

JAERI-Conf  
98-010



第3回NUCEFセミナー講演報文集  
1998年2月24日，東海研究所，東海村

1998年6月

第3回NUCEFセミナーワーキンググループ

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1998

編集兼発行 日本原子力研究所

第3回NUCEFセミナー講演報文集

1998年2月24日、東海研究所、東海村

日本原子力研究所東海研究所

第3回NUCEFセミナーワーキンググループ<sup>※</sup>

(1998年5月7日受理)

第3回NUCEFセミナーは、1998年2月24日原研東海研究所において開催された。本セミナーの目的は核燃料サイクルバックエンド諸分野の研究者が討論、情報交換を行ない、研究の効果的な推進、国内研究協力の推進に寄与する場を提供することである。本セミナーでは、NUCEFに関連する臨界安全、再処理及び廃棄物処理処分の研究分野に関して、1件の特別講演と12件の研究発表がなされ、原研内外の研究者によって討論された。本セミナーの参加者は、146名（うち原研外より75名）であった。本報文集はこれらの発表及び討論について、その概要をまとめたものである。

---

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

※ 松村 達郎<sup>1)</sup>、梅田 幹<sup>1)</sup>、曾野 浩樹<sup>1)</sup>、外池 幸太郎<sup>1)</sup>、津幡 靖宏<sup>1)</sup>、内山 軍蔵<sup>2)</sup>、田代 信介<sup>2)</sup>、  
安田 健一郎<sup>2)</sup>、山本 俊弘<sup>2)</sup>、伊奈川 潤<sup>3)</sup>、藤原 武<sup>3)</sup>、蔵本 賢一<sup>4)</sup>、中山 真一<sup>4)</sup>、山口 徹治<sup>4)</sup>

1) NUCEF試験部

2) 燃料サイクル安全工学部

3) 物質科学研究部

4) 環境安全研究部

Proceedings of the Third NUCEF Seminar  
24 Feb. 1998, JAERI, Tokai, Japan

Third NUCEF Seminar Working Group<sup>\*</sup>

Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 7, 1998)

The Third NUCEF Seminar was held at JAERI Tokai Establishment on 24 February 1998. This seminar was planned by researchers in JAERI for effective research promotion and cooperation, and researchers from both the inside and outside of JAERI presented one plenary session and 12 papers in the following three technical sessions: Criticality Safety, Reprocessing and Partitioning, and Radioactive Waste Management.

Keywords: NUCEF, Nuclear Fuel Cycle, Safety Research, Reprocessing, Partitioning, Criticality Safety, Radioactive Waste Management

---

<sup>\*</sup> Tatsuro MATSUMURA<sup>1)</sup>, Miki UMEDA<sup>1)</sup>, Hiroki SONO<sup>1)</sup>, Kotaro TONOIKE<sup>1)</sup>, Yasuhiro TSUBATA<sup>1)</sup>, Gunzo UCHIYAMA<sup>2)</sup>, Sinsuke TASHIRO<sup>2)</sup>, Kenichiro YASUDA<sup>2)</sup>, Toshihiro YAMAMOTO<sup>2)</sup>, Jun INAGAWA<sup>3)</sup>, Takeshi FUJIWARA<sup>3)</sup>, Ken-ichi KURAMOTO<sup>4)</sup>, Shinichi NAKAYAMA<sup>4)</sup> and Tetsuji YAMAGUCHI<sup>4)</sup>

<sup>1)</sup> Department of NUCEF Project

<sup>2)</sup> Department of Fuel Cycle Safety Research

<sup>3)</sup> Department of Materials Science

<sup>4)</sup> Department of Environmental Safety Research

## 目 次

1. 研究発表（臨界安全）	1
• STACY円筒及び平板炉心の反射体実験	3
菊池 司、三好慶典、外池幸太郎、曾野浩樹（原研）	
• 照射後試験解析におけるマイナーアクチニドとバーンナップクレジット	5
岩崎智彦、大沢哲哉、平川直弘（東北大）	
• TRACYの実験計画とこれまでの成果	7
小川和彦、中島 健、会澤栄寿、有嶋秀昭、森田俊夫、櫻庭耕一、 高橋 司、大野秋男（原研）	
• TRACYにおける溶液燃料臨界事故時ソースターム評価研究(1)	9
阿部 仁、田代信介、永井 斉、小池忠雄、岡川誠吾、村田幹生（原研）	
2. 研究発表（廃棄物処理処分）	13
• NUCFにおけるTRU核種の地層中移行評価に関する研究	15
田中忠夫、村岡 進（原研）	
• クオリティーの概要	17
芦田 敬（動燃）	
• 乾式再処理、乾式分離プロセスにおける廃棄物処理	19
西村友宏、小山正史、坂村義治（電力中央研究所）	
• 群分離TRU核種用固化体へのイットリア安定化ジルコニアの適用性に関する研究 －固化体の特性評価－	21
酒井悦郎（大阪大） 蔵本賢一、馬場恒孝（原研）	
3. 研究発表（再処理・群分離）	25
• f-元素の液体金属への還元抽出での系統性	27
山名 元、西川佐太郎、森山裕丈（京都大）	
• Am, Cmとランタノイド元素の分離法の検討	32
龍ヶ江良三、高田清史（石川島播磨重工） 渡邊雅之、森田泰治、久保田益充（原研）	
• X線及び低エネルギー $\gamma$ 線測定法によるアクチニド元素の定量	34
P. J. A. Howarth（原研－STAフェロー） 内山軍蔵、朝倉俊英、澤田 睦、萩谷弘通、藤根幸雄（原研）	

・アクチニド化学研究に新しい芽を捜して：大学共同利用研究施設の取り組み	36
<u>三頭聰明</u> 、塩川佳伸、原 光雄、鈴木吉光（東北大）	
4. 特別講演	
・核燃料サイクル技術の基盤研究を考えるにあたって	39
松本史朗（埼玉大学）	

## Contents

1. Technical Session (Criticality Safety) .....	1
· Reflector Experiments of STACY Cylindrical and Slab Core Tanks .....	3
<u>T. KIKUCHI</u> , Y. MIYOSHI, K. TONOIKE, H. SONO (JAERI)	
· Study on Burn-up Credit and Minor Actinide in Post-irradiation Analysis .....	5
<u>T. IWASAKI</u> , T. OHSAWA, N. HIRAKAWA (Tohoku University)	
· Experiment Program and Results of the TRACY .....	7
<u>K. OGAWA</u> , K. NAKAJIMA, E. AIZAWA, H. ARISHIMA, T. MORITA, K. SAKURABA, T. TAKAHASHI, A. OHNO (JAERI)	
· Study of Source Term Evaluation Released from Fuel Solution under Simulated Nuclear Criticality Accident in TRACY .....	9
<u>H. ABE</u> , S. TASHIRO, H. NAGAI, T. KOIKE, S. OKAGAWA, M. MURATA(JAERI)	
2. Technical Session (Radioactive Waste Management) .....	13
· Research on the Migration of TRU-nuclides through Sedimentary Layers, in NUCEF .....	15
<u>T. TANAKA</u> , S. MURAOKA (JAERI)	
· The Outline of QUALITY .....	17
<u>T. ASHIDA</u> (PNC)	
· Waste Form Development for Pyrometallurgical Processing .....	19
<u>T. NISHIMURA</u> , T. KOYAMA, Y. SAKAMURA (CRIEPI)	
· Application of Yttria-stabilized Zirconia (YSZ) Waste Form for Separated TRU Nuclides by Partitioning - Property Evaluation as Waste Form - .....	21
<u>E. SAKAI</u> (Osaka University) K. KURAMOTO, T. BANBA (JAERI)	
3. Technical Session (Reprocessing and Partitioning) .....	25
· Systematics of the Behavior of f-elements in their Reductive Extraction to Liquid Metal .....	27
<u>H. YAMANA</u> , S. NISHIKAWA, H. MORIYAMA (Kyoto University)	
· Separation Method of Am, Cm from Lanthanide Elements .....	32
<u>R. TATSUGAE</u> , K. TAKADA (IHI) M. WATANABE, Y. MORITA, M. KUBOTA (JAERI)	
· X-ray and Low Energy Gamma-ray Analysis of Actinide Bearing Solutions .....	34
<u>P.J.A. HOWARTH</u> (STA Fellow) G. UCHIYAMA, T. ASAKURA, M. SAWADA, H. HAGIYA, S. FUJINE (JAERI)	
· Search for New Seeds in Actinide Chemistry ; Trial in an Open Facility for Japanese University .....	36
<u>T. MITSUGASHIRA</u> , Y. SHIOKAWA, M. HARA, Y. SUZUKI (Tohoku University)	

4. Plenary Session ..... 39

- The Role of Research on Basic Technology in the Area of Nuclear Fuel Cycle  
Shiro MATSUMOTO (Saitama University)



# 1. 研究発表(臨界安全)

This is a blank page.

# STACY円筒及び平板炉心の反射体実験

## Reflector experiments of STACY cylindrical and slab core tanks

日本原子力研究所  
 Japan Atomic Energy Research Institute  
 菊池 司、三好慶典、外池幸太郎、曾野浩樹  
 T.Kikuchi Y.Miyoshi K.Tonoike H.Sono

A series of critical experiments devoted to reflector effects of structural materials have been performed at STACY from 1996 to 1997, employing a cylindrical and a slab core tanks. The structural materials such as ordinary and borated concretes and polyethylenes were arranged on the side wall of core tank. The critical heights and differential reactivity worth were measured by a digital reactivity meter. The reflector effect was determined from the difference of critical height between reference and objective cores. Calculations were also executed using a transport code TWOTRAN included in the SRAC95 system based on a evaluated nuclear data library JENDL-3.2.

1. はじめに STACYでは'95年に初臨界を達成した後、直径60cmの円筒炉心タンクを用い、基本体系(裸体系、水反射)での系統的な臨界データを入手した<sup>1),2)</sup>。その後、再処理施設の各種構造材が溶液燃料に及ぼす反射体効果に関する知見を得るため、'96年には同じ円筒炉心タンクを用いた反射体実験を実施した。'97年からは、炉心タンクを厚さ28cmの平板炉心タンク(幅69cm)に交換し、基本体系での実験と反射体実験を行っている。ここでは、'96-'97年に実施した反射体実験について報告する。なお、溶液燃料には、10%濃縮硝酸ウラニル水溶液を用いている。

2. 実験 円筒炉心では、炉心タンクの外周を取り囲む二重管式の容器に反射材を充填した反射体を使用した。また、平板炉心では、炉心タンクの厚さ方向の両面に平板型の反射体を設置した。反射材の種類は、普通コンクリート、ボロン入りコンクリート及びポリエチレンである。このうち、普通コンクリートとポリエチレンでは、反射材の厚さが異なるもの数種類を用いた(普通コンクリートで最大30cm、ポリエチレンで最大20cm)。また、ボロン入りコンクリートでは、ボロン濃度が異なるもの数種類を用いた(最大0.155g/cm<sup>3</sup>)。

実験では、約±10%の範囲の臨界液位近傍で溶液燃料の給排液操作を行い、液位と添加反応度を各々、触針式液位計とデジタル反応度計により測定した。さらに、この測定データ(液位Hと添加反応度ρのデータ・セット)を次式に当てはめたフィッティングを行い、臨界液位と液位微分反応度を求めた。

$$\rho = \left( \frac{\partial \rho}{\partial H} \right)_c \times (H - H_c) \dots \dots \dots (1)$$

ただし、 $H_c$  : 臨界液位、 $\left( \frac{\partial \rho}{\partial H} \right)_c$  : 臨界液位  $H_c$  での液位微分反応度

Table 1 Schedule of STACY experiments

Fiscal year	1996				1997				1998			
	4-6	7-9	10-12	1-3	4-6	7-9	10-12	1-3	4-6	7-9	10-12	1-3
Inspection			■					■				■
Test run	■				■				■			■
Experiment		■	■		■	■	■		■	■	■	
PIT/PIV			■			■					■	
Core tank	← 600φ →				← 280T →				← 800φ →			

■ : performed      ▨ : planned

3. 反射体効果 STACYでは、溶液燃料の液位を調整することにより、臨界を達成している。このような炉心では、修正一群拡散理論により、溶液燃料の液位と液位微分反応度の間に次式の関係が成り立つ。

$$\left(\frac{\partial \rho}{\partial H}\right) = \frac{C}{(H + \lambda)^3} \dots\dots\dots (2)$$

ただし、 $C$  : 換算係数  $\left[ = \frac{2\pi^2 M^2}{k_\infty} \right]$ 、 $\lambda$  : 高さ方向の外挿距離

実験では、反射体効果は、基準体系と反射条件を変更した体系の臨界液位間で(2)式を積分することにより求めた(液位差法)。ここで、基準体系は、普通コンクリートとポリエチレンでは裸体系であり、ボロン入りコンクリートでは普通コンクリートである。

4. 解析 反射体効果の解析では、基準体系の臨界状態の中性子実効増倍率 $k_0$ と、液位を一定として反射条件を変更した体系の中性子実効増倍率 $k_1$ を計算し、次式で反応度効果を評価した。

$$\rho = \frac{1}{k_0} - \frac{1}{k_1} \dots\dots\dots (3)$$

中性子実効増倍率は、SRAC95 システムの二次元 Sn 輸送計算コード TWOTRAN で計算した。計算体系は、円筒炉心では径方向と高さ方向の R-Z 体系、平板炉心では厚さ方向と高さ方向の X-Z 体系である。なお、平板炉心での幅(Y)方向の中性子の漏れは、予備的な X-Y 体系の計算結果から外挿距離を評価し、バックリングで考慮した。

円筒炉心の普通コンクリートとポリエチレンの反射体効果に関し、液位差法による実験結果と解析結果の比較を Fig.1 に示す。図に示されているように、解析結果は実験結果に対して、約 0.2%  $\Delta k/k$  だけ過大評価となっている。この原因として、反射体効果の基準としている裸体系の炉心で、周辺構造物からの中性子反射の影響が生じていることが考えられる。

5. 今後の計画 STACY では'98 年度前半まで平板炉心タンクの実験を継続し、片側反射体、非対称両側反射体での実験を行う。また、ウラン濃度を更に希釈して、基本体系での臨界データを追加する。その後、炉心タンクを直径 80cm の円筒炉心とした実験に移行する。

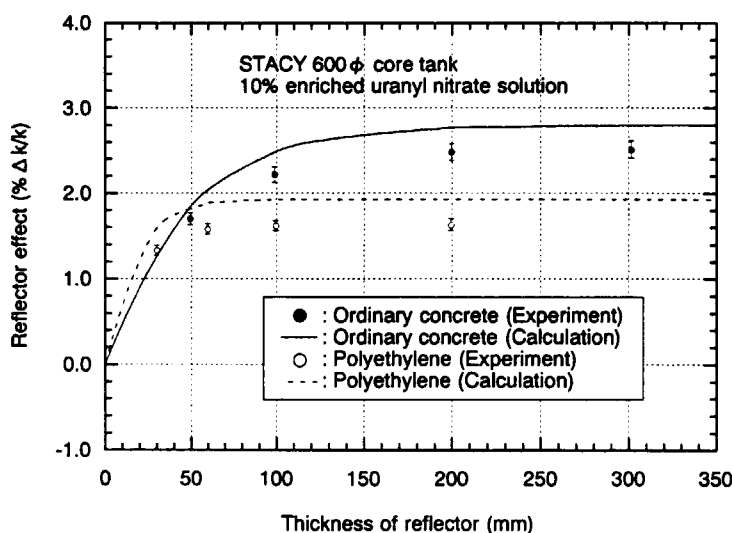


Figure 1 Reflector effects of ordinary concrete and polyethylene

- 1) 三好慶典、"STACY の成果と今後の計画、" JAERI-Conf 96-013 57 (1996)
- 2) Y.Miyoshi et al., "Critical Experiments on 10% Enriched Uranyl Nitrate Solution Using a 60-cm-Diameter Cylindrical Core," Nucl. Technol. Vol.118, 69 (1997)

# 照射後試験解析における マイナーアクチニドとバーンナップクレジット Study on Burn-up Credit and Minor Actinide in Post-Irradiation Analysis

東北大学 工学部 量子エネルギー工学科  
Department of Quantum Science and Energy Engineering, Tohoku University  
岩崎 智彦, 大沢 哲哉, 平川 直弘  
Tomohiko Iwasaki, Tetsuya Ohsawa, Naohiro Hirakawa

Accuracy of burnup calculation for actinide is very important as to the study of burn-up credit. For minor-actinides such as Am243 and Cm244, however, typical burnup calculation codes are not accurate enough. The accuracy for both nuclides was studied by using the SWAT code. The study showed that the C/E values of both nuclides could be improved at the same time by changing the cross section of Pu242. A study of burnup calculation related to the cross section of Pu242 should be performed to improve the accuracy for both nuclides.

