

# 簡素化溶媒抽出法による U, Pu 及び Np 共回収

一抽出段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 - Extraction Behavior of Np Using High HNO<sub>3</sub> Concentration at Extraction Section -

中原 将海 佐野 雄一 小泉 務

Masaumi NAKAHARA, Yuichi SANO and Tsutomu KOIZUMI

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

**KPSC** 

October 2008

ergy Agency | 日本原子力研究開発機構

Japan Atomic Energy Agency

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。 なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ(<u>http://www.jaea.go.jp/index.shtml</u>) より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター\*では実費による複写頒布を行っ ております。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地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 電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920

\*〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4 日本原子力研究開発機構内

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department, Japan Atomic Energy Agency 2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920

© Japan Atomic Energy Agency, 2008

簡素化溶媒抽出法による U, Pu 及び Np 共回収 -抽出段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, 小泉 務

> > (2008年7月25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 研究が行われている。本研究では、低 HNO<sub>3</sub> 濃度のフィード溶液及び高 HNO<sub>3</sub> 濃度の洗浄液を 採用することにより、抽出段を高 HNO<sub>3</sub> 濃度に調整し、Np の抽出挙動に及ぼす影響を評価する。 本試験は、2007 年 9 月 5 日から 2007 年 10 月 4 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 及び Mk-II 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 NOx 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 HNO<sub>3</sub> 濃度を 3.9M 及び 10M に調製し、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。抽出段における HNO<sub>3</sub> 濃度の増加により、押出運転後における Np の物質収支 については、ラフィネートへ 6.3%リークし、プロダクトへ 91.2%回収された。この結果より、抽出段の 高 HNO<sub>3</sub> 濃度化は、Np の回収において有効であることを確認した。また、プロダクト中の U, Pu に 対する total-γの除染係数は、5.1×10<sup>4</sup> であり、過去の試験とほぼ同等の値を示した。定常時におけ るサンプリングより、抽出段の U, Pu 及び Np の段効率は 98.5%、100%及び 78%、逆抽出段の U, Pu 及び Np の段効率は 96%、100%及び 94.5%の値が得られた。

核燃料サイクル工学研究所:〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

U, Pu and Np Co-recovery in Simplified Solvent Extraction Process -Extraction Behavior of Np Using High HNO<sub>3</sub> Concentration at Extraction Section-

Masaumi NAKAHARA, Yuichi SANO and Tsutomu KOIZUMI

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 July 25, 2008)

Concerning the advanced aqueous reprocessing system, we have been investigating a simplified solvent extraction process using TBP as an extractant for U, Pu and Np co-recovery. In this study, the counter current experiment was carried out with low HNO<sub>3</sub> concentration in the feed solution and high HNO<sub>3</sub> concentration in the scrubbing solution, which was expected to bring a high HNO<sub>3</sub> concentration into the extraction section and the efficient Np oxidation and extraction in this section. This experiment had been conducted with the dissolver solution of "JOYO" Mk-I and Mk-II irradiated MOX fuel at CPF from 5<sup>th</sup> September to 4<sup>th</sup> October 2007. The Pu valence was adjusted to Pu(IV) by bubbling NOx gas into the feed solution. It was attempted to oxidize Np(V) to Np(VI) in the extraction section by adjusting HNO<sub>3</sub> concentration of the feed and scrubbing solutions to about 3.9M and 10M, respectively. After operation, the Np leakage to the raffinate could be kept under about 6.3%. The decontamination factor of total- $\gamma$  was 5.1×10<sup>4</sup> in this experiment, which meant that U and Pu product solution could be decontaminated as good as the previous work. The stage efficiencies for these elements were estimated by fitting the concentration profiles calculated by MIXSET-X into the experimental ones. The stage efficiencies of U, Pu and Np were evaluated as 98.5%, 100% and 78% in the extraction section, 96%, 100%, 94.5% in the stripping section, respectively.

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

# 目次

1. 月	序論······	1
2. 🖡	目的	1
3. 詐	式験	1
3.	1 試験場所	1
3.	2 使用機器	2
3.	3 使用試薬	2
	3.3.1 照射済燃料溶解液	2
	3.3.2 原子価調整	2
	3.3.3 溶媒抽出試験	2
3.	4 試験期間	2
3.	5 試験方法	3
	3.5.1 フィード溶液	3
	3.5.2 供給試薬温度	3
	3.5.3 供給試薬フロー	3
	3.5.4 運転時間	3
	3.5.5 分析	3
4. 糸	告果及び考察	4
4.	1 分析結果	4
4.	2 物質収支	4
4.	3 除染係数	5
4.	4 濃度プロファイル	5
4.	5 HNO3 による Np の酸化反応	6
4.	6 Np 回収における HNO <sub>2</sub> の影響	7
4.	7 段効率	7
5. 糸		7
6. 🖉	7後の予定	8
参考	文献	9

## Contents

1.	Introduction ·····	• 1
2.	Objects	• 1
3.	Experimental	• 1
	3.1 Experimental Place	• 1
	3.2 Equipment ·····	· 2
	3.3 Reagent	• 2
	3.3.1 Dissolver Solution of Irradiated MOX Fuel	· 2
	3.3.2 Adjusted to Pu Valence in Feed Solution	• 2
	3.3.3 Reagents in Simplified Solvent Extraction	· 2
	3.4 Experimental Term ·····	• 2
	3.5 Experimental Method ·····	• 3
	3.5.1 Feed Solution	• 3
	3.5.2 Temperature of Supplied Reagent	• 3
	3.5.3 Reagent Supply Flow	• 3
	3.5.4 Operation Time	• 3
	3.5.5 Analysis	• 3
4.	Results and Discussion	• 4
	4.1 Results of Analysis	• 4
	4.2 Mass Balance	• 4
	4.3 Decontamination Factor	• 5
	4.4 Concentration Profiles	• 5
	4.5 Np Oxidation by HNO <sub>3</sub> ·····	· 6
	4.6 Effect of HNO <sub>2</sub> for Np Co-recovery with U and Pu	• 7
	4.7 Stage Efficiency	• 7
5.	Conclusions	• 7
6.	Further Research Problems	• 8
R	eferences	. 9

# List of Figures

Figure 1	Apparatus for adjusting Pu valence in the feed solution
Figure 2	Flow sheet
Figure 3	Reagent supply line system 12
Figure 4	Reagent flow system 13
Figure 5	Absorption spectrum of the feed solution after adjusting Pu valence
Figure 6	Concentration profiles of U in the extraction section and scrubbing section (Calculation
	was carried out with 98.5% and 100% stage efficiency, respectively)
Figure 7	Concentration profiles of U in the stripping section (Calculation was carried out with 96%
	stage efficiency) 15
Figure 8	Concentration profiles of Pu in the extraction section and scrubbing section (Calculation
	was carried out with 100% and 100% stage efficiency, respectively)
Figure 9	Concentration profiles of Pu in the stripping section (Calculation was carried out with
	100% stage efficiency) 16
Figure 10	O Concentration profiles of Np in the extraction section and scrubbing section (Calculation
	was carried out with 78% and 98.5% stage efficiency, respectively) 17
Figure 1	Concentraion profiles of Np in the stripping section (Calculation was carried out with
	94.5% stage efficiency) 17
Figure 12	2 Concentration profiles of FPs in the extraction section and scrubbing section (Calculation
	was carried out with 100% and 100% stage efficiency, respectively)
Figure 13	3 Concentration profiles of FPs in the stripping section (Calculation was carried out with
	100% stage efficiency) 18
Figure 14	Temperature profiles in the centrifugal contactor
Figure 15	Leakage ratio of Np to the raffinate with HNO <sub>2</sub> concentration in the feed solution 19

