

核燃料サイクル開発機構における 核種分離・消滅処理技術の研究開発

核種分離・消滅処理技術に関する現状の整理

- I. 概要
- II. 湿式分離及び FBR を用いた消滅処理
- III. 電子加速器による消滅処理
- IV. 光溶液化学等による分離・共抽出技術（レーザー光の応用）
- V. 超高温分離処理
- VI. 不溶解残渣からの有用金属回収技術及び分離元素・核種の有効利用技術

I. 概要

核燃料サイクル開発機構（JNC）における核種分離・消滅処理技術研究の基本的考え方は以下の通りである。

- 現在の国際的な技術レベルによれば、高レベル放射性廃棄物は深地層中に埋設（地層処分）することが共通の考え方であり、我が国の基本方針でもある。
- 高レベル放射性廃棄物の地層処分は、いかなる期間においても生活環境での被曝リスクが顕在化しないようなシステムを構築することを目指している。
- しかし、地層処分における長期的な隔離性能（安全性）を科学的に評価できても、隔離を要する潜在的な危険性がそれだけ長く継続することに関して一般人の不安を完全に払拭する（安心）までには至っていないのも現状である。
- 分離・消滅研究により核燃料サイクルの廃棄物をより一層低減するか、あるいは利用できれば、地層処分との組み合わせによりさらなる環境影響の低減を実現でき、かつ社会が受け入れやすい核燃料サイクル技術の確立につながるものと考え

上記認識のもと、核種分離・消滅処理技術研究を創造的・革新的研究に位置づけ、核燃料サイクルの高度化のための要素技術として、

- マイナーアクチニド（MA）、核分裂生成物（FP）、有用金属（白金族等）の分離技術
- 高速増殖炉（FBR）を用いた MA 及び FP の消滅処理技術
- 電子線加速器を用いた FP の消滅処理技術

等の研究開発を実施してきた。

また、JNCでは将来のFBR燃料リサイクル技術の確立をめざして経済性、核不拡散性、環境負荷低減を考慮した先進的核燃料リサイクル技術開発に取り組んできた。上記核種分離・消滅処理技術の研究項目の一部は先進的核燃料リサイクル技術開発の研究項目としても位置づけられている。これらの関係を、図 1.1 に示す。図 1.2 に JNCにおける核種分離・消滅処理研究の全体像を示す。なお、サイクル機構発足にあたって、動燃改革委員会で新法人が行うべき事業の検討が行われ、事業の整理と重点化の観点からフロンティア研究の一部として位置付けられていた有用金属の回収技術、超高温処理技術、光溶液化学等による分離・共抽出技術、加速器によるFP消滅技術については、研究開発を中止することになった。

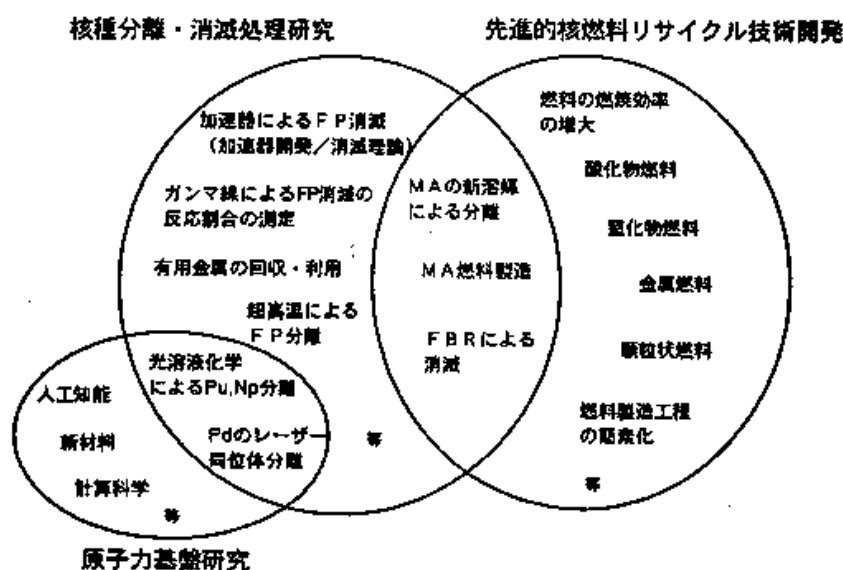


図1.1 核種分離・消滅処理研究と先進的核燃料リサイクル技術開発の関連

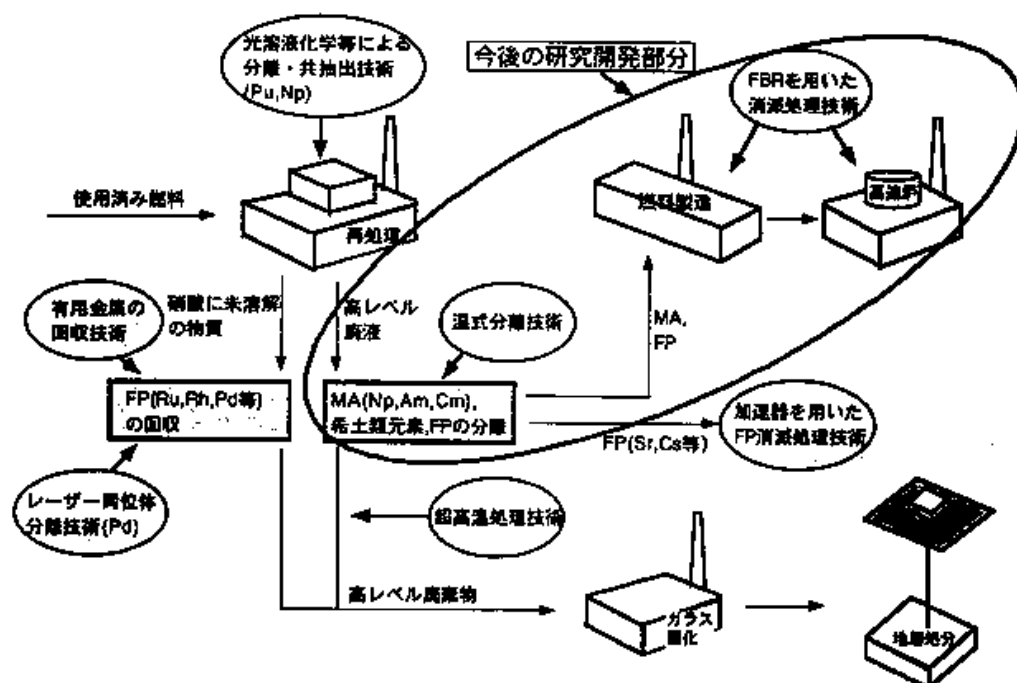


図1.2 JNCにおける核種分離・消滅処理研究の概要

II. 湿式分離及び FBR を用いた消滅処理

1. 研究開発の現状

1) 目的

- ① MA 及び長半減期 FP (LLFP) の分離・消滅処理技術は、地層処分に替わる技術ではなく、地層処分の負担を軽減することを目的とする。
- ② 高速炉燃料再処理プロセスの高度化により、MA、LLFP、有用稀少金属（白金族、他）元素の分離技術の確立を目指す。
- ③ MOX 発電用 FBR における MA 燃焼及び LLFP 消滅の炉心概念の構築及び関連する核燃料サイクル技術の確立を目指す。

2) 処理対象（元素、核種、物質等）

- ① 対象 MA 核種は、長期における放射性廃棄物の潜在的毒性を軽減できると期待される、Np-237、Am-241、Am-243、Cm-243、Cm-244 とする。
- ② 対象 LLFP 核種は、当面は Tc-99、I-129 とする。Tc-99、I-129 は、地層処分の安全性を地下水移行の観点から見ると、溶解度が大きく、バリアーによる吸収が小さい等の特性を持つ。これらの核種を消滅することにより、地層処分の負担軽減に寄与すると考えられる。
- ③ 有用稀少金属（白金族、他）元素の回収も対象とする。

3) 処理プロセス・システムの概要

湿式分離

図 2.1 に核種分離工程を組み入れた高度化再処理の概念⁽¹⁾を示す。

- ① MA (Am, Cm) は CMPO/MTRUEX 法で高レベル廃液より抽出分離する。ランタニド元素 (Ln) との分離は水溶性錯化剤 DTPA により MA を逆抽出分離する。
- ② MA (Np) は PUREX 法を改良して、溶解液から混合抽出し、Pu/U/Np 製品とする。
- ③ 白金族元素、Tc 及び他の LLFP (有用稀少元素を含む) は電解採取法により分離する。
- ④ 放射性二次有機廃棄物は、触媒的電解酸化法にて分解し、処分の容易な無機リン酸に転換する。アルキル基は炭酸ガス、水等に転換するので高減容化が可能となる。

消滅処理

図 2.2 及び 2.3 に FBR を用いた消滅処理システム全体の概念例を示す。

- ① 消滅装置としては MOX 発電用 FBR をベースとし、使用する MA は前述の湿式分離システムにより抽出される。
- ② 炉心内 MA 装荷方法は、均質装荷、非均質装荷、ブランケット装荷を想定する。

- ③均質装荷の場合は、炉心燃料中に MA ($Np + Am + Cm + RE$) を均質に添加する (図 2.4 参照)。均質装荷のメリットは、MA の添加率が小さいため炉心特性や燃料物性への影響が小さいと予想される。
- ④非均質装荷には、幾つかのオプションが考えられるが、その 1 つとして、炉心燃料中に Np のみを添加し、($Am + Cm + RE$) は不活性母材 (Al_2O_3 , MgO 等) とともに、ブランケット領域に特殊集合体として装荷することが考えられる (図 2.4 参照)。この装荷法は、希土類元素の炉心特性に与える影響を小さくし、また、 $Am + Cm$ と RE の分離係数の要求条件を緩和して MA を消滅できる可能性がある。
- ⑤FP 装荷方法は、図 2.5 に示すような減速材付集合体として、ブランケット領域又は遮蔽体領域に装荷する (図 2.6 参照)。

4) 特徴 湿式分離

(メリット)

- ①CMPO ($O\Phi D[IB]CMPO$: Octylphenyl-diisobutyl-carbamoylmethyl-phosphine oxide) 抽出剤は抽出能力が極めて高いので、被抽出液の硝酸濃度を下げずに目的 MA (Am , Cm 及び Np) を抽出できる。
- ②TRUEX 法は少量 (0.2M) の CMPO を PUREX 溶媒 (TBP (1.0~1.4M) / n -ドデカン) に混合して用いる。PUREX 再処理操作から生ずる抽出残液に直接適用でき、また既往の抽出技術をそのまま使うことができるので、再処理工程との整合性が極めて良い。
- ③逆抽出試薬の DTPA は混合抽出溶媒中から MA を選択的に水相に移行させることができ、またその物性は既知である。従ってホットセルでの取り扱いにおいても安全上の問題はない。
- ④MA のうちの Np は操作条件を改良することによって、特殊な試薬を用いなくても前段の PUREX 工程で定量抽出できる。 Np を U と共に Pu 製品中に移行させることによって、核不拡散性の高い Pu 製品を得ることができる。
- ⑤有用元素である白金族 (Ru , Rh , Pd) 及び稀少金属の一部 (Tc , Se , Te) のイオンは酸性溶液中で酸化還元電位が貴であるため、電解採取法を改良することで、直接、高濃度硝酸溶液 (溶解液及び高レベル廃液) から析出分離させることができる。
- ⑥電解採取法は、従来の溶媒抽出法では未検討であった LLFP 核種 ($Pd-107$, $Se-79$, $Tc-99$) 及び稀少元素 (Te) についての分離・回収の手段を与える。
- ⑦除染性能の支配核種である $Ru-106$ と $Tc-99$ を溶媒抽出工程の前段で除去することにより、PUREX 法並びに TRUEX 法の高除染化が期待できる。
- ⑧各分離法にソルトフリー手法を適用することによって、二次的廃棄物の発生を徹底抑制できる。ソルトフリー法は *in situ* 電気化学法、分解してガスに転換する試薬、あ

るいはその両者を組み合わせて反応操作を行うので、操作に伴う二次廃棄物は生じない。

- ⑨核種分離工程の詳細なプロセス設計は行っていないが、現状では NO_x ガスの吹き込みによる反応操作は想定していない（今後のプロセス設計では硝酸のバランスを考慮し、過剰回収酸による二次廃棄物の発生の抑制に留意する）。

（デメリット）

- ①TRUEX 法では多価遷移元素（Zr, Mo, Tc 等）の除染法や高レベル濃縮廃液への展開の検討が不十分である。
- ②TRUEX 法への効率的 MA/Ln 分離技術の組み込みが完成されていない。現状の Am、Cm/Ln 元素分離法では中重ランタニド元素の分離が困難である。また塩の多い廃棄物が発生する。MA（Am、Cm）の相互分離の是非及び分離法が確立されていない。
- ③回収 TRU 溶液の貯蔵管理法、特に濃縮 TRU 溶液を取り扱う工程における臨界管理データ等が不足している。
- ④有機リン廃棄物（CMPO, TBP）の効率的処分法がまだ確立できていない。

消滅処理

（メリット）

- ①MOX 発電用 FBR で MA 添加率を数%程度にすることにより、炉心特性、原子炉プラントに大きな影響を与えずに、MA の消滅が可能である。（商業炉の技術開発の延長線上にある。）
- ②ブランケット又は遮蔽体領域で、余剰の中性子を利用して、MA 及び長半減期 FP の消滅が可能である。（装荷方法の柔軟性がある。）

（デメリット）

- ①核種によっては、放射線や発熱が高いため、セルで製造する必要がある、製造コストの増加につながる。また、これに関連して原子炉サイトでの新燃料取り扱い設備や使用済燃料の崩壊熱の増加に伴う設備の増強が必要となることが考えられる。

5) 目標及び設定根拠

湿式分離

- ①TRU の回収率として、99.9%以上を目標値とする。

放射性毒性の低減の観点からは、「可能な限り高く」を技術開発の目標とすべきである。しかしながら「経済的に許容できるプロセス設計」を前提条件とする時、当初の実廃液を用いた実験室規模抽出システム試験(2)の結果から、上記値を当面の目標とするのが妥当と判断した。
- ②LLFP 核種、有用稀少元素の分離については、各分離技術の成立性と限界に関する見通しの確認がまず重要である。その上で、経済的に許容される条件において達成しう

る最大値、を目標回収率とすべきと考える。

消滅処理

- ① 消滅処理装置としては、消滅特性が軽水炉より優れている高速炉を対象とする
- ② 現在実用化を目指している MOX 発電用 FBR で現行路線（原子炉、燃料サイクル施設）へのインパクトを最小限におさえて MA 及び LLFP を消滅するシステムを構築する。

6) これまでの成果

湿式分離^{(3)~(7)}

TRUEX 法で Am/Cm 混合プロダクトを、PUREX 法で Pu/U/Np 混合プロダクトを、それぞれ回収するフローシートを提示することができた。

1990～1997 年における研究の成果は以下のとおりである。各分離要素技術を研究レベル、達成分離係数、回収率などの項目で総括し、表 2.1⁽¹⁾に示す。

(1) MA (Am, Cm)分離

- ① CMPO/TBP 混合溶媒の高レベル廃液を構成する主要核種、元素についての基本的な分配特性を、単味溶液、実高レベル抽残液 (HAR) 及び実高レベル濃縮廃液 (HLLW) を用いた試験により確認した^{(8),(9),(10)}。
- ② 高レベル廃液の「 α -Free 化」が達成できることを、実廃液を用いた小型ミキサ・セトラによる TRUEX 法の向流多段抽出試験（5 回のホットラン）で明らかにした。基本的な抽出条件における $DF_{\alpha} > 10^3$ （回収率 > 99.9%）を実証した^{(2),(11)~(15)}。図 2.7 に典型的な抽出プロファイル（実液試験第 2 ラン）を、表 2.2 に典型的な除染係数及び分離係数を示す（実液試験第 3 ラン）。マイルドなソルトフリー試薬群によるアクチニドの分別回収を可能とするフローシート " TRUEX/PNC Salt-Free Version "（改良 TRUEX 法）を構築した⁽¹⁶⁾。フローシート（実液試験第 5 ラン）を図 2.8 に、その物質収支を図 2.9 に示す。
- ③ フローシート TRUEX/PNC Salt-Free Version を基に、高速炉使用済燃料 1 t 処理に対応する MA 分離工程の物質フローを検討した（図 2.10 に示す）。高レベル廃液の発生量は単一の PUREX 抽出サイクルを想定して算出した。各物量は下記条件を前提とする。
 - 高レベルラフィネート (HAR) の濃縮率は、PUREX もソルトフリーを前提とする故任意に設定できるが、本ケースでは 10 とする。
 - 分別的逆抽出液 I, II, III, IV は統合し、廃ソルトフリー試薬の電解分解後、濃縮し、次 MA/Ln 分離工程へ供する。濃縮率は 100 と仮定する。なお、II, III, IV 中のアクチニド濃度が極めて低い場合には直接ラフィネートへの廃棄、あるいは II については高レベル廃液 (Feed) へのリサイクルというオプション

ンも考えられる。また溶媒洗浄廃液 (III, IV) 中の劣化生成物濃度が無視できない程度の場合には別オプションの検討が必要となる。

- リサイクル溶媒中への溶媒劣化物の蓄積は、遠心抽出器の全面適用およびソルトフリー溶媒洗浄の有効性を前提として、極小化できるものとする。従って、溶媒劣化に起因する廃溶媒は無視する。しかしながら、希釈剤洗浄に伴う定常的な溶媒濃度調整操作によって構造的に溶媒ホールドアップ量が増加し、その増加分が廃溶媒となる（廃溶媒発生量については今後検討する）。

- ④ CMPO の熱化学を TBP と比較しつつ検討した⁽¹⁷⁾。TBP／ドデカン系の熱分解性に及ぼす CMPO の影響は小さいことを実験的に確認した。また CMPO の水相への溶解度は小さく、希釈剤で回収できる。従って CMPO 固有のレッドオイル爆発性は低いものと判断される。マウス及び細菌を用いた in vivo 試験から CMPO の急性毒性は極めて低く⁽¹⁸⁾、また発癌性物質ではないことを明らかにした⁽¹⁶⁾。
- ⑤ CMPO／TBP は、電解酸化法により常温で無機リン酸にまで分解、減容できることを示した。Ag²⁺あるいは Co³⁺を触媒（メディエータ）に用いた間接電解酸化法で、分解効率並びに個別電流効率が大幅に改善されることを確認した^{(19),(20)}。

(2) MA(Np)分離

- ① PUREX 工程においては、溶解液中での Pu(VI)の共存が Np の抽出促進のバロメータとなることを示した。実照射済燃料を用いた向流多段抽出試験（4回のホットラン）を実施し、高レベル廃液中への Np の漏洩を防止し、Np を U と共に Pu プロダクト中に混合抽出するフローシートを実証した^{(21),(22)}。図 2.11 に典型的 Np の抽出、逆抽出プロファイルを示す。

(3) MA/Ln 分離

- ① DTPA による分離法で MA と軽 Ln の分離が可能なことを、実廃液を用いた向流多段抽出試験（2回のホットラン）で明らかにした。Ln の 80 % 以上が Am プロダクトより除去された^{(23)~(27)}。Am 製品中に移行するランタニド元素の割合を、高速炉の場合 Am 量の約 3 倍程度に低減することが可能となった。図 2.12 に典型的な MA/Ln 分配プロファイルを示す。
- ② JNC/CEA 共同研究を通じ、精製したソフト（含イオウ）配位子、CYANEX301 抽出剤について、高 MA/Ln 分離能 ($SF_{Am/Eu} > 6000$) を実核種分離試験で確認した^{(28),(29)}。図 2.13 に数種のイオウ化合物の Am, Eu の分配比及び分離係数を示す。また TBP 等数種の中性有機配位子による抽出協同効果を確認した。

(4) LLFP (Tc-99、他) 元素及び有用稀少金属 (白金族、他) 元素の分離

- ① 硝酸溶液からの白金族 (Pd^{2+} 、 RuNO_3^+ 、 Rh^{3+}) 及び ReO_4^- (TcO_4^- 模擬イオン) の電解析出・溶解挙動を検討し⁽³⁰⁾、析出過程における相互干渉効果を見い出した^{(19),(20),(31)}。図 2.14 に共存イオン効果を示す。 Pd^{2+} は高濃度硝酸条件においても効率良く析出する。通常 RuNO_3^+ の電解析出は困難であるが、 $\text{Pd}_{\text{adatom}}$ のプロモータ効果で > 99% の析出が可能となった。 Pd^{2+} の共存により ReO_4^- 及び Rh^{3+} の析出も促進される。電解採取法ではその他に、Te や LLFP 元素の Se を析出分離できる⁽¹⁾。図 2.15 に模擬高レベル廃液からの電解採取法による稀少金属イオンの分離例を示す。
- ② 大環状化合物 (クラウンエーテル: DCH18C6) により、高レベル廃液中から直接、発熱性核種 Sr-90 を抽出分離する可能性を示した⁽³²⁾。図 2.16、2.17 に硝酸及び模擬高レベル廃液からのクラウンエーテルによる Sr^{2+} の選択的分離能を示す。

消滅処理

研究項目としては、設計研究 (炉心概念、プラントへの影響等)、核データの測定・評価、燃料開発、シナリオ研究である。

(1) 設計研究^{(35)~(40)}

- ① MA 燃料の原子炉内装荷法を検討した結果、炉心の燃料集合体全てに MA を一様に添加する場合 (均質装荷)、MA 添加率が 5% 程度では、炉心特性に大きな影響を与えないで、約 11%/年の消滅率が達成できることが明らかになった。これは、約 6 基の 1 0 0 万 KWe 級軽水炉で生成される MA を、1 基の 1 0 0 万 KWe 級 F B R で消滅することが可能となる (表 2.3⁽³⁹⁾ 参照)。
- ② 非均質装荷 (Np を炉心に均質装荷し、 $\text{Am} + \text{Cm} + \text{RE}$ をターゲット集合体としてブランケットに装荷) の場合、大きい消滅量が達成できる可能性がある (表 2.3⁽³⁹⁾ 参照)。
- ③ Am と Cm から希土類元素を完全に分離することは困難であり、均質装荷燃料の場合、燃料中に希土類元素の混入は避けられない。炉心特性 (特に燃焼反応度) の観点から炉心燃料の希土類元素の含有率は、5 ~ 1 0 % が上限となる (表 2.4⁽³⁹⁾ 参照)。
- ④ MA の多重リサイクルについては、F B R は炉心特性の観点からは十分に可能であることを示した (表 2.5⁽³⁹⁾ 参照)。ただ、多重リサイクルによる発熱量、中性子発生量が大きくなり、その対策が必要となる (表 2.6 参照)。
- ⑤ MA ($\text{Np} + \text{Am} + \text{Cm}$) 燃料の中性子発生量は、MA (特に Cm-244 の量) の添加率増大に伴って大幅に増加する⁽³⁵⁾。MA を 5 % 添加した燃料の場合、新燃料の中性子発生量は使用済み燃料の中性子発生量とほぼ同じになる (表 2.7 参照)。また、MA 燃料の発熱量は、 Cm-244 の増加に伴って増える (表 2.7 参照)。このことより、原子炉施設の新燃料取り扱い設備、燃料製造施設、輸送容器への影響が考えられる。しかし、

新燃料取り扱い設備については燃料移送方式の変更、燃料製造施設についてはホットセルでの製造、輸送容器については使用済み燃料輸送容器の活用等により対応が可能であると考える。

- ⑥FP (Tc-99) 消滅に関しては、炉心の外側のブランケット領域に、減速材付ペレット (Tc-99 等を中心に配置しその周りを減速材で囲んだもの) 入りの集合体を装荷することにより、最大で約 10%/年の Tc-99 消滅率が達成できる見通しが得られた (表 2.8⁽⁴⁰⁾参照)。I-129 については、F B R 1 基で年間 17kg が消滅でき、これは軽水炉 3 基 (1 基当たり 6 kg/年生成) 程度から生成される I-129 量に相当する。

(2) 核データの測定・評価

原子炉、加速器等を用いて高速中性子エネルギー (一部共鳴エネルギー⁽⁴¹⁾) 領域における MA 核種 (Np-237, Am-241, Am-242, Am-242m) ⁽⁴³⁾ 及び希土類核種⁽⁴²⁾ (Pr-141、Ce-140、Sm-147、Sm-148、Sm-150、Eu-153、Nd-143、Nd-245 等) の核データの測定・評価を行い、主要な核種の精度向上を図った (図 2.18、2.19 参照)。核データライブラリー改定のためのデータベース充実に寄与できた。

