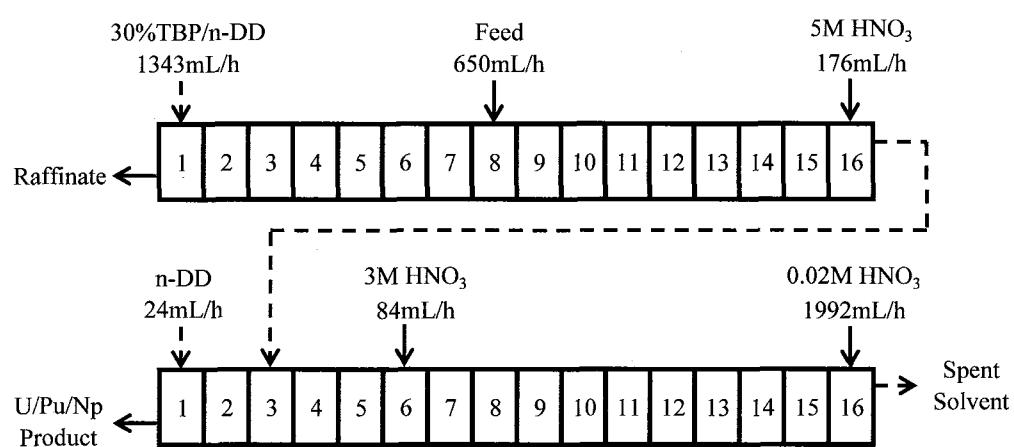


Figure 2. Experimental flowsheet

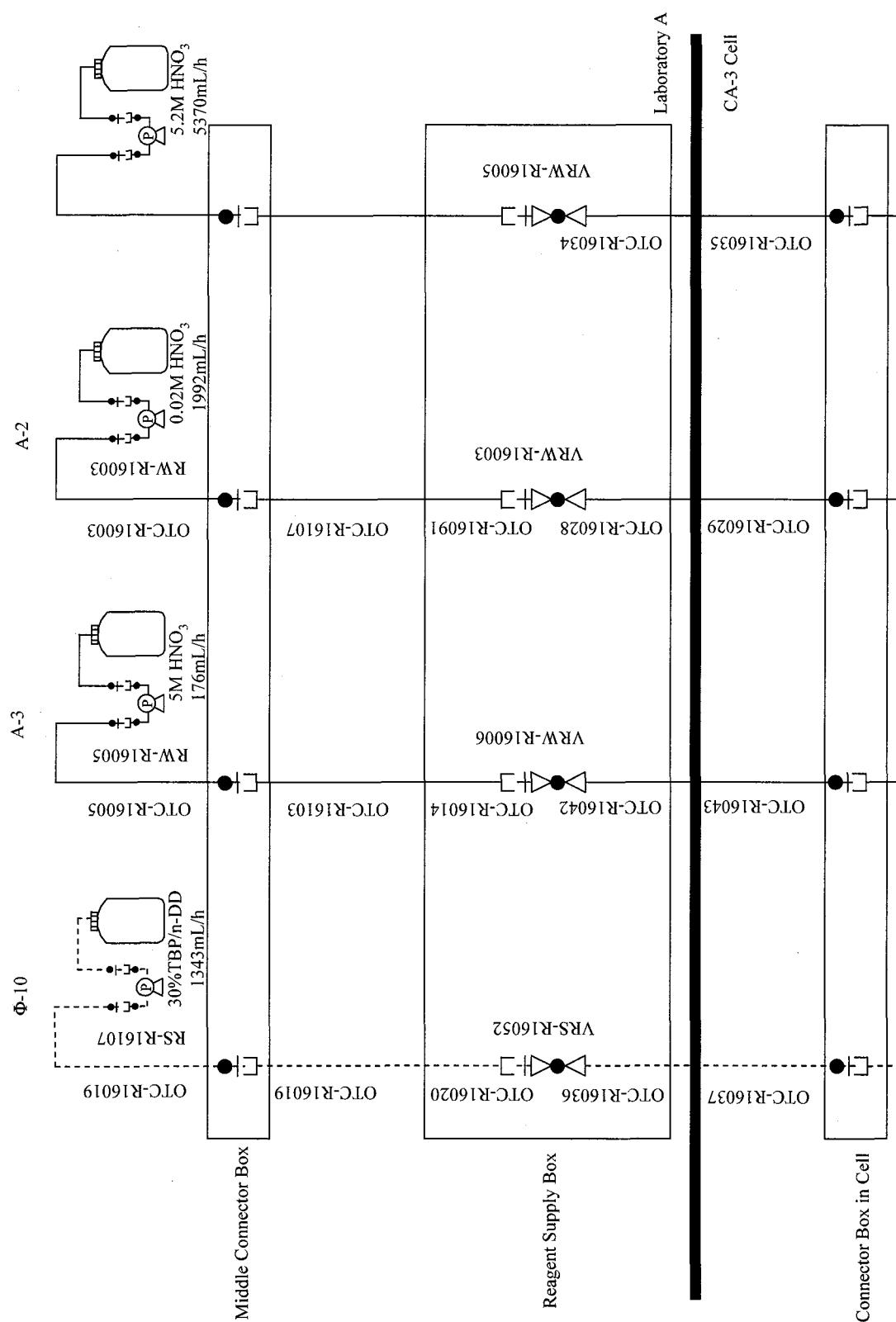


Figure 3. Reagent supply line system

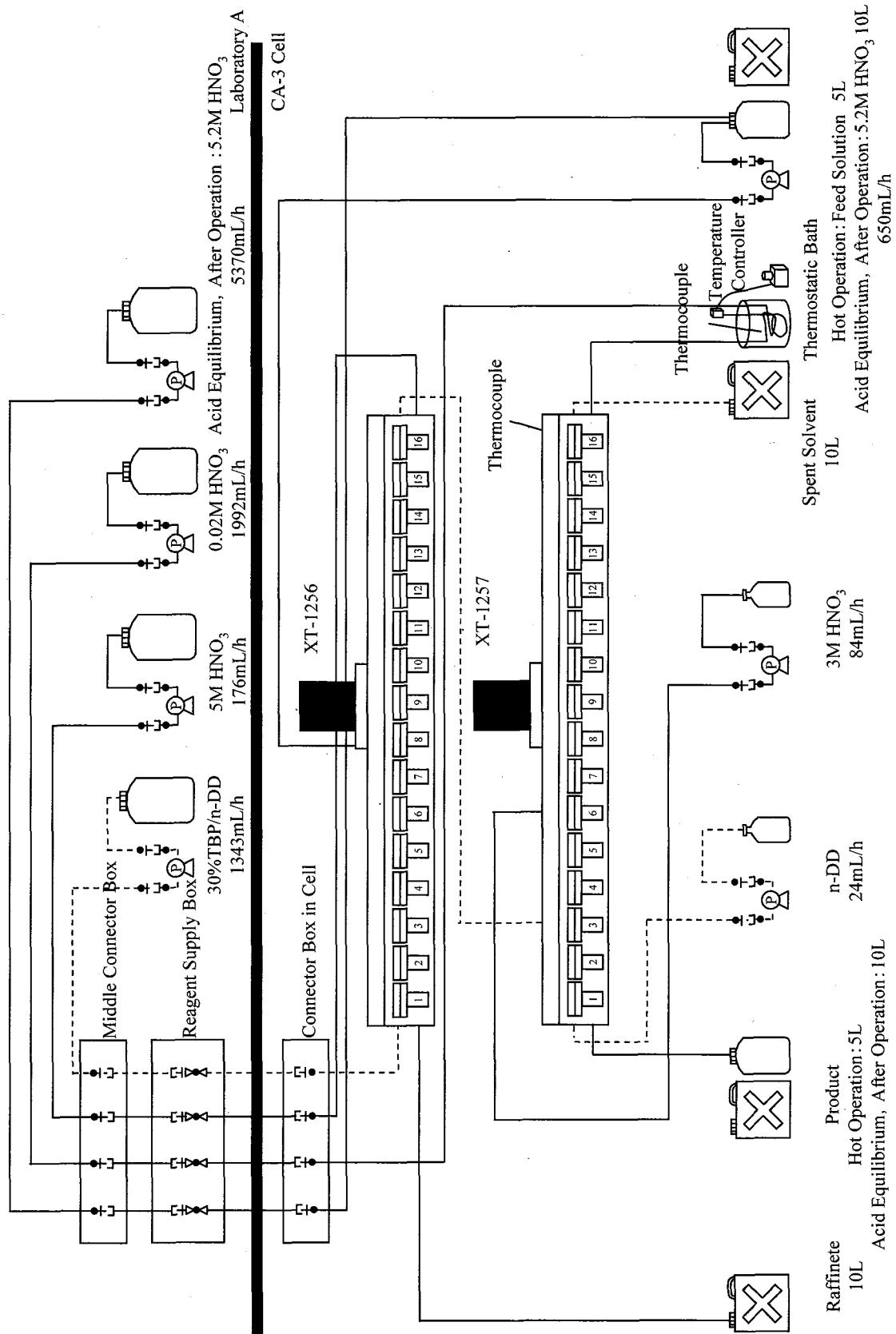


Figure 4. Reagent flow system

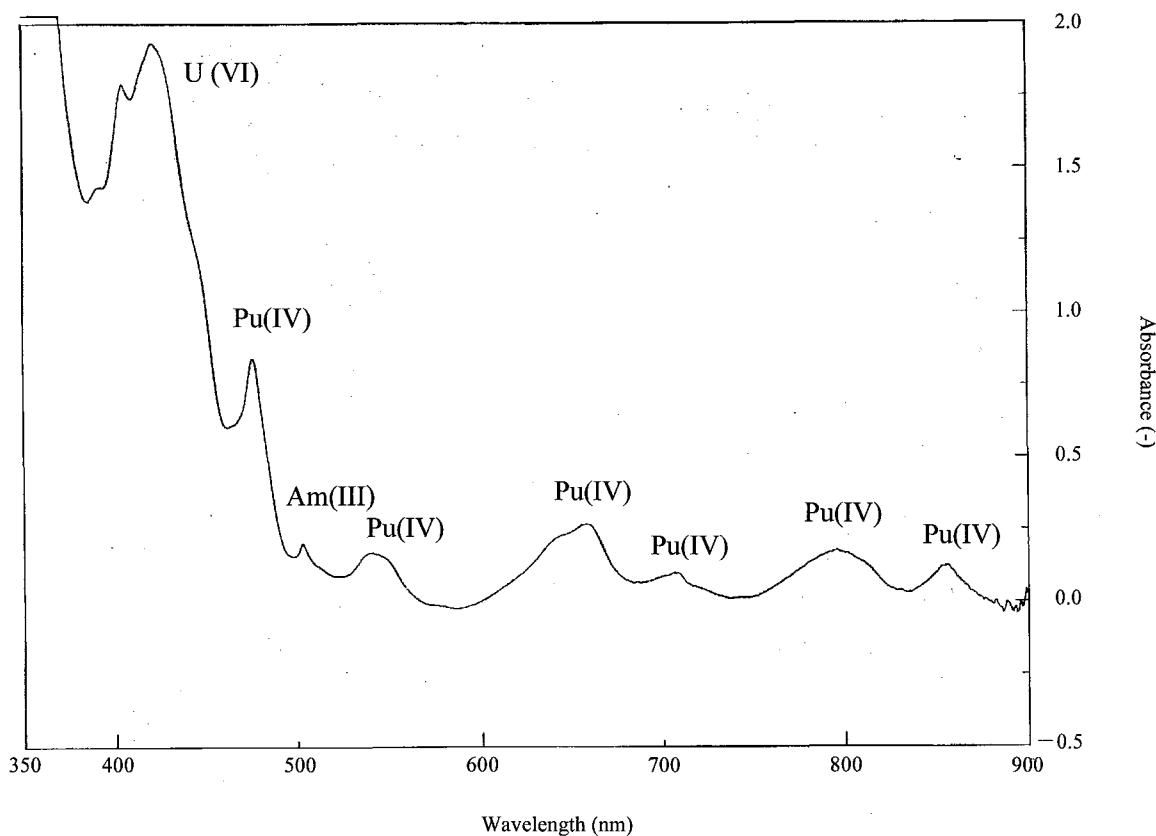


Figure 5. Absorption spectrum of the feed solution after adjusting Pu valence

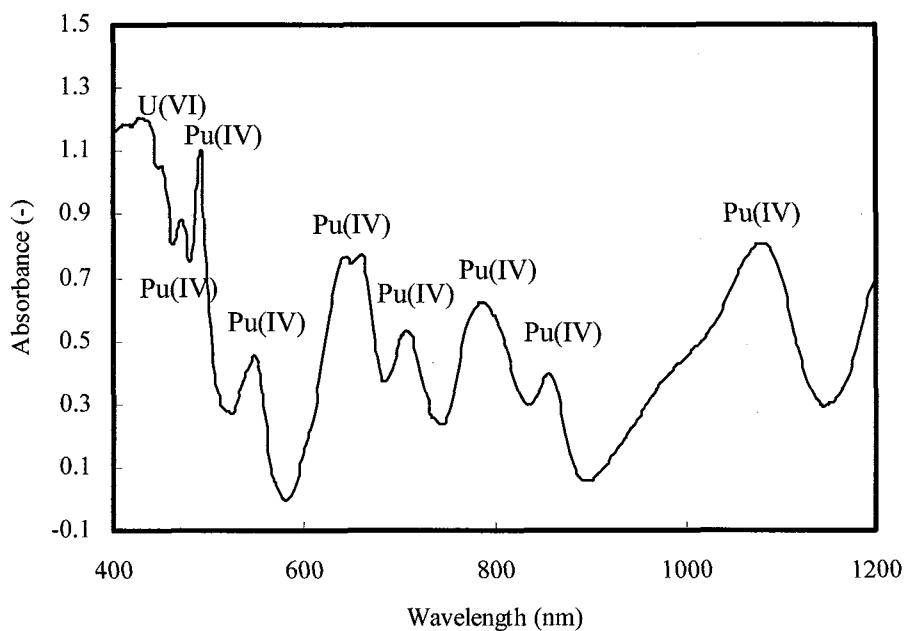


Figure 6. Absorption spectrum of the 15th stage organic phase in the extraction section