## List of Tables

Table 1	Composition of the irradiated MOX fuel	20
Table 2	Composition of the feed solution (calculated value)	21
Table 3	Analysis plan	22
Table 4	Results of analysis	23
Table 5	Mass balances of actinide elements and FPs	24
Table 6	Abundance ratios of actinide elements and FPs	24
Table 7	Decontamination factors of FPs and total-y for U and Pu product	24

#### 1. 序論

照射済高速炉燃料を対象とした先進湿式再処理法は、New Extraction System for Transuranium (TRU) Recovery (NEXT)プロセス[1]と名付けられ、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、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及びU、Pu及びNpを回収した後のラフィネート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。

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 及び Np を一括回収するため、核拡散抵抗性の向上が 期待されている。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硝酸(HNO<sub>3</sub>) 濃度である 5M 程度に調整し、フィード溶液中の Np の原子価をリン酸トリブチル(TBP)に抽出性で 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[2]。これにより、約 99% の Np がプロダクト中に回収され、ラフィネートへのリークが 1%程度に押さえられていることを確認し ている。一方、抽出の前工程である晶析工程において Pu-Cs 複塩析出の観点から、溶解液の低 HNO<sub>3</sub> 濃度化が有効とされており、この場合、抽出工程におけるフィード溶液の HNO<sub>3</sub> 濃度が低下 する。また、簡素化溶媒抽出法において、低 HNO<sub>3</sub> 濃度における Np の挙動を評価することは今後の研 究開発においても重要である。フィード溶液の HNO<sub>3</sub> 濃度が低い場合には、溶液中において Np の酸化が十分でないことが懸念される。しかし、この場合においても抽出段を高 HNO<sub>3</sub> 濃度に調整 することにより遠心抽出器内にて Np の酸化及び抽出が期待できる。

本試験では、抽出段の高HNO3濃度化によるNp回収率向上の可能性について評価を行うため、低HNO3濃度フィード溶液及び高HNO3濃度洗浄液の採用により抽出段の高HNO3濃度化を図り、 抽出段におけるNpの濃度プロファイル及びNp回収率に及ぼす影響について検討を行う。

2. 目的

フィード溶液及び洗浄液の HNO3 濃度を 3.9M 及び 10M とした場合のプロダクトにおける U, Pu 及び Np の回収率,核分裂生成物(FP)のプロダクトに対する除染係数を評価する。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,これにより段効率を算出する。

3. 試験

3.1 試験場所

CPF 研究棟 CA-3 セル

- 3.2 使用機器
- ・CPF 型遠心抽出器
- ロータ径(内径):27mm
- 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
- ・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

2007 年度溶解及び晶析試験より得られた「常陽」Mk-I 燃料及び「常陽」Mk-II 燃料溶解液を対象とした。溶液調整により,以下に示す重金属量の照射済燃料溶解液を用いた。試験に使用した燃料仕様をTable 1 に示す。

- ・「常陽」Mk-I燃料溶解液 U:194g, Pu:16g
- ・「常陽」Mk-II 燃料溶解液 U:5.83g, Pu:1.97g
- 3.3.2 原子価調整

原子価調整に使用した試薬を以下に示す。

- ・5M HNO<sub>3</sub> (NOx ガス発生)
- ・4M 亜硝酸ナトリウム(NaNO<sub>2</sub>) (NOx ガス発生)
- 3.3.3 溶媒抽出試験

溶媒抽出試験に使用した試薬を以下に示す。30 vol%TBP/ノルマルドデカン(n-DD)は、アルカ

- リー酸洗浄後に使用した。
- ・10M HNO3 (洗浄液)
- ·3.9M HNO3 (模擬フィード溶液)
- ·3M HNO<sub>3</sub> (HNO<sub>3</sub> 濃度調整液)
- ・0.02M HNO<sub>3</sub> (逆抽出液)
- ·30 vol%TBP/n-DD (抽出溶媒)
- *•n-DD* (溶媒洗浄液)
- 3.4 試験期間

2007.9.5 - 2007.10.4

3.5 試験方法

3.5.1 フィード溶液

「常陽」Mk-I 及び Mk-II 燃料溶解液を混合し、フィード溶液として用いた。また、4M NaNO2 と 5M HNO3 を混合し NOx 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。この溶液の ORIGEN2.1[3]の計算による FP 及びアクチニド元素の組成を Table 2 に、また原子価調整装置を Figure 1 に示す。

3.5.2 供給試薬温度

逆抽出液(0.02M HNO<sub>3</sub>)の供給温度は, 60℃ 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℃ とした。なお, 試験を通じ, 供給温度は逆抽出部 16 段目において約 45℃ であることを 確認した。他の試薬は全てセル内温度にて供給した。

3.5.3 供給試薬フロー

本試験において運転を実施したフローシートを Figure 2 に示す。また、セル内外における試薬 供給設備接続ライン及び試薬供給フローを Figure 3,4 に示す。

3.5.4 運転時間

試験は,以下に示す順序で実施した。

·酸-溶媒平衡運転 2時間

·本運転 2.7 時間

・押出運転 1.5 時間

·溶媒押出運転 0.5 時間

酸-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-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 3.9M HNO3を用いた。

3.5.5 分析

フィード溶液は調整前後において,予めU, Pu, Np, FP, 亜硝酸(HNO<sub>2</sub>)及び HNO<sub>3</sub> 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 9, 8, 7 及び 6 段目有機相, 抽出部 4, 5, 6 及び 7 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, ラフィネート受容器, 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, Pu 及び HNO<sub>2</sub> 濃度については比色分析(日本分光(株), V-570DS), Pu 濃度の濃度が低いと予想され る箇所についてはα線スペクトル分析(ORTEC, CU017-450-100, 920-8MCA), 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(ORTEC, GEN10; セイコー・イージーアンドジー (株), 92XMCA), HNO<sub>3</sub> 濃度は中和滴定分析(平沼産業(株), COM-2500)を行った。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

HNO3 濃度及びPu原子価を調整した後, Pu(VI)の有無を確認するため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[4]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 NOx ガスを供給したことを考慮 すると Np は Np(V)に調整されたと考えられる。

本試験で得られたサンプルの分析結果を Table 4 に示す。本運転開始 120 分後に実施したラフィネート出口,抽出部水相 4 段目及び廃溶媒出口のサンプル中における比色分析による結果,U 濃度は検出下限値未満であった。一方,Pu についてはラフィネート出口,抽出部水相 4-7 段目, 逆抽出部有機相 6-9 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が, 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。Np は,逆抽出部有機相 6-8 段目及び廃溶媒出口においてα線スペクトル分析の 検出下限値未満であった。押出運転後において,U は、ラフィネート受容器及び廃溶媒受容器に おいて検出下限値未満であった。Pu は、ラフィネート受容器及び廃溶媒受容器において比色分 析での検出下限値未満であったものの,α線スペクトル分析により、評価を実施した。また、Np は 廃溶媒受容器においては検出下限値未満であった。

4.2 物質収支

物質収支の評価にあたっては(1), (2)式より収率を計算した。120分後における収率 Y120は

$$Y_{120} = \frac{C_{i,j} \times v_i}{C_{\mathrm{F},j} \times v_\mathrm{F}} \tag{1}$$

で計算し,押出後の収率 YSB については

$$Y_{\rm SB} = \frac{C_{i,j} \times V_i}{C_{\rm F,i} \times V_{\rm F}} \tag{2}$$

により評価した。ここで、 $C_{ij}$ 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、 $C_{Fj}$ 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。