(3) 燃料開発

- ①Np 添加した混合酸化物 (MOX) 燃料製造に関連して、転換施設に Np 回収設備を整備し、12g の Np を回収した。また、スイスのポール・シェラー研究所 (PSI) との共同研究により、振動充填法による Np を添加した MOX 燃料の製造技術開発を実施している。
- ②Am 添加 MOX 燃料製造に関連して、大洗工学センターの照射燃料試験施設のホットセル内へ、ペレット製造設備、ピン加工検査設備等の遠隔燃料製造設備を設置 (図 2.20、2.21 参照) し、性能試験を実施した。
- ③燃料の照射挙動及び MA 核種の消滅特性の評価を行うため、「常陽」で照射した Am 含有 MOX 燃料の照射後試験及び MA サンプルの照射試験を実施中である。また、MA 分析技術の開発を行った^{(44),(45)}。

(4) シナリオ研究

MA 燃料を装荷した MOX 発電用 F B R の投入が、我が国の MA 蓄積量低減に効果的であることを明らかにした^{(46),(47)}。MA リサイクルを行わない場合、2100 年時点において日本全体で 310 トンの MA がガラス固化体内に蓄積されると予想される。しかし、MA リサイクル (99.9%回収) によりこの蓄積量を約 60 トンまで低減 (80%削減) することが可能である (図 2.22、2.23、2.24 参照)。内訳は、炉内に 40 トン、燃料サイクル内に 20 トン、ガラス固化体内にわずか 0.5 トンである。

2. 現状の分析

1) オメガ計画における位置付けとそれに対する進捗状況

湿式分離

(1) MA 分離技術の開発

プロセス技術については、実験室レベルの実液による抽出基礎試験並びに抽出システム試験を実施した。工学的要素技術については FBR 再処理との共通技術として開発中である。これらは主として内部実施である。

(2) LLFP 核種及び有用稀少元素分離技術の開発

これらの分離技術については、当初の研究範囲には含まれていない。従ってこれまでの経営資源の配分は少なく、また研究の進捗度も低い。開発レベルは模擬液試験のレベルに留まっている。工学展開については未着手である。主として外部との協力で実施している。

消滅処理

オメガ長計における「原子炉による消滅技術研究開発」では、FBR による消滅処理技術確立のため、炉物理データの測定・評価、燃料製造と物性データの測定・評価、発電用 FBR での消滅処理概念の検討を行うこととした。

(1) 炉物理・物性

① 核データ取得

MA 核種及び希土類核種の核反応断面積、MA 崩壊熱の測定によって、核データの精度向上に寄与するデータが整備されつつある。

② 「常陽」サンプル照射試験解析

「常陽」を用いた照射試験解析・評価としては、Np ドジメータ及び高 Am 含有燃料による MA 消滅特性評価、MA 核種サンプル照射を実施している。

(2) 燃料製造と物性データの測定評価

① 物性データ

MA 核種について、単体、化合物及び合金としての基礎的な物性に関するデータの収集及び測定試験を実施している。

② 燃料製造

Np 添加 MOX 燃料については、グローブボックスにおける通常の製造技術をベースに、ペレット燃料と振動充填法によるスフェア燃料の製造技術開発を実施している。Am 添加 MOX 燃料については大洗工学センター照射燃料試験施設のホットセルの一部を改造し、ペレット製造設備、ピン加工検査設備等の遠隔燃料製造設備を整備を行った。

(3) 発電用 FBR での消滅処理

1000MWe 級の大型 MOX-FBR において炉心特性及び原子炉プラント等に大きな影響を与えない幾つかの可能な MA 及び FP 消滅炉心概念を構築した。ここで MA 燃料装荷法、

希土類混入の影響、MA 核種の核データ不確かさの影響、原子炉プラント及び燃料サイクルへの影響、MA リサイクルの影響等を検討・評価した。

2) 技術的達成度

湿式分離

- ① TRUEX 及び PUREX 法のプロセス技術は、実験室レベルの実液による抽出システム試験でその成立性と目標分離度の達成を確認し、次フェーズに向けて研究課題を明確化できた。従ってフェーズ 1 の目標はほぼ達成されたものとする。
- ② LLFP 核種及び有用稀少元素の分離については、電解採取法による白金族、テクネチウム、テルル、セレンの選択的分離の可能性を示した。パラジウムによるルテニウム及びレニウムの電析促進効果を発見した。プロセス成立性の判断には実液による分離システム試験での実証、評価が必要となる。
- ③ 高レベル廃液中のストロンチウムの分離については、大環状化合物（クラウンエーテル）による選択的分離の可能性を示した。プロセス成立性の判断には実液による分離システム試験での実証、評価が必要となる。
- ④ 硫黄、あるいは窒素を含むソフト配位子の高 Am/Eu 分離能を実験的に示した。プロセスの成立性と TRUEX 法への適合性は、実液による抽出及び分離システム試験による評価が必要である。

図 2.25 に全体計画における各要素技術の対する現在までの達成状況を示す。

消滅処理

- ① 設計研究では、パラメータサーベイによる基本特性の把握、それを基にした MA 及び FP 消滅炉心概念の検討を実施し、MOX 発電用 FBR での幾つかの可能な MA 及び FP 消滅の炉心概念が提示できた。
- ② MA 核種及び希土類核種の核データの測定評価により、主要な核種の精度が明らかになるとともに、核データデータベースが充実した。
- ③ MA 添加 MOX 燃料開発のための必要な施設を整備するとともに、基礎的データを収集することができた。
- ④ シナリオ研究では、MA のマスバランス、放射性毒性等の解析・評価が終了し、MA 消滅における MA 装荷 MOX 発電用 FBR の投入効果が明らかになった。

図 2.26 は各要素技術のこれまでの実施状況と今後の計画を整理したマップである。

3. 今後の見通し及び課題

1) 実用化の見通し及びそのために解決すべき課題

湿式分離

(1) MA 分離技術の開発

表 2.9 に MA 核種分離プロセス構築に向けての TRUEX 法の評価と課題をまとめる。プロセス化学的には多価 FP 遷移元素イオンの制御法、より効率の良い Ln 分離法、装置工学的には遠心抽出器への適合性、高レベル濃縮廃液への適合性等が重要研究課題である。

(2) LLFP 核種及び有用稀少元素分離技術の開発

電解採取法では二次廃棄物の発生を極めて少量に抑制できる。電解析出に及ぼす各種共存イオンの影響、放射線の効果、選択的再溶解法等が研究課題となる。

消滅処理

MOX 発電用 FBR での MA 及び FP 消滅の可能性についてある程度示すことができたが、実用化見通しを得るためには、基礎的データの充実、工学規模での試験、経済性評価等を実施していく必要がある。解決すべき課題としては、MA 核種の核断面積（特に、中性子吸収断面積の精度が十分でない）及び崩壊熱（MA の測定データがない）の精度向上、FP 核種の核断面積の精度向上、MA 燃料の基礎物性データ充実、不活性母材入り MA 及び FP ピンの基礎データの充実、MA 燃料製造技術開発、MA 燃料の照射挙動評価等がある。

2) 当面重点を置くべき研究開発課題

湿式分離

表 2.10 に重点を置くべき研究項目を示す。

① MA 分離技術

- プロセスを合理的に設計するためのプロセス／装置／プラント設計シミュレーション技術、DTPA による MA/Ln 分離法の最適化が必要である。
- 工学的には遠心抽出器による実廃液を用いた抽出システム試験が必要である。
- 廃棄物量低減の観点からは、二次有機廃棄物の分解・無機化技術に傾注すべきである。
- 長期的、戦略的視点からは、“ソルト”で“ソルトフリー”の TRU 分離抽出剤の創生が重要である。

② LLFP 核種及び有用稀少元素分離技術

- 電解採取条件の最適化、析出促進メカニズムの解明、Tc の電解析出挙動等を明確化するための実廃液処理試験並びに工学装置の検討が必要である。

消滅処理

① 燃料サイクル側との整合を取りながら最適炉心概念の構築を図る。

② MA 及び FP 核種断面積、MA 核種の崩壊熱データの測定・評価による核データライブラリー精度向上を図る。

③ MA 燃料製造施設を用い、MA 添加 MOX 燃料の製造技術の確立を図ると共に、製造

した燃料を用いた基礎物性試験によりデータベースを整備する。

- ④「常陽」や「もんじゅ」での照射試験による燃料設計、燃料照射挙動評価に必要なデータを整備する。

図 2.27 に消滅処理研究の今後の計画を示す。

3) 経済性についての見通し

- ①MA リサイクルを行うことにより、特に再処理や燃料製造工程の施設建設費の増大が懸念されている。現在検討されている低除染湿式再処理／振動充填燃料製造を基本とした先進燃料サイクル施設概念では、再処理が低除染であるために燃料製造工程がセル内に設置されることから、MA リサイクルに伴う新たな遮蔽機能は不要となり、燃料製造工程の建設費への影響は小さい。一方、再処理工程においては MA 分離のための TRUEX 工程や廃棄物からの MA 回収設備が付加され、これらにより燃料製造工程も含めた燃料サイクル施設全体の建設費は約 11%⁽⁴⁸⁾増加すると見込まれる（建屋建設費：約 1.6%増、設備費：約 0.7%増、付帯設備費：約 8.6%増）。（なお、先進燃料サイクル施設の処理単価（kg/HM 当たり）は、基準プラント（今後の技術開発成果を取り入れた高DF再処理及びグローブボックス製造で、再処理・製造各々個別の建物）に比べて、50トンプラントで0.83倍程度になる見込みである⁽⁴⁹⁾。）

なお、MA 核種分離プロセスの経済性を左右する Ln 分離工程については、要求分離度の最適化を図ると共に、より効果的な分離法を開発して経済性向上を目指す必要がある。

- ②原子炉に関しては、新燃料の燃料取り扱い系や使用済燃料の崩壊熱の増加に伴う設備増強により建設費は約 1%増加すると見込まれる。
- ③これらの原子炉や燃料サイクル施設における建設費の増加等を反映した場合の発電コストの増加は 2%程度（資本費：約 0.8%増、運転費：約 0.3 %増、燃料費：約 0.9 %増）であり、MA リサイクルが経済性へ与えるインパクトは比較的小さいと考えられる。

4. 研究開発の進め方

1) 関連する研究分野との協力

湿式分離

MA 核種分離工程の前段である「再処理」、また後段の「燃料製造」との境界条件の明確化及び取り合い設計が必要である。要素技術では、抽出装置／制御／プロセスシミュレーション技術、ソルトフリー技術（電解槽工学他）及びプラント設計等の各工学分野における協力が必要である。基礎科学分野では、有機合成化学、錯体化学、電気化学等との協力が重要である。分離ターゲット核種や回収率の設定には、炉工学や環境科学／アセスメント評価の協力を必要とする。

消滅処理

核物理（核データ）、材料開発（希釈材、不活性母材等）との協力が重要である。

2) 国内機関との協力

湿式分離

- ① 日本原子力研究所との間で、MA、MA/Ln 分離技術に関する情報交換を行った。今後も協力を継続する。
- ② 専門メーカーとの間で、電気化学法による LLFP 核種及び有用稀少金属元素分離技術、並びに二次有機廃棄物分解の基礎研究を進めている。今後、工学的成立性と経済的評価のためのデータを取得する。
- ③ 複数の大学（阪大、静岡大、群馬大、九州大）⁽³³⁾との間で、二座配位型抽出剤（CMPO、DIAMIDE）の基礎化学、新大環状化合物（クラウンエーテル、カリックスアレン）の開発、新 MA/Ln 分離抽出剤の開発等に関する基礎研究を実施した。

消滅処理

核データの測定・評価において、大学（東大、京大、東工大、東北大）と共同研究等を実施している。

3) 国際協力

湿式分離

- ① 1991 年より、フランス CEA との間で、MA 分離、MA/Ln 分離、LLFP 分離⁽³⁴⁾及び計算化学等について研究協力（情報交換、研究員の相互派遣）を実施している。これまでに（1999 年 7 月の時点で）に計 8 回の情報交換会議と計 4 名（日仏 2 名ずつ）の研究員の交換を行った。今後も継続する。
- ② 1990 年より IAEA OECD/NEA の情報交換会議に参加し、論文を発表するとともに、外部情報の入手や海外の専門家との意見交換を行った。今後も継続する。

消滅処理

フランス、ロシア、スイスとの協力を進めている。

- ① フランスとは、JNC-CEA の先進技術協力協定に基づいて、核データ、炉物理、燃料、照射試験解析、シナリオの分野で、協力を実施している。相互に研究員の派遣も実施している。
- ② ロシアとは、ISTC プログラムを通して、MA 消滅炉心概念の研究、MgO 希釈材の製法検討と物性評価等を委託研究で実施した。
- ③ スイス（PSI）とは、振動充填法による Np 添加 MOX 燃料の製造に関する共同研究を実施している。

5. 研究開発対象としていなかったが、核種分離・消滅処理の趣旨に照らして重要と考えられる技術

- ① 核種分離技術では、経済性向上と環境負荷低減に関連して、一部着手済みであるが二

次廃棄物の低減技術（ソルトフリー技術開発、二次有機廃棄物の分解／無機化技術）が重要である。長期的、戦略的視点からは、塔¥フト狽ナ塔¥ルトフリー狽フ新分離抽出剤（完全燃焼型）創生への挑戦が極めて重要である。

- ② F P 消滅に関連して、同位体分離技術（分離技術との検討の基に、対象とする核種選定が必要）が重要である。実液試験及び関連する試験装置の開発が重要である。

参考文献

- (1) M.Ozawa, Y.Sano, K.Nomura, Y.Koma, M.Takanashi, Proc.5th International Information Exchange Meeting on Actinide and Fission product Partitioning and Transmutation, Mol(1999)113
- (2) M.Ozawa, S.Nemoto, A.Togashi, T.Kawata, K.Onishi, Solvent Extr.Ion Exch.10 (5) (1992)829
- (3) 小沢正基, "抽出技術の高度化とアクチノイドの分離", 日本原子力学会誌, Vol.34, No.7 pp624-629(1992).
- (4) 小沢正基, "湿式核種分離技術開発の現状", 消滅処理研究の現状, 日本原子力学会, pp181-189(1994).
- (5) 小沢正基, "マイナーアクチニドの新抽出分離技術", RADIOISOTOPES, 45, pp527-530(1996).
- (6) 小沢正基, "マイナーアクチニドの抽出分離", 原子力エネルギーシステム研究委員会報告書, pp2-37-43(1996).
- (7) 小沢正基, Clement HILL, "核種分離技術", プルトニウム燃料工学, pp305-320(1998).
- (8) T.Kawata, M.Ozawa, S.Nemoto, A.Togashi and S.Hayashi, Preliminary study on the partitioning of transuranium elements in high level liquid waste, Proc. of the information exchange meeting on actinide and fission product separation and transmutation, OECD/NEA, pp186-203 (1991).
- (9) Y.Koma, S.Nemoto and M.Ozawa, Behavior of third phase formation in TRUEX solvent, Proc. of ISEC'93, pp1608-1614 (1993).
- (10) Y.Koma, et al., Material distribution between split organic phases in the CMPO mixed solvent system, Solvent Extraction Research and Development Japan, 1, pp160-166 (1994).
- (11) M.Ozawa, S.Nemoto, K.Nomura, Y.Koma and A.Togashi, Some modifications of the TRUEX flowsheet for partitioning of actinide elements in high level liquid waste, Proc. of the information exchange meeting on actinide and fission product separation and transmutation, OECD/NEA, pp139-151 (1992).
- (12) K.Nomura, Y.Koma, S.Nemoto, M.Ozawa and T.Kawata, Japanese experience in application of the TRUEX process to high level waste from reprocessing, Proc. of Global'93, pp595-600 (1993).
- (13) Y.Koma, K.Nomura, M.Ozawa and T.Kawata, Application of modified TRUEX flowsheet to minor actinide separation from high level liquid waste, Technology and Programs for radioactive waste management and environmental restoration, Waste Management '93, Vol.2 (1993).
- (14) H.Hirano, K.Nomura, Y.Koma, S.Nemoto, M.Ozawa and A.Togashi, The progress

of TRUEX process improvement in PNC-The applicability of "Salt-free" reagents-, Proc. of the third international information exchange meeting on actinide and fission product partitioning and transmutation, OECD/NEA, pp452-463 (1995).

(1 5) M.Ozawa, Y.Koma, Y.Tanaka and S.Shikakura, The state of the art on nuclides separation in high level liquid wastes by TRUEX process, Proc. of the fourth international information exchange meeting on actinide and fission product partitioning and transmutation, OECD/NEA, pp261-277 (1997).

(1 6) M.Ozawa, Y.Koma, Y.Tanaka, T.Kawata, Proc.Global'95, France, Vol.1 (1995) 585.

(1 7) 林直美、武田伸荘、動燃技報、No. 97, PNCTN134096-001 (1996) 18.

(1 8) 小沢正基、"安全性に係るプルトニウムの物理化学的性格"、日本原子力学会誌、Vol.36, No.11, pp1000-1003(1994).

(1 9) M.Ozawa, Y.Tanaka, C.Oohara, H.Tanuma, Proc.Global'97, Yokohama, Japan, Vol.2 (1997)1232

(2 0) M.Ozawa, C.Oohara and T.Kishi, Radioactive wastes minimization by electrolytic extraction and destruction in PUREX-TRUEX actinide separation system, accepted, Nuclear Technology (1998).

(2 1) 根本慎一、駒義和、柴田淳広、榊原哲郎、田中康正、動燃技報、No. 99, PNCTN134096-003 (1996) 87.

(2 2) T.Koyama, Y.Koma, Y.Sano and Y.Tanaka, Research and development to simplify and rationalize PUREX process for FBR fuel recycling, Global'97 (1997).

(2 3) Y.Koma, M.Watanabe, S.Nemoto, Y.Tanaka, Solvent Extr.Ion Exch.16(6) (1992)1357.

(2 4) M.Ozawa, Y.Koma, K.Nomura, Y.Tanaka, Journal of Alloys and Compounds 271-273(1998)538.

(2 5) Y.Koma, T.Koyama and Y.Tanaka, The concept of separation process for recovery of Americium and Curium, Global'97 (1997).

(2 6) Y.Koma, M.Watanabe, S.Nemoto and Y.Tanaka, Trivalent f-element intra-group separation by solvent extraction with CMPO-complexant system, J.Nucle.Sci.Eng., 35(2), 130 (1998).

(2 7) Y.Koma, M.Watanabe, S.Nemoto and Y.Tanaka, A counter current experiment for separation of trivalent actinides and lanthanides by SETFICS process, Solvent Extr.Ion Exch., to be published (1998).

(2 8) C.Hill, C.Madic, P.Baron, M.Ozawa, Y.Tanaka, Journal of Alloys and Compounds 271-273(1998)159.

(2 9) C.Hill, C.Madic, P.Baron, M.Ozawa and Y.Tanaka, "Americium(III) / Trivalent Lanthanides " separation using organothiophosphinic acids, Global'97, Vol. 2, pp1490-1494

(1997).

(3 0) K.Koizumi, M.Ozawa and T.Kawata, Electrolytic extraction of platinum group metals from dissolver solution of purex process, J. of Nucl. Sci.& Technol., vol.30, No.11, pp1195-1197 (1994).

(3 1) Y.Sano, M.Ozawa, Y.Tanaka and A.Kato, Electrolytic extraction of fission noble metals for waste minimizing in advanced actinide separation system, RECOD'98(1998).

(3 2) 野村和則、小沢正基、田中康正、富樫昭夫、動燃技報、No. 94, PNCTN134095-002 (1995) 78.

(3 3) M.Goto, J.Yamagawa, F.Nakashio, K.Nomura, Y.Tanaka and M.Ozawa, Novel Organophosphorus Bi-Functional Extractants for the separation of Lanthanide and Actinide, Global'97, Vol. 2, pp1466-1471 (1997).

(3 4) 小沢正基、"核分裂生成物 (137Cs) と親和性の高い新しい Macrocycles"、化学と工業、第 5 0 巻、第 6 号、pp865(1997).

(3 5) M.Yamaoka, et al., "Characteristics of TRU Transmutation in an LMFBR", presented at Workshop on the P-T of Minor Actinides, Mito, Ibaraki, Japan, Oct. 16-18, 1990.

(3 6) M. Yamaoka et al., "Design Study of A Super Long Life Core Loaded with TRU Fuel", Proc. Int. Conf. on Design and Safety of Advanced Nuclear Power Plants (ANP'92), Vol. I, October 25-29, Tokyo (1992).

(3 7) T. Wakabayashi et al , "Characteristics of an LMFBR Core Loaded with Minor Actinide and Rare Earth Containing Fuels", GLOBAL'93 (Seattle,USA) 1993.9.12.

(3 8) T.Wakabayashi, S.Ohki and T.Ikegami , "Feasibility studies of an optimized fast reactor core for MA and FP transmutation", Proc. Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems (GLOBAL'95), Vol. I, Sep. 11-14 , Versailles, France (1995.)

(3 9) T. Wakabayashi , K.Takahashi and T. Yanagisawa, "Feasibility Studies on Plutonium and Minor Actinide Burning in Fast Reactors", Nuclear Technology Vol.118, p14-25, Apr.1997.

(4 0) N. Higano and T.Wakabayashi , "Feasibility Study on the Transmutation of Long Lived Fission Products in a Fast Reactor", Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems (GLOBAL'97), Vol. 2, p1322-1326, Oct. 5-10 , Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan (1997).

(4 1) K. Kobayashi, S. Yamamoto, T. Kai, Y.Fugita, I. Kimura, M. Miyoshi, I. Kanno, T.Wakabayashi, Y. Ohkawachi and S. Ohki , "Measurement of Fission Cross Sections for Nuclear Transmutation on Am-241, Am-242m and Am-243 Using Lead Slowing-Down Spectrometer", Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems (GLOBAL'97), Vol.2, p1360-1364, Oct. 5-10 , Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan (1997).

(4 2) M. Igashira, S. Mizuno, Y. Ohkawachi and T.Wakabayashi , "Measurement of keV-neutron Capture Cross Sections of Rare Earth Nuclides", Proc. Int. Conf. on Future Nuclear

Systems (GLOBAL'97),Vol.2, p1360-1364, Oct. 5-10 , Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan (1997).

(4 3) S. Ohki, Y. Ohkawachi, T.Wakabayashi , M.Yamaoka and K. Yamaguchi , "Measurement of Fission Cross Sections of Minor Actinides at YAYOI Reactor", Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems (GLOBAL'97),Vol. 2, p1327-1331, Oct. 5-10 , Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan (1997).

(4 4) T.Okada, et.al., "Valence adjustment of Np by Pu(III) for separating Np from Np and Pu mixed nitrate aqueous solution", Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems (GLOBAL'97),Vol. I, p1222-1226, Oct. 5-10 , Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan (1997).

(4 5) S. Koyama et al. , "Analysis of Americium in Irradiated MOX Fuels by Applying a New Isolation Technique Based on Americium", Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems (GLOBAL'97),Vol. 2, p1512-1516, Oct. 5-10 , Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan (1997).

(4 6) M.Shiotsuki, et al. , "System Study on the Advanced Fuel Recycle system at PNC", Proc. Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems (GLOBAL'95),Vol. I, Sep. 11-14 , Versailles, France (1995.)

(4 7) 塩月正雄、山名元、「アクチニドリサイクルによる環境負荷低減効果に関する考察」放射性廃棄物研究、Vol.2No.1&2, p47-62、 1 9 9 6 年 2 月

(4 8) H. Kofuji et al. , "The Economics of the Advanced FBR Fuel Recycle", GLOBAL'97 (1 9 9 7 年 1 0 月)

(4 9) 紙谷、小島、「先進湿式MOXプラントのコスト評価」、PNC TN8410 97-220 (1997 年 1 2 月)

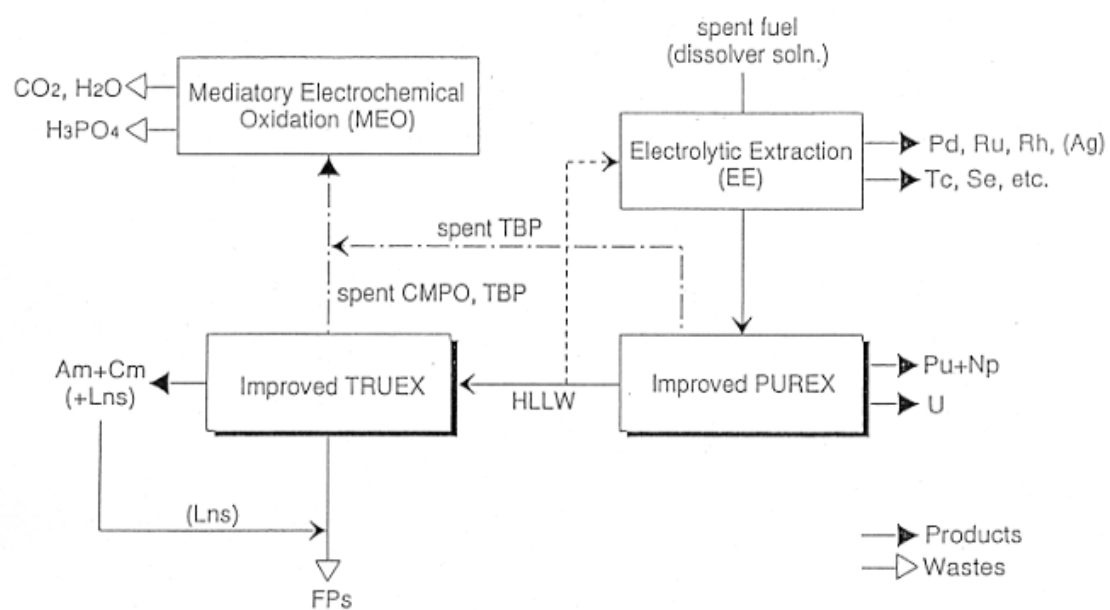


図 2.1 高度化再処理・核種分離システムの例

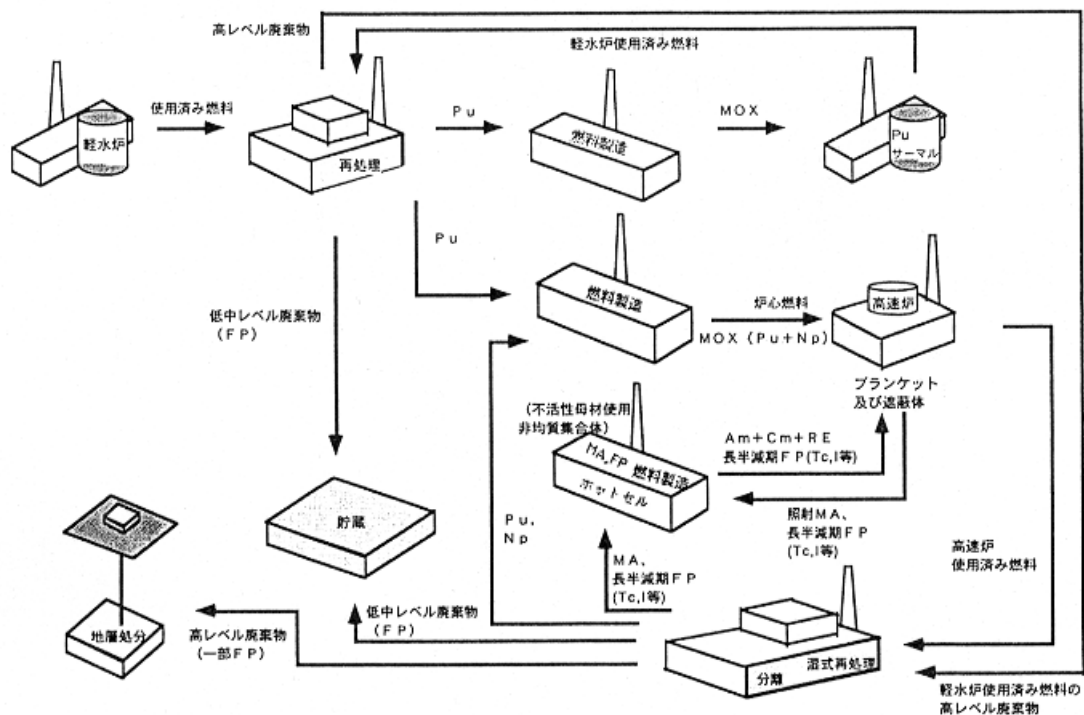


図 2.2 FBR による消滅処理システム (例 1)

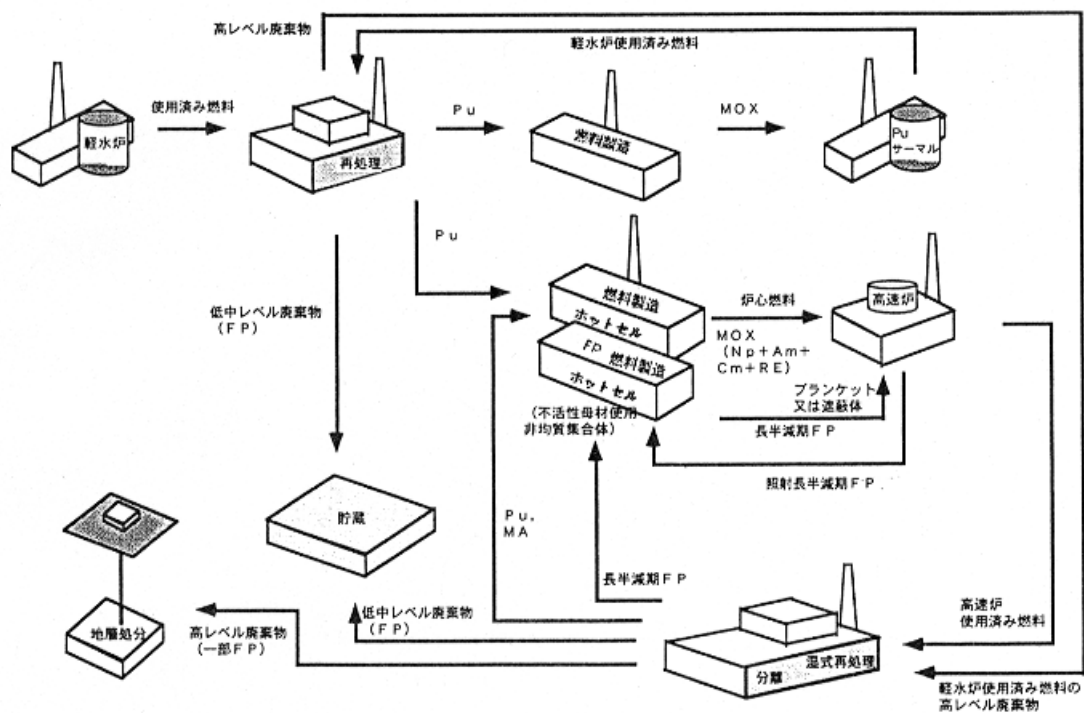
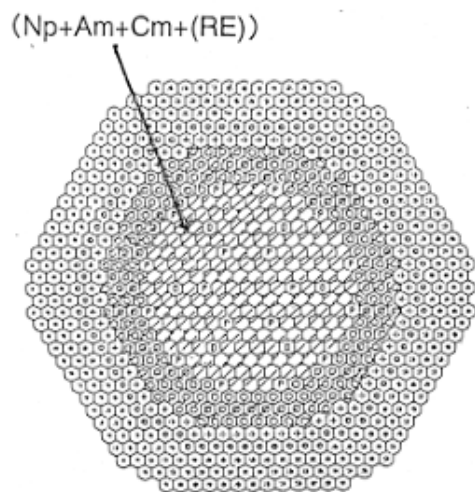
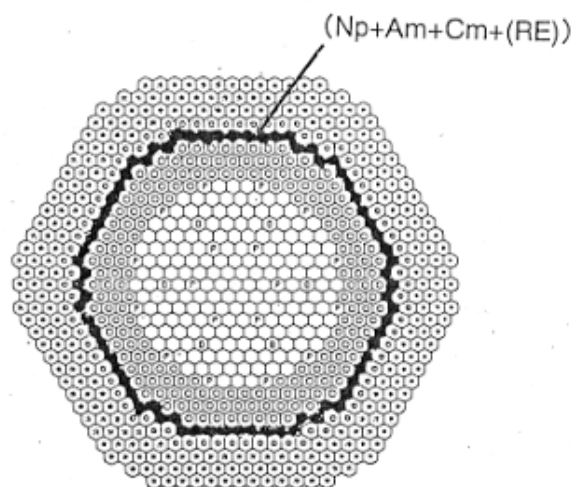


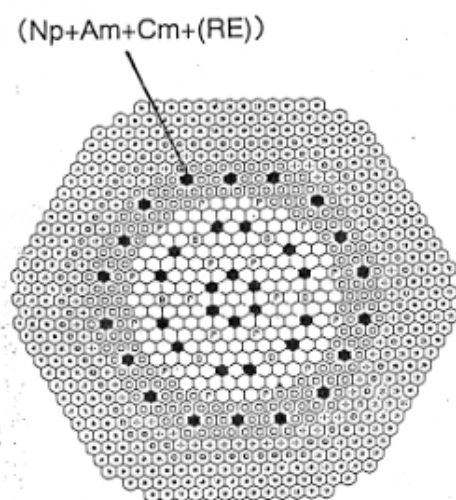
図 2.3 FBR による消滅処理システム (例 2)



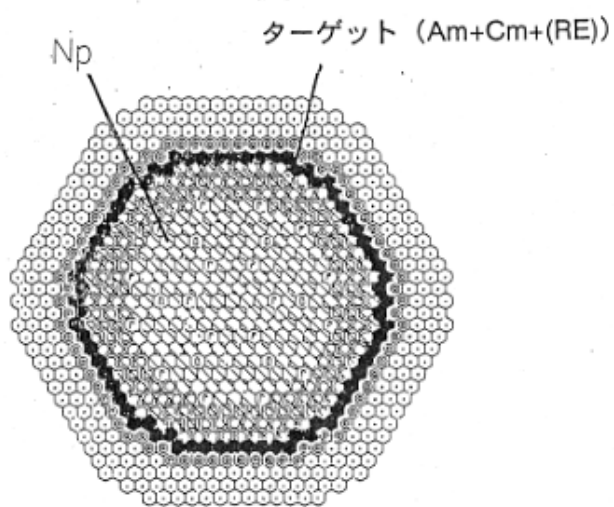
均質装荷



ブランケット装荷



非均質装荷



非均質装荷

図 2.4 FBR における MA 装荷法

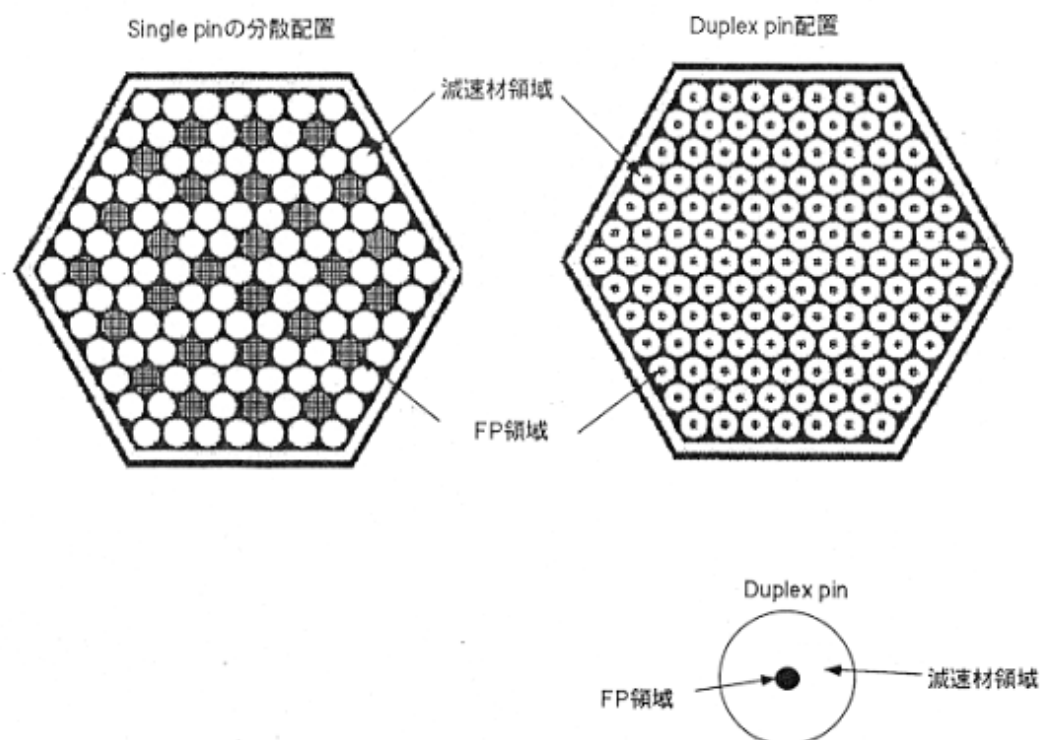


図 2.5 FP 消滅用減速材付き集合体の構成図

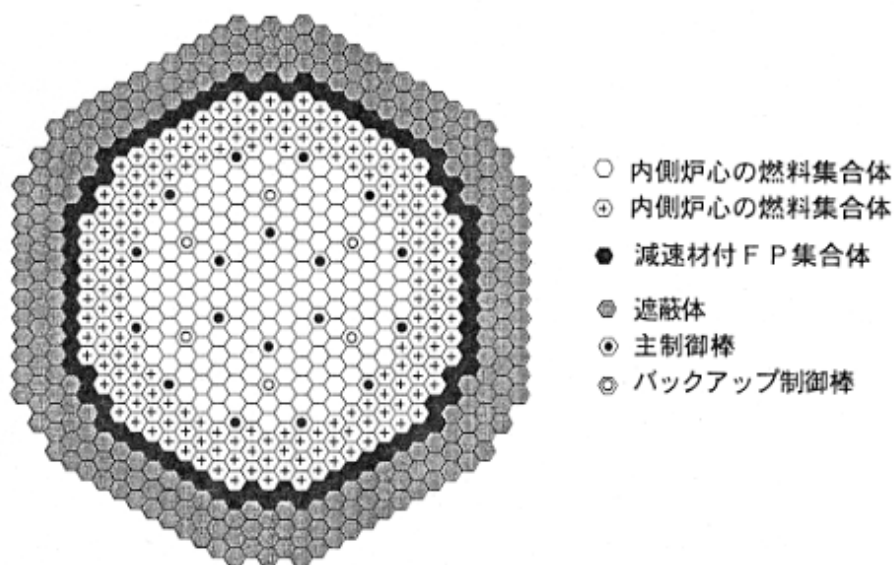


図 2.6 FP 集合体の炉心での装荷方法の例

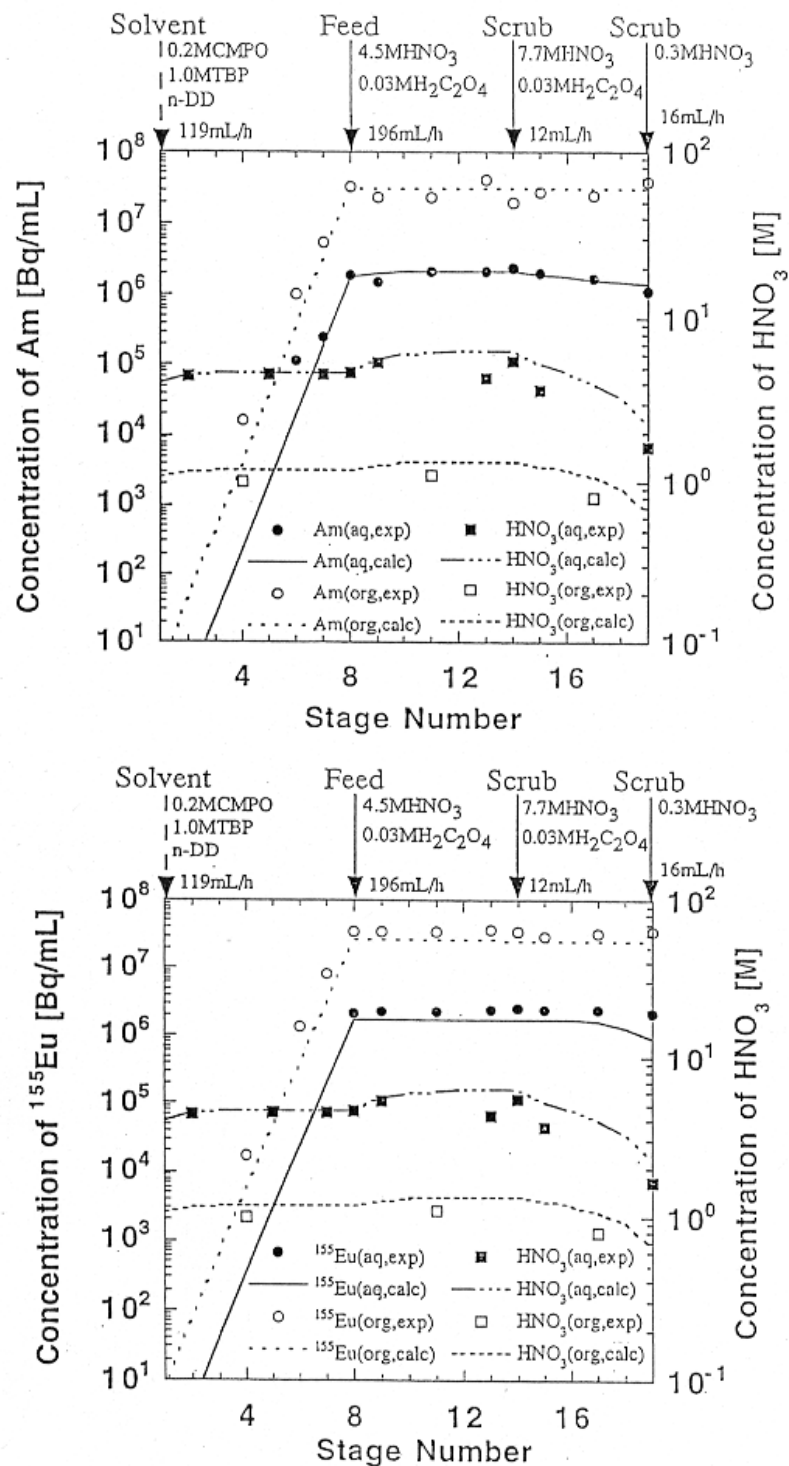


図 2.7 TRUEX法によるMA (^{241}Am) 及びLn (^{155}Eu) の抽出平衡曲線；実測値と計算値の比較
- 実液試験第2ラン-

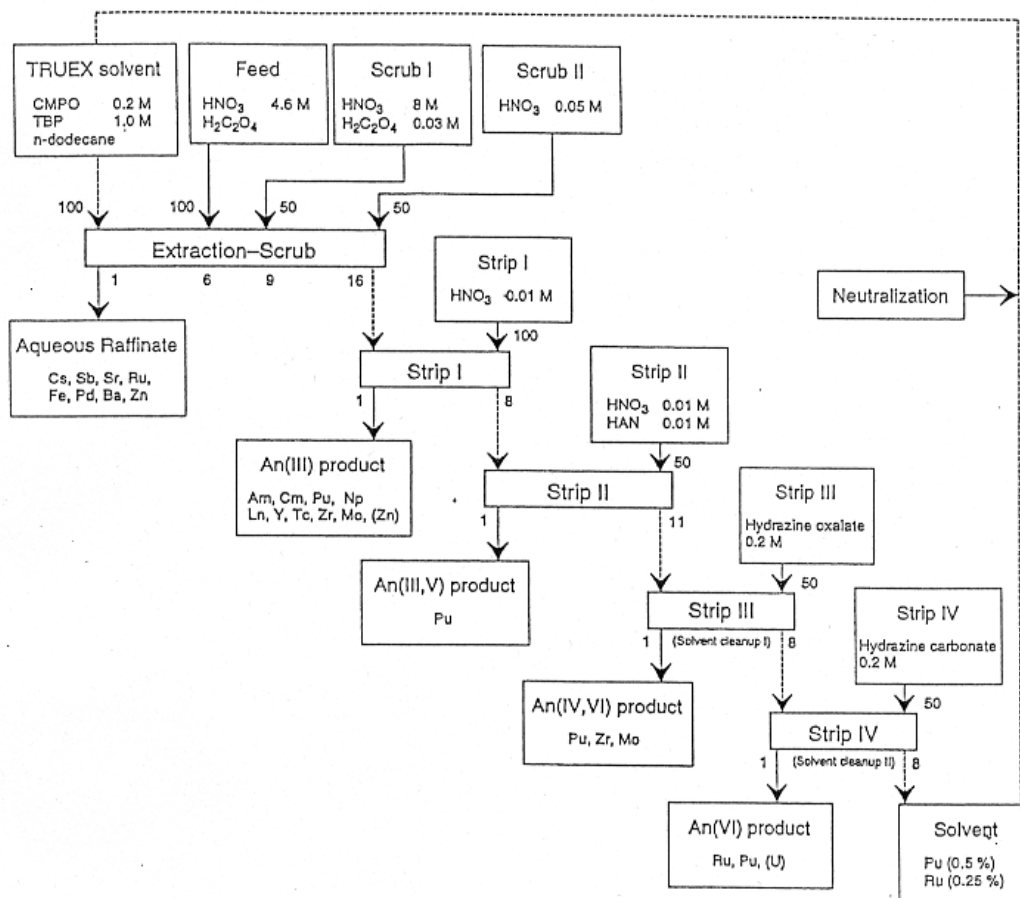


図 2.8 TRUEXフローシート"TRUEX/PNC Salt-Free Version"

- 実液試験第 5 ラン -

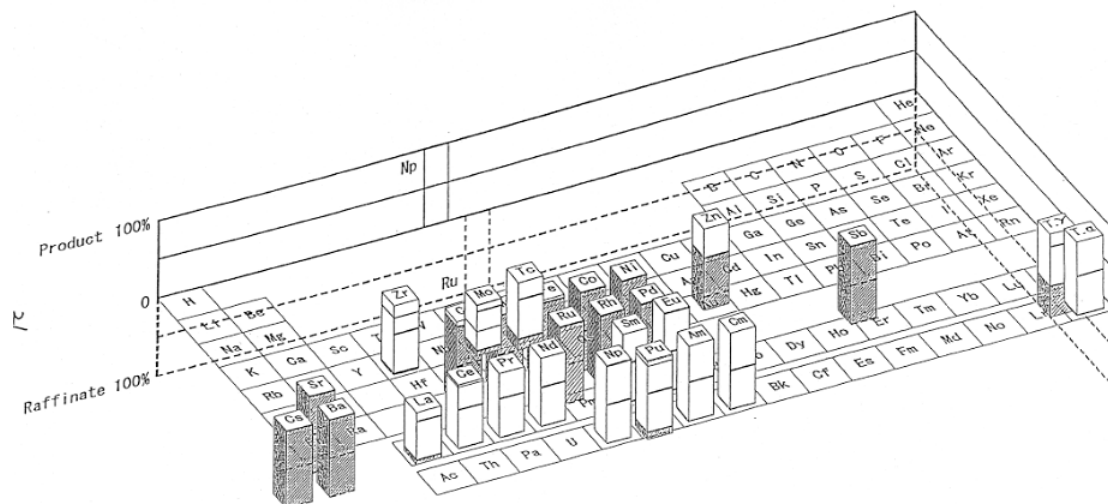
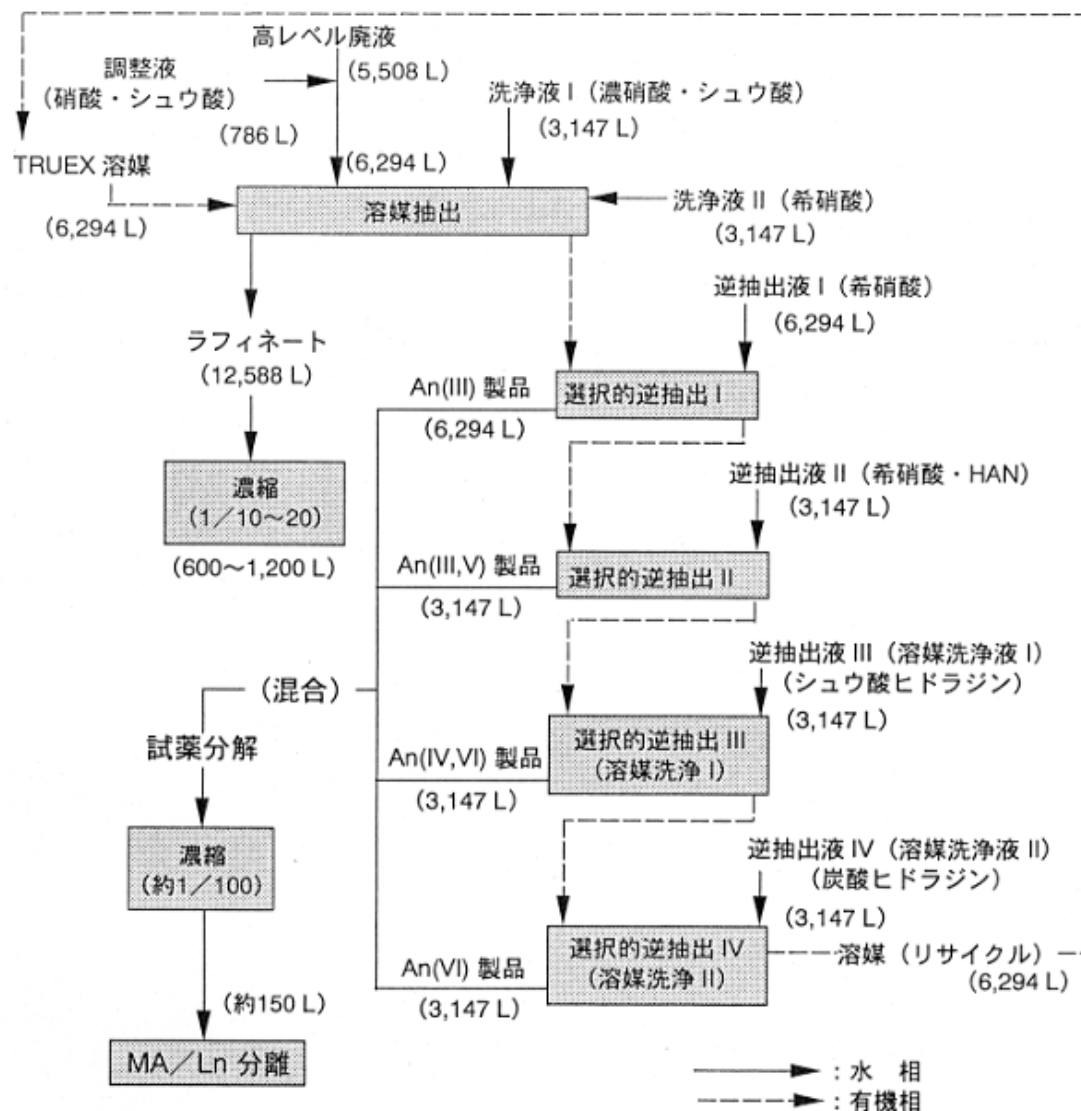


図 2.9 TRUEXフローシート"TRUEX/PNC Salt-Free Version"における
元素分配の傾向
- 実液試験第5ラン -



() 内 : 高速炉燃料 (炉心、ブランケット混合) 1 ton より発生する
高レベル廃液を処理する際の取扱い液量 (L : リットル)

対象燃料の燃焼度及び重量比

種類	燃焼度 (MWd/t)	重量比
炉心	165,000	1
軸ブランケット	16,300	0.75
径ブランケット	4,160	0.63

図2.10 TRUEX フローシート "TRUEX / JNC Salt - Free Version"
(使用済燃料 1 ton 当りの物量評価)

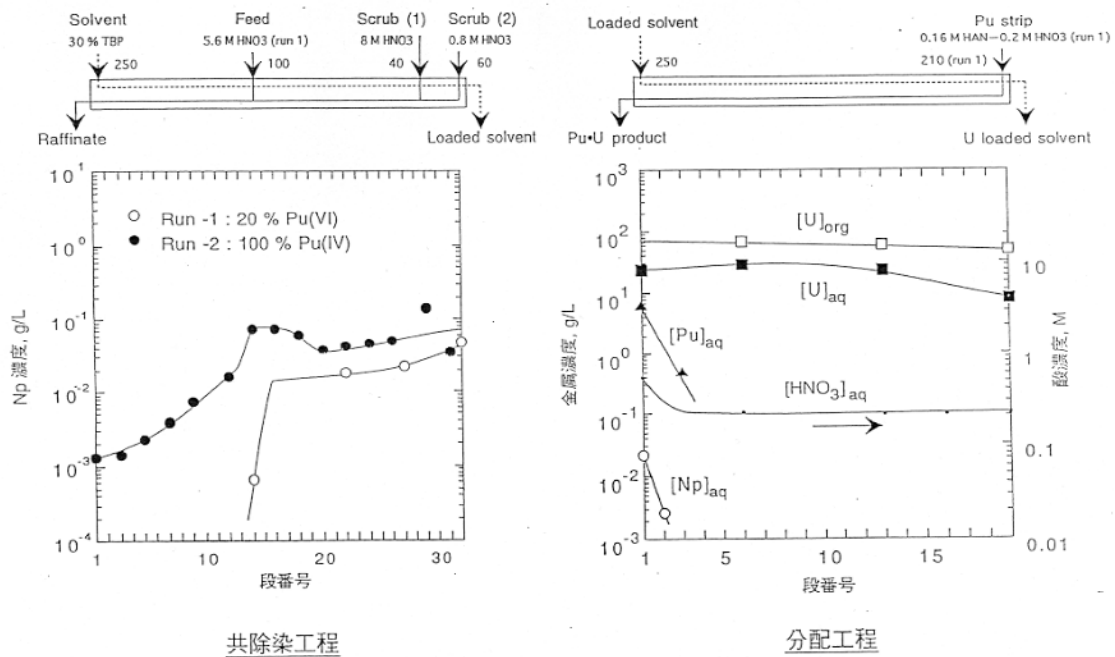


図 2.11 PUREX 法に関する向流多段抽出ホット試験での Np 回収
—20 % Pu(VI) 共存溶液の供給と HAN 還元分配工程における濃度プロファイル—

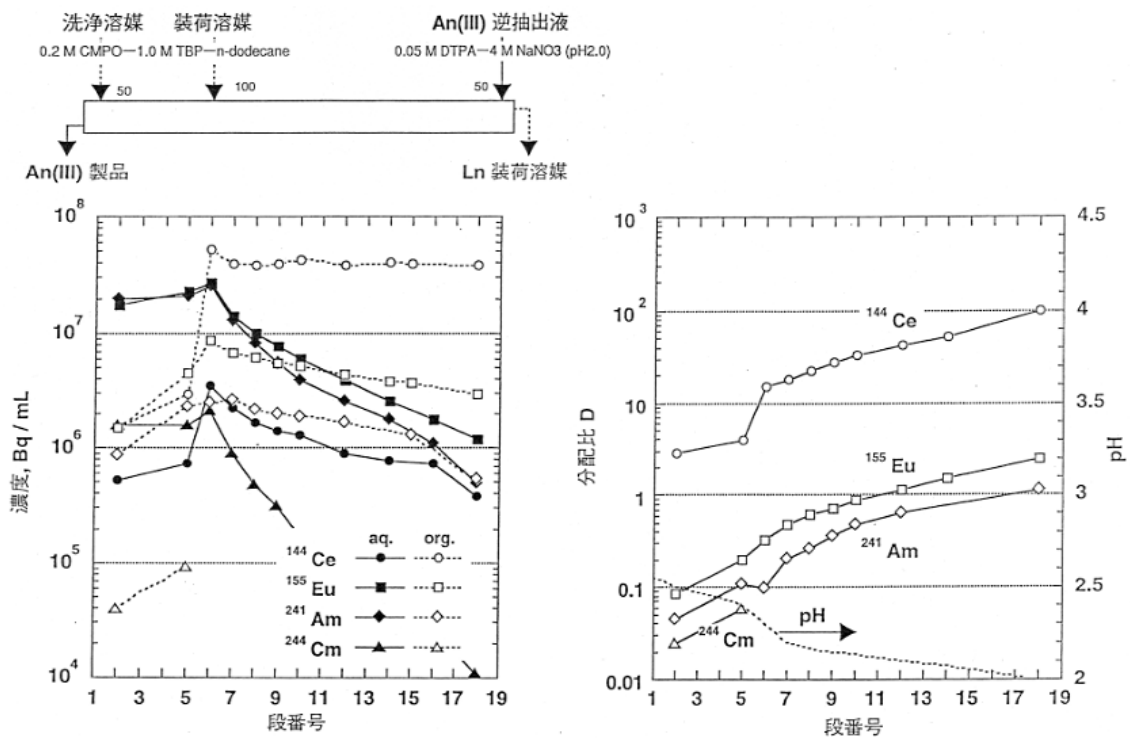


図 2.12 SETFICS 法に関する向流多段抽出ホット試験
— An(III) 逆抽出工程における主な核種の濃度・分配比プロファイル —

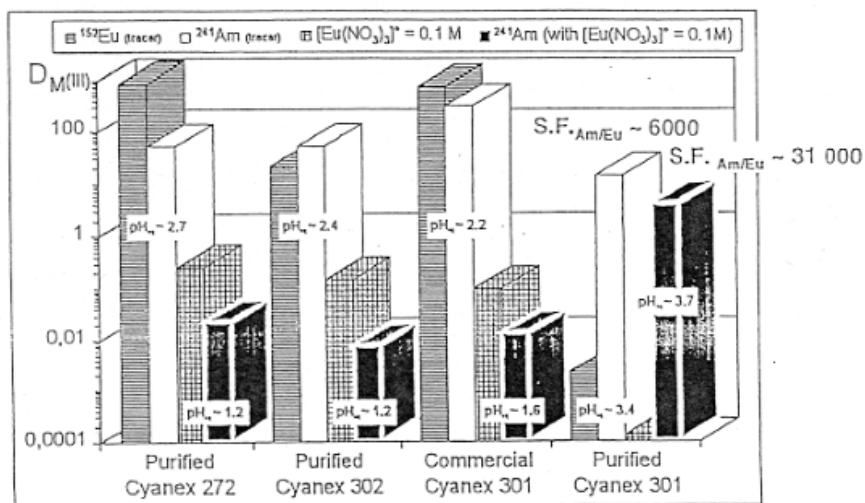
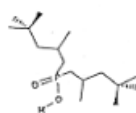
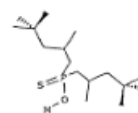


図 2.13 有機チオホスフィン酸による ^{241}Am 、 ^{152}Eu の抽出及び分離係数の例

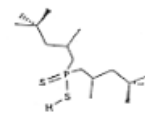
有機相条件: 0.5M in n-dodecane
水相条件: 1M NaNO_3
室温



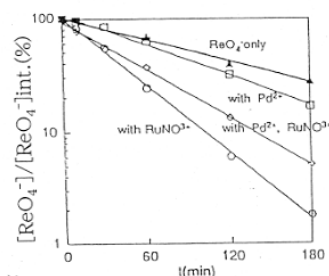
Cyanex 272



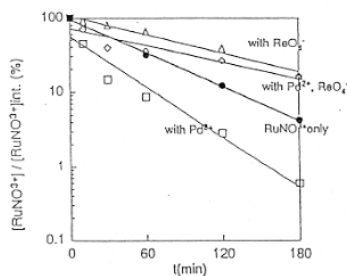
Cyanex 302



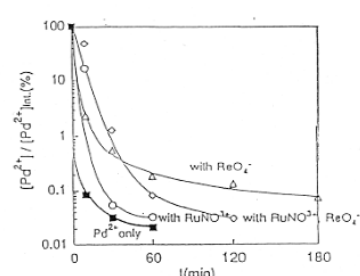
Cyanex 301



Effect of co-existing ions on electrodeposition of ReO_4^-



Effect of co-existing ions on electrodeposition of RuNO_3^+



Effect of co-existing ions on electrodeposition of Pd^{2+}

図 2.14 硝酸溶液からのレニウム、ルテニウム及びパラジウムの電解析出における共存イオン効果

$-\text{HNO}_3: 0.5 \text{ M}$, $\text{CD}_{\text{cathode}}: 500 \text{ mA/cm}^2$, Temp. 50°C (Ru: 60°C), Cathode: Pt-Ti (Re: Ti) -

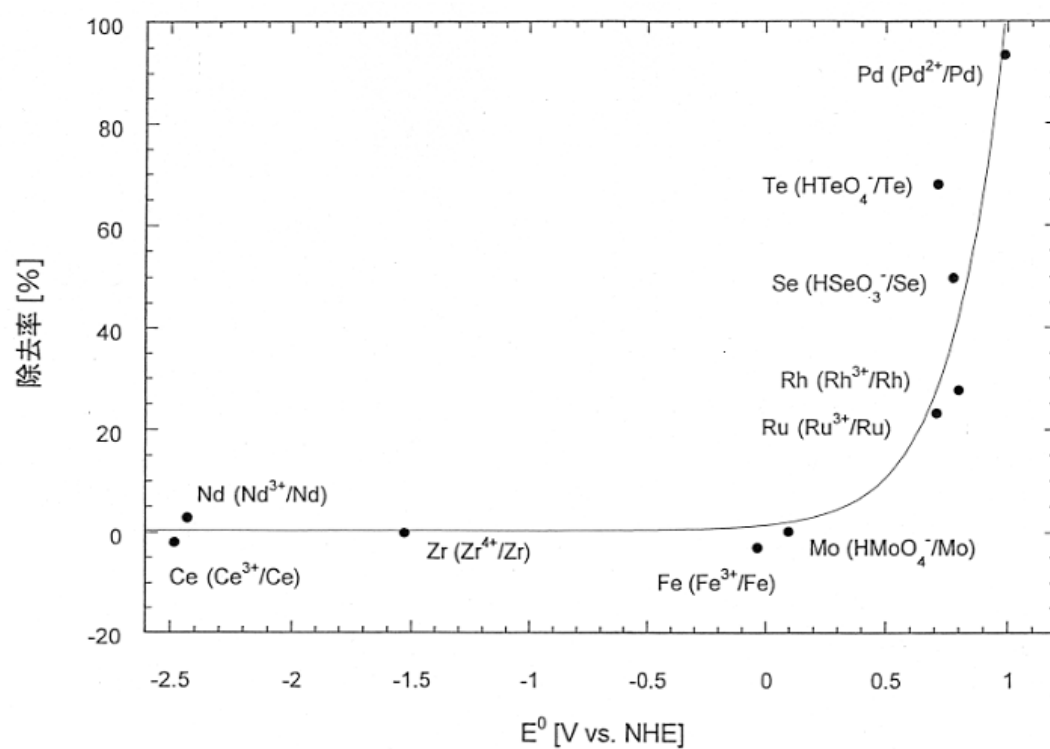


図 2.15 模擬高レベル廃液中に存在する金属の還元除去率と標準電位の関係

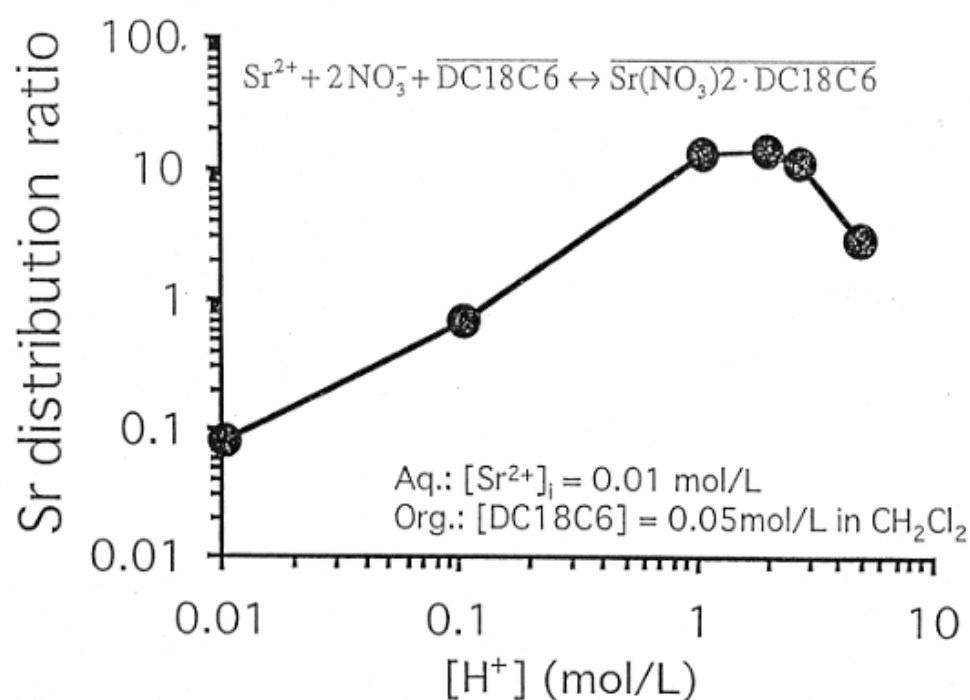
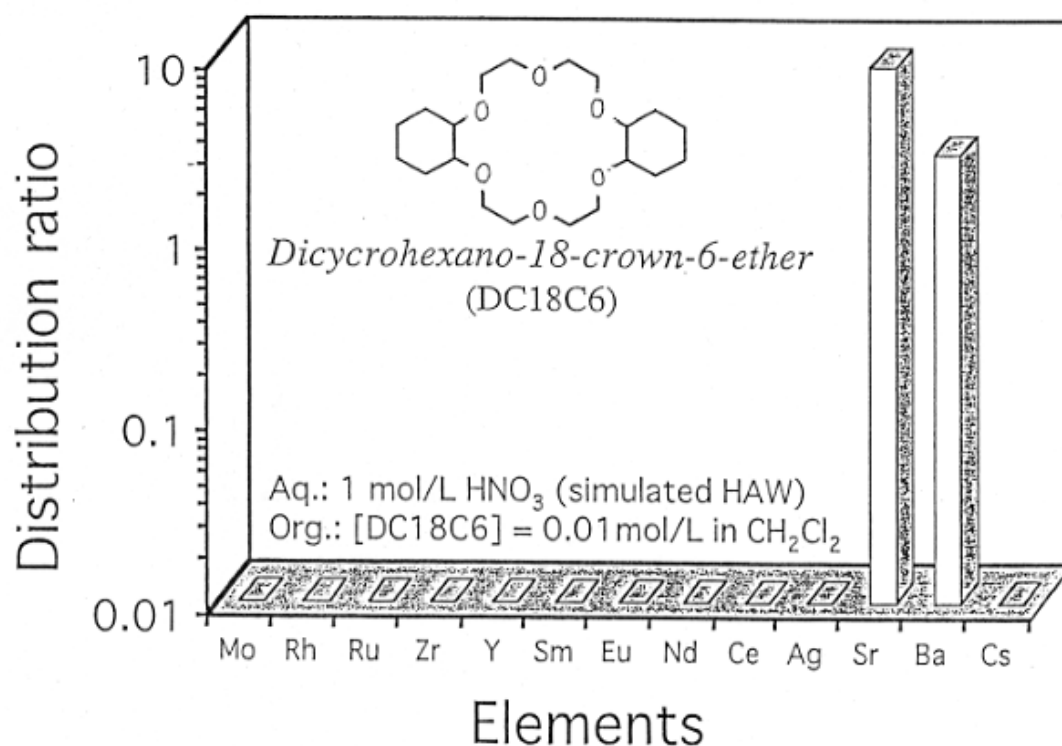


図 2.16 DC18C6のSr分配比に対する酸濃度依存性



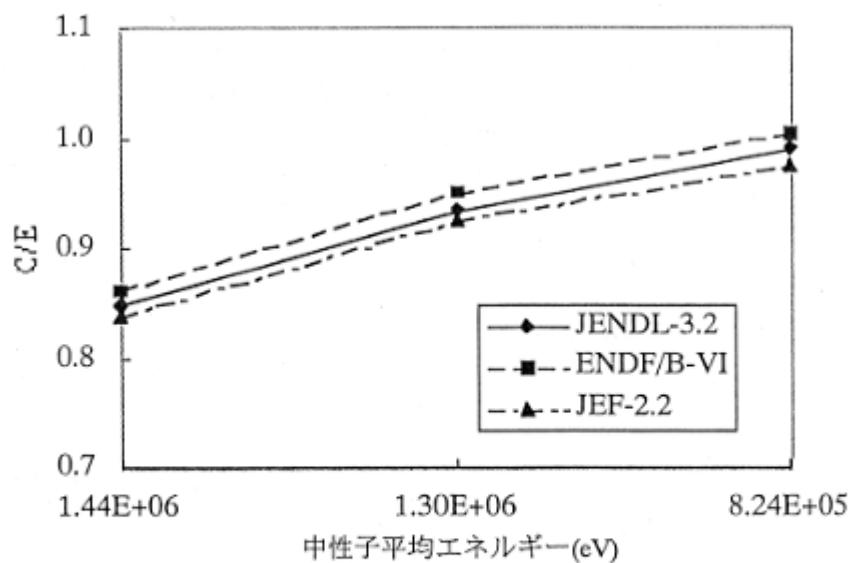


図 2.18 弥生炉における Am-241 反応率の C/E の比較

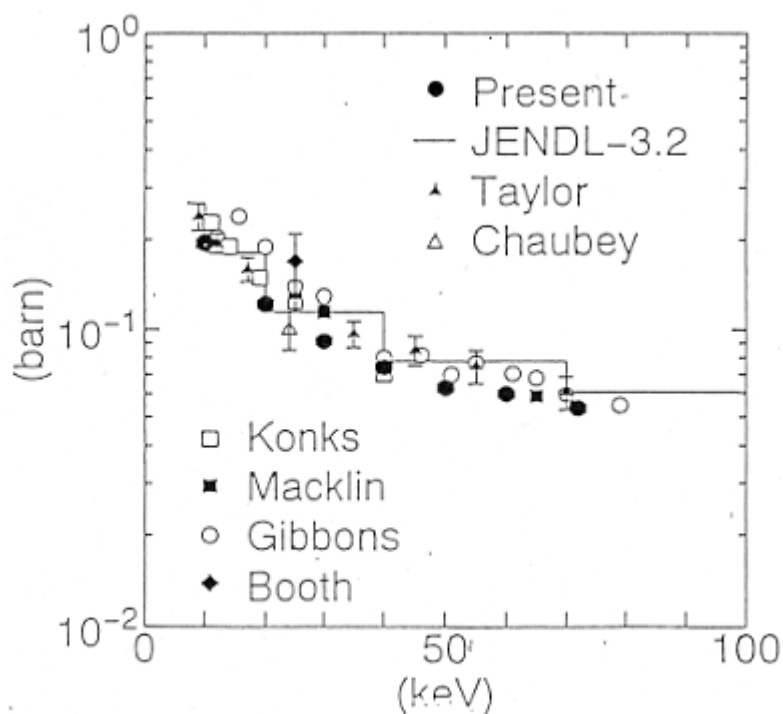


図 2.19 Pr-141 の中性子捕獲断面積の測定値と JENDL-3 評価値との比較

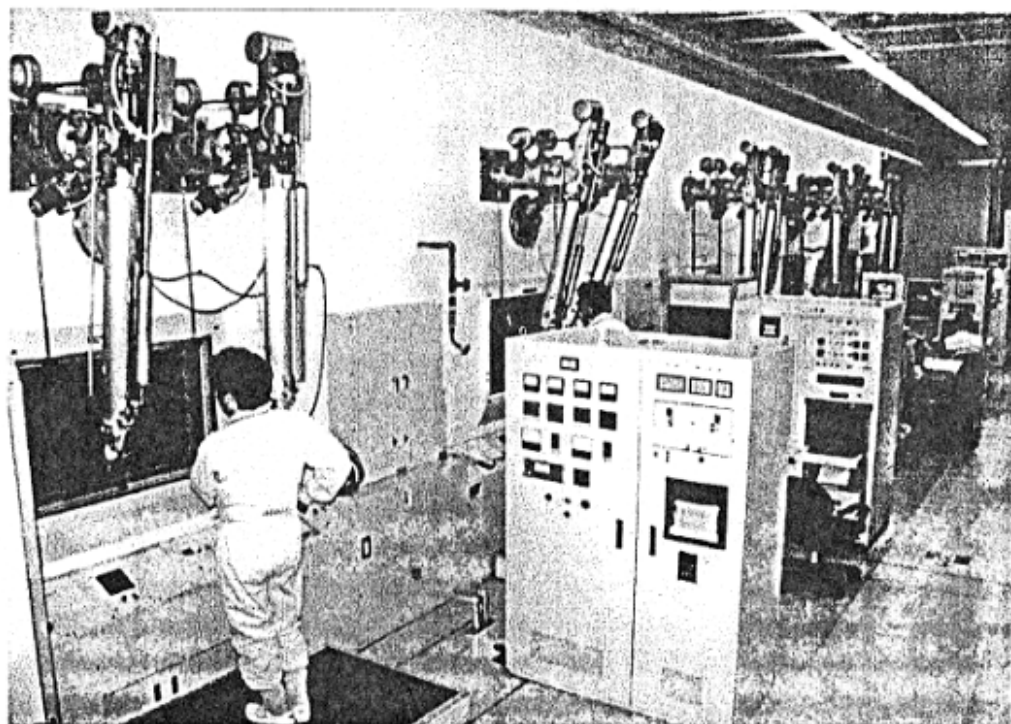
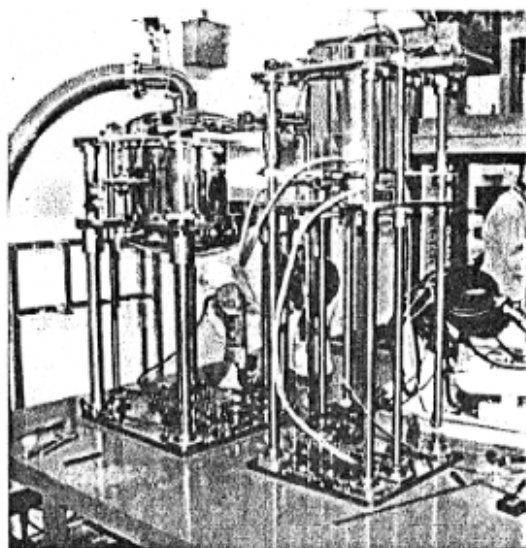
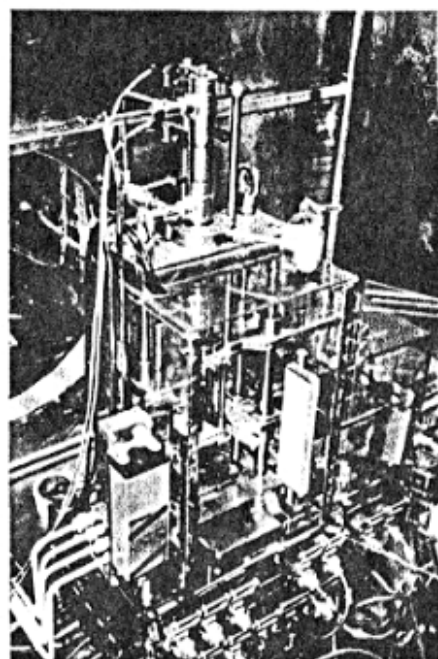


図 2.20 MA(Am)含有燃料作製のための遠隔操作制御ライン



ペレット焼結炉



ペレット成形プレス

図 2.21 遠隔操作型MA含有燃料作製設例)

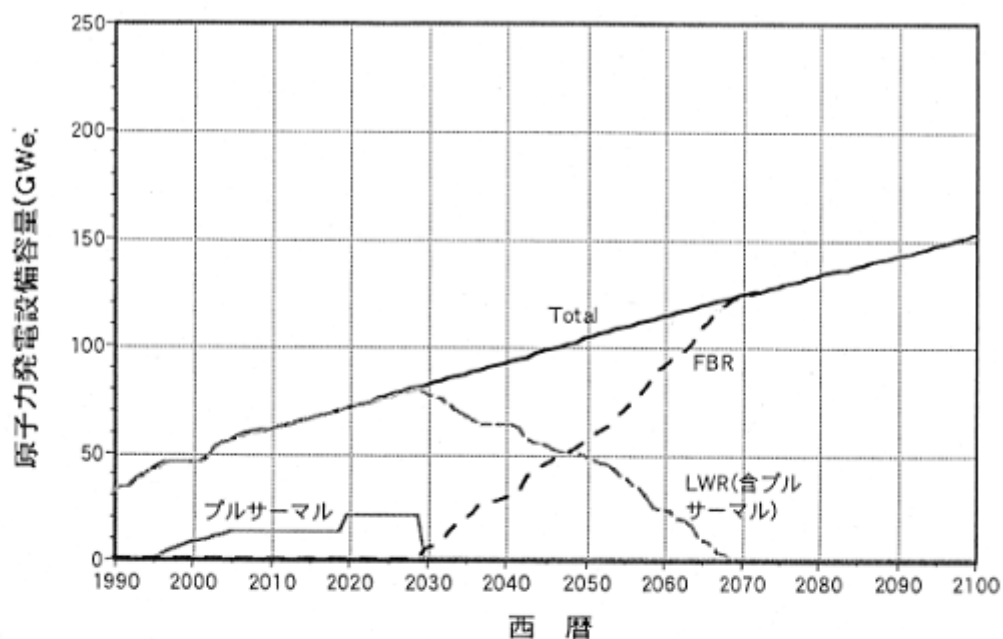


図2.22 想定した発電設備容量の推移 —100万kWe/年の伸び—

前提条件

- (1) 原子力総発電設備容量 (図8参照)
 - 1990年度 3165万kWe (実績値)
 - 2004年度 5540万kWe (平成5年度電力施設計画)
 - 2005~2100年度 100万kWe/年増大 (想定)
- (2) 原子炉設備想定
 - FBR投入は2030年に想定、投入ベースは図1参照
- (3) 原子炉寿命
 - 炉型に関係なく40年
- (4) 燃料、リサイクル関係
 - ・ FBR及び軽水炉 (プルサーマル) の燃料は混合酸化物 (MOX) で、燃焼度はFBRが炉心平均15万MWd/t、軽水炉 (プルサーマル) が4.1万MWd/t
 - ・ 濃縮ウラン軽水炉の場合は4.5万MWd/t
 - ・ MA核種はNp, Am, Cmとし、炉心燃料に均質に装荷
 - ・ MA回収は2025年に開始し、FBRへのMA装荷は2030年から開始
 - ・ MAロス率は0.1%を想定

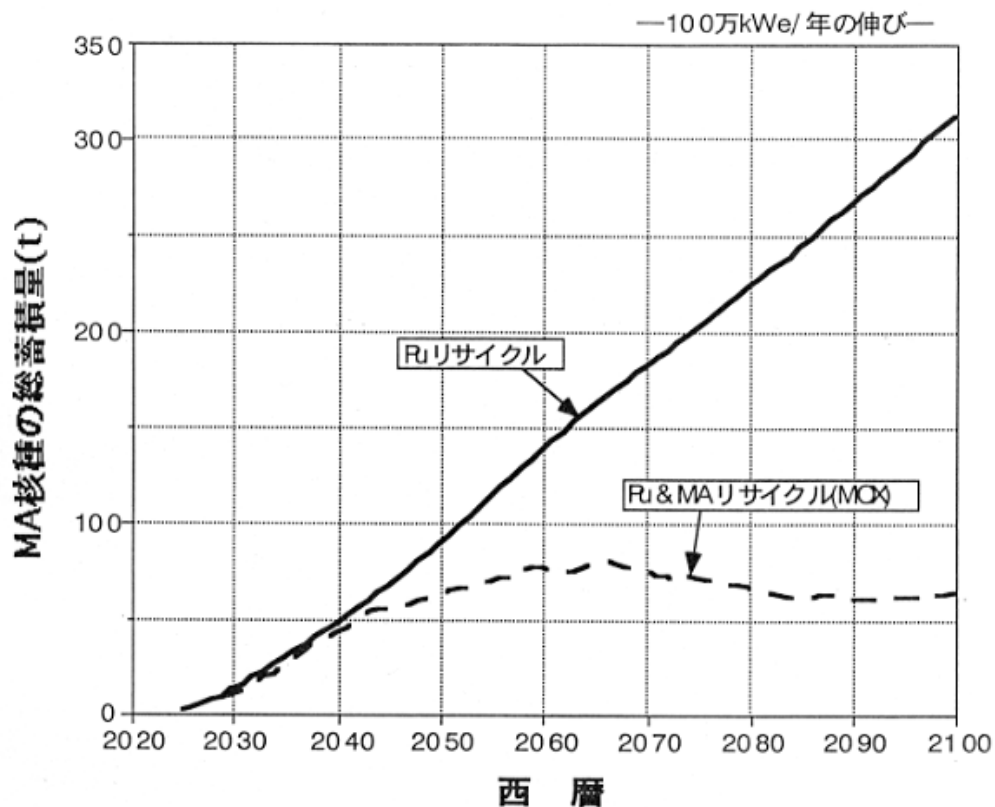


図2.23 MAリサイクルによるMA核種蓄積低減効果

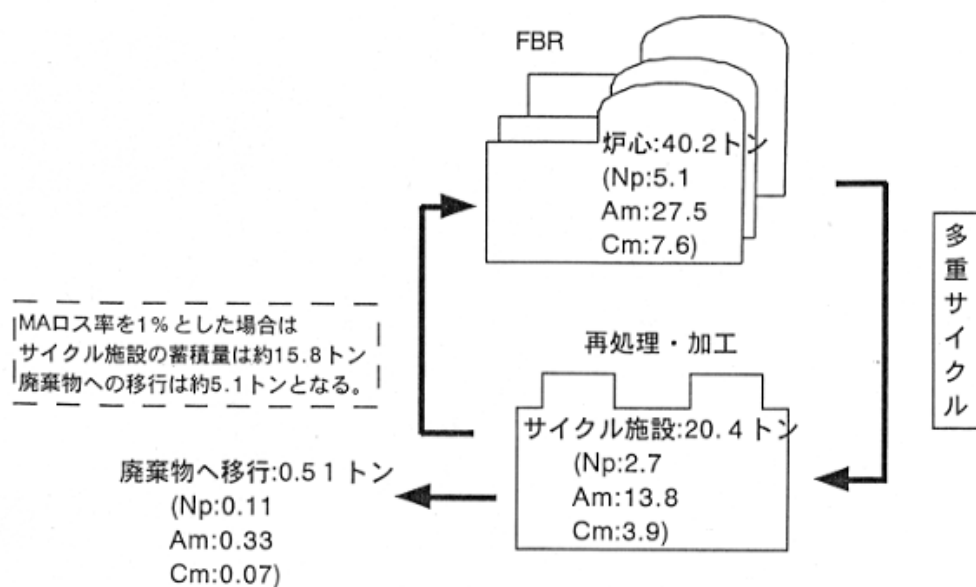


図2.24 2100年時点でのマスバランス(MAリサイクルの場合)

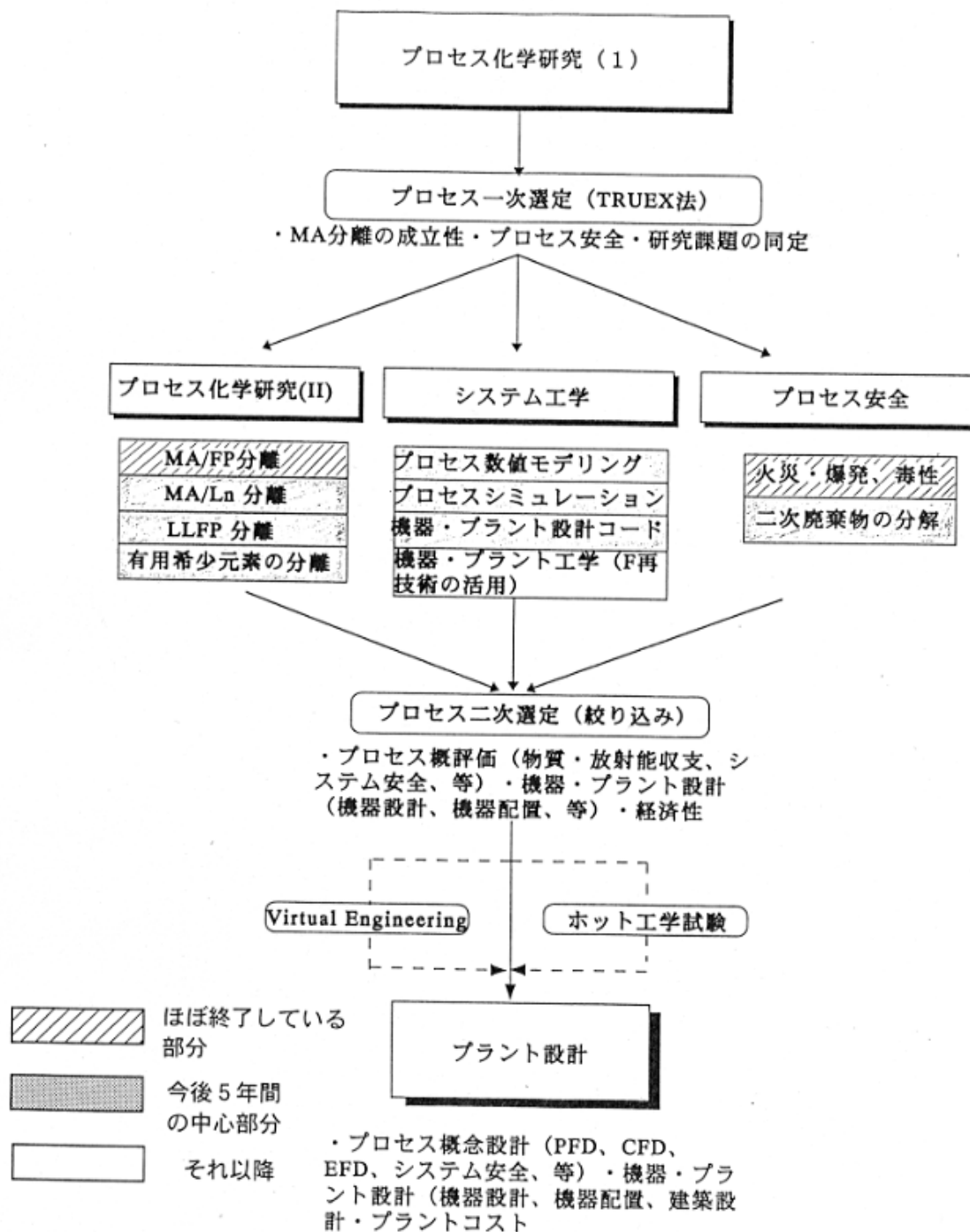


図2.25 高度化再処理・核種分離技術の達成状況と今後の展開

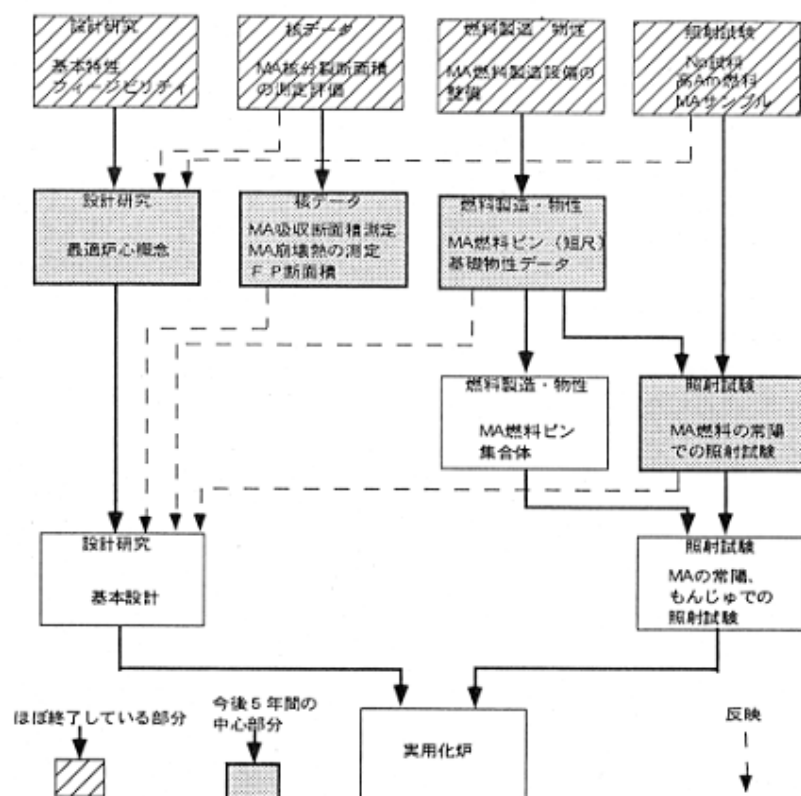


図2.26 FBRによる消滅処理技術開発の達成状況と今後の展開

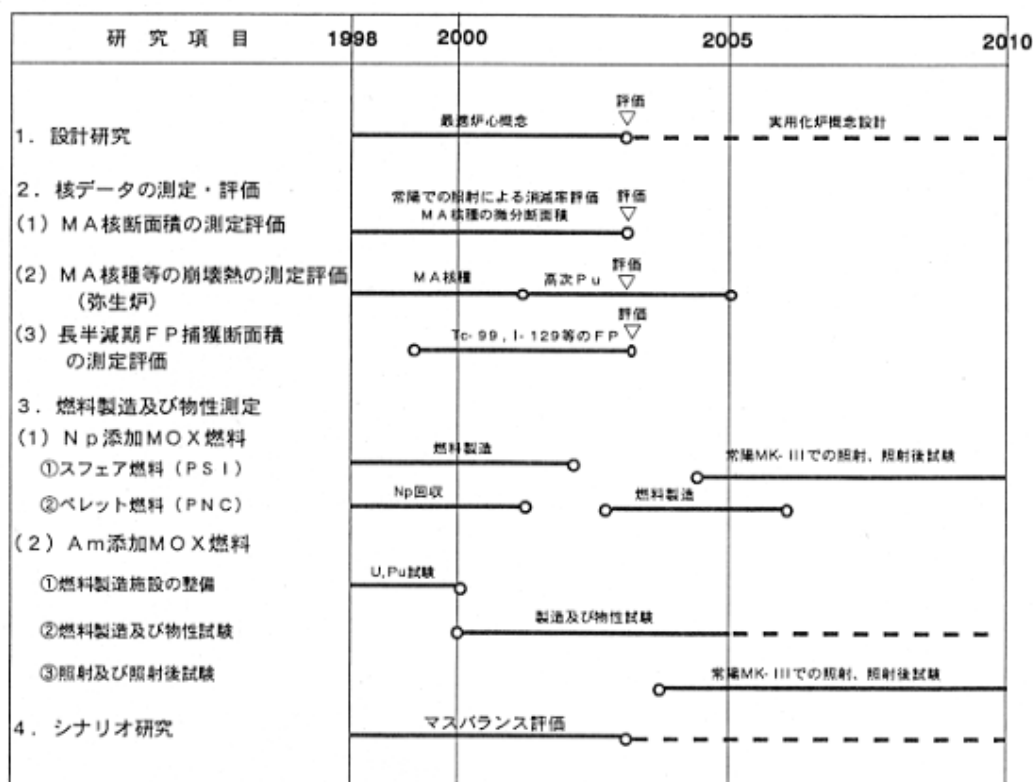


図 2.27 FBRによる消滅処理研究計画

表 2.1 サイクル機構における分離研究の総括

Elements/Nuclides	Method	R&D level					Recovery ratio (RR)/ Separation factor (SF)	Remarks
		0	1	2	3	4		
<u>Actinides</u>								
U, Pu	PUREX					X	RR > 99.5%	
MA (NP)	PUREX					X	RR ~ 40%	in Pu-products
	AD PUREX (Advanced PUREX)				X		RR ~ 100%	in Pu-product stream
MA (Am)	AD TRUEX				X		RR ≥ 99.9%	
MA (Np, Cm), U, Pu	AD TRUEX				X		RR ≥ 99.9%	as Tα
MA/Ln	SETFICS				X		SF > 100	for Am/Ce
	Cyanex301			X			SF > 6000	for Am/Eu
	TPTZ			X			SF ~ 10	for Am/Eu
	ODP			X			SF ~ 25	for Eu/Am
<u>Platinoid-FP, Tc ions</u>								
Tc	EE (Electrolytic extraction)		X				N.C (Not confirmed)	RR for Re (Tc) ~ 45%
Pd, Rh, Ru	EE		X				Pd _{RR} ~ 95% Ru _{RR} ~ 30% Rh _{RR} ~ 35%	in simulated HLLW in simulated HLLW in simulated HLLW
<u>Long-lived FP</u>								
Se-79	EE		X				N.C	Se _{RR} ~ 50% in Simulated HLLW
Zr-93	-		X				-	
Tc-99	EE						N.C	Re _{RR} (simulated Tc) ~ 45%
Pd-107	EE		X				N.C	Pd _{RR} ~ 95% in Simulated HLLW
Sn-126	-		X				-	
I-129	PUREX					X		
Cs-135	MC (Macrocycles)		X				N.C	
<u>Other FP</u>								
Sr-90	MC		X				N.C	
Cs-137	MC		X				N.C	

Level 0 ; Not researched Level 1 ; "Cold" level (nitric acid or simulated HLLW) / Labo. scale (tube test)

Level 2 ; "Tracer" level / Labo. scale (system) Level 3 ; "Hot" level (real HLLW or dissolver Soln.) / Labo. scale (system)

Level 4 ; "Commercial" level

表 2.2 典型的な除染係数 (DF) 及び分離係数 (SF) の例

- 実液試験第 3 ラン (Partial Salt-Free) -

Nuclides	DFs	SFs
^{241}Am	$1.6 \cdot 10^3$	
Total α	$1.1 \cdot 10^3$	
$^{144}\text{Ce}/^{241}\text{Am}$		0.99
$^{106}\text{Ru}/^{241}\text{Am}$		17.6
$^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$		$> 1.4 \cdot 10^4$

$$\text{DF} = \frac{[\text{Actinides}]_{\text{in Feed}} \cdot F_{\text{Feed}}}{[\text{Actinides}]_{\text{in FP fraction}} \cdot F_{\text{FP fraction}}}$$

$$\text{SF} = \frac{[\text{FP}]_{\text{in Feed}} \cdot [\text{Am}]_{\text{in MA product}}}{[\text{Am}]_{\text{in Feed}} \cdot [\text{FP}]_{\text{in MA product}}}$$

表 2.3 各種 MA 装荷法における炉心特性の比較

項目	基準(MA なし)	均質装荷	非均質装荷(例 1)	非均質装荷(2)
炉心内 MA 装荷	-	Np,Am,Cm:5%	Np,Am,Cm:49 % (集合体数:39)	Np:9.8%(均質)
ブランケット MA 装荷	-	-	-	Am,Cm:46% (集合体数:72)
Pu 富化度 (wt%)	15.4(内側) 18.6(外側)	16.6(内側) 20.1(外側)	15.4(内側) 18.6(外側)	19.0(内側) 23.4(外側)
燃焼反応度 (% $\delta k/kk$)	3.31	2.12	1.83	0.90
最大線出力 (W/cm)	420	407	439(炉心燃料) 309(MA 集合体)	406(炉心燃料) 174(MA 集合体)
Na ボイド 反応度	1.0	1.3(相対値)	1.3(相対値)	1.5(相対値)
ドブプラー係数	1.0	0.6(相対値)	0.7(相対値)	0.45(相対値)
MA 消費量 (kg/15 ヶ月)	-	172	186	529

表 2.4 希土類核種含有が炉心特性に与える影響

項目	ケース 1	ケース 2	ケース 3
希土類(wt%)	0	10	30
MA(wt%)	5	5	5
Pu 富化度 (wt%)	16.6 (内側炉心) 20.1 (外側炉心)	20.1 (内側炉心) 24.2 (外側炉心)	29.2 (内側炉心) 35.2 (外側炉心)
燃焼反応度 (% $\Delta k/kk$)	2.12	3.71	6.40
Na ボイド反応度	1.0	1.02(相対値)	-
ドブプラー係数	1.0	0.87(相対値)	-
MA 消費率(%)	10.9	10.3	9.7

表 2.5 MAリサイクルが炉心特性に与える影響

項目	基準(初期炉心)	4 回リサイクル	8 回リサイクル
MA(wt%)	5	5	5
Pu 富化度 (wt%)	17.8 (内側炉心) 21.6 (外側炉心)	17.6 (内側炉心) 21.3 (外側炉心)	16.9 (内側炉心) 20.4 (外側炉心)
燃焼反応度 (%Δk/kk')	1.6	0.4	0.5
Na ボイド反応度	1.0	0.96(相対値)	0.93(相対値)
ドップラー係数	1.0	1.08(相対値)	1.14(相対値)
MA消滅率(%)	10.3	10.5	10.1

表 2.6 MAリサイクルが発熱量及び中性子強度に与える影響

項目	基準(初期炉心)	4 回リサイクル	8 回リサイクル
発熱量 (W/g)	16.5 (1.0)	25.2 (1.5)	27.3 (1.6)
中性子源強度 (n/sec/kg)	3.2×10^7 (1.0)	6.9×10^7 (2.2)	11.1×10^7 (3.5)

表 2.7 MA添加新燃料の発熱量及び中性子強度

項目	MA 5 % 添加新燃料 (再処理前 3 年, 後 1 年冷却)		通常 MOX 燃料	
	Np+Am+Cm	Np+Am (Cm 除く)	新燃料	使用済み燃料 (1 年冷却)
発熱量 (1 集合体当たり)	1.1kW	0.15kW	0.063kW	10kW
中性子源強度 (1 集合体当たり)	$3.5 \times 10^5 \text{ n/s}$	$4.4 \times 10^5 \text{ n/s}$	$6.8 \times 10^5 \text{ n/s}$	$5.8 \times 10^5 \text{ n/s}$

表 2.8 Tc-99 の消滅特性比較

FP ピン装 荷法	集合体内ピ ン本数	FP ピン本 数	FP 材直径 (mm)	装荷量 (Kg)	消滅量 (Kg/y)	消滅率 (%/y)
分散	127	37	10	2250	41.1	1.8
分散	127	22	10	1100	27.2	2.5
Duplex	127	127	4	1101	38.1	3.5
Duplex	127	127	1.26	110	10.8	9.8
Duplex	217	217	4	1882	46.7	2.5
Duplex	217	217	1.26	188	17.1	9.1

表 2.9 経済的なMA分離SXプロセス構築に向けての課題とTRUEXの評価

[抽出剤（希釈剤）分子設計]	
◎	1. 抽出能力： $10 < D_{MA} < 100$
◎△	2. 逆抽出能力： $D_{MA} < 0.1$ （*△for Pu, Ru）
◎	3. TRU分離能力： $1,000 < DF_{\text{TRU}} / \text{多段}$
◎△	4. FP分離能力： $10,000 < \alpha_{Am/Cs} / \text{多段}$ （*△for FP _{濃縮元素} ）
△	5. LnFP分離能力： $1 = \alpha_{MA/Ln}$ （*1）
○（?）	6. 相間物質移動速度（ $\phi_{Aq} \leftrightarrow \phi_{Org}$ ）：遠心抽出器条件以内（＜数秒／段）
×	7. 二次有機廃棄物：非リン、非ハロゲン分子構造（ソルトフリー型）
○	8. 安定性：耐硝酸、耐放射線、耐熱
○	9. 相溶解度：org. in ϕ_{Aq} , aq. in ϕ_{Org}
×	10. 合成コスト
[プロセス設計]	
?	1. 低品位プロセス：目標TRU回収率？目標MA/Ln分離度？
◎	2. 均一／連続／常温プロセス、遠隔制御システム
○	3. 二次廃棄物：ソルトフリー逆抽出試薬への転換、分解・無機化
○	4. 溶媒のリサイクル：ソルトフリー溶媒再生プロセス
◎	5. 工程簡略化：酸調整工程の削減（中性二座配位型分子構造）
[安全設計]	
◎	1. 無あるいは低毒性
◎	2. 低揮発性、非爆発性（抽出剤、抽出剤劣化物、抽出錯体）
△	3. 第3相生成回避条件

◎；優、○；良、△；可（改良を要す）、×；現状では不満足
* 1；SETFICS法の附加により改良中

表 2.10 優先的に実施すべき研究項目

[プロセス設計]	
○	境界条件の明確化（分離工程の経済性／環境負荷低減効果／核特性
○	分離すべき元素、核種の意義及び優先性（TRU元素の次は何か？）
	⇒ Tc-99, I-129（地層易移動核種、長半減期核種の低減）
	⇒ Cs-135, -137, Sr-90, Ru-106（再処理Rad.廃液の統合化）
	⇒ Pd, Se, Te, Ru, Rh（希少元素リサイクル、資源化）
[MA分離]	
◎	遠心抽出器サイクルによるTRUEXプロセスのホット試験（物質移動、第3相等）
○	プロセス数値モデリング及び装置設計シミュレーションコードの開発
[MA/Ln分離]	
◎	遠心抽出器サイクルによるSETFICSプロセスのホット試験
○	“Soft&Salt-Free型”分離抽出剤の創造（長期的基礎研究）
[LLFP分離]	
◎	“Pdプロモータ”を利用する、Tc、Ru等の電解採取法ホット試験
○	大環状化合物によるCs、Sr及びTRUの分離
[廃棄物処理技術]	
○	“Agメディアータ”を利用する、二次有機廃棄物の電解酸化法の工学的成立性

◎；最重点課題、○；重点課題

Ⅲ. 電子加速器による消滅処理

1. 研究開発の現状

1) 目的

サイクル機構では「核種分離・消滅処理研究開発」の一環として、電子加速器を利用して光核反応 ((γ, n) 反応) により長寿命核分裂生成物 (F P) を消滅処理する可能性を模索している。そのため、必要となる大電流加速器の実現可能性の検討に最も重要なビーム安定化等に関する要素技術の開発⁽¹⁾、必要とするエネルギーを低減できる可能性を有する光核反応の断面積における微細構造の解明、消滅処理システム概念の構築を目標として、オメガ計画第 I 期の研究開発を行ってきた。これらの研究開発により電子加速器を用いた消滅処理の可能性が見出され実現すれば、以下の効果が期待される。

- ① 高レベル放射性廃棄物に含まれる F P のうち、半減期が長いもの、放射能が高いもの、発熱量が多いものを消滅処理し、地層処分の効率化に寄与する。(処分場や固化体のスベック緩和、処分場面積の削減、処分場閉鎖後の管理期間の短縮)
- ② 長半減期 F P の潜在的毒性を低減する。

2) 処理対象 (元素、核種、物質等)

サイクル機構では、中性子反応断面積が大きいマイナアクチニド (MA) については、高速炉での消滅が最も合理的で実現性が高いと考え、そのための研究開発を実施している。一方、F P については、原子炉での消滅が困難であることから、加速器を利用して光核反応により消滅処理する可能性を検討している。

表 1 に主な消滅処理研究対象核種を示す。光核反応による消滅処理は Sr-90, Cs-137 以外にも、Sn-126, Se-79, C-14 等の F P 核種等に適用可能である。

3) 処理プロセス・システムの概要

電子加速器による消滅処理の原理は、電子線を利用して発生させたガンマ線による (γ, n) 反応⁽²⁾により、短寿命核種または安定核種に変換するものである。図 3.1 に Cs-137 を消滅する場合の例を示す。

具体的には、電子蓄積リングと光キャビティー⁽³⁾を組み合わせ逆コンプトン散乱⁽⁴⁾により発生させたガンマ線を用いて消滅するシステムを検討している。ターゲットとしては、同位体分離を行った金属または液体が考えられる。

4) 特徴 (メリット、デメリット)

① メリット

- 原子炉 (中性子) では消滅しにくい長半減期 F P を消滅できる。
- (γ, n) 反応を用いるので副次的な放射能の発生が少ない。
- 電子加速器は、加速器技術としての基盤が整備されている⁽⁵⁾。

② デメリット

- 消滅処理に必要なエネルギーを大幅に低減する必要がある。
- 商業サイクルとは独立しているが、核種分離と同位体分離が必要となる。
- 従来にない大電流の加速器が必要となる。

5) 目標および設定根拠

① 電子加速器の開発

電子加速器を用いた光核反応による消滅処理に必要な大強度のガンマ線を発生させるためには、大電流電子加速器が必要である。具体的には、工学的規模の試験には 1 0 0 MeV—1 A 級の加速器が必要になると考えられていた。そこで、オメガ計画第 I 期の開発目標として 1 0 MeV—2 0 mA 級の加速器の要素技術開発を目標に設定した⁽⁶⁾。

② 断面積の測定

電子加速器による消滅処理に必要なエネルギーは光核反応の断面積に大きく依存しており必要なエネルギーを大幅に低減できる可能性があることから、この断面積の微細構造を解明することを目標とした。また、主要な消滅処理対象核種について、原子炉での消滅処理が困難であり電子加速器による方法でなければ消滅できないことを確認するため、中性子反応断面積の測定も行うこととした。

③ 消滅処理システムの概念検討

電子加速器による消滅処理の最も重要な課題である必要とするエネルギーの低減を検討するため、消滅処理システムの概念検討を行うことを目標とした。

6) これまでの成果

① 電子加速器の開発

大電流・高効率の電子加速器を実現するため、進行波還流型加速管、大電力・高効率クライストロン等の主要要素の試作評価を行った^{(7),(8)}。その成果に基づき、大電流電子加速器を設計、製作し、入射部試験により基本的な性能を確認した(図 3.2 参照)。また、平成 1 1 年 1 月から開始した性能確認試験により現在までに電子エネルギー：6 MeV、平均電流：0. 2 mA を達成した。これにより加速器の大電流化にある程度の技術的見通しを得た。

② 断面積の測定

- 光核反応断面積の微細構造を精度良く測定するため、高分解能・高エネルギー光子スペクトロメータを新たに開発し(図 3.3 参照)、これを用いて O-18 及び C-13 の光核反応断面積を測定した^{(9),(10),(11)}。特に、C-13 については、0. 1 % のエネルギー分解能で微細ピークを観測することに成功し、これまで 2 4 0 keV の幅が報告されていた微細構造ピークが 1 5 keV の幅で測定された(図 3.4 参照)。

- 主要な消滅処理対象核種について、精度の良い熱中性子吸収断面積が得られた（表 3.2 参照）^{(12)~(20)}。

③ 消滅処理システムの概念検討

消滅処理に必要なエネルギーを低減するために、将来の技術進展を見越した 1 つの提案として、電子蓄積リングとレーザー光を閉じこめるための光キャビティを組み合わせた消滅処理システムの概念検討を行った（図 3.5、3.6 参照）⁽²¹⁾。このシステムでは、電子対生成に損失するエネルギー等もできるだけ回収することを前提としている⁽²²⁾。これにより、制動エックス線を利用する場合に比べて、必要なエネルギーを低減できる可能性が示された。

2. 現状の分析

1) オメガ計画における位置付けとそれに対する進捗状況

中性子反応断面積が小さく原子炉では容易に消滅できない F P（Cs-137, Sr-90 等）について、光核反応を用いて消滅する可能性を模索するために、電子加速器の大電流化技術の開発、光核反応断面積の測定及び測定技術の開発等を行っている。

2) 技術的達成度

- ① 大電流電子加速器の実現性の見通しが得られた。
- ② 光核反応断面積の微細構造について、予備的な試験として、安定核種（O-18 及び C-13）を用いた測定を行い、従来の報告より鋭い微細ピークが観測された。また、この測定を通じて、光核反応断面積を 0.1 % の高いエネルギー分解能で測定する技術を開発した。しかしながら、放射性核種 Sr-90 及び Cs-137 の微細構造に関するデータを取得するには至っていない。
- ③ 電子蓄積リングと光キャビティを組み合わせた消滅処理システムの概念を示した。しかし、依然として、Sr-90 及び Cs-137 の消滅には非常に多くのエネルギーが必要である。

3. 今後の見通し及び課題

1) 実用化の見通し及びそのために解決すべき課題

サイクル機構としては、平成 11 年度に加速器の性能確認試験を行って本研究を終了する。

2) 当面重点を置くべき研究開発課題

今後、他の研究機関が本研究を継続する場合は、以下の課題が考えられる。

① 断面積の測定

長寿命 F P 核種について光核反応断面積の微細構造測定等を行うことにより、Sr-90, Cs-137 に限らない広範な消滅処理対象核種の調査・選定が必要と考えられる。

② 消滅処理システム概念の検討

単色ガンマ線発生技術、エネルギー回収技術等の進展を考慮した、消滅処理システム概念の検討が必要と考えられる。

3) 経済性についての見通し

現状の技術では、Cs-137 及び Sr-90 の消滅を経済的に成立させるシステムの構築は難しい。

4. 研究開発の進め方

1) 関連する研究分野との協力

核物理 (核データの測定、消滅理論研究)、加速器工学の分野において協力を行ってきた。

2) 国内機関との協力

① 加速器開発について、高エネルギー加速器研究機構との共同研究を行った。

② 光核反応断面積の測定について、電子技術総合研究所との共同研究を行った。

3) 国際協力

電子加速器を用いたガンマ線発生技術の開発等について、米国ブルックヘブン国立研究所との共同研究を行った。

5. 研究対象としていなかったが、核種分離・消滅処理の趣旨に照らして重要と考えられる技術

先進的核燃料サイクルにおける環境負荷低減の観点から重要な Sn-126, Se-79, C-14 等の消滅処理方法を検討する。これについては、F B Rでの消滅と関連させて検討する必要がある。

参考文献

- (1) 遠山伸一 他, "大電流電子線形加速器の開発", 動燃技報 No.88, p.19, 1993.
- (2) S. Deitrich et al, "Atlas of photoneutron cross sections obtained with monoenergetic photons", Atom. Data and Nucl. Table, 38, p.199, 1988.
- (3) J. Chen et al. ; "Development of a compact high brightness X-ray source," Nucl. Instr. and Meth., A341, p.346, 1994.
- (4) A.M. Sandorfi et al, "High Energy gamma ray beams from Compton backscattered Laser light,' IEEE Trans. Nucl. Sci.,voNS=-30, p.3083, 1983.
- (5) R.B. Neal et al., "The Stanford Two-mile Accelerator," W.A.Benjamin. Inc., 1968.
- (6) Y. Wang et al., "Design of a CW High Beam Power Electron Linac", J. Nucl. Sci. Technol. 30, p.1261, 1993.
- (7) S. Toyama et al; "High Power CW Linac in PNC,' Proc. of 1993 Particle Accelerator Conference, p.546, 1993.
- (8) K. Hirano et al; "Development of a High Power 1.2MW CW L-band Klystron,'Proc. of 1995 Particle Accelerator Conference, p.1539, 1996.
- (9) H. Harada et al., "High Energy Resolution Measurement Method of Photonuclear Reaction Cross Section", J. Nucl. Sci. Technol., 32, p.1189, 1995.
- (10) H. Harada et al., "High Resolution Measurement of Fine Structure in the

Photoabsorption Cross Section for ^{18}O ", Phys. Rev. Lett., 80, p.33, 1998.

(11) H. Harada et al., "Super High Resolution Measurement of Fine Structure in the Total Photonuclear Cross Section of ^{13}C ", J. Nucl. Sci. Technol., 35, (1998) 733.

(12) 原田秀郎 他、「放射性廃棄物核種の中性子断面積の研究」、動燃技報 No.97, p.132, 1996. (13) H. Harada et al., "Measurement of Thermal Neutron Cross Section of $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ Reaction", J. Nucl. Sci. Technol., 27, p.577, 1990.

(14) T. Sekine et al., "Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ Reaction", J. Nucl. Sci. Technol., 30, p.1099, 1993.

(15) H. Harada et al., "Measurement of the Thermal Neutron Cross Section of the $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$ Reaction", J. Nucl. Sci. Technol., 31 p.173, 1994.

(16) H. Harada et al., "Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ ", J. Nucl. Sci. Technol., 32, p.395, 1995.

(17) S. Nakamura et al., "Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the $^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I}$ Reaction", J. Nucl. Sci. Technol., 33, p.283, 1996.

(18) T. Katoh et al., "Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{135}\text{Cs}(n, \gamma)^{136}\text{Cs}$ ", J. Nucl. Sci. Technol., 34, p.431, 1997.

(19) T. Katoh et al., "Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{127}\text{I}(n, \gamma)^{128}\text{I}$ ", J. Nucl. Sci. Technol., 36, p.223, 1999.

(20) T. Katoh et al., "Measurement of Effective Neutron Cross Section of ^{134}Cs by Triple Neutron Capture Reaction Method", J. Nucl. Sci. Technol. 36, p.635, 1999.

(21) M. Fujita et al., "Application of enhanced Compton scattering in a supercavity", Nucl. Instr. and Meth., A375, p.14, 1996.

(22) T. Ferbel, "Experimental Technique in High Energy Physics", p.53, Addison-Wesley Publishing Co. Inc., 1987.

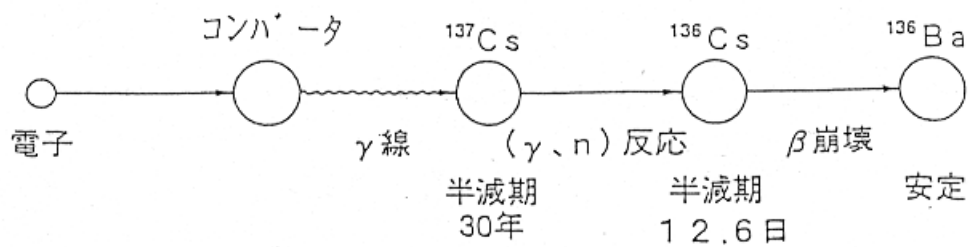


図 3.1 電子加速器による消滅処理の原理
(例 $\text{Cs}-137$ の場合)

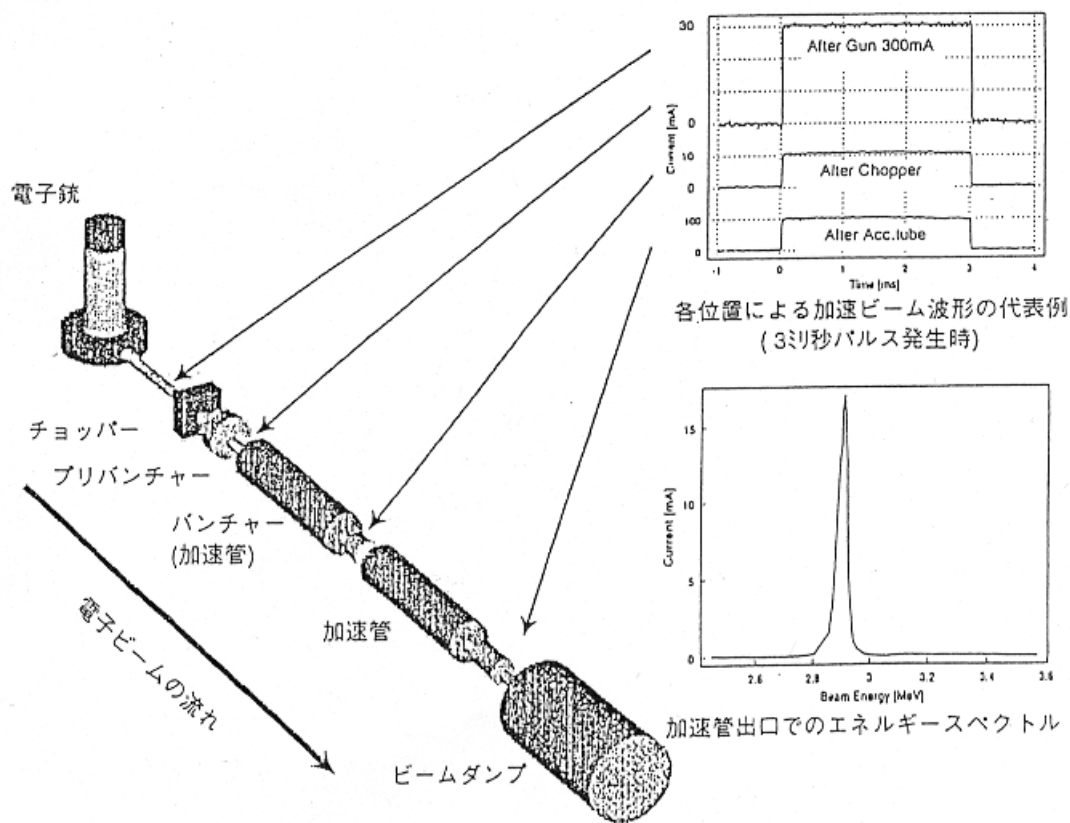


図 3.2 加速器入射部試験結果の代表例

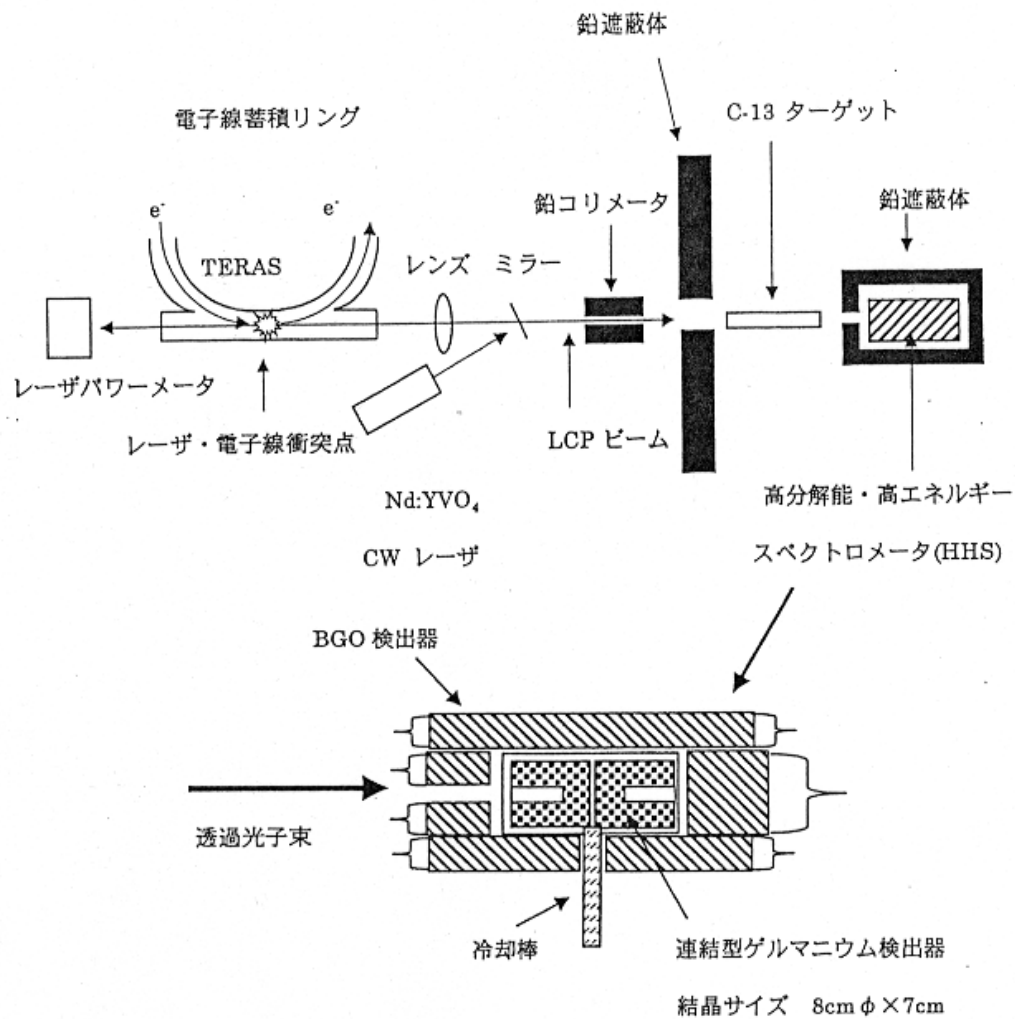


図 3.3 高分解能・高エネルギー光子スペクトロメーターを用いた光核反応断面積測定装置

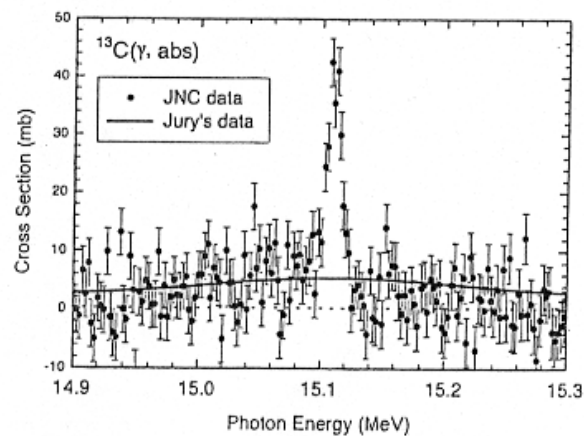


図 3.4 C-13 に対する光核反応断面積の測定結果

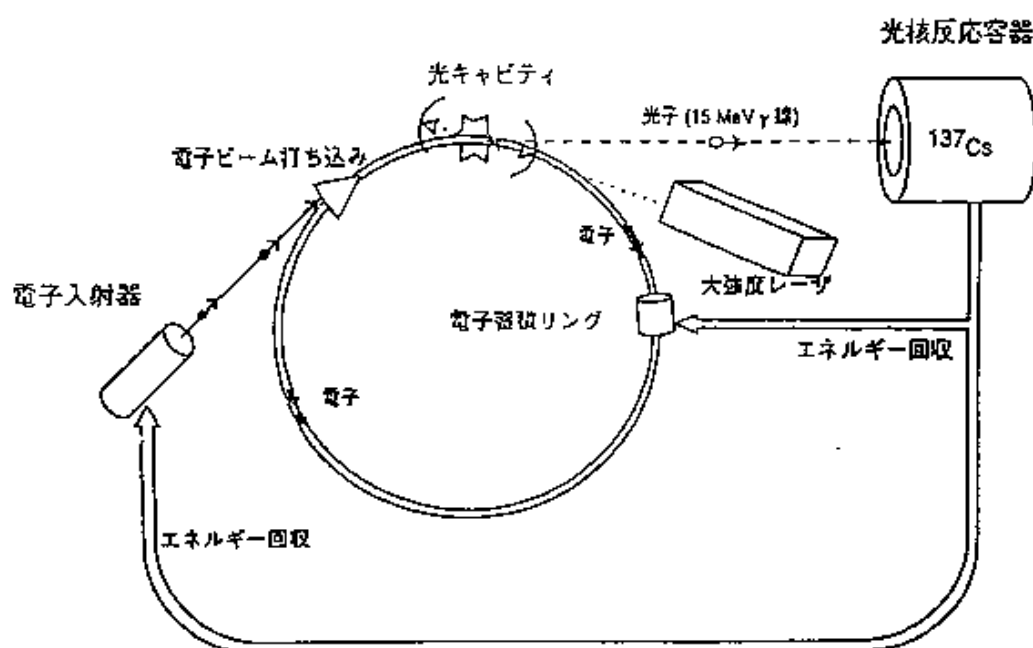


図 3.5 電子加速器を用いた消滅処理システムの概念

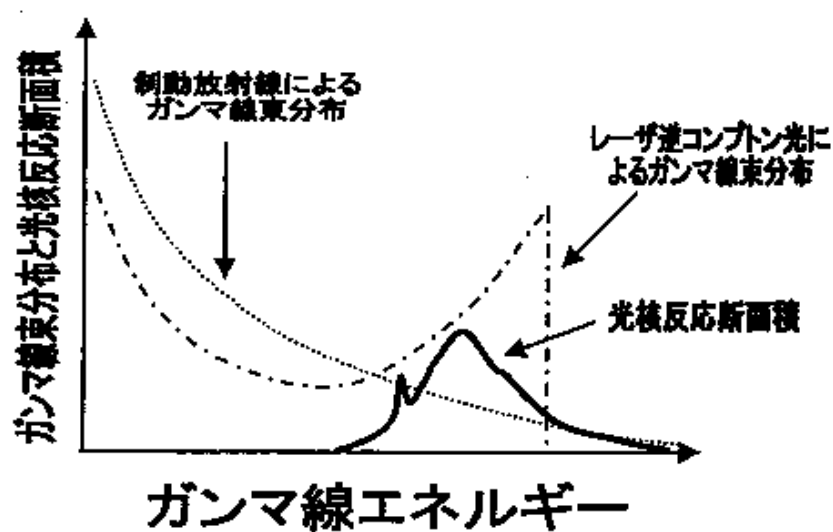


図 3.6 ガンマ線束分布と光核反応断面積

表 3.1 主な消滅処理研究対象核種

核種	半減期 (年)	中性子反応 断面積 * (b)	生成量 ** (Ci / 年) (kg / 年)	
MA				
^{237}Np	2.1×10^6	181(1.6)	11	14.4
^{241}Am	432	603(1.3)	5.0×10^3	1.46
^{243}Am	7380	79(1.1)	601	3.03
^{243}Cm	28.5	720(2.0)	55	0.01
^{244}Cm	18	15(2.0)	5.8×10^4	0.72
^{245}Cm	8500	2347(1.6)	4.1×10^5	0.03
FP				
^{90}Sr	29	0.015†	2.5×10^6	17.8
^{93}Zr	1.5×10^6	2.6	61	24.0
^{99}Tc	2.1×10^5	22.9†	433	25.5
^{107}Pd	6.5×10^6	1.8	3.6	7.0
^{129}I	1.6×10^7	30.3†	1.0	5.8
^{135}Cs	2.3×10^6	8.3†	13.5	11.7
^{137}Cs	30	0.25†	3.5×10^6	39.5
^{151}Sm	90	15000	1.1×10^4	0.4

* MAについては熱中性子に対する(n,γ)と(n,f)反応断面積の和
括弧内には1MeV中性子に対する(n,f)反応断面積を示した

** 出力1GWeの軽水炉の年間生成量

† PNC測定データ

表 3.2 主要なFP5核種に対する熱中性子吸収断面積の測定結果

核種	半減期	過去のデータ	PNCのデータ
^{137}Cs	30年	0.11 ± 0.03 b (Stupegia '60)	0.25 ± 0.02 b ('93)
^{90}Sr	29年	0.8 ± 0.5 b (Zeisel '66)	$0.0153 \pm_{-0.0042}^{+0.0013}$ b ('94)
^{99}Tc	21万年	20 ± 2 b (Lucas '77)	22.9 ± 1.3 b ('95)
^{129}I	1600万年	27 ± 2 b (Eastwood '58)	30.3 ± 1.2 b ('96)
^{135}Cs	230万年	8.7 ± 0.5 b (Baerg '58)	8.3 ± 0.3 b ('97)

IV. 光溶液化学等による分離・共抽出技術（レーザー光の応用）

1. 研究開発の現状

1) 目的

使用済み核燃料の再処理プロセスに光溶液化学技術を適用することにより、工程を簡略化させる。その結果として、廃棄物の発生量を低減化させる。

2) 処理対象（元素、核種、物質等）

硝酸溶液中の Pu、Np、U 核種である。

3) 処理プロセス・システムの概要

再処理プロセスでは、溶液中のアクチニド元素（Pu, Np, U 等）の価数制御に化学試薬が用いられているが、本システムでは、この代わりに光量子を用いる。

4) 特徴（メリット、デメリット）

光化学の再処理工程への適用には次の利点が考えられる。

- ①再処理工程で使用する化学試薬の代わりに光量子を利用することにより、2 次放射性廃棄物の発生量を増加させることなく、目的の反応を生起させることができる。また工程を簡略化できる。
- ②Np や Ru などウラン、プルトニウム製品に同伴する元素の濃度プロファイルを制御できることからウラン、プルトニウム製品の品質管理を高度化できる。
- ③化学薬品の代わりに光エネルギーを利用するので、プロセスが単純になり、装置を小型化することができ、遠隔操作のため新たな耐放射線機器や特殊な遠隔保守技術の開発の必要性が少なくなることより、経済性の向上が期待できる。
- ④光源を反応容器から距離的に引き離せることから優れた遠隔操作性が得られる。
- ⑤本技術の波及効果としては、高レベル放射性廃液から、資源物質を回収することにより、廃棄物として処分される元素量を低減できる。

5) 目標及び設定根拠

目標：光溶液化学技術の再処理への適用の可能性を評価するための基礎データを取得すること

設定根拠：アクチニドの光化学に関する研究は、1930 年代のウランに関する研究に始まり、1970 年代からは、再処理技術に応用することを目的とした研究も数多く実施されてきた。しかしながら光化学法を用いた再処理工程の新しいスキームを考え、そのプロセスの妥当性を検討するために必要な基礎データは十分ではない。

6) これまでの成果

- ①水銀ランプ光照射下で実廃液の 1/100 濃度の Pu、Np を含む硝酸溶液を用いて試験を行い、Pu、Np の光による酸化・還元反応に関する基本的な挙動に関しては、ほぼ把握することができた。
- ②上記条件に加えて、還元剤と亜硝酸分解剤共存下で試験を実施した。Pu、Np の相互

分離並びに共抽出が可能である知見を得た。(表 4.1、4.2 参照)

- ③ 光化学反応を利用したウラン酸化物粉末の溶解試験を実施した。温度、硝酸濃度を増大させることなく、ウランの溶解度を増大できることを確認した。(表 4.3 参照)

2. 現状の分析

1) オメガ計画における位置付けとそれに対する進捗状況

限定された系における基礎的なデータは取得できたものの、実プラントへの適用に関して判断できるまでのデータを取得するに至らなかった。

2) 技術的達成度

限定された系での水銀ランプ光照射に伴う硝酸溶液中の Pu、Np、U の基本的な挙動については、把握した。

3. 今後の見通し及び課題

平成9年度をもって、研究を中止したが、今後の見通し及び課題については以下のように考えられる。

1) 実用化の見通し及びそのために解決すべき課題

サイズをスケールアップした試験の実施、工程設備、保守条件の検討、さらには臨界管理及び安全対策等

2) 当面重点を置くべき研究開発課題

各元素について光吸収スペクトルに対応した励起状態の化学反応性の評価、並びに励起状態の寿命、酸化還元反応の速度定数の測定

3) 経済性についての見通し

基礎研究の段階であり、経済性評価を行うことができるだけのデータが取得できていないので、現段階において将来的な見通しについて検討することは困難である。

4. 研究開発の進め方

1) 関連する研究分野との協力

なし

2) 国内研究機関との協力

平成元年度 東京大学 工学部 原子力工学科

平成4年度 8年度 東工大 原子炉工学研究所

と委託研究及び共同研究を実施した。

平成元年 2年 客員研究員招聘(東京大学 工学部)

3) 国際協力

なし

5. 研究開発対象としていなかったが、核種分離・消滅処理の趣旨に照らして重要と考えられる技術

- 光を利用した高レベル放射性廃液からの元素分離技術
- 光を利用した再処理プロセス分析技術開発

参考文献

- (1) Y.Wada, et al., Radiochem, Acta, 68, 223(1995).
 - (2) Y.Wada, et al., Radiochem, Acta, 72, 83(1996).
 - (3) Y.Wada, et al., Radiochem, Acta, 72, 195(1996).
 - (4) Y.Wada, et al., J. Nucl. Sci. Technol., 31, 700(1994).
 - (5) Y.Wada, et al., J. Nucl. Sci. Technol., 32, 1018(1995).
-

表 4.1 光照射-溶媒抽出同時操作による Pu と Np の相互分離 (4) (5)

(a) Abundances of Pu valences in both phases vs. operation time

		Abundance (%)			
	Valence	Just before operation	Time of simultaneous ope. of irra. and ext.		
			15min	30min	50min
Aq.	Pu(III)	70.4	3.4	1.5	0.4
	Pu(IV)	29.6	8.1	4.7	3.0
	Pu(VI)	<0.1	4.7	7.7	9.6
Org.	Pu(III)		<0.1	<0.1	<0.1
	Pu(IV)	—	71.5	45.8	26.9
	Pu(VI)		12.2	40.4	60.2
Gross Pu in Org.		<0.1	83.7	86.2	87.1
In Aq.		100.0	16.3	13.9	13.0
Org. / Aq.		—	5.13	6.10	6.70

(b) Abundances of Np valences in both phases vs. operation time

		Abundance (%)			
	Valence	Just before operation	Time of simultaneous ope. of irra. and ext.		
			15min	30min	50min
Aq.	Np(IV)	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
	Np(V)	100.0	99.1	98.5	99.8
	Np(VI)	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
Org.	Np(IV)		<0.1	<0.1	<0.1
	Np(V)	—	0.9	1.52	0.2
	Np(VI)		<0.1	<0.1	<0.1
Gross Np in Org.		<0.1	0.9	1.52	0.2
In Aq.		100.0	99.1	98.5	99.8
Org. / Aq.		—	0.009	0.015	0.002

Pu : 1.0×10^{-3} M

HNO₃ : 2.0M

Np : 1.0×10^{-3} M

Temp. : 20°C

HAN : 1.0×10^{-2} M

Irra. Int. : 0.15 W/cm^2

HDZ : 1.0×10^{-2} M

表 4.2 光原子価調整後の溶媒抽出操作による Pu と Np の共抽出 ⁽³⁾

(a) Abundances of Pu valences in both phases vs. operation time

	Valence	Abundance(%)					
		Photochemical val. adj. time				Solv. ext. time	
		0 min	10 min	15 min	20 min	10 min	20 min
Aq.	Pu(III)	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
	Pu(IV)	82.3	65.3	58.9	53.2	3.5	3.6
	Pu(VI)	17.7	34.7	41.1	46.8	7.9	8.1
Org.	Pu(III)					<0.1	<0.1
	Pu(IV)			—		36.1	36.8
	Pu(VI)					52.5	51.5
Gross Pu in Org.						88.6	88.3
in Aq.						11.4	11.7
Org. / Aq.				—		7.77	7.55

(b) Abundances of Np valences in both phases vs. operation time

	Valence	Abundance(%)					
		Photochemical val. adj. time				Solv. ext. time	
		0 min	10 min	15 min	20 min	10 min	20 min
Aq.	Np(IV)	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
	Np(V)	100.0	7.0	0.3	<0.1	7.7	7.7
	Np(VI)	<0.1	93.0	99.7	100.0	<0.1	<0.1
Org.	Np(IV)					<0.1	<0.1
	Np(V)			—		<0.1	<0.1
	Np(VI)					92.3	92.3
Gross Np in Org.						92.3	92.3
in Aq.						7.7	7.7
Org. / Aq.				—		12.0	12.0

Pu : 1.0×10^{-3} M

HNO₃ : 3.0M

Np : 1.0×10^{-3} M

Temp. of sol. : 20°C

Urea : 8.0×10^{-2} M

Irra. Int. : 1.45 W/cm²

表 4.3 光照射率による光化学溶解速度の変化 ⁽²⁾

(a) UO_2 : 10mg

Irra. Int. (W/cm^2)	Disso. rate coef. ($\text{mol} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{min}^{-1}$)	Ratio to dark. rate coef.	Time for complete disso. (min.)
1.3	3.50×10^{-6}	14.4	40
0.7	1.05×10^{-6}	4.3	78
0.0	2.43×10^{-7}	-	350

Acidity : 3M HNO_3 , Temp. of sol. : 20°C

(a) UO_2 : 100mg

Irra. Int. (W/cm^2)	Disso. rate coef. ($\text{mol} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{min}^{-1}$)	Ratio to dark. rate coef.	Time for complete disso. (min.)
1.3	9.35×10^{-6}	8.9	14
0.5	3.00×10^{-6}	2.9	40
0.0	1.05×10^{-6}	-	60

Acidity : 3M HNO_3 , Temp. of sol. : 20°C

V. 超高温分離処理

1. 研究開発の現状

1) 目的

高レベル廃棄物（高レベル廃液）を分別処理し、有用元素の利用、廃棄物となる物の高減容化を図るものである。

2) 処理対象

- 核種分離処理のスタートとなる廃棄物
通常の再処理工場で発生する高レベル廃液が処理の対象である。
- 分離する元素・元素群・核種
セシウム、白金族元素、アクチニドをそれぞれに同伴する元素と共に分離する。

3) 処理プロセス・システムの概要

- 分離プロセスのキーとなる化学操作
高レベル廃棄物に対する非鉄冶金の手法の適用である。セシウムは沸点が比較的低いので、気化させて分離する。白金族元素は還元されやすいので、還元し金属として分離する。結果として分離されるアクチニド等はそのまま固化体とする。
- プロセスで用いる溶媒等の主な化学物質
少量の窒化チタンのみである。溶媒・熔融塩等は使用しない。二次廃棄物は発生しない。
- 分離プロセスのフロー（図 5.1 参照）

高レベル廃液

↓

仮焼

高レベル廃液を加熱し成分を酸化物にする

↓

Cs 気化分離

酸化物を加熱し、Cs を気化させ分離する分離した Cs は放射線源として利用する。

↓

白金族元素還元

少量の窒化チタンで白金族元素を還元し合金インゴットにする。

↓

金属・酸化物分離

全体を熔融し、白金族元素合金は下層、酸化物は上層の二層に分離する。

↓

高減容固化体

酸化物はガラス固化体の十分の一量の固化体とし、処分、または、消滅処理に供する。

4) 特徴（メリット・デメリット）

- 核種分離・消滅処理システム全体のメリット・デメリット

メリットは、最も単純なプロセスで、有用元素、高発熱核種、長寿命核種、アクチニドを相互分離し、有効利用、減衰処理、及び、高レベル廃棄物を最小の貯蔵体・処分体に出ることである。デメリットは、分離技術に共通することであるが、現行の再処理・ガラス固化に比べ、手数が増えることである。が、本技術はこれを最小限に抑えている。

- 核種分離システムのメリット・デメリット

メリットは、最小限の添加物で目的の核種分離を達成したことである。新規な抽出剤、新規な溶媒（溶融塩）を使用しないため、新規な二次廃棄物を発生させない。新規な二次廃棄物は、その処理・貯蔵・処分に多大な研究開発を要する。それらの処理・貯蔵・処分施設建設と維持管理が核燃料サイクルのコストアップを招く。また、抽出溶媒、溶融塩等を使用しないため、処理において小規模の装置で目的が達成される。

デメリットはシステムとしてはない。

- 個々の分離プロセスのメリット・デメリット

メリットは、仮焼、還元、溶融、分離の各プロセス技術は、原子力及び非鉄産業において実用化されており、開発リスクがなく、開発コストが低いことである。

デメリットは溶融・分離プロセスにおける装置の開発が必要なことである。フランス、ロシアで開発されている高周波誘導水冷坩堝方式（コールドクルーシブル）が採用可能であるが、原子力産業への適用は実証されていない（ガラス固化等に関するコールド工学試験は、フランス、ロシアで実施されている）。

5) 目標及び設定根拠

- 分離対象元素・核種に付いての分離目標

Csについては、90%の分離率が目標である。Cs(Cs-Ba)は高レベル廃液の発熱量の40%を占める。この90%の除去により、処分体の発熱量は大幅に低減される。

白金族元素についても90%の分離率が目標である。

分離率90%の根拠は、分離率を99%に上げて技術面・経済面での効果はさほど向上せず、処理コスト面でのデメリットが増すからである。

- メリットの増進に関する目標

還元剤にチタン化合物を用いているが、これを炭素にするとストロンチウム(Sr)が還元・気化分離出来る。これが実現できれば、地層処分費用の大幅な削減が実現する。

- デメリットの克服に向けた目標

コールドクルーシブルの適用を実現することである。

- 目標の位置づけ（最終目標、中間目標、努力目標、実現可能な目標等）

コールドクルーシブルの適用が実現すれば、目標は全て達成できる。

- 目標の合理的な設定根拠

コールドクルーシブルは、2000℃以上の温度で試験されている。従って、本方法への適用が確認できれば、技術的に未確認な点は解消する。

6) これまでの成果

- ① 模擬高レベル廃液を用い、Cs の気化分離、白金族元素の還元・分離、高減容固化体の成立性を確認した。後者については、kg 規模での実験を行った。
- ② Cs の気化については、仮焼体の 1000℃での加熱処理により、1 時間で 90 % 以上の Cs が気化分離することを確認した（図 5.2 参照）⁽¹⁾。
- ③ 白金族元素の回収については、Ru、Rh、Pd 共、90 % 以上 分離・回収出来ることを確認した（図 5.3、図 5.4 参照）⁽¹⁾。
- ④ アクチニド等は（希土類等を含む）は高減容固化体を形成することを確認した。その発生数は、800 トン再処理工場のガラス固化体発生量（年間約 1000 本）に比し、約 100 本である。これは、高減容固化体の、密度、熱伝導率、膨張率、高温 X 線回折等の測定に基づき、確認したものである。

2. 現状の分析

1) オメガ計画における位置づけとそれに対する進捗状況

高レベル廃棄物中に存在する有用金属の回収技術の基礎的研究として位置づけられ、基礎的研究の段階はクリアした。

- 当該技術に関するオメガ計画の記述
高レベル廃棄物中に存在する有用金属の回収技術の基礎的研究として記述されている。
- 当該技術に関する研究開発と見直しの経緯
上述のように日本独自の技術として成果は確認し、次のステップとして工学技術開発の段階に達した。

2) 技術的到達度

- 当該技術の研究開発段階のクリア状況
基礎的研究段階はクリアした。作業仮說的に考えた化学反応は（Cs の気化、白金族元素の還元、アクチニド等の酸化物の溶融）全て実証した。
- 研究開発の全体計画と現在の段階の図示
技術の基礎的実証 1990 年? bP 998 年
現在の段階 1999 年 中断

3. 今後の見通し及び課題

1) 実用化の見通し、及び、そのために解決すべき課題

- 技術的到達度を踏まえた実用化までの道筋
本技術の基礎的実証はほぼ完成した。次ステップは実規模大の装置による実験で

の工学的実証である。実規模大装置は、本技術は添加物は最小であるため、取扱物質量が少なく、従来の工学試験装置と同等規模である。

- 実用化までの技術的課題

Cs の捕集技術と、白金族元素／アクチニド（希土類等を含む）の溶融物の分離手法の確立が課題である。

2) 当面重点をおくべき研究開発課題

還元・溶融分離を工学的に実証するためのコールドクルーシブルの実用化である。

3) 経済性についての見通し

貯蔵・処分費用が大幅に低減できると予想される。

炭素還元を実証し、Sr 分離を実現することにより、処分費用を更に大幅に低減出来る。

Sr を分離出来れば、処分施設の設計において、岩体の温度制御課題から免れるからである。

即ち、地下施設の大幅な縮小が可能となる。

4. 研究開発の進め方

1) 関連する研究分野との協力

- 研究分野・項目

高レベル廃棄物管理の研究開発分野

高レベル廃棄物の炭素還元の研究を共同して実施する。

コールドクルーシブル研究開発分野

金属・酸化物を同時に溶融し、分離するコールドクルーシブルを開発する。

これは、ロシア、フランスとの共同開発が必要である。

- 協力の現状・形態

大学との共同研究、企業への委託実験を行ってきた。しかし、予算中断のため協力関係は中断している。

2) 国内機関との協力

上述と同じである。

3) 国際協力

- 研究分野・項目

高レベル廃棄物管理の研究開発分野

コールドクルーシブル研究開発分野

- 協力の現状・形態

フランスのマルクール、ドイツのカールスルーエ、米国のアイダホ、ロシアの研究所、豪州の研究所と国際会議等を通じて情報交換を行っている。

組織的な国際協力関係はない。

5. 研究開発対象としていなかったがオメガ計画の主旨に照らして重要と考えられる技術

Cs-137、Sr-90 の減衰処理のための長期貯蔵技術の開発が重要である。

参考文献

- (1) 堀江水明 ; 「最近の高レベル廃棄物処理研究・開発動向」
PNC TN8420 94-019, p.3 (1994)
-

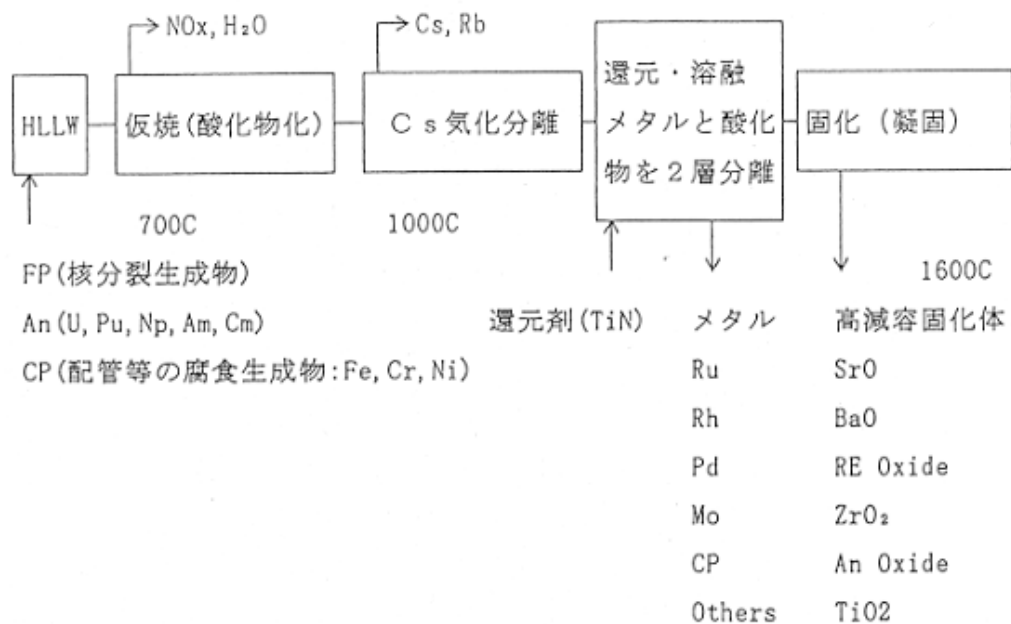


図 5.1 超高温処理法プロセス

〔高レベル廃液を加熱処理し、FP硝酸塩等を酸化物にし、この酸化物を加熱処理してCsを気化分離し、FP中の白金族元素等を酸化チタンで還元し、合金とし、スラグとなるアクチニドを含む酸化物は高減容固化体とする〕

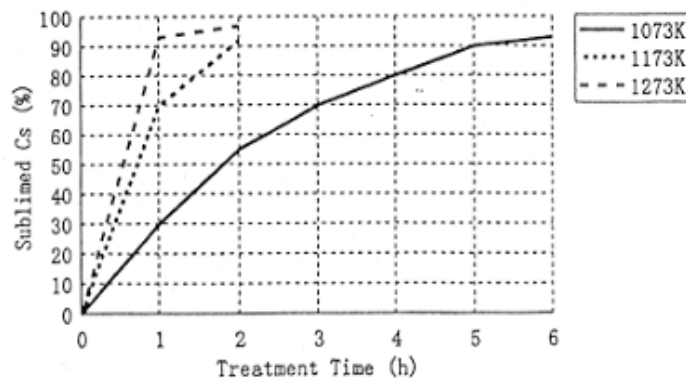


図 5.2 仮焼体加熱処理によるCs気化分離

〔仮焼体の1000°C、1hでの加熱処理でCsは90%気化分離する〕

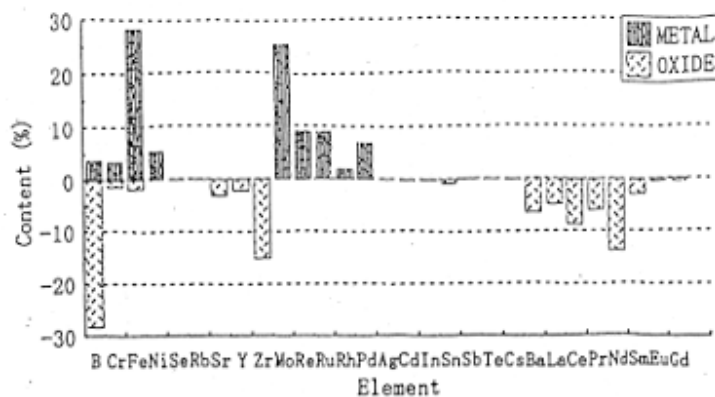


図 5.3 メタル(白金族元素合金)、酸化物(高減容固化体)の組成

[基本的に原子番号の小なるF Pはメタルに、大なるF Pは酸化物を形成する]

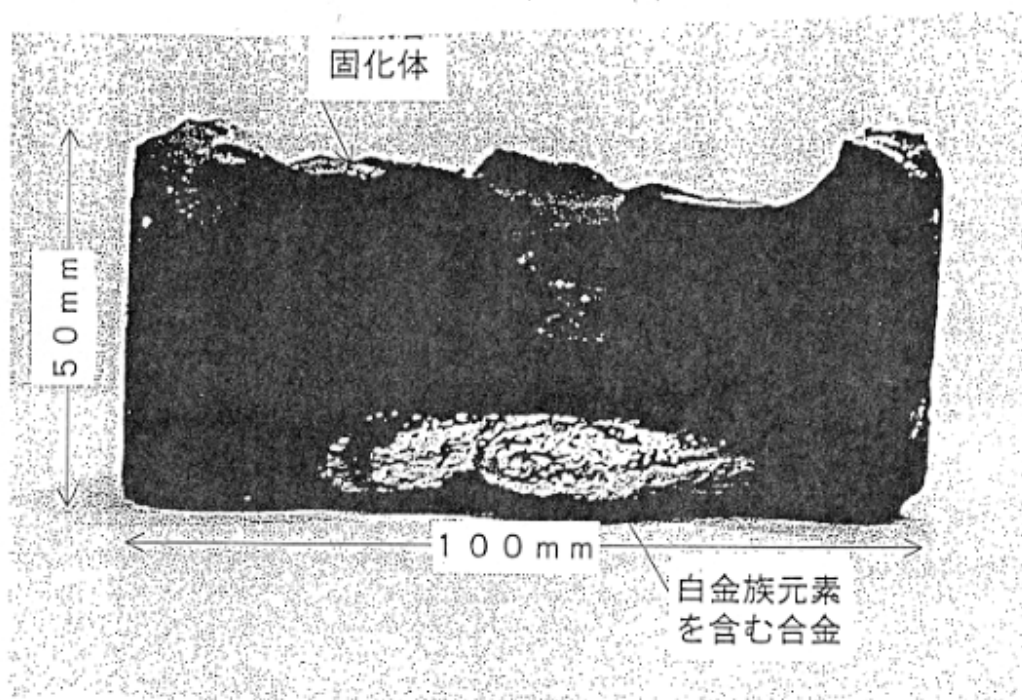


図 5.4 超高温処理法による白金族元素合金と高減容固化体
使用済み燃料 50kg 相当分

VI. 不溶解残渣からの有用金属回収技術及び分離元素・核種の有効利用技術

1. 研究開発の現状

1) 目的

再処理工程で分離される高レベル放射性廃液（主として不溶解残渣）を新たな資源として利用するために、その中に含まれる白金族元素等（Ru、Rh、Pd、Tc）の有用元素を回収するプロセスを開発する。

2) 処理対象（元素、核種、物質等）

不溶解残渣、Ru、Rh、Pd、Tc

3) 処理プロセス・システムの概要

乾式元素分離法（鉛抽出法・灰吹法・オゾン酸化処理法）と湿式元素分離法（溶媒抽出法・沈殿法）を組み合わせたプロセスにより、白金族元素を単離回収する。さらに非放射化のためにレーザー同位体分離を行う。

4) 特徴（メリット、デメリット）

高レベル廃液に含まれる白金族元素のかなりの部分は不溶解残渣として溶解工程後の澄清工程においてパルスフィルタ等によって回収される。この不溶解残渣は白金族元素を主成分とするので、これを対象にすることで分離回収プロセスを単純なものとするのが期待できる。処理プロセスの第一段階の鉛抽出法はセル内での操作にも対応が容易な単純な分離法である。しかしながら単離精製までを考慮すると湿式のプロセスによる必要があり、このため二次廃棄物の発生が懸念されることも考えられる。

5) 目標及び設定根拠

高レベル廃棄物からの白金族元素回収に関わる研究はこれまで多く行われてきている。しかしながらそれらは白金族元素の硝酸酸性溶液あるいは模擬高レベル廃液を対象にしてPd等を溶媒抽出法によって回収しようとするものがほとんどである。高レベル廃液を対象としたものは少なく、不溶解残渣を対象とした研究開発はさらに限られている。実際に高レベル廃液を対象にした試験を行い、白金族3元素の回収率について検討されたのは、約15年前にPNLにて実施されたものが唯一のものである。

PNLでは当初は、高レベル廃棄物の資源的価値に着目し、白金族元素を回収するための研究開発と経済性の評価を実施した。本研究開発を開始するにあたって実施した海外調査ではPNLについて重点的に実施することとし、研究者からの聴き取り調査も行った。PNLで検討された方法は、高レベル廃液を含むガラスの溶融時に鉛を添加し、白金族元素を鉛相に回収しようとする方法である。調査時点では、当初目的とは異なり、むしろガラス固化時のメルト保護が主目的であることが述べられた。また、文献においてベンチスケール試験を実施することが予告されていたが実際には行われなかった。

以上のことから不溶解残渣より白金族元素を合理的なコストで単離回収できるプロセスを構築することを目標とした。

6) これまでの成果

乾式元素分離法と湿式元素分離法を組み合わせ白金族元素を単離回収するプロセスを構築した。具体的には、鉛抽出法については鉛相への白金族元素回収と TRU 元素の除染係数をホット試験により確認した。灰吹法により実不溶解残渣よりマクロ量 (mg) の白金族合金粒を回収した。オゾン酸化処理法により含 Ru スラッジよりオゾンガスを用いて Ru をほぼ 100% 回収できることを確認した。また、溶媒抽出法として DHS 溶媒に着目し、硝酸溶液中の Pd を選択回収できることを確認した。

非放射化のためのレーザー同位体分離法については、天然のパラジウムを用いた試験により原理実証を達成した。

2. 現状の分析

1) オメガ計画における位置付けとそれに対する進捗状況

当初計画によれば、回収技術の研究開発については、平成 8 年度までを第 I 期としてモックアップ試験までを終了させ、平成 9 年から 12 年までの第 II 期においてパイロット規模試験を実施することとしている。これまで、模擬試料及び実不溶解残渣を用いて、鉛抽出法による粗分離回収試験を実施した。また、模擬試料を用いて、粗分離回収後の精製工程について、溶媒抽出法、ルテニウム酸化揮発法等に関する試験を実施した。さらに、灰吹法により実不溶解残渣から放射性貴金属合金粒を回収した。しかしながら、モックアップ試験の段階には至っていないのが現状である。

利用技術研究については、第 I 期 (～平成 8 年) においてシステム基礎試験を、また、第 II 期においては実試料によるシステム試験を実施することが予定されていた。これまで、FP 貴金属の利用方法として放射線誘起化学反応触媒に着目し、模擬試料及び外部線源用いた基礎的試験を実施した。また、熱電材料への利用について検討した。しかしながら、いずれについてもシステムとしての試験を実施する段階には達していないのが現状である。

2) 技術的達成度

(1) 有用金属回収技術開発のための基礎的検討

白金族元素合金の硝酸溶解特性

白金族元素合金の硝酸溶解挙動についてはこれまで定量的な研究が少ないことから、mg オーダーの金属粉末試料を用いて単一金属の溶解速度、Tc を Re で模擬した 5 元合金 (Ru-Rh-Pd-Mo-Tc) の溶解速度等について検討を行った。

液体金属抽出法に関する検討

抽出の第一段階として鉛抽出法 (液体金属抽出法) が適していると考えられたので、抽出媒金属の種類、スラグの組成等について系統的な検討を行った。その結果、Sn、Zn、Cd 等が Pb よりも優れた抽出媒となりうることが明らかとなった。このうち Sn についてはさらに詳細に実験検討を行い、Sn 中への各元素の溶解度や、 Na_2O - B_2O_3 系スラグを用いた場合スラグの組成が多少変化しても抽出特性に大きな影響がないこと等を明らかにした。

(2) 粗分離回収技術開発

不溶解残渣回収法

再処理溶解工程で発生する不溶解残渣の性状、挙動等の実態を明らかにし、それらに基づき既存再処理施設との整合性を有する効率的で安全な不溶解残渣回収技術を検討した。各種の液中微粒子回収法（精密沈殿法、凝集沈殿法、遠心分離法、浮上分離法、磁気分離法）について調査及び模擬不溶解残渣を用いた実験検討を実施した結果、凝集沈殿法と磁気分離法の有効性を明らかにした。磁気分離によってサブミクロンの粒径を有する不溶解残渣を回収できる可能性があるが、サブミクロン粒度の残渣の重量比は 10%以下であるのでコストとのかねあいを考慮する必要がある。

鉛抽出法

不溶解残渣より白金族元素等を単離し高純度に精製するには、最終的には湿式工程によらざるを得ないものと考えられる。既存の再処理プロセスとの整合性を考慮すると硝酸酸性での精製工程とする必要があるため、不溶解残渣を硝酸に可溶なものとするための前処理が必要となる。また、不溶解残渣は白金族元素を主成分とする金属間化合物（ε 合金）と白金族元素以外の FP 元素及び TRU 元素、さらには構造材に起因する元素等が混合したものであるため、ε 合金とこれらの元素との分離が必要である。

分離回収プロセスの第一段階として、残渣中に含まれる他の FP 成分等の除去を行うとともに、白金族金属間化合物を硝酸に易溶なものとするために、鉛抽出法を適用する。前述のように、抽出媒金属としては Pb よりも優れたものがあるが、硝酸溶解特性等についてなお多くの検討事項があるため、鉛抽出法を採用することとした。鉛抽出法は不溶解残渣を鉛及びスラグ（ガラス）とともに混合溶融し、鉛相に白金族元素等を、ガラス相にその他の FP 元素等を抽出する液体金属抽出の一種である。スラグとしてホウ砂を用いればガラス固化処理との整合性もよい。

鉛抽出法は不溶解残渣を硝酸に可溶なものとするのに優れた方法であり、鉛抽出によって不溶解残渣（ε 合金）の成分のうち Rh の一部及び Pd が硝酸に溶解することを明らかにした。この硝酸溶解において Ru の大部分は溶解しないでスラッジとして回収されるので、Ru の除染が達せられる。なお、Rh の溶解量は鉛抽出時の Pd 添加により増加させることができる。

ルテニウムは鉛抽出処理によって一部が揮発するとの報告があるが、事業団での鉛抽出試験（抽出温度：800°C、スラグ：Na₂B₄O₇）においては、ルテニウムの揮発損失はないことを確認している。

実不溶解残渣（～1g/バッチ）を用いた鉛抽出試験を行い、①Ru、Rh 及び Pd は鉛相に回収される、②Rh 及び Pd は鉛相中で均一に分布すること、③Tc は Ru と同様の挙動をすることなどを明らかにした。

キューベレーション（灰吹法）

上述のように不溶解残渣から白金族元素等を分離回収する技術として鉛抽出法は多くの利点を有しているが、鉛の使用量が不溶解残渣量に比較すると多量となる（不溶解残渣の 10?050 倍量）ことからなお改善の余地がある。すなわち鉛相の溶液化にあたって必要な硝

酸及び水の量は硝酸鉛の溶解度によって決まるので多量の硝酸が必要となり、以降のロジウムとパラジウムの相互分離工程では白金族元素濃度が相当に薄まった溶解液を対象として分離回収処理を行わなければならないということになる。これは工程技術としては不利であり設備及び操業コストに悪影響を与えるであろうし、廃棄物の発生量も多くなると考えられる。

キューペレーションは鉛相に固溶した金及び銀を分離するのに用いられる方法であり、古くから試金法と称して分析手段として利用されてきている。この方法は通常リン酸カルシウムを主成分とする比較的多孔質のろつば（キューペル）を用い、この上に金、銀を含む鉛を置いて酸化性雰囲気で溶融すると鉛のみが酸化鉛としてキューペルに吸収され、ビードと称する貴金属塊を得るものである。

しかしながら白金族元素（Ru、Rh、Pd）の分離回収にキューペレーションを適用した例は報告されていないことから、コールド試験及びホット試験を行い、その有効性を明らかにした。ただしビードについては硝酸溶解特性が白金族元素を抽出した鉛相と異なり、Rhの硝酸溶解量がやや低下するので、一回の操作で回収できるRh量が減少することを考慮する必要がある。（スラッジとなったRhは再度鉛抽出工程へ送ることになる）

（3）相互分離・高純度精製技術開発

ルテニウム分離精製

不溶解残渣の組成は燃焼度、冷却期間などの条件により変化するが、燃焼度 48000MWD/t、4 年冷却の場合、1011Bq/g 程度の比放射能を有している。これはほとんど Ru に起因するものである。すなわち $10^5 \sim 10^6$ の分離係数で Ru を分離できればグローブボックスでの取扱いが可能となり、その後の分離操作は簡略化ができる。

ルテニウム回収法として従来電解回収法等が検討されているが、鉛抽出後の硝酸溶解によって Ru の大部分がスラッジとして回収され、固相からの Ru 精製法とする必要があることから、オゾンガスを酸化剤として用いる酸化揮発法を検討した。図 6-1 に示すようなフローにより Ru が 99%以上回収されることを明らかにした。また、硝酸溶解液についてはオゾンガスの吹き込みにより、グローブボックスでの取扱いを可能とする上記分離係数が得られることも明らかとした。

溶媒抽出法等

鉛抽出を行った後、白金族元素を抽出した鉛相を硝酸に溶解した溶解液を対象にして、分離工程の最終段階である Pd と Rh の相互分離を行うことになる。相互分離法としては、イオン交換法（キレート樹脂による Pd の吸着分離）、化学沈殿法及び溶媒抽出法について予備的実験検討を行った。その結果、イオン交換法及び化学沈殿法では高い分離係数が得られないことが明らかとなったので、溶媒抽出法についてさらに詳細な検討を実施することとした。

白金族の相互分離と精製は従来、白金族元素間の微妙な化学的性質の違いを利用した煩雑で非効率的な化学的沈殿分離法によって行なわれていたが、近年、塩酸酸性での溶媒抽出法

が開発され商業的な規模で実用段階に至っている。また、高レベル放射性廃液を対象に溶媒抽出法によって白金族元素を分離する方法についてこれまでに多くの報告がなされている。白金族元素の抽出溶媒としてはサルファイド系溶媒、アミン系溶媒、オキシム系溶媒、リン酸系溶媒等が検討されているが、それぞれ一長一短である。ここでは、これらの結果をも参考にして、サルファイド系溶媒及びアミン系溶媒について白金族元素等の硝酸溶液を用いた抽出試験等を実施し、硝酸酸性での分離性能の評価を行った。

その結果、サルファイド系の溶媒である DHS (di-hexyle surphide) によって 0.1?6N の濃度の硝酸溶液から Pd が非常に効率良く分離されることを明らかにした。また、チオ尿素を用いることによって逆抽出も容易であり、800t プラントでの 1 年間の処理によって想定される γ 線量を照射した溶媒でも抽出性能にはほとんど変化はないことも明らかにした。

(4) 非放射性化技術開発 (同位体分離技術開発)

非放射性化技術としては、放射性同位体を分離・除去することと高い同位体選択性が要求されることから考えてレーザー同位体分離法、プラズマ法、電磁分離法が対象となる。ここでは、ウランに対して研究開発が実施されており、技術的バックグラウンドの蓄積があるうえ、他の元素への応用可能性の評価にもつながることからレーザー同位体分離法を採用した。また、レーザー同位体分離法の適用可能性を明らかにすることは、回収した有用核種の利用範囲を広げる観点からも重要なことである。

同位体分離による非放射性化の対象となる核種としては、Ru-106、Rh-102、Pd-107 などであるが、最も半減期の長い Pd-107 を当面の対象とした。さらに一般的なレーザー法のような同位体シフトでなく、偏光した光を吸収するときの角運動量選択則に基づく同位体選択性により分離する方法の原理実証を行うことで、同位体シフトが小さくて分離が困難な他の元素に対して分離の可能性を開くものとして価値がある。

レーザーによる同位体分離の技術開発では、細分化された多くの研究項目がある。少なくとも以下に示す項目に対して情報やデータの収集及び評価・検討が必要となる。

これまでに、試験装置の設計・製作、パラジウムの原子蒸気の発生方法の検討と蒸発特性の測定、パラジウムの光吸収特性の測定及び同位体分離試験(天然のパラジウム中の Pd-105 の分離)を実施した。質量分析器レベルではあるが、分離試験で本同位体分離法の原理を実証し、Pd-105 を 22% から 73% に濃縮した(分離係数にして約 10)。パラジウムの吸収断面積等の分光学的な基礎データの測定は、装置の性能、現状の技術レベルをふまえて、測定可能なパラジウムの同位体非選択的な二光子吸収によるイオン化のしきい値の測定を行い、約 1 kW/cm² という値を得た。今後のレーザー技術等の進歩に期待する部分が多い。特に、紫外領域で連続的に波長可変で、発振線幅の狭いレーザーの出現が期待される。

- ① パラジウムの原子蒸気の発生方法の検討と蒸発特性(蒸発速度、蒸着特性、加熱温度、電子衝撃イオン化の程度など)
- ② パラジウム原子の分光学的パラメーター(エネルギー順位、吸収断面積、同位体シフト、励起状態の寿命、励起・電離のしきい値、励起・電離波長の最適化など)

- ③同位体分離の効率等の理論的検討（分離係数、光の利用効率など）
- ④同位体分離用レーザーの技術的要件（発振波長域、連続波長可変性、狭帯域化、高出力化、波長変換技術、エネルギー効率、経済性）
- ⑤レーザー光の利用効率の向上（長距離伝搬特性、光学系の最適設計など）
- ⑥プラント設計条件（処理量、除染係数、コストの評価など）

(5) 利用技術の検討

回収した白金族元素の利用方法のひとつとして、白金族金属を半導体 (TiO_2 、 SrTiO_3 等) 微粒子上に担持させた酸化還元反応触媒について検討を行った。同種の触媒は水分解水素生成反応のための光触媒としてさかんに検討が行われているものである。ここでは担持する貴金属を不溶解残渣より回収した放射性白金族金属とすることにより、入射エネルギーなしでの触媒効果を期待するものである。実験検討として TiO_2 微粒子に天然の Pd, Ru 及び Rh を担持させた触媒を水に懸濁させた系にガンマ線を照射し、水分解水素生成反応が生起することを実証するとともにその反応効率等について基礎的評価を行った。また、回収した白金族金属の熱電材料としての利用可能性について基礎的検討を実施した。Ru-Si 系合金及び Ru-Si-U 系合金を溶製し、これらの熱電特性評価を行った。

(6) 工業化に関する検討

核分裂生成白金族元素の特性

工業化プロセスの検討にあたって、核分裂生成白金族元素の特性について理解しておくことは必要不可欠である。核分裂生成白金族元素の生成量、放射能、崩壊系列等については多くの文献に記載されているので、ここに再録する必要はないであろう。これらのデータをもとに、Ru、Rh 及び Pd の各元素の単離精製を検討する際、不純物として含有される他の 2 元素の濃度がどの程度まで許容されるかという検討を行った。

3. 今後の見通し及び課題

平成 10 年度をもって研究を中止したが、今後の見通し及び課題については以下のように考えられる。

1) 実用化の見通し及びそのために解決すべき課題

本研究開発は不溶解残渣中の有用金属を単離回収するプロセスを構築するための基礎的データ取得を主たる目的としたものである。したがって、経済性を含めた将来の見通しについて評価することはやや困難である。しかしながら分離回収については技術的には現段階では大きな問題点はないと考えられるので、今後 10 年程度の期間でパイロットプラントの段階に達することは可能であろうと思われる。分離回収プロセスについて今後 5 年間での中心課題は、ε 合金以外の不純物を多量に含むような実残渣をもちいて工程全体での物質収支を求めることである。同位体分離及び利用技術については、実用レベルに達するには今後さらなる研究開発を必要とする。

2) 当面重点を置くべき研究開発課題

特に利用技術について放射線触媒及び熱電材料以外についても幅広く検討を行い、利用

方途を広げることが重要である。

3) 経済性についての見通し

使用済燃料中より有用金属の回収を行うことを検討するということは、とりもなおさずそれらの有用金属が資源となり得るかを検討することである。言い換えれば回収された有用金属の価値が回収に要するコストを補償し得るかどうかを判断基準として検討する必要があるということである。しかしながら本研究開発は実験室レベルの段階にあり、プラントをイメージした効率、処理量、経済性等の評価検討に必要なデータは得られていないのが現状である。

したがって工業化に係る検討を行うのに拠り所となるデータには乏しいのが現状である。

4. 研究開発の進め方

1) 関連する研究分野との協力

なし

2) 国内研究機関との協力

京都大学、大阪大学及び名古屋大学との委託研究及び共同研究を実施した。また、有効利用技術の研究開発に関して東京工業大学より客員研究員を招聘した。

3) 国際協力

なし

5. 研究対象としていなかったが、核種分離・消滅処理の趣旨に照らして重要と考えられる技術

- 乾式元素分離技術全般（揮発分離法、溶融塩を用いる分離法等）

参考文献

- (1) M.Myochin et al. "Recovery and Utilization of Valuable Metals from Spent Fuel(I),(II)," Proc. 1993 Int. Conf. on Nucl. Waste Management and Environmental Remediation, Sep. 5-11,1993,Prague.
 - (2) M.Myochin et al. "Recovery and Utilization of Valuable Metals from Spent Fuel(III)," Proc. 1993 Int. Conf. on Nucl. Waste Management and Environmental Remediation, Sep. 5-11,1993,Prague.
 - (3) R. Kawabata et al. "Solubility of Molybdenum in Liquid Tin," Metallurgical and Material Transactions, 26B,654(1995).
 - (4) M.Myochin et al. "Recovery of Valuable Metals from High Level Radioactive Waste," 4th OECD/NEA OMEGA Information Exchange Meeting, Sept. 10-13, 1996,Mito,Japan.
-

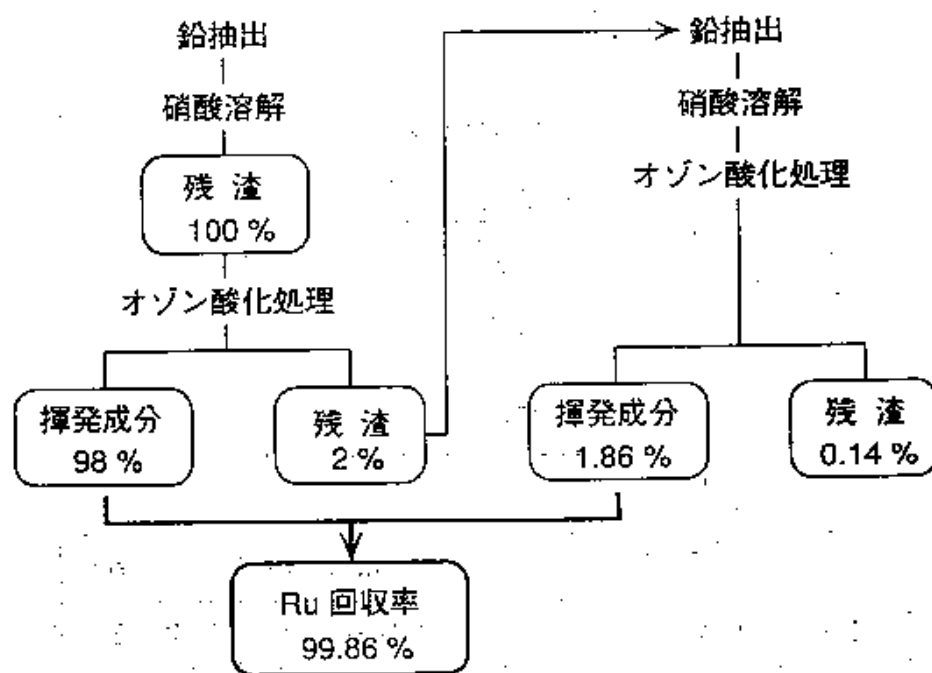


図 6. 1 オゾン酸化法による Ru の回収率