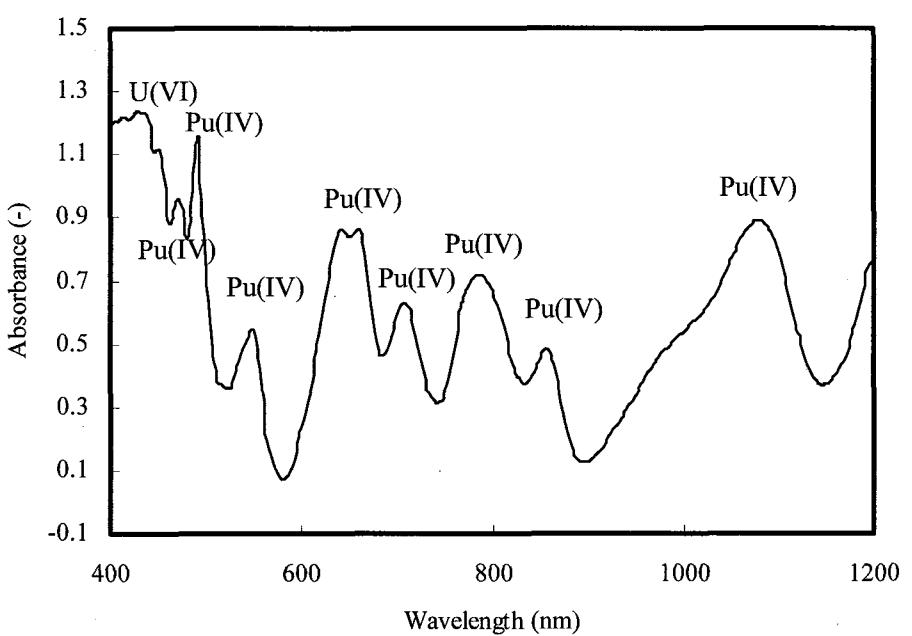


Figure 7. Absorption spectrum of the 14th stage organic phase in the extraction section

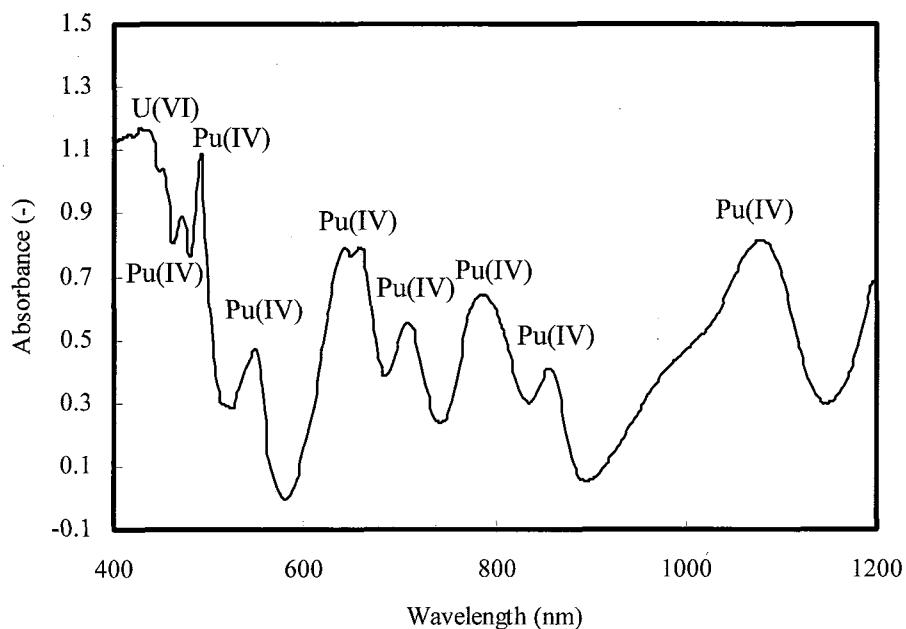


Figure 8. Absorption spectrum of the 12th stage organic phase in the extraction section

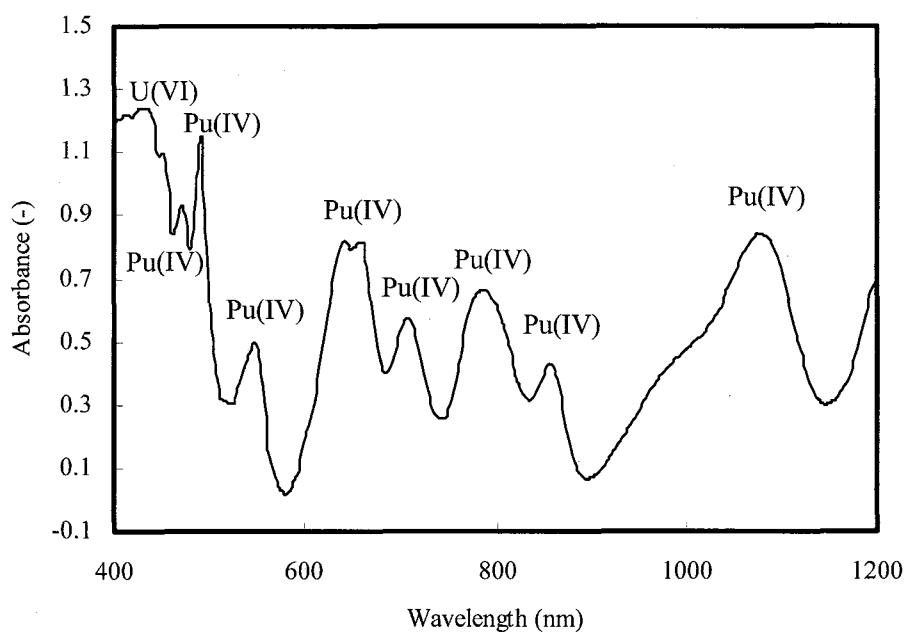


Figure 9. Absorption spectrum of the 11th stage organic phase in the extraction section

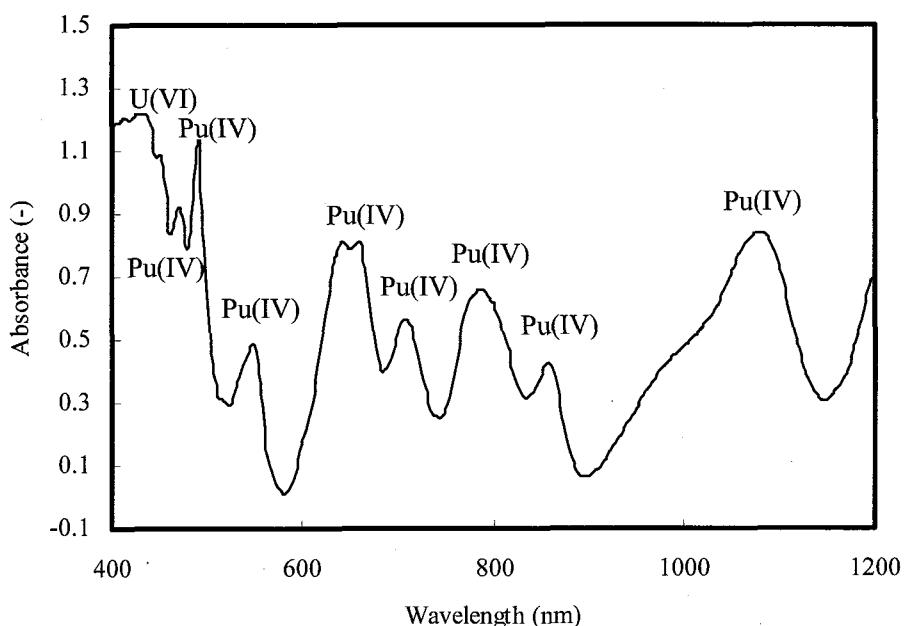


Figure 10. Absorption spectrum of the 10th stage organic phase in the extraction section

