

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials : 504-2 Nuclear Chemistry, Radiochemistry, Analytical Chemistry, Chemistry of Actinide Elements

📅 Wed. Sep 11, 2024 3:55 PM - 5:00 PM JST | Wed. Sep 11, 2024 6:55 AM - 8:00 AM UTC 🏠 Room N(Recture RoomsB 2F B203)

[1N12-15] Separation Technique

Chair: Akira Kuwahara (Shibaura Inst. of Tech.)

3:55 PM - 4:10 PM JST | 6:55 AM - 7:10 AM UTC

[1N12]

Comparison of utility in chemical process for extractants and masking agents developed in JAEA

*Yuji Sasaki¹, Yasutoshi Ban¹ (1. Japan Atomic Energy Agency)

4:10 PM - 4:25 PM JST | 7:10 AM - 7:25 AM UTC

[1N13]

Development of astatine-211 dry recovery process by evaporation with aerosol

(3) Overall concept for Practical Application of At-211

*ATSURO HAYAKAWA¹, YASUHIRO SUZUKI¹, MASARU YUHARA¹, KEISUKE TSUKADA¹, HIROSHI OKABE¹, YU YAMASHITA¹, Atsushi Toyoshima³, Mitsuhiro Fukuda², Atsushi S^{3,4}, TAKASHI NAKANO² (1. Toshiba ESS, 2. RCNP, Osaka Univ, 3. IRS, Osaka Univ., 4. Osaka Aoyama Univ.)

4:25 PM - 4:40 PM JST | 7:25 AM - 7:40 AM UTC

[1N14]

Development of astatine-211 dry recovery process by evaporation with aerosol

(4) Acquisition of fundamental data for equipment design

*Masaru Yuhara¹, Hirofumi Okabe¹, Keisuke Tsukada¹, Yasuhiro Suzuki¹, Atsuro Hayakawa¹, Mitsuhiro Fukuda², Atsushi Toyoshima³, Atsushi Shinohara^{4,3} (1. TOHISBA ESS, 2. RCNP, Osaka univ., 3. IRS, Osaka Univ., 4. Osaka Aoyama univ.)

4:40 PM - 4:55 PM JST | 7:40 AM - 7:55 AM UTC

[1N15]

Development of astatine-211 dry recovery process by evaporation with aerosol

(5) Numerical analysis of transportation and reaction of aerosol and astatine-211

*Keisuke Tsukada¹, Masaru Yuhara¹, Hirofumi Okabe¹, Yasuhiro Suzuki¹, Atsuro Hayakawa¹ (1. TOSHIBA ENERGY SYSTEMS & SOLUTIONS CORPORATION)

4:55 PM - 5:00 PM JST | 7:55 AM - 8:00 AM UTC

Time reserved for Chair

JAEA で開発した抽出剤やマスキング剤のプロセス利用性の比較

Comparison of utility in chemical process for extractants and masking agents developed in JAEA

*佐々木祐二¹、伴康俊¹

¹原子力機構

原子力機構（JAEA）は元素分離プロセスに有用な抽出剤やマスキング剤を開発してきた。一方、同じ目的で複数の化合物が検討されており、どの試薬が望ましいかが不透明である。ここでは分離工程を3つ

（Ln+An 一括抽出、Ln/An 分離、Am/Cm 分離）に分け、それぞれの工程で条件の比較検討を行った。

キーワード：DGA、NTA アミド、DTBA、ADAAM、元素分離プロセス

1. 緒言 PUREX プロセスで発生する高レベル廃液中の MA（マイナーアクチノイド）の回収は、放射性廃棄物の有害度低減や核変換用 MA 燃料の製造に必要な技術であり、早期の開発が望まれている。JAEA は Ln（ランタノイド）+An（アクチノイド）一括抽出剤の DGA（ジグリコールアミド）化合物、DTPA（ジエチレントリアミン5酢酸）を改良した DTBA や Am/Cm 分離用の ADAAM 等、世界的に見ても優れた抽出剤やマスキング剤を開発してきた。しかし、関連する分離工程で多くの試薬が検討され、どれが適正かを判断しにくい。そこで、Ln+An 一括抽出工程で各種 DGA と DOODA、Ln/An 分離工程で NTA アミドと DTBA、Am/Cm 分離工程で ADAAM と DGA/DOODA 等と、3 つの抽出分離工程で条件を比較する。図1に比較対象の化合物を記す。なお、Am/Cm 分離について、JAEA で世界のトップレベルの性能を持つ抽出剤を開発しており、それを利用した工程を検討すべきと考える。

