

JAERI-Research

JP0150812

2001-048



ARTISTプロセス

– 使用済み核燃料の新規処理プロセス –

2001年10月

館盛 勝一

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、お申し越しください。なお、このほかに財團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）で複写による実費領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, 2001

編集兼発行　　日本原子力研究所

ARTIST プロセス

—使用済み核燃料の新規処理プロセス—

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部

館盛 勝一

(2001年9月12日受理)

使用済み核燃料 (SF) の新しい化学処理プロセス : ARTIST プロセス、を提案した。ARTIST プロセスの主要概念は、SF 中のアクチノイドを全て回収し、それらをウラン(U)と超ウラン元素(TRU)混合物の二つのグループに分けて暫定貯蔵し、その資源価値を維持する事である。その結果、廃棄物として地層処分をするのは核分裂生成物 (FP)のみである。この簡素な化学処理プロセスの主要ステップは二つ ; U の選択的回収工程と TRU の総合抽出工程 (これは核不拡散の要請と整合する)、であり、将来的に運転するプルトニウム分離工程とソフトな窒素ドナーによるランタノイド除去工程、そしてオプションとしての長寿命 FP 分離工程なども含む。分離した U 製品と TRU 製品はそれぞれ仮焼・固化し将来の利用時期までの間貯蔵する。全ての抽出工程において CHON 原則に合うアミド系抽出剤を用いる。本稿では、立体障害により U のみを選択的に抽出する枝分かれモノアミドや、三座配位特性により全ての TRU を強力に抽出するジグリコールアミド抽出剤 (TODGA) などの利用方法を説明して、ARTIST プロセスの技術的実現性を示した。LWR や FBR において Pu の燃料利用の要請がある時、あるいは加速器駆動システム (ADS) を用いる核変換が実行される時には、TRU 製品からそれぞれの用途に合った Pu (-Np)、あるいは (窒素ドナーにより) ランタノイドを除去した Am, Cm (-Np)を取り出せば良い。

ARTIST Process

- A Novel Chemical Process for Treatment of Spent Nuclear Fuel-

Shoichi TACHIMORI

Department of Materials Science
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 12, 2001)

A new chemical process, ARTIST process, is proposed for the treatment of spent nuclear fuel. The main concept of the ARTIST process is to recover and stock all actinides (Ans) as two groups, uranium (U) and a mixture of transuranics (TRU), to preserve their resource value and to dispose solely fission products (FPs). The process is composed of two main steps, an U exclusive isolation and a total recovery of TRU; which copes with the nuclear non-proliferation measures, and additionally of Pu separation process and soft N-donor process if requested, and optionally of processes for separation of long-lived FPs. These An products: U-product and TRU-product, are to be solidified by calcination and allowed to the interim stockpile for future utilization. These separations are achieved by use of amidic extractants in accord with the CHON principle. The technical feasibility of the ARTIST process was explained by the performance of both the branched alkyl monoamides in extracting U and suppressing the extraction of tetravalent Ans due to the steric effect and the diglycolic amide (TODGA) in thorough extraction of all TRU by tridentate fashion. When these TRU are requested to put into reactors, LWR or FBR, for power generation or the Accelerator-Driven System (ADS) for transmutation, Pu (Np) or Am-Cm (Np) are to be extracted from the TRU-product.

Keywords: Spent Fuel, Reprocessing, ARTIST Process, Monoamide, TODGA, TRU Elements, Interim Storage, Nuclear Proliferation Risk, CHON Principle, Partitioning

目 次

1. 序論 -----	1
2. 本論 -----	4
2.1 ARTIST プロセスの概要 -----	4
2.2 各工程技術の説明 -----	8
2.2.1 第1ステップ：ウランの選択抽出 -----	8
2.2.2 第2ステップ：TRU の総合抽出 -----	12
2.2.3 TRU とランタノイドの相互分離プロセス -----	14
2.2.4 その他のオプションプロセス -----	15
3. 考察 -----	15
3.1 再処理（Purex）抽出工程との比較 -----	15
3.2 暫定貯蔵系 -----	18
4. 今後の課題 -----	18
5. 結論 -----	20
謝辞 -----	20
参考文献 -----	21

Contents

1. Introduction -----	1
2. Description of ARTIST Process -----	4
2.1 Brief Explanation -----	4
2.2 Detailed Description of Each Processes -----	8
2.2.1 First Step: Selective Extraction of Uranium -----	8
2.2.2 Second Step: Complete Extraction of Transuramics -----	12
2.2.3 Group Separation of TRU and Lanthanides -----	14
2.2.4 Other Optional Processes -----	15
3. Discussion -----	15
3.1 Comparison with the Purex Reprocessing Process -----	15
3.2 Interim Storage System -----	18
4. Future Tasks -----	18
5. Conclusion -----	20
Acknowledgment -----	20
References -----	21

1. 序 論

使用済み核燃料 (SF) の再処理では、プルトニウム (Pu) の分離回収が主要な目的となっている。この化学操作の起源を歴史的にみると、シーボルグらが Pu を発見 (1941 年) した数ヶ月後に、ウラン(U) の 99% 以上を占める ^{238}U の中性子吸収によって得られる ^{239}Pu も核分裂連鎖反応を起こす事が明らかにされ、核兵器生産を主目的とした ^{239}Pu 回収化学操作；再処理 (最初は沈澱法、Fig.1, Fig.2) が出現した。その後、原子力の平和利用の中で、U を Pu に変換する事により得られる無尽蔵のエネルギーは、原子力を非常に魅力的なものとした。斯くて、Purex プロセスのみならず、最近提案されている SF の様々な処理法も全て、Pu の分離回収を基本としている。

しかしながら現在、我が国の原子力利用の基本路線である高速増殖炉開発は大幅に後退するとともに、プルサーマル導入も遅れている事から、当面は Pu の大きな需要はないと考えられる。一方、海外委託再処理からの返還プルトニウム (Pu) と、2005 年に運転を始める六ヶ所再処理施設から分離生産される Pu の蓄積は、我が国における「余剰 Pu」の対策が大きな課題となってくる事を予測させる (1999 年 12 月末現在の我が国所有の分離 Pu は海外分も含め約 33 トンである)。この課題および現行再処理技術が抱える「コスト高」への対策として、SF の長期貯蔵も一つの選択肢として考えられるようになった。この場合、一定期間貯蔵後に化学処理をする場合と、核燃料のリサイクル自体をあきらめて、SF の直接処分に進む場合の二つの選択肢がある。

一方、SF 処分の影響評価の視点からは、再処理からの高レベル放射性廃棄物 (HLW) の処分、あるいは SF の直接処分における「超ウラン元素 (TRU) 等の長寿命核種を地層処分するという超長期にわたる環境負荷をどう考えるか」といった議論がある。現在の我が国の HLW 全量ガラス固化・深地層処分戦略においては、TRU や長寿命 FP 核種の超長期影響は小さいと評価されている¹⁾。一方、原研などが進めているオメガ計画では、地球環境への超長期にわたる負荷を低減する事を目的に、これらの核種を地層処分せずに核反応で短寿命化あるいは安定化しようとしている (長寿命核種の群分離・核変換)²⁾。この概念は、当然、SF の直接処分ではなく再処理を前提としている。著者には、数 10 万年～数 100 万年後における「処分場」の地質学的安定性を評価する事は、地震や火山活動の将来予測技術の現状をみるにつけ、人間の現在知識レベルでは非常に困難に思える。したがって、SF の処理・処分に対しては、出来るだけ慎重な技術対応をすべきであり (処分方式の結論を急がない)、当面は、地球環境への超長期にわたる負荷低減を目指す「群分離・核変換技術」の開発努力をすべきと考える。重要な点は、目指すべき技術が、経済性、安全性、環境との調和の観点から実現性の高いものであるべきだということである。

群分離としての TRU の化学分離を検討する際には、最近の IAEA における議論；Pu, U のみならず核兵器への転用可能な ^{237}Np や ^{241}Am の単独分離の禁止措置³⁾、に留意すべきで

燃料（ウラン塊）
溶解液（硝酸）

Fig.1 Bismuth Phosphate Process at Hanford

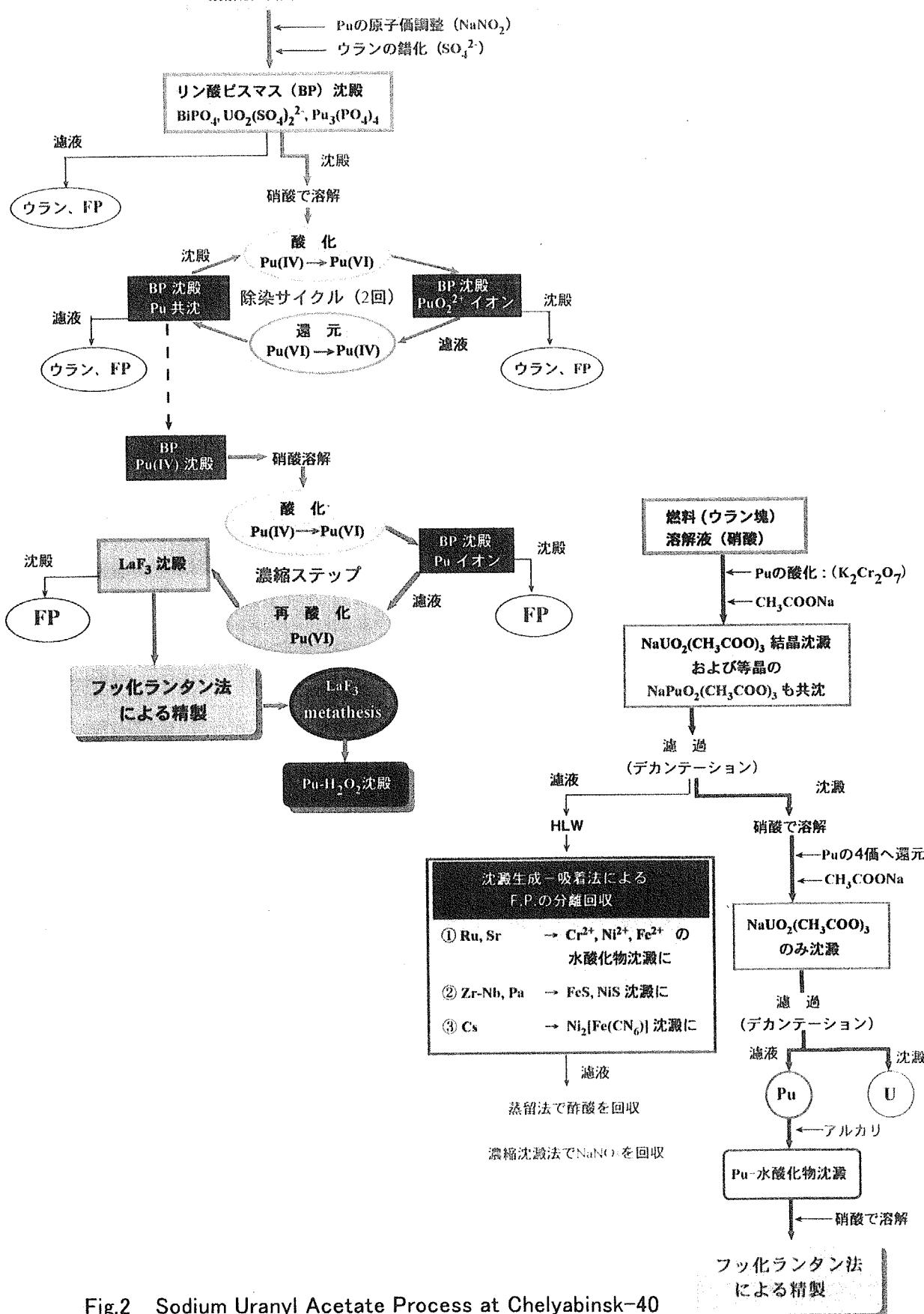


Fig.2 Sodium Uranyl Acetate Process at Chelyabinsk-40

ある。すなわち、これらの核種の臨界質量は、Table 1 に示すように金属-最適反射条件で 30~60kg であり、²³⁷Np の原子炉照射によって得られる ²³⁸Pu の臨界質量は 4~7kg と非常に厳しい⁴⁾。ちなみに SF 中に含まれるこれら核種の量は、PWR; 45,000 MWD /MT, 5 年間冷却燃料の場合、1 トン当たり ²³⁷Np: 630g, ²⁴¹Am: 410g, ²³⁸Pu: 270g である。したがって 100 トンの SF に含まれる Np, Am からは、物理的には核爆弾の原料が十分に得られることになる。これらを勘案し、処理スキームを構築する際には、TRU の単離は原則として避けるべきである。

Table 1 The physical characteristics of the main actinides present in a spent fuel from PWR.

