

核種分離・消滅処理技術に関する文献調査

— 第4回群分離・消滅処理国際情報交換会議提出論文の抄録及び主要データ —

1997年2月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

この資料は、動燃事業団社内における検討を目的とする社内資料です。ついては複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

核種分離・消滅処理技術に関する文献調査

－第4回群分離・消滅処理国際情報交換会議提出論文の抄録及び主要データ－

実施責任者 小沢正基*

編 集 塩浦隆夫**

要 旨

今後の再処理並びに核種分離研究に資するため、第4回群分離・消滅処理国際情報交換会議の口頭発表29件とポスターセッション13件の計42件の発表論文のうち関連する論文を17件抽出し、抄訳及び実験データのデータベース化を行った。

本報の構成は、会議の全体概要と抽出した各論文の抄訳からなる。各論文の抄訳はタイトル、著者名、所属機関、キーワード、要旨、主な図表、抄録者氏名からなり、発表順に並べられている。なお、各論文抄訳の作成は、当部内のワーキンググループにより実施した。

*再処理技術開発部

**再処理技術開発部 アクチニドプロセス・分析開発室

目 次

1. 会議の概要	1
2. 抄訳集	3
3. 付録. PROGRAMME	67

群分離・消滅処理国際情報交換会議論文抄録ワーキンググループメンバー

氏名	所属
小沢正基	再処理技術開発部（ワーキンググループ主査）
上田吉徳	再処理技術開発部 プラント設計開発室 （ワーキンググループ副主査）
塩浦隆夫	再処理技術開発部 アクチニドプロセス・分析開発室 （ワーキンググループ事務局）
紙谷正仁	再処理技術開発部 プラント設計開発室
北脇 慎一	再処理技術開発部 プラント設計開発室
鍛治直也	再処理技術開発部 プラント設計開発室
竹内正行	再処理技術開発部 機器材料開発室
萩野英樹	再処理技術開発部 機器材料開発室
高田岳	再処理技術開発部 機器材料開発室
駒義和	再処理技術開発部 アクチニドプロセス・分析開発室
佐野雄一	再処理技術開発部 アクチニドプロセス・分析開発室
榊原哲朗	再処理技術開発部 アクチニドプロセス・分析開発室
相内更子	再処理技術開発部 アクチニドプロセス・分析開発室

1. 会議の概要

1.1 会議の名称、主催、開催場所等

会議名称：第4回群分離・消滅処理国際情報交換会議

The 4th NEA International Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product
Partitioning and Transmutation

主催：OECD/NEA

共催：科学技術庁(STA)

運営：動力炉・核燃料開発事業団(PNC)、日本原子力研究所(JAERI)

協力：電力中央研究所(CRIEPI)

開催日程：平成8年9月10日～9月13日

開催地：水戸市（水戸プラザホテル）

1.2 会議参加者、発表件数

参加者数 108名（うち、国内76名、国外32名）

参加者所属内訳（海外）

フランス14名（CEA 12名、EdF,COGEMA 各1名）

英国3名(BNFL2名,AEA1名)

ベルギー 2名(BN,SCK)

韓国2名(KAERI)

ロシア（NEA招聘）2名

オーストラリア1名(ANSTO)

米国1名(ORNL)

オランダ1名(ECN)

スイス1名(PSI)

OECD/NEA 2名

欧州連合 2名

参加者内訳（国内）

原子力委員会、科学技術庁各1名

研究機関 66名(JAERI29名、PNC25名、CRIEPI12名)

大学 4名（東京工業大学3名、東京大学1名）

民間 4名（東京電力、三菱、東芝、日立各1名）

内容について件数（口頭発表29件、ポスター13件 計42件）

- ・挨拶、国際協力、基調講演 8件
- ・戦略的な政策、計画・実行中のプログラム 6件
- ・核種分離化学 14件
- ・専焼炉・加速器による消滅 9件
- ・乾式再処理 5件

1.3 会議開催状況

開催年 開催地

- 1990 日本（水戸）
- 1992 米国（アルゴンヌ国立研究所）
- 1994 フランス（カダラッシュ研究所）
- 1996 日本（水戸）
- 1998 オランダ（アントワープ）（予定）

1.4 会議全体の概要と各国の取り組み状況

会議全体のサマリーとして各トピックスにおける進捗状況と参加各国の核種分離・消滅処理について概要を示す。

分離化学

湿式・乾式について着実な進歩が見られる。湿式分離プロセスについては、フランス、ロシア、日本、韓国からの発表があり、抽出剤として3価のアクチニドと希土類の分離のためのCMPO、DIDPA等を用いたプロセスが実用化に向けて大きく進んでいる。フランスではDIAMEXプロセスの開発及び、ジアミド抽出剤の最適化に取り組んでいる。また、大環状抽出剤としてカリックスアレンの基礎的な研究も引き続き実施している。ロシアでは、新規の抽出剤として有機リン酸とジルコニウムとの錯塩を用いた基礎研究を行っている。乾式の研究については日本のCRIEPIによる実アクチニドを模擬した系による熔融塩電解精製と塩廃棄物の安定化・固化技術の開発等乾式システムとしての成立の努力がなされている。MAの分離に加えて、発熱核種のセシウムについても核種分離の要求が高まっている。核種分離技術開発として日本のオメガ計画とフランスのSPIN計画がドライビングフォースとなっている。分離化学研究の施設としてはJAERIのNUCEFとCEAのATLANTEが新たに作られた。

消滅処理

ターゲット燃料の製造、リサイクルさせる際の戦略シナリオ研究、軽水炉／重水炉／高速炉での消滅処理、加速器駆動核破碎消滅処理（PNCの大電力電子線加速器開発、JAERIの大強度陽子加速器の開発）、消滅処理のための炉と加速器を組み合わせた時のシステムの工学的成立性・経済性について等の発表がなされた。核種分離・消滅処理を行ったとしても、高レベル廃棄物の地層処分の必要性には変わりがない。

各国の取り組み状況

米国はP&Tに興味を示していない。フランス・スルーでの直接処分を指向、原子力開発に対しての消極性がある。英国は技術の継承として参加はしているものの米国と同一歩調である。ロシアは技術的に高いものがあるが開発の方向性が見えない。仏国は最も力を入れている、CEAが中心となって欧州全体をリードする形での研究開発を行っている。EC（イギリスを除いた）諸国・欧州としての共同歩調をとっており相互補完的な共同プログラムを実施している。そこではMAの基本的な核データベースの整備と、より安全で環境負荷を減らす一つのオプションとしての核種分離・消滅処理を考えている。また、MAの生成の少ないトリウムサイクルに対する取り組みも視野に入れている。

韓国からの参加は朝鮮半島のエネルギー開発問題としてポスト北朝鮮崩壊のエネルギー供給と自国の急速な経済成長に適応した原子力政策として今後再処理を実施することを期待し、基礎研究だけは進めておくという立場である。

2.抄訳集

以下に抄訳集を作成した論文のタイトルを示す。(番号は会議の論文番号)

- 4.新燃料サイクル概念についてのEuropean Commissionの研究活動
- 5.アクチニド元素及びFP元素の分離・消滅に関するIAEAの活動
- 6.消滅処理用燃料・ターゲット開発のためのEFTTRA照射試験
- 7.核種分離と消滅処理に関するシステム解析的アプローチ
- 9.フランスにおける核種分離・消滅処理計画(利点と見通し)
- 10.原研における”オメガ”核種分離消滅計画
- 11.核廃棄物の核種分離・消滅処理：DUTCH RASプログラム及び国際研究との関連
- 19.TRU燃焼のための窒化物燃料サイクルの研究開発
- 20.アメリシウム酸化物ターゲット製造の制約
- 21.TRUと希土類元素の熔融塩電解精練による分離
- 22.原研により開発された4群分離工程からの製品及び廃棄物
- 23.放射性液体廃棄物からのカリックスアレーンクラウンを用いたセシウムの選択的抽出
- 24.HDEHPを用いた溶媒抽出による希土類からのマイナーアクチニドの分離
- 25.高温冶金プロセス技術の開発
- 26.マイナーアクチニドの分離 CEAでの最新の進捗
- 28.ロシアにおける放射性核種消滅のための高レベル廃液分離技術の特性比較
- 29.長寿命核種の高温冶金分離技術開発—塩廃棄物処理技術の開発—

次ページ以降に、各論文の抄訳を上記の順番で掲載する。

整理番号 OMEGA-4 1/2

<p>タイトル：新燃料サイクル概念についてのEuropean Commissionの研究活動 Title: Research activities of the European Commission on new fuel concepts</p>
<p>Author : M.Hugon (European Commission)</p>
<p>Keyword: 群分離、消滅処理、トリウム燃料サイクル、INBAT、ADS、NEWPART、 大環状化合物、EFTTRA、断熱共鳴交差法、Sr</p>
<p>抄訳</p> <p>European Commission (EC)は新燃料サイクル概念の分野における次の八つの計画に部分的に出資しており、それらの計画は(i)戦略研究、(ii)群分離技術、(iii)消滅処理技術の三つの領域にそれぞれ分類される。</p> <p>(i)戦略研究</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 選択しうる群分離・消滅処理戦略の評価 <p>群分離/消滅処理シナリオ及び消滅処理/群分離技術、新型燃料、ターゲット製造技術の包括的な評価を実施する。5つのシナリオが策定された。</p> <ol style="list-style-type: none"> 1) PWR UO₂燃料 ワンスルー型 <p>2000～2400年まではPWR 30%MOX-70%UO₂燃料とUO₂燃料で、照射済UO₂燃料は再処理でPuを回収してMOX燃料に加工し、照射済MOX燃料は中間貯蔵する。2040年以降は照射済MOX燃料も再処理してPuとMAを分離してリサイクルする。その上で、</p> <ol style="list-style-type: none"> 2) 30%MOX燃料-PWRを毎年100%MOX燃料-PWRに置き換えていく。 3) 30%MOX燃料-PWRを毎年高速炉に置き換えていきPuを増殖させる。 4) 原子力の利用をやめた後、アクチド専焼炉を建設する。 5) ある時点でFBRを導入し高速炉のみで専焼炉と増殖炉を賄う。 <ul style="list-style-type: none"> ・ 改良型MOX燃料に対する核データ支援 <p>より正確な核データを戦略研究に提供し、PWR,高速炉両方のMOX燃料リサイクルにおける廃棄物毒性の低減を図る。</p> <p>PWRに関するデータはBR3炉(MOX-80GWd/t) , B1PWRでのMOX照射データとJEF2.2核データライブラリーとを比較する。高速炉に関するデータはPhenix,KNK-IIでのデータをJEF2.2ライブラリーと比較する。²⁴⁰Pu, ²⁴²Pu, ²⁴¹Amについてのデータは特に共鳴領域について評価する。</p>

整理番号 OMEGA-4 2/2

・放射性廃棄物処理法の選択肢としてのトリウム燃料サイクル

放射性廃棄物発生量低減及び廃棄物燃焼に向けてトリウム燃料サイクルを評価する。燃料サイクルの主要な項目（採鉱、燃料製造、炉の運用、再処理、廃棄物処分、核拡散防止等）をカバーする。

・加速器技術の核分裂安全性に対する効果（IABAT）

加速器を用いた複合システム研究での加速器技術の評価、核反応断面積及び核破碎標的の放射線損傷基礎データの取得、ADS(Accelerator Driven System)燃料サイクルの放射性毒性研究を行う。

(ii)群分離技術

・新群分離法(NEWPART)

高酸性度水溶液からの二次固体廃棄物を発生させないMAの分離プロセスを開発する。基本方針は2つあり、一つはプロセスで使用する抽出剤、希釈剤、水溶性試薬等を全て可燃性（排ガスが大気中に放出可能なもの）とする。もう一つは高酸性度の高レベル廃液を中和せずに取り扱う方法を開発する。

・大環状化合物による長寿命核種の抽出及び選択的分離

新しい大環状化合物による中レベル廃液（十分な除染のあと地表貯蔵所に貯蔵できるようになった廃液）からのSr,アクチノイドの選択的抽出及び高レベル廃液中の3価アクチノイドからの3価アクチノイド（Am,Cm）の分離を研究する。3つの項目よりなる。1)大環状化合物の合成、2)大環状化合物の抽出特性の評価、3)抽出剤と核種との錯体構造の分子モデル、X線、NMR等による解析を行う。

(iii)消滅処理技術

・合同EFITRA(Experimental Feasibility of Targets for TRAnsmutation)グループによるAm消滅試験

高熱中性子束炉(HFR)による²⁴¹Amの消滅処理が実現可能であることを実証する。ターゲットの製造、照射施設の準備、ターゲットの照射及び非破壊分析、照射後の破壊分析及びその結果の解析を行う。

・断熱共鳴交差法(TARC)による中性子消滅処理

放射性核種の中性子吸収率を高めることができる新方法の断熱共鳴交差法について理論及び実験の開発を行う。中性子がサーマライズされる速度を遅くすることによりそのエネルギーが共鳴領域に留まる時間を伸ばしてやり、吸収確率を高め、核種の消滅処理を行う。

(抄訳者：榊原 哲朗)

整理番号 OMEGA-5 1/2

タイトル：アクチニド元素及びFP元素の分離・消滅に関するIAEAの活動
 Title : IAEA ACTIVITY ON PARTITIONING AND TRANSMUTATION OF
 ACTINIDES AND FISSION PRODUCTS

Author : A. Grigoriev, V. Arkhipov (IAEA, Division of Nuclear Power and Fuel Cycle)

Keyword IAEA、分離技術、消滅処理、CRP

抄訳

IAEA参加国の希望により、1991年秋よりアクチニド元素及びFP元素の分離・消滅に関する顧問会議が数回開催された。この会議において、多くのIAEA参加国及び国際機関が、バックエンド技術に対する補完的な考え方として分離・消滅処理に関心を持っていることが確認された。会議より得られた結論をまとめると以下ようになる。

分離技術

アクチニド元素及びFP元素の分離については、湿式分離及び乾式分離の2つの分野において研究が進められている。PUREXプロセスにおけるPuロスの低減及びフローシートの改良によるNp, Tcの分離については大きな進展が見られた。他の元素についても研究が進められ、前進が見られている。

消滅処理のための燃料・ターゲット技術開発

高速炉でのU酸化物燃料及びMOX燃料を用いたMAリサイクルの技術的可能性に関しては、ある程度まで検討が進んでいる。MA, ⁹⁹Tcを含むターゲット燃料が実験室規模で製造され、今後照射試験が実施される予定である。また、窒化物及び熔融塩燃料なども、新たな消滅処理体系として提案されている。

消滅処理

放射性物質による危険をトータル的に低減するには、加速器を用いた消滅システム等の新たな技術開発が必要である。

また、会議において提出された要望及びOECD/NEA、CEUにおいて実施されている技術指針プログラム等を考慮して、分離・消滅処理開発における安全面、環境面及び核不拡散に関する要項を発行した。主な項目は以下の通りである。

1. 危険基準の定義
2. 危険低減の評価
3. 考慮すべき核種の優先順位の定義

このような要項のもとに、1994年より開始されたCRP（「アクチニドとFP元素の分離・消滅処理における安全面、環境面及び核不拡散性からの評価」に関する調査プログラム）のベースとなった、評価項目が掲げられた。

整理番号 OMEGA-5 2/2

タイトル：アクチニド元素及びFP元素の分離・消滅に関するIAEAの活動
Title : IAEA ACTIVITY ON PARTITIONING AND TRANSMUTATION OF
ACTINIDES AND FISSION PRODUCTS

抄訳

この調査プログラムの目的は以下に示す項目の調査・評価である。

- a. 分離・消滅処理に対する基準放射性核種
- b. 分離・消滅処理による放射性危険度の低減
- c. 異なる分離・消滅処理に対する安全性評価
- d. 分離・消滅処理の核不拡散性

このほか、OECD 非加盟国におけるアクチニド元素消滅処理の現状に関する報告書（1996年発行予定）、加速器による消滅処理システムの現状に関する報告書（1997年発行予定）の作成及びトリウムをベースとした燃料サイクルに関する調査プログラム（1995年より開始）等を実施している。

（抄訳者：佐野雄一）

タイトル

Title: EFTTRA IRRADIATION EXPERIMENTS FOR THE DEVELOPMENT OF FUELS AND TARGETS FOR THE TRANSMUTATION

Author : J-F. BABELOT, R. CONRAD, H. GRUPPELAAR, G. MUHLING,
C. PRUNTER, M.SALVATOIRES, G. VAMBENEPE

Keyword

Tc, ヨウ素, 不活性マトリックス材, Am, ターゲット, 核種変換

要旨

EFTTRA共研 (参加機関 ; CEA(仏), ECN(蘭), EDF(仏), FZK(独), IAM(EC), ITU(EC) は物質 (核種) 変換に関する研究である。照射にはPhenix(仏), HFR(蘭)を利用。Tc金属の照射後試験の最新の結果とその他の実施中の試験について述べる。Amの取扱いについての考察も述べる。

[Tc] シリンダ状の金属Tcサンプルで照射試験を実施, 分析後再照射中。

- ・平均燃焼度 (Tcの反応割合) ; 6.4%
- ・スエリングはなし
- ・Ru分布分析結果 径方向 ; 表面~13%, 深さ0.1mm 8%, 深さ1mm 6%
軸方向 ; 特に大差なし
- ・変換試験の目標は15%

[I] 天然Iを用いて照射試験を実施。

- ・CeI₃, NaI ; 特に変化なし, 燃焼度5-6%
- ・PbI₂ ; 腐食, 漏洩
- ・製造性を考慮するとNaIが妥当であるが変換の必要性等の要素も含め検討中

[不活性マトリックス材] 非均質体系でAmをリサイクルする場合に使用する不活性マトリックス材 (酸化物系) の候補についてtable 1に加工性, 各種物性からの適否をまとめた。また, 照射試験に採用したサンプルのリストをtable 2に示す。

[Amターゲット]

- ・10wt% Amターゲット燃料の照射を1996年9月に開始予定, 計算による消滅率は35%。

[Underlying Strategies] リサイクルの4つのシナリオについて種々の観点から検討を行っている。

- ・PWRのみ (Pu, MAはMOXでリサイクル)
- ・PWRとFRでのリサイクル
- ・PWRで1度Puをリサイクルした後のFRリサイクル
- ・FRのみ
- ・Amの消滅処理の観点からマトリックス材についてまとめた表をtable 2に示す。

(抄訳者 ; 紙谷正仁)

タイトル

Title: EFTTRA IRRADIATION EXPERIMENTS FOR THE DEVELOPMENT OF FUELS AND TARGETS FOR THE TRANSMUTATION

Candidate oxide matrices for M.A. transmutation in a Fast Reactor

Technical steps	MgO	MgAl ₂ O ₄	Al ₂ O ₃	CeO ₂	Y ₂ O ₃	Y ₃ Al ₅ O ₁₂	CePO ₄	ZrSiO ₄
Manufacturing	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Basic properties	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes?	?	No?
Neutron activation	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Na compatibility	Yes	Yes	No	No	Yes	Yes	?	?
In pile behaviour	Yes?	Yes?	No	?	?	Yes?	?	?
FR compatibility	Yes?	Yes?	No	No	Yes?	Yes?	?	No?

Table 1 : Evaluation of candidate inert matrices for the transmutation of minor actinides

Candidate oxide matrices for M.A. transmutation in a PWR

Technical steps	MgO	MgAl ₂ O ₄	Al ₂ O ₃	CeO ₂	Y ₂ O ₃	Y ₃ Al ₅ O ₁₂	CePO ₄	ZrSiO ₄
Manufacturing	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
Basic properties	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes?	?	No?
Neutron activation	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes
H ₂ O compatibility	No	Yes	Yes	Yes	No	Yes	?	?
In pile behaviour	?	Yes?	No	?	No?	Yes?	?	?
PWR compatibility	No	Yes?	No	?	No	Yes?	?	No?