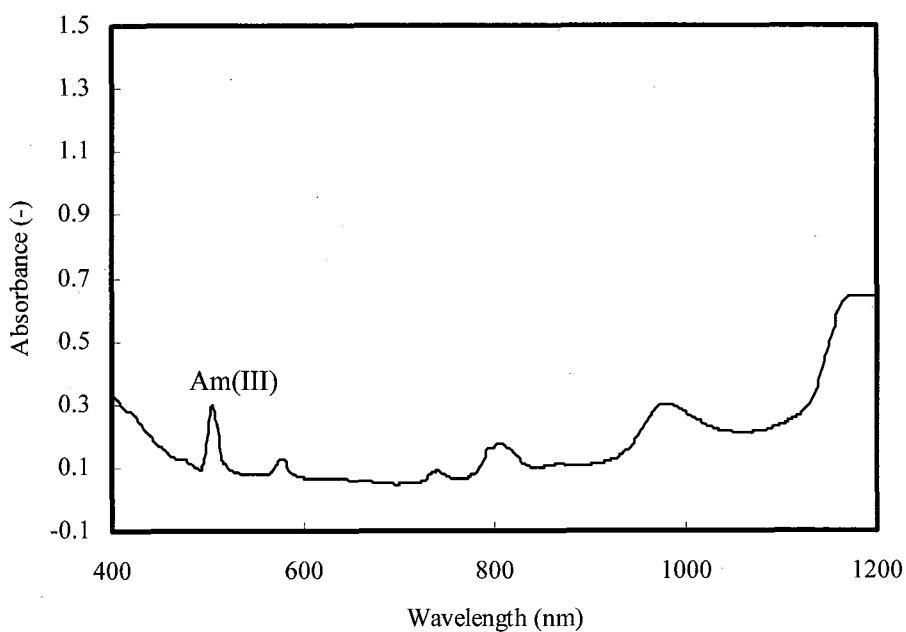


Figure 11. Absorption spectrum of the 5th stage aqueous phase in the extraction section

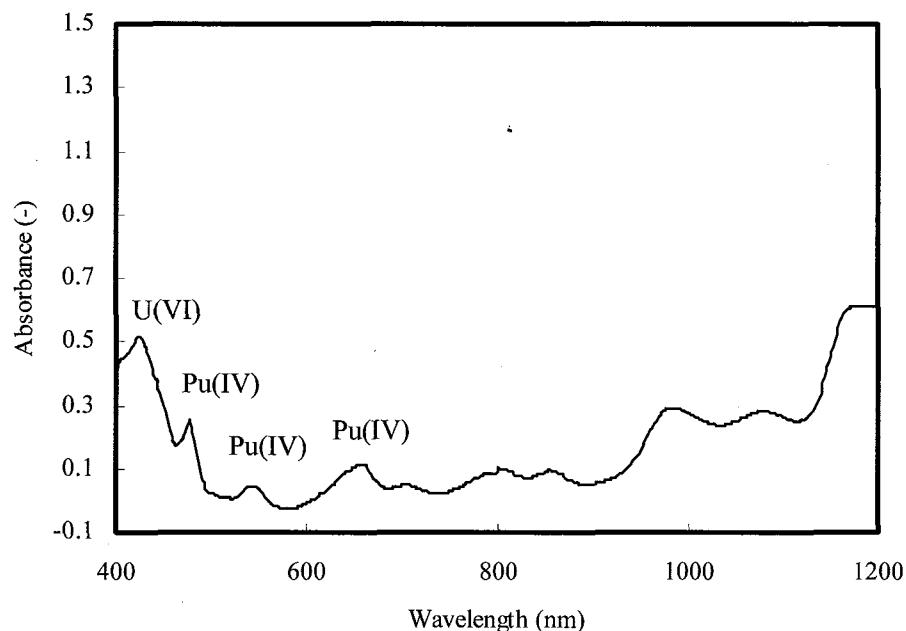


Figure 12. Absorption spectrum of the 10th stage aqueous phase in the extraction section

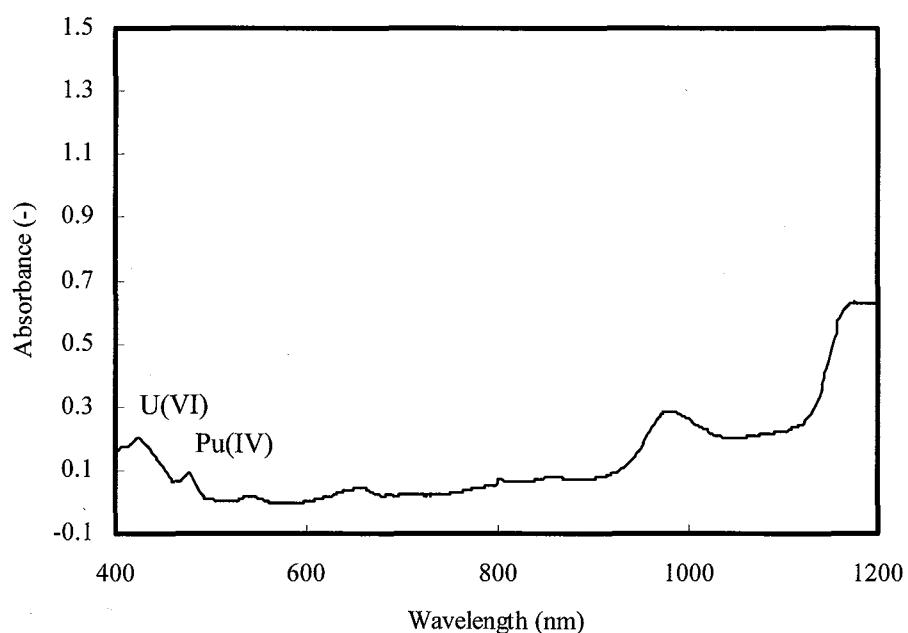


Figure 13. Absorption spectrum of the 12th stage aqueous phase in the extraction section

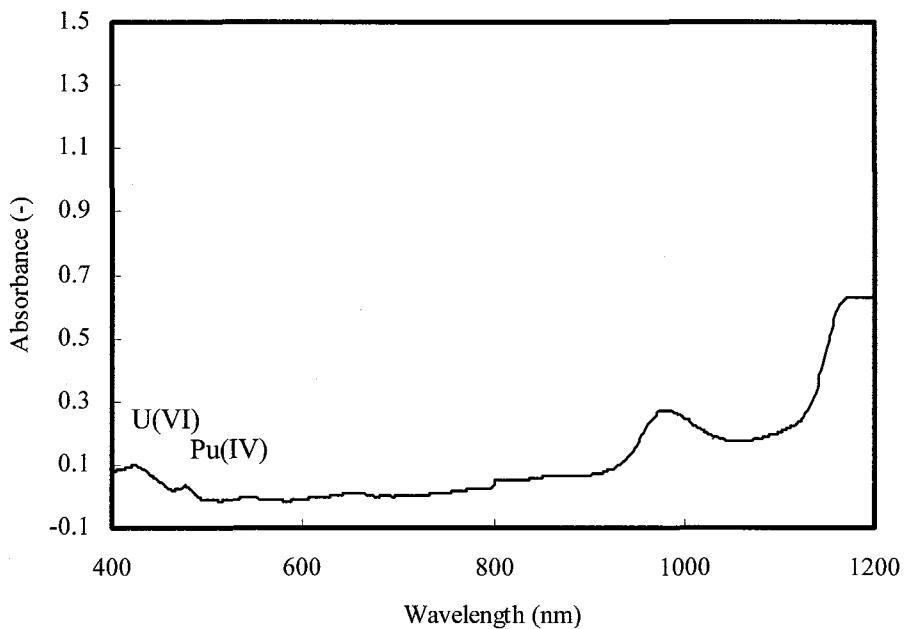


Figure 14. Absorption spectrum of the 14th stage aqueous phase in the extraction section

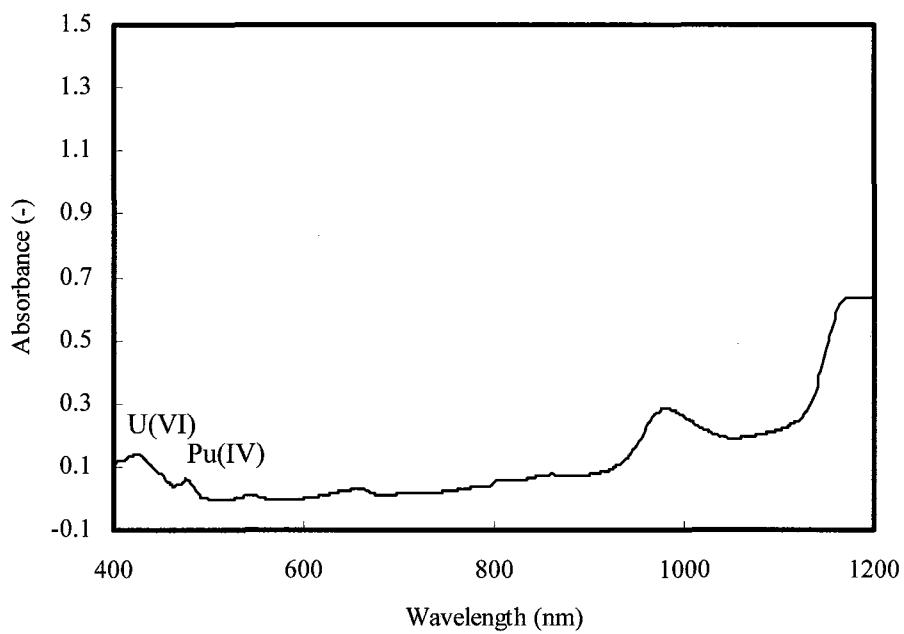


Figure 15. Absorption spectrum of the 15th stage aqueous phase in the extraction section