Nuclides	Half Life (year)	Specific Heat (w/g)	Neutrons (n/g.sec)	* Burnup Yield (g/T)	*Total Heat (w/T)	**Critical Mass (kg)
U - 234	2.4×10^5	1.8×10^{-4}		1.95×10^2	0.035	18~19
	235	7.0×10^8		8.29×10^3		
	236	2.3×10^7		5.06×10^3		
	238	4.5×10^9		9.28×10^5		
Np- 237	2.1×10^6	2.2×10^{-5}	0.898	6.33×10^2	0.0136	31~55
Pu- 238	88	0.568	3.56×10^4	2.68×10^2	1.52×10^2	4.2~6.9
	239	2.4×10^4	1.92×10^{-3}	96	6.03×10^3	4.9~5.2
	240	6.5×10^3	7.10×10^{-3}	1.29×10^3	2.68×10^3	19~25
	241	14.4	3.20×10^{-3}	1.23	1.32×10^3	5.1~5.4
	242	3.9×10^5	1.13×10^{-4}	2.00×10^3	7.71×10^2	30~56
Am- 241	4.3×10^2	0.114	6.95×10^3	4.11×10^2	46.9	34~71
	$242m$	1.5×10^2	3.84×10^{-3}	-	0.79	4~5
	243	7.4×10^3	6.4×10^{-3}	5.41×10^2	1.71×10^2	36~96
Cm- 242	0.45	3.84	2.92×10^7	0.01	0.041	3~4
	243	28.5	1.90	1.33×10^5	0.468	
	244	18.1	2.83	1.16×10^7	55.7	
	245	8.5×10^3	5.7×10^{-3}	2.86×10^2	4.93	
	246	4.7×10^3	0.01	9.22×10^6	0.511	

* SF of Burnup: 45,000MWD/THM, cooling time : 5 years after discharge

** Critical masses of metallic form, steel reflected sphere.

ここまで述べた事柄を要約すると、

- 1) TRU を含むアクチノイド (An) の資源価値を有効利用する観点から、核燃料のリサイクル路線は追求すべきであるが、当面は Pu の分離・回収を急ぐ必要はない。原子力利用に伴い発生する SF の処理には、「 Pu の分離・回収」以上に、HLW の処理・処分の信頼性が求められている。
- 2) 放射性廃棄物処分系の信頼性を高めるため、地球環境への超長期にわたる負荷の低減を目指して、群分離・核変換技術の開発努力をすべきである。
- 3) 核不拡散性を高める観点から、SF の処理においては、 Np , Am の単離は極力避けるべきである。

本稿は、以上の基本認識の下で、著者が 21 世紀社会の要請 (Fig.3) に適合すると考える SF の処理法を述べたものである。すなわち、これらの条件を満足する化学処理プロセスとして、ARTIST プロセス : Amide-based Radio-resources Treatment with Interim Storage of Transuranics (アミドを用いた TRU 暫定蓄積を含む SF 処理プロセス) を提案し、その技術概要について述べる。

2. 本 論

2.1 ARTIST プロセスの概要

1980 年代以降、各種金属分離用抽出剤の分子設計研究が活発に行われるようになった。原研（抽出分離化学研究グループ）では、分子構造を意図的に変えた多数のモノアミドについて、再処理プロセスへの適用化研究をすすめ、いくつかの有用なモノアミドを報告してきた^{5), 6)}。また、ジアミド系化合物の分子設計により、新規な抽出剤；N,N,N',N'-tetraoctyl-3-oxapentane-1,5-diamide (以下 TODGA と略す) を開発した^{7), 8)}。TODGA は酸濃度の高い硝酸溶液から全ての An イオンを高収率で抽出する優れた特性を有する。これらアミド系抽出剤は、生体の主要元素である炭素(C)、水素(H)、酸素(O)、窒素(N)の 4 元素のみで構成されており、その廃棄処理では気体のみが発生し、環境負荷の小さい化学物質と云えよう (CHON 原則⁹⁾)。これら環境負荷の小さいアミド系抽出剤の、 An に対する優れた抽出性能を有効に利用すれば、前章に述べた SF 処理に関する今日的主要課題を解決する革新的プロセスを構築することができる。Fig.4 に ARTIST プロセスの全体像と主な物質フローを示す。ここでの SF の燃料特性は、初期濃縮度；3.9wt% の UO_2 燃料、燃焼度；PWR で 45,000MWd/tHM, 炉から取り出し後 5 年間冷却である。ARTIST プロセスでは、抽出剤としてジグリコールアミドなどのアミド系抽出剤を用いる。アミドの抽出剤利用は、1960 年代に既にジアルキルモノアミド : $R_1C(O)-NR_2R_3$ ¹⁰⁾ やジアミド : $R_1R_2N-C(O)-R_3-C(O)-NR_1R_2$ ¹¹⁾ が報告されている。アミドは、金属イオンに配位する電子供与性のカルボキシル基 (C=O) と、それと安定な結合を作る窒素原子を有している。この C(O)-N アミド結合は、生体がアミノ酸からタンパ

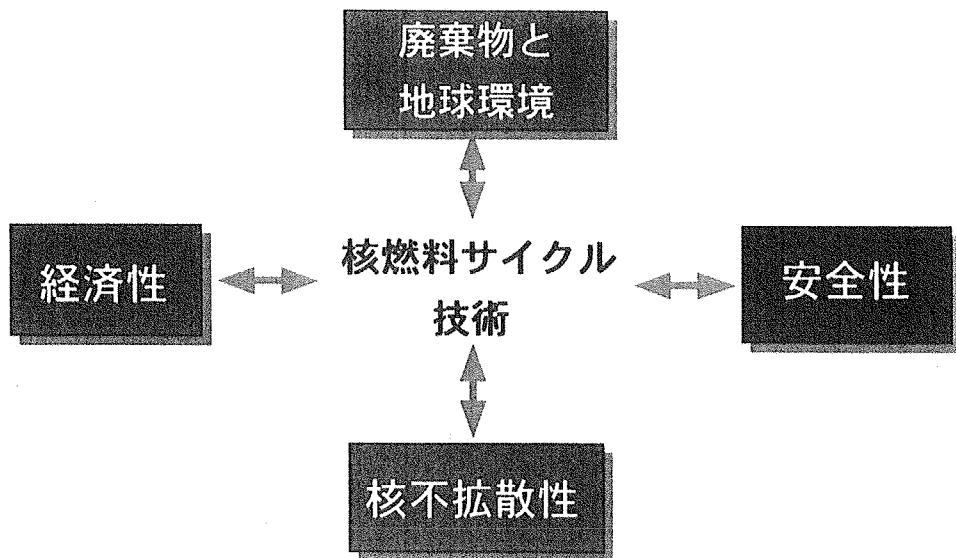


Fig.3 Four main requirements for the fuel cycle technology in 21st century.

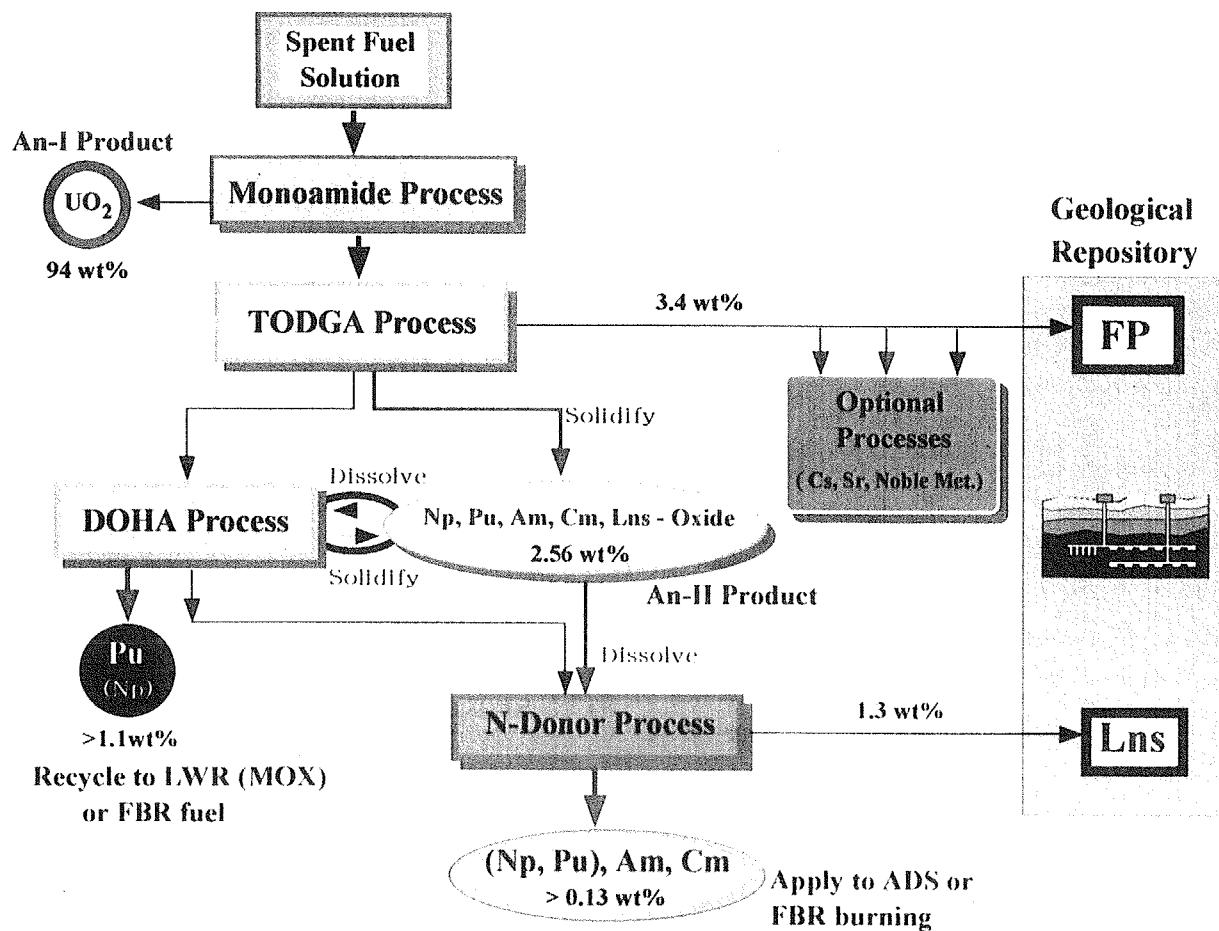


Fig.4 Materials flow in the ARTIST process.

