

茨城大学工学部 講義  
「原子科学と倫理」  
平成21年12月24日(木)  
8:50-10:20

# 再処理と核種分離・利用



小澤 正基

茨城大学工学部 理工学研究科 応用粒子線科学専攻 非常勤講師  
日本原子力研究開発機構 主任研究員・研究主幹  
東京工業大学大学院理工学研究科 連携教授  
ozawa.masaki@jaea.go.jp , ozawa@nr.titech.ac.jp

## 自己紹介

原子力基礎工学部門 部門内連絡会議紹介用資料(様式) A4用紙1枚		生年月日(学年)	1959年9月1日 (58才)
氏名	おざわ まさき 小澤 正基	出身都道府県	山梨県甲府市
所属	原子力基礎工学研究部門、主任研究員、研究主幹		
専門分野	核燃料再処理、Pu分離化学、分離変換工学、工業電気化学		
学位	工学博士(東京大学)1993年7月		
主な所属学会	電気化学会、日本原子力学会、日本化学会、日本溶媒抽出学会、水素イオン協会、日本希土類学会、国際核燃料サイクルシナリオ・Advisory Committee 委員、J.A.E.C.及びJ.E.A.査読委員、J.E.A.C.編集委員		
主な外部兼職・委員	「分離変換核燃料研究専門委員会」委員(1993～)、(国)東京工業大学大学院理工学研究科原子核工学専攻客員教授(2003～)、「核燃料燃料の物質利用」研究専門委員会委員・幹事(2005～)、(独)科学技術振興機構(JST)原子力領域主管(プロジェクトリーダー)(2007～)		
略歴	1975年3月山梨大学大学院工学研究科修了(燃料電池電極触媒の研究)、同年4月旧動力炉・核燃料開発事業団(PNC)入社(東海再処理工場配属)、1981年5月～1982年6月旧西ドイツ・カールスルーエ原子核センター(IHK)留学、1986年～1990年RETF主分離工程の設計及び日米F再共研TC、1994～1998年分離に関する日仏協力TC、1991年担当役、1996年主研(PNC)、1998年10月旧燃料機構(JNC)経営企画本部、2005年分離変換工学GL、2006年主研(JAEA)。		
これまでの研究・業務概要	1975～1986;軽水炉燃料再処理技術開発(東海再処理工場主分離担当) 1986～1990;高速炉燃料再処理技術開発(PUREX法のSalt-Free研究、他) 1990～1998;核種分離に関する研究開発(TRUEX法研究、他) 1998～2000;実用化戦略調査研究の立ち上げ 2001～現在;分離・変換・利用工学研究(Adv.-ORIENT Cycle)		
これからの計画・抱負	長寿命核種、希少元素の分離・変換・利用に関する「先進サイクル」研究を推進する。東工大連携大学院教育及びJST・FO業務を通じ、学生及び若手研究者の指導・育成に務める。		
趣味・特技	伊・トクナ料理、独・白ワイン、Alchemy、パレード、社交ダンス、ゴルフ(数回/年)		
その他	座右の銘;智謀如湯、先取先制。武田信是末裔(信玄弟、後の松尾氏(母方))、今枝真理(宇宙物理学者、幼馴染)、中沢新一(文化人類学者、甲府一高同級)、中田英寿(小・中同学区、近所)		

## 講義内容

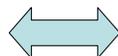
- 原子カルネッサンス (*Nuclear Renaissance*)
- 再処理の原理、工程の仕組み、放射性廃棄物 (課題)
- 原子力レアメタル (*NRM*) とは何か? どのくらい創生するのか?
- それらの同位体組成及び放射化学的特性 (毒性) は?
- どのように分離するか?
- どのように利用 (あるいは備蓄) するか?
  - 水素製造触媒利用 (研究中)
- 利用 “出口” 戦略は描けるのか?
- 新核燃料サイクル (*Adv.-ORIENT Cycle*) の提案
- まとめ

3

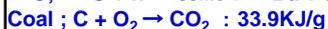
### ■ なぜ、原子力 (リサイクル) か?