定常及び押出運転終了時の分析結果より算出された U, Pu, Np 及び FP の各出口に対する物質 収支を Table 5 にまとめる。また,各出口に対する存在比を Table 6 に示す。本試験において供給し たフィード溶液における各元素及び核種の総量を 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 114.5%, Pu に関しては 104.1%となった。これに対し,押出運転後におけ るプロダクト中の U 及び Pu の収率は,それぞれ 108.7%, 110.0%であった。一方, 120 分後及び押 出運転後においては、U, Pu ともにラフィネート及び廃溶媒へのリークは、0.1%以下であった。Np に関しては、本運転開始 120 分後のプロダクトの収率は 74.3%、ラフィネートは 4.8%、廃溶媒は検 出下限値未満であった。また、押出運転後における Np のプロダクトへの収率は 91.2%、ラフィネート及び廃溶媒へのリークは 6.3%、廃溶媒では検出下限値未満であった。各出口における収率の 合計値は 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 及び Pu については損失なくプロダクトへ回収できたと思われる。Np につい ては、低 HNO3 濃度フィード溶液においても高 HNO3 洗浄液の採用により押出運転後に 90%以上 の Np がプロダクト中へ回収可能であった。

#### 4.3 除染係数

分析結果よりプロダクト中のU及びPuに対するFPの除染係数DF<sub>Pj</sub>を求めた。なお、除染係数は(3)式より算出した。

$$DF_{\mathrm{P},j} = \frac{\frac{C_{\mathrm{F},j}}{C_{\mathrm{F},U+\mathrm{Pu}}}}{\frac{C_{\mathrm{P},j}}{C_{\mathrm{P},U+\mathrm{Pu}}}}$$
(3)

ここで、 $C_{F,j}$ はフィード溶液中の元素jの濃度、 $C_{F,U+Pu}$ 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 7 にプロダクトに対する FP の除染係数を示す。セシウム( $^{137}Cs$ ), ユウロピウム( $^{154}Eu$  及び  $^{155}Eu$ )の除染係数は 5.0×10<sup>4</sup>, >2.8×10<sup>3</sup> 及び>4.9×10<sup>3</sup> となり, total- $\gamma$ の除染係数は 5.1×10<sup>4</sup> であった。 これは, 2005 年度に実施した簡素化溶媒抽出試験の除染係数とほぼ同じ値である[2]。

#### 4.4 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した U, Pu, Np 及び FP の濃度プロファイルを Figure 6-13 に示す。また、この分析結果より抽出計算コード MIXSET-X[5]にて段効率を算出し、 この計算結果も実験値と併せて示している。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℃ 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 14)を参考にした。なお、MIXSET-X に おける FP の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)、ルテニウム(Ru)、Cs、ガドリニウム(Gd)を使用した。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。なお、120 分後での各段におけるγ線スペク トル分析は、Cs のみ有意値を示し、他の元素は分析下限値未満であった。

抽出部は、ラフィネート出口、水相4-7段目においてサンプリングを実施した。Uはラフィネート 出口及び水相4段目において検出下限値未満であった。U, Pu及びNpにおける抽出段の濃度プ ロファイルでは、水相4-7段目の分析結果より抽出されている傾向がみられた。

逆抽出部は、プロダクト出口、有機相 6-9 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は廃溶媒出口において比色分析の検出下限値未満となった。U及び Pu における逆抽出段の濃度プロファイルでは,有機相 6-9 段目の分析結果より逆抽出されている傾向がみられた。Np は,有機相 6-8 段目及び廃溶媒出口において検出下限値未満であった。

4.5 HNO<sub>3</sub>による Np の酸化反応

Np は, HNO<sub>3</sub>溶液中において Np(IV), Np(V), Np(VI)の異なる原子価において存在する。このうち, TBP に対して 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 と共に回収するため Np の原子価を 30 vol%TBP/*n*-DD に抽出可能なNp(VI)に調整する。HNO<sub>3</sub>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。

 $2NpO_{2}^{+} + NO_{3}^{-} + 3H^{+} \leftrightarrow 2NpO_{2}^{2+} + HNO_{2} + H_{2}O$  (4) また, この反応速度は, HNO<sub>3</sub> 濃度及び HNO<sub>2</sub> 濃度に依存し, 下記の式により計算される[6]。

$$-\frac{d[Np(V)]}{dt} = \frac{1.8 \times 10^{-3} [H^+]^{1.3} [NO_3^-]^2 [HNO_2] [Np(V)]}{[HNO_3] + [Np(V)]}$$
(5)

(5)式は, HNO3濃度及びHNO2濃度が高くなると, HNO3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, HNO3濃度及び HNO2濃度は(6)式の反応における平衡定数にも影響を 及ぼす。(4)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[7]。

$$K_{\rm app} = \frac{\left[Np(VI)\right] \cdot \left[HNO_2\right]^{\frac{1}{2}}}{\left[Np(V)\right] \cdot \left[HNO_3\right]^2}$$
(6)

Gourisse の研究[8]によると、HNO<sub>3</sub> 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  $3.2 \times 10^{-4}$ から  $9.3 \times 10^{-4}$ に増加することが報告されている。また、高 HNO<sub>2</sub> 濃度では(4)式の反応式 が左側に進み、Np(V)の酸化反応が抑制される。

本運転開始 120 分後においては、Np のラフィネートへのリークは僅かに 4.8%であった。洗浄液 を 10M HNO<sub>3</sub> としたため,抽出部水相 4-7 段目における HNO<sub>3</sub> 濃度は約 7.5M に調整され,抽出 段において Np(V)の酸化反応が十分に進行したと思われる。すなわち、フィード溶液の低 HNO<sub>3</sub> 濃度化においても洗浄液の高 HNO<sub>3</sub> 濃度化により遠心抽出器内にて(5)式で示した Np の酸化速 度の向上及び(4)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。

高 HNO<sub>3</sub> 濃度フィード溶液の条件では, 抽出段の HNO<sub>3</sub> 濃度は約 5.5M であり, ラフィネートへの Np リークは 1%に抑えられている。今回の試験では, 抽出段の HNO<sub>3</sub> 濃度は約 7.5M に調整されたものの Np リークは 4.8%であった。フィード溶液の高 HNO<sub>3</sub> 濃度化の方が, 抽出段の HNO<sub>3</sub> 濃度は約 5.5M であっても, フィード溶液内にて十分な酸化が進んでいるため, Np のリークが抑えられている。これらの研究により, Np の回収に関しては, フィード溶液における高 HNO<sub>3</sub> 濃度化の有効性が示された。

4.6 Np 回収における HNO<sub>2</sub>の影響

Np の酸化還元反応において, HNO<sub>2</sub> が重要な役割を示すことが知られており, (4)式によると HNO<sub>2</sub>濃度が増加するとNp(V)の酸化反応が抑制される。本フローシートにおけるHNO<sub>2</sub>濃度の影 響を評価するため, フィード溶液中のHNO<sub>2</sub>濃度をパラメータとしてMIXSET-Xにより計算を行った。 この計算結果をFigure 15 に示す。また, 比較のためHNO<sub>3</sub>濃度 5.2Mのフィード溶液を採用したフ ローシート[2]における計算結果も併せて示す。両フローシートでは, フィード溶液中のHNO<sub>2</sub> 濃度 が増加するに従い, Np のラフィネートへのリーク率が増加することが示された。これは, (4)式にお いてNp(VI)がHNO<sub>2</sub>濃度増加により還元され易くなるためである。また, フィード溶液のHNO<sub>3</sub>濃度 が高い方が, Npのラフィネートへのリーク率が低い結果となった。Np 回収に関しては, 高 HNO<sub>3</sub>濃 度フィード溶液の方が HNO<sub>2</sub> の影響を受けにくいと思われる。CPF では, 本試験において初めて HNO<sub>2</sub> 濃度の分析を行ったため, HNO<sub>2</sub> による影響を評価するためには試験データの更なる取得 が必要である。

4.7 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HNO3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。なお、洗浄段における段効率は、2005 年の試験において得られた段効率の値を用いた。実験及び計算より得られた抽出部及び逆抽出部における U, Pu, Np及び FP の濃度プロファイルを Figure 6-13 に示している。