ク質を合成する際に多くのアミノ酸の連結に利用している重要なものの（ペプチド結合）として良く知られている。今後開発する新規抽出剤は、自然環境と調和するこれらの生体物質類似の分子系を基本として設計することを考えている。本稿で取り扱う各種のアミド化合物の分子構造を Fig.5 に示した。

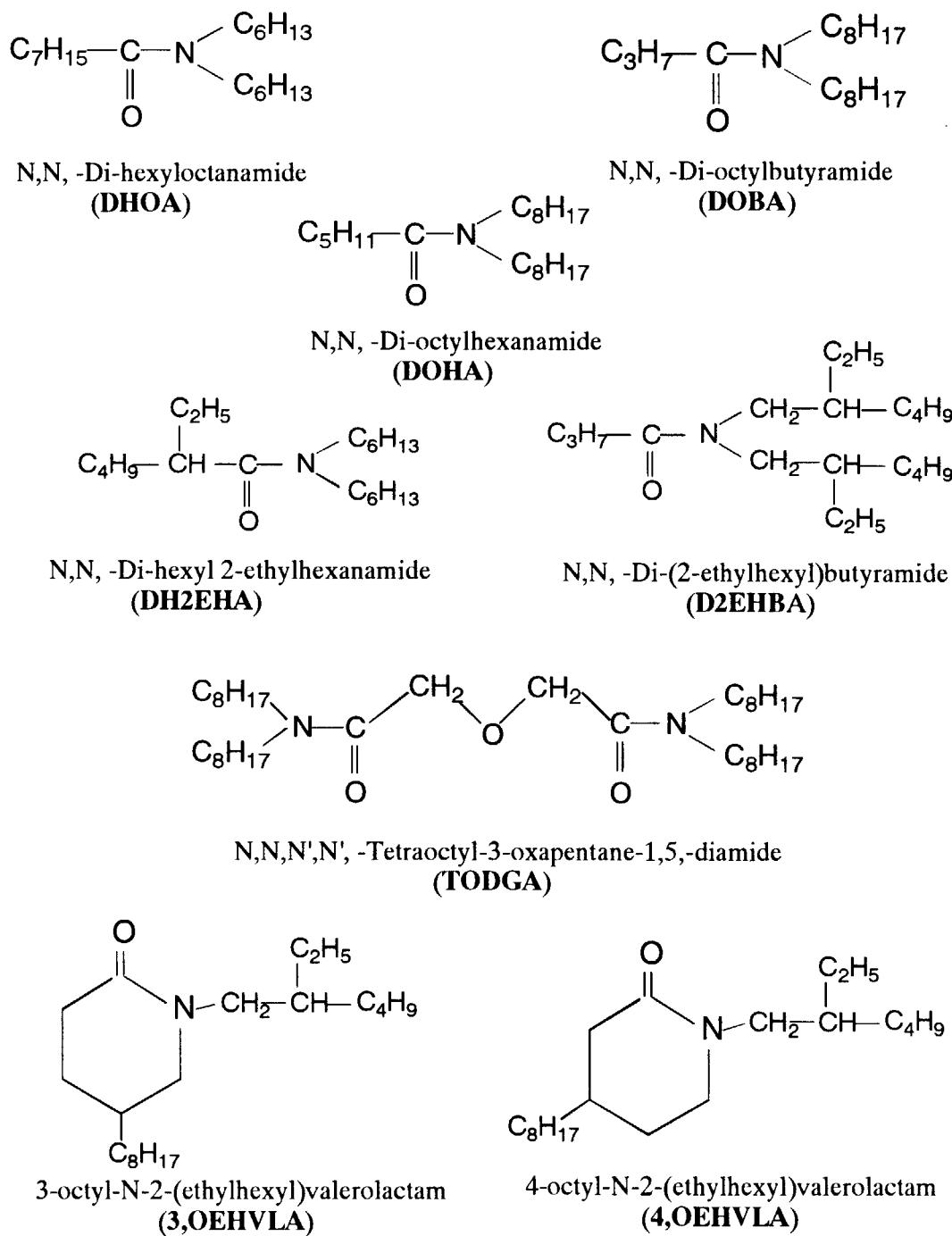


Fig.5 Amide molecules used in the present investigation

SF処理用のARTISTプロセス構築における第2の要点は簡素化による経済性追求である。そのため、ARTISTプロセスの第1ステップにおいて、放射能毒性がそれほど大きくなく、SFの約94wt.%を占め、後の分離工程（処理装置のサイズ）に大きな負担となるUのみを分離する。この概念は、最近提案されている様々な新規プロセスにおいて、Purexプロセスの前処理工程として採用されている（沈澱法¹²⁾、晶析法¹³⁾、フッ化物揮発法¹⁴⁾）が、Uの分離効率はいずれも高くはない。それに対してARTISTプロセスでは、Uの原子価状態で最も安定なU(VI)のみを選択的に抽出するモノアミド化合物：R₁C(O)-NR₂R₃を抽出剤として用い、99%以上のUを分離回収する。通常のモノアミド化合物は、An(VI)とAn(IV)の両者を抽出するが¹⁵⁾、モノアミド分子のアルキル鎖に枝分かれを導入すると、錯体形成において立体障害が現れ、6価の金属イオンに比べ4価の金属イオンの抽出分配比が大きく減少する^{16),17)}。この効果を利用すれば、硝酸溶液系で安定に存在するU(VI)のみを抽出してPu(IV)をはじめTRUを水溶液に残すことが出来る。その詳細は次章で述べる。分離したUは酸化物に転換して保管する(An-I製品)。ところでNpは硝酸溶液中では主にNp(V)とNp(VI)そして少量のNp(IV)として存在するので、Np(VI)はU(VI)と共に抽出される。それを避けるために第1ステップでは、還元剤を添加し全てのNpを抽出されないNp(V)に揃える。還元剤としてはロシアのKolutunovらによって開発されたヒドラジン系化合物やヒドロキシルアミン系化合物がある¹⁸⁾。ARTISTプロセスの第2ステップは、U以外の残り全てのTRU(Np, Pu, Am, Cm)の全抽出である。これは前章でも論じたように、当面はPu分離回収の要請が無い事、廃棄物の地層処分系にTRUを持ち込まない（核変換処理も展望している）事、そしてTRU資源の将来利用を考慮しているからである。ここでは三座のジグリコールアミド(TODGA)を主要な抽出剤として用いる。この抽出剤は、濃度が1M以上の硝酸水溶液から全てのアクチノイドを効率良く抽出できる⁸⁾。また、TODGAはランタノイド(III)：Ln(III)をも抽出するため、得られる製品中にはAnとLnが含まれる。これは貯蔵のため、仮焼処理して酸化物とする(An-II製品)。その後の化学処理を考慮すれば、仮焼温度を低くして酸化物の再溶解が容易にできるようにする。SF中に含まれていた多くの核分裂生成物(FP)は第2ステップのラフィネート(廃液)中に残されており、これは地層処分するために脱硝・固化される。以上の操作では、Fig.4に示すようにAn-I製品(SFの94wt%に相当)とAn-II製品(SFの2.56wt%に相当)が得られる。「暫定備蓄用TRU」として保管されるAn-II製品は、複雑な元素組成を有し強い放射線源（ガンマ線、中性子線）であることから、窃盗や核兵器への転用は非常に困難であって大きな核拡散抵抗性を有する。

An-II製品のその後の取り扱いには二つの選択肢が考えられる。その第1は、Puのエネルギー利用の必要（プルサーマル利用やFBRでの燃焼）が生じた時であり、An-II製品から必要量のPu(-Np)を分離回収してそれに当てる。その際の実用的分離法としては、溶媒抽出

法（CHON 原則に沿った抽出剤ではモノアミド）がある。Pu のみを分離したい場合には第 1 ステップと同様に還元剤を添加して Np は全て抽出されない Np(V) に揃える必要がある。Np を Pu と共に回収する場合は、酸化性条件下で Pu(IV) と Np(VI) を共抽出すればよい。An-II 製品の第 2 の処理ルートは、将来的な廃棄物処分オプションである An の核変換処理（加速器駆動システム；ADS や FBR での核分裂反応）が採用される時ものであり、その場合は An-II 製品中の Ln を除去する必要が生じる。その目的のためには、現在開発中の窒素ドナー等のソフト配位子を用いて、変換方式の要請に応じた程度の Ln 除去を行う。ここで分離された Ln もやはり固化して廃棄処分する。

以上 2 つの主工程とその後に続く追加工程の総合を ARTIST プロセスと呼ぶ。ここで地層処分の対象とした FP フラクションには、発熱量の大きな ^{90}Sr - ^{90}Y や ^{137}Cs - ^{137}Ba が含まれる。これらの発熱量は FP フラクション全発熱量の 80% 以上を占めるので、これら核種を分離すれば、残りの FP 廃棄物の処分条件が大きく緩和され、処分場の合理化に役立つという主張がある¹⁹⁾。また FP フラクションには長寿命の ^{99}Tc , ^{126}Sn , ^{79}Se , ^{135}Cs , ^{93}Zr が含まれる（Table 2, Fig.6）。したがって、ARTIST プロセスにおいては、これらの核種（元素）を要請に応じて回収する【分離モジュール】を、オプションとして第 2 ステップの廃液フローに設置する提案も含んでいる。もちろんそれは簡素な工程であり CHON 原則に合っている必要がある。

上に述べた、第 2 ステップ後の「An-II 製品の固化」は、当面の「TRU が積極的に燃焼や核変換処理されない時期」を前提にしている。もし、例えば将来の「Pu の燃料利用が本格的に実施されている時期」を想定すると、第 2 ステップからの TRU 溶液の一定量を（固化処理を経ないで）直接「Pu 回収プロセス」に流して Pu (Np) を回収する。これは Fig.4 に黒線で示した。「Pu 回収プロセス」からのラフィネートとこのプロセスを通さなかった溶液は、固化して An-II 製品にする。しかし、ここでも、「核変換処理が本格的に実施されている時期」にあっては、固化工程を経ないで直接「N-ドナープロセス」に進む。

2.2 各工程技術の説明

2.2.1 第 1 ステップ；ウランの選択抽出

抽出剤であるモノアミド分子は、C=O 基と窒素の隣にアルキル基を持っている。これらアルキル基に枝分かれを導入すると、An と結合する C=O 基の近くにアルキル鎖がくることにより立体障害が生じ、An 抽出が抑制される。この枝分かれ効果はアシル基のアルキルと窒素側のアルキル基では異なり、C=O に近いアシル基の方が効果は大きく現れる。また、抑制は An(VI) よりも An(IV) に対して大きく働く。そこで、適切な枝分かれモノアミド分子