4

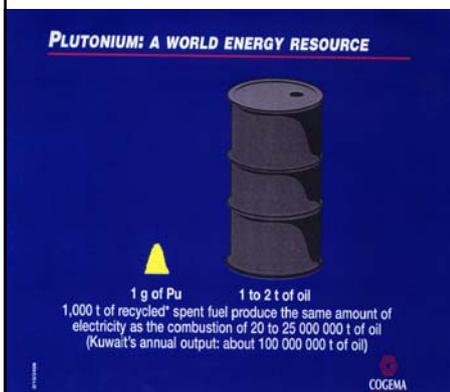
“*Nuclear Renaissance*”



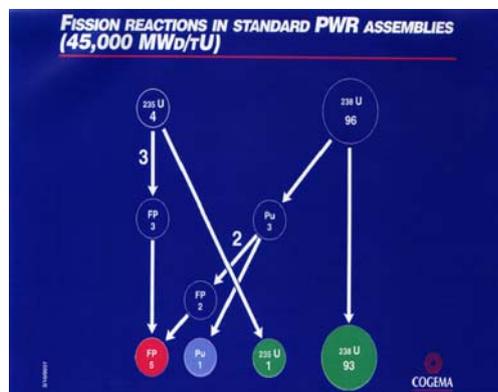
- Environmental Aspect ( $CO_2$ )
- Resource Aspect ( $U, Oil$ )
- Energy & Resource Security
- National Commitment to Scientific Technology & Industry
- From “Molecular Control” to “Atomic (Nucleus) Control”



Fission energy is approximately two million times greater than chemical energy.



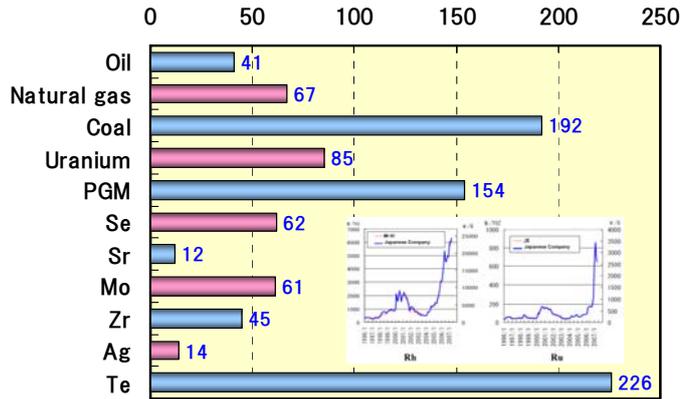
エネルギー源としてのPuと石油



標準的PWR (45000MWd/tU) における核分裂収支

## ◆資源と環境

世界の電力需要は2030年までに50%増、人口は28%増との見通しがある。40-60年後の石油の枯渇及び200年後の石炭の枯渇と原子力の再登板については、多くの報告者が強調したところである。サウジのヤマニ元石油相の言葉として、「父は駱駝に乗った、私は車に乗る、息子は飛行機を操縦する、しかしながら孫はまた駱駝に乗るだろう」(O.Q-Trias/European Commission, PL1.1 / ICENES2009, Ericeira, Portugal)は資源枯渇に直面する産油国の人の言葉として極めて印象深い。多くの人が「石油40-60年枯渇」を強調するようになった(原油生産の現場では、ひょっとすると既に枯渇の兆候がでているのかも知れない)。



•Natural energy and most of rare metal resources are limited within 200 years

•On PGM, strategy of Russia and South Africa\* will strongly affect the stable supply and prices.

\*ca. 90% of PGM came from both countries in 2008(P. Wager, et al., R'09).

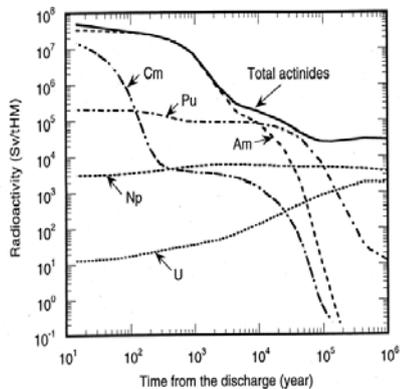
R/P Ratio (year) at 2004 for Estimated Available Time for Natural Rare Metal Production

5

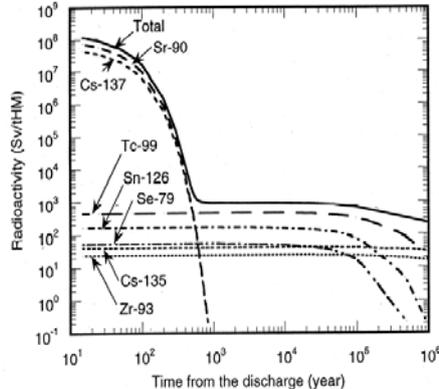
## ◆資源と環境( Rad. Wastes, CO<sub>2</sub> )