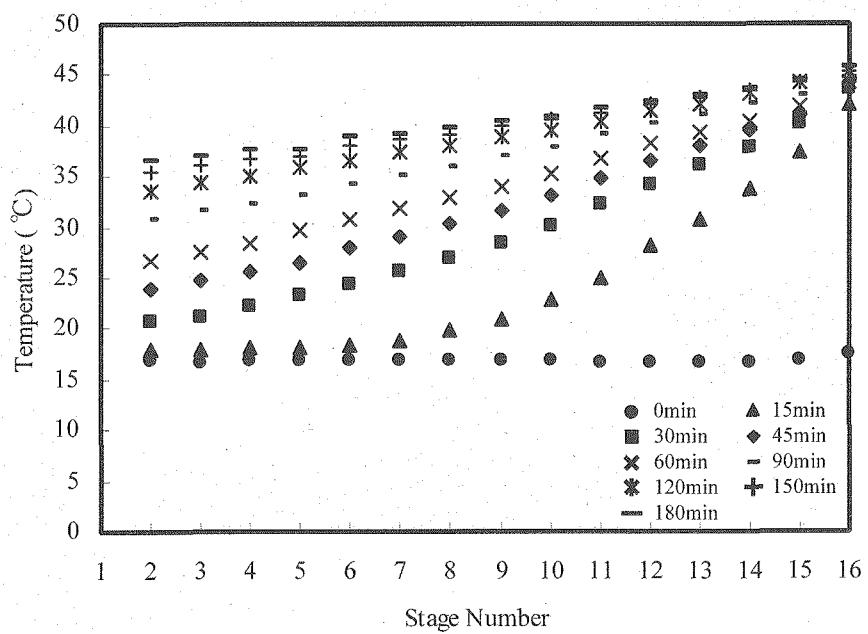


Figure 16. Temperature profile

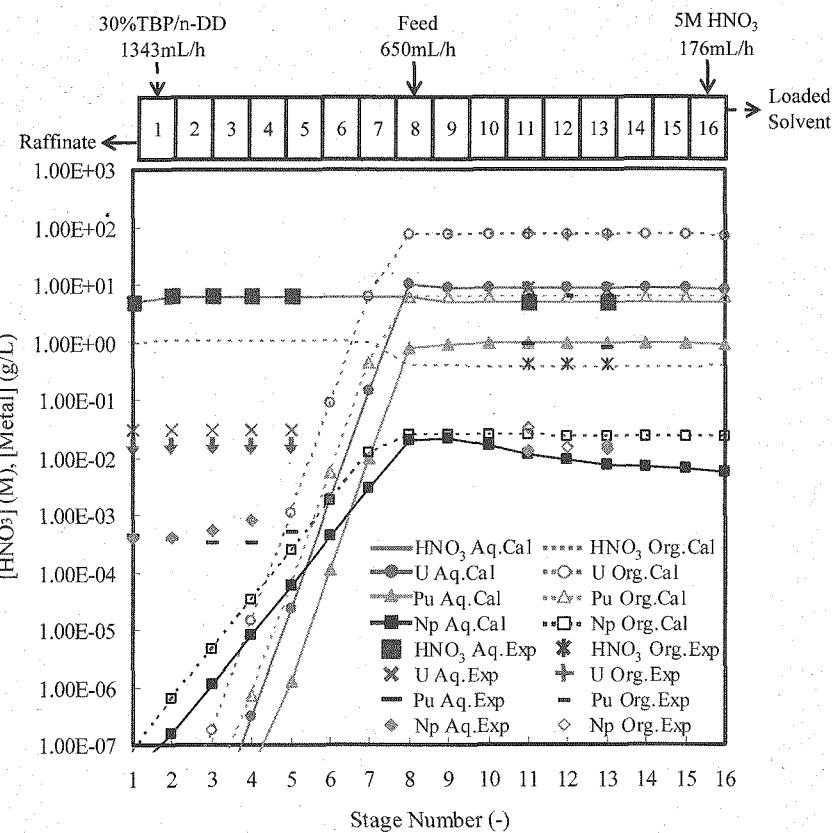


Figure 17. [U], [Pu] and [Np] profiles in the extraction section and scrubbing section
(Calculation was carried out with 100% and 100% stage efficiency respectively)

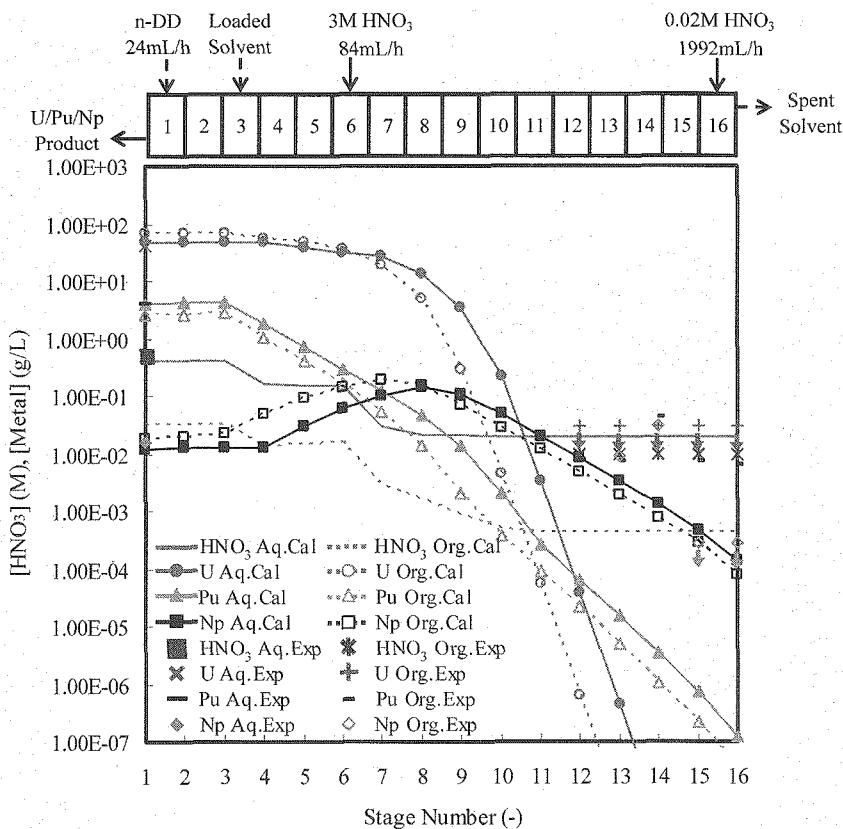


Figure 18. [U], [Pu] and [Np] profiles in the stripping section
(Calculation was carried out with 100% stage efficiency)

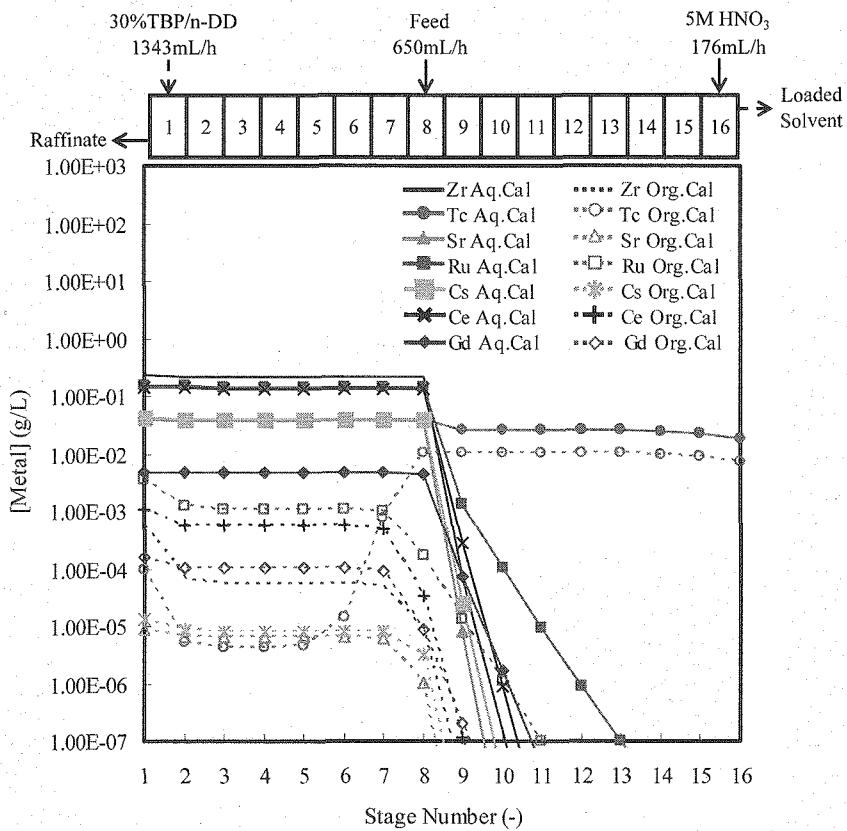


Figure 19. [FP] profiles in the extraction section and scrubbing section
(Calculation was carried out with 100% and 100% stage efficiency respectively)

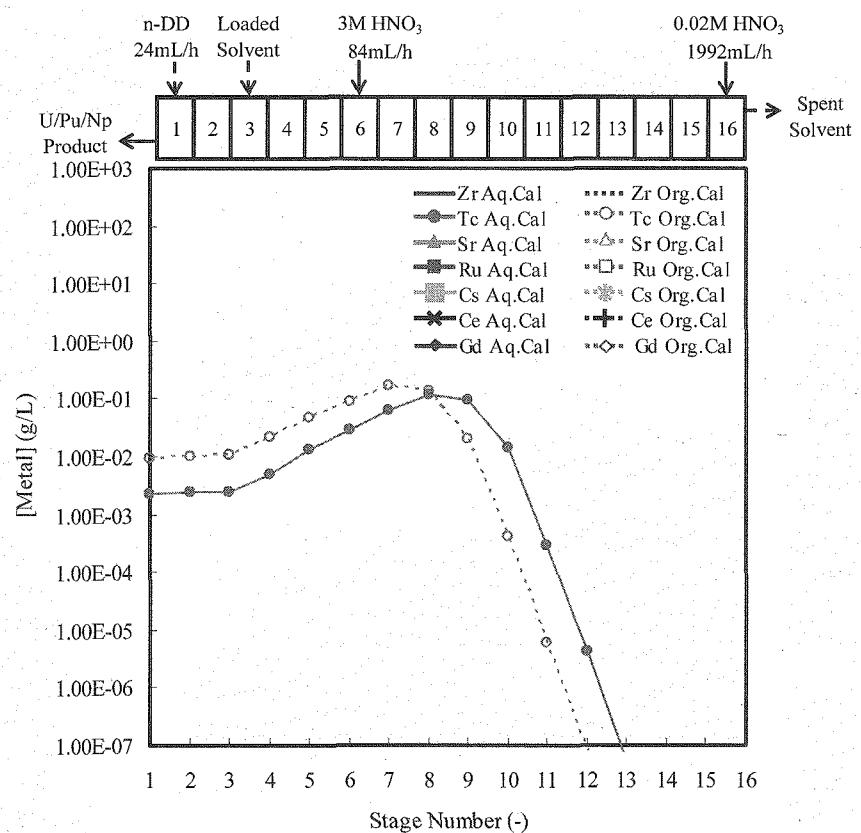


Figure 20. [FP] profiles in the stripping section
(Calculation was carried out with 100% stage efficiency)