Table 2 : EFTTRA-TJ : irradiation of candidate inert matrices in HFZ-Petten

level 1	CeO ₂ + UO ₂	CeO ₂	Y ₂ O ₃ + UO ₂	Y ₂ O ₃
	CePO ₄ + UO ₂	CePO ₄	Y ₃ Al ₅ O ₁₂ + UO ₂	Y ₃ Al ₅ O ₁₂
level 2	ZrSiO ₄ + UO ₂	ZrSiO ₄	MgAl ₂ O ₄ + UO ₂	MgAl ₂ O ₄



irradiation positions reserved for another ECN-programme

Table 3 : Possible strategies for the transmutation of americium

	thermal spectrum		fast spectrum	
	once-through	reprocessing	once-through	reprocessing
inert / heterogeneous	few % Am	> 20% Am	X	> 40% Am
UO ₂ / heterogeneous	X	> 20% Am	X	> 40% Am
MOX / homogeneous	X	few % Am	X	few % Am

整理番号 OMEGA-7 1/1

タイトル：核種分離と消滅処理に関するシステム解析的アプローチ

title:A SYSTEM ANALYSIS APPROACH ON PARTITIONING AND TRANSMUTATION

Author L.H.Bastlé (Organization: SCK-CEN (ベルギー))

Keyword

戦略研究、核燃料サイクル、シナリオ研究、Tc99,I129,Zr93,Cs135,137Am241,Cm244

抄訳

1.内容

P&Tの与えるインパクトを核燃料サイクルの戦略としてどのシナリオ（OTC：ワンスルーサイクル、CFC：従来型サイクル、AFC：先進サイクル）を選ぶかによりどのように変化するかを処分の長期貯蔵時における技術的側面や経済的側面、社会的受容性の側面等から多角的に分析を行っている。

OTCシナリオを選択した場合、P&Tとは不整合である。

CFCシナリオでは従来の再処理システムへのプロセスの付加によりMA及び長寿命FPを分離する方法で長期にわたる放射性毒性の削減と、軽水炉でのMOX使用により全体のアクチニド保有量を安定させる効果をもつ。

P&Tが中心的役割を担った廃棄物リサイクルを完備したAFCシナリオはコスト対利益による評価が必要であるが、現時点の技術開発の進捗状況ではコスト等のパラメータが大きく変化するので、結果としてシステム解析は難しくなる。

CFCシナリオのAm(Cm)の分離は、放射性毒性の削減という観点から第1の優先度を持つ。しかしMAの10倍以上存在するREからの分離は努力を要する。また、軽水炉で照射するMAターゲットの製造は実験室規模のセルでは非常に困難であり、Am241燃料の製造には γ 線の完全な遮へいが必要で5%のCmを含む場合中性子遮へいも考慮する必要がある。長寿命FPの分離において地中処分での評価対象とすべき核種としてはTc99,I129,Zr93,Cs135,137,C14がある。

(抄訳者：塩浦 隆夫)

タイトル：フランスにおける核種分離・消滅処理計画（利点と見通し）

Title : THE FRENCH PARTITIONING-TRANSMUTATION PROGRAMME, ASSETS AND PROSPECT

出典 : 4th MEETING FOR EXCHANGES OF INFORMATION ON PARTITIONING-TRANSMUTATION

Author: Michele VIALA, Massimo SALVATORES (CEA)

Henri MOUNEY (Electricite de France)

Keyword spin計画, 核種分離, 消滅処理, 放射性毒物, 廃棄物管理

抄訳

1. 内容

1991年12月にフランスで制定された放射性廃棄物に関する法律は、未来の世代の立場を念頭に置き、自然、環境、健康の保護に対応した廃棄物管理の必要性を訴えるものであり、現在の廃棄物に含まれる長寿命放射性核種の分離・消滅処理の実現化の要求がある。本内容では、EDF、COGEMA等と共同してCEAが実施してきた核種分離・消滅処理技術に関する研究計画について、2つの側面からアプローチしてきた結果を示す。その2つの側面とは、『この核種分離・消滅処理技術で何をなすべきか？、コストや期間はどのくらいか？』ということと『長期的に見た利点と短期的に見た欠点をどう制限し、定量化すればよいのか？』ということである。

この核種分離・消滅処理技術の利点と欠点について論じる上で、まず分離については、廃棄物から長寿命核種を除去しつつ、高効率で進める必要がある。その中で、溶媒抽出法は総合的な観点で極めて効率的であり、アクチニドやFPに関する調査結果も表中に示されるように体系化されている。

また、アクチニドの消滅処理の利点や制限に関しては、物理面ではPuのみかMAを含むか、あるいは炉の種類によっても、含有率が異なるため、条件が変わる。また、このアクチニドの消滅処理に際して、Cmは強い中性子およびγ放射体であるため、管理が難しく、暫定貯蔵が検討されている。一方、加速器を用いた混成系での消滅処理等も研究中である。また長寿命のFPについては、中性子捕獲で消滅させる必要があるが、核分裂反応だけの寄与では不十分であり、さらに過剰の中性子が存在する系で消滅させる必要がある。

また、先の2つの側面の後者については、まず『核種分離・消滅処理技術は地層処分を補うことが可能か』という点に対して、処分研究側からの核種分離・消滅処理技術に関する要求は1997年末までは考えられていない。まず放射性核種当たりの存在量を特定すること等が必要であろう。さらに、『核種分離・消滅処理技術が廃棄物中の長寿命核種の存在量の低減方法として寄与するか』については、廃棄物中のPuやMAの存在量の低減はリサイクルする上で、世界的な方向づけとして考慮しなければな

らない。これらの理論的な大筋として、燃料そのものを廃棄物とみなすワンスルー方式と比較すると、Puのみをリサイクルする場合は、廃棄物中の放射性毒物の存在量が減り、Puの10%がAmやCmに変換する。また、PuやMAをリサイクルする場合には、廃棄物中の存在量の増加は分離性能に依存することとなる。廃棄物中のFPの存在量については、核分裂炉で減ることはまず考えられず、さらに効率の良い革新的なシステムの構築（加速器駆動消滅処理等）が必要となる。

2. 結論

核種分離・消滅処理技術は廃棄物組成を支配し、長寿命核種（特にアクチニド）の存在量に影響を及ぼす操作である。代表的なシナリオは放射性核種を分類した評価基準を用いた形で、十分構築されているが、短期的および長期的リスクの相互比較評価の困難性が課題として残されている。

（抄訳者：竹内 正行）

タイトル：フランスにおける（長寿命核種の）分離・変換計画（利点と見通し）

Title : THE FRENCH PARTITIONING-TRANSMUTATION PROGRAMME, ASSETS AND PROSPECT

PWR 燃料リサイクル
での Pu を例にした場
合

FIGURE 3. Contribution of the various initial actinides to the radiotoxic inventory of wastes (UOX1 fuel case)

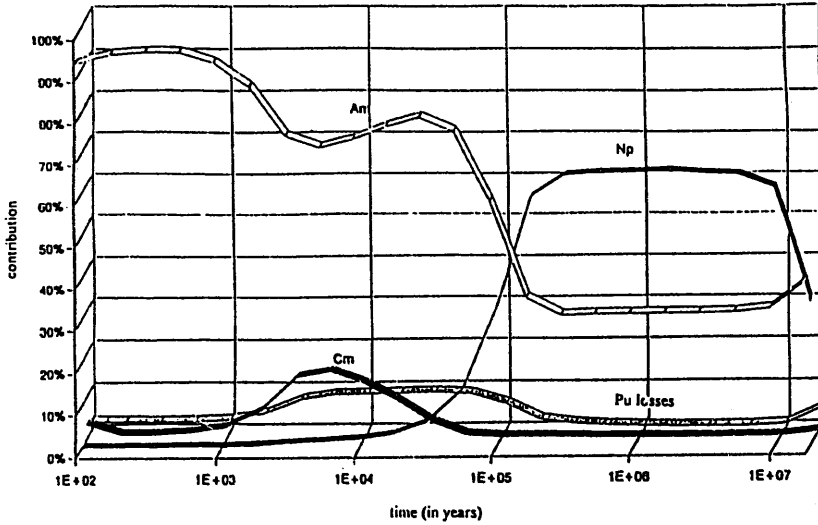
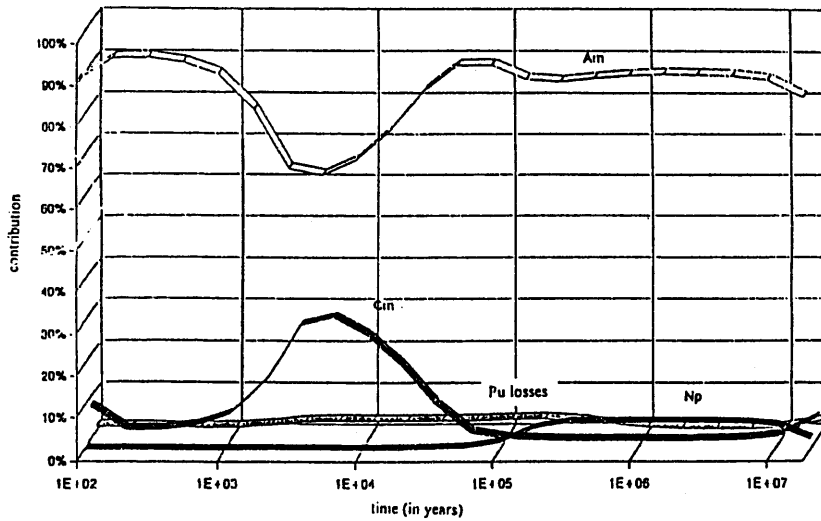


FIGURE 4. Contribution of the various initial actinides to the radiotoxic inventory of wastes (MOX fuel case)



廃棄物の放射性毒物に対するさまざまなアクチニド元素の寄与
(Puの10%がAmやCmに変換する)

整理番号 OMEGA-10 1/3

タイトル:	原研における“オメガ”核種分離消滅計画
Title:	Partitioning and Transmutation Program "OMEGA" at JAERI
Author:	T. Mukaiyama et al. (Organization: JAERI)
Keyword:	群分離, 消滅炉, 陽子加速器, 窒化物燃料
抄訳:	<p>原研で進めている核種分離消滅に係わる研究開発の概説。</p> <p>Pu・Uリサイクルを行う燃料サイクルとMA及び長寿命FPの分離消滅を行うサイクルから成る二重の燃料サイクル(double strata fuel cycle)を前提としている。主な研究開発テーマの状況は以下のとおり。</p> <p>(a) 4群群分離プロセス</p> <p>HLW中のNpは過酸化水素の添加によりDIDPA法で抽出する。AmとCmも同様に抽出した後、DTPAを用いて希土類と分離する。バッチでの分離係数は10以上であり、最適条件に関して研究を継続中。TcについてはHLWの脱硝による沈澱もしくは活性炭による吸着を検討。NUCEFでのホット試験を1998に実施する予定。</p> <p>(b) アクチニド専焼炉と加速器駆動ハイブリッドシステムの設計研究</p> <p>i) ABR: Actinide Burner Reactor</p> <p>鉛冷却ピン燃料ABR(L-ABR)とHe冷却粒子燃料ABR(P-ABR)の2種類の炉を検討。熱特性と乾式再処理を考慮して窒化物燃料を選定。</p> <p>ii) 加速器駆動消滅システム</p> <p>核破碎中性子による核分裂により核変換を行うシステム。固体と熔融塩の2種類のターゲットを想定。</p> <p>(c) 窒化物燃料サイクルに係わる開発</p> <p>比較的低温な燃料(低いFPガスの放出)、より硬い中性子スペクトルを得るための薄い被覆材及び過出力事象における相対的に大きなドップラー効果といった観点から取り組んでいる。</p> <p>ゲル化法等によりTiN被覆粒子燃料を製造。再処理は、LiCl-KCl融解塩中での電解処理により行う。金属の形で回収して窒化物に転換。</p> <p>(d) 陽子加速器の開発</p> <p>約10MWの出力の陽子加速器を提案。イオン源等のフロントエンド機器についての研究を実施中。2MeVのビーム試験で確認。超伝導加速管について高エネルギー研究所と共研を実施。</p>

整理番号 OMEGA-10 2/3

タイトル： 原研における“オメガ”分離消滅計画

Title: Partitioning and Transmutation Program "OMEGA" at JAERI

(e) 消滅システムの開発を補助する基盤研究

核データファイルの整備 (JENDLE Actinide File と JENDLE High-Energy File)、アクチニドの核データの測定・評価 (核分裂中性子、遅発中性子及び核分裂収率について ORNL や Texas A&M 大と協力。核破碎反応について KEK 施設を利用。)、種々の材料の熱力学データベースの整備を実施中。

中性子を利用した研究開発を促進するため、施設整備を計画中 (Neutron Science Project)。

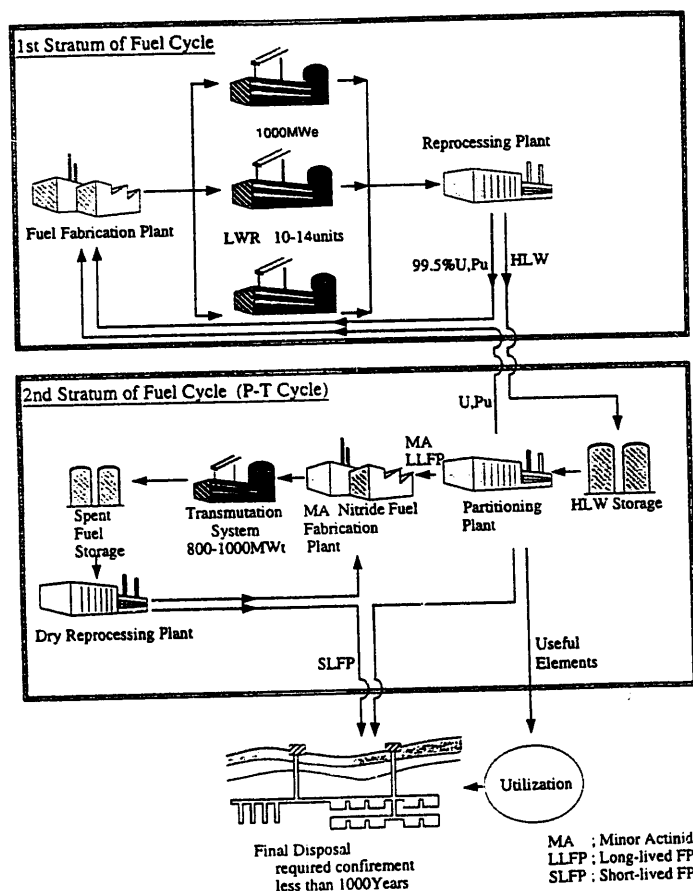


Fig. 1 JAERI's Concept of Double Strata Fuel Cycle for Complete HLW Management

(抄訳者：駒 義和)

整理番号 OMEGA-10 3/3

タイトル： 原研における“オメガ”分離消滅計画

Title: Partitioning and Transmutation Program "OMEGA" at JAERI

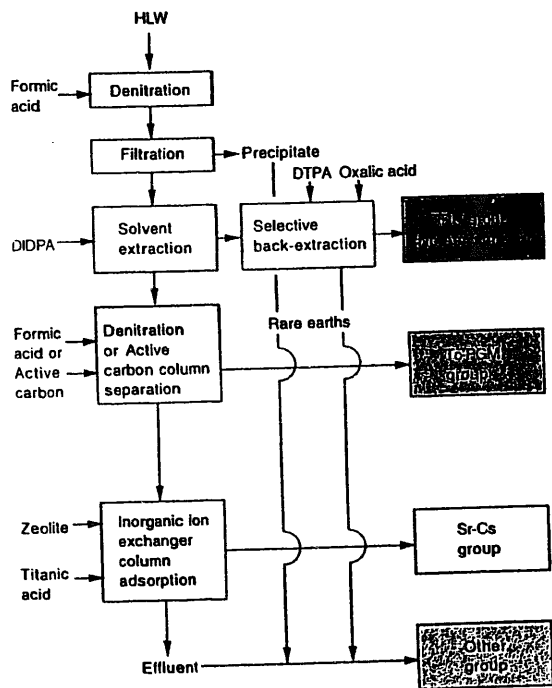


Fig. 2 Flow Sheet of Four Group Partitioning Process

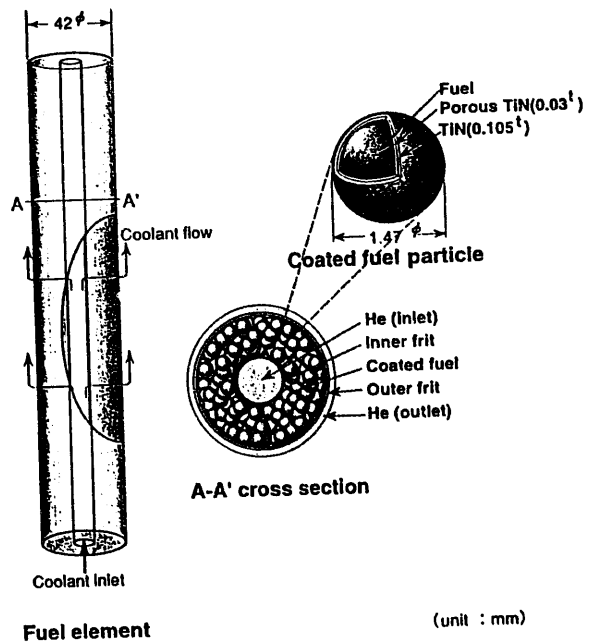


Fig. 3 Fuel element and coated fuel particle for He gas cooled reactor

整理番号 OMEGA-- 11 1/5

<p>タイトル：核廃棄物の核種分離・消滅処理：DUTCH RASプログラム及び国際研究との関連</p> <p>TITLE：PARTITIONING AND TRANSMUTATION OF NUCLEAR WASTE: THE DUTCH RAS PROGRAMME AND ITS RELATION TO INTERNATIONAL STUDIES</p> <p>出典：</p>
<p>Author:R.J.M. Konings, H.Gruppelaar, E.H.P. Cordfunke and J. Prij (Organization:ECN(蘭))</p>
<p>Keyword 分離、消滅処理、アクチド、放射性毒性、DUTCH RAS PROGRAMME, HTR, Tc, I, Cs, Am</p>
<p>抄訳</p> <p>1.内容</p> <p>(1)はじめに 高放射性廃液からアクチドを分離すると、廃棄物は250年間でウラン鈾程度にまで毒性が低下すると言われている。 1991年よりECN（オランダエネルギー調査機関）では、1991年より使用済燃料中の長寿命核種の変換に着手した。これがDUTCH RASプログラムであり、以下の5項目を主眼としている。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・炉物理・シリオステイ ・燃料・ターゲットの化学的材料的研究 ・Pettenの高中性子束炉での照射試験 ・放射線の影響とリスクの検討 ・増殖の防止 <p>(2)RASプログラムの成果報告 DUTCH RASプログラムでは、以下の核種の変換に主眼をおいている。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・高レベル廃棄物として中長期にわたり毒性のあるアクチド ・廃棄後の長期にわたる影響が問題となる長寿命の移動性元素(Np,Tc,I,Cs) 第一段階 <p>Tc,Iの変換に関して、HTRによる照射実験(EFTTRA-T1)及び種々の原子炉からのFPの変換のためのシリオステイを行った。 この結果、Tcについては炉内照射時間が長く、存在量が大きくなるものの、大部分の炉で消滅可能であることがわかったが、Iについては既存の炉では消滅は難しいという結果となった。</p> <p>現在のRASプログラム アクチドの変換に主眼をおいている。現行のMOX及び来たるべきTRU燃料からのPu,Amの新しい分離法についての研究を行っている。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・EFTTRAにおける照射実験(Table-1 T2~T4) ・燃料構成物の基礎物性についてのラボスケールの試験 <p>シリオステイの結果、Puのリサイクルは可能と考えられる一方、Amのリサイクルは再処理・燃料製造に関する問題が解決された場合にのみ可能となる。 また、トリウム燃料の使用については、ウラン・トリウムの十分な分離・複数回の再処理が前提となるが、これによりアクチドによる放射性毒性を減ずることができる。</p> <p>(3)分離・消滅処理の概要</p> <p>3.1 Pu,U 使用済燃料からU,Puを分離することで廃棄物の毒性係数を10程度まで下げることができる。U,PuはPUREX法でも99.5~99.8%回収可能である。</p>

軽水炉にUとPuをリサイクルする際に、MOX燃料の比率を30%にすれば余剰Puの増加を抑えることができる。しかしながら、軽水炉によるPuの消費は非核分裂性のPuにより妨げられるため、究極的なPuの消費には速中中性子を用いる炉・装置の使用が不可避となる。

3.2マイナーアクチド

Amの分離が99~99.9%行われ、リサイクルが効率的に行われれば、毒性係数は100以上が期待できる。PUREX廃液からAm及びCmを分離するプロセスの研究が各国で進められているが(Table2)、いずれの場合もランタノイド及びFPが共抽出される。SLM-macrocyclic抽出剤を用いることにより改善が図られると考えられており、いくつかのヨーロッパの研究所でも研究されている。

マイナーアクチドの熱中中性子による燃焼については、NpはMINOX燃料でリサイクル可能、Amは燃料中に混入しておくことでリサイクル可能である。Cmについては崩壊による α 、 γ 、中性子線や自発核分裂等が燃料製造に大きな影響を及ぼすため、現時点では難しいと考えられる。

3.3FP

FPとしては次の3核種を考える。

^{99}Tc ：1個の中性子捕獲で変換される。変換半減期と存在量がいずれの炉でも高い。加えて、濃縮が必要である。

^{129}I ： ^{99}Tc と同様。

^{135}Cs ：中性子吸収断面積が小さいこと、 ^{137}Cs 、 ^{133}Cs の吸収があることから難しい。

3.4消滅処理装置の調査

Puのリサイクルは現行の軽水炉で可能であるが、複数回再処理に限界があり、現行の炉によるマイナーアクチドの変換は効果的でない。専焼炉はPu生成量が少なく、比出力が大きく、速中中性子束が高く、マイナーアクチドの燃焼に効果的である。専焼炉の炉型としてはCANDU、CAPRA炉のようなタイプが良いことが最近わかってきた。FPの変換には専焼熱中中性子炉か、高速炉のブランケットが最も良いと思われる。(Table3参照)

(4)アクチド発生抑制へのオプション

4.1クリーンエネルギー?