- ・廃棄物処理思想の高度化; (60年代から) 希釈後、拡散→濃縮後、封入→貯蔵後、崩壊。(21世紀に入り) 分別、分解、循環(混ぜればゴミ、分ければ資源)
- ・高レベル放射性廃液ガラス固化体の潜在放射性毒性の低減; アクチニド(An)及び長寿命核分裂生成物(LLFP)の分離変換(P&T) ⇨ Svとは?(参考資料-2,3)

Potential radioactivity of actinides in the glasses from the standard reprocessing of PWR type spent fuel (4.1% <sup>235</sup>U, 40 GwD/tHM)



Potential radioactivity of main fission products in the glasses from the standard reprocessing of PWR type spent fuel (4.1% <sup>235</sup>U, 40 GwD/tHM)

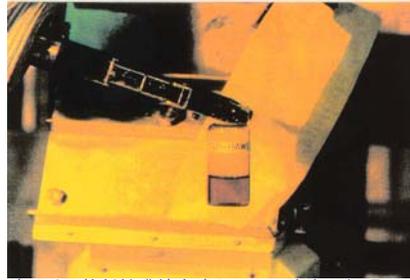


Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation-Status and Assessment Report, pp.196, OECD 1999. 6

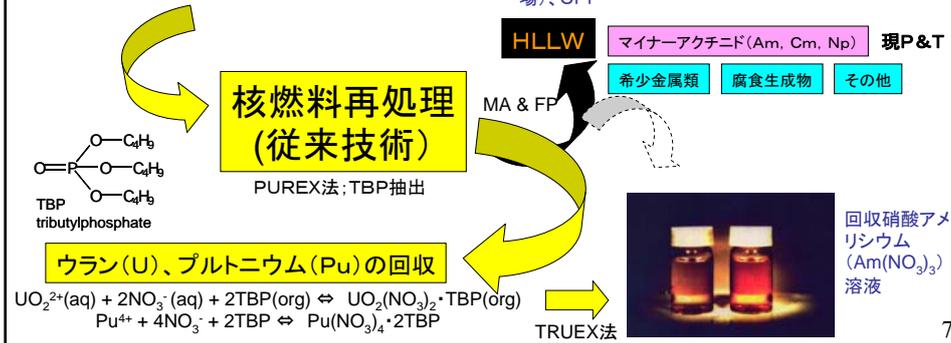
## ■核燃料再処理(PUREX法)と核種分離



高速炉(「常陽」)照射済み燃料溶解液(東海、CPF)



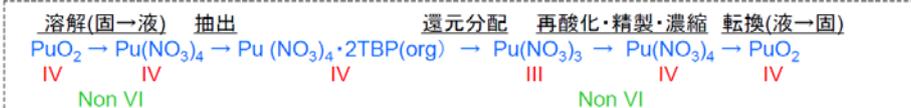
高レベル放射性濃縮廃液(HLLW; 東海再処理工場)、CPF



7

## ◆再処理プロセス(工場)の特徴

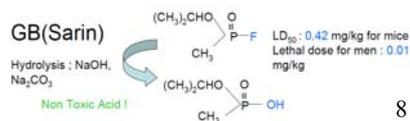
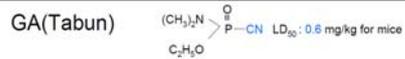
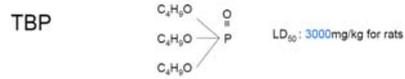
- ・使用済燃料からの核分裂物質(U,Pu)の回収(回収率:>99.5%)、FPからの分離(除染係数:10<sup>6</sup>~10<sup>8</sup>)。
- ・核物質、放射性物質をマクロ量扱う、巨大化学工場。
- ・技術(工学)及び人間の信頼性を最も重視。