抽出段の段効率はUが98.5%, Puは100%, Npについては78%の値が得られた。2005年度の 試験では,抽出部水相2-5段目により評価を行ったため,検出下限値未満やテイリングが懸念さ れたが,本試験ではフィード溶液に近い段にてサンプリングを行い,より正確な段効率を算出でき た。逆抽出部の段効率は,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96%,100% 及び94.5%の値が得られた。このうちNpは,有機相6-8段目にて検出下限値未満となったため, より正確な評価を行うためにも、サンプリング及び分析方法について検討が必要である。

#### 5. 結論

「常陽」Mk-I及びMk-II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HNO3 濃度を3.9M及び10Mの条件において、Npのラフィネ ートへのリーク防止を図った。押出運転後におけるプロダクト中への回収率はUが108.7%、Puが 110.0%、Npにおいては91.2%であった。U及びPuは、ほぼプロダクト中へ回収され、Npは6.3% がラフィネートへリークしたものの、残りはプロダクトへ回収された。また、本運転開始120分後にサ ンプリングを行いNpの濃度プロファイルを取得した。抽出段においては、Npが抽出される傾向が みられた。よって、低HNO3濃度のフィード溶液においても洗浄液を高HNO3濃度とすることにより、 抽出段での Np(VI)への酸化を促進でき、大部分の Np が回収可能であった。また、本条件と高 HNO3 濃度のフィード溶液において、Np 回収率及び HNO2 の影響について検討し、フィード溶液 における HNO3 濃度の重要性を示した。本試験により得られた濃度プロファイルにより抽出段にお ける U, Pu 及び Np の段効率は、それぞれ 98.5%、100%及び 78%となり、また逆抽出段における U, Pu 及び Np の段効率は、96%、100%及び 94.5%と評価された。プロダクトに対する total-γの除染 係数は 5.1×10<sup>4</sup> であり、2005 年度の簡素化溶媒抽出試験で得られた値とほぼ同じであった。本フロ ーシートにおける Np の回収は、高速炉サイクル実用化研究開発(FaCT)の要求を満足しているが、 短半減期核種の除染係数の評価、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す る必要があると思われる。

#### 6. 今後の予定

本試験において, 逆抽出部における Np の殆どがα線スペクトル分析の検出下限値未満となり, 正確な段効率が算出できなかった。よって, サンプリング及び分析方法を再度検討していく必要が 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), p.307 (2004).
- [2]中原将海, 佐野雄一, 宮地茂彦, 小泉務, 小山智造, 青瀬晋一: "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-", JAEA-Research 2006-030 (2006).
- [3] M. J. Bell : "ORIGEN-The ORNL isotope generation and depletion code", ORNL-4628 (1973).
- [4]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).
- [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)", JNC TN8400 99-005 (1999).
- [6]J. P. Moulin : "Oxidation-reduction kinetics of neptunium in nitric acid solution", Thése Doctorat d'état, Rapport CEA-R-4912 (1978).
- [7]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), p.50 (1995).
- [8]D. Gourisse : "Oxdation of neptumium(V) by aqueous solutions of nitric acid in the presence of nitrous acid", J. Inorg. Nucl. Chem., 33, p.831 (1971).







Figure 2 Flow sheet







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



Figure 6 Concentration profiles of U in the extraction section and scrubbing section (Calculation was carried out with 98.5% and 100% stage efficiency, respectively)



Figure 7 Concentration profiles of U in the stripping section (Calculation was carried out with 96% stage efficiency)



Figure 8 Concentration profiles of Pu in the extraction section and scrubbing section (Calculation was carried out with 100% and 100% stage efficiency, respectively)



Figure 9 Concentration profiles of Pu in the stripping section (Calculation was carried out with 100% stage efficiency)



Figure 10 Concentration profiles of Np in the extraction section and scrubbing section (Calculation was carried out with 78% and 98.5% stage efficiency, respectively)



Figure 11 Concentration profiles of Np in the stripping section (Calculation was carried out with 94.5% stage efficiency)



Figure 12 Concentration profiles of FPs in the extraction section and scrubbing section (Calculation was carried out with 100% and 100% stage efficiency, respectively)



Figure 13 Concentration profiles of FPs in the stripping section (Calculation was carried out with 100% stage efficiency)



Figure 14 Temperature profiles in the centrifugal contactor



Figure 15 Leakage ratio of Np to the raffinate with  $HNO_2$  concentration in the feed solution

Experiment			Reprocessing experiment in 2007			
	Fu	el	"JOYO" Mk-I core fuel (FPPJX173)	"JOYO" Mk-II core fuel (FPFD209)		
ent,		Pu (g)	~22	~22		
eleme value	Enr	riched U (g)	~103 [23.6 <sup>*1</sup> ]	~57 [8.1 <sup>*1</sup> ]		
ght of nitial	Dep	leted U (g)	~166 [0.4 <sup>*1</sup> ]	~4		
Weig	Na	utural U (g)	_	_		
		238	$0.0~(0.0^{*3})$	$0.7 (0.7^{*3})$		
	<b>D</b> 11	239	76.7 (79.1 <sup>*3</sup> )	68.4 (67.6 <sup>*3</sup> )		
1*2	1 u	240	19.4 (19.6*3)	21.6 (26.0*3)		
sition	(70)	241	3.3 (0.8 <sup>*3</sup> )	6.8 (2.6 <sup>*3</sup> )		
sodu		242	$0.6 (0.5^{*3})$	2.5 (3.1 <sup>*3</sup> )		
ic coi		234	$0.0~(0.0^{*3})$	$0.1 (0.2^{*3})$		
Isotopi	U (%)	235	8.9 (8.2 <sup>*3</sup> )	13.4 (11.0*3)		
		236	$0.0~(0.2^{*3})$	$0.1 \ (0.8^{*3})$		
		238	91.1 (91.6 <sup>*3</sup> )	86.4 (88.0 <sup>*3</sup> )		
—Ini	U enric tial value	hment —(core, w/o)	23	13.4		
	Pu enric	chment	18	29.1		
—Ini	tial value	-(core, w/o)	10	29.1		
	Burn up (	MWd/t)	Ave. 13000	Ave. 54700		
C	ooling tir	ne $(day)^{*4}$	9813	6818		
Amour	nt of radio	pactivity (TBq)	1.64	3.11		