天然ウランを使用することにより放射性毒性の強いアクチドは生成しにくくなる。濃縮ウランを使用するのは増殖防止の観点からは好ましくないので、代わりにトリウムサイクルで生じる ^{233}U を使用すると増殖は抑えられる。

4.2トリウムサイクル

核燃料サイクルにおいてトリウムを効果的に利用するには、核分裂起動物質と高い燃焼度が必要である。軽水炉において ^{233}U 、 ^{235}U を核分裂起動物質として使用し、ウランのリサイクルを実施すれば廃棄物の毒性は小さくなる。問題点としては、工学規模の再処理・燃料製造施設を安全に運転できるかどうかである。

4.3加速器を使用する方法

加速器を使用する方法は、安全性、中性子発生量の観点で有利である。安全でクリーンでかつ受け入れられやすい廃棄物消滅装置の設計を行うことができる。

(5)廃棄による影響

廃棄物の地層処分において問題となる核種は ^{135}Cs 、 ^{129}I 、 ^{99}Tc 、 ^{79}Se 、 ^{237}Np 及びその娘核種である。しかしながら、計算された最大線量は天然のバックグラウンドよりはるかに低い。

整理番号 OMEGA-- 11 3/5

アクチドを分離することによって廃棄物の毒性は250年貯蔵すればウラン鉱程度に減ずることができる。また、管理方法を注意深く選べば、リスクはウラン鉱のそれよりも低くすることができる。

(6)結論

廃棄物管理の観点において、アクチド元素の核種分離・消滅処理は重要である。現在、アクチドの核種分離・消滅処理の技術は部分的にしか確立されておらず、更に検討が必要である。今後RASプログラムは以下の項目を主眼に実施していく。

- ・3価アクチドの分離法の改善
- ・ブランケット燃料を用いたアクチドの変換・消滅処理
- ・100%MOX利用のシナリオステイ
- ・将来の"クリーン"なエネルギー生産、トリウムサイクル及び（または）加速器を使用する変換・消滅処理のための革新的技術

(抄訳者 高田 岳)

整理番号 OMEGA-- 11 4/5

Table 1. Irradiation programme in the HFR at Petten.

Experiment	Description	Period
EFTTRA-T1	transmutation of the fission products technetium (~6% burn-up) and iodine	1994
EFTTRA-T2	<ul style="list-style-type: none"> • re-irradiation of technetium (> 20% burn-up) • irradiation of ceramic materials for the development of fuels for actinide burning (inert matrices) 	1996-1998
EFTTRA-T3	irradiation of inert matrices, mixed with enriched uranium	1996-1997
EFTTRA-T4	demonstration of the transmutation of americium in an inert matrix	1996-1999

Table 2. Liquid-liquid extraction processes for the trivalent actinides.

process name	country	extraction molecule	HNO ₃ concentration	typical results
DIAMEX	France	diamides	0.5-5 M	Am+Cm > 95%
DIDPA	Japan	DIDPA/TBP	0.5 M	Am+Cr: > 99.9%
TRPO	China	TRPO	0.1 - 1 M	Am+Cm > 95%
TRUEX	USA	CMPO/TBP	0.1 - 3 M	Am+Cm > 99.9%

整理番号 OMEGA-- 11 5/5

Table 3. Review of the recycling capabilities of various transmutation devices; MA denotes minor actinides, FP fission products.

device	Pu	MA	FP
LWR	limited ^a	poor	no
HWR	moderate ^{a,b}	poor	moderate
HTR	limited ^c	poor	no
ALMR	good	good	no
CAPRA	excellent	good	reasonable ^d
Pb-cooled burner	excellent	good	reasonable ^d
Molten salt reactor	good?	?	?
accelerator-driven thermal burner	good?	?	good
accelerator-driven fast burner	excellent	good	?

^a Multirecycling of MOX is limited due to production of even-mass Pu and other actinides.

^b 100% Pu in an inert matrix.

^c Reprocessing is difficult.

^d In a moderated subassembly.

Table 4. Some results of performance assessments for disposal of vitrified HLW in a salt formation in the Netherlands.

Scenario	Maximum exposure		Dominant radionuclides
	magnitude (Sv/y)	time (y)	
Normal evolution	10 ⁻⁷	10 ⁶	²³⁷ Np, ²³³ U, ¹³⁵ Cs
Ground water intrusion	10 ⁻⁸	10 ⁶	¹³⁵ Cs, ⁷⁹ Se, ²²⁶ Ra
Human intrusion	10 ⁻⁴	500	²⁴¹ Am, ²⁴³ Am, ²⁴⁰ Pu

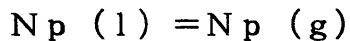
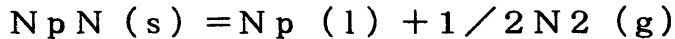
整理番号 OMEGA-19 1/8

タイトル Title	: TRU燃焼のための窒化物燃料サイクルの研究開発 : RESEARCH AND DEVELOPMENT OF NITRIDE FUEL CYCLE FOR TRU BURNING
Author	: Y.Suzuki, et al. (Organization : J A E R I (日本))
Keyword	: TRU燃焼のための窒化物燃料サイクル、物質収支
<p>J A E R Iで行われているアクチニド専焼炉と高速炉におけるTRU核種燃焼のための窒化物燃料サイクルの現状について報告している。</p> <p>ゾルゲル法による窒化物粒子燃料製造</p> <p>製造プロセス研究の目的で以下の手順で一窒化ウランUNが製造された。</p> <ol style="list-style-type: none"> ① 窒化ウラン、炭素粉末、ヘキサメチレンテトラアミン (HMTA) の混合によるC/U比2.75のフィード溶液の調製 ② 加熱(約360K)によるHTMAの分解 (HTMA→アンモニア) ③ 液体の小滴のゲル粒子への変換 ④ ゲル粒子の洗浄・乾燥・か焼 (calcine) (753K) ⑤ 窒素雰囲気での加熱(1773K)による窒化物への転換 ⑥ $N_2-8\%H_2$中での加熱(1673K)によるHCNを介したUO_2と炭素の反応促進・残留炭素の除去 <p>製造されたUN粒子の酸素・炭素の含有量はそれぞれ660 ppm、30 ppmであった。</p> <p>窒化物燃料ペレットの製造</p> <p>ペレットタイプのウラン・プルトニウム混合窒化物 (U, Pu) Nが、二酸化物とグラファイトの carbothermic reduction ののちボールミルにより粉碎し、圧縮して焼結するという簡便な方法で製造された。</p> <p>照射試験のため、ペレットの密度を約85%TDに維持できるように、高密度の燃料マトリックス中に比較的大きな気孔を導入した熱的に安定なペレットが製造された。</p> <p>燃料特性測定</p> <p>PuNとNpN、UNとNpNの疑似二元素系の結晶パラメータは固溶体のX線回折分析により決定された。NpN-PuN系は、UN-PuN系に類似して、組成の全ての範囲で完全に相互に固溶していることがわかった。UN-PuN系と同様に、特にPuNに富む組成の場合にVegard則から正に外れるということも示唆された。</p>	

整理番号 OMEGA-19 2/8

タイトル	: TRU燃焼のための窒化物燃料サイクルの研究開発
Title	: RESEARCH AND DEVELOPMENT OF NITRIDE FUEL CYCLE FOR TRU BURNING

NpNと、NpNとPuNの固溶体のクヌーセン流出マススペクトロメトリー実験が行われた。NpNは次の反応により液体ネプツニウムと窒素ガスに分解することが考えられるという結論になった。



データから概算されたNpNの組成の標準自由エネルギーは次式で表される。

$$\Delta G_f = -295.870 + 91 T \text{ (J/mol)}$$

窒化アクチニドの熱拡散係数は熱伝導度を推定するレーザーフラッシュ法を用いて測定された。推定値から、一窒化アクチニドの熱伝導度は Fig. 1 に示すように、重金属の原子番号の増加と共に減少するということが確かめられた。

照射挙動

照射試験のために製造された、熱的に安定したウラン・プルトニウム混合窒化物 ($\text{U}_{0.8}\text{Pu}_{0.2}$) の燃料ピン (Table.1) は、最大加熱率 650-730 W/cm で、最大燃焼度 5.5 %FIMA まで JMTR で照射された (Fig.2参照)。全てのケースにおいて損傷したピンは認められなかった。窒化物燃料からのFPガス放出についての結果は Fig. 3 にプロットされている。有利な熱的特性と、燃料マトリックスの安定性により、燃焼度 4~5 %FIMA では、窒化物燃料は核分裂ガス放出がとても少ない (2~3%)。その上、燃料ピンの最大直径増加率は訳 1 %/FIMA かそれ以下で、また燃料中の核分裂ガスは少なくとも燃焼度 5.5 %FIMA まではガススエリングをあまり加速しないということも確認された。

再処理技術

プロセスとマスバランスの評価

窒化物燃料の熔融塩電解精錬では、窒化物燃料はアノード上で溶解し、アクチニド金属は、ウランの回収用の固体カソードとTRUの回収用の液体カソードから構成される2つのカソード上に堆積する。電解精錬器で回収されるアクチニドの量を決

整理番号 OMEGA-19 3/8

タイトル Title	: TRU燃焼のための窒化物燃料サイクルの研究開発 : RESEARCH AND DEVELOPMENT OF NITRIDE FUEL CYCLE FOR TRU BURNING
<p>め、核分裂生成物の除染係数を概算するため、窒化FBR燃料に関するシミュレーション計算がPALEOコードを用いて行われた。希土類元素はアクチニドとの分離が最も困難なもの1つであるCeで代表された。</p> <p>LiCl-KClの共晶熔融物中の主要な元素の平衡濃度はPu 7.0 wt%、U 4.0 wt%、マイナーアクチニド(Am) 0.19 wt%、希土類(Ce) 4.0 wt%に設定された。アノードとカソードのポテンシャルは、電解精錬の間、Ag/0.1wt%AgClに対して-0.5Vと-1.4Vに制御された。シミュレーション計算の結果として塩中における各々の元素の時間に依存した濃度がFig. 4に示されている。</p> <p>Table 2は電解精錬と塩取り扱いのマスフローを要約している。年間の処理容量は4 Gweの窒化物燃料FBRからの使用済燃料に相当する44 ton-HMeq (heavy metal equivalent)に設定した。払い出した燃料の平均燃焼度は炉心燃料で100 GWd/t、ブランケット燃料で12 GWd/tである。年間の運転日を200日としたとき、一日当たり約220 kg-HMeqが処理される。プロセスロスを考慮しなければ、塩プロセスからの回収量を加えた後ではU 99.45%とPu 99.95%が回収される。</p> <p>窒化アクチニドの電解</p> <p>LiClとKClの共晶熔融物中のUNのアノード溶解を研究し、UNのアノード溶解のしきいポテンシャルが測定された(Fig. 5)。</p> <p style="text-align: right;">(抄訳者：鍛冶 直也)</p>	

整理番号 OMEGA 19 4/8

タイトル	: TRU燃焼のための窒化物燃料サイクルの研究開発
Title	: RESEARCH AND DEVELOPMENT OF NITRIDE FUEL CYCLE FOR TRU BURNING

重要な図

Table 1 JMTR照射窒化物燃料ピンの典型的挙動

Fuel pin		
Pin length	(mm)	250
Fuel length	(mm)	100
Outer diameter	(mm)	9.40
Cladding material		20% CWSUS316/Ferritic SUS
Cladding thickness	(mm)	0.51
Inter diameter	(mm)	8.38
Smear density	(%TD)	80
Fuel pellet		
Material		(U,Pu)N
Pu/(U+Pu)		0.20
Pellet diameter	(mm)	08.18 - 8.23
Pellet density	(%TD)	83 - 86
Pellet/cladding diameter gap	(mm)	0.15 - 0.20
Bonding material		He

整理番号 OMEGA 19 5/8

タイトル	: TRU 燃焼のための窒化物燃料サイクルの研究開発
Title	: RESEARCH AND DEVELOPMENT OF NITRIDE FUEL CYCLE FOR TRU BURNING

重要な図

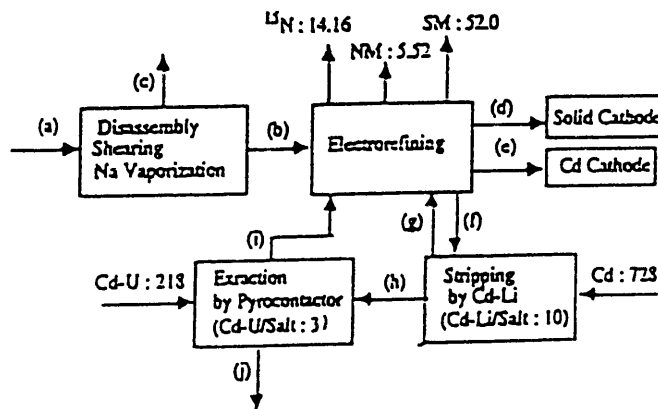
Table 2 電解精錬と塩処理プロセスのマスフロー

Element	(1GWe x 4 FBRs equivalent)				(kg/day)
	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)
U	200.40	200.40		180.53	22.71
Pu	22.72	22.72			22.71
MA	0.88	0.88			0.88
ALM	1.32	1.32			
RE	2.61	2.61			0.52
NM	5.52	5.52			
HL	0.14	0.14			
²³⁵ U ₂	14.16	14.16			
VFP	1.48		1.48		
Na	16.88		16.88		
SM	800.00	52.00	748.00		

Element	(f)	(g)	(h)	(i)	(j)
U	2.91	2.65	0.26	3.15	1.49
Pu	5.10	4.25	0.85	0.835	0.015
MA	0.138	0.099	0.039	0.038	0.001
ALM	1.32	0.01	1.31		1.31
RE	2.91	0.58	2.33	0.24	2.09
HL	0.14		0.14		0.14

MA : Minor Actinide RE : Rare Earth NM : Noble Metal HL : Halogen
 ALM : Alkali VFP : Vaporous FP SM : Structural Material

(a) - (j) : See bellow



整理番号 OMEGA 19 6/8

タイトル : TRU燃焼のための窒化物燃料サイクルの研究開発
 Title : RESEARCH AND DEVELOPMENT OF NITRIDE FUEL CYCLE FOR TRU BURNING

重要な図

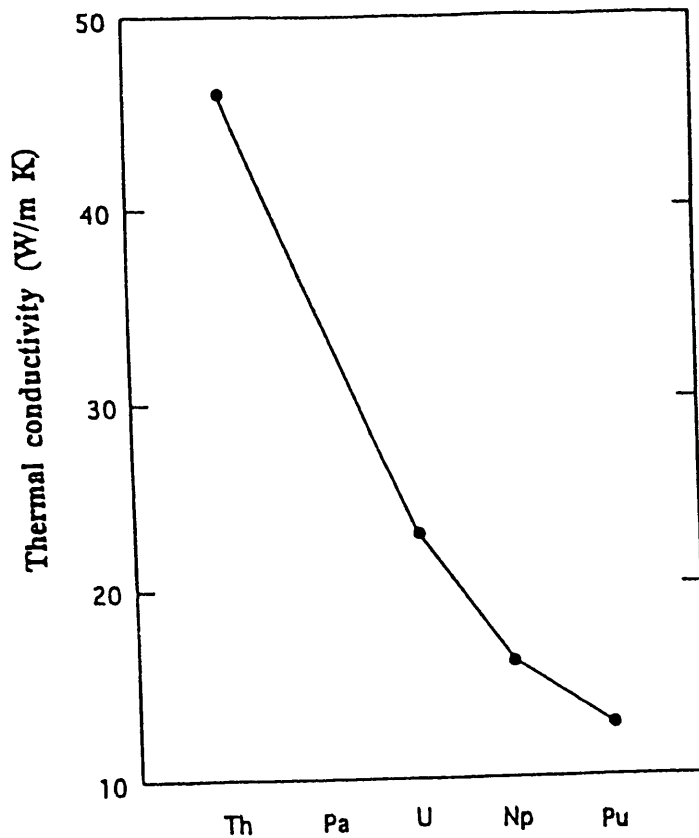


Fig. 1 一窒化アクチニドの熱伝導率

Test No.	Reactor	No. of pins	Dia. (mm)	Linear power (kW/m)	Burnup (%FIMA)	'87	'89	'91	'93	'95	'97	'99
1	JMTR	2	9.4	65	4.1		————	————				
2	JMTR	2	9.4	73	5.5			————	————			
3	JOYO*	2	8.5	(80)	(4.5)					————	————	

Under collaboration research program with PNC

———— Irradiation ———— PIE

Fig. 2 窒化物燃料照射計画

整理番号 OMEGA 19 7/8

タイトル : TRU燃焼のための窒化物燃料サイクルの研究開発
 Title : RESEARCH AND DEVELOPMENT OF NITRIDE FUEL CYCLE FOR TRU BURNING