1. 選択的であること。即ち分配係数の比が大きいこと。
2. 抽出能力が良いこと。即ち抽出部における分配係数は1に近いがそれより大きいこと(工学規模設計では10以上が望ましい)。
3. 逆抽出が容易なこと。即ち逆抽出部における分配係数は1よりは大きくないこと(工学規模設計では0.1以下が望ましい)。
4. 溶解による損失(並びに漏洩率)を小さくするため、水に対し比較的不溶性であること。
5. 抽出後の相分離を促進するために、密度が水と異なること、また粘度が低かつ界面張力が大きいこと。
6. 比較的不揮発性かつ不燃性、また有害でないこと(安全性)。
7. 分別蒸留などにより、容易に精製できること(リサイクル)。
8. 化学薬品(例えば硝酸)に対し安定であること。放射線に対しても十分安定なこと(安全性、経済性)

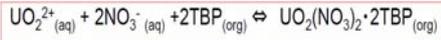
TBPはほとんどの要件を満たすが、粘度及び水との密度差が小さいという欠点  
⇒ 芳香族を含まないケロシンのような軽飽和炭化水素で希釈する

Phosphoryl (P=O)化合物



8

# ◆PUREXプロセス(溶媒抽出)の化学的基礎



分配比(D)、分配係数(KD)、抽出率E(%), 分離係数 $\alpha$ , 除染係数(DF)  
 $UO_2^{2+}$ を例にとると、

- $D_U = [UO_2(NO_3)_2 \cdot 2TBP_{(org)}] / [UO_2^{2+} (aq)]$
- $K_D = [UO_2(NO_3)_2 \cdot 2TBP_{(org)}] / [UO_2^{2+} (aq)][NO_3^- (aq)]^2 [TBP_{(org)}]^2$

$\Rightarrow D_U = K_D [NO_3^- (aq)]^2 [TBP_{(org)}]^2$   
 $\log D_U = 2 \log [TBP] + C$  ( $C = \log K_D [NO_3^-]^2$ とする)  $\Rightarrow$  配位子分子数2の決定

- $E(\%) = 100D / (D + V_{aq} / V_{org})$
- $\alpha = D_A / D_B$
- $DF_U = ([FP]_{inlet} / [UO_2^{2+}]_{inlet}) / ([FP]_{product} / [UO_2^{2+}]_{product})$   
 $= [FP]_{inlet} \cdot [UO_2^{2+}]_{product} / [UO_2^{2+}]_{inlet} \cdot [FP]_{product}$

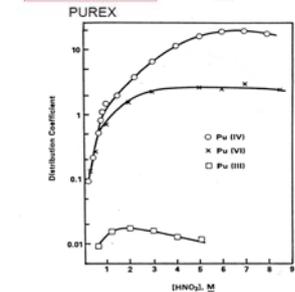
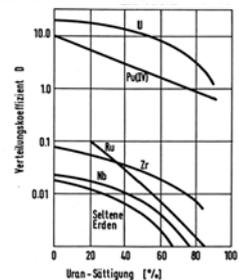
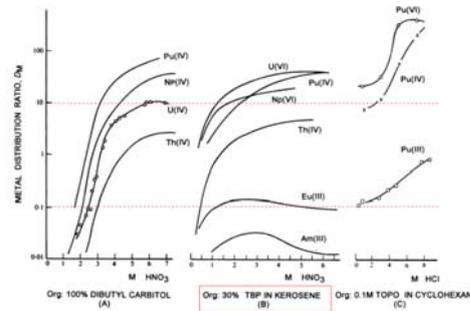
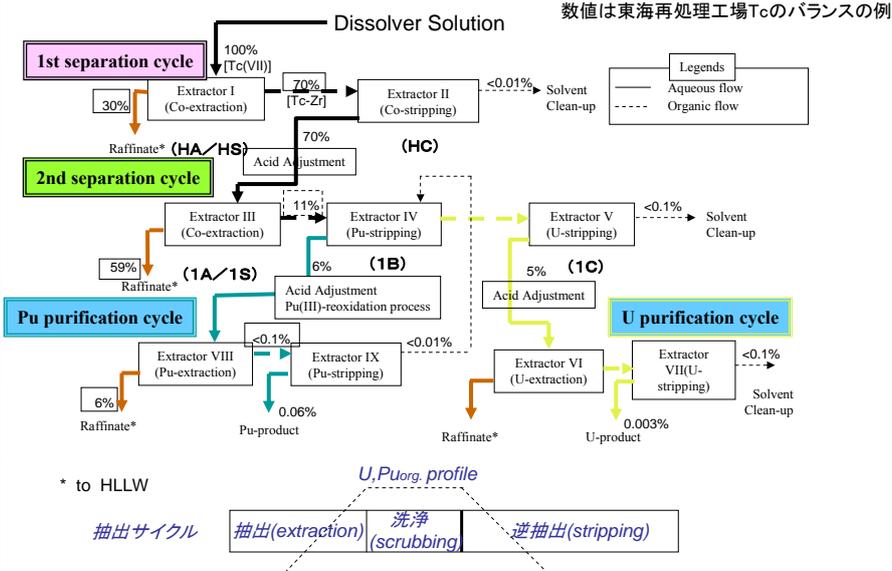