Table 2 The main characteristics of the long-lived fission products present in a spent fuel from PWR

Fission P. Nuclides	Half Life (year)	Burnup Yield (g/T) *	Specific Activity (Bq/g)	Effect. D. C. for Ingestion (Sv/Bq) **	Isotopic %*	Total Mass of Element (g/MT) *
¹⁴ C	5.7×10^3	(0.13 ***)	1.05×10^{11}	5.8×10^{-10}	100	(0.13 ***)
⁷⁹ Se	6.5×10^4	6.155	2.58×10^9	$F 2.9 \times 10^{-9}$ $M 3.9 \times 10^{-10}$	8.48	72.6
⁹³ Zr	1.5×10^6	9.58×10^2	9.3×10^7	2.8×10^{-10}	19.8	4.83×10^3
⁹⁹ Tc	2.1×10^5	1.05×10^3	6.3×10^8	7.8×10^{-10}	100	1.05×10^3
¹⁰⁷ Pd	6.5×10^6	3.12×10^2	1.9×10^7	3.7×10^{-11}	15.8	1.98×10^3
¹²⁶ Sn	1.0×10^5	30.6	1.0×10^9	7.7×10^{-9}	43.0	71.1
¹²⁹ I	1.6×10^7	2.42×10^2	6.5×10^6	1.1×10^{-7}	81.8	2.96×10^2
¹³⁵ Cs	2.3×10^6	5.22×10^2	4.2×10^7	2.0×10^{-9}	14.8	3.53×10^3

* SF of Burnup: 45,000MWD/THM, cooling time : 5 years after discharge

** Effective dose coefficients for ingestion (time period: 50 y) : from ICRP Publication 68, Annexe B
Table B.1 (1994).

*** These values are for a SF of burnup 33,000MWD/THM, 3 years cooling.

を選定すれば、最も安定な原子価である U(VI)のみを抽出し、Pu(IV)をはじめ他の原子価の An を抽出しないように出来る。我々の実験結果を示す。直鎖アルキル基を有する N,N, -di hexyloctanamide (DHOA) および N,N, -di octylbutanamide (DOBA) の U(VI), Pu(IV), Np(VI) の抽出特性と、枝別れアルキル鎖を有する N,N, -di hexyl 2-ethylhexamide (DH2EHA) アシル基のアルキル鎖に枝分かれ) と N,N, -di (2-ethylhexyl) butamide (D2EHBA: 窒素のアルキル鎖に枝分かれ)のそれを Fig.7、Fig.8 に示す²⁰⁾。Fig.7 から分かるように、直鎖のアルキル基を有する DHOA と DOBA の抽出系では、それぞれの An を分離することは困難である。ところが枝分かれアルキル鎖を有するモノアミドでは、Fig.8 で示されるように、6 倍の An に比べ Pu(IV) の分配比は 1 ケタ以上低くなっている。もちろん、4 倍の An よりも An(III), An(V) はさらに抽出されない。Fig.8 はまた、U(VI) と同様に Np(VI) も抽出されることを示しており、Np を U(VI) から分離するには、還元剤を用いて Np(VI) を非抽出性の Np(V) としなければならない。Table 3 は、1.5mol/dm³ (以後 M と表記する) DH2EHA- ドデカン-3M HNO₃ 抽出系における各 An の分配比および平衡時の有機相中 U(VI) の濃度である。**a**) では全ての An の水相初期濃度はトレーサー量であり、**b**) では、初期の水相に 0.5M (120g /dm³) の U(VI) とトレーサー量の Pu(IV), Np を含みかつ Np(VI) の還元剤として 0.02M の Acetohydroxamic acid (AHA) が添加してある。Table 3 から、AHA を添加すれば U のみが抽出され、Np と Pu (3 倍にまで還元されるようである) は抽出されないことが確認できる。

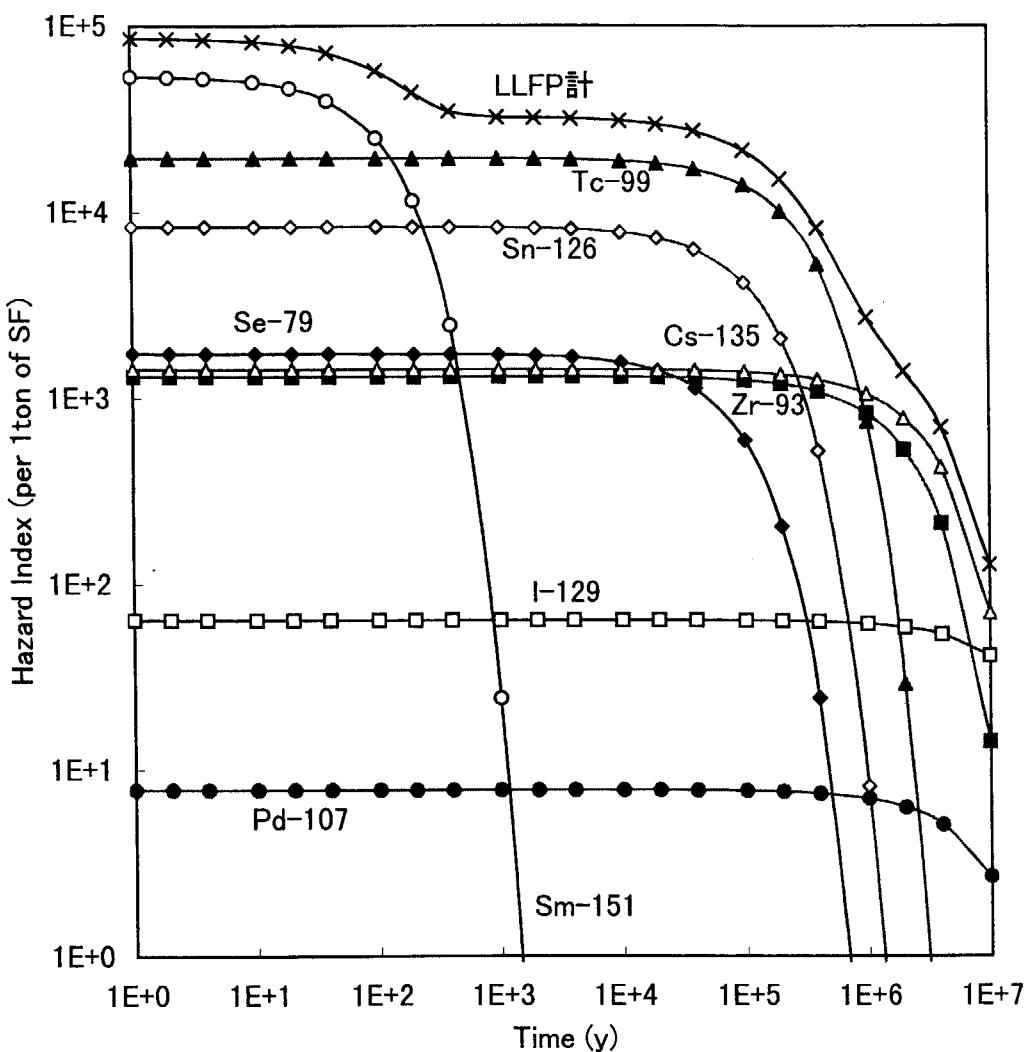


Fig.6 Radiotoxicity of long-lived fission products in HLW varying with elapsed time.
(expressed by Hazard Index).
Burnup: 33,000MWd/T, 99% of Iodine is removed at reprocessing process.
Hazard Index = Radioactivity (Bq/Ton)/ALI (Bq), ALI = 0.02/ Effect. dose coefficient.

Table 3 Distribution ratios of actinides with various valency states in 1.5M DH2EHA-n-dodecane and 3M HNO₃ systems.

- a) without U(VI) in the initial aqueous phase,
- b) with 0.5M U(VI) and 0.02M acetohydroxamic acid in the initial aqueous phase.

Amide		Initial Aqueous C_{U6} (mol/dm ³)	D_{U6}	D_{Pu4}	D_{Np6}	D_{Np4}	D_{Np5}	Extracted C_{U6} (g/dm ³)
DH2EHA	a)	0	8.44	1.17	6.24	0.24	<0.01	0
	b)	0.5	3.53	<0.01	—	—	<0.01	92.8

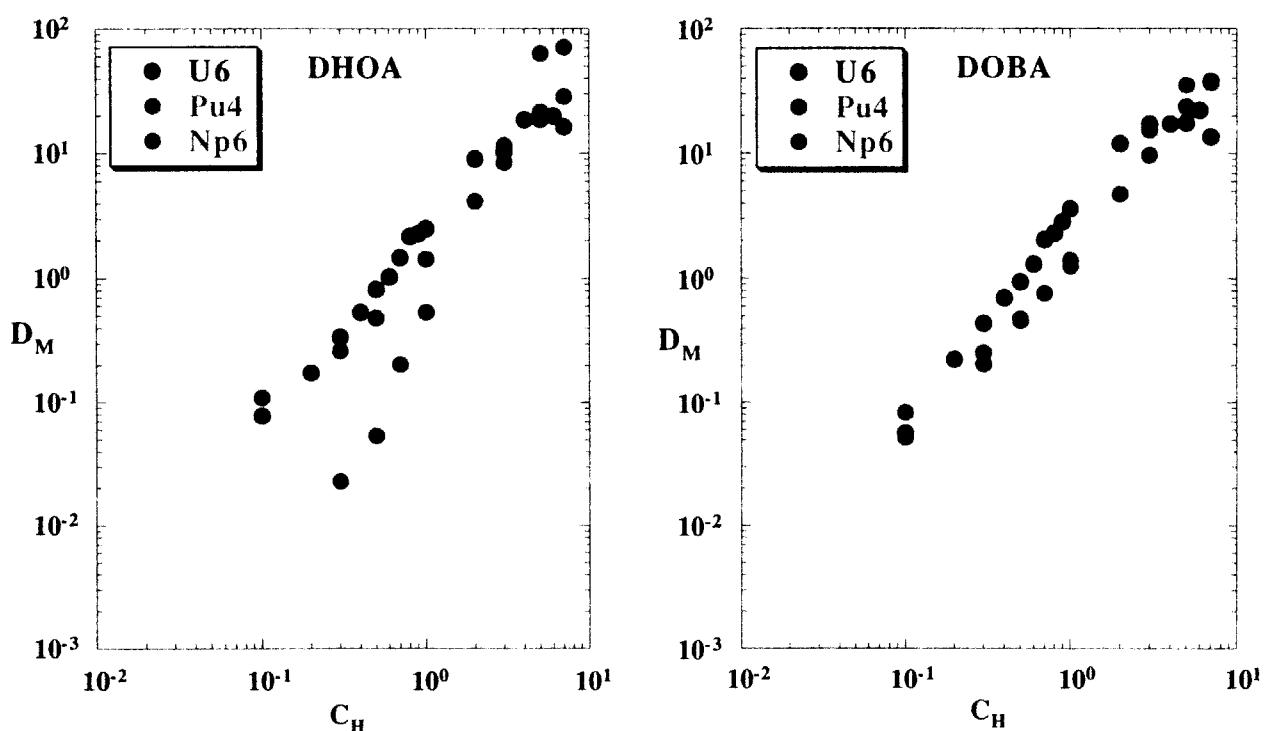


Fig.7 Extraction properties of di n-alkylmonoamides (DHOA, DOBA) for U(VI),
Pu(IV) and Np(VI).