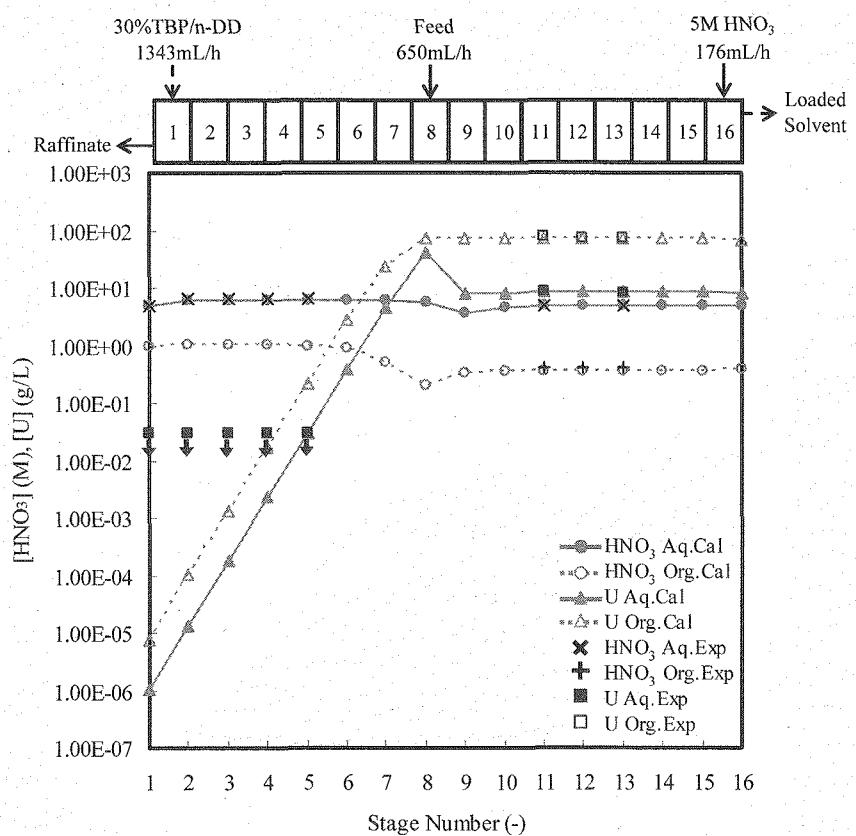


Figure 21. $[U]$ profile in the extraction section and scrubbing section
(Calculation was carried out with 94% and 100% stage efficiency respectively)

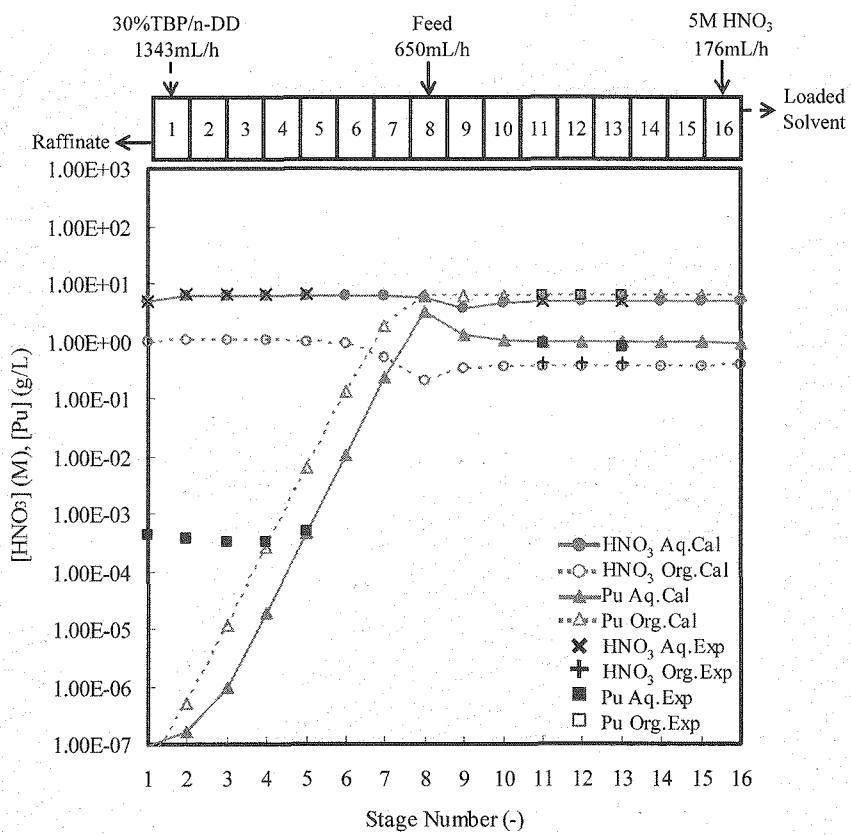


Figure 22. $[Pu]$ profile in the extraction section and scrubbing section
(Calculation was carried out with 97% and 100% stage efficiency respectively)

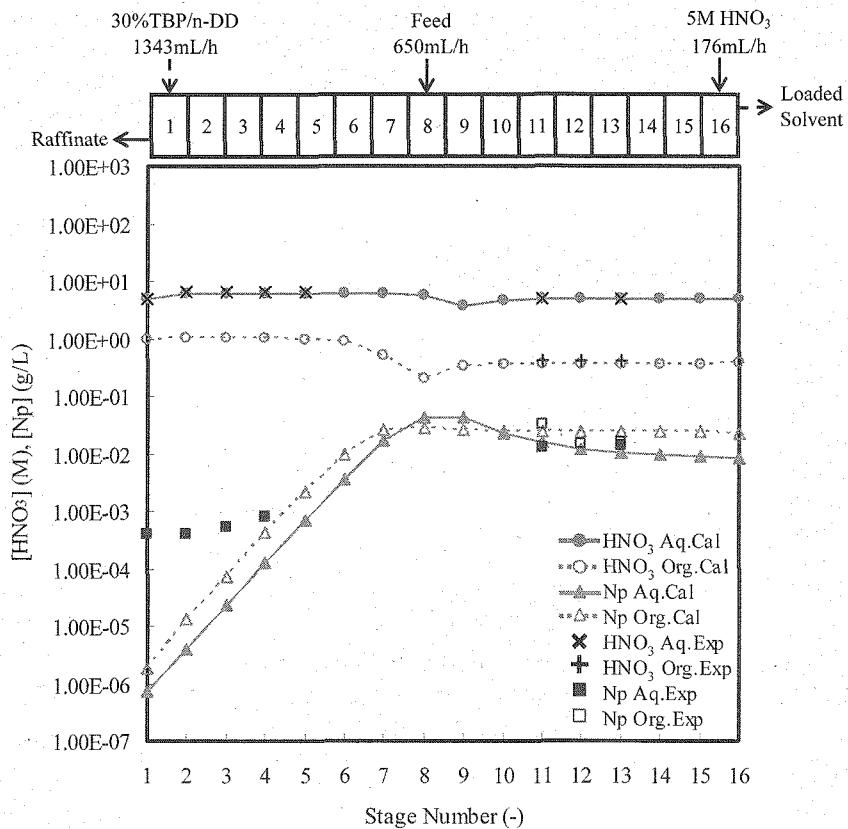


Figure 23. [Np] profile in the extraction section and scrubbing section
(Calculation was carried out with 89.5% and 98.5% stage efficiency respectively)

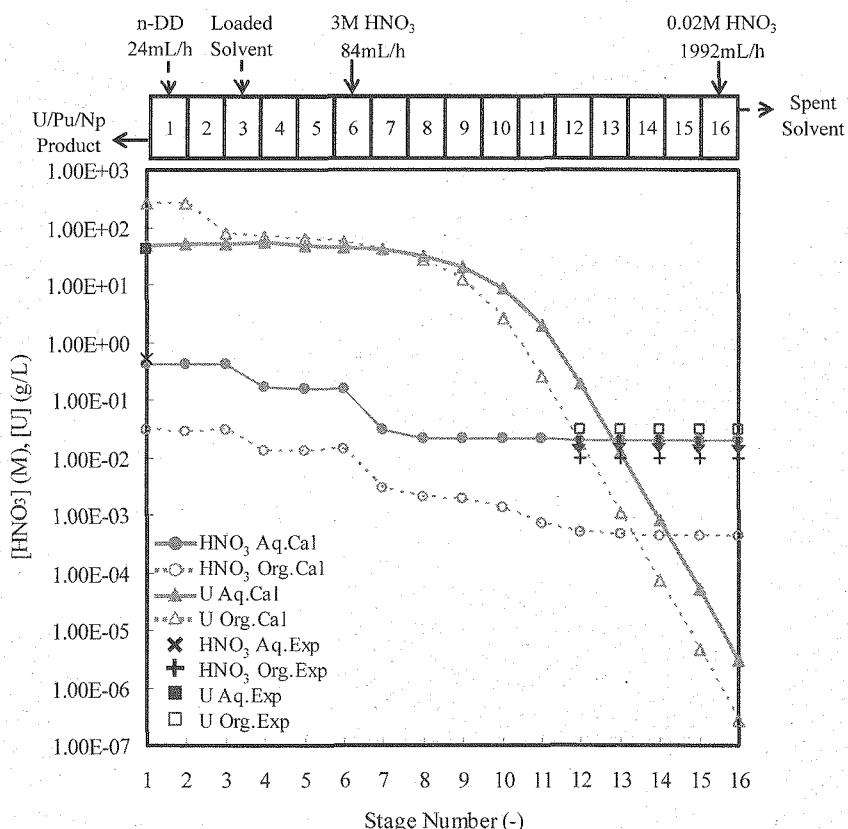


Figure 24. [U] profile in the stripping section
(Calculation was carried out with 95% stage efficiency)

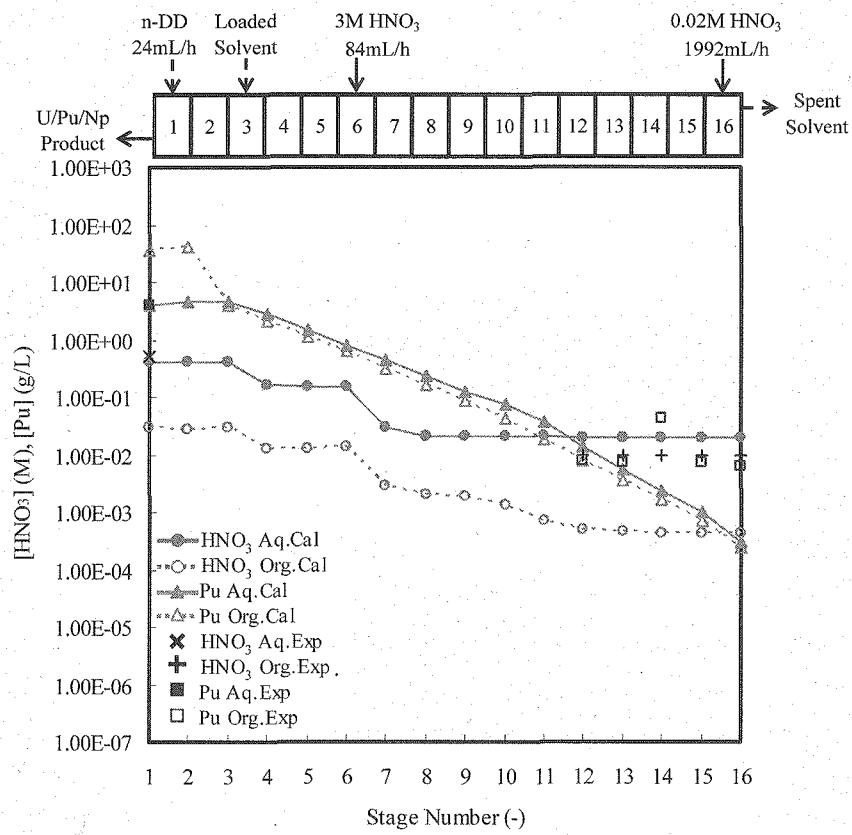


Figure 25. [Pu] profile in the stripping section
(Calculation was carried out with 90% stage efficiency)