2. 検討方法 3 つの抽出分離工程を連動させた際の条件や簡便性について考慮する。分離対象の Ln 濃度は文献に従い[1]、およそ 100 mM（M= mol/dm³）とする。

3. 結果 Ln+An 一括抽出工程:TEHDGA は第三相を生成しやすく、DOODA は低い An 分配比を持つことが課題となる。

TODGA、TDDGA、TDdDGA いずれも

100 mM Nd を一度に抽出できる。TODGA、TDDGA は条件によって第三相を生成するが、TDdDGA の第三相生成は目視確認できなかった。一方、高濃度の TDdDGA の溶液調製に課題を持つ。Ln/An 相互分離工程: NTA アミドと TODGA-DTBA 系で Ln/An 分離係数（SF= $D(\text{Nd})/D(\text{Am})$ ）を比較すると、前者は 4.6 (= Am/Nd)、後者は 7.3 (= Nd/Am)である。なお、NTA アミドは酸溶液下でのプロトン化、DTBA は運転時の詳細な pH コントロールが課題となる。また、DTBA を用いて逆抽出による相互分離ができれば、工程を簡略化できる。Am/Cm 相互分離工程:DGA/DOODA による Am/Cm 分離比はおよそ 4 で、かつ 3~5 M のような高い硝酸濃度が必要となる。一方、ADAAM は中央の第3級アミン窒素がプロトン化して高い Am/Cm 分離係数（6）を示す。その時の水相、有機相条件はそれぞれ 1.5 M HNO₃、0.25 M ADAAM/ *n*-ドデカンと、好ましい条件で工程を設計できる。

[1] JAEA-Review 2015-002, pp. 105-116

*Yuji Sasaki¹, Yasutoshi Ban¹,

¹Japan Atomic Energy Agency

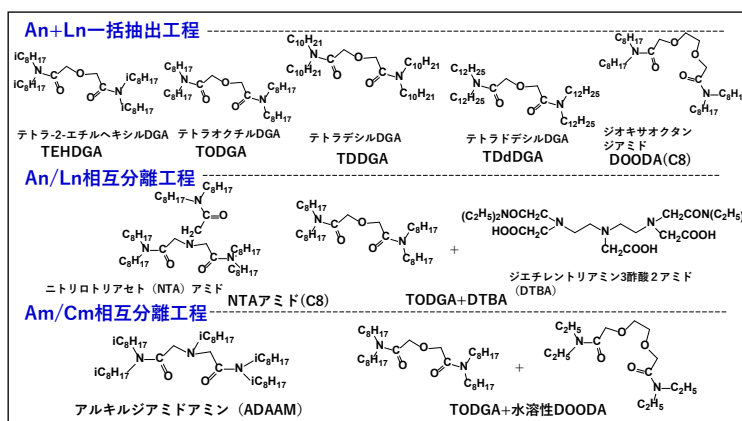


図1 3つの抽出分離工程で比較した抽出剤とマスキング剤

エアロゾルを用いた At-211 乾式分離技術の開発

(3) At-211 製剤の実用化に向けた全体構想

Development of astatine-211 dry recovery process by evaporation with aerosol

(3) Overall concept for Practical Application of At-211

*早川 敦郎¹、鈴木 康祐¹、湯原 勝¹、塚田 圭祐¹、岡部 寛史¹、山下 雄生¹、
豊嶋 厚史³、福田 光宏²、篠原 厚^{3,4}、中野 貴志²

¹東芝エネルギーシステムズ株式会社, ²阪大 RCNP, ³阪大放射線機構, ⁴大阪青山大

アスタチン 211 (以降 At と略記) はがん治療用の放射性薬剤の原料として注目されている。当社は“エアロゾル搬送法”での分離回収技術をキーとして At 製造事業への参入を目指しており、その開発計画を報告する。