# Table 1 Composition of the irradiated MOX fuel

\*1 : Weight of <sup>235</sup>U

\*2 : Analysis value in fuel fabrication

\*3 : Calculated value by ORIGEN2.1 after the cooling time

\*4 : At May 7, 2007

Element	Concentration (g/L)	Nuclide	Concentration (Bq/L)	Element	Concentration (g/L)	Nuclide	Concentration (Bq/L)
Ge	$4.04 \times 10^{-5}$			U	1.48×10 <sup>2</sup>		
As	1.25×10 <sup>-5</sup>			Np	$1.47 \times 10^{-2}$	<sup>237</sup> Np	3.83×10 <sup>5</sup>
Se	1.59×10 <sup>-3</sup>			Pu	$1.33 \times 10^{1}$		
Br	$5.83 \times 10^{-4}$			Am	$3.51 \times 10^{-1}$		
Rb	9.79×10 <sup>-3</sup>			Cm	$4.74 \times 10^{-5}$		
Sr	2.29×10 <sup>-2</sup>	<sup>90</sup> Sr	3.88×10 <sup>10</sup>				
Y	$1.18 \times 10^{-2}$	<sup>90</sup> Y	3.88×10 <sup>10</sup>				
		<sup>91</sup> Y	$0.00 \times 10^{0}$				
Zr	$1.02 \times 10^{-1}$	<sup>95</sup> Zr	$0.00 \times 10^{0}$				
Nb	$2.73 \times 10^{-7}$	<sup>95</sup> Nb	$0.00 \times 10^{0}$				
Мо	9.64×10 <sup>-2</sup>						
Tc	$2.44 \times 10^{-2}$	<sup>99</sup> Tc	1.53×10 <sup>7</sup>				
Ru	$7.05 \times 10^{-2}$	<sup>106</sup> Ru	5.78×10 <sup>5</sup>				
Rh	$2.22 \times 10^{-2}$	<sup>106</sup> Rh	5.78×10 <sup>5</sup>				
Pd	$4.35 \times 10^{-2}$						
Ag	$4.30 \times 10^{-3}$	<sup>110m</sup> Ag	$3.54 \times 10^{0}$				
Cd	3.99×10 <sup>-3</sup>						
In	5.31×10 <sup>-4</sup>						
Sn	$4.75 \times 10^{-3}$	<sup>123</sup> Sn	$1.75 \times 10^{-7}$				
Sb	1.13×10 <sup>-3</sup>	<sup>125</sup> Sb	9.70×10 <sup>7</sup>				
Te	$1.76 \times 10^{-2}$	<sup>125m</sup> Te	$2.37 \times 10^{7}$				
		<sup>127</sup> Te	6.38×10 <sup>-10</sup>				
		<sup>127m</sup> Te	6.51×10 <sup>-10</sup>				
Cs	9.65×10 <sup>-2</sup>	<sup>134</sup> Cs	$1.63 \times 10^{7}$				
		<sup>137</sup> Cs	6.44×10 <sup>10</sup>				
Ba	5.41×10 <sup>-2</sup>						
La	$3.57 \times 10^{-2}$						
Ce	$6.60 \times 10^{-2}$	<sup>144</sup> Ce	$1.67 \times 10^{4}$				
Pr	3.39×10 <sup>-2</sup>	$^{144}$ Pr	$1.67 \times 10^{4}$				
Nd	$1.13 \times 10^{-1}$						
Pm	$2.47 \times 10^{-5}$	<sup>147</sup> Pm	8.46×10 <sup>8</sup>				
Sm	3.01×10 <sup>-2</sup>	<sup>151</sup> Sm	3.29×10 <sup>9</sup>				
Eu	2.81×10 <sup>-3</sup>	<sup>154</sup> Eu	$1.46 \times 10^{8}$				
		<sup>155</sup> Eu	$5.14 \times 10^{8}$				
Gd	2.30×10 <sup>-3</sup>						
Tb	$144 \times 10^{-4}$						
Dy	8.19×10 <sup>-5</sup>						
Но	3.14×10 <sup>-6</sup>						
Er	$3.16 \times 10^{-6}$						
	10						

 Table 2
 Composition of the feed solution (calculated value)

	Sampling				Concen	tration			Pu
	Samphing				Concen	uation			valence
Process	Point	Sample No.	U	Pu	HNO <sub>3</sub>	α	$\gamma^{*4}$	$\mathrm{HNO}_2$	Pu(IV)
Before Pu(IV) adjustment	Dissolver solution	19-F1-00-01A	0	0	0			0	0
After Pu(IV) adjustment	Feed solution	19-F1-00-02A	0	0	0	$\bigcirc^{*2}$	0	0	0
	Spent solvent	19-B16-120-01O	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0		
	Product	19-B1-120-01A	0	0	0	$\bigcirc^{*2}$	0	0	
	Raffinate	19-A1-120-01A	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0	0	
	Stripping section 9 <sup>th</sup> stage/Org.	19-B9-120-01O	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0		
120 min after	Stripping section 8 <sup>th</sup> stage/Org.	19-B8-120-01O	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0		
starting hot	Stripping section 7 <sup>th</sup> stage/Org.	19-B7-120-01O	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0		
operation*1	Stripping section 6 <sup>th</sup> stage/Org.	19-B6-120-01O	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0		
	Extraction section 4 <sup>th</sup> stage/Aq.	19-A4-120-01A	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0	0	
	Extraction section 5 <sup>th</sup> stage/Aq.	19-A5-120-01A	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0	0	
	Extraction section 6 <sup>th</sup> stage/Aq.	19-A6-120-01A	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0	0	
	Extraction section 7th stage/Aq.	19-A7-120-01A	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0	0	
	Raffinate	19-A1-SB-02A	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0		
After	Product $(1)^{*5}$	19-B1-SB-02A1	0	0	0	$\bigcirc^{*2}$	0		
operation	Product $(2)^{*5}$	19-B1-SB-02A2	0	0	0	$\bigcirc^{*2}$	0	0	
	Spent solvent	19-B16-SB-02O1	0	0	0	$\bigcirc^{*3}$	0		