重要な図

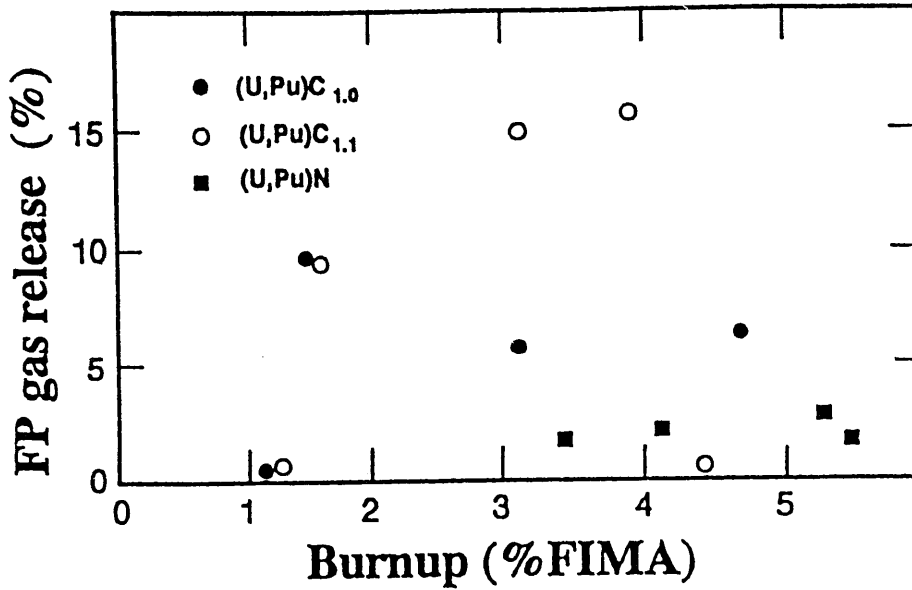


Fig. 3 JRR-2 及び JMTR で照射された窒化物燃料及び炭化物燃料のFPガス放出

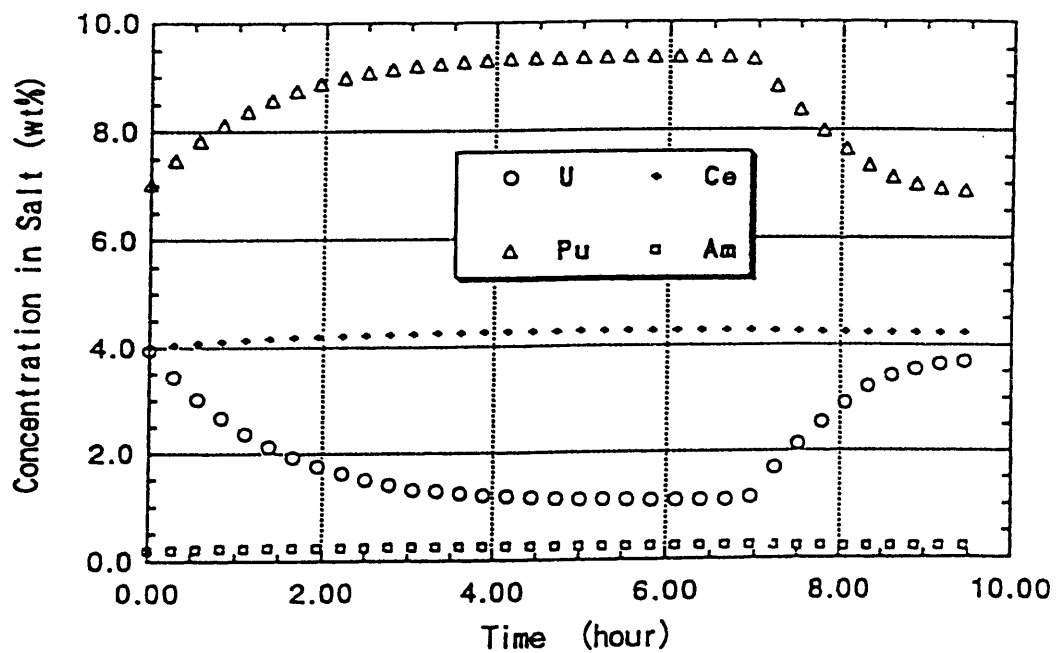


Fig. 4 窒化物燃料電解精錬における塩中での元素濃度変化

整理番号 OMEGA 19 8/8

タイトル Title	: TRU燃焼のための窒化物燃料サイクルの研究開発 : RESEARCH AND DEVELOPMENT OF NITRIDE FUEL CYCLE FOR TRU BURNING
---------------	---

重要な図

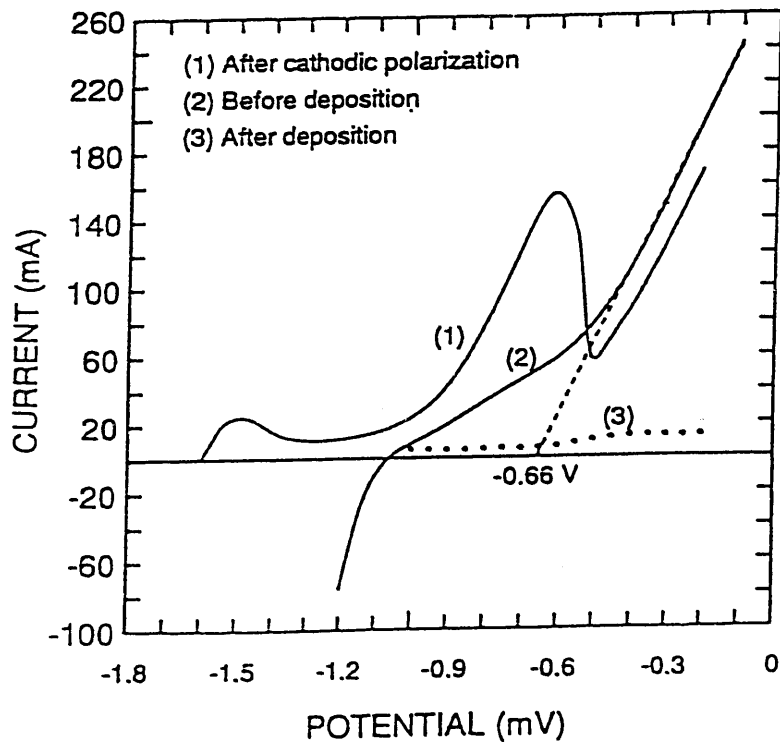


Fig. 5 UNの溶解電位測定結果

タイトル

Title: CONSTRAINTS OF THE FABRICATION OF AMERICIUM OXIDE TARGETS

Author : A. Renard, A. La Fuente, S. Pilate (BELGONUCLEAIRE, Brussels)
A. Harislur, M. Mouney, M. Rome (EDF, Paris & Lyon)

Keyword

Am取扱い, 線量率, 貯蔵, 輸送

要旨

仮定; MOX燃料と同様にAmO₂燃料を取り扱うものとする。

Am 241/242/243 = 62.4% / 0.3% / 37.3%

Pu 238/239/240/241/242/Am 241 = 2.4 / 53.4 / 23.6 / 12.3 / 7.1 / 1.2 %

ターゲットピン; AmO₂ (matrix Al₂O₃)

比較対象MOX; 7.8%Pu (3.7%U-235相当)

使用計算コード; QAD-CGGP(γ), MCNP-4A(neutron)

予備比較結果

遮蔽扉から30cmにおける線量率をTABLE Iに示す。

輸送容器(200ピン)の表面から1mにおける線量率をTABLE IIに示す。IAEAの制限基準では表面で2mSv/h, 2mにおいて0.1mSv/h

比較結果の確認

1. MOX貯蔵からの線量

BG Dessel において測定(参考; Fig. 1), 計算結果と測定結果の比較をTABLE IIIに示す。計算結果と測定結果はよく一致している。

2. 輸送容器からの線量

Pu富化度5.3%のMOX集合体を用いて測定, 計算結果と測定結果の比較をTABLE IVに示す。

3. SUPERFACT ピンからの線量

pin 14 ; Am241/Np237/DU = 20% / 20% / 60%

TUIの測定・計算とクロスチェックしたものをTABLE IVに示す。

結論

線量率の増加におけるMOXに対するファクター

粉末貯蔵; 80

ターゲットピン; 50

集合体輸送容器; 2800

線量率の増加のためAm燃料の製造はセル内で行うことが望ましい。また, 燃料集合体の輸送には強力な遮蔽能力を有する輸送容器が必要となる。

(抄訳者; 紙谷正仁)

タイトル

Title: CONSTRAINTS OF THE FABRICATION OF AMERICIUM OXIDE TARGETS

TABLE I
Powder Storage Vaults
Dose rates at 30 cm distance from the door (mSv/h)

	Gamma dose	Neutron dose	Total
PuO ₂	0.015	0.019	0.034
AmO ₂	2.77	0.060	2.83
Ratio	185	3	82

TABLE II
Transfer Canister for Pin Bundles
Dose rates at 1 m distance (mSv/h)

	Gamma dose	Neutron dose	Total
MOX pins	0.097	0.135	0.232
AmO ₂ target pins	270	0.94	271
ratio	2.780	7	1170

TABLE III
Calibration of Methods
1. Storage of aged PuO₂

Dose Rates (μSv/h)	Calculated	Measured
from gamma-rays	22.5	23*
from neutrons	33	29

* 23 : is the average of 5 measurements ; the extreme values were 23 ± 7 ; background was discounted.

TABLE IV
Calibration of Methods
2. Transport container (MOX)

Dose Rates (μSv/h)	Calculated	Measured
from gamma-rays	28.8	32
from neutrons	241	208

タイトル

Title: CONSTRAINTS OF THE FABRICATION OF AMERICIUM OXIDE TARGETS

TABLE V
Calibration of Methods
3. SUPERFACT pin with Am

Dose Rates (mSv/h)	Calculated at TUI	Recalculated
SUPERFACT pin 14 :		
- from gamma-rays :	0.25 ¹⁾	0.33
- from neutrons :	₂₎	0.00057
Standard PHENIX pin :		
- from gamma-rays :	0.0065	0.0068
- from neutrons :	0.00018	0.00028

¹⁾ measured : 0.26

²⁾ no measurement quoted

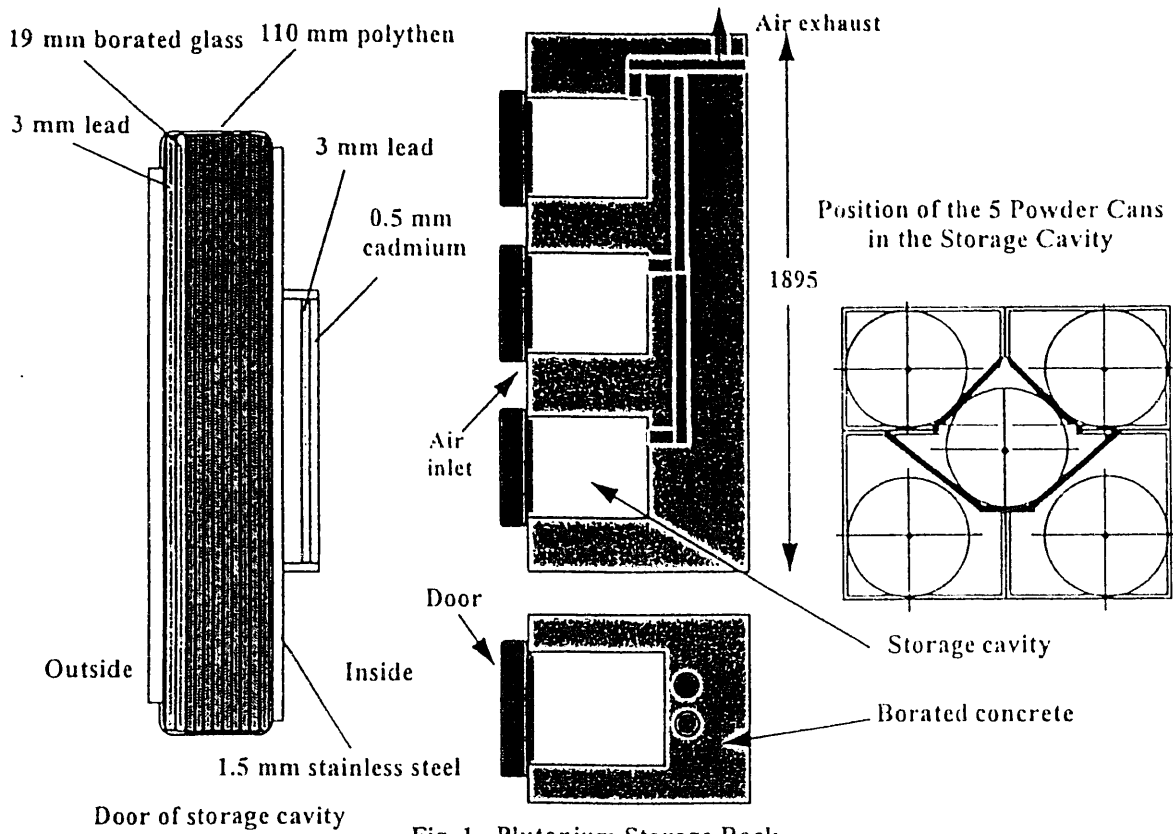


Fig. 1. Plutonium Storage Rack

整理番号 OMEGA—21 1/5

タイトル：TRUと希土類元素の熔融塩電解精錬による分離

Title : MOLTEN SALT ELECTROREFINING TO SEPARATE TRANSURANIUM
ELEMENTS FROM RARE EARTH ELEMENTS

Author: Takatoshi HIJKATA et al.

Central Research Institute of Electric Power Industry(CRIEPI)

Keyword : 電解精製、分離係数、アクチニド、希土類元素、Cd陽極、Li₂Sb陽極

1.内容

電力中央研究所(電中研)では、PUREX法で再処理したHLWからのアクチニドの分離に関する研究を進めている。分離方法を図1に示す。まず、HLWを脱硝し酸化物としたものに塩素ガスを吹き込むことにより、塩化物に転換する。これを熔融塩と液体CdもしくはBiにより還元抽出を行い、CdもしくはBi中にアクチニドを抽出する。さらに電解精製を行い、FPからアクチニドを回収する。電解精製工程は2段階で行い、まず還元抽出で用いた液体金属を陽極として固体陰極に析出させる。次に陽極をLi₂Sbを陽極として分離を行う。

試験は、水分・酸素を1ppm以下、窒素を500ppm以下にした高純度Ar雰囲気で行った。使用した試験装置を図2に示す。試験で用いた元素と量について表1に示す。まず第1ステップでは、1mmφのTa線を一部穴を開けたアルミナチューブで覆い陰極とする。陽極には、各元素を溶解させたCdを用いた。その後10~20クーロン通電した。第2ステップでは、第1ステップで使用したCdを除去した後、陽極としてLi₂Sbを挿入し、20~50クーロン通電した。

図3はアクチニドと希土類元素(RE)の分離係数と通算電気量の関係である。分離係数は、式1により、計算される。

整理番号 OMEGA—21 2/5

タイトル：TRUと希土類元素の熔融塩電解精錬による分離

Title : MOLTEN SALT ELECTROREFINING TO SEPARATE TRANSURANIUM
ELEMENTS FROM RARE EARTH ELEMENTS

$$\text{分離係数} = \frac{\frac{\text{析出したMの総量}}{\text{析出したREの総量}}}{\frac{\text{電解前のMの総量}}{\text{電解前のREの総量}}} \quad \dots \text{式1}$$

ここでMは、U,Np,Pu,Amである。この結果、REに対する分離係数はU約20、Np約40、Pu約8、Am約1となった。UとNpについてみると、塩中の生成自由エネルギーから計算した分離係数とは、大小関係が逆転している。これは、陰極に析出したUが電極から脱落したことによると思われる。試験の結果、PuとAmについては析出量が少なかったため、小さな値となった。第1ステップでのアクチニドの分離係数は平均して約20となった。

図4は、第2ステップのアクチナイドとREの分離係数と通電量の関係である。分離係数はU約8、Np約60、Pu約20、Am約2となった。Uのみ計算値とは、異なっていた。第1ステップに比べて、REの析出量は増加していた。試験の結果、第2ステップでのアクチニドの分離係数は平均して約10となった。

2.結論

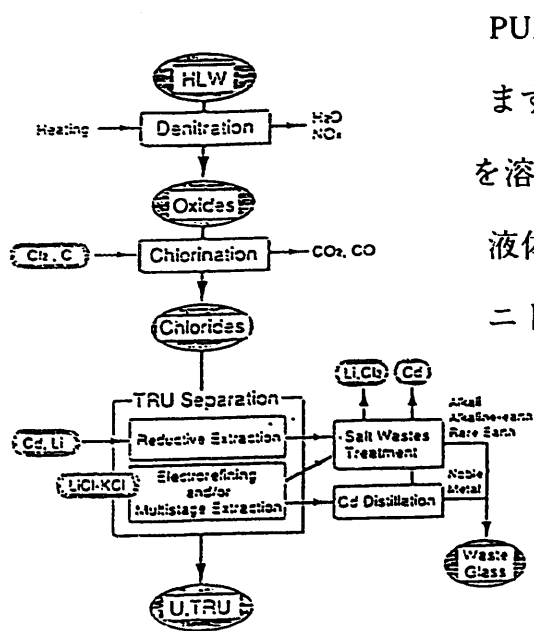
- (1)Cd陽極の場合、REとアクチニドの分離係数は、22となった。
- (2)Li₂Sb陽極の場合、分離係数は10であった。これは、析出物の主体がU,NpからAmに変わったためである。
- (3)熔融塩電解精錬では、REの8.6倍のTRUを回収できた。

(抄訳者 北脇慎一)

タイトル： TRUと希土類元素の熔融塩電解精錬による分離

Title : MOLTEN SALT ELECTROREFINING TO SEPARATE TRANSURANIC

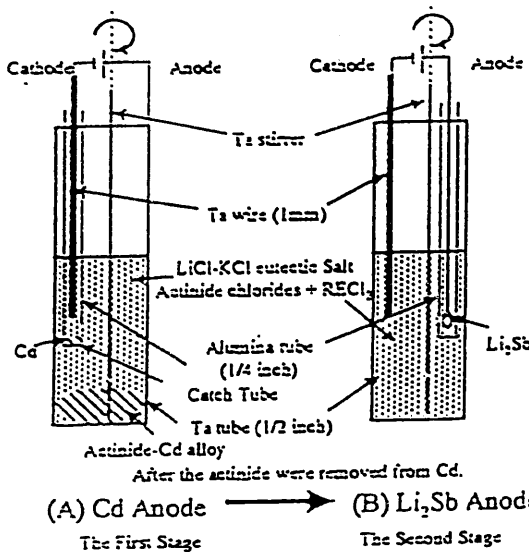
ELEMENTS FROM RARE EARTH ELEMENTS



PUREX法による再処理から発生するHLWを、まず脱硝後塩素ガスにより塩素化する。塩化物を熔融塩中に装荷し、液体金属へ還元抽出する。液体金属を電極として電解精錬により、アクチノイドを回収する。

Fig.1 Schematic flow diagram for TRU pyrometallurgical partitioning from high level wastes.