Abb. 1.4: Einfluß der Uranbeladung des organischen Extraktionsmittels auf die Verteilungskoeffizienten von U, Pu und Spaltprodukten, nach [4] (30 Vol.-% TBP/Kerosin, wäßrige HNO<sub>3</sub>-Konzentration von 2 mol/l bei 0% Beladung auf 3 mol/l bei 90% Beladung steigend)

FIGURE 2. Extraction of plutonium in the III, IV, and VI valency states by 30% tributyl phosphate. (From McKay, H. A. C., and Woodger, P. R., The extraction of plutonium by tributyl phosphate, I. U.K. Atomic Energy Res. Establishment Rep. AERE-C/R 194, Her Majesty's Stationery Office, London, England, 1952. With permission.)

# ◆再処理主分離工程(東海再処理工場の例)

数値は東海再処理工場Tcのバランスの例



## ◆ウラン及びプルトニウム製品スペックの例

### Uranyl nitrate:

Uranium concentration 1–2 M  
 Free HNO<sub>3</sub> > 1 M  
 Impurities: Fe, Cr, Ni < 500 ppm  
 Boron equivalents < 8 ppm\*  
 Fission products < 19 MBq/kg U  
 α-activity (excluding uranium) < 250 kBq/kg U

### TRP

UO<sub>3</sub> powder  
 6FPnuclides ≤ 0.5 μ Ci/gU  
 Non U α ≤ 15000dpm/gU  
 Metal (Fe, Ni, Cr) ≤ 500ppm  
 Boron equivalents < 8 ppm  
 Total impurity ≤ 2.25%/UO<sub>3</sub>

### Plutonium nitrate:

Plutonium concentration ~ 1 M  
 Free HNO<sub>3</sub> 2–10 M  
 Impurities: Metallic < 5000 ppm  
 Uranium < 5000 ppm  
 Boron equivalents < 10 ppm  
 Sulfate < 1000 ppm  
 Fission products (t<sub>1/2</sub> > 30 d) < 1.5 GBq/kg Pu\*\*

### TRP

Pu(NO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> soln.  
 Pu ≤ 250g/l  
 6FPnuclides ≤ 50 μ Ci/gPu  
 241Am ≤ 5000ppm  
 Metal (Fe, Ni, Cr, Ti, U)  
 ≤ 4000ppm

<sup>241</sup>Am content (9 months after delivery to MOX-plant) < 5000 ppm

\* The equivalent values are **B** 1.0, **Cd** 0.4, **Gd** 4.4, **Fe** 0.0007, etc. The amount measured for each of these elements multiplied by the factor indicated must not be more than 8 ppm.

\*\* <sup>95</sup>Zr-Nb < 185 MBq/kg Pu.