Organic solvent: 1M extractant in n-dodecane.

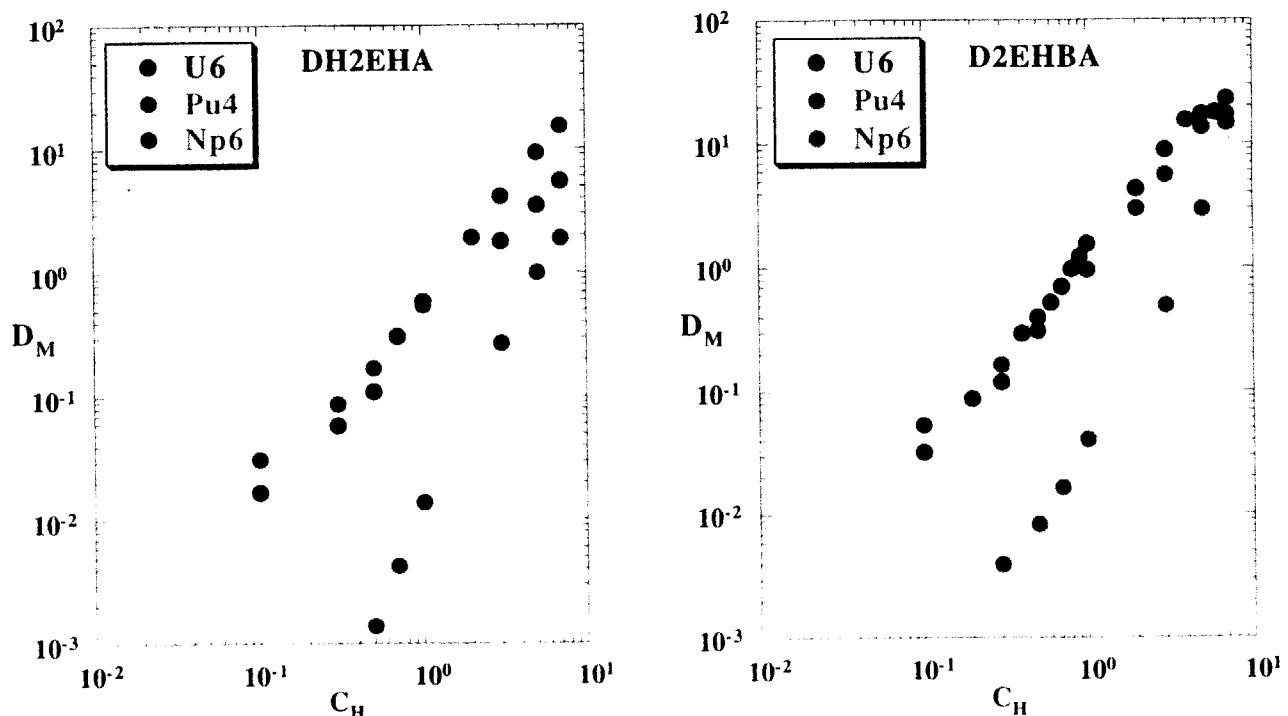


Fig.8 Extraction properties of di branchedalkylmonoamides (DH2EHA, D2EHBA)
for U(VI), Pu(IV) and Np(VI). Organic solvent: 1M extractant in n-dodecane.

NpはNp(IV)にまで還元されたとしても、TBPとは異なりこの系では抽出されることはない。また、モノアミドはTBPとは違って抽出剤の比重が小さく(DH2EHA; $d \approx 0.86$)、この系ではPu(IV)が抽出される条件が生じないためPuの蓄積現象は起きない。したがって、抽出剤濃度を増して有機相のU(VI)負荷量をかなり増大できるという大きな利点を有する。モノアミドのFPに対する除染能力はTBPのそれとほぼ類似しており、特に有機相のU(VI)負荷量を増すことにより、U製品における大きなFP除染係数が達成できる。しかしながら、TcのふるまいはTBP抽出系でみられると同様に例外的であり、その分離回収法については以下の2.2.4章で述べる。

2.2.2 第2ステップ；TRUの総合抽出

全てのTRUを抽出するためのCHON原則—抽出剤としてTODGAを用いる。この抽出剤は、高レベル廃液のような硝酸濃度の高い水溶液から、全てのAnを抽出する(Fig.9)。この図から、TODGA抽出の特徴として、An(III)とAn(IV)については、硝酸濃度が0.2～0.5M以上になると分配比が急激に増大し、Np(V): NpO_2^+ , U(VI): UO_2^{2+} などのアクチニルイオンではこの現象が見られないことがわかる。抽出データから推定される抽出に関する抽出剤分子の数は、前者において金属イオン1個当たり3～4と大きく、後者では1～3の範囲である。この事から、硝酸濃度が高い領域における3、4価イオンの抽出では、金属イオンの内圈のみならず第二配位圏においてもいくつかのTODGAが配位しており、それが硝酸分子により促進され、分配比の増大に寄与していると考えられる。アクチニルイオンでは配位方向が赤道面に限られるために、そのような硝酸分子が組み込まれた化学種は生成し難いと考えられよう。

TODGAはまた、CMPOなど他の二座配位抽出剤と同様に、FPの中のLn(III)とZr(IV)も抽出する^{7),8)}。Zr(IV)はシュウ酸等により抽出抑制あるいは有機相から洗浄・除去できる。以上の事からTODGAプロセスは、高純度に分離されたAnの生産ではなく、全てのTRUとLnを含んだ混合物製品を生産するプロセスであり、核拡散への抵抗性に富んだ製品を生み出すという意味で、ARTISTプロセスの中核に位置する。

Fig.9から解るように、水相の硝酸濃度が3Mであるとすると、TODGA濃度は約0.1～0.2Mで分配比(D)の大きさが適当であり、それよりも大きくなり過ぎると逆抽出に困難をきたす。ARTISTプロセスでは、第1ステップ(モノアミド工程)を通過した水相流(ラフィネート)は第2ステップ(TODGA工程)のフィード液となる。もし、第1ステップのフィード液においてU濃度を1.5M(360gU/dm^3)としたとすると、各フラクションの元素組成図(Fig.10)に示すように、第2ステップで抽出されるところの成分(Pu, Np, Am, Cm, Ln)の濃度は($1.5 \times 0.025 =$)0.038Mである。これが第2ステップに来る時には～0.03Mに希釈されよう。この濃度の抽出対象金属を0.2M TODGA溶媒で抽出するには、水相流量に対する有機相流量

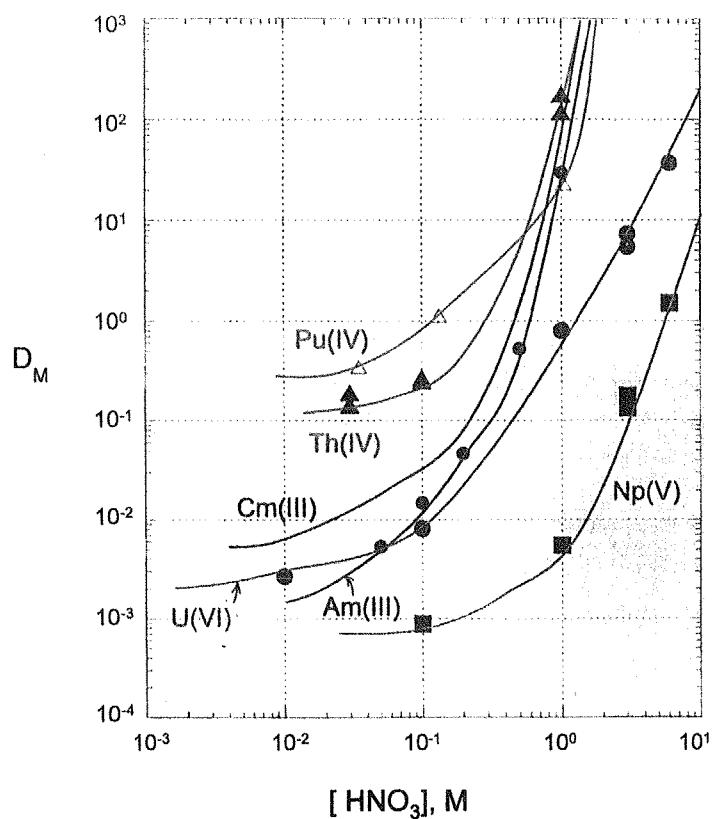


Fig.9 Variation of distribution ratios of actinides (D_M) in various valency states with TODGA as a function of aqueous nitric acid concentration.
Organic solvent: 0.1M TODGA in n-dodecane

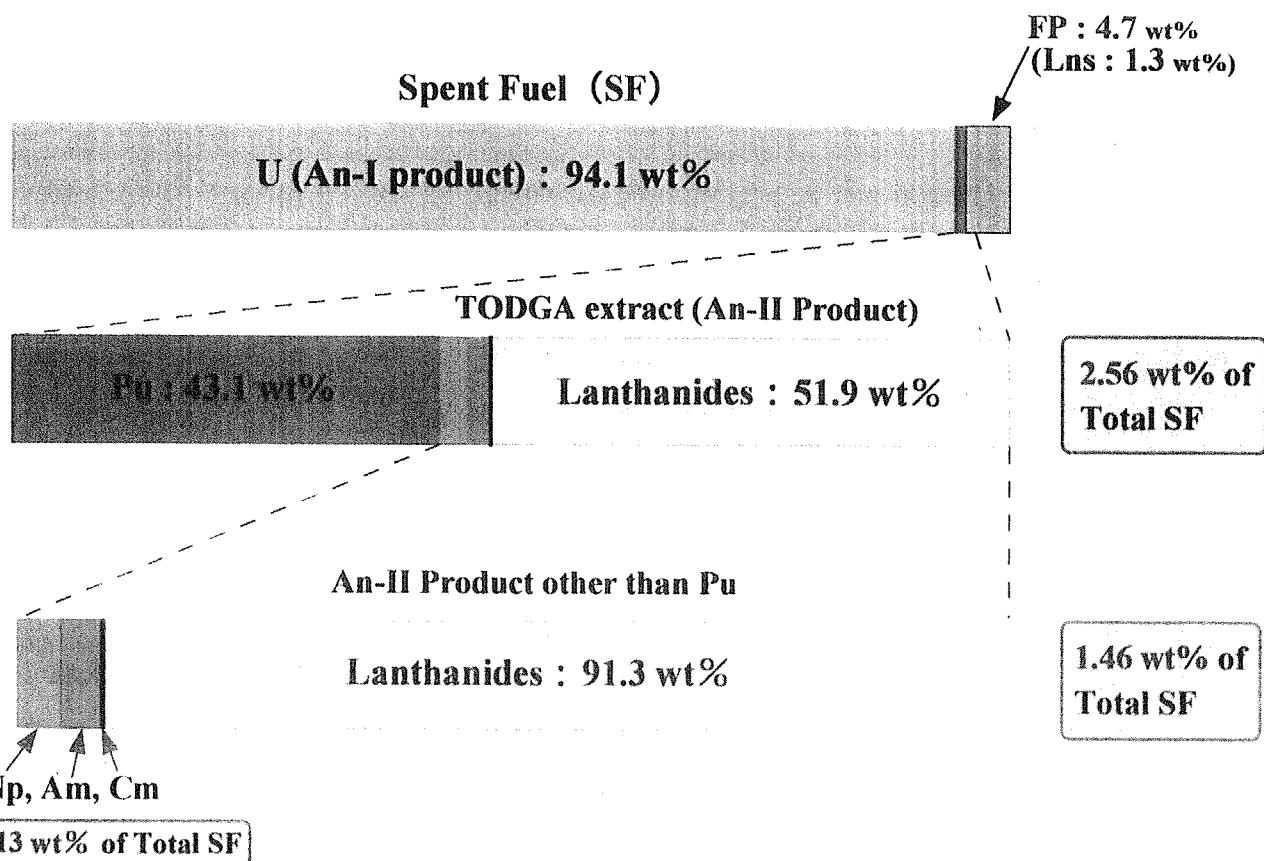


Fig.10 Compositions of the main fractions in the ARTIST process.