図1. 高レベル廃液の高温冶金群分離プロセス



直径1/2インチのTa製試験セルを用いた。第1ステップでは、1mmφのTa線にアルミナチューブの保護管を付けたものを陰極とし、液体Cdを陽極とする。第2ステップでは、陽極をLi₂Sbにして電解する。

Fig.2 Schematic diagram of the experimental cell. (A) Cd anode (B) Li₂Sb anode

図2. 電解精錬試験セル

整理番号 OMEGA-21 4/5

タイトル：TRUと希土類元素の熔融塩電解精錬による分離

Title : MOLTEN SALT ELECTROREFINING TO SEPARATE TRANSURANIUM
ELEMENTS FROM RARE EARTH ELEMENTS

表1. 電解精製試験初期装荷量

Table 1 The initial composition of the experiment*

	Total (mg)	Cd Phase (mg)	Salt Phase (mg)
LiCl-KCl			4.4952 (g)
Cd		7.4214(g)	
U**	37.0	30.0	7.0
Np	15.0	9.0	6.0
Pu	1.6	0.8	0.8
Am	16.9	9.2	7.7
Y	11.7	D.L.	11.7
La	36.4	0.5	35.9
Ce	69.0	2.9	66.1
Nd	110.0	5.2	104.8
Gd	7.3	0.3	7.0

*:The chemical composition in the system was adjusted to the ratio of actinides to RE (Y, La, Ce, Nd and Gd) with H.L.W.

**Uranium was one fourth of the simulated composition, and praseodymium was none in the composition.

H LWの組成に基づき、アクチニド (U, Np, Pu, Am)及び希土類元素 (Y, La, Ce, Nd, Gd)を装荷した。

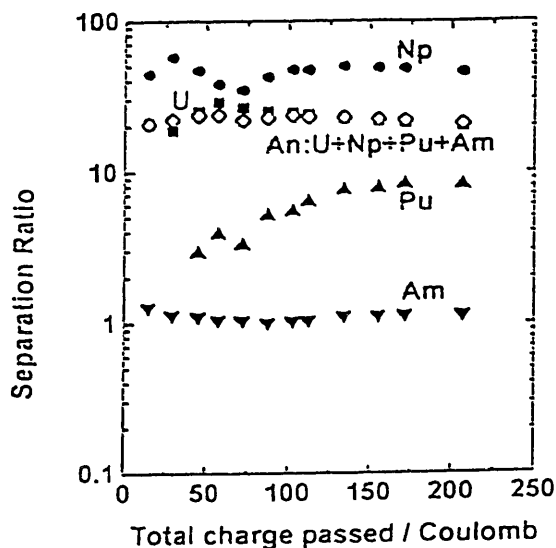


Fig.3 The relationship between the separation ratio at an use of Cd anode and the total charge.

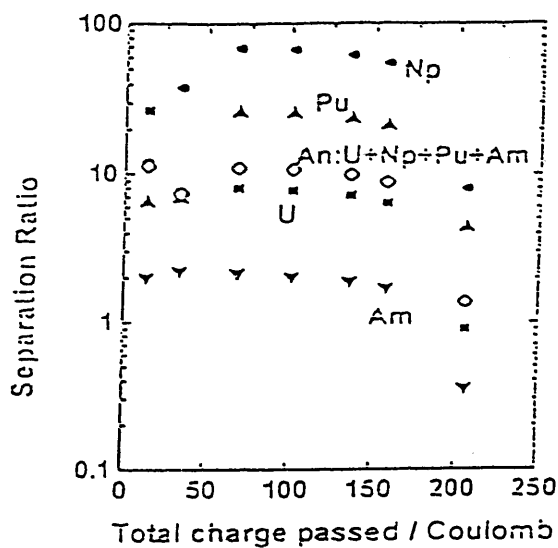
図3. アクチニドのREに対する
分離係数と通算電気量

Cd陽極、Ta陰極での電解精製試験によるアクチニドと希土類元素の分離係数。試験は、500℃、各元素の装荷量は表1参照。電流、電圧の変化については、記載なし

整理番号 OMEGA-21 5/5

タイトル： TRUと希土類元素の熔融塩電解精錬による分離

Title : MOLTEN SALT ELECTROREFINING TO SEPARATE TRANSURANIUM
ELEMENTS FROM RARE EARTH ELEMENTS



Li₂Sb陽極、Ta陰極での電解精製
試験によるアクチニドと希土
類元素の分離係数。試験は、
500℃、各元素の装荷量は表1
参照。電流、電圧の変化につ
いては、記載なし

Fig.7 The relationship between the separation ratio at an use of Li₂Sb anode and the total charge.

図3. アクチニドのREに対する

分離係数と通算電気量

整理番号 OMEGA--22 1/3

<p>タイトル：原研により開発された4群分離工程からの製品及び廃棄物 Title : PRODUCTS AND WASTES FROM FOUR GROUP PARTITIONING PROCESS DEVELOPED IN JAERI</p> <p>出典：</p>
<p>Author : M.Kubota and Y.Morita (Organization : JAERI(日本))</p>
<p>Keyword : 4群分離 , 超ウラン元素 , 白金族 , DIDPA , DTPA , Am と Cm の分離 , 高レベル廃液 , イオン交換 , 脱硝 , 沈殿法</p>
<p>抄訳</p> <p>1.内容</p> <p>73年以来、原研では高レベル廃液(HLLW)中の含有元素を4群に分ける分離工程が開発されている。4群とは超ウラン元素(TRU)、Tc-白金族元素(PGM)、Sr-Cs、そしてその他の元素である。当初はTc-PGMを除く3群分離の研究が行われていたが、85年から4群分離の技術開発が始まった。4群分離は高レベル廃棄物を減容し、HLLW中の貴重な元素や核種を分離できることから、自然環境への長期間にわたる負荷を低減する。図1に4群分離工程を示し、以下にその概要を記す。</p> <p>(1)TRU 元素</p> <p>HLLWを0.5N程度まで脱硝後、濾過してDIDPAにてTRU元素を溶媒抽出する。得られたTRU元素は図2のように硝酸によってAm、Cm及び希土類が、シュウ酸溶液によってNpとPuが、炭酸ナトリウムによってUがそれぞれ逆抽出され、群分離される。更に、Am、Cm及び希土類はDIDPAで再び抽出し、DTPAを使ってAm,Cmのみを逆抽出する。Yは他のR.E.と違い、炭酸ナトリウム逆抽出段でほとんど逆抽出される。</p> <p>(2)Tc-PGM</p> <p>DIDPAラフィネートからTcと白金族を分離する方法にはギ酸による沈殿法と活性炭を使用する吸着法の2つがある。ギ酸沈殿法は2次廃棄物を生じるがTcの回収率に劣る。Ru,Rh,Pdのような白金族は更に分離して有効利用することが望ましいが、その前に長期間の冷却を要するため、早急に解決すべき問題ではない。</p> <p>(3)Sr-Cs</p> <p>チタン酸とゼオライトによる吸着(無機イオン交換)によってSrとCsが各々、分離される。ここで吸着されなかったものが、その他の元素グループとなる。</p> <p>2.結論</p> <p>分離工程で得られた製品の回収率は次のようになると推定される。</p> <p>(1)TRU 製品</p> <p>Am,Cmが99.97%以上、Npが99.85%以上、Uが99.9%以上であり、僅かな量が抽</p>

タイトル：原研により開発された4群分離工程からの製品及び廃棄物
 Title : PRODUCTS AND WASTES FROM FOUR GROUP PARTITIONING
 PROCESS DEVELOPED IN JAERI

出または逆抽出の際に失われている。また、PuについてはHLLWの調整、長期貯蔵、及び脱硝の段階で70%以上が沈殿してしまうことから、その回収率は予測し難い。

(2)Tc 及び PGM 製品

Tc の約 10%、Ru,Rh の約 20%が HLLW の長期貯蔵や脱硝段階で沈殿してしまうので、Puと同様に回収率を予測することは難しい。HLLW 脱硝後の濾過液からの回収率は、DIDPA ラフィネートに沈殿法を適用した場合、Tc 95%、Ru 92%、Rh 87%、Pd 99% である。

(3)Sr 及び Cs 製品

回収率は99.9%以上で、これらを吸着したイオン交換体は、直接か焼によって安定な形に固化でき、SrとCsの浸出性はガラス固化体と比較して4桁ほど低い。

以上のように、DIDPA 溶媒を使用することによって5価のNpを含むTRU元素を完全に分離できる。今後は、DIDPAからのU及びYの逆抽出、希土類からのAm及びCmの分離について更に開発を進める必要がある。

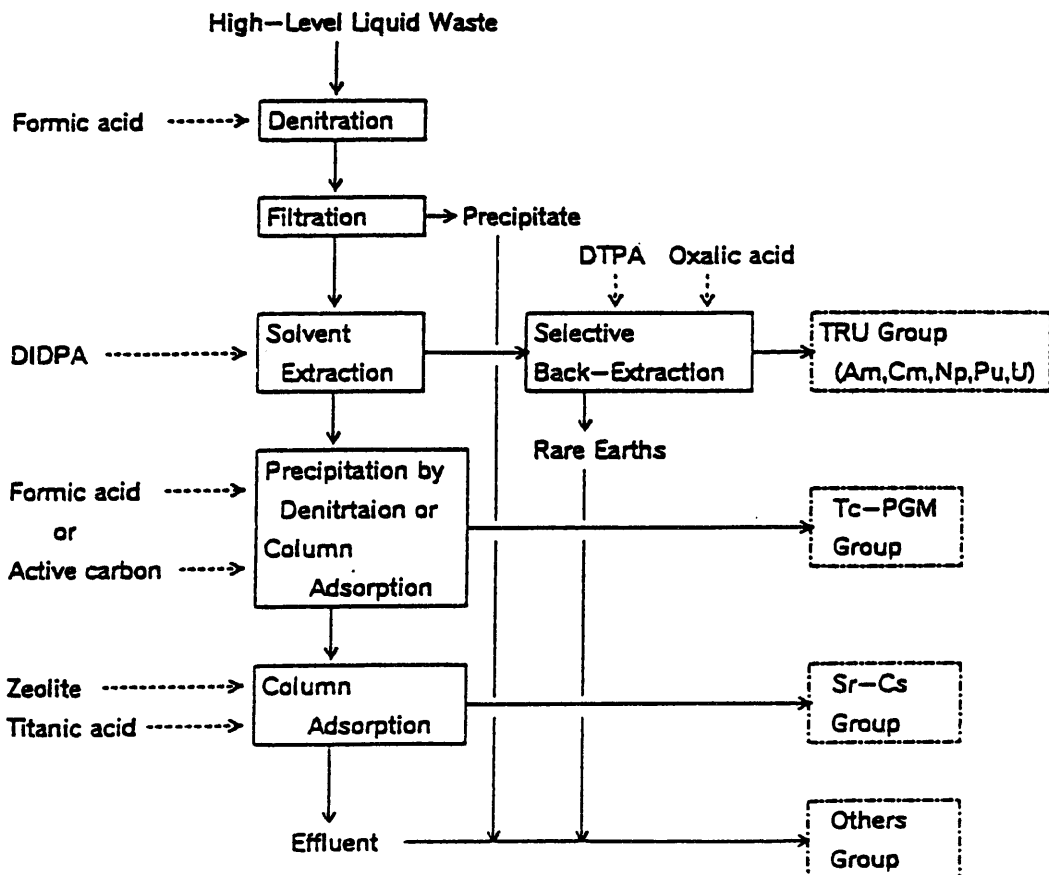


Fig. 1 The four group partitioning process

整理番号 OMEGA-23 1/5

タイトル：放射性液体廃棄物からのカリクスアレンクラウンを用いたセシウムの選択的抽出と移動

Title: SELECTIVE EXTRACTION AND TRANSPORT OF CESIUM WITH CALIX[4]ARENES CROWN FROM RADIOACTIVE LIQUID WASTE

Aurthor: J.F.Dozol.et al (Organization:CEA(France))

keyword: カリクス[4]アレンクラウン、セシウム、選択的抽出、実ラフイネート、SLM、SPIN計画

抄訳

1. 内容

セシウムは2つの長寿命同位体(^{135}Cs , ^{137}Cs)がある。 ^{135}Cs は半減期が非常に長い
ため、核変換による消滅処理や特別なマトリクスへの閉じ込め処分をするために選択的
に分離する必要がある。一方、中レベル放射線性廃液を濃縮処理して得られる濃縮
物には、 ^{137}Cs が含まれるが、長寿命核種である ^{137}Cs はこれから除去しておくこと
が望ましい。

このため、今までにセシウムの選択的回収について、クラウンエーテルを含むカリクスアレンを
合成し模擬廃液を用いて研究してきた。その結果、カリクスアレンクラウンはセシウムに対し
高い分配係数を示すとともに、高いCs/Na分離性を示した。

本報では、実廃液で4種類のカリクスアレンクラウン6*を用いたCs回収について、Cs分配係
数とSLM(Supported Liquid Membranes)でのCsの移動に対し実験を行った。その結果、
分配係数は60以上であり、模擬廃液で得られた結果を確証することができ、また、
SLMのキャリアーとしてカリクスアレンクラウン6を用いた試験では、セシウムだけがフィード相からス
トリップ相へ移動し、除染係数として、残余Puが共存するケースを除いて、すべての元素
や放射性核種に対し、50あるいは100以上の値が得られた。

*bis crown-6-calix[4]arene, 1,3-diisopropoxy-2,4-crown-6-calix[4]arene,

1,3-di(2-nitrophenoxy octyloxy)-2,4-crown-6-calix[4]arene

1,3-dioctyl oxy-2,4-crown-6-calix[4]arene

2. 結論

カリクスアレンクラウンは酸性溶媒からセシウムの抽出に対し、クラウンエーテルよりも効率的であ
り、非常によいCs/Na分離性を示す。また、逆抽出もでき、この性質により廃液の体
積を非常に減容できることになる。

このことから、カリクスアレンは高濃度のNa塩を含む液からの ^{137}Cs を回収することに
対して非常に有望であり、消滅処理や処分前の液から ^{135}Cs を選択的に分離すること
に対しても非常に有望である。

(抄訳者：荻野英樹)

OMEGA-23 2/5

タイトル：放射性液体廃棄物からのカリックスアレーンを用いたセシウムの選択的抽出と移動

Title: SELECTIVE EXTRACTION AND TRANSPORT OF CESIUM WITH CALIX[4]ARENES CROWN FROM RADIOACTIVE LIQUID WASTE

以下に示した化合物を用いて試験を行っている。

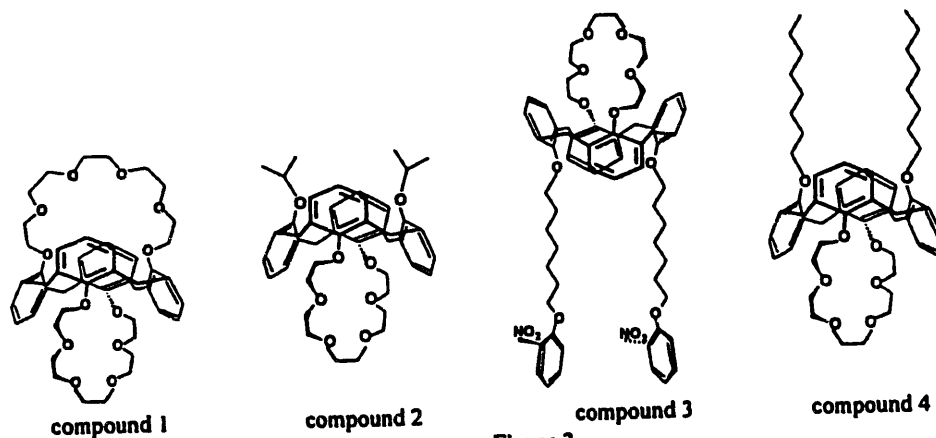


Figure 2

Structure of crown 6 calix[4]arenes

Compound 1 : bis crown-6-calix[4]arene

Compound 2 : 1,3-diisopropoxy-2,4-crown-6-calix[4]arene

Compound 3 : 1,3-di(2-nitrophenoxy octyloxy)-2,4-crown-6-calix[4]arene

Compound 4 : 1,3-dioctyl oxy-2,4-crown-6-calix[4]arene

OMEGA-23 3/5

タイトル：放射性液体廃棄物からのカリックスアレーンクラウンを用いたセシウムの選択的抽出と移動

Title: SELECTIVE EXTRACTION AND TRANSPORT OF CESIUM WITH CALIX[4]ARENES CROWN FROM RADIOACTIVE LIQUID WASTE

以下の溶液組成の実廃液を用いて試験を行っている。

Table 3

Chemical and radiochemical composition of the real raffinate to reprocess

Acidity	Concentration (mol/l)	Activity (Ci/l)
	4	
Fe	4.5×10^{-4}	
Zr	5.1×10^{-3}	
Mo	4.9×10^{-3}	
Nd	4.9×10^{-3}	
Ce	3×10^{-3}	
Pu	$< 2 \times 10^{-3}$	
U	$< 4.2 \times 10^{-3}$	
Tc	$< 5. \times 10^{-3}$	
Np	$< 2.1 \times 10^{-3}$	
Cs	4.15×10^{-3}	
¹⁰⁶ Ru		0.73
¹²⁵ Sb		0.21
¹³⁴ Cs		2.78
¹³⁷ Cs		17.9
¹⁴⁴ Ce		0.42
¹⁵⁴ Eu		1.07
²⁴¹ Am		1.22 (17.8 %)
²⁴⁴ Cm		5.57 (81.3 %)
²⁴² Cm		0.024

Table 11

Chemical and radiochemical composition of the real raffinate to reprocess [1]

Cations	g.l ⁻¹	M	Anions	g.l ⁻¹	M
Na	60	2.61	NO ₃ ⁻	340	
K	4.5	0.117	PO ₄ ³⁻	1.7×10^{-3}	
Mg	14.9	0.620	Cl ⁻	<0.1	
Ca	0.38	0.0095			
Al	0.5	0.0137			
Cr	0.05	0.000693			
Fe	0.98	0.0175			
U	1.3	0.00546			
Mo	<0.02	$< 2.1 \times 10^{-4}$			
Zn	0.07	1.07×10^{-3}			
Zr	<0.01	$< 1.1 \times 10^{-4}$			

Acidity : 1.05 M

Radioelements	Mbq.l ⁻¹	mCi.l ⁻¹
Pu 239 to 242	1.7	0.046
Pu 238 + Am 241	8.14	0.22
Cm 244	1.33	0.036
Cm 242	6.66	0.18
Sr 89 + 90	648	17.5
Co 60	3	0.1
Ru 106	720	19.5
Sb 125	40	1.1
Cs 134	180	4.9
Cs 137	3200	86.5
Ce 144	350	9.5
Pr 144	350	9.5
Eu 154	9	0.2

OMEGA-23 4/5

タイトル：放射性液体廃棄物からのカリクスアレンクラウンを用いたセシウムの選択的抽出と移動

Title: SELECTIVE EXTRACTION AND TRANSPORT OF CESIUM WITH CALIX[4]ARENES CROWN FROM RADIOACTIVE LIQUID WASTE

Table3に示された組成の実液を使用し、3つの化合物で実験した結果である。Table4,5はカリクスアレンクラウンを用いた液-液抽出の結果で、Table6,7はSLMによる結果である。

Table 4

Calixarènes	Cesium distribution coefficients (D_{Cs})			
	Extraction		Back-extraction	
	*	**	*	**
Compound 1	55±5	50±5	10±1	10±1
	55±5	46±5	11±1.1	12.5±1.2
Compound 2	61±6	55±5	10±1	10±1
	71±7	78±8	6.7±0.7	7.2±0.7

* aqueous phases mass-balance

** measurements of organic and aqueous phases

Table 5

of liquid-liquid extraction of a real raffinate (Table 1) by crown calixarenes.
Cesium distribution coefficients and cesium decontamination factors towards other elements

Calixarènes	Decontamination factors of cesium towards M, $DF_{(Cs/M)}$:										
	By emitters				Chemical elements				Actinides		
	^{106}Ru	^{125}Sb	^{144}Ce	^{154}Eu	Mo	Zr	Fe	Nd	Ce	α tot	Cm
Compound 1	9	>100	>100	>100	9	15	-60	24	19	~50	~50
	7	>100	>100	>100	11	11	22	17	20	~50	~50
Compound 2	73	>100	>100	>100	22	12	25	44	17	>100	>100
	36	>100	>100	>100	117	13	13	64	30	>100	>100

Calixarene 0.1 M in 1,2-NPHE, $t = 30^{\circ}C$, stirring speed 1000 rpm, back-extraction : demineralized water.

note : two D_{Cs} measurements were performed.