Table 3 Analysis plan

\*1 Sampled in descending order

\*2 <sup>237</sup>Np

\*3  $^{239}$ Pu+ $^{240}$ Pu,  $^{238}$ Pu+ $^{241}$ Am and  $^{237}$ Np

\*4 Total-γ

\*5 (1)Acid equilibrium, (2)Hot operation and after operation

nalysis
of a
Results
4
Table

	Sampling							Conc	entration						
Drocecc	Doint	Comula Mo	HNO <sub>3</sub>	$HNO_2$	U	Pu	$^{237}$ Np	<sup>239</sup> Pu+ <sup>240</sup> Pu	$^{238}Pu+^{241}Am$	$^{95}\mathrm{Zr}$	$^{134}Cs$	$^{137}Cs$	$^{154}\text{Eu}$	$^{155}\mathrm{Eu}$	Total-γ
LI OCCAS	L UIII	Sample INO.	(mol/L)	(mol/L)	(g/L)	(g/L)	(Bq/mL)	(Bq/mL)	(Bq/mL)	(Bq/mL)	(Bq/mL)	(Bq/mL)	(Bq/mL)	(Bq/mL)	(Bq/mL)
Before Pu(IV)	Dissolver solution	19-F1-00-01A	$3.60{\times}10^{0}$		$9.00 \times 10^{1}$	$1.80 \times 10^{1}$									
adjustment After Pu(IV)			c		e		e		c			c			
adjustment	Feed solution	19-F1-00-02A	$3.90 \times 10^{0}$	$1.08 \times 10^{-3}$	$1.70 \times 10^{2}$	2.10×10 <sup>1</sup>	2.57×10 <sup>3</sup>	7.56×10 <sup>7</sup>	1.45×10 <sup>8</sup>	$4.84 \times 10^{4}$	$5.88 \times 10^{4}$	1.72×10 <sup>8</sup>	6.14×10 <sup>5</sup>	$1.09 \times 10^{\circ}$	1.74×10 <sup>8</sup>
	Spent solvent	19-B16-120-01O	$3.00 \times 10^{-2}$		$<3.00 \times 10^{-2}$	$2.33 \times 10^{-5}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$8.09{\times}10^{1}$	$5.43 \times 10^{1}$	$<7.40 \times 10^{1}$	$<7.40 \times 10^{1}$	$9.43 \times 10^{1}$	<7.40×10 <sup>1</sup>	<7.40×10 <sup>1</sup>	$9.43 \times 10^{1}$
	Product	19-B1-120-01A	$5.00 \times 10^{-1}$	$2.98 \times 10^{-4}$	$4.72 \times 10^{1}$	$5.30 \times 10^{0}$	$4.63 \times 10^{2}$			$<3.70{\times}10^{4}$	$< 3.70 \times 10^{4}$	$4.65 \times 10^{2}$	<3.70×10 <sup>4</sup>	<3.70×10 <sup>4</sup>	$4.65 \times 10^{2}$
	Raffinate	19-A1-120-01A	$6.50 \times 10^{0}$	$1.70 \times 10^{-4}$	$<3.00 \times 10^{-2}$	$4.83 \times 10^{-4}$	$6.00 \times 10^{1}$	$1.68 \times 10^{3}$	$5.35 \times 10^{7}$	$<3.70{\times}10^{1}$	$< 3.70 \times 10^{1}$	$9.61 \times 10^7$	$3.85 \times 10^{5}$	$5.73 \times 10^{5}$	$9.71 \times 10^{7}$
	Stripping section 9th stage/Org.	19-B9-120-01O	$3.00 \times 10^{-2}$		$7.40 \times 10^{-1}$	$1.36 \times 10^{-4}$	$7.05 \times 10^{1}$	$4.74 \times 10^{2}$	$1.17 \times 10^{3}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$2.64 \times 10^{2}$	<3.70×10 <sup>1</sup>	<3.70×10 <sup>1</sup>	$2.64 \times 10^{2}$
120min	Stripping section 8 <sup>th</sup> stage/Org.	19-B8-120-01O	$7.00 \times 10^{-2}$		$3.40 \times 10^{0}$	$5.23 \times 10^{-4}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$1.82 \times 10^{3}$	$9.91 \times 10^{2}$	$<3.70{\times}10^{1}$	$< 3.70 \times 10^{1}$	$8.20 \times 10^{1}$	<3.70×10 <sup>1</sup>	<3.70×10 <sup>1</sup>	$8.20 \times 10^{1}$
atter starting hot	Stripping section 7th stage/Org.	19-B7-120-01O	$<1.00 \times 10^{-2}$		$3.50 \times 10^{1}$	$3.28 \times 10^{-2}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$1.14 \times 10^{5}$	$5.96 \times 10^{4}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$7.63 \times 10^{1}$	<3.70×10 <sup>1</sup>	<3.70×10 <sup>1</sup>	$7.63 \times 10^{1}$
operation	Stripping section 6 <sup>th</sup> stage/Org.	19-B6-120-01O	$1.00 \times 10^{-2}$		$6.10 \times 10^{1}$	$2.00 \times 10^{-1}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$6.97 \times 10^{5}$	$4.06 \times 10^{5}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$4.80 \times 10^{1}$	<3.70×10 <sup>1</sup>	<3.70×10 <sup>1</sup>	$4.80 \times 10^{1}$
I	Extraction section 4th stage/Aq.	19-A4-120-01A	$7.50 \times 10^{0}$	$1.96 \times 10^{-4}$	$<3.00 \times 10^{-2}$	$5.63 \times 10^{-4}$	$1.38 \times 10^{2}$	$1.96 \times 10^{3}$	$5.83 \times 10^{7}$	$3.76 \times 10^{4}$	$3.76 \times 10^{4}$	$9.27 \times 10^7$	$3.55 \times 10^{5}$	$5.30 \times 10^{5}$	$9.37 \times 10^{7}$
	Extraction section 5 <sup>th</sup> stage/Aq.	19-A5-120-01A	$7.50 \times 10^{0}$	$1.45 \times 10^{-4}$	$1.50 \times 10^{-1}$	$8.51 \times 10^{-4}$	$2.56 \times 10^{2}$	$2.96 \times 10^{3}$	$6.19 \times 10^{7}$	$<3.70{\times}10^{4}$	<3.70×10 <sup>4</sup>	$9.64 \times 10^7$	$4.03 \times 10^{5}$	$7.97 \times 10^{5}$	$9.76 \times 10^{7}$
	Extraction section 6 <sup>th</sup> stage/Aq.	19-A6-120-01A	$6.60 \times 10^{0}$	$1.23 \times 10^{-4}$	$8.00 \times 10^{-1}$	$5.40 \times 10^{-3}$	$4.37 \times 10^{2}$	$1.88 \times 10^{4}$	$5.94 \times 10^7$	$<3.70{\times}10^{4}$	$5.64 \times 10^{4}$	$9.71 \times 10^7$	$3.10 \times 10^{5}$	$8.70 \times 10^{5}$	$9.83 \times 10^{7}$
	Extraction section 7th stage/Aq.	19-A7-120-01A	$7.80 \times 10^{0}$	$2.77 \times 10^{-4}$	$2.80 \times 10^{0}$	$1.00 \times 10^{-1}$	$9.97 \times 10^{2}$	3.48×10 <sup>5</sup>	$5.76 \times 10^{7}$	$<3.70{\times}10^{4}$	$5.41 \times 10^{4}$	$9.52 \times 10^7$	4.19×10 <sup>5</sup>	$9.07 \times 10^{5}$	$9.66 \times 10^{7}$
	Raffinate	19-A1-SB-02A	$5.40 \times 10^{0}$	$2.55 \times 10^{-5}$	$<3.00 \times 10^{-2}$	$5.58 \times 10^{-4}$	$5.35 \times 10^{1}$	$1.94 \times 10^{3}$	$3.08 \times 10^{7}$	$<3.70{\times}10^{4}$	$< 3.70 \times 10^{4}$	$5.27 \times 10^7$	$1.69 \times 10^{5}$	$4.56 \times 10^{5}$	$5.33 \times 10^7$
After	Product (1)	19-B1-SB-02A1	$6.00 \times 10^{-1}$	$2.77 \times 10^{-5}$	$<3.00 \times 10^{-2}$	$<2.00 \times 10^{-1}$	<7.40×10 <sup>0</sup>			$<3.70 \times 10^{1}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$2.04 \times 10^{3}$	<3.70×10 <sup>1</sup>	<3.70×10 <sup>1</sup>	$2.04 \times 10^{3}$
operation	Product (2)	19-B1-SB-02A2	$1.20 \times 10^{0}$	$2.11 \times 10^{-4}$	$2.80 \times 10^{1}$	$3.50{\times}10^{0}$	$3.55 \times 10^{2}$			$<3.70 \times 10^{1}$	$<3.70 \times 10^{1}$	$5.69 \times 10^{2}$	<3.70×10 <sup>1</sup>	<3.70×10 <sup>1</sup>	$5.69 \times 10^{2}$
	Spent solvent	19-B16-00-02A1	$<1.00 \times 10^{-2}$		$<3.00 \times 10^{-2}$	$1.15 \times 10^{-4}$	<7.40×10 <sup>0</sup>	$4.01 \times 10^{2}$	$2.41 \times 10^{3}$	<3.70×10 <sup>1</sup>	<3.70×10 <sup>1</sup>	$2.07 \times 10^{2}$	<3.70×10 <sup>1</sup>	<3.70×10 <sup>1</sup>	$2.07 \times 10^{2}$

Duesees	Doint	U	Pu	<sup>237</sup> Np	<sup>137</sup> Cs	<sup>154</sup> Eu	<sup>155</sup> Eu
Process	Point	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)
Before operation	Feed solution	$1.00 \times 10^{2}$	1.00×10 <sup>2</sup>	$1.00 \times 10^{2}$	$1.00 \times 10^{2}$	$1.00 \times 10^{2}$	$1.00 \times 10^{2}$
120min offer	Raffinate	$<3.59 \times 10^{-2*1}$	$4.68 \times 10^{-3}$	4.75×10 <sup>0</sup>	$1.14 \times 10^{2}$	$1.27 \times 10^{2}$	$1.07 \times 10^{2}$
starting hot	Product	$1.15 \times 10^{2}$	$1.04 \times 10^{2}$	7.43×10 <sup>1</sup>	$1.12 \times 10^{-3}$	$<2.49 \times 10^{-2*3}$	$< 1.40 \times 10^{-2^{*3}}$
operation	Spent solvent	$<3.55 \times 10^{-2*1}$	$2.23 \times 10^{-4}$	$< 5.80 \times 10^{-1*2}$	$1.10 \times 10^{-4}$	$<2.43 \times 10^{-2*3}$	$< 1.37 \times 10^{-2^{*3}}$
	Raffinate	$< 5.29 \times 10^{-2^{*1}}$	$7.97 \times 10^{-3}$	6.25×10 <sup>0</sup>	9.19×10 <sup>1</sup>	$8.26 \times 10^{1}$	1.26×10 <sup>2</sup>
After operation	Product	$1.09 \times 10^{2}$	$1.10 \times 10^{2}$	9.12×10 <sup>1</sup>	$7.83 \times 10^{-3}$	$<3.98 \times 10^{-2^{*3}}$	$<2.24 \times 10^{-2^{*3}}$
÷	Spent solvent	$< 5.82 \times 10^{-2*1}$	$1.81 \times 10^{-3}$	$<9.50 \times 10^{-1*2}$	$3.97 \times 10^{-4}$	$< 1.99 \times 10^{-2*3}$	$<1.12 \times 10^{-2*3}$