の比率をほぼ 1/1 にすればよい（有機相の金属負荷容量の測定より）。第 1 ステップの水相流量が比較的大きい事と、溶液流量が工程規模等のコストに直接影響する事を考え、ここで提案する方法は、

- 1) 第 1 ステップからの水相流を濃縮減容して、第 2 ステップの水相流量を（結果的に有機溶媒流量も）減らす。
- 2) 抽出対象金属の中の Pu と Np の重量が全体の約半分を占める事（Fig.10）と、Pu(IV), Np(IV), Np(VI)がより安価なモノアミドでも十分抽出できる事から、第 2 ステップの抽出剤は混合溶媒とする。すなわち、TRU 金属各々の抽出をモノアミド（Pu, Np）と TODGA（Am, Cm, Ln）に分担させる。

具体的には、«1M DOHA- 0.2M TODGA- ドデカン»溶媒が考えられる。モノアミドが共存すると TODGA の放射線分解が保護されることも解っており²¹⁾、今後、この混合溶媒の抽出特性（各元素の分配比、抽出容量など）を詳細に調べ、1) のフィード液の濃縮限度との関連を明確にする必要がある。

2.2.3 TRU とランタノイドの相互分離プロセス

現在、TRU(III)と Ln(III)の有効な分離法を求めて、我々を含め世界中で熾烈な開発競争が行われている²²⁾。その動機は、化学的性質が極めて似ている 4f 元素と 5f 元素の分離とその理論的説明というアカデミックな関心と、高レベル廃棄物処分のための必要性と云った両側面がある。提案された分離法は、TRU(III)に選択的に働く配位子の水溶性、脂溶性等の因子により 2 つの方法に分類される。すなわち、1) TRU を水相に、Ln を有機相に導いて分離する方法と、その反対に 2) TRU を有機相に、Ln を水相に導いて分離を達成する方法、である。前者には Diethylenetriaminepentaacetic acid (DTPA) を用いる Talspeak 法²³⁾や米国アルゴンヌ国立研究所の Nash らが開発した N,N,N',N' -Tetra(methylpyridyl) ethylenediamine (TPE) を用いる方法²⁴⁾等があり、Ln を抽出する抽出剤との併用が必要である。また後者には、窒素ドナー系の 2,4,6 Tri (pyridin-2-yl)-1,3,5-triazine (TPTZ) 系化合物や 2,6-Bis-(5,6-di n-propyl-1,2,4-triazin-3-yl)-pyridine (nPr-BTP) を用いる仏国の SANEX プロセスがあり²⁵⁾、硫黄系ドナー物質の Bis (2,4,4 trimethyl pentyl) dithiophosphinic acid (HBTMPDTP)²⁶⁾や Bis (chlorophenyl) dithiophosphinic acid²⁷⁾を用いるものがある。これらは十分に大きな Am(III)/Ln(III) 分離係数を与えるが、安定性に問題があったり、高レベル廃液のような硝酸濃度の高い水溶液系に適用できるものはまだ無い。ARTIST プロセスでは、「窒素ドナープロセス」のフィード液は、An-II 製品（酸化物）を溶解した溶液では、その硝酸濃度は高くない (< 0.5M) が、固化工程を経ずに「Pu 回収プロセス」からのラフィネートを対象にする場合は、硝酸濃度は比較的高い (> 0.5M)。したがって、そのような条件で An(III)のみを抽出する窒素系配位子の設計が課題である。

2.2.4 その他のオプションプロセス

ARTIST プロセスにおいては、第 2.1 章で論じたように発熱性核種 (^{90}Sr - ^{90}Y 、 ^{137}Cs - ^{137}Ba) や長寿命 FP (^{99}Tc , ^{126}Sn , ^{79}Se , ^{135}Cs , ^{93}Zr) の分離工程も導入可能であり、それは主として第 2 ステップ (TODGA プロセス) の抽出ラフィネートが対象となる (Fig.4 を参照)。したがって、それら工程のフィード液は比較的酸濃度の高いものとなる。Sr、Cs の分離法では、中性あるいはアルカリ性溶液を対象としたものが多く知られているので²⁸⁾、酸濃度の高い系で有効な吸着剤や抽出法の開発が重要になる。CHON 原則に沿う抽出剤として、我々は現在ジグリコールアミド系抽出剤 (Sr 対象) とカリックスクラウン (Cs)²⁹⁾を調べている。吸着剤では Cs に有効なシリコチタネット (CST; 米国で開発された)³⁰⁾を調べている。

ところで ^{99}Tc の分離は第 1 節で触れた通り他の元素と異なっていて、第 1 ステップ (U 抽出工程) で取り扱わざるを得ない。それは、TBP 抽出系でも共通に見られる TcO_4^- イオンの U, Pu, Zr 等との共抽出機構に起因する。そのため、第 1 ステップにおいて抽出錯体中の TcO_4^- を NO_3^- か他の陰イオンにより置換して TcO_4^- の抽出を抑える。著者は、再処理工場における Tc の挙動制御法に関する詳しい検討結果を報告している³¹⁾。六ヶ所再処理工場では、Tc の分配工程への移行を抑えるため、高濃度硝酸水溶液による Tc の除染工程が設置されている。これらの再処理工場では、 ^{99}Tc は単に除染の対象とみなされているが、その半減期の長さ (2.1×10^5 年) と大きな移行速度や毒性 (Fig.6) から、群分離・核変換の主要な FP 対象核種である。我々はアミド抽出剤による TcO_4^- の抽出を検討した。1 例として、当グループで開発した環状アミド混合物 ; 3-octyl-N-2-(ethylhexyl)valerolactam + 4-octyl-N-2-(ethylhexyl)valerolactam (略して 3,4,OEHVLA) の TcO_4^- 抽出特性を他の環状アミドの特性と共に Fig.11 に示す^{6), 32)}。3,4,OEHVLA は合成の際にこのような混合物で得られる (Fig.5)。Fig.11 から解る事は、3,4,OEHVLA による TcO_4^- の抽出は硝酸イオンにより抑えられるが、相当高い濃度の硝酸でなければ逆抽出できないということである。逆抽出に有効なのは、炭酸アンモニウムあるいは硝酸アンモニウム水溶液であることが解っている。これらの知見を総合して考えられる ^{99}Tc の分離フロー図を Fig.12 に示す。

^{129}I の分離回収技術は、既に Purex 再処理施設の前処理工程に付随して開発が進んでいるので、同様の方法は ARTIST プロセスの前処理工程にも適用出来る。

他の長寿命 FP ; ^{126}Sn , ^{79}Se , ^{93}Zr の分離の必要性については、今後の検討課題である。

3 考察

3.1 再処理 (Purex) 抽出工程との比較

ARTIST プロセスは、従来の再処理工程に群分離工程を付加する概念に対し、簡素化により実現性の向上をめざした両者の統合プロセスである。すなわち、ここで考察する“比較”は、ARTIST プロセス (Fig.4) の《第 1 : モノアミド工程 - 第 2 : TODGA 工程 - 第 3 :

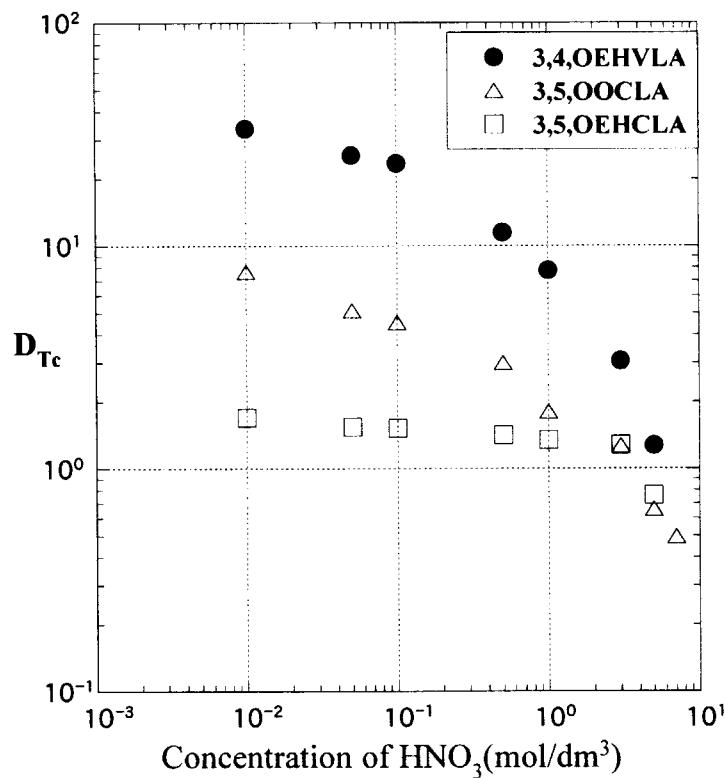


Fig.11 Variation of distribution ratios of Tc(VII) (D_{Tc}) with various cyclic amides as a function of aqueous nitric acid concentration. Organic solvent: 1M extractant in n-dodecane.