キーワード: アスタチン、エアロゾル、分離回収

1. 装置コンセプト

当社は“エアロゾル搬送法”による At 分離回収システムを開発している。これは、反応管内で At を含む Bi 標的を加熱し At を気化させ、そこに塩を加熱することで発生させたエアロゾルを導入し、At をエアロゾル粒子に結合させ、エアロゾルをフィルタで捕集して At を回収するものである。図 1 に模式図を示す。エアロゾルは 100% フィルタで捕集できるが、At 単体はフィルタを透過する。よって、エアロゾルに At の多くを結合させ、フィルタ到達前に反応管壁に付着するエアロゾルを減少させることで At 回収率が向上する。

2. 開発方針

図 2 に開発方法を模式的に示す。最終的に装置として設計できるように、エアロゾル及び At の反応管内での輸送と、エアロゾルと At の結合について数値解析によるモデル化を行い、実験でモデル検証を行いながら開発を進める。エアロゾルの発生や輸送といった At と直接関係のない範囲は Cold 試験で個別に条件確認／モデル検証を行い、エアロゾルと At の結合のような検証に At が必須な事象について Hot 試験で検証する。試験結果から数値解析モデルにフィードバックを行い、設計精度を向上させていく。

3. 実用化に向けて

図 3 に開発ロードマップを示す。現象のモデル化及びその検証を行い、高回収率を達成できる装置体系／運転条件を見出し、プロト機で回収性能の実証を行う。その後、品質や各種基準への適応を行い治験向けの At 必要量を安定的に供給可能な実用機とする。将来的には自社拠点で At の大量生産を目指す。

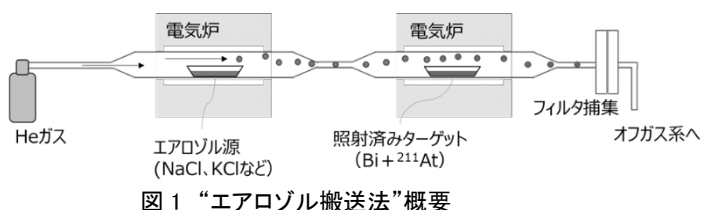


図1 “エアロゾル搬送法”概要

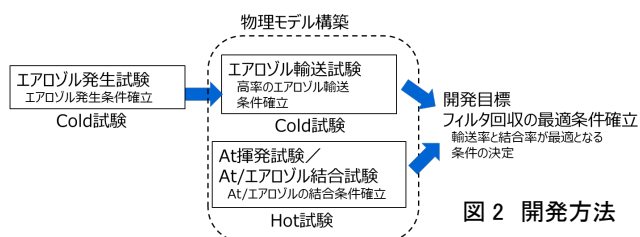


図2 開発方法

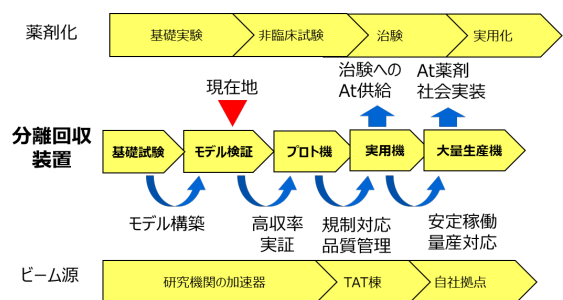


図3 開発ロードマップ

*Atsuro Hayakawa¹, Yasuhiro Suzuki¹, Masaru Yuhara¹, Keisuke Tsukada¹, Hirofumi Okabe¹, Yu Yamashita¹, Atsushi Toyoshima³,
Mitsuhiro Fukuda², Atsushi Shinohara^{3, 4}, Takashi Nakano² ¹Toshiba Energy systems & solutions corp., ²RCNP, Osaka Univ.,
³IRS, Osaka Univ., ⁴Osaka Aoyama Univ.