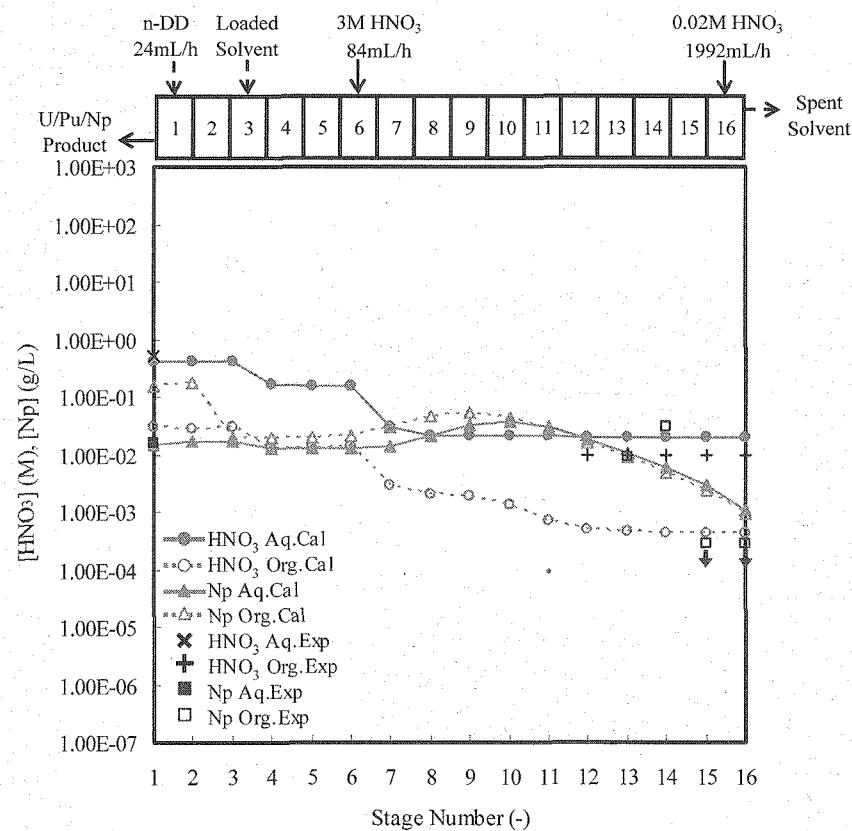


Figure 26. [Np] profile in the stripping section
(Calculation was carried out with 89% stage efficiency)

Table 1. The composition of irradiated MOX fuel

Experiment		1 st Reprocessing Experiment in 2004	
Fuel		“JOYO” Mk-I Core Fuel (FPPJX134)	“JOYO” Mk-I Core Fuel (FPPJD2U3)
Weight of Element, Initial Value	Pu (g)	~23	~23
	Enriched U (g)	~103 [23.7 ^{*1}]	~100 [23.8 ^{*1}]
	Depleted U (g)	~166 [0.4 ^{*1}]	~165 [0.4 ^{*1}]
	Natural U (g)	—	—
Isotopic Composition ^{*2}	Pu	238 0.0 (0.0 ^{*3})	0.0 (0.0 ^{*3})
	(%)	239 77.7 (79.8 ^{*3})	76.5 (79.1 ^{*3})
	Pu	240 18.6 (18.7 ^{*3})	19.0 (19.2 ^{*3})
	(%)	241 3.2 (0.9 ^{*3})	3.8 (1.0 ^{*3})
	Pu	242 0.5 (0.6 ^{*3})	0.7 (0.7 ^{*3})
	(%)	234 0.0 (0.0 ^{*3})	0.0 (0.0 ^{*3})
U	235	8.9 (6.7 ^{*3})	9.0 (8.1 ^{*3})
	(%)	236 0.0 (0.6 ^{*3})	0.0 (0.2 ^{*3})
	238	91.1 (92.7 ^{*3})	91.0 (91.7 ^{*3})
	239	—	—
U Enrichment		23	23
–Initial Value–(Core, w/o)			
Pu Enrichment		18	18
–Initial Value–(Core, w/o)			
Burn Up (MWd/t)		Ave. 41000	Ave. 32000
Cooling Time (Day) ^{*4}		8426	8366
Amount of Radioactivity (TBq)		3.64	2.08

^{*1} : Weight of ^{235}U ^{*2} : Analysis value in fuel fabrication^{*3} : The value is calculated by ORIGEN2.1 after the cooling time^{*4} : At July 1, 2004

Table 2. The composition of the feed solution (estimated value)

Element	Concentration (g/L)	Nuclide	Concentration (Bq/L)	Element	Concentration (g/L)	Nuclide	Concentration (Bq/L)
Ge	1.09E-04			U	1.53E+02		
As	3.36E-05			Np	2.57E-02	²³⁷ Np	6.70E+05
Se	4.29E-03			Pu	1.38E+01		
Br	1.58E-03			Am	3.40E-01		
Rb	2.63E-02			Cm	3.06E-05		
Sr	4.68E-02	⁹⁰ Sr	1.09E+11				
Y	3.21E-02	⁹⁰ Y	1.09E+11				
		⁹¹ Y	0.00E+00				
Zr	2.70E-01	⁹⁵ Zr	0.00E+00				
Nb	6.72E-07	⁹⁵ Nb	0.00E+00				
Mo	2.53E-01						
Tc	6.31E-02	⁹⁹ Tc	3.96E+07				
Ru	1.79E-01	¹⁰⁶ Ru	2.65E+05				
Rh	5.55E-02	¹⁰⁶ Rh	2.65E+05				
Pd	1.04E-01						
Ag	9.99E-03	^{110m} Ag	2.32E-01				
Cd	1.03E-02						
In	1.40E-03						
Sn	1.29E-02	¹²³ Sn	8.69E-10				
Sb	3.10E-03	¹²⁵ Sb	2.57E+08				
Te	4.56E-02	^{125m} Te	6.28E+07				
		¹²⁷ Te	0.00E+00				
		^{127m} Te	0.00E+00				
Cs	2.50E-01	¹³⁴ Cs	2.12E+07				
		¹³⁷ Cs	1.71E+11				
Ba	1.39E-01						
La	9.26E-02						
Ce	1.71E-01	¹⁴⁴ Ce	5.20E+03				
Pr	8.81E-02	¹⁴⁴ Pr	5.20E+03				
Nd	2.96E-01						
Pm	6.19E-05	¹⁴⁷ Pm	2.12E+09				
Sm	7.78E-02	¹⁵¹ Sm	8.29E+09				
Eu	6.90E-03	¹⁵⁴ Eu	3.99E+08				
		¹⁵⁵ Eu	1.27E+09				
Gd	5.58E-03						
Tb	3.31E-04						
Dy	1.92E-04						
Ho	7.45E-06						
Er	7.44E-06						

* : Estimated value in 2L of the feed solution

Table 3. Analysis plan

Sampling			Concentration			Valence Absorbance		
	Point	Sample No.	U	Pu	H ⁺	α	γ	Pu(VI)
Before Pu Valence Adjustment	Dissolver solution	17-F1-00-01A	○	○	○			○
After Pu Valence Adjustment	Feed solution	17-F1-00-02A	○	○	○	○ ^{*1}	○	○
	Spent Solvent	17-B16-120-01O	○	○	○	○ ^{*2}	○	
	Product	17-B1-120-01A	○	○	○	○ ^{*1}	○	
	Raffinate	17-A1-120-01A	○	○	○	○ ^{*2}	○	
	In Strip Section 15 th Stage/Org.	17-B15-120-01O	○	○	○	○ ^{*2}		
	In Strip Section 14 th Stage/Org.	17-B14-120-01O	○	○	○	○ ^{*2}		
	In Strip Section 13 th Stage/Org.	17-B13-120-01O	○	○	○	○ ^{*2}		
	In Strip Section 12 th Stage/Org.	17-B12-120-01O	○	○	○	○ ^{*3}		
	In Extraction Section 15 th Stage/Org.	17-A15-120-01O					○ ^{*4}	
	In Extraction Section 14 th Stage/Org.	17-A14-120-01O					○ ^{*4}	
	In Extraction Section 13 th Stage/Org.	17-A13-120-01O	○	○	○	○ ^{*1}		
		17-A12-120-01O	○	○	○	○ ^{*1}		
	In Extraction Section 12 th Stage/Org.	17-A12-120-02O					○ ^{*4}	
120min After Starting Hot Operation	In Extraction Section 11 th Stage/Org.	17-A11-120-01O	○	○	○	○ ^{*1}		○ ^{*4}
	In Extraction Section 10 th Stage/Org.	17-A10-120-01O					○ ^{*4}	
	In Extraction Section 2 nd Stage/Aq.	17-A2-120-01A	○	○	○	○ ^{*2}		
	In Extraction Section 3 rd Stage/Aq.	17-A3-120-01A	○	○	○	○ ^{*2}		
	In Extraction Section 4 th Stage/Aq.	17-A4-120-01A	○	○	○	○ ^{*2}		
		17-A5-120-01A	○	○	○	○ ^{*3}		
	In Extraction Section 5 th Stage/Aq.	17-A5-120-02A					○ ^{*4}	
	In Extraction Section 10 th Stage/Aq.	17-A10-120-01A					○ ^{*4}	
	In Extraction Section 11 th Stage/Aq.	17-A11-120-01A	○	○	○	○ ^{*1}		
	In Extraction Section 12 th Stage/Aq.	17-A12-120-01A					○ ^{*4}	
	In Extraction Section 13 th Stage/Aq.	17-A13-120-01A	○	○	○	○ ^{*1}		
	In Extraction Section 14 th Stage/Aq.	17-A14-120-01A					○ ^{*4}	
	In Extraction Section 15 th Stage/Aq.	17-A15-120-01A					○ ^{*4}	
	Raffinate	17-A1-SB-02A	○	○	○	○ ^{*2}	○	
After Operation	Product	17-B1-SB-02A	○	○	○	○ ^{*1}	○	
	Spent Solvent/Org	17-B16-SB-02O	○	○	○	○ ^{*2}	○	
	Spent Solvent/Aq	17-A16-120-01O	○	○	○		○	