## はじめに

一般に、核分裂生成物の蓄積と U235 の減損により与えられるバーンナップクレジットが定量的にどの程度の値を取るかは、Pu239 等の新たな核分裂性核種による正の反応度効果及び中性子吸収材であるマイナーアクチニドの負の反応度効果を適切に評価した上で決定される必要があり、それらの核種の生成量計算精度がバーンナップクレジット上極めて重要となる。アクチニドの燃焼チェーンには数多くの核分裂性核種と非核分裂性核種が交互に出現することから、マイナーアクチニドの生成量の計算精度もプルトニウムと同程度に重要であると言える。バーンナップクレジットのためには、マイナーアクチニドの生成消滅が正確に計算できていなければならない。

## マイナーアクチニド生成量の計算精度の現状

燃焼計算の計算精度を評価するためには、何らかの実験値との比較が必要である。いくつかの照射後試験データ<sup>1)</sup>が公開されているが、関西電力美浜 3 号機で照射され、日本原子力研究所で分析されて得られた照射後試験データ<sup>2)</sup>は、広い燃焼度範囲をカバーしていること(6900 MWd/t~34100 MWd/t)、25 核種についての分析がなされていること(アクチニド:U-235~Cm-244)、典型的な PWR 15X15 型燃料であること、詳細な燃焼履歴が公開されていることから、マイナーアクチニドの計算精度を評価する上では最適なものの一つである。Fig.1 に、この照射後試験データに対する SRAC-FPGS<sup>3)</sup>並びに SWAT<sup>4)</sup>による解析結果の C/E 値を示す。この値は、分析された全 8 サンプルに対する平均の C/E である。この図から、U 及び Pu 同位体に対しては Pu238 をのぞき、1 に近い C/E 値が与えられており、ほぼ満足される計算精度があると考えられる。しかし、高次マイナーアクチニドである Am-243 及び Cm-244 についてみると、両者とも 0.5 から 0.7 程度の C/E 値となっている。高次アクチニドに対する計算精度の現状は、十分なものであるとは言い難い。さらに、高次アクチニドの C/E 値の過小評価は、他の計算コード及び他の照射後試験解析の結果に共通して見られる問題である<sup>5)</sup>。そこで、本研究では、SWAT コードを用いて、二つの点から高次アクチニド生成量計算精度の向上に関する検討を実施した。

## 高次マイナーアクチニド生成量への 燃焼計算入力パラメータの近似の影響

詳細な燃焼チェーンが考慮可能なコードにおいては、断面積縮約のためのスペクトル計算時に単ピン円筒近似が用いられる。このため、その計算の際には集合体内の水棒の存在を考慮するための実効冷却材半径の設定が必要となり、その設定に曖昧さが入る。さらに、燃料温度や冷却水温度密度等の様にスペクトル計算及びその後の燃焼解析に必要となる入力パラメータにも、曖昧さが入る

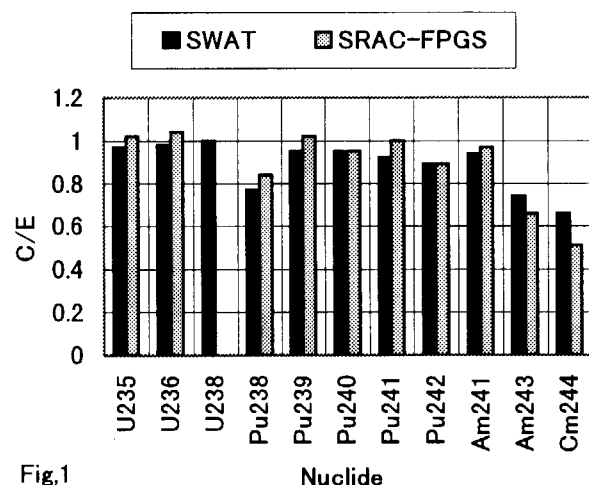


Fig.1

ものが存在する。このような曖昧さが存在するパラメータが、高次アクチニドに対してどのような影響を持つかを評価した。評価においては、各パラメータのみを変化させ、そのパラメータの高次アクチニド生成量の変化を求めた。その結果、現実的な変化量範囲では、近似単ピンセル計算の実効的な冷却材半径のみが有意な感度を有することがわかった。結果を Fig.2 に示す。この図は、3つのサンプル(サンプル 1: 6900 MWd/t, サンプル 3: 21200 MWd/t, サンプル 8: 34100 MWd/t)に対する冷却水半径対 Pu239 と Cm244 の生成量の C/E の図である。この図から

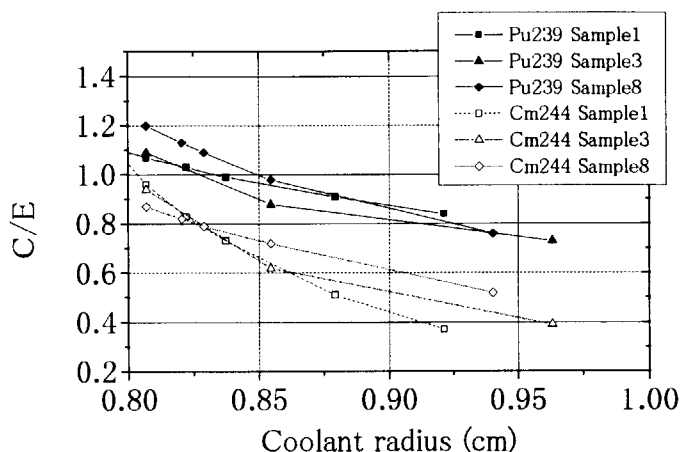


Fig.2

Pu239 生成量の C/E が 1 となる冷却材半径では、Cm244 の C/E は 1 より大幅に小さい値を取り、冷却材半径の設定では Cm244 等の高次アクチニドの生成量の C/E の改善は得られないことが分かる。

### 高次マイナーアクチニド生成量に対する Pu242 の捕獲断面積の影響

Pu242 の捕獲断面積には、2.67eV に極めて大きな共鳴(ピーク断面積  $\sigma_1$ : 約  $10^5$  barn)が存在する。この共鳴に対する共鳴パラメータを Table 1 に示した。

Table 1 Pu242 の共鳴パラメータ

Library	$E_1$ (eV)	$\Gamma_1$ (eV)	$\Gamma_n$ (eV)	$\Gamma_\gamma$ (eV)	$\Gamma_f$ (eV)	$\sigma_1$ - relative
JENDL3.2	2.67	0.027	0.002	0.025	2.0E-6	1.0
ENDF/B-VI	2.67	0.0243	0.0023	0.022	0.0	1.26

二つの評価値間にピーク断面積、共鳴幅で大きな差が見られ、Pu242 に対する断面積データは十分でないことが分かる。この観点を踏まえ、さらに、Fig.1 から、Pu239 から Pu242 及び Am241 の C/E 値はほぼ 1.0 であるのに対して、Pu242 からのチェーン上の Am243 及び Cm244 の C/E が 1 より大きく離れていることから、Pu242 の捕獲断面積を変えて Pu242 自身、Am243 及び Cm244 の生成量の変化を検討した。検討結果として、Pu242 捕獲断面積を変化させたときの C/E の変化をサンプル 1, 3, 8 に対して Table 2 に示す。このときの Pu242 の捕獲断面積に、6900MWd/t の燃焼度のサンプル 1 に対しては全期間断面積を標準断面積(通常計算値)の 1.8 倍に、21200MWd/t のサンプル 3 に対しては 17500MWd/t まで 1.8 倍それ以後標準値に戻す、そして 34100MWd/t のサンプル 8 に対しては 21500MWd/t まで 1.8 倍その後標準値に戻す、変化を加えている。大幅な燃焼初期の断面積増加は、ENDF/B-VI に見られる大幅な断面積値の可能性を、燃焼中の断面積変化は共鳴の自己遮蔽の変化の可能性を模擬したものである。

Table 2 Pu242, Am243 及び Cm244 生成量の C/E

Sample No. (Exposure)	Pu242 cross section	Pu242	Am243	Cm244
1 (6900MWd/t)	standard	0.92	0.55	-
	x1.8	0.90	0.96	-
3 (21200MWd/t)	standard	0.90	0.81	0.62
	x1.8 -> (17500MWd/t) standard	0.86	1.05	0.95
8 (34100MWd/t)	standard	0.90	0.94	0.72
	x1.8 -> (21500MWd/t) standard	0.87	1.02	0.91

Table 2 から、Pu242 の捕獲断面積の増加により、Pu242 自身の生成量は変化せずに、Am243 と Cm244 の C/E が同時にほぼ 1.0 に近い値となっている事が分かる。ここで設定した Pu242 の断面積の変化量や燃焼中の変化の仕方自体に意味があるものではないが、Pu242 の断面積の点から高次アクチニドの計算精度を大幅にそして同時に向上させることが可能であることが示されたと考えられる。

### 終わりに

本研究により、現在 Am243 と Cm244 の燃焼計算精度に問題があることそしてその向上手段として Pu242 の断面積に対する検討が重要となることを示した。

参考文献 <sup>1)</sup> Y.Naito JAERI-M93-061 <sup>2)</sup> 化学部 JAERI-M91-010 <sup>3)</sup> Y.Nakahara Radiochemical Acta 50,141 (1990) <sup>4)</sup> K.Suyama J.Nucl.Sci.Technol.,31,596(1994) <sup>5)</sup> K.Suyama private communication (1997)

## TRACY の実験計画とこれまでの成果

## Experiment Program and Results of the TRACY

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

小川 和彦、中島 健、會澤 栄寿、有嶋 秀昭、森田 俊夫、櫻庭 耕一、高橋 司、大野 秋男

K.OGAWA, K.NAKAJIMA, E.AIZAWA, H.ARISHIMA, T.MORITA, K.SAKURABA, T.TAKAHASHI, A.OHNO

JAERI started supercritical experiments with low enriched uranium nitrate solution with the TRACY in NUCEF. The purpose of the TRACY is to obtain the data on a postulated critical accident phenomena such as power, total number of fissions. In a supercritical experiment, excess reactivity can be inserted by withdrawal of a transient rod or continuous feed of the solution fuel. The TRACY carried out 77 runs including 26 supercritical experiments by the end of 1997. In the transient experiment with reactivity insertion of about 3\$, the peak power and the maximum pressure of the core were obtained 1020MW and 0.50MPa, respectively.

**1. はじめに** 過渡臨界実験装置(TRACY)は、再処理施設の安全評価において想定される臨界事故を模擬するために、硝酸ウラニル水溶液を用いた超臨界実験を行う装置である。実験では、超臨界時に発生する出力、エネルギー、圧力、温度、放射線分解ガスを測定することにより、臨界事故時の核・熱・流体挙動を解明し、全核分裂数及び反応度フィードバック機構を評価することを目的としている。また、炉心からベント系への放射性物質移行量を測定し、臨界事故時の環境への影響評価を行っている。昨年までは、基本的な炉特性及び炉心に約 1.8 ドルまでの反応度を添加した時の過渡特性を調べてきた。その後、新たに約 3 ドルまで添加することができる調整トランジェント棒に交換し、過渡特性を測定した。

**2. 装置** TRACY は直径 50cm の炉心タンクに 10wt%濃縮の硝酸ウラニル水溶液を給液して炉心を構成する。反応度の制御は、定出力時は溶液燃料液位の変化により行い、超臨界時は調整トランジェント棒の急速引抜き(パルス引抜き)・定速引抜き(ランプ引抜き)又は燃料給液(ランプ給液)により行う。

**3. これまでの成果** TRACY では、これまでに 26 回の過渡運転を含む 77 回の運転を行った。定出力特性試験では、超臨界実験で必要とされる炉心の反応度特性(液位反応度、調整トランジェント棒反応度係数、温度反応度係数、動特性パラメータ  $\beta_{eff}/l$ ) の測定及び炉出力の較正を行なった。過渡出力特性試験では、反応度の添加方法、添加率及び添加量(添加反応度)をパラメータとして、出力、炉心内圧力、温度等を測定した。図 1 に、添加反応度を変えてパルス引抜きした時の出力及び炉心内圧力履歴を示す。横軸は調整トランジェント棒引抜き開始からの経過時間である。添加反応度が大きいほど、出力及び炉心内圧力のピーク値は大きくなった。これまでの結果では、添加反応度に依らず、炉心内圧力は出力がピークに達する前に上昇を開始している。その約 4ms 後に出力はピークに達している。この圧力の上昇はバブルの生成によるもので、バブルによる負の反応度フィードバック効果が出力の急激な降下を引き起こしたと考えられる。図 2 に、測定した逆炉周期  $\omega$  に対するピーク出力及びピーク圧力の測定値を示す。Nordheim-Fuchs モデル( $N_p \propto \omega^2$ )によるピーク出力  $N_p$  の評価結果は、 $\omega$  が  $150s^{-1}$ (添加反応度 1.8 ドル)以上では過大評価となっている。 $\omega$  が  $150s^{-1}$  以上では、ピーク圧力は、ピーク出力にほぼ比例していることが分かる。図 3 に、ランプ給液時の出力及び炉心平均温度の時間変化を示す。出力は周期約 20 秒で振動している。この出力振動は、放射線分解ガスの生成・成長・離脱の繰り返しにより生じている。各ピーク出力は、温度上昇に伴い、小さくなっていく。これは、炉心に添加された反応度が、温度上昇による負の反応度のフィードバックに伴い、減少するためである。このように、低濃縮硝酸ウラニル水溶液体系の過渡出力挙動は、放射線分解ガスバブルと温度で支配されることが分かった。今後は、ガスバブルの挙動及び溶液の温度分布を把握し、反応度フィードバック機構を解明する予定である。

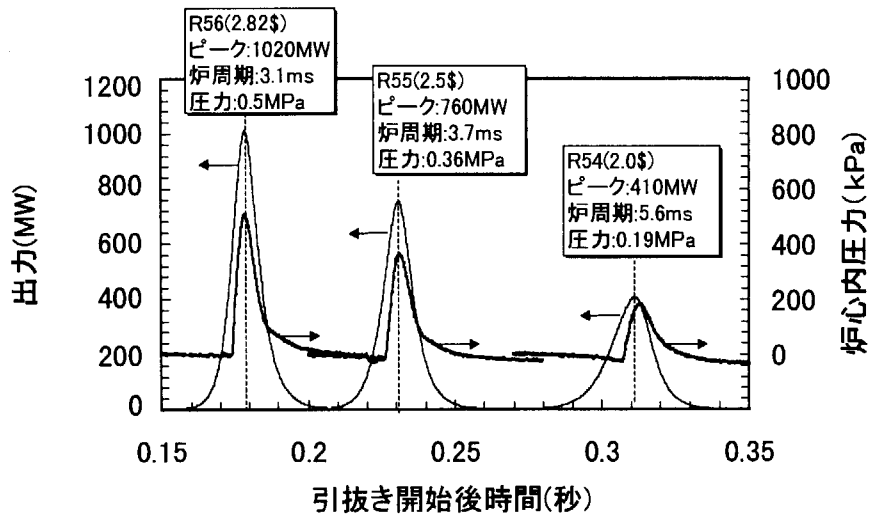


図1 出力と炉心内圧力 (パルス引抜き)

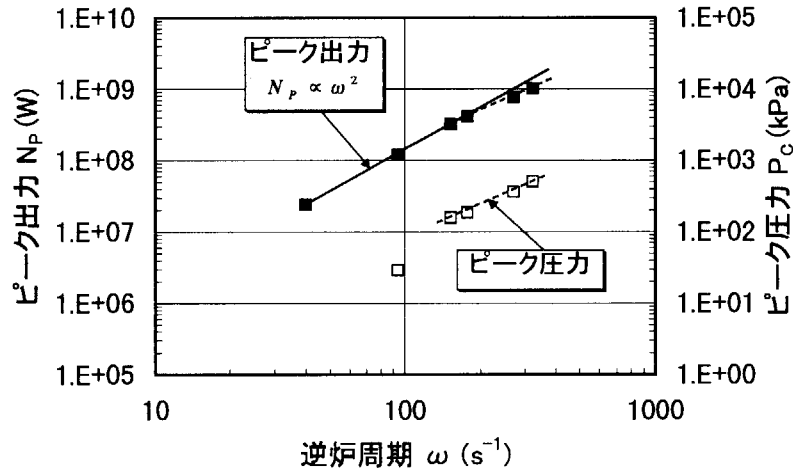


図2 ピーク出力とピーク圧力 (パルス引抜き)

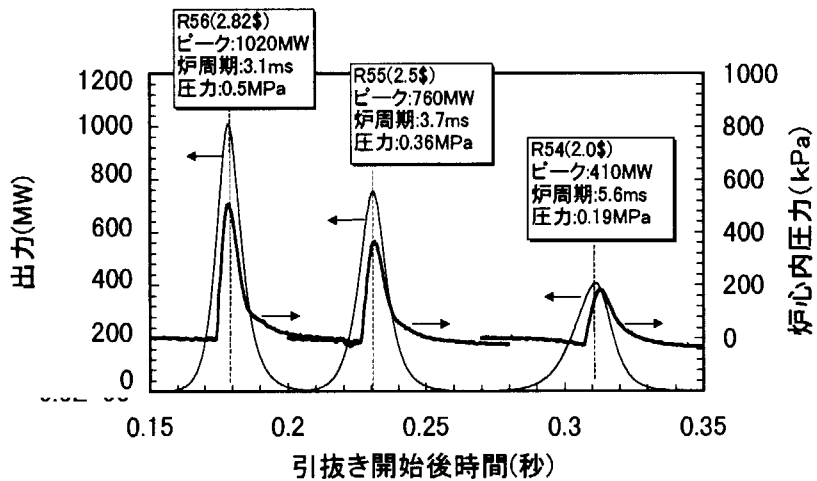


図3 出力振動と炉心平均温度 (ランプ給液)



# TRACY における溶液燃料臨界事故時ソースターム評価研究( I ) Study of source term evaluation released from fuel solution under simulated nuclear criticality accident in TRACY

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

阿部 仁、田代信介、永井 齊、小池忠雄、岡川誠吾、村田幹生

Hitoshi ABE, Shinsuke TASHIRO, Hitoshi NAGAI, Tadao KOIKE, Seigo OKAGAWA, Mikio MURATA

To verify radioactive gases (iodine and noble gases), radioactive aerosols and radiolysis gases (H<sub>2</sub> and NO<sub>x</sub>) will be confined in a ventilation system of fuel reprocessing plant undergoing criticality accident, data concerning the release and transport of these compounds will be acquired during simulation experiments in TRACY. In this report, a perspective of the study and experimental results obtained under the different reactivity conditions will be presented.