11

## ■再処理工場からの環境放出核種と量(例)

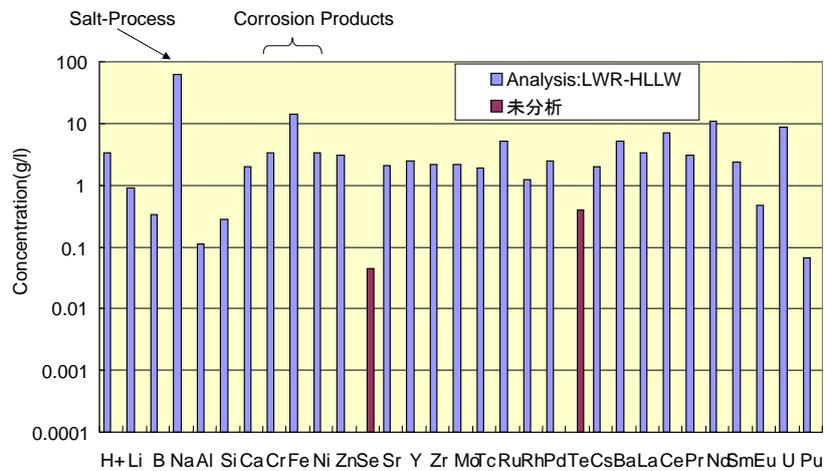
Source		Half-life (y)	Sellafield* (TBq)	Purex** (TBq/GW <sub>e</sub> y)
<sup>3</sup> H	airborne	12.33	222	41
	liquid		1050	643
<sup>14</sup> C	airborne	5730	4.1	2.0
	liquid			0.54
<sup>85</sup> Kr	airborne	10.72	26000	12300
<sup>90</sup> Sr		28.5	600	11
<sup>95</sup> Nb		0.0958	150	
<sup>95</sup> Zr		0.175	150	
<sup>99</sup> Tc		2.13 × 10 <sup>5</sup>	180	
<sup>106</sup> Ru		1.02	810	39
<sup>129</sup> I	airborne	1.57 × 10 <sup>7</sup>		0.006
	liquid		0.074	39
<sup>131</sup> I	airborne	0.022		0.0007
	liquid			0.032
<sup>137</sup> Cs	airborne	30.0		0.002
	liquid		4090	13
<sup>144</sup> Ce		0.781	100	
<sup>241</sup> Pu		14.4	1800	
U			11000 (kg)	

\* Releases in 1978 only; 1.8 GWe produced from fuel reprocessed.

\*\* Average for 3 plants normalized to 1985–1989; La Hague, France, Sellafield, UK, and Tokai-Mura, Japan.  
 (From NSCEAR 1993.)

12

### ◆実高レベル放射性廃液 (LWR-HLLW)の組成



#### Characterization

- U, Pu:  $\leq 0.5\%$ , MA (Am, Cm):  $\sim 100\%$ , FP:  $>99.9\%$
- High conc. of Na and Corrosion Products, Trace of Organics (Degraded Solvent)
- Highly Oxidative ( $\text{HNO}_3$ : 2~3M)
- Highly Radioactive (e.g., T $\cdot$   $\alpha$ :  $6.5 \times 10^7$ , T $\cdot$   $\beta$ :  $1.5 \times 10^{10}$ , T $\cdot$   $\gamma$ :  $7.0 \times 10^9$  Bq/ml)  
(参考; チェコ・ヤヒモフ(源泉);  $1.05 \times 10^8 \text{Bq} (^{222}\text{Rn})/\text{ml}$ , 山梨・増富温泉;  $1.60 \times 10^2 \text{Bq}/\text{ml}$ )

13

### ◆異常事象と想定事故

#### ○再処理工程の異常事象、事故

- 経年劣化と計画更新
- 材料腐食と固体粒子による詰まり

プロセス化学に関連した事象例としては、

- 第3相界面クラッドの生成とその解消法
- $\alpha$  核種テーリング現象とその解決法
- Heavy Oilの生成とPu回収法
- ヒドラジンによる突沸現象とその解決法
- 高レベル廃液蒸発濃縮缶のフォーミング現象

#### ○想定事故の例 (GE社の想定事故1967.11.16提出、エネ総研報告書(昭和58年5月)より)

- 溶解液貯槽での臨界事故
- 高放射性廃液蒸発缶の爆発 (Red Oil)
- イオン交換樹脂の火災
- 溶媒火災
- アスファルト固化物の火災
- ヨウ素反応器からのヨウ素放出
- プルトニウム蒸発缶の爆発 (Red Oil)

14

## ◆今後の再処理; 湿式法・乾式法の比較

	利点 <sup>ab</sup>										
	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	(6)	(7)	(8)	(9)	(10)	(11)
<b>湿式</b>											
沈殿法					×	×		×	(×)	×	×
溶媒抽出法	×		×	×	×	×	×	×	×	(×) <sup>c</sup>	×
有機イオン交換法	×		×	(×)	×			(×)	×		
無機イオン交換法	×		×	(×)	×	(×)		(×)	×	×	
<b>乾式</b>											
ゾーンメルティング法		×		×		×					×
溶融塩法 (高温冶金法)	×				×				×		
フッ化物揮発法		(×)	×	×	×						×

- a (1) Flexible, i.e., able to meet varying requirements; (2) compact; (3) high degree of separation; (4) tractable wastes; (5) operation at or near ambient temperature; (6) suited to high levels of radioactivity; (7) continuous operation feasible; (8) suited to remote operation; (9) no major corrosion problems; (10) no fire or explosion hazard; and (11) demonstrated on industrial scale.
- b X denotes advantage; (X) denotes possible or limited advantage.
- c Hazards with some solvents, but not with TBP in a high-boiling, high flash-point diluent.