$D_{Cs} = [DCs]_{org} / [Cs]_{aq}$, $DF_{(Cs/M)} = D_{Cs} / D_M$.

Table 6

Extracted cesium percentage during transport experiments

Compound	Extracted cesium (%)	
	after 4 h	at the end of the rest
Compound 1	30.4	58.3 (13 h)*
Compound 2	55.7	77.5 (8h40)*
Compound 3	63.1	86.3 (9 h)*

* the transport test lasted (xh)

Table 7

Cesium decontamination factors obtained during transport experiments

Calixarenes	Time (h)	Decontamination factors of cesium towards M, $DF_{(Cs/M)}$:										
		By emitters				Chemical elements				Actinides		
		^{106}Ru	^{125}Sb	^{144}Ce	^{154}Eu	Mo	Zr	Fe	Nd	Ce	α tot	Cm
compound 1	13	>50	>50	>50	>50	>100	>100	>100	>100	>100	>100	>100
compound 2	8.7	>50	>50	>50	>50	>100	>100	>100	>100	>100	>100	>100
compound 3	9	>50	>50	>50	>50	>100	>100	>100	>100	>100	98	98

OMEGA-23 5/5

タイトル：放射性液体廃棄物からのカリックスアレーンクラウンを用いたセシウムの選択的抽出と移動

Title: SELECTIVE EXTRACTION AND TRANSPORT OF CESIUM WITH CALIX[4]ARENES CROWN FROM RADIOACTIVE LIQUID WASTE

Table11に示された組成の実液を使用し、1,3-di-n-octyl oxy-2,4-crown-6-calix[4]areneで実験した結果である。

Table 11

Cs decontamination of the real effluent by liquid-liquid extraction

	Extraction		Back-extraction	
	D _{Cs}	% Extraction	D _{Cs}	% back-extraction
134Cs	15.8	91.1	4.37	17.3
137Cs	14.3	89.2	4.27	18.1

feed solution : TBP washed effluent, organic solution : calixarene octyl $5 \cdot 10^{-2}$ M/NPHE,
back-extraction : demineralized water.

Table 12

Real effluent Cs decontamination by SLM. Solutions after 9 hours contact.
Decontamination factors of Cs

Element X	D.F
239-242Pu	2.5
238Pu + 241Am	148 ≧ >100
244Cm	154 ≧ >100
242Cm	803 ≧ >100
134Cs	-
137Cs	-
Na	>100
K	>105 ≧ >100
Mg	380 ≧ >100
Ca	58.7
Al	40.7
Fe	>1750 ≧ >100
Zn	>302 ≧ >100

Feed solution : real effluent after TBP washing and acidified to 1 M (HNO₃) , organic solution : crown calixarenes $5 \cdot 10^{-2}$ M/NPHE, back-extraction solution : demineralized water, double membrane system.

整理番号 OMEGA-24 1/2

タイトル:	HDEHP を用いた溶媒抽出による希土類からのマイナーアクチニドの分離
Title:	Partitioning of Minor Actinides from Rare Earths by Solvent Extraction with Di(2-ethylhexyl)phosphoric Acid
Author:	Han Beom Yang et al. (Organization: KAERI (韓国))
Keyword:	HDEHP, TALSPEAK, Am, Np, 希土類
抄訳:	<p>燃料サイクルについては "wait and see" の姿勢を採っている韓国において、将来への準備として P&T に取り組んでいる。HLLW を対象とした分離技術開発の一環として、HDEHP を用いた抽出分離法 (TALSPEAK 法) についての実験結果を報告。</p> <p>向流抽出実験には、小形のミキサセトラ (セトラ部 13 mL、44 段) を用い、脱硝後を想定した模擬廃液 (Am・Np はトレーサー、その他はコールド、H^+: 0.1 M) を供給した。Np(IV) の抽出のため、1.0 M 過酸化水素溶液とした。抽出剤は 1 M HDEHP - n-dodecane を使用。抽出分離工程は、抽出、Am 逆抽出、RE 逆抽出、Np 逆抽出の 4 バンクから成る。</p> <p>抽出部では、99% 以上の Am と Np が抽出され、ラフィネート中の濃度は検出下限未満であった。このとき、RE、Zr、Mo 及び Fe のほとんどが抽出され、Sr、Cs、Ni 等もわずかながら同伴した。</p> <p>Am 逆抽出部では、0.05 M DTPA - 1.5 M 乳酸溶液を用いて、99% の Am が回収されたが、85% の Mo や 7% の Fe も同伴した。希土類の中では、2% の Eu が不純物となった。</p> <p>RE 逆抽出部では、6 M HNO_3 により 98% 以上の RE が回収でき、その他の元素の移行は 0.01~2% であった。</p> <p>Np 逆抽出部では、0.5 M $H_2C_2O_4$ 溶液により 99.4% の Np が回収され、6.6% の Fe が同伴した。</p> <p>溶媒中に残留した Fe は 5% $(NH_4)_2CO_3$ - 2 M マンニトールで除去できたが、劣化生成物 H2MEHP は一部しか洗浄できなかった。</p>
	(抄訳者: 駒 義和)

整理番号 OMEGA-24 2/2

タイトル: HDEHPを用いた溶媒抽出による希土類からのマイナーアクチニドの分離
 Title: Partitioning of Minor Actinides from Rare Earths by Solvent Extractrion with Di(2-ethylhexyl)phosphoric Acid

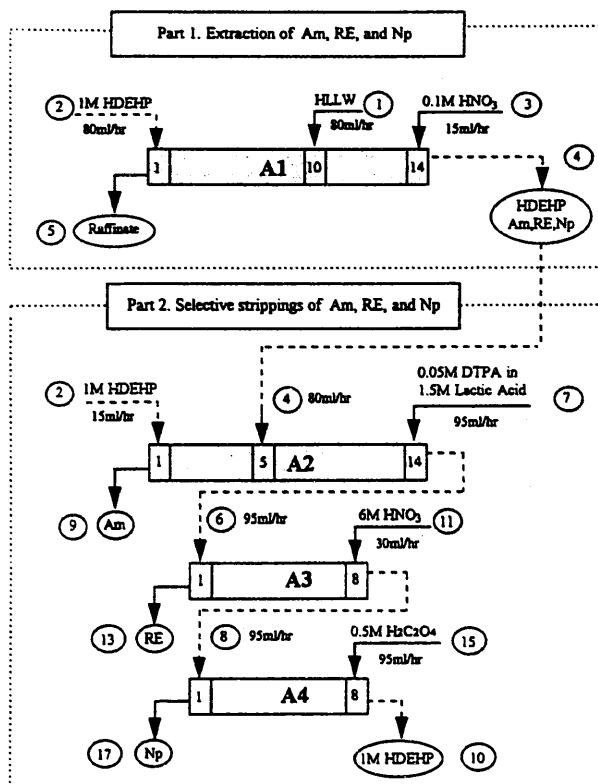


Figure 1. Flowsheet for respective partitioning of Am, RE and Np by extraction with HDEHP and selective strippings

TABLE 1. CHEMICAL COMPOSITION OF THE SIMULATED WASTE SOLUTION

Component		Concentration
TRU	²⁴¹ Am	5.90×10^4 Bq/ℓ
	²³⁷ Np	1.66×10^4 Bq/ℓ
RE	Eu	1.05×10^{-3} M
	La	2.96×10^{-2} M
	Ce	3.47×10^{-2} M
	Nd	5.07×10^{-2} M
	Y	7.90×10^{-3} M
FP	Cs	3.48×10^{-2} M
	Ba	2.37×10^{-2} M
	Rb	7.72×10^{-3} M
	Pd	6.58×10^{-3} M
	Fe	2.02×10^{-2} M
	Ni	4.09×10^{-3} M
	Mo	1.36×10^{-2} M
	Sr	2.08×10^{-2} M
	Zr	4.82×10^{-5} M
Rh	4.66×10^{-3} M	
Media	HNO ₃	0.1 M
	H ₂ O ₂	1.0 M

TABLE 3. THE RELATIVE CONTENTS OF THE VARIOUS ELEMENTS IN THE AQUEOUS OUTLET STREAM OF EACH BANK (Unit : %)

Element	A1 (Raffinate)	A2 (Am product)	A3 (RE stream)	A4 (Np product)
Am	0.03	99.83	0.04	0.02
Np	<0.31	<0.31	0.34	99.37
La	0.01	trace	98.1	trace
Ce	trace	0.08	99.7	-
Nd	-	0.03	99.7	-
Y	0.02	0.03	99.4	0.01
Eu	0.08	2.32	97.5	0.09
Cs	98.75	1.05	0.06	trace
Rb	98.18	0.32	0.11	-
Ba	98.65	0.05	0.03	-
Sr	98.24	0.16	0.2	-
Pd	99.43	0.43	0.86	-
Rh	97.5	0.48	0.77	-
Fe	0.51	7.26	0.08	6.58
Ni	96.2	1.73	1.11	trace
Mo	2.2	84.61	0.77	0.01

trace : < 0.01

整理番号 OMEGA-25 1/5

タイトル: 高温冶金プロセス技術の開発

Title: PYROMETALLURGICAL PROCESSING TECHNOLOGY DEVELOPMENT

Author: Tadafumi KOYAMA, Masatoshi IIZUKA and Hiroshi TANAKA

(Central Research Institute of Electric Power Industry)

Keyword: 電解精製、陽極バスケット、固体陰極、Cd陰極、陽極溶解速度、TRAIL、CAMBRIA、塩廃棄物固化

抄訳

1. 内容

電力中央研究所(電中研)では、乾式分離の技術開発として、電解精製、計算コードの開発、塩廃棄物の安定化についての研究開発を行っている。プロセスフローを図1, 2に示す。

電解精製で用いる陽極バスケットでは、角柱型のバスケットを回転させることにより、燃料溶解速度を向上させることができることが分かった(図3)。また、固体陰極でのU回収効率・析出形態は、陰極/陽極の面積比により変化すること、TRU回収用のCd陰極では、TRUと共に析出するUをCd陰極表面で析出させないように、パドル型攪拌翼で攪拌を行う事が有効であることが分かった。この時、電流密度と攪拌のレイノルズ数の最適条件の検討を行った(図4)。

電解精製の最適条件を検討するため、計算コードの開発を行った。電解精製中の燃料及び塩組成は、一定ではないことからTRAILという計算コードを開発し、電解中の各元素の電解挙動を解析している。このコードは、有限拡散の電気化学反応をモデルとしている。このコードによる計算結果とANLでの試験結果を比較すると良く一致した(図5)。

また、電解槽の処理速度を向上させるには、セル抵抗の減少を知る必要があるため、CAMBRIAというコードを開発した。これは、有限要素法を用いたラプラス方程式により計算している。

整理番号 OMEGA—25 2/5

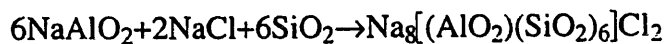
タイトル：高温冶金プロセス技術の開発

Title : PYROMETALLURGICAL PROCESSING TECHNOLOGY DEVELOPMENT

塩廃棄物は水溶性であり、処分形態に転換する必要があるため、塩廃棄物の安定化処理方法についても研究を行っており、電中研では、2種類の方法について検討している。

第1の方法は、電解法であり、金属と塩素ガスに電解後ガラス固化する方法である。

他の方法は、天然の鉍石中に安定に塩化物が存在することから、方ソーダ石(ソーダライト)の3次元格子中に封じ込める方法である。模擬廃塩を用いた、浸出率を測定したところガラス固化やゼオライト吸着よりも良好な結果が得られた(表1)。



2. 結論

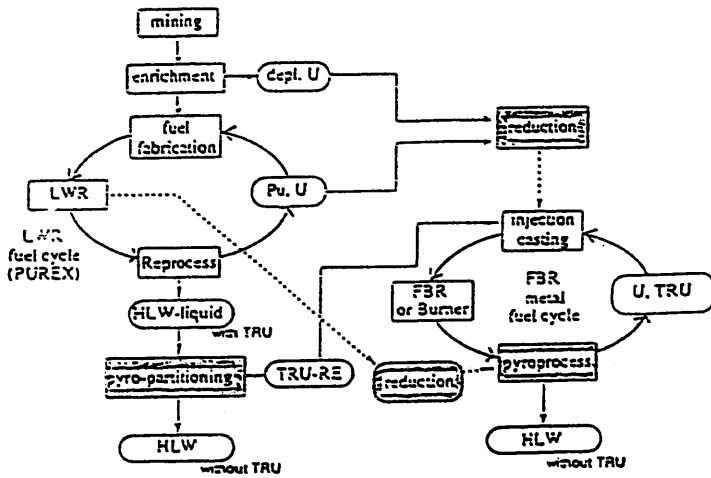
乾式分離に関する研究・開発は、まだ始まったばかりであり、現行のPUREXと比べるには、まだ時期尚早である。電中研では、今後も継続して研究・開発を実施する。

(抄訳者 北脇慎一)

タイトル : 高温冶金プロセス技術の開発

Title : PYROMETALLURGICAL PROCESSING TECHNOLOGY DEVELOPMENT

重要な図



高温冶金プロセスは、
高レベル廃液からの
TRU抽出、金属燃料
高速炉の再処理に適
用が可能である。

Fig. 1 CRIEPI's PYRO program in fuel cycle.

図1.電中研の提唱する燃料サイクル中での高温冶金プロセス

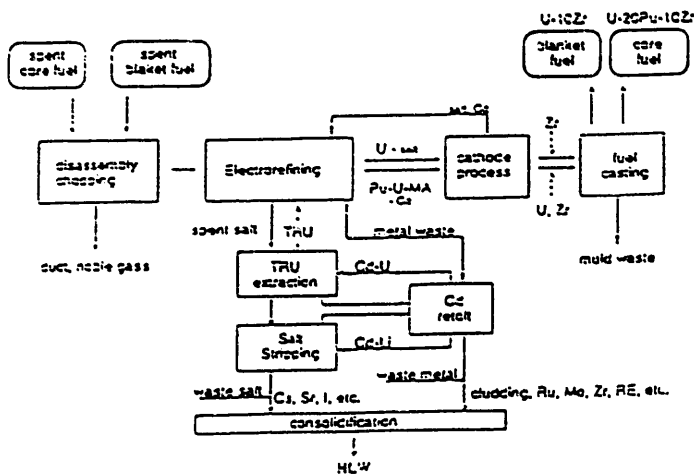


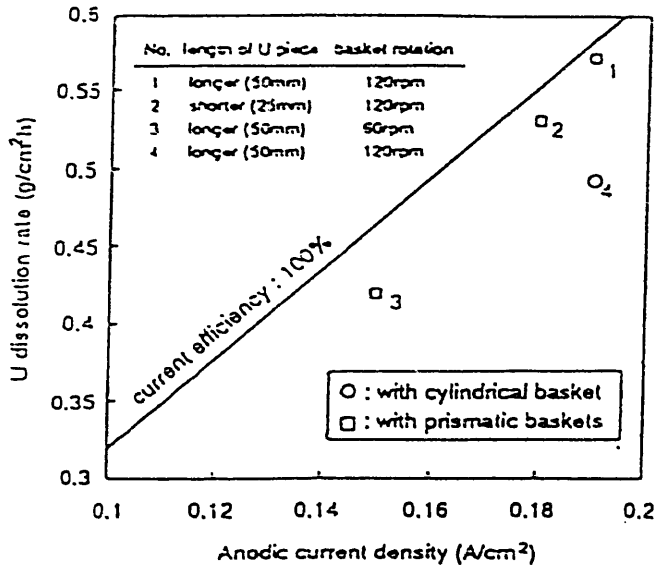
Fig. 2 Pyrometallurgical reprocessing process.

金属燃料を対象として、電解精製
工程でU,Pu,MA,とFPを分離する。
回収したU,PU,MAは、射出成形
によって燃料とする。電解精製で
使用した塩は、還元抽出により残っ
た核物質を回収する。

図2.電中研の提唱する乾式再処理プロセス

タイトル:高温冶金プロセス技術の開発

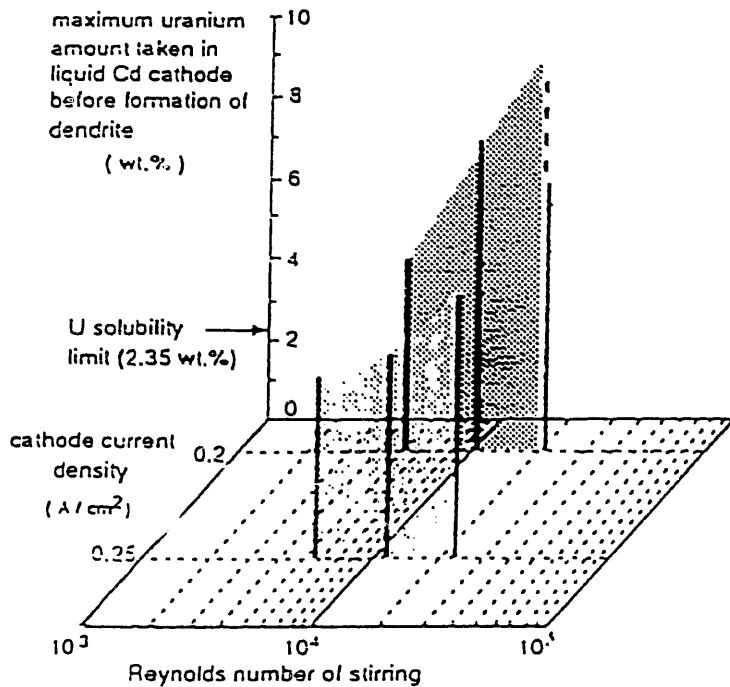
Title: PYROMETALLURGICAL PROCESSING TECHNOLOGY DEVELOPMENT



ステンレス網に穴を開けた形態の2種類のバスケットを使用した。バスケット内のUの形態等詳細については、記載なし。

Fig. 4 U dissolution rate with different anode baskets.

図3.バスケット形状とUの溶解速度



Cd陰極中の攪拌にパドル型攪拌翼を用いた場合のレイノルズ数、陰極電流密度の変化に伴う陰極中へのUの溶解量。実験条件等詳細については、記載なし。

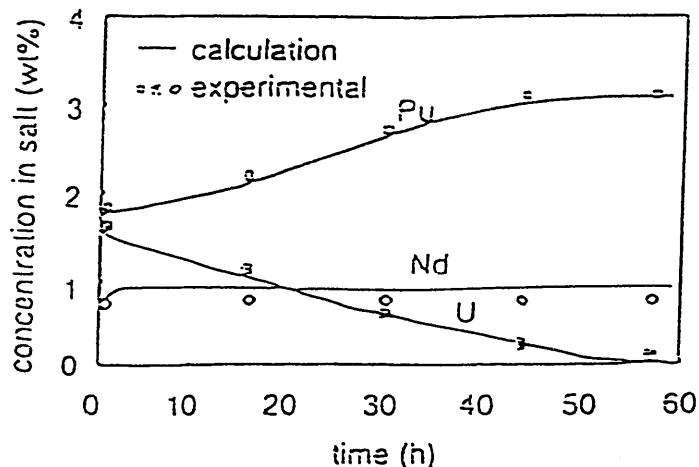
Fig. 6 Uranium dendrite on liquid cadmium cathode.