DOHA 工程》までと、現行再処理 (Purex) プロセスの両者について行う。ARTIST プロセスに関して SF 処理系 とみなす 3 つの工程に限る理由は、他の FP 分離オプション工程や N-Donor 工程は、廃棄物処分系 の一部と考えられ、例えば、「群分離・核変換システム」を他の廃棄物処分系と比較する際に、その中に含めて行うべきと考える。ところで比較において最も重要な因子はコストである。信頼出来るコスト評価を行うには、全体の概念設計あるいは詳細設計レベルまでの具体化が必要である。もちろん、ARTIST プロセスはまだ概念を描いているにすぎず、ここで述べるのは非常に大まかな議論である。すなわち、建設・運転コストを想定した時のいくつかの特徴的事柄のみを以下に列挙する。

- 1) 六ヶ所再処理施設では、分離工程は 3 サイクルから成るので、ARTIST プロセスは同じ 3 サイクルから成るといえる。
- 2) Purex 工程では TBP の最適濃度が 30vol%である。そして、Pu のリフラックス蓄積現象を避けるために有機溶媒への U 負荷度が制限され、全処理液量は多くなっている。一方モノアミドは比重が小さいので抽出剤濃度を大きくし、有機溶媒への U 負荷量をさらに増大できる。したがって ARTIST-第 1 工程全体の溶液流量を削減できる。
- 3) DOHA 工程のフィード液は、An-II 製品の溶解液あるいは TODGA 工程の逆抽出液（希硝酸溶液）である。したがって硝酸、Pu 濃度の調整可能範囲は広い。さらに、第三相

1st Cycle of the ARTIST Process

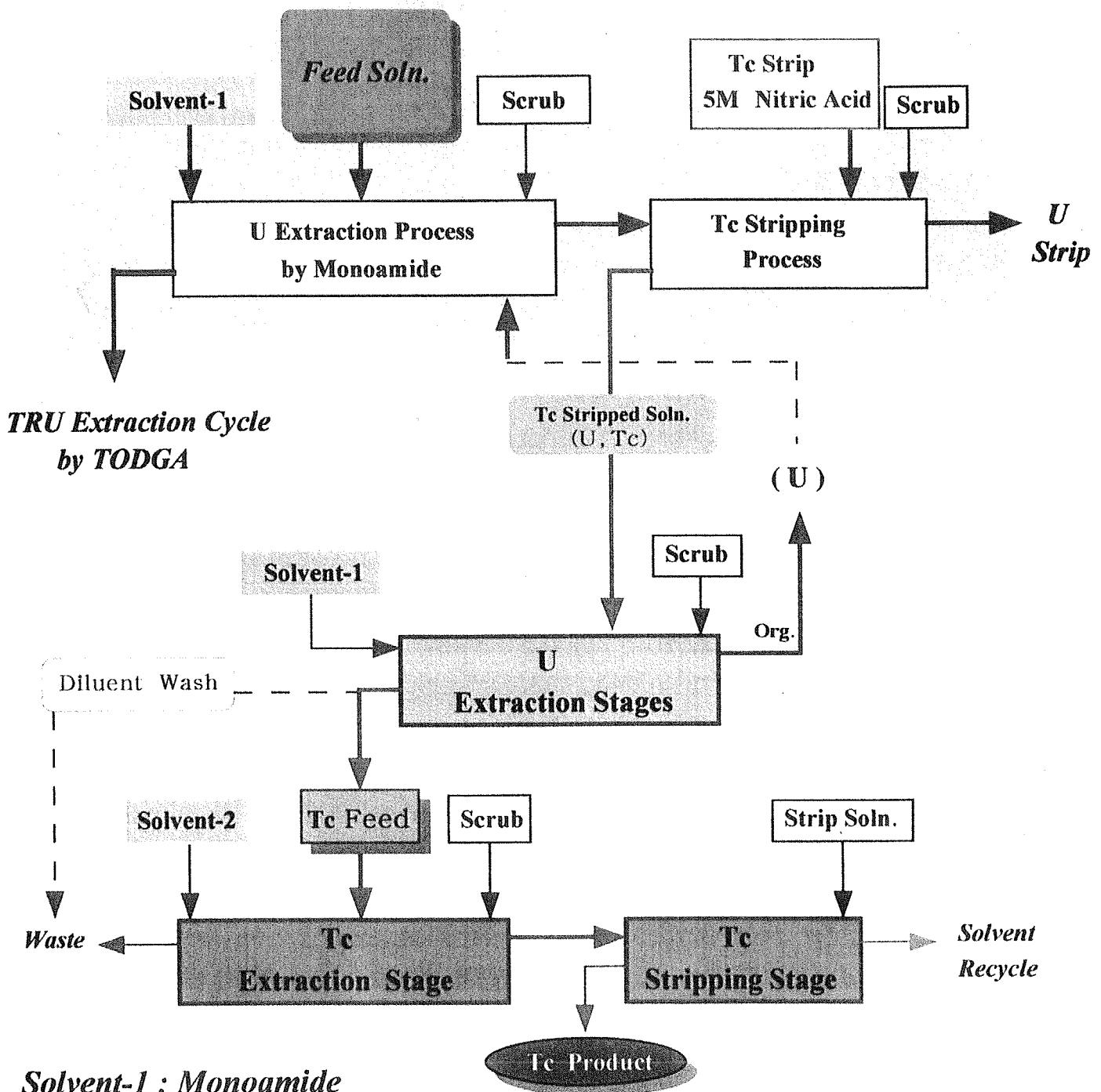


Fig.12 Flow scheme of ^{99}Tc recovery process attached to the 1st step of the ARTIST process

生成条件は TBP 工程の方が厳しく、有機相の Pu 濃度は高度に制御される。これらの事から、工程の全溶液量は DOHA 工程の方が少ない。

- 4) Purex 工程には、Pu の酸化還元処理装置や高性能の溶媒洗浄工程が必須であるが、ARTIST プロセスでは、前者は不要であり、溶媒の洗浄は低頻度で行えばよい。
- 5) ARTIST プロセスからは、廃溶媒としてアミド化合物とドデカンの混合物が排出される。これらは焼却により気体となり固体廃棄物は生じない。Purex 工程の廃溶媒処理では、リン化合物対応の高度処理技術が必要で、固体廃棄物を生じる。

3.2 暫定貯蔵系

ARTIST プロセスの特徴の一つは、An-II 製品の暫定貯蔵を行う点である。貯蔵形態は、例えば Purex 再処理からの PuO₂ 製品の貯蔵のように、酸化物を缶に入れてしかるべき配置する。An-II 製品の保管は DOHA プロセスから得られる PuO₂ の保管と兼用としても良い。An-II 製品貯蔵の臨界安全性については、²³⁷Np と ²⁴¹Am が負の反応度を与える事、An-II 製品には中性子吸収核種を多く含む Ln も存在する事から、Pu 単独系と比べ大きな安全裕度が見込まれる。次に発熱量と放射線レベルについて考えてみたい。Fig.13 は ARTIST プロセスにおける物質量と発熱量の流れを示したものである。ここでは原料である SF の発熱量/質量をそれぞれ 100/100 (= 1.0) としている。燃料条件は Fig.4 と同一である。この比の値は、そのフラクションの単位質量当たりの発熱量（比発熱量）について SF の値の倍数に相当する（SF の全質量は 992kg、全発熱量は約 2.5kW）。この図では、オプションである Cs と Sr の分離を想定した。94wt%を占めている U の発熱量はほぼ無視できるので、U 分離後の各フラクションの比発熱量は全て SF のもの（1.0）よりも大きく、特に、0.5wt%以下の Cs と Sr のフラクションに全体の 67% の発熱量が集中している（比の値は Cs: 122, Sr: 210）。ここで、Pu フラクション（比の値は 6.8）と An-II 製品（同じく 8.8）を比較すると、後者の比発熱量は PuO₂ の約 1.3 倍であり、貯蔵庫の製品冷却条件については PuO₂ 単独の場合と大きな差はない。

一方、放射線レベルについては、定量的な議論はまだ出来ないが、PuO₂ 単独の場合に比べ An-II 製品ではガンマ線は相当強く、中性子線も数倍になると予想される。

PuO₂ 製品の貯蔵庫が完全遠隔操作方式で十分な遮蔽能力があるなら、An-II 製品貯蔵の併用は、大きなコスト増とはならないであろう。

4. 今後の課題

ここまでにも一部は述べてきたが、ARTIST プロセスの全体像をさらに明確にする（例えば概念設計を行う）には、さらに多くの実験研究が必要である。それらの項目のみを以下に記す。

- 1) 第1ステップの工程条件の詳細化：特に U の有機相負荷度と An-I (U)製品における TRU 除染係数の最大を目指す。
- 2) 第2ステップの工程条件の詳細化：混合溶媒系の抽出特性を詳細に求める。
- 3) ソフトな窒素ドナー系配位子の開発：ここでのフィード液の特性や要請される An/Ln 分離度等の条件は、現在のところ必ずしも明確でないが、より厳しい条件（例えば、分離係数：100 以上、水相硝酸濃度：1M）を仮定して開発を進める。
- 4) 上記各プロセスの連続向流多段抽出プロセスのフローシートおよび解析ソフトの開発。また、必要に応じて、
- 5) Cs, Sr, 長寿命 FP 核種の分離技術の開発。
がある。

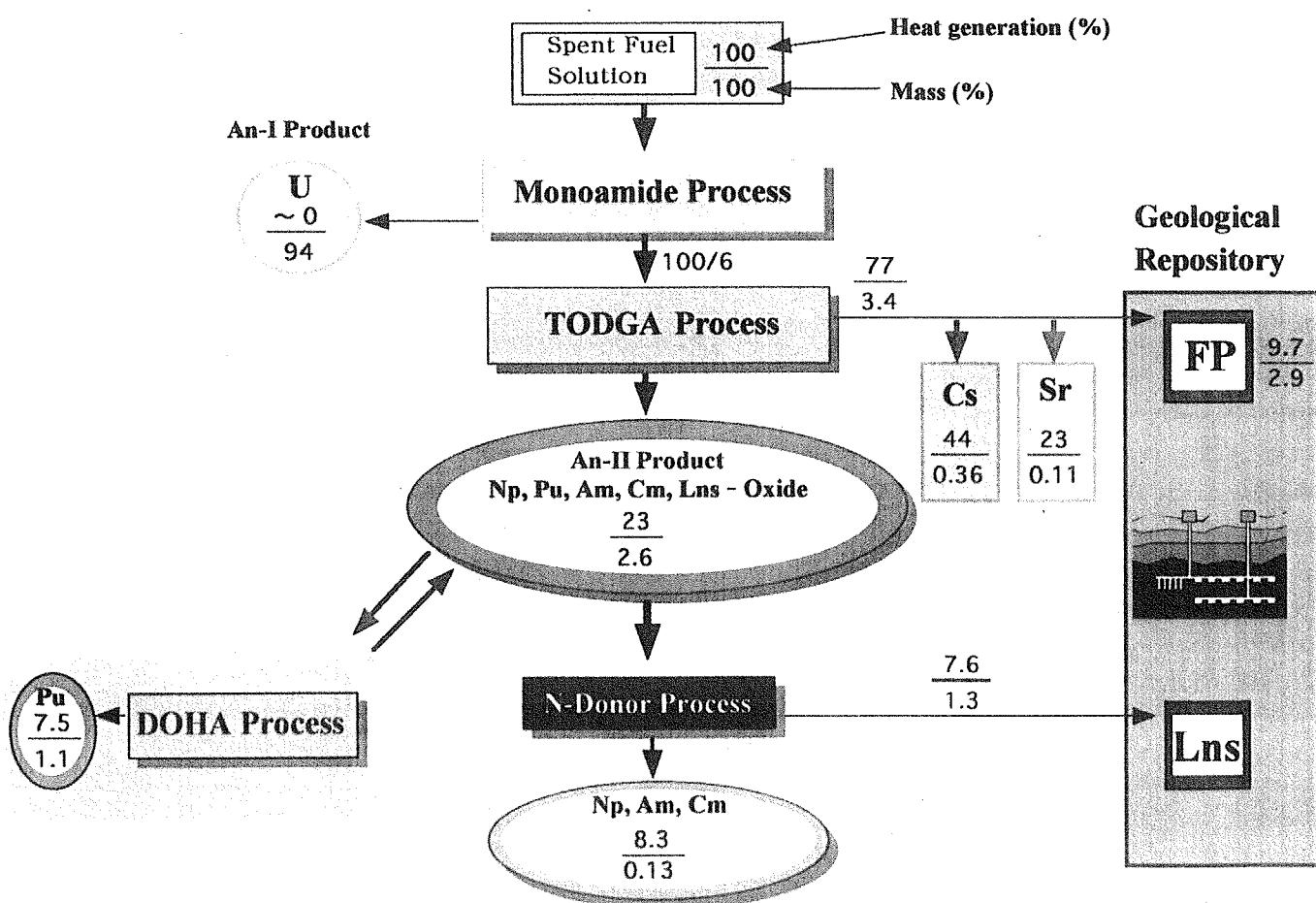


Fig.13 Mass and heat flows in the ARTIST process for treatment of spent fuel.