1. 緒言 再処理工程の異常な過渡変化を越える事象の一つとして想定されている溶解槽の臨界事故時には、溶液燃料中の放射性物質が気相中へ放出されるとともに槽ベント系へと移行していくことが予想される。このような臨界事故時においても槽ベント系の安全性能が維持できることを実証するため、TRACYを用いて放射性物質の放出機構及び移行機構を溶液条件や核的出力と関連づけて研究している。本研究では、溶液燃料臨界事故時の気相への放出ソースタームとして、放射性ヨウ素及び希ガス、非揮発性核種を含有したエアロゾル(ミスト)、そして放射線分解ガス(水素・NO<sub>x</sub>)に着目し、それぞれの放出・移行挙動を観察している。これまで反応度添加量及び反応度添加条件を変化させた3実験を実施した。本報告はこれら実験で得られた結果及び考察に関するものである。

## 2. 実験

2.1 実験装置 Figure 1 に TRACY 炉心タンク及びベントガス配管系に設置された各種サンプリング装置・ガス分析装置の概要を示す。炉心タンク及びベントガス配管系には、ミスト・ヨウ素サンプリング装置(Mst)、エアロゾルヨウ素濃度サンプリング装置(M)、エアロゾル粒子径分布サンプリング装置(C)、さらにガス測定装置(G)(水素、NO<sub>x</sub>、希ガス測定装置)が設置されている。

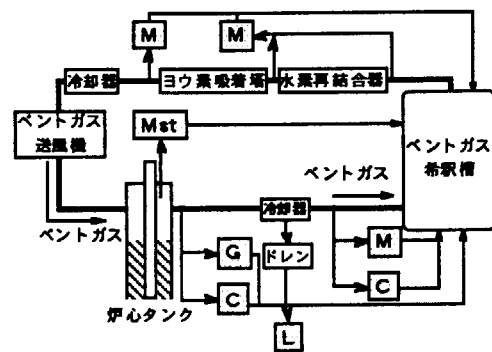


Figure 1 TRACY ベントガス配管系の概要

2.2 実験条件 Table 1 に実験条件を比較して示す。R75 ではランプ引抜モードで反応度を付加するとともに過渡臨界後の制御棒挿入のタイミングを他の2実験よりも遅らせた。その結果、R35及びR69での炉出力ピークは実質的に非常に鋭敏な第1ピーク(半値幅：数十ミリ秒)のみが観察されたのに対して、R75での炉出力値は幾つかのピークをを繰り返しながら約120秒間計測された。

Table 1 実験条件の比較

No.	付加反応度(\$)	全核分裂数(-)	反応度付加モード
R35	1.8	$2.5 \times 10^{17}$	パルス引抜
R69	2.9	$4.7 \times 10^{17}$	パルス引抜
R75	2.9	$6.2 \times 10^{17}$	ランプ引抜

### 3. 実験結果及び考察

3.1 放射線分解ガスの放出挙動 3 実験のいずれの場合でもベントガス中の水素ガス濃度は過渡臨界直後に最大となり、それ以降時間の経過とともにほぼ指数関数的に減少していった。その最大値は R35 で約 40,000 (ppm)、R69 で約 9,000 (ppm)、そして R75 で約 14,000 (ppm)であった。R69では、R35 と比べてより大きな反応度付加量が R75 と比べて非常に短時間に溶液に加えられた。溶液中では水素以外に OH ラジカル等様々な放射線分解生成物が生じる。水素ガスの生成は、水素ラジカル同士の結合と水素ラジカルと OH ラジカル等のキャプチャーとの結合の競争反応である。ここで得られた実験データを解釈するためには、溶液中で生じるこれら複雑な化学反応を総合的に評価、検討する必要があると考えられる。

3.2 放射性エアロゾルの放出挙動 ミストサンプラで捕集されたエアロゾル状物質は、核分裂によって溶液中に生成し気相中に放出された  $^{140}\text{Xe}$  の気相中での崩壊による  $^{140}\text{Ba}$ - $^{140}\text{La}$  が主であった。Figure 2 に R35 で得られた炉心タンク気相中の  $^{140}\text{Ba}$  濃度の経時変化を示す。 $^{140}\text{Ba}$  濃度は過渡臨界直後に最大となり、その後ほぼ指数関数的に減少した。

3.3 放射性ヨウ素( $^{131}\text{I}$ )の放出挙動  $^{131}\text{I}$  は、過渡臨界後数分から数十分程度の時間遅れを経てから気相中に放出された。ヨウ素の化学形はいずれの実験においても、95%以上が有機ヨウ素であった。Figure 3 に炉心タンク気相中の  $^{131}\text{I}$  濃度の経時変化を示す。全核分裂数が多いほど  $^{131}\text{I}$  濃度は高かった。R75 と R35 を比較すると、全核分裂数は約 2.5 倍多くなっているのに対して、 $^{131}\text{I}$  濃度は約 400 倍高くなっている。これは R75 での  $^{131}\text{I}$  の溶液から気相への放出割合が R35 での値に比べて大きかったことを意味している。そこで、 $^{131}\text{I}$  の溶液中から気相への放出係数  $\xi$  (1/s) とベントガスによる TRACY 炉心タンク気相内の換気効果を表す希釈係数  $\psi$  (1/s) を導入し  $^{131}\text{I}$  の気相への放出率を評価した。 $^{131}\text{I}$  の気相への放出率は以下のように定義した。

$$\text{過渡臨界後の時刻 } t \text{ における } ^{131}\text{I} \text{ の放出率} = \frac{\text{時刻 } t \text{ までに気相中に放出された全 } ^{131}\text{I} \text{ 個数}}{\text{時刻 } t \text{ までに溶液中に生成した全 } ^{131}\text{I} \text{ 個数}}$$

希釈係数  $\psi$  に関しては、TRACY 炉心と同じディメンジョンを有する模擬装置を作成し実験的に測定した。 $^{131}\text{I}$  を含む崩壊系列に属する各核種個数の時間変化を表す微分方程式を連立して解き、炉心タンク内気相中の  $^{131}\text{I}$  濃度を計算する。この様に計算した値と Figure 3 に示した実験値を比較し、 $^{131}\text{I}$  の放出係数  $\xi$  を推定するとともに上記放出率を算出した。その結果、R35 での  $^{131}\text{I}$  の放出率は時間とともに増加し、過渡臨界から 4 時間半後での値は約  $9 \times 10^{-4}$  (%) であった。

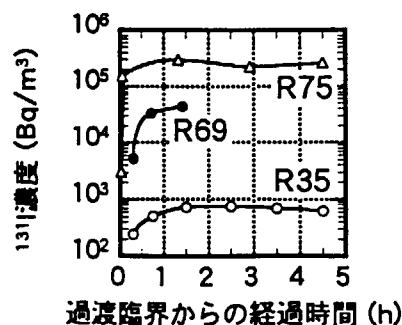
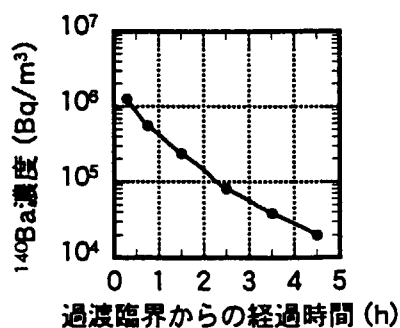


Figure 2 炉心タンク内気相中の $^{140}\text{Ba}$ 濃度

Figure 3 炉心タンク内気相中の $^{131}\text{I}$ 濃度

\* 本報告は科学技術庁からの受託研究「再処理施設臨界安全性実証試験」での研究成果の一部である。

研究発表における質疑応答の概要(臨界安全)

(1) STACY 円筒及び平板炉心の反射体実験

Q: 2.5cm厚の水反射体についての実験計画はないか。

A: ポリエチレンについては厚さを変えて行っている。ポリエチレンの反射体効果は水に近い。水は冠水以外は不可能である。

Q: タンクのステンレスの厚さの影響が大きい。変える予定はあるか。

A: ない。

Q: コンクリートの分析はどのように行っているのか。コンクリート内では水の割合は均質か。

A: 分析は製造時とその後随時行っている。均質かどうかは判断するのは難しい。

(2) 照射後試験解析におけるマイナーアクチノイドとバーンナップクレジット

Q: 断面積をENDF/B-VIに置き換えると結果はどう変わるか。

A: 差はほとんどない。

Q: BWRについてやっているか。

A: BWRは燃焼履歴が難しい。まずPWRを解決するのが先である。

Q: 高次のMA一つ一つについてもっと詳細に詰めていってほしい。

A: 各MAの実効増倍率への感度を求めるのは簡単であるが、高次のMAの予測精度の原因を調べるのは難しい。

(3) TRACYの実験計画とこれまでの成果

Q: ピーク出力測定の精度や時間分解能は充分か。

A: 検出器出力の比例性については定常時に調べている。時間分解能は現在の反応度では充分である。

Q: 実験解析は行っているか。

A: 現在実施中である。

Q: 1.8ドルと3ドルのときのフィードバック時間遅れなどの違いは何か。

A: 特にない。

(4) TRACYにおける溶液燃料臨界事故時ソースターム評価研究(I)

Q: 反応度の低いほうで水素ガスが多く発生していることの説明が出来るか。再測定の予定はあるか。

A: 化学反応モデルを作成中である。これにより定性的な評価ができるものと思う。

Q: 液相から気相への移行率 $\Psi$ に過渡臨界時の液面の上下の影響は考えているか。

A: 考えていない。

Q: 希ガスについて測定するか。

A: 希ガスの放出率は100%としている。希ガスにはヨウ素の機構が使える。 $^{140}\text{Xe}$ については今後測る。

Q: 水素はなぜ減衰するか。炉出力のピークと水素のピークの時間遅れはどうか。

A: 水素濃度は $\Psi$ で決まる。時間遅れについては途中のdead volumeがあるので難しい。

This is a blank page.

## 2. 研究発表(廃棄物処理処分)

This is a blank page.

## NUCEFにおけるTRU核種の地層中移行評価に関する研究

### Research on The Migration of TRU-nuclides through Sedimentary Layers, in NUCEF

日本原子力研究所 環境安全研究部  
Department of Environmental Safety Research,  
Japan Atomic Energy Research Institute

田中忠夫, 村岡 進  
Tadao TANAKA and Susumu MURAOKA

Adsorption and migration experiments of  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  onto sedimentary materials had been performed by a batch and a column method, to obtain distribution coefficients and to examine adsorption mechanisms. Adsorption mechanisms of the TRU-nuclides are dominated by both reversible and irreversible reactions. Migration of the TRU-nuclides is affected by adsorption mechanisms and colloid formations with humic substances.

#### 【はじめに】

我が国では、現在建設中の大型再処理施設の運転、回収したプルトニウムの利用、海外に委託している使用済燃料の再処理に伴って発生する低（中）レベル放射性廃棄物が返還される可能性など、TRU核種を含む廃棄物の発生量が今後増大するものと考えられる。一方、原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会から発表された「TRU核種を含む放射性廃棄物の処理処分について」においては、再処理施設やMOX燃料加工施設から発生する“TRU核種を含む廃棄物”についても、 $\alpha$ 放射能濃度が区分目安値（1GBq/t）よりも低く且つ $\beta$ 、 $\gamma$ 核種の放射能濃度も比較的低いものは浅地層への処分が可能であるとしている。

TRU核種を含む廃棄物には、ネプツニウム、プルトニウム、アメリシウムなど、半減期が長く生態への毒性が強い $\alpha$ 線を放出するアクチニドが高い割合で含まれている。また、安全評価上問題となる $^{129}\text{I}$ や $^{14}\text{C}$ などの低吸着性元素が含まれる、廃棄物の形態が雑多であるなど、原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物及び再処理後の高レベル放射性廃棄物とは異なった特性を持っている。

日本原子力研究所では燃料サイクル安全工学研究施設（NUCEF）において、TRU核種を含む廃棄物を土壌及び堆積岩からなる比較的浅い地層に処分する場合を想定して、埋設濃度上限値の設定並びに安全評価手法の高度化に寄与することを目指した基礎的研究から実証的試験にまで及ぶ広範囲な試験研究を進めている。

#### 【吸着移行特性試験】

TRU核種のバッチ法吸着実験及びカラム法移行実験による吸着・移行データの取得、主要な吸着・移行メカニズムの抽出並びに主たる移行化学形態の同定を行うとともに、実験結果に基づき信頼性の高い吸着・移行モデルの構築を図ることを目的としており、本研究の中心となる試験項目である。

バッチ実験では、浅地層土壌（海岸砂、クロボク土、凝灰質砂、黄色土、赤色土）及び堆積岩（砂岩、凝灰岩）を対象として、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の吸着及び脱離実験を実施し、分配係数を測定するとともに吸着メカニズムについて検討した。 $^{238}\text{Pu}$ と $^{241}\text{Am}$ の分配係数は $^{237}\text{Np}$ に比べ2桁ほど大きく、また脱離過程における分配係数は吸着過程から得られる値より大きいことが分かった。逐次抽出操作により吸着メカニズムを検討した結

果、分配係数が小さな $^{237}\text{Np}$ の吸着はCaイオンと交換可能な可逆的な吸着メカニズムを主とするが、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の吸着は鉄及びマンガンの水酸化・酸化物との化学結合並びに固定といった非可逆的な吸着メカニズムが支配的であり、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の移行は天然バリアによる大きな移行抑止作用を受けることを明らかにした。

カラム実験では、浅地層土壌（海岸砂、赤色土）を充填したカラムへ $^{237}\text{Np}$ 及び $^{241}\text{Am}$ 水溶液を注入する移行実験を実施し、 $^{237}\text{Np}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の移行挙動について検討した。カラム流出液とカラム内における $^{237}\text{Np}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の分布傾向を調べた結果、 $^{237}\text{Np}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の移行には水とほぼ同じ速度でカラム間隙中を移行するコロイド状化学種の存在が観察され、コロイドの挙動解明の必要性が指摘された。

### 【基礎的研究】

吸着移行特性試験で見出された吸着メカニズム、コロイドの挙動などに関する知見の基盤として、TRU核種がどのような化学形態で、どんなサイトと、どのように反応しているのかといった鉱物/地下水界面における微視的な吸着状態の解明（東大との協力研究）や、環境中に存在する腐植酸（フミン酸やフルボ酸）との錯形成などによるTRU核種のコロイド形成能及びコロイドの多孔質媒体中における移行現象の解明（近大及び東大との共同研究を含む）などの基礎的研究を実施している。

腐植酸に関しては、土壌に対する $^{237}\text{Np}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の分配係数に及ぼす共存フミン酸濃度の影響をバッチ実験で明らかにするとともに、共存フミン酸濃度の影響を定量的に記述するための吸着モデルを提案した。実験結果との比較から、 $^{237}\text{Np}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の分配係数は、液相中での錯形成の他、フミン酸錯体の吸着による分配係数の増加並びにフミン酸の吸着によって生じる土壌表面の電荷密度及び吸着サイトの増減などに伴う分配係数の変動を考慮した吸着平衡式で記述できることを示した。

### 【大型カラム試験】

従来の評価で用いられている吸着・移行モデルや上述の実験から提案されたモデルの検証、並びに環境条件により近い条件で信頼性の高い移行パラメータの取得を目的として実施している。現在、未攪乱状態で採取したの20cmφの土壌カラム用いて、 $^{237}\text{Np}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の拡散・移行試験を進めている。

### 【おわりに】

現在の地層処分の安全評価においては、放射性核種の地層中移行を定量的に評価するため、地質媒体/地下水間で生じる全ての反応が一定の平衡定数の下で瞬時に成り立つことを仮定した反応、すなわち分配係数で記述される反応が多くで採用されている。したがって、分配係数を採用した移行評価モデルが、水溶液中で多様な化学形態で存在するTRU核種の移行評価に妥当なモデルであるか否かを確認するとともに、必要に応じより信頼性の高い吸着モデルや移行モデルを提案にすることは重要な研究課題の一つである。しかし、現在の安全評価における放射性核種の移行現象が分配係数を用いて評価されている以上、TRU核種の移行を信頼性高く評価するための分配係数の取得手法、選定方法を確立することも重要な検討課題である。したがって、本質的な面からより現実的な吸着・移行モデルの構築を図る研究と、従来のモデルの適用に際して評価結果に十分な信頼性を与えられる分配係数の定義の確立を図る研究との両面からの取り組みが今後必要であると考えられる。



## クオリティーの概要 The outline of QUALITY

動力炉・核燃料開発事業団  
POWER REACTOR & NUCLEAR FUEL DEVELOPMENT CORPORATION

芦田 敬  
ASHIDA Takashi

In order to investigate the radionuclide migration behavior under anaerobic condition, the construction of QUALITY (Quantitative Assessment Radionuclide Migration Experimental Facility) was started at Jan.22th, 1998.