Table 5 Mass balances of actinide elements and FPs

\*1: Under the analytical lower limit (<0.03g/L)

\*2: Under the analytical lower limit (<7.4Bq/mL)

\*3: Under the analytical lower limit (<37Bq/mL)

Duo o o o o	Deint	U	Pu	<sup>237</sup> Np	<sup>137</sup> Cs	<sup>154</sup> Eu	<sup>155</sup> Eu
Process	Point	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)
120min after	Raffinate	$<3.13 \times 10^{-2*1}$	$4.49 \times 10^{-3}$	5.96×10 <sup>0</sup>	9.99×10 <sup>1</sup>	9.99×10 <sup>1</sup>	9.99×10 <sup>1</sup>
starting hot	Product	9.99×10 <sup>1</sup>	9.99×10 <sup>1</sup>	9.33×10 <sup>1</sup>	$9.82 \times 10^{-4}$	$<1.95 \times 10^{-2*3}$	$< 1.31 \times 10^{-2*3}$
operation	Spent solvent	$<3.10 \times 10^{-2*1}$	$2.15 \times 10^{-4}$	$<7.28 \times 10^{-1*2}$	$9.72 \times 10^{-5}$	$< 1.90 \times 10^{-2^{*3}}$	$< 1.28 \times 10^{-2*3}$
	Raffinate	$<4.87 \times 10^{-2*1}$	$7.25 \times 10^{-3}$	6.35×10 <sup>0</sup>	9.99×10 <sup>1</sup>	9.99×10 <sup>1</sup>	9.99×10 <sup>1</sup>
After operation	Product	9.99×10 <sup>1</sup>	9.99×10 <sup>1</sup>	9.27×10 <sup>1</sup>	$8.52 \times 10^{-3}$	$<4.81 \times 10^{-2^{*3}}$	$< 1.78 \times 10^{-2^{*3}}$
1	Spent solvent	$< 5.35 \times 10^{-2*1}$	$1.64 \times 10^{-3}$	$< 9.66 \times 10^{-1*2}$	$4.32 \times 10^{-4}$	$<2.41 \times 10^{-2*3}$	$< 8.92 \times 10^{-3*3}$

Table 6 Abundance ratios of actinide elements and FPs

\*1: Under the analytical lower limit (<0.03g/L)

\*2: Under the analytical lower limit (<7.4Bq/mL)

\*3: Under the analytical lower limit (<37Bq/mL)

	Table 7	Decontamination	factors of FPs and total-	y for U and Pu product
--	---------	-----------------	---------------------------	------------------------

	<sup>137</sup> Cs	<sup>154</sup> Eu	<sup>155</sup> Eu	Total-γ
Decontamination factor	$5.0 \times 10^{4}$	>2.8×10 <sup>3</sup>	>4.9×10 <sup>3</sup>	5.1×10 <sup>4</sup>

表1. SI 基本単位					
<b></b>		SI 基本i	単位		
坐平里	L	名称	記号		
長	μ	メートル	m		
質	量	キログラム	kg		
時	間	秒	S		
電	流	アンペア	А		
熱力学温	度	ケルビン	K		
物質	量	モ ル	mol		
光	度	カンデラ	cd		

表2.基本単位を用いて表されるSI組立単位の例						
知力量	SI 基本単位					
和卫王里	名称	記号				
面 積	平方メートル	$m^2$				
体積	立法メートル	$m^3$				
速さ、速度	メートル毎秒	m/s				
加 速 度	メートル毎秒毎秒	$m/s^2$				
波 数	毎 メ ー ト ル	m-1				
密度(質量密度)	キログラム毎立法メートル	kg∕m³				
質量体積(比体積)	立法メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg				
電 流 密 度	アンペア毎平方メートル	$A/m^2$				
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m				
(物質量の)濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>				
輝 度	カンデラ毎平方メートル	$cd/m^2$				
屈 折 率	(数 の) 1	1				

表 5. SI 接頭語 乗数 記号 乗数 記号 接頭語 接頭語  $10^{24}$ Е 勾 Y  $10^{-1}$ ÷ d  $10^{21}$  $10^{18}$  $10^{15}$  $10^{12}$ ゼ タサ Z E  $10^{-2}$ セ ン チ С  $10^{-3}$ エク 1] Ξ m  $10^{-6}$ ペ タ Р マイクロ μ 10<sup>-9</sup> テギメキ ラガガ Т ナ n 10<sup>-12</sup> 10<sup>9</sup> G Ľ р 10<sup>-15</sup>  $10^{6}$ М フェム ŀ f 10<sup>-18</sup>  $10^{3}$ k *P* а 10<sup>-21</sup> ゼ  $10^{2}$ ク  $\mathbb{P}$ h プ  $\overline{}$ Z <u>1</u>0<sup>-24</sup> カ  $10^{1}$ E da

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

	SI 組立単位							
組立量	名称	記号	他のSI単位による	SI基本単位による <u> まし</u> ヵ				
亚 面 角	(a)	rad	<u> </u>	m • m <sup>-1</sup> -1 <sup>(b)</sup>				
	$\gamma \gamma \gamma \gamma \gamma \gamma$	1 du		$m^2 m^{-2} - 1$ (b)				
	人 アフシナノ …	SI		шт • Ш т=1 тт				
同 仮 亥		пи		S2				
	/ /	N	ar ( 2	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^2$				
上,刀,下,上	バスカル	Pa	N/m²	$\mathbf{m}_{2}^{-1} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}_{2}^{-2}$				
エネルキー、仕事、熱量	ビュール	J	N•m	m <sup>2</sup> • kg • s <sup>-2</sup>				
工 率 , 放 射 束	モワ ッ ト	W	J/s	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$				
電荷,電気量	クーロン	С		s•A				
電位差(電圧),起電力	ボール ト	V	W/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-1}$				
静電容量	ファラド	F	C/V	$\mathbf{m}^{-2} \cdot \mathbf{kg}^{-1} \cdot \mathbf{s}^4 \cdot \mathbf{A}^2$				
電気抵抗	はオーム	Ω	V/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-2}$				
コンダクタンフ	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2} \cdot kg^{-1} \cdot s^3 \cdot A^2$				
磁す	「ウ エ ー バ	Wb	V · s	$m^2 \cdot k\sigma \cdot s^{-2} \cdot \Lambda^{-1}$				
磁 東 家 唐	ティーフラ	T	Wh $/m^2$	$k \sigma \cdot e^{-2} \cdot \Lambda^{-1}$				
インダクタンス		Н	Wb/A	$m^2 \cdot lc \cdot e^{-2} \cdot \Lambda^{-2}$				
セルシウフル	キルシュウフ 座(0)	°C	(1D) II	W Kg S A				
	モルシリス度	1 m	c 4 c (c)	n m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup> ad-ad				
四日		1111	cd • sr	$\mathbf{II} \cdot \mathbf{II} \cdot \mathbf{C} = \mathbf{C} \mathbf{C}$				
(おおいけての) おおお		1X D	1 m/ m-	$m^{-} \cdot m^{-} \cdot cd = m^{-} \cdot cd$				
(	ヘクレル	Rď		S 1				
ツ収線重, 賀重エイル	ダレイ	Gy	J/kg	$m^2 \cdot s^{-2}$				
+ 一 万 子, ノ ー ×		· ·						
一		C	I /lrg					
里, 刀凹注湫里彐里, 惟 人始昌业昌 如媯始昌山		SV	1 / KB	ш <sup>-</sup> •S -				
八冧里ヨ里, 徂徠塚里ヨ								