*1 : ²³⁷Np*2 : ²³⁹Pu+²⁴⁰Pu, ²³⁸Pu+²⁴¹Am and Np*3 : ²³⁹Pu+²⁴⁰Pu, ²³⁸Pu+²⁴¹Am

*4 : By spectrophotometer in CA-4 cell

Table 4. Analysis results

		Sampling		Concentration											
	Point	Sample Volume (mL)	HNO ₃ (M)	U (g/L)	Pu (g/L)	Np (g/L)	²³⁵ Np (Bq/mL)	²³⁹ Pu+ ²⁴¹ Pu (Bq/mL)	²⁴³ Am (Bq/mL)	²⁴⁴ Cm (Bq/mL)	Total- α (Bq/mL)	¹²⁵ Sb (Bq/mL)	¹³⁴ Eu (Bq/mL)	¹⁵⁴ Eu (Bq/mL)	Total- γ (Bq/mL)
Before Pu valence adjustment	Disolver Solution	10	1.8	4.13E+00	1.64E+02	1.45E+01						9.73E-04	1.60E+08	3.70E+05	1.26E+06
After Pu valence adjustment	Feed Solution	10	2	5.19E+00	<1.50E+02	1.30E+01	4.82E-02	<1.28E+03							
	Spend Solvent Product	18	1.00E-02	3.00E-02	6.47E-03	<2.78E-04	7.40E+00	1.70E+04		6.20E+03		4.71E+04	3.70E+03	4.90E+01	
	Raffinate	20	5.20E-01	4.20E+01	3.90E+00	1.62E-02	4.30E+02						1.10E+02	<3.70E+01	<3.70E+01
In Strip Section 15 th Stage/Org.		10	5.09E+00	<3.00E-02	4.14E-04	4.10E-04	1.09E+01	1.11E-03					4.40E+07	3.50E+05	6.75E+07
In Strip Section 14 th Stage/Org.		12	<1.00E-02	<3.00E-02	7.44E-03	<2.78E-04	<7.40E+00	2.00E+04					7.20E+03	5.48E+04	
In Strip Section 13 th Stage/Org.		9	<1.00E-02	<3.00E-02	4.23E-02	2.97E-02	7.90E+02	1.20E+04					4.30E+03	3.25E+04	
In Strip Section 12 th Stage/Org.		10	<1.00E-02	<3.00E-02	7.07E-03	9.03E-03	2.40E+02	1.90E+04					6.70E+03	5.14E+04	
In Extraction Section 15 th Stage/Org.*		10	1.00E-02	<3.00E-02	7.85E-03								2.10E+04	7.50E+03	5.72E+04
In Extraction Section 14 th Stage/Org.*		11			7.60E+01	6.17E+00									
In Extraction Section 13 th Stage/Org.*		12			7.32E+01	6.17E+00									
In Extraction Section 12 th Stage/Org.*		11			4.10E-01	7.40E+01	6.20E+00	1.64E-02	4.37E+02						
120min After Starting Operation		11			4.20E-01	7.20E+01	6.30E+00	1.43E-02	3.81E+02						
In Extraction Section 11 th Stage/Org.*		13			4.10E-01	7.80E+01	6.20E+00	3.12E-02	8.29E+02						
In Extraction Section 10 th Stage/Org.*		10				7.60E+01	6.28E+00								
In Extraction Section 2 nd Stage/Aq.		11			6.49E+00	<3.00E-02	3.72E-04	3.99E-04	1.06E+01	1.00E+03			4.30E+07	1.53E+05	3.26E+05
In Extraction Section 3 rd Stage/Aq.		10			6.46E+00	<3.00E-02	3.17E-04	5.23E-04	1.39E+01	8.48E+02			3.60E+07	2.67E+05	4.01E+05
In Extraction Section 4 th Stage/Aq.		13			6.70E+00	<3.00E-02	3.24E-04	8.09E-04	2.15E+01	8.67E+02			4.30E+07	1.11E+05	2.37E+05
In Extraction Section 5 th Stage/Aq.		9			6.56E+00	<3.00E-02	4.99E-04		1.34E+03				3.00E+07	1.19E+05	3.26E+07
In Extraction Section 10 th Stage/Aq.*		10				3.40E+01	1.96E+00								
In Extraction Section 11 th Stage/Aq.*		10			5.01E+00	8.60E+00	9.20E-01	1.26E+02							
In Extraction Section 12 th Stage/Aq.*		2					2.57E+01	1.36E+00							
In Extraction Section 13 th Stage/Aq.*		9			4.78E+00	8.00E+00	8.00E-01	1.34E+02	3.55E+02						
In Extraction Section 14 th Stage/Aq.*		2					3.48E+01	1.64E+00							
In Extraction Section 15 th Stage/Aq.*		3					2.78E+01	1.40E+00							
Raffinate		12	6.5	4.16E+00	<3.00E-02	1.46E-03	<2.78E-04	<7.40E+00	3.90E+03	<3.70E+03	1.41E+07	6.25E+04	1.56E+05	1.44E+07	5.67E+07
Product		10	10.6	6.00E-01	2.70E+01	2.70E+00	7.79E-03	2.07E+02					6.94E+02	<3.70E+01	<3.70E+01
After Operation	Spend Solvent/Org.	10	7.6	2.00E-02	<3.00E-02	4.10E-03	<2.78E-04	<7.40E+00	1.10E+04	<3.70E+02	5.20E+03		2.83E+02	<3.70E+01	2.83E+02
	Spend Solvent/Aq.	10	0.45	4.40E-01	<6.00E-02	1.99E-03			5.32E+03	<3.70E+00	1.98E+04	1.03E+02	2.20E+02	3.08E+04	<3.70E+01
												6.12E+04	2.90E+02	<3.70E+01	6.15E+04

*: Analysis data by spectrophotometer in CA-4 cell

Table 5. Absorbance measured by spectrophotometer in CA-4 cell and concentration

Sampling		U		Pu		
	Point	Sample Volume (mL)	Absorbance (-)	Concentration (g/L)	Absorbance (-)	Concentration (g/L)
120min After Starting Hot Operation	In Extraction Section 15 th Stage/Org.	10	1.21E+00	7.60E+01	8.82E-01	6.17E+00
	In Extraction Section 14 th Stage/Org.	11	1.17E+00	7.32E+01	8.82E-01	6.17E+00
	In Extraction Section 12 th Stage/Org.	11	1.17E+00	7.35E+01	8.87E-01	6.21E+00
	In Extraction Section 11 th Stage/Org.	13	1.07E+00	7.65E+01	9.00E-01	6.30E+00
	In Extraction Section 10 th Stage/Org.	10	1.06E+00	7.60E+01	8.98E-01	6.28E+00
	In Extraction Section 5 th Stage/Aq.	10	—*	—*	—*	—*
	In Extraction Section 10 th Stage/Aq.	10	5.42E-01	3.40E+01	2.80E-01	1.96E+00
	In Extraction Section 12 th Stage/Aq.	2	4.10E-01	2.57E+01	1.94E-01	1.36E+00
	In Extraction Section 14 th Stage/Aq.	2	5.55E-01	3.48E+01	2.35E-01	1.64E+00
	In Extraction Section 15 th Stage/Aq.	3	4.44E-01	2.78E+01	2.01E-01	1.40E+00

* : Under the analytical lower limit

Table 6. Mass balances of U, Pu, Np and Cs calculated by MIXSET-X

	Point	U (%)	Pu (%)	Np (%)	Cs (%)
120min	Raffinate	8.03E-07	8.40E-07	1.82E-03	1.00E+02
After	Product	9.96E+01	9.96E+01	9.50E+01	1.27E-26
Starting Hot	Spent Solvent	3.74E-07	3.90E-03	3.92E+00	1.88E-130
Operation	Total	9.96E+01	9.96E+01	9.89E+02	1.00E+02

Table 7. Abundance ratios of U, Pu, Np and Cs based on the MIXSET-X calculation

	Point	U (%)	Pu (%)	Np (%)	Cs (%)
120min	Raffinate	8.07E-07	8.43E-07	1.84E-03	1.00E+02
After	Product	1.00E+02	1.00E+02	9.60E+01	1.27E-26
Starting Hot	Spent Solvent	3.76E-07	3.91E-03	3.97E+00	1.88E-130
Operation	Total	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02

Table 8. Mass balances of U, Pu, Np and FPs calculated by experimental values

	Point	U (%)	Pu (%)	^{237}Np (%)	^{137}Cs (%)	^{154}Eu (%)	^{155}Eu (%)
After Pu							
Valence	Feed Solution	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02
Adjustment							
120min	Raffinate	<2.54E-02	4.23E-01	1.08E+00	1.19E+02	1.24E+02	1.21E+02
After	Product	8.94E+01	9.58E+01	1.07E+02	2.20E-04	<3.19E-02	<9.38E-03
Starting Hot	Spent Solvent	<4.21E-02	1.05E-01	<1.21E+00	4.86E-03	2.79E-02	1.59E-02
Operation	Total	8.95E+01	9.63E+01	1.10E+02	1.19E+02	1.24E+02	1.21E+02
After Operation	Raffinate	<6.50E-02	3.46E-02	<1.87E+00	1.15E+02	1.26E+02	9.83E+01
	Product	9.54E+01	1.10E+02	8.57E+01	2.30E-03	<5.30E-02	<1.56E-02
	Spent Solvent	<7.60E-02	1.20E-01	<2.19E+00	6.72E-04	<3.80E-02	<1.12E-02
	Analysis Sample	2.66E+00	2.72E+00	3.49E+00	3.66E-10	1.22E-10	5.71E-11
	Total	9.82E+01	1.13E+02	9.32E+01	1.15E+02	1.27E+02	9.83E+01

Table 9. Abundance ratios of U, Pu, Np and FPs based on the experimental values

	Point	U (%)	Pu (%)	^{237}Np (%)	^{137}Cs (%)	^{154}Eu (%)	^{155}Eu (%)
120min	Raffinate	<2.84E-02	4.39E-01	9.86E-01	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02
After	Product	9.99E+01	9.95E+01	9.79E+01	1.84E-04	<2.58E-02	<7.75E-03
Starting Hot	Spent Solvent	<4.21E-02	1.09E-01	<1.11E+00	4.08E-03	2.25E-02	1.31E-02
Operation	Total	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02
	Raffinate	<6.80E-02	3.31E-02	<2.09E+00	1.00E+02	9.99E+01	1.00E+02
After	Product	9.99E+01	9.99E+01	9.55E+01	2.00E-03	<4.19E-02	<1.58E-02
Operation	Spent Solvent	<7.95E-02	1.09E-01	<2.44E+00	5.84E-04	<3.00E-02	<1.14E-02
	Total	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02	1.00E+02

Table 10. Decontamination factors of FPs and total- γ

	^{137}Cs	^{154}Eu	^{155}Eu	total- γ
Experimental Value	4.2E+04	>1.8E+03	>6.2E+03	4.2E+04

Table 11. Flow rate changes of 30%TBP/n-DD

Laboratory A : 30%TBP/n-DD (Settled Value : 1343mL/h)						
Process	Time	Time After Starting Acid Equilibrium (min)	Time After Starting Hot Operation (min)	Volume in Reservoir (mL)	Liquid Addition to Reservoir (mL)	Flow Rate (mL/h)
Acid Equilibrium	11:20	0		5000	—	—
	11:35	15		4670	1320	
	11:50	30		4380	1240	
	11:55		5	4100	—	
	12:10	50	20	3800	1200	
	12:25	65	35	3500	1200	
	12:40	80	50	3150	1300	
	12:55	95	65	2800	1300	
	13:10	110	80	2490	1310	
	13:25	125	95	2160	1340	
	13:40	140	110	1850	1300	
	13:55	155	125	1510	1290	
	14:10	170	140	4100	1370	
	14:25	185	155	3800	1360	
	14:40	200	170	3500	1000	1350
	15:05	225	195	3900	—	
	15:20	240	210	3570	1320	
	15:35	255	225	3240	1320	
After Operation	15:50	270	240	2900	1340	
	16:05	285	255	2540	1360	
	16:20	300	270	2220	1370	
	16:35	315	280	1920	1320	