This facility contains atmosphere controlled glove boxes to obtain an basic data of radionuclide migration in engineered barrier materials and rocks at laboratory scale. The analysis equipments are also setting up such as LPAS, X-ray diffraction analysis, GC-MS, ICP-MS.

The planning experiments in this facility are as follows,

- (1) radionuclides solubility experiment in groundwater,
- (2) sorption and diffusion experiments in engineered barrier materials,
- (3) migration experiments in rocks.

The operation of this facility is going to start at August, 1999.

### 1. 施設の目的

高レベル放射性廃棄物の処分対策は、国民的な喫緊の課題として研究が進められている。

国の方針に基づき、動燃事業団は2000年前までに高レベル放射性廃棄物の地層処分に関する研究開発の成果のとりまとめ（第2次とりまとめ）を行い、国へ報告することとなっている。地層処分放射化学研究施設（略称クオリティー）は、第2次とりまとめにおいて地下深部の環境である還元環境下でのデータ取得のために低酸素不活性雰囲気中で試験を実施し放射性物質の移行に関するデータを取得するための重要な施設として位置づけられ、平成11年度に試験開始を行うこととしている。

本施設は、次に示す研究開発を行うことを目的としている。

- (1) 放射性廃棄物の処分に関する研究開発
- (2) 上記研究開発に関する分析業務及び分析方法の開発

### 2. 施設の概要

本施設は、低酸素不活性雰囲気下で放射性同位元素（26核種）を用いて核種の化学特性や移行特性等基礎データを実験室レベルで取得するためのホットの研究施設である。

#### (1)施設の構造

構造：鉄筋コンクリート

階数：地下1階、地上2階

建築面積：約1,200㎡（延床面積 約3,600㎡）

本施設の完成予想図をFig.1に、断面図をFig.2に示す。

(2)設備の概要

クオリティーでは、低酸素不活性雰囲気制御下で試験を行う雰囲気制御グローブボックス、大気下で試験を行う大気グローブボックス、フード及び分析機器等からなる「試験設備」、その他付帯設備として「放射線管理設備」、「消火設備」、「換気空調設備」、「ユーティリティー設備」、「廃棄物貯蔵設備」等を設置している。

3. 施設で行う試験の概要

クオリティーで実施する予定の試験は以下の通りである。

- (1)核種の化学形態・溶解度試験
- (2)核種の吸着（人工バリア中）試験
- (3)核種の吸着（天然バリア中）試験
- (4)核種の拡散（人工バリア中）試験
- (5)核種の拡散（天然バリア中）試験
- (6)放射線照射の影響試験
- (7)コロイドに関する試験
- (8)微生物活動の影響評価試験
- (9)有機物に対する核種移行影響評価試験

4. 主なスケジュール

平成6年度	概念設計
平成7年度	基本設計
平成8年度	詳細設計
平成9年度	建家及び内装設備の契約
平成10年1月22日	着工（掘削開始）
平成11年7月末	完成予定
平成11年8月	試験開始予定

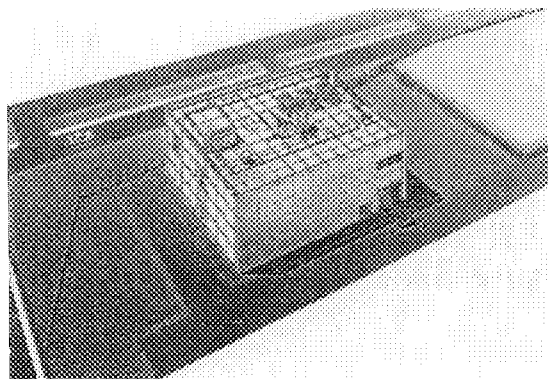


Figure1 完成予想図

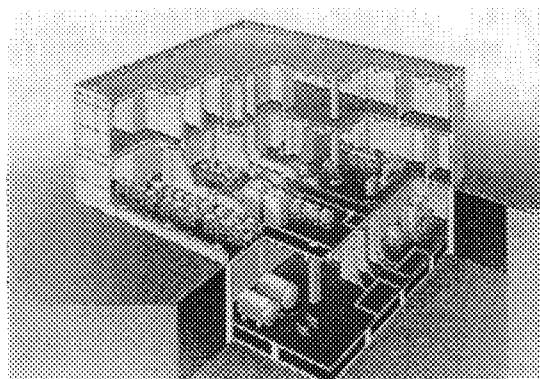


Figure2 断面図

## 乾式再処理、乾式分離プロセスにおける廃棄物処理 Waste Form Development for Pyrometallurgical Processing

(財)電力中央研究所 原燃サイクル部

Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI)

西村友宏、小山正史、坂村義治

Tomohiro Nishimura, Tadafumi Koyama, Yoshiharu Sakamura

Pyrometallurgical process generates chloride waste salt, which is very soluble in water and hard to be directly vitrified. We, CRIEPI, has been developing two methods to immobilize the waste in parallel; one is vitrification using electrolysis of chloride to metal followed by oxidation, the other is dry synthesis of sodalite-type waste form.

Electrolysis and oxidation experiments showed the feasibility of the vitrification processes. As for sodalite, synthesized sodalite by heating at 1073K for 100 to 200 hours was found to have higher leach-resistance than conventional vitrified waste form.

### はじめに

乾式再処理および高レベル廃液の乾式分離プロセスから、核分裂生成物 (FP) の塩化物が蓄積した高レベル放射性の廃塩が発生する。廃塩は地下水に容易に溶解して人間の生活環境中に到達する恐れがあるため、そのままでは処分が難しい。そこで、電中研では、廃塩を安定な形態に転換する方法として、ガラス固化技術と人工鉱物固化技術 (ソーダライト型固化体の開発) の2種類について研究している。前者の利点は湿式再処理の高レベルガラス固化体の処分概念がそのまま適用可能という点で、後者は固化の過程で腐食性の塩素ガスが発生しないという点である。

### 廃塩のガラス固化技術の開発<sup>1)</sup>

廃塩の酸化物化/ガラス化は、下記の2ステップで行う:

(1) Ar雰囲気下で熔融塩電解を行い、FPは液体鉛金属陰極中に回収し、塩素は陽極で塩素ガスとして回収する (回収した塩素ガスは乾式分離の塩素化工程などで再使用される)。

(2) 液体鉛金属中に酸素を吹き込み、液体鉛金属中のFPを酸化物化/ガラス化する。

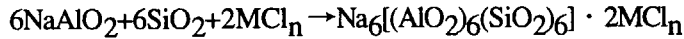
ステップ1に関して、電解実験により種々の元素の塩中/鉛中濃度の時間変化を測定し、鉛への回収のしやすさを調べた。電解実験時の各元素の分配係数 ( $D_M = X_{M \text{ in Pb}} / X_{M \text{ Cl in salt}}$ ; Xはモル分率) と浴塩成分のLiの分配係数 $D_{Li}$ との関係をFig. 1に示す。電解により $D_{Li}$ が大きくなる方向に変化していくが、この図から、希土類元素は分配係数が大きく容易に回収できること、アルカリ土類元素も電解が進むにつれて順調に回収されることが示された。一方、アルカリ金属元素のNa、Csは電解が進行するにつれて熔融塩中に蓄積してくる。そこで、乾式再処理・分離の前処理工程で (乾式再処理ではボンドNa除去工程で、乾式分離では脱硝工程で) あらかじめそれらを分離することも検討しており、そうすれば浴塩成分であるLiとKをリサイクルすることができ、二次廃棄物の低減が期待される。

ステップ2に関しては、電解実験で得た鉛合金と $B_2O_3$ とをアルミナ製容器に装荷し、800℃で空気を吹き込むことにより活性なFP元素は容易に酸化されて鉛から分離できることを確かめた。なお、実験後、使用したアルミナ製容器が減肉していたことから、腐食に強い構造材料の検討が必要である。

### ソーダライト型固化体の開発<sup>2)</sup>

準長石の一種であるソーダライト ( $Na_6[AlO_2)_6(SiO_2)_6] \cdot 2NaCl$ ; Fig.2) が塩化物を3次元網目格子中に取り込んだ形で天然に安定に存在していることに着目し、固化の過程で塩素ガスの発生がない廃塩処理法として、ソーダライトの乾式合成実験を行っている。化学反応式

は次式のとおりで、アルミン酸ナトリウム( $\text{NaAlO}_2$ )、二酸化ケイ素( $\text{SiO}_2$ )、模擬廃塩( $\text{MCl}_n$ )を原料としている。



実験では、原料をメノウ乳鉢で粉碎・混合し、約200MPaで圧粉・成型した後、マッフル炉で加熱してソーダライトを合成し、得られた合成物のX線回折分析や浸出試験により、反応経路を明らかにするとともに、最適な合成条件(加熱温度、加熱時間等)を調べている。

加熱温度と加熱時間を変えて作成した合成物のX線回折パターンはFig. 3に示すとおりで、1073Kで100~200時間加熱したときにソーダライトのX線回折強度の最も強い合成物を得た。また、この条件範囲で作成したソーダライト合成物は、ホウケイ酸ガラスと同等以上の高い耐浸出性を有する結果を得た。今後は、長期間の浸出データの取得や、ホットプレスによる合成の合理化などが必要と考えている。(ガラス固化技術の実験は住友金属鉱山(株)との共同研究で、ソーダライト型固化体の実験は(株)日立製作所との共同研究で実施した。)

参考文献

- 1) Y. Sakamura et al., Proc. Global '97, vol.2, pp.1222-1227 (1997).
- 2) T. Koyama et al., ibid., vol.1, pp.610-615 (1997).

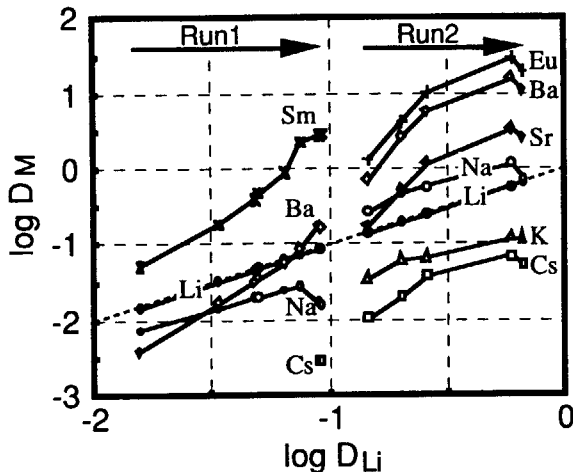


Figure 1 電解実験における溶融塩/鉛間の各元素の分配

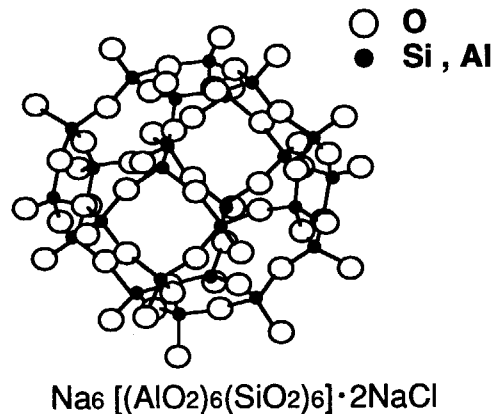


Figure 2 ソーダライトの3次元網目構造

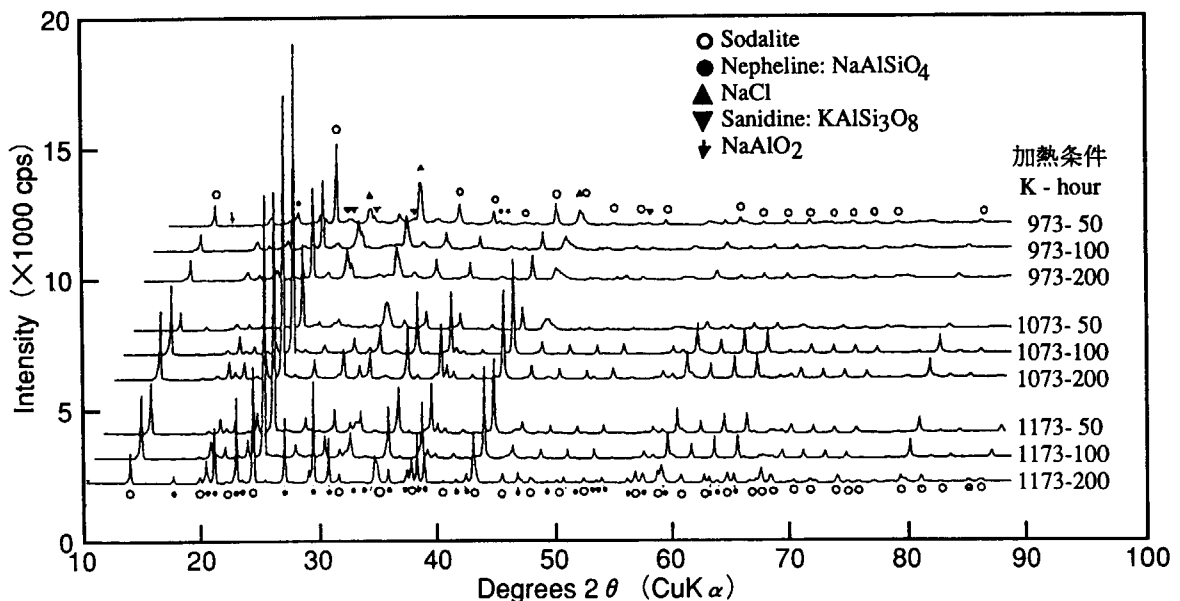


Figure 3 合成条件を変えて作成した合成ソーダライトのX線回折パターンの比較

## 群分離TRU核種用固化体へのイットリア安定化ジルコニアの適用性に関する研究 - 固化体の特性評価 -

### Application of Yttria-stabilized Zirconia (YSZ) Waste Form for Separated TRU Nuclides by partitioning - Property Evaluation as Waste Form -

日本原子力研究所 環境安全研究部 人工バリア研究室

Engineered Barrier Laboratory, Department of Environment Safety

Research, Japan Atomic Energy Research Institute

酒井 悦郎

蔵本 賢一

馬場 恒孝

SAKAI Etsurou

KURAMOTO Ken-ichi

BANBA Tsunetaka

The purpose of this study is R & D on yttria-stabilized zirconia as waste forms used in the Partitioning-Conditioning, which is ceramic solidification and disposal of high concentrated TRU nuclides after 4-group partitioning of high-level radioactive wastes. On the view point of property evaluation, it is important to investigate as-fired waste forms and waste forms changed by disintegration over long period. The property evaluation of as-fired waste forms were performed with emphasis on phase stability, chemical durability, mechanical property and compactness using Np doped YSZ waste forms. It is revealed properties of the Np doped YSZ are good enough as waste forms independent of Np content. The property evaluation for disintegration stability were carried out using Np-Am, Np-Ce and Np-Ce-Bi doped YSZ (Ce is a substitution for U). The results show disintegration does not effect on properties of YSZ waste forms.