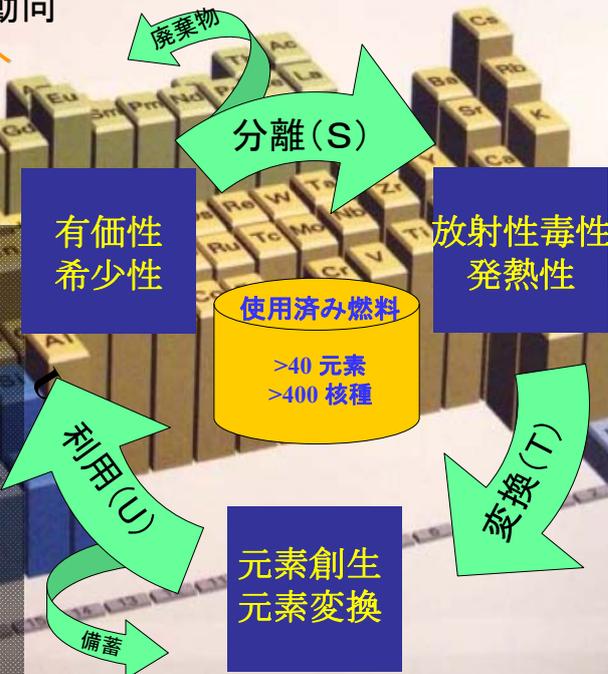
15

## ■分離・変換の新動向

P&T から S&T,U へ

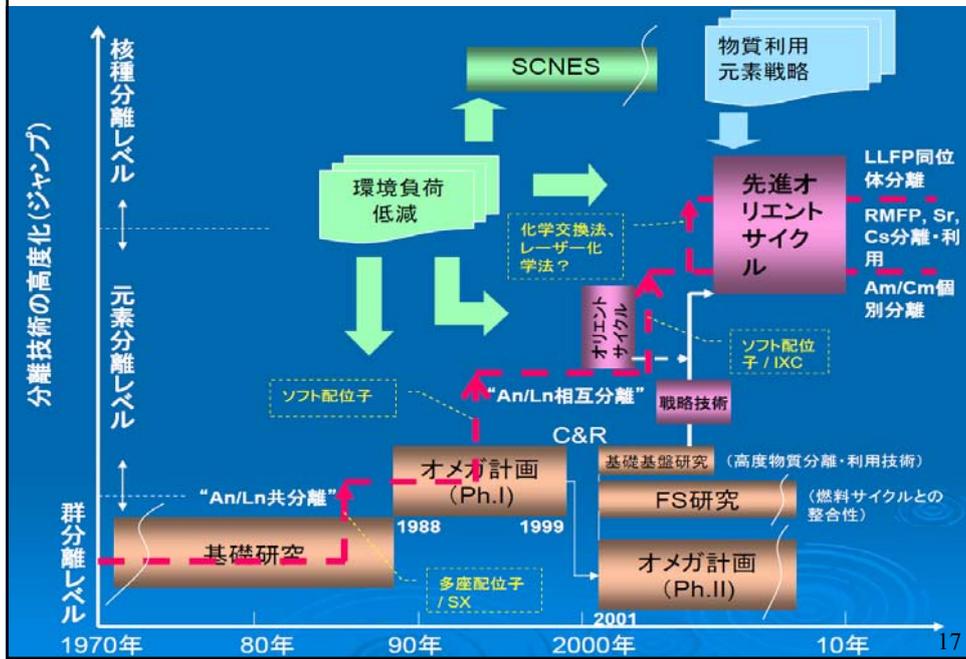
物質利用に関連する各国の新動向

- ・アメリカ; 原子力医学構想 ( $^{90}\text{Y}$ ,  $^{98}\text{Mo}$ ), 新原子力電池開発 ( $^{238}\text{Pu}$ , 他)
- ・インド; Pd 分離
- ・ロシア; Tc ルネッサンス  $^{99}\text{Tc}(n, \beta^-)^{100}\text{Ru}$
- ・IAEA; INPRO 研究 (MA, Tc の分離変換, Pd, Cs, Sr の分離) IAEA Nuclear Power Newsletter, Vol.3, No.4, Dec. 2006
- ・日本; 元素戦略計画 (2007~; 非原子力分野)