5. 結 論

ここまで述べた ARTIST プロセスは、我が国では「1 日平均数トン発生する SF を合理的に処理すべき要請があり」、それと同時に「Pu を始めとする TRU の利用と処分が混迷している時期でもある」との認識の下に、「TRU を暫定備蓄してその資源価値を維持する簡単な化学処理プロセス」として提案したものである。TRU の暫定備蓄方式は、現状に対応出来るとともに、プルトニウムを始めとする TRU の利用や核変換技術の完成といった今後予想される状況の変化にも対応出来る自由度を有し、廃棄物処分の更なる安全性向上（環境負荷低減）の点で有意義である。本稿では、我々のグループが分子設計的に開発した「立体障害機能を有するモノアミド」と「多座配位機能を有する TODGA」を用いた ARTIST プロセスが、現在技術で十分実現可能であることを示した。

謝 辞

本稿で提案した ARTIST プロセスの技術的基盤は、原研：抽出分離化学研究グループのこれまでの研究成果にある。例えば、モノアミドプロセスは鈴木伸一研究員の、TODGA プロセスは佐々木祐二副主任研究員の、それぞれ基礎実験データに負うところ大である。また、まだ具体的になっていない TRU/Ln 分離プロセスを位置付けることが出来たのは、現在グループ員が精力的に窒素系ソフト配位子の開発努力を行っており、近い将来の具体的成果を予期出来るからである。ここに記して全てのグループ員に謝意を表したい。また、アクチノイド核種の臨界質量に関する最新情報は、原研・燃料サイクル安全工学部の奥野浩氏から提供いただいた。ここに記して感謝したい。

参考文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ、総論レポートおよび分冊1、2、3、JNC TN1400 99-020 023 (1999).
- 2) 「長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」原子力委員会、原子力バックエンド対策専門部会、平成12年3月31日.
- 3) IAEA, : *The Proliferation Potential of Neptunium and Americium, Board Document GOV/1999/19/Rev.2*, 29 Oct. 1999.
- 4) *American Nuclear Standard for Nuclear Criticality Control of Special Actinide Elements*, ANSI/ANS-8.15-1981(R87), Am. Nucl. Soc., La Grange Park, IL (1981).
- 5) S. Suzuki, K. Tamura, S. Tachimori, Y. Usui, Extraction of Uranium(VI) and Plutonium(IV) from Nitric Acid Solution by Substituted Cyclic Amides, *Solv. Extr. Res. Develop. Japan*, **6**, 72 (1999).
- 6) S. Suzuki, K. Tamura, S. Tachimori, Y. Usui, Solvent Extraction of Technetium(VII) by Cyclic Amides, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **239**, 377 (1999).
- 7) 館盛勝一：アクチノイド新抽出剤の開発、日本原子力学会誌、**42**, 1124 (2000).
- 8) Y. Sasaki, Y. Sugo, S. Suzuki, S. Tachimori, The Novel Extractants, Diglycolamides, for the Extraction of Lanthanides and Actinides in HNO₃-n-Dodecane System, *Solv. Extr. Ion Exch.*, **19**, 91 (2001).
- 9) G. Baudin, The French Situation on Long Lived Radioisotope Separation Studies (Puretex and Actinex Programs). *Int. Info. Exchange Program on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation*, OECD/NEA Meeting, Nov. 11-13, 1992, ANL.
- 10) T. H. Siddall III, Effects of Structure of N,N- Disubstituted Amides on Their Extraction of Actinide and Zirconium Nitrate and of Nitric Acid, *J. Phys. Chem.*, **64**, 1863 (1960).
- 11) T. H. Siddall III, M. L. Good, Proton Magnetic Resonance Studies and Extraction Properties of Some Simple Diamides, *J. inorg. nucl. Chem.*, **29**, 149 (1967).
- 12) トマシュ バルガ他、日本原子力学会2001年(第39回)春の年会要旨集、第3分冊N38, p741 (2001).
- 13) 柴田淳広他；高速炉燃料再処理溶解液への晶析法の適用に関する安全性の検討 —原研・サイクル機構共同研究—、JNC TY8400 99-0004 (1999).
- 14) 深澤哲生他、日本原子力学会2001年(第39回)春の年会要旨集、第3分冊N40, p746 (2001).
- 15) G. M. Gasparini, G. Grossi, Application of N,N-Dialkyl Aliphatic Amides in the Separation of Some Actinides, *Sep. Sci. Technol.*, **15**, 825 (1980).

- 16) G. M. Gasparini, G. Grossi, Long Chain Disubstituted Aliphatic Amides as Extracting Agents in Industrial Applications of Solvent Extraction, *Solv. Extr. Ion Exch.*, **4**, 1233 (1986).
- 17) N. Condamines, C. Musikas, The Extraction by N,N-Dialkylamides II. Extraction of Actinide Cations, *Solv. Extr. Ion Exch.*, **10**, 69 (1992).
- 18) V. S. Koltunov, S. M. Baranov, Organic Derivatives of Hydrazine and Hydroxylamine in Future Technology of Spent Nuclear Fuel Reprocessing, in *Proc. Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Systems, GLOBAL 95*, Versailles, France (1995).
- 19) C. W. Forsberg, Rethinking High-level Waste Disposal: Separate Disposal of High-heat Radionuclides (^{90}Sr and ^{137}Cs), *Nucl. Technol.*, **131**, 252 (2000).
- 20) 館盛勝一、鈴木伸一、佐々木祐二、アミド系抽出剤を用いた TRU 暫定備蓄のための使用済み核燃料処理プロセス、日本原子力学会誌、**43**, No12, (2001).
- 21) Y. Sugo, Y. Sasaki, S. Tachimori, Studies on Hydrolysis and Radiolysis of N,N,N',N'-Tetraoctyl-3-oxapentane-1,5-diamide, *Radiochimica Acta*, to be published.
- 22) Proceedings of the 5th Int. Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Mol, Bergium, Nov. 25-27, 1998.
- 23) B. Weaver, F. A. Kappelmann, Talspeak: A New Method of Separating Americium and Curium from Lanthanides by Extraction from an Aqueous Solution of Aminopolyacetic Acid Complex with a Monoacidic Phosphate or Phosphorate, ORNL-3559, 1964.
- 24) K. L. Nash et al., Fundamental Investigations of Separations Science for Radioactive Materials, *Solv. Extr. Ion Exch.*, **18**, 605 (2000).
- 25) C. Madic et al., New Partitioning Techniques for Minor Actinides, *EC Nuclear Science and Technology*, EUR 19149 (2000).
- 26) Y. Xhu, The Separation of Americium from Light Lanthanides by Cyanex 301 Extraction, *Radiochimica Acta*, **68**, 95 (1995).
- 27) G. Modolo, R. Odoj, The Separation of Trivalent Actinides from Lanthanides by Dithiophosphinic Acids from HNO₃ Acid Medium, *J. Alloys and Compounds*, **271-273**, 248 (1998).
- 28) W. W. Schulz, L. A. Bray, Solvent Extraction Recovery of Byproducts ^{137}Cs and ^{90}Sr from HNO₃ Solution – A Technology Review and Assessment, *Sep. Sci. Technol.*, **22**, 191 (1987).
- 29) J. F. Dozol et al., New Macroyclic Extractants for Radioactive Waste Treatment: Ionizable Crown Ethers and Functionalized Calixarenes, *EC Nucl. Sci. and Technol.* EUR 17615 (1997).
- 30) J. E. Miller et al., Development and Properties of Cesium Selective Crystalline Silicotitanate (CST) Ion Exchangers for Radioactive Waste Applications, in *Science and Technology for Disposal of Radioactive Tank Wastes*, Ed. by W. W. Schulz and N. J. Lombardo, p.269, Plenum Press, New York (1997).

York, 1998.

- 31) S. Tachimori, Simulation Study on Behavior of Technetium and Its Controlled Strip during Codecontamination Process of Fuel Reprocessing, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **31**, 456 (1994).
- 32) 館盛勝一、鈴木伸一：“酸性水溶液中からテクネチウムを環状アミド化合物により分離回収する方法” 特願平 11-333226 (1999) .

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 ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
功率、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	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
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
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
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	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	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。
- EC閣僚理事会指令では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 ⁵ dyn)	kgf	Ibf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

粘度 1 Pa·s(N·s/m²)=10 P(ボアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s=10¹St(ストークス)(cm²/s)

圧力	MPa(-10bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	Ibf/in ² (psi)
1	10.1972	9.86923	7.50062×10 ³	145.038	
0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233	
0.101325	1.03323	1	760	14.6959	
1.33322×10 ⁻³	1.35951×10 ⁻³	1.31579×10 ⁻³	1	1.93368×10 ⁻²	
6.89476×10 ⁻³	7.03070×10 ⁻³	6.80460×10 ⁻³	51.7149	1	

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV	1 cal= 4.18605J (計量法) = 4.184J (熱化学) = 4.1855J (15°C) = 4.1868J (国際蒸氣表)
1	0.101972	2.77778×10 ⁻⁷	0.238889	9.47813×10 ⁻⁴	0.737562	6.24150×10 ¹⁸		
9.80665	1	2.72407×10 ⁻⁶	2.34270	9.29487×10 ⁻³	7.23301	6.12082×10 ¹⁹		
3.6×10 ⁶	3.67098×10 ⁵	1	8.59999×10 ⁵	3412.13	2.65522×10 ⁶	2.24694×10 ²⁵		
4.18605	0.426858	1.16279×10 ⁻⁶	1	3.96759×10 ⁻³	3.08747	2.61272×10 ¹⁹	仕事率 1 PS(馬力)	
1055.06	107.586	2.93072×10 ⁻¹	252.042	1	778.172	6.58515×10 ²¹	= 75 kgf·m/s	
1.35582	0.138255	3.76616×10 ⁻⁷	0.323890	1.28506×10 ⁻³	1	8.46233×10 ¹⁸	= 735.499W	
1.60218×10 ¹⁹	1.63377×10 ²⁰	4.45050×10 ⁻²⁶	3.82743×10 ⁻²⁰	1.51857×10 ⁻²²	1.18171×10 ⁻¹⁹	1		

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
1	2.70270×10 ⁻¹⁰	1		100	
3.7×10 ¹⁰	1	0.01		1	

照 射 線 量	C/kg	R
1	3876	
2.58×10 ⁻¹	1	

線 量 率	Sv	rem
1	100	
0.01	1	

(86年12月26日現在)

ARTISTプロセス — 使用済み核燃料の新規処理プロセス —

R100
古紙配合率100%
白色度70%再生紙を使用しています