#### 1. 緒言

本研究は、高レベル放射性廃液の群分離によって生成する TRU 群(以下、群分離 TRU 核種)を固化対象とした蛍石型構造のイットリア安定化ジルコニア (Yttria-Stabilized Zirconia:YSZ)の固化体としての適用性を検討することを目的としている。物理的・化学的耐久性に優れる YSZ に群分離 TRU 核種を固化処理することによって、処分時の安全性の向上、高減容化に伴い処分コストの低減等が期待される。この時固化体の適用性を論議するためには、固化体作製時の特性を把握、評価する必要がある、また長期安定性についても検討しなければならない。本研究においては、固化体作製時の特性では相安定性・化学的耐久性・機械的特性・緻密度を、長期安定性評価では核種壊変に対する安定性・耐放射線性・周囲の環境変化に対する安定性を評価対象としている。

本報告では固化体作製時の特性評価と、長期安定性評価のうち核種壊変に対する安定性の評価について述べる。今回、固化体作製時の特性評価は既存の固化体と比較することにより、また長期安定性評価は固化体作製時の特性が保持されることを基準にして行った。

#### 2. 試料

群分離 TRU 核種は さらに Np-Pu、Am-Cm、U 及び希土類元素(Ln)フラクションに分離される。U フラクションについては再度高レベル放射性廃液に混合後、再処理されることが検討されているため YSZ で固化を検討しているのは、主に Am-Cm 及び Np-Pu フラクションである(Ln フラクションについては群分離技術の向上により将来的には TRU 廃棄物の範疇には含まれないことが予想されるため今回は固化対象外とした。)。燃料電池などの有効利用・再利用等を考慮すると個別に固化処理・処分したほうが有効であろうと考えられるし、処分時の減容化が図れるなどの理由からこれら 2 つのフラクションを一緒に固化することも検討している。また、各フラクションは、処分経過時間とともに壊変により安定元素の Bi・Pb へと変化し、その組成に対して個別の領域が存在する。Np-Pu フラクションでは(1)Np、(2)Np・Bi、(3)Bi が主成分の領域である。また、Am-Cm 及び Am-Cm+Np-Pu のフラクションでは①Am・Np、②Np・U、③Np・U・Bi 及び④Bi・Pb が主成分の領域である。本報告では、適当量の試料の取り扱いが可能である等

の理由から Np-Pu フラクションを選択し、含有量を変えた Np 含有 YSZ 固化体を用いて固化体作製時の特性評価を行った。また、核種壊変に対する安定性評価には、Am-Cm+Np-Pu フラクションを固化対象とし①～③の領域について対応する核種・元素を含有させた YSZ 固化体を用いた。作製した試料の組成を Table1 に示す。

### 3. 試料作製及び特性試験

市販の YSZ 粉体[TOSOH Co. Ltd. : TZ-8Y]に所定の量の核種・元素を混合し、仮焼した後に、ボールミルにより微粉碎した粉体を 1500℃で 80 時間酸化雰囲気中で焼結させて試料を作製した。相安定性評価試験では、X 線回折測定を行い結晶相の同定を行った。化学的耐久性評価試験では、75 μm 以下に粒度調整した粉体試料について、150℃、脱イオン水中での静的浸出試験を行った(現在試験中)。機械的特性評価試験には、微小硬度計を用いた圧子圧入法によりピッカース硬度、ヤング率及び破壊靱性値を求めた。緻密度評価には水置換法により密度測定を行った。

Table 1: 固化体組成(mol%)

試料名	100X	200X	300X	400X	NA1	NA2	NA3	NU	NUB1	NUB2	NUB3
	Np				Am・Np			Np・U	Np・U・Bi		
AmO <sub>1.5</sub>	0.00	0.00	0.00	0.00	4.59	2.02	0.80	0.00	0.00	0.00	0.00
NpO <sub>2</sub>	10.00	20.00	30.00	40.00	5.41	7.98	9.20	7.98	6.35	4.60	2.40
CeO <sub>2</sub>	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	1.68	1.74	1.60	1.42
BiO <sub>1.5</sub>	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.34	1.91	3.80	6.18
ZrO <sub>2</sub>	77.13	68.56	59.99	51.42	77.13	77.13	77.13	77.13	77.13	77.13	77.13
YO <sub>1.5</sub>	12.87	11.44	10.01	8.58	12.87	12.87	12.87	12.87	12.87	12.87	12.87
TOTAL	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
処分経過 年数(年)	-	-	-	-	0	70	3000	30万	100万	200万	400万

Cm は Am で、Pu は Np で、U・Th は Ce で代用した。TRU : YSZ=10:90 (mol%)

## 4. 結果

### 4.1 固化体作製時の特性評価

X 線回折測定の結果、Np 含有量を 40mol%(60wt%)まで増加させても Np は蛍石型構造単一相に固溶が可能であることが分かった。このことより YSZ は Np に対して相安定性に優れていると評価できる。また、結晶の格子定数の変化等より Np は YSZ 中で 4 価で存在すると推定される。Np 含有 YSZ 固化体のピッカース硬度(Hv)、ヤング率(E)、破壊靱性値(K<sub>IC</sub>)は Np 含有量に依らず、Hv:9~12GPa、E:150~300GPa、K<sub>IC</sub>:1.5~2.5MPam<sup>1/2</sup>であり、固化体として十分な機械的特性を有していることが示された。密度測定の結果、相対密度(実測密度と理論密度の比)は Np 含有量に依らず 90%を超えており、緻密な Np 含有 YSZ 固化体が作製可能であることを確認した。

### 4.2 核種壊変に対する安定性

X線回折測定の結果、廃棄物組成が Am から Np 又は Np から Bi へ変化しても、蛍石型構造単一相は保持されることが分かった。この時、時間経過による組成変動により固化体の体積は時間と共に増加し、数十万年後に最大約 1%膨張し、それ以降は収縮することが分かった。ピッカース硬度、ヤング率、破壊靱性値は組成変動が起こっても保持されることが示された。さらに、密度測定の結果、相対密度は 90%を越えており組成変動が起こっても固化体の緻密度は保持されることが確認した。

研究発表における質疑応答の概要(廃棄物処理処分)

(1) NUCEFにおける TRU 核種の地層中移行評価に関する研究

- Q: 比較的浅い地層を研究対象としているようだが、深地層を対象とした還元性条件での試験計画はどうなっているのか。
- A: NUCEFに現在整備しているグローブボックスで行っていく予定である。
- Q: 非可逆的吸着は、移行に対する遅延効果と直接結びつかないと思うが、カラム試験の結果からどうやって $K_d$ を算出したのか。
- A: カラム内の核種の分布を可逆吸着平衡を仮定した解にフィットして $K_d$ を算出した。

(2) クオリティーの概要

- Q: グローブボックスに物を入れるためにエアロック(ポート)で真空置換するが、外から見えない状態で真空引きするのは大丈夫なのか。
- A: モックアップを充分に行い、慎重にやる。
- Q: 測定装置もグローブボックスに入れるのか。
- A: センサ部のみ入れることにしている。
- Q: 使用を予定している超ウラン元素のなかで、 $^{244}\text{Cm}$ の量が多いのはなぜなのか。
- A: 施設の安全評価上、あまり効いてこない同位体なので、許可使用量を多めにとっている。
- Q: Puを使うのは2期計画なのか。
- A: そのとおり。
- Q: 予算、人員、他の研究機関への開放について教えてほしい。
- A: 1期の予算が65億円である。研究者と管理者等をあわせて50人規模である。他の研究機関に共同利用してもらう予定である。

(3) 乾式再処理、乾式分離プロセスにおける廃棄物処理

- Q: 固化体からのKの浸出により、他の人工バリア材への影響は？
- A: 長期的に見れば緩衝材のイライタか等が懸念される。
- Q: 液体鉛からの廃棄物成分抽出法は？
- A: 液体鉛に酸素を吹き込むことのみで、特別な混合等行っていない。
- Q: 塩化物の溶解等により水に溶かしたあとに分離する手法があるのでは？
- A: リサイクル、廃棄物等、全体の操作性、安全性、経済性等を考慮して塩のままでの処理技術を検討している。

(4) 群分離 TRU 核種用固化体へのイットリア安定化ジルコニアの適用性に関する研究

— 固化体の特性評価 —

- Q: 分離したTRUの有効利用等については？
- A: 燃料電池等が考えられる。
- Q: TRU含有YSZ固化体の化学的耐久性の予想は？
- A: 模擬元素のCe, Nd添加固化体では極めて低い浸出率を示したことから、Np-YSZについても優れるのではないかと考えている。
- Q: 固化体の体積膨張について、 $R_n$ の影響は？
- A: 崩壊系列中の $R_n$ の半減期は短いため、気体である $R_n$ の影響は小さいと考えられる。
- Q: 高レベルの、ガラス固化体の代替固化体の現状を教えて？
- A: 十数年、シンロックに関する研究を進めてきており、優れた特性を有するとの結果を得ている。

This is a blank page.



### 3. 研究発表(再処理・群分離)

This is a blank page.

## f-元素の液体金属への還元抽出での系統性

Systematics of the Behavior of f-elements  
in their Reductive Extraction to Liquid Metal

京都大学原子炉実験所 バックエンド工学研究部門  
Research Reactor Institute, Kyoto University

山名元、西川佐太郎、森山裕丈

Hajimu Yamana, Sataro Nishikawa, Hirotake Moriyama

Equilibrium distribution of lanthanides and actinides were experimentally determined in the binary phase system consisting of molten alkaline chloride salt and liquid metal. By analyzing the observed distribution ratio of solutes between salt phase and liquid Zn and Bi, thermodynamic constants of alloy formation of lanthanides and actinides with Zn and Bi were obtained. As a result, systematics of lanthanides in their alloy formation with Zn and Bi were discussed, and different systematics of actinide were discussed.

### 1.概要

本研究では、乾式再処理に関して着目される、塩化物熔融塩 (LiCl-KCl) と液体Zn及びBiを用いた2相系におけるランタニド元素及びアクチニド元素の還元抽出挙動を実験的に調べ、結果を熱力学的に評価することによって、それらの化学的な特性について考察した。

### 2.実験

アクチニドおよびランタニドの分配挙動は放射性トレーサを用いて放射化学的に調べた。実験は、水分を1%以下に管理したAr雰囲気中で実施した。約2molの溶媒金属 (Zn, Bi) と LiCl-KClをトレーサと共にアルミナ製のつばに入れ、電気炉で加熱熔融した。実験温度は873K及び1073Kである。還元剤として金属Liを金属溶媒と合金にしたものを投入し所定の温度に到達後、還元抽出平衡が十分に達成されるように約5時間反応させ、平衡到達後に両相から少量のサンプルを取り、これらを放射化学的に分析し溶質の両相中でのモル分率を測定した。これらの実験手法については既発表の報告に詳しい[1-7]。

### 3.結果と考察

#### 3-1 反応メカニズム

以前の研究から[1-7]、LiCl-KClと溶媒金属Aの間での、溶質Mの分配平衡反応は次の式で表されることが確認されている。ここで、 $Li_{m,n}MCl_m$ は熔融塩相中の溶存錯体種を表し、 $MA_x$ は液体金属中に溶解している溶質の金属間化合物を表す。還元剤としてのLiは、溶質の錯体を還元し、還元された溶質は金属間化合物として液体金属中に抽出される。



式(3)(4)によって表される溶質Mの分配比とLiの分配比の比は、溶質の抽出性を表し、熱力学的には式(2)で与えられる。塩相中で3価および2価のイオンのm, nの組み合わせは、それぞれ、3、3及び2、2である。Xは溶存主のモル分率、分配比Dは、溶質の塩相中濃度に対する金属相中濃度の比である。γは活量係数を表す。

$$\begin{aligned} \log (D_M/D_L^n) = & - (2.3RT)^{-1} [\Delta G_f^\circ(MA_x) + m\Delta G_f^\circ(LiCl) - \Delta G_f^\circ(Li_{m-n}MCl_m)] \\ & + x \log X_A - (m - n) \log X_{LiCl} - \log \gamma_{MA_x} - m \log \gamma_{LiCl} \\ & + \log \gamma_{Li_{m-n}MCl_m} + n \log \gamma_{Li} + x \log \gamma_A \end{aligned} \quad (2)$$

式(2)の右辺は、一定の塩組成および温度のもとで一定であるから、 $\log D_M$ は $\log D_L$ に対して傾きがnの直線関係を示す(式(3))。

$$\log D_M = n \log D_L + \log KM' \quad (3)$$

KM'は溶質の抽出性を与える一種の平衡定数である。本実験において観測された分配比の測定例の一つをFig. 1に示す。Fig. 1に示されるLaの抽出においては、 $\log D_L$ に対して傾き3の大変良い直線性が観測された。他のランタニドおよびアクチニドについても実験で求められた分配比について同様のプロットを行い、直線関係の切片からそれぞれの $\log (D_M/D_L^n)$ を決定した。

### 3-2 抽出性の系統性

実験結果より決定された抽出性の指標  $\log (D_M/D_L^n)$ をFig. 2に示した。ZnとBiの両方においてアクチニドがランタニドよりも高い抽出性を示していることが特徴的である。更に、ZnとBiの両方の系において、Eu及びYbの抽出性が他のランタニドよりも低いこと、Bi系よりもZn系の方が高い抽出性を示すこと、アクチニドとランタニドの抽出性の差がBi系においてより大きいことなどの特徴を確認できる。

### 3-3 熱力学的な諸量の算出

アクチニド及びランタニドの分配比の実測値より、これらの元素と溶媒金属との金属間化合物の形成に関する熱力学的な諸量を計算した。式(2)において、左辺の分配比および右辺のモル分率は実験による実測値である。両相での溶存種が各溶媒と相互作用を持たないと仮定すると、これらの両相中での溶存種の活量係数は1.0と近似できる。金属相中でのLiの活量係数は次の報告式に従って計算し[8][9]、塩相中で3価および2価のイオンとして存在するアクチニドおよびランタニドの塩化物の標準生成自由エネルギー $\Delta G_f^\circ(MCl_m)$ は、文献値を引用した。

式(2)に実測値と上記の報告値を代入することによって、液体金属相に溶解している金属間化合物の標準生成自由エネルギーである $\Delta G_f^\circ(MA_x)$ を各元素について求めることができる。更に、二つの異なった温度での $\Delta G_f^\circ(MA_x)$ を用いて、金属間化合物の標準生成エンタルピー $\Delta H_f^\circ(MA_x)$ およびエントロピー変化 $\Delta S_f^\circ(MA_x)$ を求めることができる。

### 3-4 考察

溶媒金属中でのアクチニド及びランタニドによる金属間化合物の形成の系統的な違いについて考察する。一般的に、局在化した4f電子によって特徴づけられるランタニド系列では、系列にわたっての4f電子の増加は他元素との化学的な相互作用に明確には反映されない。このため、ランタニド元素ではイオン結合性の化合物において、その化学結合の強さがイオン半径の逆数に比例したスムーズな変化を示す。この傾向の有無をZnやBiとの金属間化合物の形成において確認することで、ランタニドとZnやBiとの金属結合が、他の化合物と同様に4f電子を局在化させたものであるのかを定性的に判定することができる。Fig.3に、得られた $\Delta H_f^\circ(\text{MAX})$ を金属半径の逆数に対してプロットした。Zn及びBiの両方の系において、3価金属であるランタニド元素が金属半径の逆数に対して良い直線性を示していることがわかる。このことから、3価ランタニドとZn及びBiとの金属結合は、溶質金属のサイズによって決まる金属結合であると考えられ、また、4f電子の結合への積極的な関与がないことを伺わせる。

一方アクチニド元素では、特にBiの系において、3価金属であるAmとCmが3価ランタニドの系統性からはずれていることが特徴的である。Fig.3では、AmとCmの $\Delta H_f^\circ(\text{MAX})$ は明らかに3価ランタニドよりも負に大きく、同じサイズであっても3価ランタニドよりも強い金属間結合を形成していることがわかる。この差は、主な結合バンドである価電子軌道の違いに起因すると共に、AmとCmの5f電子がランタニドの4f電子の場合よりも金属結合に積極的に関与している可能性を示唆するものである。AmとCmと3価ランタニドの差は、ZnよりもBiの系において大きいことが、Biを用いた還元抽出においてランタニドとアクチニドの分離を高める効果を与えている。

### 引用文献

- [1] H.Moriyama, N.Nunogame and J.Oishi, J.Nucl.Sci.Technol. 24(1987)120.
- [2] J.Oishi, H.Moriyama, K.Moritani, S.Maeda, M.Miyazaki and Y.Asaoka, J.Nucl.Mater. 154(1988)163.7.
- [3] H.Moriyama, K.Kinoshita and Y.Ito, J.Nucl.Sci.Technol. 27(1990)827.
- [4] H.Moriyama, K.Kinoshita, Y.Asaoka, K.Moritani and Y.Ito, J.Nucl.Sci.Technol. 27(1990)937.
- [5] H.Moriyama, T.Seshimo, K.Moritani, Y.Ito and T.Mitsugashira, J.Alloys and Compounds 213/214(1994)354
- [6] H.Moriyama, M.Miyazaki, Y.Asaoka, K.Moritani and J.Oishi, J.Nucl. Mater. 182(1991)113.
- [7] H.Moriyama, H.Yamana, S.Nishikawa, Y.Miyashita, K.Moritani and T.Mitsugashira, Proc. of 9th Int.Symp. on Thermodynamics of Nuclear Materials, Osaka, Aug. 25-30, 1996, in press.

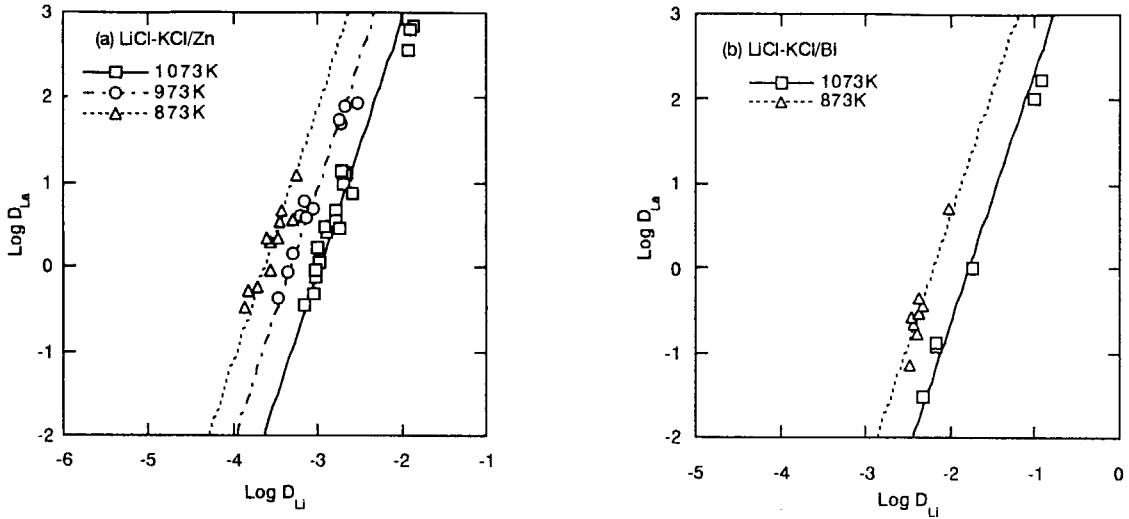


Fig. 1 Distribution coefficient of La as a function of that of Li in (a) LiCl-KCl/Zn and (b) LiCl-KCl/Bi system.

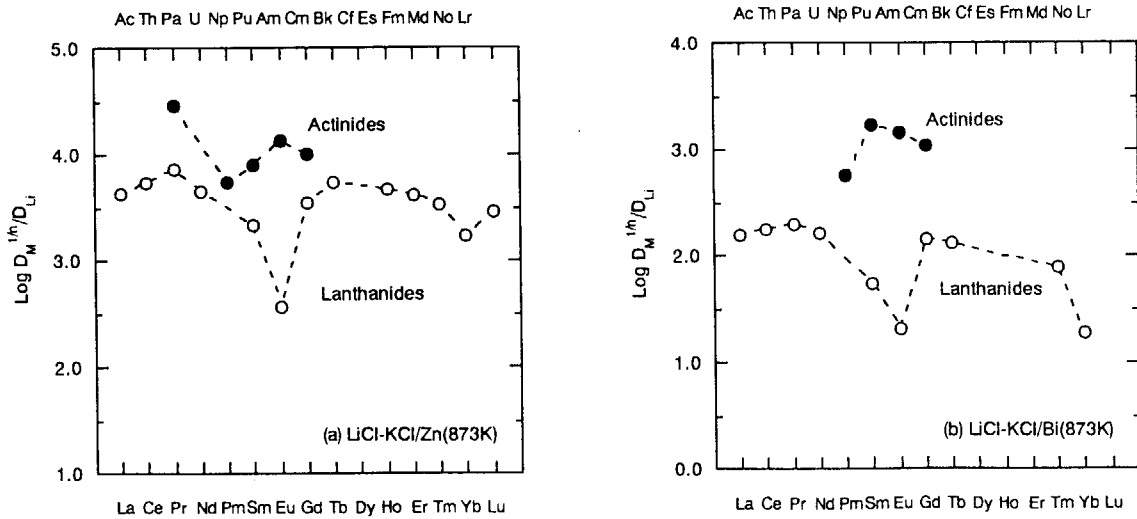


Fig. 2 Extractability of Actinides and Lanthanides in (a) LiCl-KCl/Zn and (b) LiCl-KCl/Bi system.

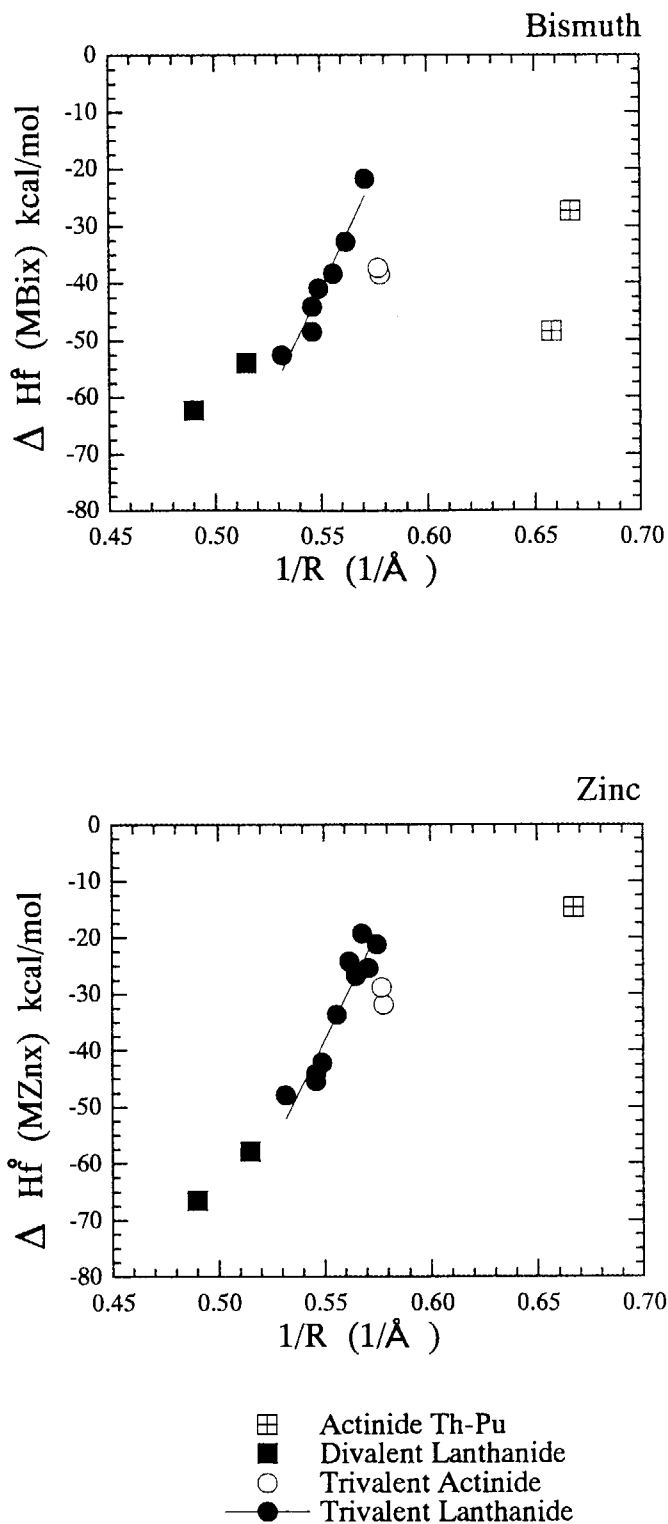


Fig. 3 Dependence of the Enthalpy Change of Alloy Formation on the Inverse of Metallic Radius of f-Elements

## A m, C mとランタノイド元素の分離法の検討 Separation Method of Am, Cm from Lanthanide Elements

石川島播磨重工業株式会社\*1

Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co.,Ltd.

日本原子力研究所\*2

Japan Atomic Energy Research Institute

龍ヶ江良三\*1 高田清史\*1 渡邊雅之\*2 森田泰治\*2 久保田益充\*2

Ryozo TATSUGAE, Kiyoshi TAKADA, Masayuki WATANABE, Yasuji MORITA,

Masumitsu KUBOTA

A partitioning method has been developed under the concepts of separation of elements in high level liquid waste. The present paper describes the results of study on back-extraction of Am, Cm from DIDPA or HDEHP. Most experiments were carried out to select a suitable reagent for back-extraction of Am, Cm extracted from nitric acid with DIDPA or HDEHP. The experimental results show that distribution ratios of Am, Cm is less than 0.1 in the back-extraction with hydrazine carbonate.

使用済核燃料の再処理において発生する高レベル廃液中に含まれる放射性核種をその半減期や放射性毒性に応じて分離し、各々に適した方法で処分するという考え方のもとに群分離プロセスの開発を進めている。

高レベル廃液からのアクチノイドの分離には酸性有機リン化合物抽出剤D I D P AやH D E H Pおよび二座配位中性有機リン化合物抽出剤C M P O等による抽出プロセスが検討されている。

これらのプロセスではA m, C mと一緒にランタノイドが抽出されるが、アクチノイドを消滅処理するためには、多量に存在するランタノイドとA m, C mの分離が必要である。そこでA m, C mとランタノイドの分離方法を検討した。

実験は主としてランタノイドのみを用いて、希硝酸溶液からランタノイドを溶媒で抽出し、炭酸塩逆抽出剤で逆抽出する方法で行い、炭酸塩の種類や濃度等が分配比や相分離性に及ぼす影響について検討した。そして選定された条件においてA m, C mを用いて確認した。なお、群分離プロセスではアクチノイドやランタノイド以外にZ n, Z r, M o, R h等の元素も混入する場合があるので、これらの元素の逆抽出挙動についても調べた。

その結果、ランタノイドを含むA m, C m溶液を一度溶媒（D I D P AまたはH D E H P）で抽出し、炭酸ヒドラジニウム溶液で逆抽出する方法が優れた分離方法であることを確認したので、新しいA m, C m/ランタノイド分離方法として提案する。この方法の特長は高い分離係数が得られ、ソルトフリーであることである。

研究の方法は、抽出溶媒の選定、逆抽出剤の選定、元素濃度の影響、相分離性の影響、問題点の対策等について検討した。



### 抽出溶媒の選定

ランタノイドを抽出したCMP, CMPO, TOPO, DIDPAおよびHDEHPの溶媒から、炭酸系逆抽出剤により逆抽出した時に、Figure 1に示すような濃度依存性のある分配比が得られる溶媒を選定した。濃度依存性を示したのは酸性有機リン化合物系溶媒であるDIDPAとHDEHPの二溶媒であった。

### 逆抽出剤の選定

ランタノイドを抽出したHDEHP溶媒から炭酸ナトリウム、炭酸アンモニウムおよび炭酸ヒドラジニウムでランタノイドを逆抽出した。炭酸アンモニウムは沈殿が生成したので除外した。炭酸ナトリウムと炭酸ヒドラジニウムの分配比は濃度依存性を示し同等の性能を示したが、ソルトフリーである炭酸ヒドラジニウムを選定した。

### ランタノイド濃度の影響

ランタノイド濃度が高いと第3相を生成する。La, Ce, Pr, Nd, Sm, Euが各2.5 mM(トータル15 mM)程度までなら第3相を生成しないが、それ以上では第3相を生成するので、溶媒比を高くする必要がある。

### 相分離性向上方法

エマルジョン、第3相、膜等の生成を抑制するために数種の添加剤を検討し、アルコール系の添加剤が有効であった。ただし、上記ランタノイド濃度の影響はアルコールが添加されている条件である。

### 問題点

炭酸ヒドラジニウムによる逆抽出時に気泡が発生する。密閉状態で急激に攪拌すると危険である。発泡の原因は硝酸による炭酸イオンの分解と予想される。発泡防止には逆抽出前にアルカリで洗浄する方法が効果的であった。しかし、ソルトフリープロセスを維持するためには装置の工夫または運転方法による防止法が望ましい。

### 結論

アクチノイド/ランタノイドの分離方法として、分離係数2.5以上(Figure 1参照)の酸性有機リン系溶媒抽出-炭酸ヒドラジニウム逆抽出のソルトフリープロセスを提案する。

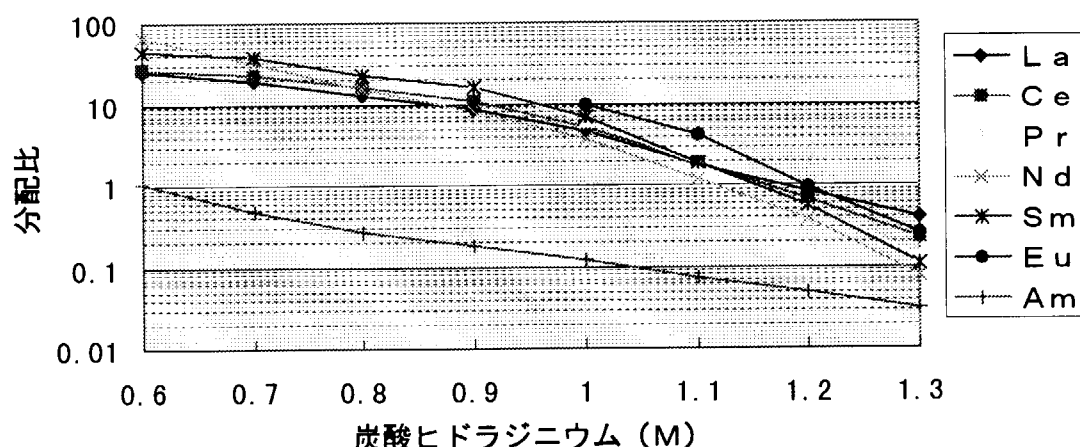


Figure 1 炭酸ヒドラジニウム濃度と分配比の関係

X線及び低エネルギー $\gamma$ 線測定法によるアクチニド元素の定量

## X-ray and Low Energy Gamma-ray Analysis of Actinide Bearing Solutions

P.J.A. Howarth, G. Uchiyama, T. Asakura, M. Sawada, H. Hagiya, S. Fujine.

Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai mura, Ibaraki-ken, JAPAN.

The emission of x-ray and low energy gamma-ray radiation from Pu, Am and Np has been investigated as a means of non-destructive assay of actinide bearing solutions produced in BECKY, an advanced PUREX reprocessing test facility at JAERI. The BECKY facility, part of NUCEF, is designed to facilitate the study of the PARC process [1], a conceptual flowsheet for the control and partition of actinides such as Am and Np as well as U and Pu.

An accurate and relatively quick means of determining the actinide concentration within various flowstreams is required to assess the extraction chemistry and also corroborate numerical simulations. Ideally small in-line monitoring systems would allow each actinide concentration to be determined in real time without the needs for sampling, although this would prove very difficult to accomplish within the space limitations of BECKY.

A viable technique for solution assay is the use of internal conversion x-ray emission associated with alpha decay which, in the case of Pu, is a more intense than the gamma-ray emission. Combined with measurements of intense low energy gamma-ray emissions from  $^{241}\text{Am}$  and  $^{237}\text{Np}$ , it is possible to separate the various actinide emissions.

Measurements of small samples of actinide solutions, Pu, Np, Am and U in 3M nitric acid, using high resolution Si(Li) and HpGe detectors have been performed inside a glovebox. Sample solutions of 2ml active volume are contained in small glass vials and the amount of attenuating material between the solution and the detector's Be window is minimised as best as possible.

Typical spectral data from a Pu solution containing  $^{241}\text{Am}$  is shown in Figure 1. It is important to note there is a large degree of overlap in the U x-ray lines (from Pu decay) and Np x-ray lines (from Am decay). Given that  $^{241}\text{Am}$  will always be present in Pu sample solutions due to grow-in from the decay of  $^{241}\text{Pu}$ , analysis of the spectral data to separate Pu and Am concentrations requires a numerical procedure which makes use of the 59.5keV gamma-ray emission from  $^{241}\text{Am}$ . Sample concentrations in the range of 11 g/litre to 10 g/litre for Pu, 1000 mg/litre to 1 mg/litre for Np and 0.463 mg/litre to  $6.2 \times 10^{-4}$  mg/litre for Am have been successfully measured and a linear relationship between count rate and concentration has been obtained.

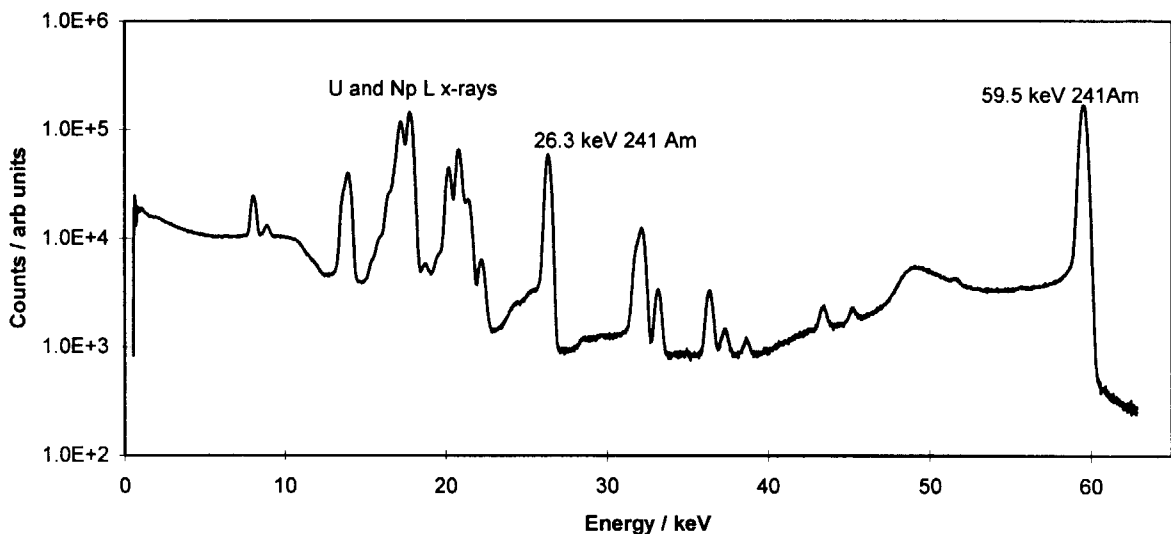


Figure 1. Typical spectral data for a Pu solution bearing Am as measured using a Si(Li) detector.