エアロゾルを用いた At-211 乾式分離技術の開発
(4)装置化に向けた基礎データの取得

Development of astatine-211 dry recovery process by evaporation with aerosol

(4) Acquisition of fundamental data for equipment design

*湯原 勝¹, 岡部 寛史¹, 塚田 圭祐¹, 鈴木 康祐¹, 早川 敦郎¹,
福田 光宏², 豊嶋 厚史³, 篠原 厚^{3,4}

¹東芝エネルギーシステムズ株式会社, ²阪大 RCNP, ³阪大放射線機構, ⁴大阪青山大

がん治療薬原料であるアスタチン 211 (以降 At) の回収法として検討しているエアロゾル搬送法の装置化に向け、At 分離回収試験を実施しフィルタ洗浄回収率および At の揮発・回収挙動を調査した。

キーワード: アスタチン、エアロゾル、分離回収

1. 結言 エアロゾル搬送法を利用した At 分離回収装置を開発しており、At とエアロゾルの結合および At と結合したエアロゾルの輸送について解析モデルの構築を進めている。今回、解析モデル検証のために標準条件での試験を実施した。また、現行解析では At の揮発・回収が定常的に起こると仮定しているが、これまでその実態は不明であった。前報^{[1], [2]}に比べ At 処理量を増加し、At の揮発・回収挙動の実測を試みた。

2. 実験方法 試験体系・手順は前報^{[1], [2]}を基本とし、施設制約により反応管形状を短尺化 (i.d. 41mm×L 400mm) した。現解析では At とエアロゾルの衝突が At 量に感度を持たないモデルを採用している。そこで、At 量を 4.3~9.7MBq と前報^[2]2.5MBq に比べ増量するとともに、標的加熱部およびフィルタ部近傍に GM サーベイメータを設置することで、At 相対放射能の時間変化を計測した。イオンメータで洗浄回収液中の K イオン濃度を定量し、洗浄液量、予備試験での実測エアロゾル平均粒径、KCl 比重からエアロゾル個数密度を算定した。分離回収前後の標的、系統洗浄回収液の At 放射エネルギーを Ge 半導体検出器で定量した。分離回収前後の標的 At 量の差より揮発量を算定し、フィルタ洗浄液中 At 量/揮発量よりフィルタ洗浄回収率を評価した。

3. 実験結果 図 1 に Run1 における分離前標的放射能を 100%としたときの相対放射能および標的加熱部温度の経時変化を示す。Bi 融点 272℃付近 (図 1 中破線部) で標的からの At 放出が急激に増大し、ほぼ同時にフィルタ部での At 回収量が増加した。表 1 に各試験におけるエアロゾル個数密度およびフィルタ洗浄回収率を示す。フィルタ洗浄回収率は 32.3~33.3%と良い再現性が得られた。

表 1 試験結果まとめ

	At 量 (MBq)	エアロゾル 個数密度 (個/cm ³)	フィルタ 洗浄回収率 (%)
Run1	4.3	$(3.9 \pm 0.4) \times 10^6$	32.3
Run2	4.8	$(3.8 \pm 0.4) \times 10^6$	32.4
Run3	9.7	$(3.2 \pm 0.3) \times 10^6$	33.3

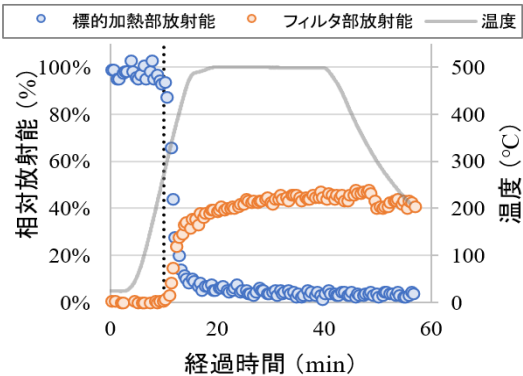


図 1 Run1 における At 揮発・回収挙動

4. 結言 標準条件 At 分離回収試験を実施し、フィルタ洗浄回収率は 32.3~33.3%であった。At 揮発・回収の経時変化および温度との関係が明らかとなった。

参考文献

[1] 湯原勝ら、原子力学会「2022 年春の年会」、1B17. [2] 湯原勝ら、原子力学会「2023 年秋の大会」、1I07.

*Masaru Yuhara¹, Hirofumi Okabe¹, Keisuke Tsukada¹, Yasuhiro Suzuki¹, Atsuro Hayakawa¹, Mitsuhiro Fukuda², Atsushi Toyoshima³ and Atsushi Shinohara^{3,4} ¹Toshiba Energy systems & solutions corp., ²RCNP, Osaka Univ., ³IRS, Osaka Univ., ⁴Osaka Aoyama Univ.