図4.レイノルズ数と電流密度の変化に伴う

Cd陰極中へのUの溶解度

タイトル:高温冶金プロセス技術の開発

Title: PYROMETALLURGICAL PROCESSING TECHNOLOGY DEVELOPMENT



ANLの実験については、参考文献参照。
 Z.Tomczuk, J Electrochem.Soc., 139,7(1992)
 コードの詳細についても記載なし。

Fig. 9 Electrorefining behavior reported by ANL.

図5.計算値とANLの試験結果との比較

表1.ソーダライト、ゼオライト、ガラス固化体の浸出率

Table 1 Leachability (g/cm²d) from sodalite, zeolite and glass.

	sodalite	zeolite	boro-silicate glass
Li	0.0047	0.12	0.29
K	0.0061	0.031	0.22
Na	0.0023	0.018	0.28
Cs	0.0013	0.0066	NM
Sr	0.00035	< 1.0E-5	NM
Ba	0.000069	< 1.0E-5	NM
Al	0.0015	0.0048	0.14
Si	0.0017	0.0041	0.23
Cl	0.0022	NM	NM
I	0.0029	NM	NM

ソーダライト成形条件は200MPaで圧縮973K ~ 1173Kで50~100時間熱処理したもの。ガラス固化体、ゼオライトについては文献参照

NM: not measured

M.A.Lewis et al., J. Am. Ceram. Soc., 76(11), 2826(1993)

整理番号 OMEGA-26 1/3

タイトル：マイナーアクチニド分離 CEAでの最近の進捗

Title: Minor Actinide separation Recent advances at the CEA

Author : Alain LEUDET , Bernard BOULLIS , Charles MADIC (Organization:CEA(仏国))

Keyword : Np回収, DIAMEX法, ジアミド系抽出剤, 3価アクチニド/3価ランタニド分離, TPTZ, TtBPTZ, SPIN計画

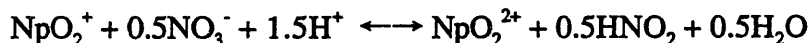
抄訳

序論

使用済燃料から長寿命核種を化学的に分離する際に目的とされるのはいわゆるマイナーアクチニド(MA:Np,Am,Cm)でありこれらの核種は高レベル廃棄物の1000年後における放射性毒性に大きく寄与している。CEAでは最近MAの分離について下記の手法を開発している。

Np分離

Npは硝酸系ではTBPに抽出され難い5価である。しかしPurex法の溶解液には亜硝酸が大量に含まれており、これがNpの一部を抽出性の6価に酸化する。抽出されたNpはU精製工程で原子価調整によりNp(V)として分離される。この現象は以下の反応に拠っている。この反応は発生する亜硝酸が触媒となっている。



開発の方法はPAREXコードの強化によりPurex工程でのNpの挙動を予測し、またNp(V)/Np(VI)の硝酸/亜硝酸共存下における酸化還元機構を実験により解明する。さらにこの結果と実験室規模のパルスカラムを使用した実験とを比較することで行う。

これによりPurex法に軽微な変更を加えることでNpの抽出量が向上し、99.9%のMAが回収できる。(99%はPurex法で、0.9%はDIAMEX法による。)

Am・Cm分離

高レベル廃液からMAを抽出する場合には以下の条件が必要である。

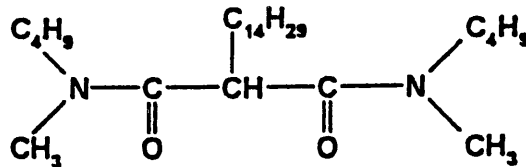
- ・高レベル廃液の硝酸酸性度を変更しないこと。(FPの沈殿を避けるため)
- ・分解可能な有機物(抽出剤又は試薬:C,H,O,Nからのみ構成されるもの)を使用して二次廃棄物の発生を局限する。

ジアミド系抽出剤特にマロンアミドが3価アクチニドを抽出しかつ上記2条件を満たす。これを使用する方法をDIAMEX法と称する。ジアミド系抽出剤は3価の元素はアクチニド/ランタニドの区別なく抽出するので3価アクチニドと3価ランタニドとを分離する工程を付加する必要がある。

整理番号 OMEGA-26 2/3

・DIAMEX法

抽出剤：DMDBTDMA(DiMethylDiButhylTetraDecylMalonAmide)



ジアミドは金属イオンと2つの酸素ドナーにより6員キレートをつくるので非常に安定である。1993年のホット試験では6段抽出工程でAmとCmの収率が99.5%であり、酸濃度の低い水相で逆抽出した。この抽出剤は、i)第3相が形成しやすく操作範囲が限定される、ii)Zr,Mo,Ru等のいくつかのFPを抽出する、という欠点を持つ。これを解決するために、1)第3相生成を抑制するジアミド抽出剤構造の最適化、2)抽出の選択性向上のためのフローシートの開発、の2方向で研究を行う。

1) 抽出剤の最適化

第3相形成は陽イオン錯体の濃度が有機相への溶解度を超えるために有機相が2相に分離することである。これを防ぐために抽出剤のアルキル基を伸ばして抽出剤及びその溶媒和生成物の親油性を向上させる方法があるが次の問題点がある。・抽出剤分子が大きくなるとアミド基へ金属イオンがアクセスしにくくなる。・長鎖劣化物は界面活性剤としての性質を持ち、劣化溶媒からの除去もしにくい。抽出剤の最適化はこれらのバランスをとることで実施する。

2) 選択性の向上

Zr,Moの抽出抑制は非抽出性錯体を形成させることで実施する。・Zrはケトマロン酸と、Moは過酸化水素とそれぞれ錯生成させる。・シュウ酸で同時に錯生成させる。等の方法がある。Ruの抽出抑制は非常に困難である。

・3価アクチニド/3価ランタニド分離

3価アクチニドと3価ランタニドの分離にはソフトなドナー原子に対しアクチニドがランタニドよりも強い錯体を作る性質を利用している。これはf軌道電子に起因している。CEAでは次に示す目的を満たす方法で開発を進める。

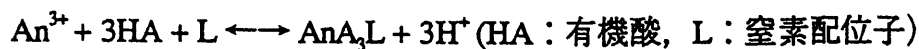
- ・3価アクチニド抽出剤はソフトなドナー原子を持つものを開発する。
- ・抽出剤はC,H,O,Nからのみなる構造とする。硫黄原子は使用しない。
- ・DIAMEX法で発生する水相溶液に直接適用できるものとする。中間的な給液調整は行わない。(酸濃度が0.5~1N程度で使用できるもの)

2つの窒素錯化剤を選定した。

- ・TPTZ(TriPyridylTriazine)：3つの窒素配位座を持ちアクチニドへの選択性に優れている。
- ・Pyridine 2 Carboxamide (ピコリンアミド)：窒素/酸素サイトによりアクチニドへの選択性を持つ

整理番号 OMEGA-26 3/3

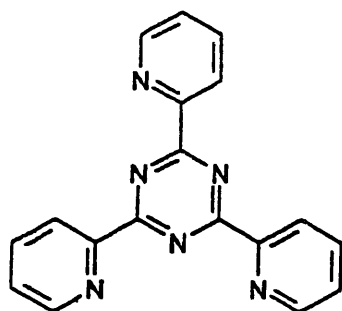
これらをプロセスに適用するためには金属イオンを脱水和する必要がある。
アルキル基を錯化剤分子にグラフトさせても所定の酸性度範囲で抽出できるような親油性が得られるとは限らない。この問題を解決するために有機酸イオンのような硝酸イオンよりも親油性の高い陰イオンの使用を検討している。



α -プロモデカン酸, TPTZ, TtBPTZ(tritertiobutylpyridyltriazine)が研究されている。

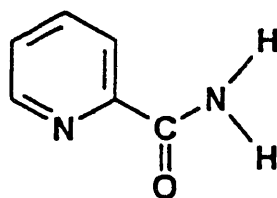
・Am/Euの分離係数は10程度。TtBPTZはTPTZより良好な結果を示した。

図表類



TPTZ (tripyrityl triazine)

This compound has a coordination site with three nitrogen atoms, which favors good selectivity for An(III) versus Ln(III).



Pyridine 2 carboxamide (picolinamide)

also capable of selective complexation of the actinides, probably via the nitrogen/oxygen site.

(抄訳者：榊原 哲朗)

整理番号 OMEGA-28 1/3

タイトル：ロシアにおける放射性核種消滅のための高レベル廃液分離技術の特性比較
 Title : THE COMPARATIVE CHARACTERISTIC OF METHODS PARTITIONING
 HLW IN RUSSIA FOR TRANSMUTATION OF RADIONUCLIDES.

Author : Dr. I. V. Moukhine, Dr. V. S. Smelov

Keyword 溶媒抽出法、吸着法、沈殿法、高温冶金法、Cs、HDEHP、APPhonK

抄訳

環境負荷への低減及び毒性の高い放射性核種消滅処理を目的とした、ロシアにおける高レベル廃液からの長寿命放射性核種の分離技術に関して報告されている。アクチニド元素及びFP元素を分離する技術として溶媒抽出、膜抽出、イオンクロマト、沈殿、高温冶金等による方法が研究されている。これらの中で有機リン系酸性抽出剤は、超Pu元素及びランタニド元素の群分離に最も効果的であり、そのZr及びHf塩はさらに優れた抽出剤となる(ARSRIMにおいて研究)。この抽出剤は、抽出性の向上とともに長寿命核種に対する選択性も向上するため、再処理工程でのより広範囲にわたる抽出剤の適用が可能となることを期待できる。この有機リン系酸性抽出剤のZr塩(ZCD)とHDEHPを抽出剤として用いたフローシートとしては、以下の工程が提案されている。

- ・ HLWの蒸発処理による酸濃度調整(1.5~2M)
- ・ α 核種及びランタニド元素の抽出
- ・ 6M硝酸による超Pu元素及びランタニド元素の逆抽出

また、このほかの優れた有機リン系酸性抽出剤としてn-alkyl(C₈H₁₀)phenylphosphonic acid(n-APPhonK)が研究されており、これを用いた超Pu元素、ランタニド元素、⁹⁰Srの同時分離回収フローシートが提案されている。このような有機リン系酸性抽出剤は、2座配位抽出剤と比較して、超Pu元素及びランタニド元素の選択性及び経済性などの点で有利である。さらに、PUREXプロセスのラフィネートより直接Cs, Srを99%以上回収できるchlorinated cobalt dicarbollide(CCD)+polyethylene glycolを抽出剤とする分離技術及びフローシートに関する開発も進められている。しかしながら、この抽出剤は4価のアクチニド元素に対する抽出性が悪いため、これらの元素も抽出対象とする場合にはその使用が限られる。また、クラウンエーテルによるSr, Csの分離回収に関しても研究が行われている。

Csの回収方法としてはこのほかにフェロシアン化銅をベースとした吸着剤を用いる吸着法が研究されており、表1に示すようにヒドラジンの添加によりCsの吸着性が大きく向上することが報告されている。20回の吸着-脱着-吸着剤再生サイクルを通して吸着剤の損失は0.3~0.5%である。吸着法によるCs回収のフローシートは以下に示すもの

整理番号 OMEGA-28 2/3

タイトル：ロシアにおける放射性核種消滅のための高レベル廃液分離技術の特性比較
Title : THE COMPARATIVE CHARACTERISTIC OF METHODS PARTITIONING
HLW IN RUSSIA FOR TRANSMUTATION OF RADIONUCLIDES.

が提案されている。

- ・pH 調整
- ・ヒドラジン添加
- ・Cs 吸着
- ・硝酸による Cs 脱着
- ・吸着剤再生
- ・回収 Cs の硝酸 Cs への転換

この方法は廃棄物低減化の観点からも有効である。

超 Pu 元素とランタニド元素の分離については、0.3M クエン酸-0.015M DTPA (pH 3~3.5) 水相/0.5M HDEHP-n-paraffine 有機相系において行う。また、Am、Cm は、ペルオキシ硫酸アンモニウムを用いて Am を酸化した後、炭酸沈殿法により沈殿分離する方法が研究されている。

このほか、熔融塩炉体系での高温冶金法による放射性核種の分離技術研究が行われており、電気化学的分離手法が検討されている。この方法は、試薬供給の必要がないため、PUREX プロセスのラフィネートへの適用についても期待される。

(抄訳者：佐野 雄一)

整理番号 OMEGA-28 3/3

タイトル：ロシアにおける放射性核種消滅のための高レベル廃液分離技術の特性比較
Title : THE COMPARATIVE CHARACTERISTIC OF METHODS PARTITIONING
HLW IN RUSSIA FOR TRANSMUTATION OF RADIONUCLIDES.

Table. 1
Capacity FC-10 on Cs by sorption from imitation solution contained 0,05 mole/l $N_2H_4 \cdot HNO_3$

[HNO ₃], mole/l	Dynamic capacity FC-10, mg/g	
	before detection	entire
2.0	83±4	160±8
3.0	78±4	155±8
4.0	55±3	145±7

整理番号 OMEGA-29 1/6

タイトル	: 長寿命核種の高温冶金分離技術開発 — 塩廃棄物処理技術の開発 —
Title	: DEVELOPMENT OF PYROMETALLURGICAL PARTITIONING TECHNOLOGY OF LONGLIVED NUCLIDES - DEVELOPMENT OF SALT WASTES TREATMENT TECHNOLOGY -
Author	: Y.Sakamura, et al. (Organization : Central Research Institute of Electric Power Industry (日本))
Keyword	: 高温冶金分離プロセス、塩廃棄物
<p>PUREX法による再処理において発生する高レベル放射性廃棄物 (HLW) から超ウラン元素 (TRU) を回収する高温冶金分離プロセス (Fig. 1) において、次の2つの塩が発生する。</p> <p>① 還元抽出ステップからの LiCl、NaCl、RbCl、CsCl、SrCl_2、BaCl_2、SmCl_2、EuCl_2 から構成される混合塩化物</p> <p>② 希土類の三塩化物を含んだ $\text{LiCl}-\text{KCl}$ の共晶塩</p> <p>このうち、金属リチウム、塩素ガス、$\text{LiCl}-\text{KCl}$ の共晶塩をリサイクルし、他の塩廃棄物を熔融塩電解して、取り出した金属を酸化して固化することが考えられている。熔融塩電解中の元素の挙動について実験を行った。</p> <p>実験</p> <p>熔融塩電解実験は、液体鉛、液体カドミウム、固体カソードの3つのタイプの電極と、様々な組成の塩とを用いて実行された。実験セルの概略を Fig. 2 に示す。セルは高純度アルゴン雰囲気グローブボックスの床に取り付けられたステンレス製のサーモウェル中に配置された。塩と液体金属のサンプルはパイレックスガラス管で採取され、硝酸で溶かされる。溶液中のそれぞれの元素の含有量は ICP-AES か原子吸収光度スペクトルメトリーにより決定される。</p> <p>結果</p> <p>液体金属カソードによる電解の代表的な結果を Fig. 3 に示す。最初の塩は 68 mol% の LiCl、29 mol% の NaCl、少量の CsCl、BaCl_2、SmCl_3 という組成である。電解が進むと、液体鉛中で、セシウムを除く全ての元素の濃度が増加し、塩中のサマリウムの濃度が減少した。</p> <p>分配係数 D は次式 [1] で定義された。</p>	

整理番号 OMEGA-29 2/6

タイトル	: 長寿命核種の高温冶金分離技術開発 - 塩廃棄物処理技術の開発 -
Title	: DEVELOPMENT OF PYROMETALLURGICAL PARTITIONING TECHNOLOGY OF LONGLIVED NUCLIDES - DEVELOPMENT OF SALT WASTES TREATMENT TECHNOLOGY -
<p>$D_M = X_M$ in liquid metal / X_M in salt ... [1]</p> <p>X_M in liquid metal : 液体金属中の金属の mol%</p> <p>X_M in salt : 塩中の金属塩化物の mol%</p> <p>元素の分配係数の対数とリチウムの分配係数の対数の関係を Fig. 4 に示す。サマリウムはリチウムより容易に還元され、リチウムはナトリウムより容易に還元されるということが示唆された。log D_{Li} が 1.17 より大きければ、バリウムはリチウムより容易に還元される。</p> <p>リチウムに対する元素の分離係数 $S F$ は次式 [2] で定義された。</p> <p>$S F = D_M / D_{Li}$... [2]</p> <p>4 回の電解実験により分離係数が得られた。1 回の平衡実験について Table 1 に示す。結果は次のことを示唆している。</p> <ol style="list-style-type: none"> ① イットリウムやセリウムのような三価の希土類元素はとても容易に液体金属中に還元される。 ② サマリウムやユウロピウムのような二価の希土類元素は容易に液体金属中に還元される。 ③ ストロンチウムやバリウムのようなアルカリ土類元素は液体金属中のリチウムの濃度が高い場合にリチウムより容易に還元される。 ④ ナトリウムはリチウムより還元されにくい。 ⑤ セシウムは、塩中のセシウムの濃度が高くならなければ液体金属カソード中に還元できない。 ⑥ カドミウムカソードはナトリウムからリチウムを分離するのに鉛カソードより適している。 ⑦ 鉛カソードはアルカリ土類金属からリチウムを分離するのにカドミウムカソードより適している。 	

整理番号 OMEGA-29 3/6

タイトル	: 長寿命核種の高温冶金分離技術開発 - 塩廃棄物処理技術の開発 -
Title	: DEVELOPMENT OF PYROMETALLURGICAL PARTITIONING TECHNOLOGY OF LONGLIVED NUCLIDES - DEVELOPMENT OF SALT WASTES TREATMENT TECHNOLOGY -

固体カソードを用いた電解実験の結果を Table 2 に示す。電解はLiCl、NaCl、CsCl、BaCl₂、SmCl₂からなる熔融塩中に行った。最終的に4.4 gの金属の析出物が回収され、その99%以上がナトリウムであると測定された。これによりリチウムを含まないナトリウムが固体カソードを用いた電解により回収できることが実証された。

塩処理プロセスのフローシート

実験結果に基づき、塩廃棄物処理のフローシート (Fig. 5) が提案された。

(抄訳者：鍛冶 直也)

整理番号 OMEGA 29 4/6

タイトル	: 長寿命核種の高温冶金分離技術開発 — 塩廃棄物処理技術の開発 —
Title	: DEVELOPMENT OF PYROMETALLURGICAL PARTITIONING TECHNOLOGY OF LONGLIVED NUCLIDES — DEVELOPMENT OF SALT WASTES TREATMENT TECHNOLOGY —

重要な図

Table 1 熔融塩化物/液体金属系での分離係数(SF) ($X_{Li \text{ in metal}}/X_{Li \text{ in salt}} = 1$)

Element	Separation Factor (SF)				
	During Electrolysis				Equilibrium
	Li-NaCl/Pb (Li:Na=7:3) 600°C	CsCl/Pb (Cs:96mol%) 700°C	Li-NaCl/Cd (Li:Na=7:3) 600°C	Li-Na-CsCl/Cd (Li:Na:Cs=38:16:45) 600°C	LiCl-KCl/Cd * (Li:K=59:41) 500°C
Li (basis)	1	1	1	1	1
Na	0.42	2.1	0.078	0.26	0.19
K	-	0.25	-	-	2.7×10^{-4}
Cs	ND	0.11	ND	ND	ND
Sr	-	13	-	-	3.7
Ba	15	58	3.0	16	6.7
Y	-	-	10000	-	2.2×10^8
Ce	-	-	10000	-	2.1×10^{10}
Sm	200	-	100	-	680
Eu	-	100	-	-	150

ND : not detected in the liquid metal

* M.Kurata et al. (3)

Table 2 固体カソード(ステンレス棒)での電解における電解前の塩相と金属析出物の組成。電解条件は次の通り; 温度 500 °C、塩重量 690 g、電流 0.7 A、電解時間 380 sec.、回収された析出金属の重量 4.4 g