The results of the calibration measurements are shown in Figure 2. The americium calibration is from the 59.5keV which is relatively intense and thus measurements to low concentration levels are possible. The neptunium calibration is from the 29keV gamma-ray and the plutonium calibration is from the L x-ray emission once the contribution from  $^{241}\text{Am}$  L x-ray emission has been separated. In general the linearity of the calibration data is accurate to 0.1% although errors in actual measurements are likely to be within 10%.

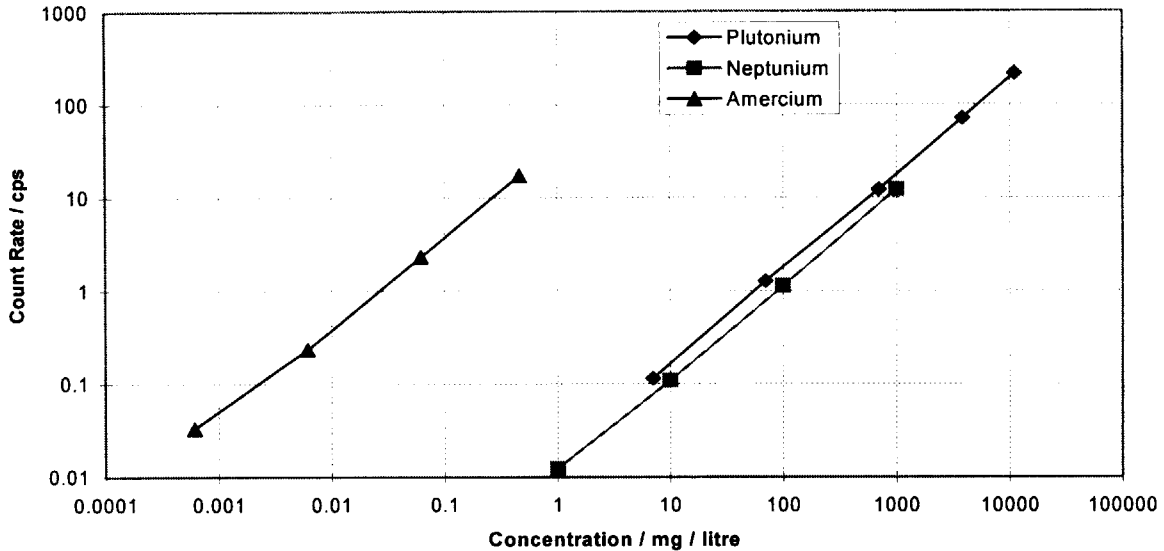


Figure 2. Results of the calibration measurements for Np, Pu and Am solutions.

At present solutions from BECKY test experiments using simulated fuel are being measured and analysed. Figure 3 shows the measurement results for the neptunium separation product stream. Clearly the 29keV peak from  $^{237}\text{Np}$  is evident as well as the 59.5keV peak from  $^{241}\text{Am}$ . Count rates for the data shown in Figure 3 give the concentrations as follows:  $^{241}\text{Am}$  = 0.0037 mg / litre,  $^{237}\text{Np}$  = 56.8 mg / litre and Pu = 196 mg / litre. Previous measurements using a different system gave the Np concentration as 62.6 mg / litre, the Pu and Am concentrations were undetermined and the U concentration as 8.1 g / litre. Uranium is difficult to measure due to weak L x-ray and gamma-ray emission. However measurements might be possible by utilising the 63.3keV gamma-ray from  $^{234}\text{Th}$  or attenuation measurements by comparing the  $^{241}\text{Am}$  60keV and 26keV peaks. These possibilities are currently being investigated.

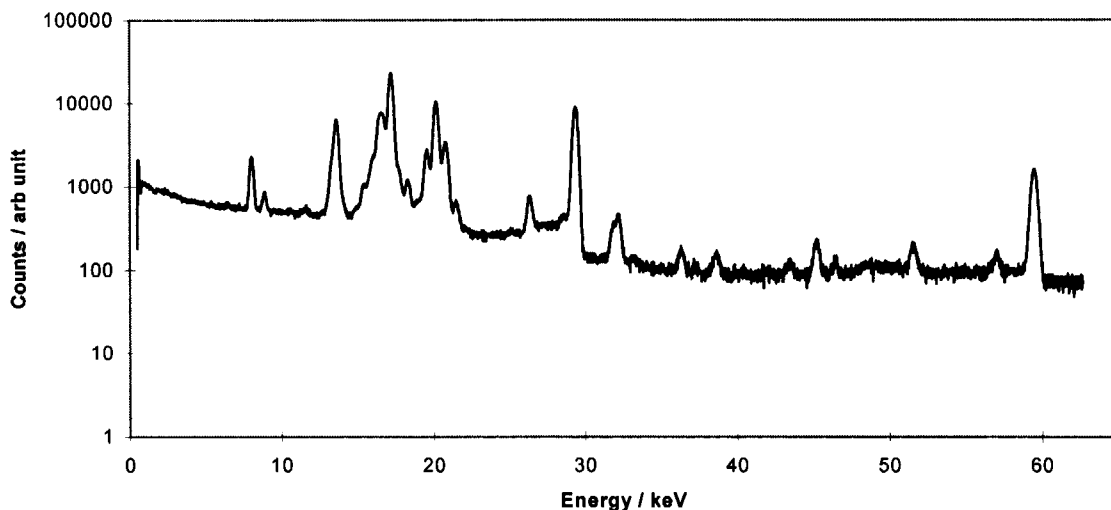


Figure 3. Measurement data for the neptunium product stream test sample using simulated fuel.

# アクチニド化学に新しい芽を捜して:大学共同利用研究施設の取り組み Search for new seeds in actinide chemistry; Trial in an open facility for Japanese university

東北大学金属材料研究所附属材料試験炉利用施設 (大洗施設)  
The Oarai-branch, Institute for Materials Research, Tohoku University  
三頭聰明, 塩川佳伸, 原 光雄, 鈴木吉光  
Toshiaki MITSUGASHIRA, Yoshinobu SHIOKAWA, Mitsuo HARA,  
Yoshimitsu SUZUKI

## Abstract

The Actinides Experimental Facility(AEF) in the Oarai-branch, Institute for Materials Research, Tohoku University has operated since 1990 as an open laboratory for university staffs and graduate students in Japan. Recently, more than 1000man-days research activity is accepted by AEF. In order to support various chemical research activity, the staff members of AEF have paid much effort to supply the actinides isotopes such as  $^{231}\text{Pa}$ - $^{227}\text{Ac}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ - $^{228}\text{Th}$ 、 $^{229}\text{Th}$ 、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{237}\text{U}$ 、 $^{236}\text{Pu}$ 、and  $^{242}\text{Cm}$ . Many research topics are now in underway as the collaboration with AEF and Japanese university. These activities certainly contribute to enlighten the interest on actinide chemistry. The two research topics, the utilization of hydrate-melt for actinide partitioning and the challenge to the unique nuclear property of  $^{229}\text{Th}$  are briefly reviewed.

## 1、大洗施設におけるアクチニド化学研究の現況

我国でのアクチニド化学の実験研究は原子力研究所(原研)の発足とともに始まり、昭和50年頃迄は原研、動力炉核燃料開発事業団(動燃)、大学それぞれで特色のある研究が行われた。当時は原子力開発に明るい展望があり規制も緩やかで、大学の貧弱な放射線施設でも今では考えられないような多量の試料を用いた実験が行われていた。その後、アルファ放射体を取扱う施設の維持・管理のあり方が見直され、環境科学的な実験を除いて大学での実験は殆ど不可能な時代が訪れた。原研・動燃でも、昭和40年代後半以降、廃棄物安全試験施設、高レベル放射性物質研究施設、再処理工場の附属施設等の大型施設が稼動を始め、アクチニド化学関連の研究はその殆どが核燃料サイクル開発を指向した分野に移っていった。これらの施設が、燃料、再処理、廃棄物処理処分等の技術開発に果たした役割は少なくないが、プロジェクト型の研究が閉鎖的で萌芽的な自由な発想を掘起こすことができなかつたことも否定できない。特に、大型施設の多くで放射性物質としてのアルファ放射体の使用が不可能で、これらの施設での研究活動がアクチニド化学研究の裾野をひろげることに寄与しないというまことに残念な状況が続いている。

大洗施設のアクチニド施設の建設は、上記のような大学でのアクチニド研究の状況を打開するために企画されたものである。1990年の共同利用開始以降、当初は少なかった化学研究グループが徐々に増加し、最近では年間延べ1000人・日を越える来所者を迎えて次のような共同利用研究が行われている。

1、水溶液電解法による金属調製(U、Np アマルガムの熱分解)

2、含水融解塩を利用したアクチニド分離

( $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot \text{XH}_2\text{O}/\text{TBP}$ 系でのAn(III)抽出、 $\text{CaCl}_2 \cdot \text{XH}_2\text{O}/\text{Ca}(\text{AA})_2$ 系でのAn(VI,III)分離)

3、メタノール- $\text{H}_2\text{O}$ 系での錯生成定数(第1溶媒和圏のサイズ)

4、ネプツニウムの溶液化学(ポリアクリル酸との錯生成)

5、アクチニド核の壊変特性( $^{229}\text{Th}$ 、 $^{235}\text{U}$  etc.)

6、メモリー材料中のアルファ核種分析(放射非平衡)

7、粘土鉱物への吸着特性(Biotite-Pu、Kaolinite-AmCm、etc)

8、フミン物質との相互作用(錯生成)

9、ピリジン型陰イオン交換樹脂への超ウラン元素吸着特性(An/Cm分離、An/Ln分離)

これらの実験研究のために、大洗施設では天然ウラン、トリウム、 $^{231}\text{Pa}$ - $^{227}\text{Ac}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ - $^{228}\text{Th}$ 、

$^{229}\text{Th}$ 、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{241}\text{Am}$  を保有し、JMTR 照射、電子ライナックでの制動放射照射等の方法で、 $^{237}\text{U}$ 、 $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{242}\text{Cm}$  等がトレーサーとして常時使用できる体制を整えている。そのためには、核種製造、分離、測定技術を確立しておくことが必要である。最近組織改組を行った京都大学原子炉実験所へは、 $^{241}\text{Am}$  の中性子照射での  $^{242}\text{Cm}$  製造と  $^{237}\text{Np}$  の制動放射照射での  $^{236}\text{Pu}$  製造の技術が受継がれ、大洗施設との協力関係を維持しつつ、大学としての新たな超ウラン元素実験研究の拠点作りが進められている。

現在、自らの手でアクチニド核種の製造、分離を行う技術を持っている来所実験グループは少なく、我々が調製分離した試料を、各グループへ提供しているのが実状である。このようなサービスを行うことによって、学生を含む実験グループが確実に増加し、我国のアクチニド研究の裾野が広がることを期待している。列挙した研究の多くは、大学の使命に相応しい特色のあるものである。ここではその全てを紹介することはできないが、他の大学との共同研究に進むことも考慮して、含水融解塩を利用したアクチニド分離と特異な壊変特性を示す  $^{229}\text{Th}$  の研究の一端を紹介する。

## 2、含水融解塩を利用したアクチニド分離

多くの遷移金属、希土類、アルカリ土類の硝酸塩、塩化物の含水塩は、室温から  $90^\circ\text{C}$  位迄の温度で融解して遊離の水分子が存在しない水和金属イオンと対陰イオンとのイオン性融体となる。原研化学部では、この媒質と有機抽出剤との分配系で、ランタニド、アクチニド等の非常に効果的な抽出が可能なることを発表している<sup>1,2)</sup>。我々が最初に注目したのは、硝酸カルシウム水和物と TBP-ドデカンとの分配系であり、 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot \text{XH}_2\text{O}$  ( $\text{X}=3\sim 8$ ) では、ランタニド(Ln)とアクチニド(An)の III 価が 6 から 8 個の水分子を配位した水和イオンとして溶存し、TBP で完全抽出可能なことを指摘した<sup>3)</sup>。このイオン性融体は、水溶液とは明らかに異なり、むしろ無水の融解塩に近い性質を持っている。その後、京都大学の山名等は、この点に着目して無水の硝酸共融塩、濃硝酸と TBP との分配系の系統的な比較検討を行い、Ln(III) (An(III)) 系列の水和状態と分配平衡との関係を考察している<sup>4)</sup>。このような基礎的な研究は、化学的な興味もさることながら、高い温度を必要とする溶融塩還元分配系に替るよりマイルドな分配系での Ln(III)/An(III) の群分離につながることも期待できる。我々は、TBP 抽出では、Ca の分配がかなり大きく分配系が複雑になることを避けるために、カルシウムアセチルアセトナト錯体 ( $\text{Ca}(\text{AA})_2$ ) と  $\text{CaCl}_2 \cdot \text{XH}_2\text{O}$  との陽イオン交換分配系についての検討を進めている。この様な金属の錯体を利用した分配系は、プロトンの影響がないので単純な交換平衡が実現するだけでなく、通常の方法では水が配位した AA 錯体が合成される Ln と An で昇華性を持った無水の AA 錯体の生成が期待できる。

## 3、 $^{229}\text{Th}$ の核特性

最近、 $^{229}\text{Th}$  の原子核の第 1 励起レベルが紫外線領域の約  $3.5\text{eV}$  の励起エネルギーであることが発見された<sup>5,6)</sup>。このレベルからの内部転換電子放出は不可能なので、化学結合した軌道電子との相互作用が起こると考えられている。未だ追試が必要であるが、我々は放射化学的に純粋な  $^{229}\text{Th}$  試料を用いて、 $^{232}\text{Th}$  にはない紫外部の弱い吸収があるとのデータを得た。この吸収が核現象によるものであることが確認できれば、それは全く新しい発見といえる。この  $^{229}\text{Th}$  試料は、約 20 年前に原研の夏目晴男博士から提供された  $^{238}\text{U}$  中に成長したものである。このような新しい現象への興味が、原研と大学との共同研究として展開できることを望んでいる。

### 引用文献

- 1) E. Akatsu, M. Asano, Anal. Chim. Acta 55, 333(1971)
- 2) Y. Aratono, E. Akatsu, J. Inorg. Nucl. Chem., 36, 1141(1974)
- 3) T. Mitsugashira, M. Kamoshida, Y. Suzuki, I. Satoh, J. Alloys and Compounds, 213/214, 347(1994)
- 4) H. Yamana, T. Kaibuki, Y. Miyashita, S. Shibata, H. Moriyama, to be published in J. Alloys and Compounds.
- 5) R. G. Helmer, C. W. Reich, Phys. Rev.(C), 49(4), 1845 (1994)
- 6) G. M. Irvin, K.H. Kim, Phys. Rev. Letts., 79(6), 990 (1997)

研究発表における質疑応答の概要(再処理・群分離)

(1) 熔融塩・液体金属還元抽出系での f-元素の分配特性

Q: 各対象元素の電価について。Euは2価でSmは3価と言うことか？

A: Euは塩相中、金属相中のいずれでも2価。Smは塩相中では2価だが、金属相中では3価である。

Q: 分離計数はどの程度か？

A: 1000程度である。

Q: 分離のためには金属相に用いる金属は何がよいのか？

A: Biがよい。

Q: 観察方法が間接的であるが、何か直接的な方法は考えていないのか？

A: 液体金属状態なので、直接的な方法は難しい。溶媒金属と対象金属のモル比が1/1000程度なので、X線による分析も困難と考えている。

(2) Am, Cm とランタノイド元素の分離法の検討

Q: 館盛:LnとAmの分離度という点から見ると、抽出剤や逆抽出剤の違いによってどのような傾向性があるのか？

A: 分離度の点ではHDEHPの方がDIDPAよりも優れている。DIDPAのほうもそれなりの分離度は期待できるので、使えないことはない。

Q: 反応の速度的にはどうか？平衡に達するにはどの程度かかるか？

A: 通常のみキサーセトラレベルの接触時間で十分。遠心抽出器での利用も可能で、十分に早いと言える。

Q: 発泡現象が問題と言うことであるが、どの程度の発泡か？

A: ミキサーセトラでの利用を考えた場合には、上面が解放であるとは言うものの、かなりのフリーボリュームがないと液があふれてしまうものと考えられる。遠沈管での実験では、水相と有機相を各3mlの条件で激しく振とうすると遠沈管のふたが飛ぶほどの発泡がある。部分的な酸性状態の所を作らないような工夫が必要である。

(3) X線及び低エネルギーγ線測定法によるアクチノイド元素の定量

Q: 何故、K X-rayを使わずにL X-rayを使ったのか？

A: Siディテクターの効率上の問題。他のディテクターならK X-rayも使えるだろう。

Q: 検出上のGeometry(発生元-検出器間)はどのようになっているのか？

A: 当初は円柱状ボトルの側面に検出器を近づけて検出していたが、円柱状からフラットボトルに変更したため、検出効率が改善された。

(4) アクチノイド化学研究に新しい芽を捜して: 大学共同利用研究施設の取組み

Q: 共同利用施設における安全管理状況は？

A: 万全を期している。しかし、運営費が少ないため苦勞している。これから、省庁再編によってさらに予算縮小するかもしれないことに危惧を抱いている。

#### 4. 特別講演

核燃料サイクル技術の基盤研究を考えるにあたって

This is a blank page.