(a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作るときのいくつかの用例は表4に示されている。
 (b) 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号"1"は明示されない。
 (c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
 (d) この単位は、例としてミリセルシウス度m℃のようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4.単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

	衣	4. 単位の	モア	. 固有の石林とての独自(	の記写を召り	131祖立単位の例		
組立를				SI 組立単位				
和立里				名称	記号	SI 基本単位による表し方		
粘			度	パスカル秒	Pa•s	$\mathbf{m}^{-1} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-1}$		
力	のモー	- メ ン	ト	ニュートンメートル	N•m	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$		
表	面	張	力	ニュートン毎メートル	N/m	$kg \cdot s^{-2}$		
角	ì	恵	度	ラジアン毎秒	rad/s	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{m}^{-1} \cdot \mathbf{s}^{-1} = \mathbf{s}^{-1}$		
角	加	速	度	ラ ジ ア ン 毎 平 方 秒	rad/s <sup>2</sup>	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-2} = s^{-2}$		
熱	流 密 度 ,	放射照	! 度	ワット毎平方メートル	$W/m^2$	$kg \cdot s^{-3}$		
熱 征	冬量, エ	ントロヒ		ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$		
質量	<b>計</b> 熱容量	(比熱容量	),	ジュール毎キログラム	$I/(kg \cdot K)$	$m^2 - c^{-2} - V^{-1}$		
質	量 エ ン	トロピ	-	毎ケルビン	J/ (KS K)	m · s · k		
質	量工ジ	ネルギ	_	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$		
(	比 丄 不	ルキー	)	- 14 1 1 2 4 2				
熱	伝	導	率	ワット毎メートル毎ケ ルビン	₩/ (m • K)	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} \cdot \mathbf{K}^{-1}$		
体	積工	ネルギ	_	ジュール毎立方メート	J/m <sup>3</sup>	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$		
電	界(	の強	さ	ル ボルト毎メートル	V/m	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} \cdot \mathbf{A}^{-1}$		
1 <del>k</del>	括	靈	莅	クーロン毎立方メート	$C/m^3$	m <sup>-3</sup> - 0 - 1		
144	作具	н <u>ц</u>	141	ル	07Ш	III · S · A		
電	気	変	位	クーロン毎平方メート ル	$C/m^2$	$m^{-2} \cdot s \cdot A$		
誘	á	Ē	率	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$		
诱	fi	兹	率	ヘンリー毎メートル	H/m	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-2} \cdot \mathbf{A}^{-2}$		
Æ	ルエン	ネルギ		ジュール毎モル	J/mol	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot mol^{-1}$		
Ŧ	ルエン	トロピ -	_	ジュール毎モル毎ケル	<b>x</b> ( ( <b>1 1</b> )	2		
ŧ	ル	热容	,量	ビン	J∕(mol•K)	$\mathbf{m}^{*} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{*} \cdot \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{mol}^{-1}$		
照身	す線量 (X	線及びィ網	泉)	クーロン毎キログラム	C/kg	$kg^{-1} \cdot s \cdot A$		
吸	収着	泉量	率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^2 \cdot s^{-3}$		
放	射	強	度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3} = m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$		
放	射	輝	度	ワット毎平方メートル	W∕(m² • sr)	$\mathbf{m}^2 \cdot \mathbf{m}^{-2} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} = \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3}$		

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	0	$1^{\circ} = (\pi/180)$ rad
分	,	1' = $(1/60)^{\circ}$ = $(\pi/10800)$ rad
秒	"	1" = $(1/60)$ ' = $(\pi/648000)$ rad
リットル	1. L	$11=1 \text{ dm}^3=10^{-3}\text{m}^3$
トン	t	1t=10 <sup>3</sup> kg
ネーパ	Np	1Np=1
ベル	В	1B= (1/2) 1n10 (Np)

表7.	国際単位系と併用されこれに属さない単位で
	SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
電子ボルト	eV	1eV=1. 60217733 (49) ×10 <sup>−19</sup> J
統一原子質量単位	c u	1u=1. 6605402 (10) $\times 10^{-27}$ kg
天 文 単 位	ua	1ua=1. 49597870691 (30) ×10 <sup>11</sup> m

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と

		171	用されるての他の単位
	名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海		里	1 海里=1852m
1	ツ	ŀ	1 ノット=1 海里毎時=(1852/3600) m/s
P	-	ルa	$1 \text{ a=} 1 \text{ dam}^2 = 10^2 \text{m}^2$
$\sim$	クター	ル ha	$1 \text{ ha}=1 \text{ hm}^2=10^4 \text{m}^2$
バ	-	ル bar	1 bar=0. 1MPa=100kPa=1000hPa=10 <sup>5</sup> Pa
オン	/グストロー	ЬÅ	1 Å=0. 1nm=10 <sup>-10</sup> m
バ	-	ンb	$1 \text{ b}=100 \text{ fm}^2=10^{-28}\text{m}^2$

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

	名称		記号	SI 単位であらわされる数値			
I	ル	グ	erg	$1 \text{ erg}=10^{-7} \text{ J}$			
ダ	イ	ン	dyn	$1  \text{dyn} = 10^{-5} \text{N}$			
ポ	ア	ズ	Р	1 P=1 dyn ⋅ s/cm²=0. 1Pa ⋅ s			
ス	トーク	ス	St	1 St $=1$ cm <sup>2</sup> /s $=10^{-4}$ m <sup>2</sup> /s			
ガ	ウ	ス	G	1 G ≘10 <sup>-4</sup> T			
I,	ルステッ	ĸ	0e	1 Oe 🚊 (1000/4π) A/m			
7	クスウェ	ル	Mx	$1 \text{ Mx} = 10^{-8} \text{Wb}$			
ス	チル	ブ	sb	$1 \text{ sb} = 1 \text{ cd/cm}^2 = 10^4 \text{ cd/m}^2$			
朩		ト	ph	$1 \text{ ph}=10^4 \text{lx}$			
ガ		ル	Gal	1 Gal =1 cm/s <sup>2</sup> =10 <sup>-2</sup> m/s <sup>2</sup>			

	表10. 国際単位に属さないその他の単位の例								
	3	名称			記号	SI 単位であらわされる数値			
+	ユ	1	J	ĺ	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq			
$\mathcal{V}$	ン	ト	ゲ	ン	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$			
ラ				ド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy			
$\nu$				4	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv			
Х	線	肖	é	位		1X unit=1.002×10 <sup>-4</sup> nm			
ガ		ン		7	γ	$1 \gamma = 1 nT = 10^{-9}T$			
ジ	ヤン	ノス	キ	-	Jу	$1 \text{ Jy}=10^{-26} \text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{Hz}^{-1}$			
フ	エ	J	V	ы		1 fermi=1 fm=10 <sup>-15</sup> m			
メー	ートル	/系力	ラッ	ット		1 metric carat = 200 mg = $2 \times 10^{-4}$ kg			
ト				ル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa			
標	準	大	気	圧	atm	1 atm = 101 325 Pa			
力	$\Box$	1	J	_	cal				
Ξ	ク	t	1	ン	μ	$1 \mu = 1 \mu m = 10^{-6} m$			

この印刷物は再生紙を使用しています