Element	Composition (mol%)	
	Initial salt	Metal deposit
Li	43.8	< 1
Na	14.4	> 99
Cs	38.2	< 1
Ba	3.0	< 1
Sm	0.6	< 1

整理番号 OMEGA 29 5/6

タイトル	: 長寿命核種の高温度冶金分離技術開発 - 塩廃棄物処理技術の開発 -
Title	: DEVELOPMENT OF PYROMETALLURGICAL PARTITIONING TECHNOLOGY OF LONGLIVED NUCLIDES - DEVELOPMENT OF SALT WASTES TREATMENT TECHNOLOGY -

重要な図

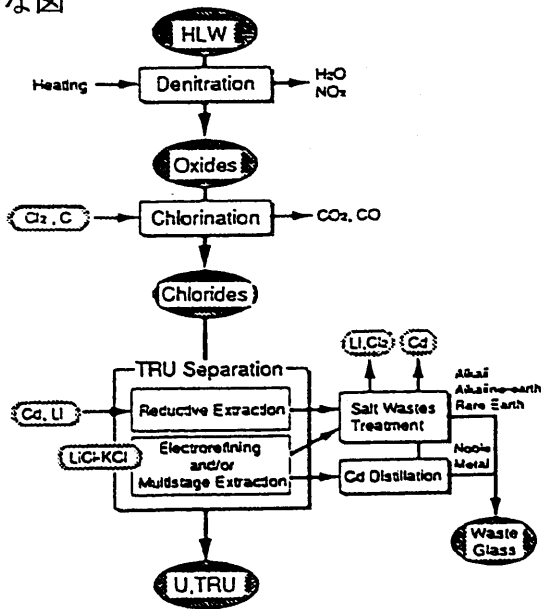


Fig. 1 高レベル廃棄物のTRU高温冶金分離についてのフローダイアグラム

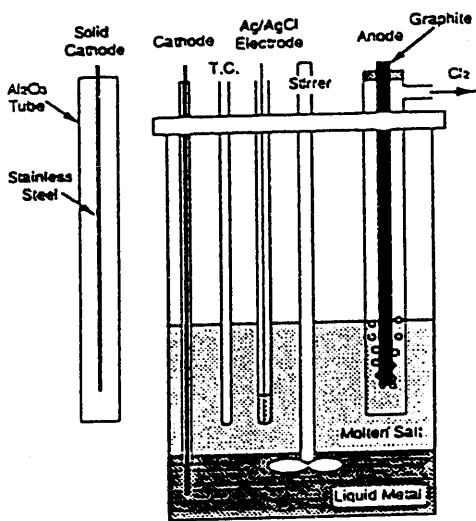
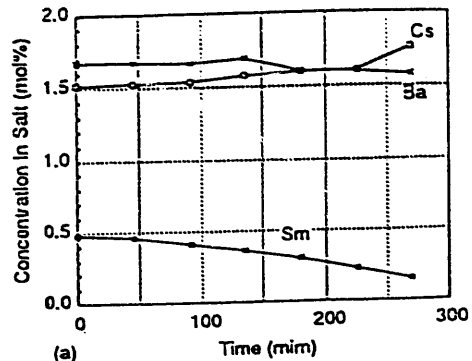
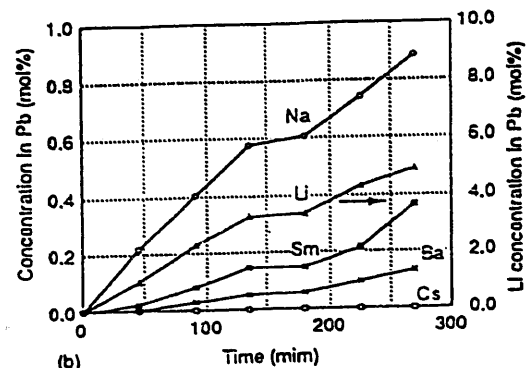


Fig. 2 溶融塩電解実験セル



(a)



(b)

Fig. 3 低電流電解における溶融塩相(a)と液体鉛相(b)の元素濃度変化。電解条件は次の通り; 温度 600 °C、電流 3 A、鉛重量 1030 g、塩の初期組成 (mol%):

LiCl : NaCl : CsCl : BaCl₂ : SmCl₃ = 67.6 : 28.7 : 1.5 : 1.7 : 0.5

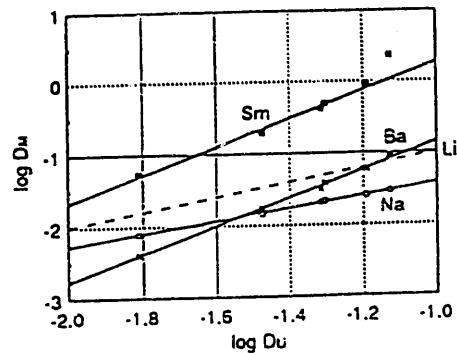


Fig. 4 電解中におけるリチウムの分配係数に対する金属の分配係数

分配係数: $D_M = (X_M \text{ in liquid metal}) / (X_M \text{ in salt})$

整理番号 OMEGA 29 6/6

タイトル	: 長寿命核種の高温度冶金分離技術開発 — 塩廃棄物処理技術の開発 —
Title	: DEVELOPMENT OF PYROMETALLURGICAL PARTITIONING TECHNOLOGY OF LONGLIVED NUCLIDES — DEVELOPMENT OF SALT WASTES TREATMENT TECHNOLOGY —

重要な図

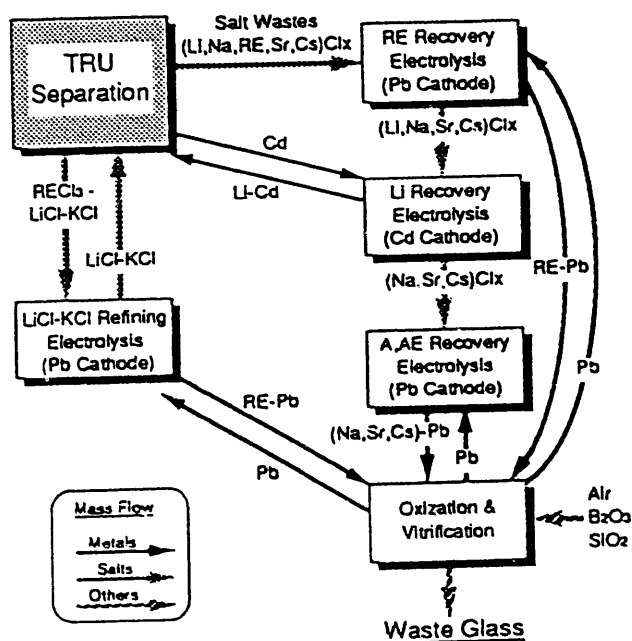


Fig. 5 塩廃棄物処理の図式的フローダイアグラム

付 録

**4TH INTERNATIONAL INFORMATION EXCHANGE MEETING
ON ACTINIDE AND FISSION PRODUCT
PARTITIONING AND TRANSMUTATION**

Mito, Japan
10th-13th September 1996

PROGRAMME

Organized by the
OECD NUCLEAR ENERGY AGENCY

Sponsored by the
SCIENCE AND TECHNOLOGY AGENCY, JAPAN

Hosted by the
JAPAN ATOMIC ENERGY RESEARCH INSTITUTE
and the
POWER REACTOR AND NUCLEAR FUEL DEVELOPMENT CORPORATION

Programme of the OECD/NEA P&T Mito City Meeting

September 10 to 13, 1996
Mito Plaza Hotel, Mito City

Sept. 10, Tuesday

- 18:00 - 19:30 REGISTRATION
18:30 - 20:00 WELCOME COCKTAIL hosted by CRIEPI

Sept. 11, Wednesday

- 8:30 - 9:30 REGISTRATION
9:30 - 12:30 Session 1: INTRODUCTION and INTERNATIONAL ACTIVITIES
14:00 - 17:30 Session 2: STRATEGIES and MAJOR PROGRAMMES

Sept. 12, Thursday

- 9:00 - 12:30 Session 3: TRANSMUTATION SYSTEMS, FUELS/ TARGETS
14:00 - 18:00 Session 4: CHEMISTRY
18:30 - 20:00 BANQUET hosted by JAERI and PNC

Sept. 13, Friday

- 9:00 - 10:30 Session 5: POSTERS
10:30 - 12:30 Session 6: SUMMARIES OF SESSIONS and DISCUSSION
13:30 - 17:30 Technical Tour to JAERI and to PNC

○印は抄訳した文献

PROGRAMME

4th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation

September 10 to 13, 1996
Mito Plaza Hotel, Mito City

Sept. 10, Tuesday

18:00 - 19:30 Registration
18:30 - 20:00 Welcome Cocktail hosted by CRIEPI

Sept. 11, Wednesday

8:30 - 9:30 Registration

SESSION 1: INTRODUCTION AND INTERNATIONAL ACTIVITIES

Chairman: Y. Fuji-ie, Co-Chairman: T. Mukaiyama

9:30 - 12:30
11:00 - 11:15 Coffee Break

1. WELCOME AND INTRODUCTORY REMARKS
Y. Fuji-ie (JAEC)
2. OPENING REMARKS AND OVERVIEW OF NEA PROGRAMME
G. H. Stevens (OECD/NEA)
3. RECENT TOPICS IN THE FIELD OF RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT IN JAPAN
T. Arimoto (STA)
- ④ RESEARCH ACTIVITIES OF THE EUROPEAN COMMISSION ON NEW FUEL CYCLE CONCEPTS
M. Hugon (EC)
- ⑤ IAEA ACTIVITY ON PARTITIONING AND TRANSMUTATION OF ACTINIDES AND FISSION PRODUCTS
A. Grigoriev, V. Arkhipov (IAEA)
- ⑥ EFTTRA IRRADIATION EXPERIMENTS FOR THE DEVELOPMENT OF FUELS AND TARGETS FOR THE TRANSMUTATION
J-F. Babelot (JRC ITU), R. Conrad (JRC Petten), H. Gruppelaar (ECN), G. Mühling (FZK), C. Prunier, M. Salvatores (CEA), G. Vambenepe (EDF)
- ⑦ A SYSTEMS ANALYSIS APPROACH ON PARTITIONING AND TRANSMUTATION ISSUES
L. H. Baetslé (SCK-CEN)
8. TRANSMUTATION: PHYSICS AND STRATEGIES
M. Salvatores, A. Zaetta (CEA)

SESSION 2: STRATEGIES AND MAJOR PROGRAMMES

Chairman: M. Salvatores

14:00 - 17:30

15:30 - 16:00 Coffee Break

- ⑨ THE FRENCH PARTITIONING-TRANSMUTATION PROGRAMME, ASSETS AND PROSPECTS
M. Viala, M. Salvatores, H. Mouney (CEA)
- ⑩ PARTITIONING AND TRANSMUTATION-OMEGA PROGRAM AT JAERI
T. Mukaiyama, M. Kubota, T. Takizuka, Y. Suzuki, T. Ogawa, M. Mizumoto (JAERI)
- ⑪ PARTITIONING AND TRANSMUTATION OF NUCLEAR WASTE: THE DUTCH RAS PROGRAMME AND ITS RELATION TO INTERNATIONAL STUDIES
R. J. M. Konings, H. Gruppelaar, E. H. P. Cordfunke, J. Prij (ECN)
12. TRANSMUTATION OF TRANSURANICS: NEUTRONICS, ACTINIDES BALANCE, SAFETY AND FUEL PROVISION ASPECTS
N. S. Rabotnov (IPPE, Russia)
13. ADVANCED FUEL RECYCLE SYSTEM CONCEPT TO REALIZE MINOR ACTINIDES RECYCLE
I. Nakajima, H. Ojima, S. Nomura, T. Kawata (PNC)
14. SCENARIOS OF PLUTONIUM AND MINOR ACTINIDE MANAGEMENT AT EQUILIBRIUM
M. Delpech, J. P. Grouiller, M. Salvatores, J. Tommasi, A. Zaetta (CEA)

Sept. 12, Thursday

SESSION 3: TRANSMUTATION SYSTEMS, FUELS/ TARGETS

Chairman: P. Wydler

9:00 - 12:30

10:30 - 11:00 Coffee Break

15. FEASIBILITY STUDIES ON MA AND FP TRANSMUTATION IN FAST REACTORS
T. Wakabayashi, N. Higano (PNC)
16. TRANSMUTATION OF TECHNETIUM IN THE PETTEN HFR: A COMPARISON OF MEASUREMENTS AND CALCULATIONS
J. L. Kloosterman, J. A. Hendriks, R. J. M. Konings (ECN)
17. STUDIES ON ACCELERATOR-DRIVEN TRANSMUTATION AT JAERI
T. Takizuka, T. Nishida, T. Sasa, H. Takada, M. Mizumoto (JAERI)
18. A STUDY ON THE TRANSMUTATION CAPABILITY OF ACCELERATOR DRIVEN SYSTEM
W. S. Park, H. S. Shin, T. Y. Song (KAERI)
- ⑲ RESEARCH AND DEVELOPMENT OF NITRIDE FUEL CYCLE FOR TRU BURNING
Y. Suzuki, T. Ogawa, T. Osugi, Y. Arai, T. Mukaiyama (JAERI)
- ⑳ CONSTRAINTS OF THE FABRICATION OF AMERICIUM OXIDE TARGETS
A. Renard, A. La Fuente, S. Pilate (Belgonucleaire), A. Harislur, M. Mouney, M. Rome (EDF)

SESSION 4: CHEMISTRY

Chairman: L.H. Baetslé

14:00 - 18:00

15:30 - 16:00 Coffee Break

- ②1. MOLTEN SALT ELECTROREFINING TO SEPARATE TRANSURANIUM ELEMENTS FROM RARE EARTH ELEMENTS
T. Hijikata, Y. Sakamura, T. Inoue (CRIEPI), T. Storvick (Un. of Missouri), R. Gay (Rockwell Int. Corp.)
- ②2. PRODUCTS AND WASTES FROM 4-GROUP PARTITIONING PROCESS DEVELOPED IN JAERI
M. Kubota, Y. Morita (JAERI)
- ②3. SELECTIVE EXTRACTION AND TRANSPORT OF CESIUM WITH CALIX[4]ARENES CROWN FROM RADIOACTIVE LIQUID WASTES
J. F. Dozol, N. Simon, V. Lamare, S. Eymard, B. Tournois, H. Rouquette, M. Lecomte, M. Masson, C. Viallesoubranne (CEA)
- ②4. PARTITIONING OF MINOR ACTINIDES FROM RARE EARTHS BY SOLVENT EXTRACTION WITH DI(2-ETHYL HEXYL) PHOSPHORIC ACID
H. B. Yang, J. G. Lim, J-H. Yoo (KAERI),
- ②5. PYROMETALLURGICAL PROCESSING TECHNOLOGY DEVELOPMENT
T. Koyama, M. Iizuka, H. Tanaka (CRIEPI)
- ②6. MINOR ACTINIDE SEPARATIONS : RECENT ADVANCES AT THE CEA
A. Leudet, B. Boullis, C. Madic (CEA)
- 27. THE-STATE-OF-THE-ART ON NUCLIDES SEPARATION IN HIGH LEVEL LIQUID WASTES BY TRUEX PROCESS
M. Ozawa, Y. Koma, Y. Tanaka, S. Shikakura (PNC)
- ②8. THE COMPARATIVE CHARACTERISTICS OF METHODS PARTITIONING HLLW IN RUSSIA FOR TRANSMUTATION OF RADIONUCLIDES
I. V. Mukhin, V. S. Smolov (ASRIIM, Russia)
- ②9. DEVELOPMENT OF PYROMETALLURGICAL PARTITIONING TECHNOLOGY OF LONG-LIVED NUCLIDES - DEVELOPMENT OF SALT WASTES TREATMENT TECHNOLOGY -
Y. Sakamura, T. Inoue (CRIEPI), T. Shimizu, K. Kobayashi (Sumitomo Metal Mining)

18:30 - 20:15 Banquet hosted by JAERI and PNC

Sept. 13, Friday

SESSION 5: POSTERS

9:00 - 10:30

SESSION 5A: REACTORS, FUELS AND TARGETS

Chairman: J. Kloosterman

- P1. STATUS OF THE PNC HIGH POWER ELECTRON ACCELERATOR
T. Emoto, Y. L. Wang, S. Toyama, M. Nomura, H. Takei, K. Hirano, Y. Yamazaki (PNC)
- P2. STATUS OF THE HIGH INTENSITY PROTON LINEAR ACCELERATOR DEVELOPMENT IN JAERI
J. Kusano, M. Mizumoto, K. Hasegawa, N. Ito, H. Oguri, K. Mukugi, Y. Touchi, H. Ino (JAERI)
- P3. CODE DEVELOPMENT AND DESIGN STUDY ON ACCELERATOR-DRIVEN TRANSMUTATION RESEARCH AT JAERI
T. Nishida, T. Sasa, T. Takizuka, H. Takada, K. Tsujimoto (JAERI)
- P4. ANALYSIS OF REACTION RATE DISTRIBUTIONS ON A THICK TUNGSTEN TARGET BOMBARDED WITH PROTONS OF 0.8 TO 1.2 GEV
H. Takada, S. Meigo, T. Sasa (JAERI)
- P5. NUCLEAR MEASUREMENT ACTIVITIES OF PNC FOR TRANSMUTATION OF FISSION PRODUCTS
H. Harada, S. Nakamura, Y. Shigetome, T. Katoh (PNC)
- P6. RECENT MEASUREMENTS OF FISSION NEUTRON YIELD DATA OF MINOR ACTINIDES
H. Oigawa, N. Shinohara, T. Mukaiyama (JAERI), H. H. Saleh, T. A. Parish (Texas A&M Un.), W. H. Miller (Un. of Missouri), S. Raman (ORNL)
- P7. PROPERTIES OF NEPTUNIUM-PLUTONIUM MIXED NITRIDE SOLID SOLUTIONS
Y. Arai, K. Nakajima, Y. Suzuki (JAERI)
- P8. NITRIDE-FORMING BEHAVIOR IN LIQUID CADMIUM-URANIUM-LANTHANIDES ALLOYS
M. Akabori, A. Itoh, T. Ogawa (JAERI)

SESSION 5B: Chemistry

Chairman: M. Hugon

- P9. RECOVERY OF VALUABLE METALS FROM HIGH-LEVEL RADIOACTIVE WASTE
M. Myochin, K. Kosugi, Y. Wada (PNC)
- P10. PARTITIONING TEST FACILITY CONSTRUCTED IN NUCEF
Y. Morita, I. Yamaguchi, T. Fujiwara, K. Mizoguchi, M. Kubota (JAERI)
- P11. ENHANCEMENT OF CONFINEMENT CAPABILITY OF LONG-LIVED NUCLIDES IN A SIMPLIFIED FUEL CYCLE
S. Fujine, G. Uchiyama, T. Kihara, H. Asakura, T. Sakurai, M. Maeda (JAERI)
- P12. SUPER HIGH TEMPERATURE METHOD (REPROCESSING)-SEPARATION-CONDITIONING-(DISPOSAL)
M. Horie (PNC)

P13. BASIC STUDY OF PHOTOCHEMISTRY FOR APPLICATION TO NUCLEAR FUEL CYCLE TECHNOLOGY

Y. Wada, S. Sasaki (PNC), H. Tomiyasu (TTI)

SESSION 6: SUMMARIES OF SESSIONS and DISCUSSION

Chairman: G. H. Stevens

10:30 - 12:30

SUMMARY OF THE MEETING: J. Lefèvre

TECHNICAL TOUR TO JAERI AND TO PNC

13:30 - 17:00