## 核燃料サイクル技術の基盤研究を考えるにあたって

埼玉大学  
松本 史朗

## 核燃料サイクル技術の基盤研究を考えるにあたって

基盤研究、基盤技術開発は、「原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画」によれば、基礎研究とプロジェクトとを結びつけるものとして位置づけられている。また、一般的には技術とは科学の原理を利用し実用化する手段であり、この技術の開発によって産業革命や情報化に見られるように世界を変えることが可能である。技術は進歩するものであるが、しばしば新しい原理に基づくものによって代わられることで急速に進歩することがあり、また社会からの要請によっても様々な影響を受ける。

一方、核燃料サイクル技術は、自然環境はもとより、政治、経済、安全保障の体系に大きなインパクトを与えるものであることは古くから認識されてきた。したがって、これらに与える影響を定量的に評価することが重要である。また、いかなる産業であっても社会に受け入れられなければ生き延びることはできない。原子力技術も同様であり、現在の問題としては廃棄物、冷戦終結後の核不拡散問題が挙げられる。

社会の変化によって技術に対する要求も変化する。したがって生き延びるためには技術にフレキシビリティを持たせ変化に対応できるようにしなければならない。このためには基礎研究、基盤技術開発が重要となってくる。最近では、一般産業においても地球環境問題から持続可能な開発、責任ある配慮等、社会から厳しい要求が出されている。原子力技術では従来からリサイクル及び環境への影響には力を注いできたが、製品ライフサイクル全体に対して責任を持つという意味で設計当初より廃棄物を考慮したものにしていこうという方向で一層の努力が必要であろう。

地球環境問題は、空間的にこれまでにない広がりを持つと同時に影響の発現、回復に長時間を要する。そのため、事後対策から事前対策に方法論がシフトしてきている。これについても原子力技術は従来からこのような方法論で進めている部分が多く、社会の方が追いついてきた形となっており、理解されやすくなくなった。

今後の方向としては、計算科学等の新しい手法を用いるとともに、一般産業において開発された技術、概念を積極的に取り入れ、それによって開発された技術が広く波及効果をもたらすような方向を指向するべきである。

埼玉大学 工学部  
松本 史朗

原子力開発利用長期計画

原子力科学技術の多様な基礎的な研究の強化  
基礎研究と基礎技術開発

我が国は、原子力技術の先進国として、既存の原子力技術にブレークスルーを引き起こし、基礎研究とプロジェクト開発を結びつける基礎技術開発に積極的に取り組む必要があります。とりわけ、原子力技術に対するニーズの一層の多様化や高度化に対応するとともに、技術シーズの探索、体系的な研究開発の積み重ね等により将来の新しい原子力技術の体系を意識的に構築していくため、大きな技術革新を引き起こし、ひいては科学技術全般への波及効果が期待される原子力のフロンティア領域を重視していきます。

技術とは

科学の原理を実現し、実用化する手段

技術は社会を変える

蒸気機関の発明 → 産業革命  
コンピュータ → 高度情報化社会

技術は進歩する

ウラン濃縮技術    ガス拡散法  
遠心分離法  
レーザー分離法

技術は社会環境によって変化する

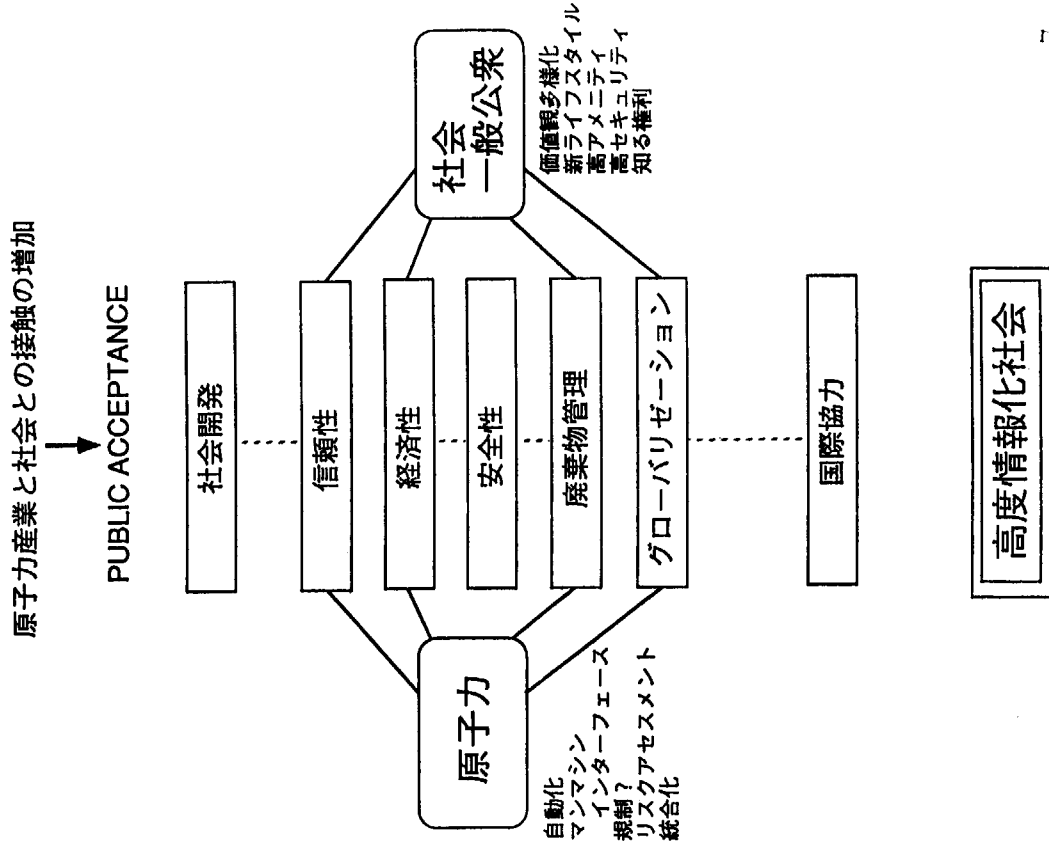
石油精製におけるガソリンと灯油の生産量の調整  
排煙脱硫・脱硝技術の変遷

結果として技術は洗練され、高度化されていく

高度情報化社会に向けての原子力産業と社会環境

核燃料サイクルとは

大量のエネルギーを定常的に得るために、原子力発電所に供給しなければならぬ核燃料および使用済核燃料のその後の処理およびリサイクルの体系が自然環境のみならず政治、経済、安全保障の体系に大きなインパクトを与えることが、原子力の平和利用の開発の初期から認識されていたことから、核燃料サイクルはそれが社会環境や自然環境に与える影響を定量的に評価することを目的としている。

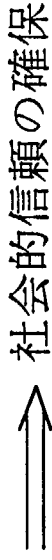


核燃料サイクルプロセスシステムにおける視点

○ Sustainable Development  
(持続可能な開発)

○ Responsible Care  
(責任ある配慮)

経営、事業活動の理念  
計画、実践



○ Competition → Partnership

○ Cooperation → Strategic Alliance

資源を有効に利用し、開発などの重複を  
避けて共に生きる

1. 核不拡散性

2. TRU管理

3. 廃棄物管理

4. 安全性

5. 経済性

6. フレキシビリティ

7. 持続性

8. 国際協力

9. 社会的受容性

10. リスク管理

11. 情報公開性

Responsible Care

製品の開発から廃棄に至るまでの環境・安全・健康面を責任を持って配慮する。

フレオン	--->	オゾン層の破壊
プラスチック	--->	環境問題
Lトリプトファン	--->	Product Liability

製品の輸送・使用・廃棄段階で環境、安全、健康に配慮する。

◎地球環境問題の特徴

- 空間的にこれまでにない広がりを持つ
- 影響の発現・回復に長時間を要する
- はやめの予防的対策が重要
- 対策のタイミングが失われることによつて生ずる影響（損失）ははかりしれない

↓  
事後対策から事前対策

- シナリオを仮定して理論的モデルによつて将来予測する方法論が重要

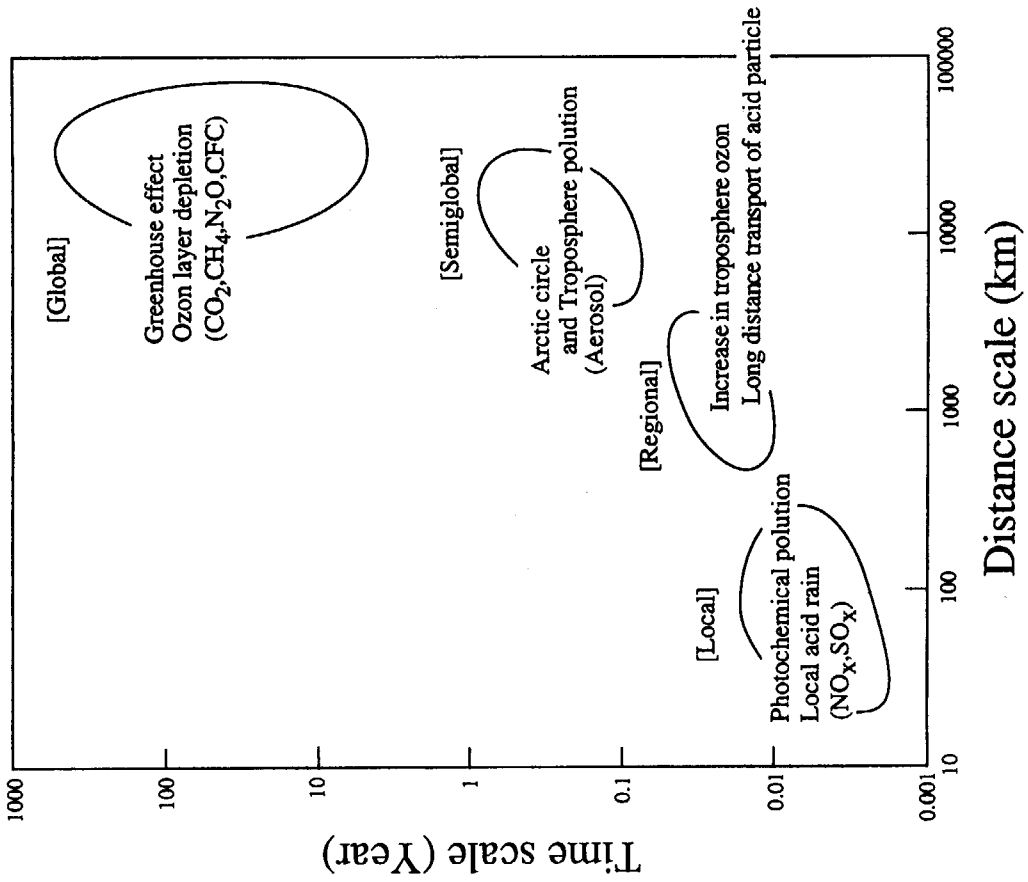
まとめ

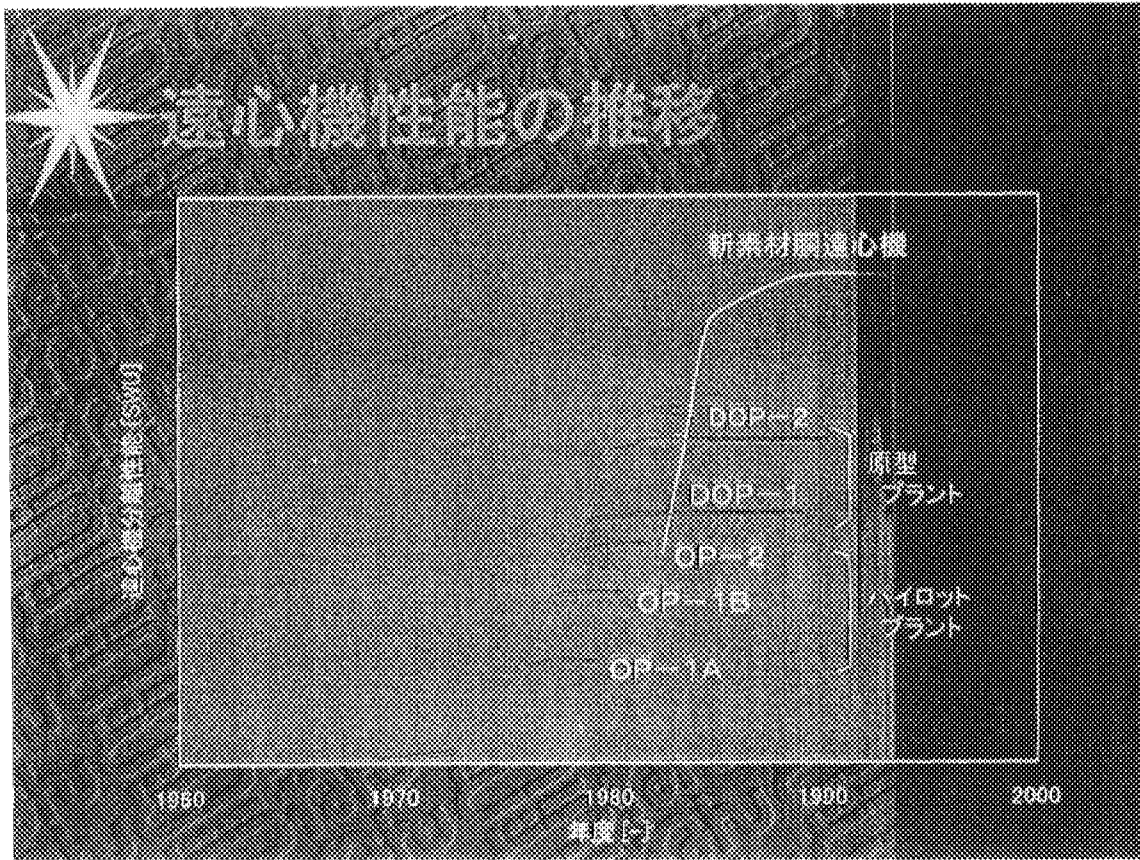
1. 予測技術体系の確立

計算科学の活用

直接シミュレーション技術の確立

基礎データの充実





This is a blank page.



# 国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
工率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10<sup>-19</sup>J  
1 u=1.66054×10<sup>-27</sup>kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バーン	b
バル	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10<sup>-10</sup>m  
1 b=100fm<sup>2</sup>=10<sup>-28</sup>m<sup>2</sup>  
1 bar=0.1MPa=10<sup>5</sup>Pa  
1 Gal=1cm/s<sup>2</sup>=10<sup>-2</sup>m/s<sup>2</sup>  
1 Ci=3.7×10<sup>10</sup>Bq  
1 R=2.58×10<sup>-4</sup>C/kg  
1 rad=1cGy=10<sup>-2</sup>Gy  
1 rem=1cSv=10<sup>-2</sup>Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクタ	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- E C関係理事会指令ではbar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

## 換算表

力	N(=10 <sup>7</sup> dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1Pa·s(N·s/m<sup>2</sup>)=10P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1m<sup>2</sup>/s=10<sup>4</sup>St(ストークス)(cm<sup>2</sup>/s)

圧	MPa(=10bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg(Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 <sup>3</sup>	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 <sup>-4</sup>	1.35951×10 <sup>-3</sup>	1.31579×10 <sup>-3</sup>	1	1.93368×10 <sup>-2</sup>
	6.89476×10 <sup>-3</sup>	7.03070×10 <sup>-2</sup>	6.80460×10 <sup>-2</sup>	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813×10 <sup>-1</sup>	0.737562	6.24150×10 <sup>18</sup>
	9.80665	1	2.72407×10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487×10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082×10 <sup>19</sup>
	3.6×10 <sup>6</sup>	3.67098×10 <sup>5</sup>	1	8.59999×10 <sup>5</sup>	3412.13	2.65522×10 <sup>6</sup>	2.24694×10 <sup>25</sup>
	4.18605	0.426858	1.16279×10 <sup>-6</sup>	1	3.96759×10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272×10 <sup>19</sup>
	1055.06	107.586	2.93072×10 <sup>-4</sup>	252.042	1	778.172	6.58515×10 <sup>21</sup>
	1.35582	0.138255	3.76616×10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506×10 <sup>-3</sup>	1	8.46233×10 <sup>18</sup>
	1.60218×10 <sup>19</sup>	1.63377×10 <sup>20</sup>	1.45050×10 <sup>-26</sup>	3.82743×10 <sup>-20</sup>	1.51857×10 <sup>-22</sup>	1.18171×10 <sup>19</sup>	1

1 cal= 4.18605J (計量法)  
= 4.184J (熱化学)  
= 4.1855J (15°C)  
= 4.1868J (国際蒸気表)  
仕事率 1 PS(馬力)  
= 75 kgf·m/s  
= 735.499W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 <sup>-11</sup>
	3.7×10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

第3回NUCEFセミナー講演報文集

1998年2月24日、東海研究所、東海村