Table 12. Flow rate changes of 5M HNO₃

Laboratory A : 5M HNO ₃ (Settled Value : 176mL/h)						
Process	Time	Time After Starting Acid Equilibrium (min)	Time After Starting Hot Operation (min)	Volume in Reservoir (mL)	Liquid Addition to Reservoir (mL)	Flow Rate (mL/h)
Acid Equilibrium	11:20	0			1650	—
	11:35	15		1610	—	160
	11:50	30		1570	—	160
	11:55	35	5	1550	—	—
	12:10	50	20	1500	—	200
	12:25	65	35	1460	—	180
	12:40	80	50	1420	—	160
	12:55	95	65	1400	—	150
	13:10	110	80	1350	—	150
	13:25	125	95	1300	—	160
Hot Operation	13:40	140	110	1260	—	160
	13:55	155	125	1210	—	190
	14:10	170	140	1160	—	190
	14:25	185	155	1100	—	200
	14:40	200	170	1060	—	200
	15:05	225	195	980	—	—
	15:20	240	210	960	80	80
	15:35	255	225	910	140	140
After Operation	15:50	270	240	860	200	200
	16:05	285	255	810	170	170
	16:20	300	270	770	190	190
	16:35	315	280	720	190	190

Table 13. Flow rate changes of 0.02M HNO₃

Laboratory A : 0.02M HNO ₃ (Settled Value : 1992mL/h)						
Process	Time	Time After Starting Acid Equilibrium (min)	Time After Starting Hot Operation (min)	Volume in Reservoir (mL)	Liquid Addition to Reservoir (mL)	Flow Rate (mL/h)
Acid Equilibrium	11:20	0		5000	—	—
	11:35	15		4500	2000	2300
	11:50	30		4000	2000	2200
	11:55		5	3600	—	2120
	12:10	50	20	3100	2000	2050
	12:25	65	35	2550	2000	2050
	12:40	80	50	2000	2000	2050
	12:55	95	65	3520	2500	2050
	13:10	110	80	3050	2000	2050
	13:25	125	95	2500	2000	2050
Hot Operation	13:40	140	110	1500	2000	2050
	13:55	155	125	2980	2000	2050
	14:10	170	140	2450	2000	2050
	14:25	185	155	1950	3000	2050
	14:40	200	170	4100	—	—
	15:05	225	195	3800	2080	2200
	15:20	240	210	3000	2160	2100
	15:35	255	225	2500	2000	2080
After Operation	15:50	270	240	2000	2000	2020
	16:05	285	255	3500	280	280
	16:20	300	270	2980	2980	2980
	16:35	315	280	—	—	—

Table 14. Flow rate changes of 5.2M HNO₃ or the feed solution

CA-3 Cell : 5.2M HNO ₃ or Feed Solution (Settled Value : 650mL/h)						
Process	Time	Time After Starting Acid Equilibrium (min)	Time After Starting Hot Operation (min)	Volume in Reservoir (mL)	Liquid Addition to Reservoir (mL)	Flow Rate (mL/h)
Acid Equilibrium	11:20	0		1800		—
	11:35	15		1650		600
	11:50	30		1600		400
				1900		—
	12:10	50	20	1750		600
	12:25	65	35	1600		600
	12:40	80	50	1420		660
	12:55	95	65	1300		600
Hot Operation	13:10	110	80	1100		650
	13:25	125	95	1000		600
	13:40	140	110	800		620
	13:55	155	125	620		680
	14:10	170	140	500		600
	14:25	185	155	350		650
	14:40	200	170	180		620
	15:05	225	195	400		—
	15:20	240	210	250		600
After Operation	15:35	255	225	—	1000	—
	15:50	270	240	1000		—
	16:05	285	255	800		800
	16:20	300	270	650		700
	16:35	315	280	500		600

Table 15. Flow rate changes of n-DD

Process	Time	CA-3 Cell : n-DD (Settled Value : 24mL/h)			Liquid Addition to Reservoir (mL)	Flow Rate (mL/h)
		Time After Starting Acid	Equilibrium (min)	Time After Starting Hot Operation (min)		
Acid Equilibrium	11:20	0			130	—
	11:35	15			125	20
	11:50	30			120	20
	11:55	35	5		120	—
	12:10	50	20		110	40
	12:25	65	35		100	40
	12:40	80	50		95	20
	12:55	95	65		90	20
	13:10	110	80		97	12
Hot Operation	13:25	125	95		92	20
	13:40	140	110		80	8
	13:55	155	125		73	28
	14:10	170	140		60	52
	14:25	185	155		55	20
	14:40	200	170		50	20
	15:05	225	195		50	—
	15:20	240	210		47	12
	15:35	255	225		42	20
After Operation	15:50	270	240		40	8
	16:05	285	255		30	40
	16:20	300	270		20	40
	16:35	315	280	10	10	40

Table 16. Flow rate changes of 3M HNO₃

CA-3 Cell : 3M HNO ₃ (Settled Value : 84mL/h)						
Process	Time	Time After Starting Acid Equilibrium (min)	Time After Starting Hot Operation (min)	Volume in Reservoir (mL)	Liquid Addition to Reservoir (mL)	Flow Rate (mL/h)
Acid Equilibrium	11:20	0		665		—
	11:35	15		635		120
	11:50	30		620		60
	11:55			5	620	—
	12:10	50	20	600	80	80
	12:25	65	35	580	80	80
	12:40	80	50	550	120	120
	12:55	95	65	540	40	40
Hot Operation	13:10	110	80	530	40	40
	13:25	125	95	500	120	120
	13:40	140	110	490	40	40
	13:55	155	125	480	40	40
	14:10	170	140	460	80	80
	14:25	185	155	450	40	40
	14:40	200	170	420	120	120
	15:05	225	195	400	—	—
	15:20	240	210	385	60	60
	15:35	255	225	370	60	60
After Operation	15:50	270	240	320	200	200
	16:05	285	255	310	40	40
	16:20	300	270	305	20	20
	16:35	315	280	300	20	20

付録

MIXSET-X の入力ファイル

1. 入力条件

1.1 分配係数計算式

Tc については CEA のデータを基にした分配係数計算式を用い、その他の元素については KfK の分配係数計算式を用いて計算を行った。

1.2 段効率

本運転開始 120 分後に得られた実測値を基に MIXSET-X によりフィッティングを行い、U, Pu 及び Np における抽出部及び逆抽出部の段効率を求めた。抽出段における U, Pu 及び Np の段効率は、それぞれ 94%, 97% 及び 89.5%，洗浄段については 100%，100% 及び 98.5%，逆抽出段の段効率はそれぞれ 95%，90% 及び 88% に設定した。

1.3 温度条件

抽出部は全段 25°Cとした。逆抽出部においては逆抽出液を加温したことを考慮し、過去のコード試験の結果(Figure 16)に基づき 32–45.4°Cの温度勾配を設定した。

1.4 各試薬供給流量

ポンプの流量調整時に測定した値を用いた。

1.5 各元素の初期濃度

U, Pu, Np 及び Cs についてはフィード溶液調整後に測定した分析値(Table 4)を使用した。Tc, Sr, Ce, Gd, Am, Cm 及び Ru については ORIGEN2.1 より計算された燃焼後の元素重量(Table 2)を基に初期濃度を決定した。

2. 入力ファイル

```
ExtScr5M-SU95Pu90Np89.inp
CONTR 0 0 7.0 0.001
* TAUC 1 0 7.0 0.01
PLOT 6 0.5 1.0 2.0 3.1 5.0 7.0
FILE 'ExtScr5M-SU95Pu90Np89'
*****
* BankNO Stage BankAqin StageAqin BankOrgin StageOrgin Reaction
STAGE 1 16 0 0 2 3 1
STAGE 2 16 0 0 0 0 1
* BankNO VolMIX VolSET
VOLUME 1 16*0.01 16*0.015
VOLUME 2 16*0.01 16*0.015
* BankNO CNAME M Conc.
INITIAL 1 1 0 16*5.0
INITIAL 2 1 0 16*0.02
*
SDIST 1 40*0
SDIST 2 40*0
*
*Extraction Section
```

*U

EFFICIENCY 1 2 -1 8*0.94 8*1.00
 EFFICIENCY 1 5 -1 8*0.94 8*1.00
 EFFICIENCY 1 19 -1 8*0.94 8*1.00

*Pu

EFFICIENCY 1 3 -1 8*0.97 8*1.00
 EFFICIENCY 1 4 -1 8*0.97 8*1.00
 EFFICIENCY 1 9 -1 8*0.97 8*1.00
 EFFICIENCY 1 10 -1 8*0.97 8*1.00
 EFFICIENCY 1 20 -1 8*0.97 8*1.00

*Np

EFFICIENCY 1 11 -1 8*0.895 8*0.985
 EFFICIENCY 1 12 -1 8*0.895 8*0.985
 EFFICIENCY 1 13 -1 8*0.895 8*0.985

*

*Stripping Section

*U

EFFICIENCY 2 2 1 16*0.95
 EFFICIENCY 2 5 1 16*0.95

*Pu

EFFICIENCY 2 3 1 16*0.90
 EFFICIENCY 2 4 1 16*0.90
 EFFICIENCY 2 9 1 16*0.90
 EFFICIENCY 2 10 1 16*0.90

*Np

EFFICIENCY 2 11 1 16*0.88
 EFFICIENCY 2 12 1 16*0.88
 EFFICIENCY 2 13 1 16*0.88

*

*

*REACTION 1 25 0

*REACTION 2 25 0

*

* BankNO Temperature

TOFSTG 1 16*25.0

TOFSTG 2	32.0	33.5	34.3	35.0	35.8	36.5	37.3	38.1	38.8	39.6
	40.4	41.4	42.1	43.2	44.2	45.4				

*

* BANK Stage SET T FLOW HNO3 UO2 Pu(IV) Pu(III) U(IV) HNO2 HYD

HAN

FEED 1 -1 1 0.0 1.343 /

FEED 1 8 1 0.0 0.650 5.19 1.50E+2 1.30E+1 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0

!* Pu(V) Pu(VI) *! 0.0 0.0

!* Np(IV) Np(V) Np(VI) *! 0.0 4.82E-2 0.0

!* Zr(IV) *! 2.70E-1

!* Tc(IV, V, VI, VII) *! 0.0 0.0 0.0 6.31E-2

!* Tc-U Tc-Pu Tc-Zr *! 0.0 0.0 0.0

!* Sr(II) *! 4.68E-2

!* Ru(DI) Ru(TR) *! 0.0 0.0

!* Ru(NI) Ru(MO) *! 0.0 0.0

!* Cs(I) Ce(III) Gd(III) *! 4.96E-2 1.71E-1 5.58E-3

!* Am(III) Cm(III) *! 3.40E-1 3.06E-5

!* ADD-MIC(1-9) *! 9*0.0

!* Ru(TOTAL) *! 1.79E-1

```
FEED 1 16 1 0.0 0.176 5.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 /  
FEED 2 -1 1 0.0 0.024 /  
FEED 2 6 1 0.0 0.084 3.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 /  
FEED 2 16 1 0.0 1.918 0.02 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 /  
END
```

This is a blank page.