エアロゾルを用いた At-211 乾式分離技術の開発

(5) エアロゾルと At-211 の輸送・反応数値解析モデルの構築

Development of astatine-211 dry recovery process by evaporation with aerosol

(5) Numerical analysis of transportation and reaction of aerosol and astatine-211

*塚田 圭祐¹, 湯原 勝¹, 岡部 寛史¹, 鈴木 康祐¹, 早川 敦郎¹

¹東芝エネルギーシステムズ株式会社

アスタチン 211(以降 At と略記)の分離回収装置の設計へ向けて、At 結合率を予測する数値解析モデルを構築した。解析ではキャリアガスである He 中をエアロゾルと At が移流・拡散する輸送と衝突による結合を考慮した。At を使用した試験結果により解析モデルを検証し、At 結合率の予測可能性を示した。

キーワード: アスタチン、エアロゾル、熱泳動、濃度拡散、粒子相互作用

1. 緒言

開発中の At 回収装置では、He ガスを流した状態で KCl を揮発・冷却しエアロゾルを発生させ、At を含む Bi ターゲットを中央に設置した反応管へと導入する。反応管を管状炉で加熱し At を揮発、エアロゾルに吸着させることで、フィルタでエアロゾルと At を回収する手法である。回収装置の設計に向けて、解析モデルを整備し At 結合率を予測可能とすることが目的である。

2. 解析モデルの構築と解析結果

反応管の Bi 位置から下流側（内径 41 mm、長さ 200 mm）を径と軸方向の円筒座標系 2 次元で離散化しており、各セルでエアロゾルと At の粒子個数に関する保存式を解いた。流れ場と温度場は粒子の影響を受けないとし、層流条件と温度実測結果から仮定した。解析セル間では流れ場による移流、温度場による熱泳動、濃度場による拡散を考慮し粒子の速度を決定した。エアロゾルの入口個数密度、代表径は実測値を使用した。At は入口中心部で揮発すると仮定した。エアロゾルと At の相互作用は衝突に起因すると仮定したモデルとし、有効断面積を補正係数として導入し、過去に実施した体系の異なる試験結果から同定した^[1]。図 1 に反応管内のエアロゾル、図 2 に At の個数密度分布を示す。管状炉出口に向け温度低下するため、He が圧縮しエアロゾル、At とともに個数密度が増加する。At は He との相互拡散係数が大きく、反応管中心から速やかに拡散し反応管内で径方向にほぼ一様となり、その下流でエアロゾルと反応が進み、個数密度の低下が確認できた。試験においてフィルタ回収できた At は 32 %であり、解析による予測では 37 %と再現する傾向にある。

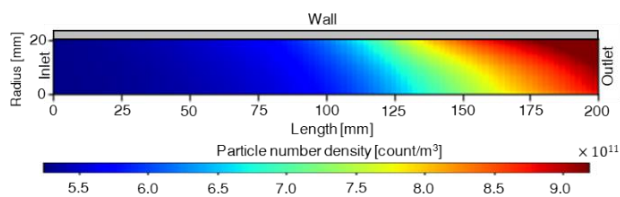


図 1 反応管内でのエアロゾル個数密度分布

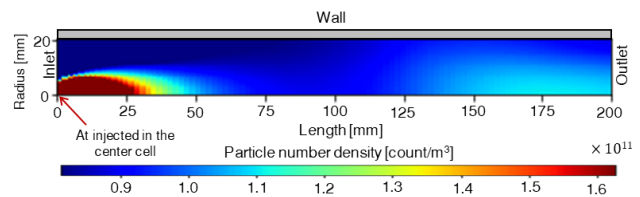


図 2 反応管内での At 個数密度分布

3. 結言

At とエアロゾルの輸送・反応を数値解析するモデルにより At の結合率を予測できる可能性を示した。今後、At を使用した試験結果を拡充させ、解析モデルの検証を進める計画である。

参考文献

[1] 湯原勝ら、エアロゾルを用いた At-211 乾式分離技術の開発、原子力学会「2023 年秋の大会」、1I07.

*Keisuke Tsukada¹, Masaru Yuhara¹, Hirofumi Okabe¹, Yasuhiro Suzuki¹ and Atsuro Hayakawa¹

¹Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation