2012年 茨城大学講義 原子科学と倫理 平成24年12月26日 日立事業場(大学院理工学研究科)

核燃料サイクルの新元素・資源戦略

核廃棄物の元素変換



東京工業大学原子炉工学研究所 原子力国際共同研究センター http://www.nr.titech.ac.jp/~ozawa/

原子力国際共同研究センター

•2010年度設立



非国家主体による核テロリズムの脅威に備え、

- ・原子力の分野で、Safety(安全)に加え、Security(核テロ対策)及び Safeguards(核不拡散・保障措置)の、所謂、"3S"を強化
- ・そのための、国際的な研究展開と人材育成を図る

•研究内容

- 核拡散抵抗性の高い革新的原子力科学技術に関する研究;核兵器に転用困難な核拡散抵抗性の高いプルトニウムP³の製造やその利用技術
 先進的核燃料サイクル研究;環境性/核拡散抵抗性/資源セキュリティを 強化する分離変換技術(Après ORIENT)
- ・核地政学(Nuclear Geopolitics)、サイエンティストゲーム(成功への道)
 (■ゼミ研究)

平和で安全・安心な生活の保障と社会の構築のための原子力研究





PLUTONIUM: A WORLD ENERGY RESOURCE

 $^{235}\text{U} + n \rightarrow ^{95}\text{Mo} + ^{138}\text{Ba} + 3n + 6\beta^{-}$: 7.8x10⁷KJ/g



1 g of Pu1 to 2 t of oil1,000 t of recycled* spent fuel produce the same amount of
electricity as the combustion of 20 to 25 000 000 t of oil
(Kuwait's annual output: about 100 000 000 t of oil)



3/10/2408

Nuclear Fuel Cycle





<u>分離変換処理の意義及び効果</u>

・地層処分を補完、ガラス固化体の放射性毒性の低減、処分場占有地の拡大

半減期;²⁴¹Am:432.6年、²³⁹Pu:2.41万年、²⁴⁴Cm:18.1年、⁹⁹Tc:21万年、¹³⁵Cs:200万年、¹³⁷Cs:30.1年、¹²⁹I:1570万年

Potential radioactivity of actinides in the glasses from the standard

Potential radioactivity of main fission products in the glasses from the standard



Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation-Status and Assessment Report, pp.196, OECD 1999. 7







周期表でみる原子カレアメタル

•我国では 47 元素を"レアメタル"と認定(内,希土類 17 元素を含む)

・暫定的に31元素(有意量(>10g/tHM)の元素に限定)を利活用の可能性の高い"原子カレアメタル"と定義(希ガス,ハロゲン,Cd, Sn, Sb, Bk, Cfは除く)

Group	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
Period						vro 📈	N LOE								60.77	/////		
1	1 H		FP		Me	etal R	adioad	ctive	L.Radi	ible, oactive	(T _{1/2}	<ca.1y< th=""><th>))</th><th>w Rate</th><th>Ex</th><th>other</th><th>mic</th><th>2 He</th></ca.1y<>))	w Rate	Ex	other	mic	2 He
2	3 Li	³ ⁴ Li Be Actinides Exothermic											5 B	6 C	7 N	8 O	9 F	10 Ne
3	11 Na	12 Mg			Ŀ		-						13 Al	14 Si	15 P	16 S	17 CI	18 Ar
4	19 K	20 Ca	21 Sc	22 Ti	23 V	24 Cr	25 Mn	26 Fe	27 Co	28 Ni	29 Cu	30 Zn	31 Ga	32 Ge	33 As	34 Se	35 Br	36 Kr
5	37 Rb	³⁸ ★ Sr	39 ★ Y	40 Zr	41 Nb	42 ∎ Mo	43 ● Tcv	44 ▲ Ru	⁴⁵ ▲ Rh★	46 ▼ Pd	47 Ag	48 Cd	49 In	50 Sn	51 Sb	52 Te	53 1	54 Xe
6	55 * Cs	⁵⁶ ★ Ba	57. 71	72 Hf	73 Ta	74 W	75 Re	76 Os	77 Ir	78 Pt	79 Au	80 Hg	81 Ti	82 Pb	83 Bi	84 Po	85 At	86 Rn
7	87 Fr	⁸⁸ Ra	89- 103	104 Rf	105 Db	106 Sg	107 Bh	108 Hs	109 Mt									

Lanthanides	57∎	58	59	60 ∎	61 ●	62	63 ★	64	65	66∎	67	68	69	70	71
	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	HO	Er	Tm	Yb	Lu
Actinides	89	90	91	92	93	94	95	⁹⁶ ★	97	⁹⁸ ★	99	100	101	102	103
	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr

<u>使用済み核燃料中の原子力レアメタル</u>

高速炉使用済み燃料





Atomic No.

<u>天然鉱石 vs. 原子力鉱石</u>

品位及び放射性

Time Dependency of Bq/g on Nuclear Rare Metals

								1.E+15			- Reco	vered	Rh
元素	鉱石中の 含有率 _(ppm)	軽水炉使用源	§燃料中	FBR使用源	脊燃料 中	備考		1.E+12			Rh-1	02	
名		含有率(ppm)	比*1(-)	含有率 _(ppm)	比*1(-)			1.E+09	•	1	exem	ption	level
Se	(12~ 92)	50~98	1.4	140	7.1	鉱石中の含有率は、ロシアUGMK社の 2004年銅生産実績と平均的な銅品位1 ~8%より算定		1.E+06	•		Rh		
Мо	140	4,021 ~ 6,059	36	8,966	84	モンゴルのコルデネット鉱山実績	(Bq g-1	1.E+03	•+			· 	
Rh	(0.4 ~ 0.6)	578 ~ 949	1,527	2,543	6,652	主な鉱山ではPGM生産量の1割程度を ロジウムが占めるため、PGM品位の 1/10と仮定	ntration	1.E+00 1.E-03	•	• • • •	•		
Pd	2.4~7.4	1,900~ 4,150	617	6,988	1426	カナダのノース・アメリカン・パラジウム 社実績	conce		0 20	40	60	80	100
Ag	46~201	102~251	1.4	715	5.8	アイルランドGalmony鉱山、コンゴ Dikulushi鉱山の実績	ctivity	1.E+15 -			- Rec	overe	ed Nd
Te	(3.6 ~ 29)	634~842	45	1,840	113	鉱石中の含有率は、ロシアUGMK社の 2004年銅生産実績と平均的な銅品位1	Α	1.E+12 -			- – Nat		Nd
	,					1~8%より早正	J	1.E+09 - 1.E+06 -	•		No		
								1.E+03 -			 	+	
								1.E+00 -					
								1.E-03 -				1	
									0 1	2 Cooli	ng time(y) 4	5 14



原子力鉱脈としての使用済核燃料、高レベル放射性廃液



16

<u>実際の高レベル放射性廃液中のレアメタル濃度例</u>



Highly Radioactive (e.g., T・α: 6.5x10⁷、T・β: 1.5x10¹⁰、T・γ: 7.0x10⁹ Bq/ml)
 参考; チェコ・ヤヒモフ(源泉); 10.5Bq(Rn-222)/ml、山梨・増冨温泉; 160.7Bq/ml

<u>アンダーポテンシャルデポジッション(UPD)を利用した</u>

<u>白金族の分離</u>

UPD(UnderPotential Deposition)とは?異種原子間の結合力が同種間よりも大きい場合に、REDOX電位よりも貴な電位で起こる析出現象。特異な触媒活性を示す。



Sep.2 ; RMFP Separation by UPD-enhanced CEE

• Basis of CEE (Catalytic Electrolytic Extraction) utilizing UPD (Under Potential Deposition)



*Electro-deposition of NRM in S-HLLW; HCl vs. HNO*₃*media*



Electrolysis; Catholyte: 50cm³, 50°C, Cathode: Pt_{smooth} , 2cm², Ic: 2.5mA/cm²(1hr) \rightarrow 75(2hr) \rightarrow 100(4hr), ICP Atomic Emission Spectrometry

<u>白金族/テクネチウム・アダトム電極の水素製造触媒利用</u>

アダトム触媒表面は水素吸着席数が多く、アルカリ水や人工海水の電解で触媒活性が高い。現行Ni電極(商用電解)を 代替する可能性が高く、酸素過電圧も低いので他分野でも有力な触媒となる可能性が高い。



【アルカリ電解水素製造】所定電位での水素発生速度(Y軸)は見 掛けの水素発生開始電位(X軸)にほぼリニヤーに増加。4元系 及び多元系の触媒活性は白金黒電極をも上回り、平滑白金電極 の3倍強。Pdlは活性には寄与せず、主としてRuが活性を支配。 (単味及び二元(Rh)系で比べた場合)TcはReよりも触媒活性が 優れる。 【人工海水電解水素製造】4元系の水素発生開始 電位は平滑白金に比べ、約0.6V貴側にシフト⇒よ り少ないエネルギー負荷で多くの水素が得られる 可能性。







	原子カレアメタルの仕分け											
	元素群	放射化学特性(Bq/g)	鉱石としての品位(K g/t;高速炉使用済 み燃料(内側炉心) の例)及び資源的イ ンパクト	分離法の例(SX;溶媒抽出、 IXC;イオン交換クロマト)	利用の例	既往技術との関連						
	白金族(ルテニウム Ru、ロジウムRh)	短半減期核種を含む。 Rulは備蓄後40年で <10 ² Bq/g、Rhは80年で <10Bq/g、の安全基準濃度レ ベルにまで低減。	Ru13.4 Rh3.7 Pd11.8 Tc3.4	触媒的電解採取法(CEE) 3級ピリジン樹脂(IXC)	備蓄後、通常使用。 触媒(水素製造、燃 料電池など)利用	白金族の分離はガラス固化処 理操作性の向上に寄与 ⁹⁹ Tc及び ¹⁰⁶ Ruの除去は再処理						
核分裂生成物	テクネチウムTc、白金 族(パラジウムPd)	長半減期核種を含む。ただし 放射性毒性は極めて低い。	量的インパクト大	MIDOA(SX)	取り出し後、隔離使 用。触媒利用。Tcの レニウムRe(戦略元 素)代替利用。	プロダクトの除染性の向上に 寄与						
	モリブデンMo、ジスプ ロシウムDy、他、重希 土類	取り出し時、安定。	Mo14.3 Dy0.038	MIDOA(SX)、3級ピリジン樹 脂(IXC)	(高次化)Moの ⁹⁹ Mo- ^{99m} Tc剤製造原料	Dyは"元素戦略"対象						
	希土類(La、Nd、Pr、 Gd、Tb)、インジウムIn	La,Ndは取り出し時、 Pr,Gd,Tb,In,Ruは備蓄後50年 で、それぞれ<0.1Bq/g	La5.3 Nd16.4 Pr4.9 Gd0.67 量的インパクト小	3級ピリジン樹脂(IXC)	先端産業利用	Inは"元素戦略"対象						
	セシウムCs、ストロン チウムSr	中半減期核種を含む。	Cs16.2 Sr2.0	Cs; AMP(IXC)、CCD(SX)、 他 Sr;DCH18C6(SX)、D18C6- GAALG(IXC)	¹³⁷ Csの ⁶⁰ Coの代替 線源利用。熱電発電 利用。	ガラス固化体の環境負荷低減 に寄与(処分場スペースの縮 減)						
	ウランリ、プルトニウム Pu、マイナーアクチニ ド(Am、Cm、Np)	長寿命核種(Cmを除く)	N.A.	TODGA(SX)、3級ピリジン樹 脂、PDA(IXC)、TPEN(SX)	核燃料利用	ガラス固化体の環境負荷低減 に寄与(内臓放射性毒性の低 減)						
	その他元素(利用優先 性が低い元素)	放射性希土類Y,Ce, Pm,Sm, Eu	N.A.	中性子捕獲反応;n,γ反応 99Tc(n,β−)100Ru, 196Hg (n, γ)197Hg →β+ decay→ 197Au	元素変換	固化処理∙地層処分 核変換技術 核拡散抵抗性						
天放性素	自然界の放射性物質 (ウランU、トリウムTh)	N.A.	N.A.	CMPO-TRUEX(SX)、他	核燃料サイクル内で 燃焼処理。核燃料利 用	希土類産業の廃棄物 25						

原子炉による元素・資源創生 Après ORIENT

核変換モデル

* 核種iの周りにおける中性子照射による核反応と崩壊 核種iの数密度N_iの時間変化

生成
$$\frac{dN_i}{dt} = \sigma_{g \to i} \phi N_g(t) + \lambda_{h \to i} N_h(t) - \sigma_{i \to j} \phi N_i(t) - \lambda_{i \to k} N_i(t)$$



レアアース創生モデル

/ Background 第27回希土類討論会2C-08, 2010



燃焼チェーン (Baの核変換によるLa の創生) Tools and Models

- □ Ba in PWR Spent Fuel (5-Year Cooling after Discharge)
 - ➡ FP Ba : <u>Radioactive</u> due to Ba-133 (10.52 y)
 - ➡ Isotope Fraction : <u>Ba-138 (Stable) : ~ 80%</u>
- \Box To Easily Evaluate the Neutronic Feasibility Depending on XS(σ) and Flux(Φ)
 - Development of Excel Program to Solve the "Bateman Equations"
 - By Using "Exponential Matrix"



La創生を巡る"生成"と"消費"の核反応

□ Simple Path to La-139 (Stable)



➡ Neutronic Feasibility on (1) > (2) ?

熱中性子条件でのLa生成の例; 中性子束の依存性 Discussions

□ Production Rate of La at <u>Thermal Energy</u> with <u>Different Neutron Flux</u>

Maximum Achievable Production Rate : < 3.5%</p>

(Even though at Much Higher Neutron Flux than Typical)

Due to Much Larger Capture XS of La-139

 $(\sigma_{\gamma} = 8.94 \text{ b})$

Relatively Small Capture XS of La-139 to Ba-138 Required !!!



共鳴エネルギー領域を利用するLa生成

Resonance of <u>Ba-138 in Higher Energy</u> compared with <u>La-139</u>



Laの元素変換収率;共鳴エネルギー条件

□ Production Rate of La at <u>Resonance Energy of Ba-139</u>

- In the Same Neutron Irradiation Condition of MONJU Blanket
- Changing Only Capture XS of Ba-139 to Resonance-Average XS
 - $(\sigma_{\gamma} = 0.27 \text{ b})$
- □ Higher Feasibility
 - Proper Moderation of Neutrons in Blanket
 - Higher Neutron Flux than 1.0×10¹⁵ n/cm²-sec
 - * 常陽MK-II炉心3.05x10¹⁵ n/cm²-sec
 - Larger Production Rate of La-139 Expected



Ba/Laの抽出・分離

クラウンエーテルと錯体形成が報告されている金属イオンの直径を空孔径と比較すると下図のようになり、今後La, Baの分離だけでなく、各種イオンの分離に応用が期待できる



34



クラウンエーテル樹脂によるBa/Laの吸着分離



講義の纏め、今後の展開

- 原子カ=エネルギーといった、"Single Issue"の技術・システムは脆く、崩れやすい。 "資源を創る原子カ"、"命を救う原子力"など、原子力の多様性を伸ばす戦略変換を図る必要がある
- 核燃料サイクル技術を内向きから外向きに戦略変換する。資源性(Resourceability)と廃棄物利用(Reuse)に関し、非原子カ分野との連携と共生を強める

◎Adv.-ORIENT Cycle, Après ORIENT 研究の推進

レアメタルは先端産業に直結した重要元素で、我国のGDPを制する。白金族及びレアアースなどは資源が局在化しており、戦略物質として取り扱われる可能性が極めて高い

- 核分裂反応はエネルギーの生産とともに31種を超えるレアメタルを創生する。使用済み燃料や高レベル放射性廃液は"廃棄物"ではなく、核燃料サイクルを人工資源の"鉱脈"として捉える発想(戦略)の転換と戦術の構築が必要である。廃棄物を資源に転換すれば、廃棄物量も減らすことができる
- 原子炉は新たな物質供給源(原子力鉱山)として、資源小国である日本の資源確保戦略に寄与する 可能性があるが、安全性及び経済性についての評価が問われる。我が国に一つぐらい元素・核種(レ アメタル、放射性同位元素RI)生産炉があってもよいではないか
- 当面、中性子捕獲(n,y)反応によるレアメタルの創生と改質の可能性を追求し、ゆくゆくは米・大学などと協力して中性子照射実験を行い、核データ自身の信頼性を含む元素変換の検証を行う
 ●カリフォルニア大学UC-Irvineと共同研究(計画中)

"レアメタル生産原子炉"の設計に向けた工学評価に進みたい

■ 当該分野の学術レベルを維持・向上させるための基礎研究を継続し、優秀な人材を育成する。そのための国際交流は絶やすこのとのないようにしたい

☞第2回日中大学間核燃料サイクル学術討論会(2013.6.19-24, 蘭州大学)を開催する

先進オリエントサイクル構想since 2006



FBR導入シナリオに基づくレアメタル回収予測 (回収率99%)

- 白金族の我国における国内需要の例(2006); Ru:3.7t, Rh:2.7t, Pd:50.6t
- 2070年の核燃料サイクルを想定すると、2006年需要のRu全量、Rh約40%、Pd約7%をまかなう ことができる Rh, 1.11



<u>下水から金(Au)の回収!</u>



長野県(諏訪建設事務所)プレスリリース 平成 21年(2009年)1月28日

諏訪湖流域下水道において汚泥焼却灰から『金』の回収

を始めました。

諏訪湖流域下水道豊田終末処理場(愛称:クリーンレイク諏訪)の下水汚泥焼却灰等には 金が含まれています。金が含まれている焼却灰は売却が可能であることから、平成20年10月 から売却を始め、今月末に初めての売却収入があります。売却収入については、流域下水道 の維持管理のために活用し、流域下水道を利用する皆様へのサービス向上を図ってまいりま す。金の回収の概要は、下記のとおりです。



焼却灰 60t



金の含有量 約 15g/t

年間排出量:約·St

1890g x 5t x 約3500円(金)/g ≒ 3,300万円/年



平成19年10月から平成20年12月までに発生 した溶融飛灰等を処分する中で、10月に搬出した 溶融飛灰1.4tと焼却灰19tに金が含有しており、 約500万円の売却収益がありました。残りの溶融 飛灰等についても3月までに順次、売却収益額が 確定します。

<u>飛灰とは?</u>

溶融炉で溶融処理する際、排ガスの中に飛んでいる 灰で、バグフィルタで捕集されます。

処理場の運転経費

・処理場全体:約14億3千万円
 ・溶融炉:約1億7千万円

<u>カリフォルニア大学アーバイン校UCIのTRIGA炉</u>



臨界前

臨界中

2012.7.20撮影

第1回日中大学間核燃料サイクル学術討論会 主催:上海交通大学核科学工程学院·東京工業大学原子炉工学研究所 2011年11月30日~12月3日、於上海交通大学



日中大学間核燃料サイクル学術討論会

- ・中国、日本、米国、ロシアの25ヶ所の大学及 び研究機関から約80名の研究者、学生が参加
- 本討論会の目的:日中大学間で核燃料サイクル領域の学術交流、人材育成、協力事業の拡大・推進を図る
- 第1回討論会では、上海交通大学の張傑学 長が歓迎挨拶
- 第2回討論会は、2013年6月19~24日に、
 中国の蘭州大学で開催予定