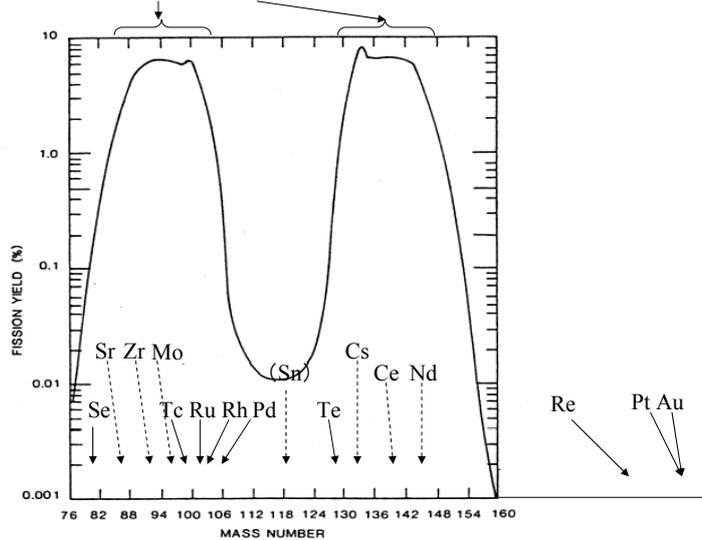


16

## ■ 我国における分離研究(原子力)の変遷



## ◆ 熱中性子による<sup>235</sup>Uの核分裂収率



Mass yield curve for the fission of <sup>235</sup>U with thermal neutrons (Choppin et al.,(1980))

## ■原子力レアメタル(NRM ; Nuclear Rare Metals )

Definition as Rare Metals in Japan ; 47 elements, including 17 rare earth

Definition as Nuclear Rare Metals (tentative) ;31 elements in >10g/t,

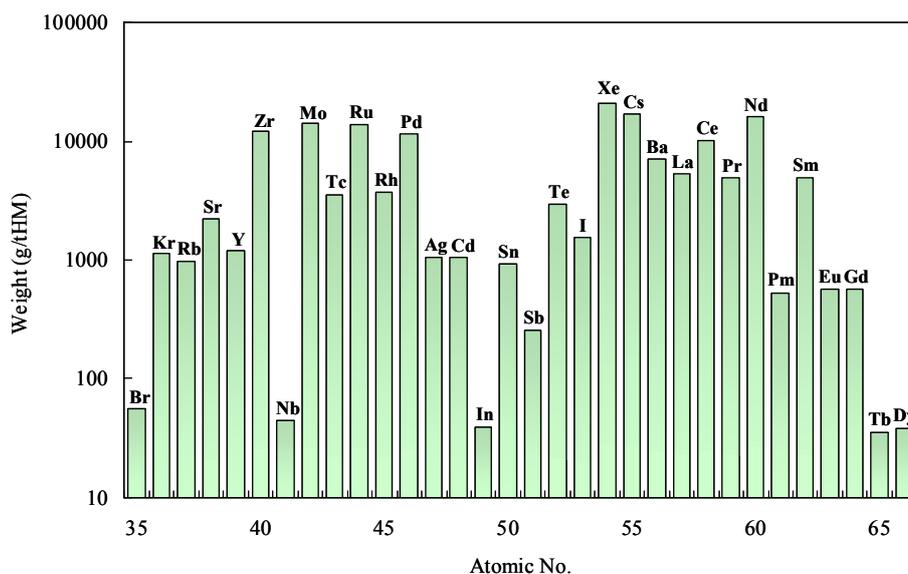
e.g.,excluding Noble gas, Halogen, Cd, Sn, Sb, Bk, Cf

Group	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
Period																		
1	1 H	FP																2 He
2	3 Li	4 Be	Actinides										5 B	6 C	7 N	8 O	9 F	10 Ne
3	11 Na	12 Mg											13 Al	14 Si	15 P	16 S	17 Cl	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★ Tc	44★ Ru	45★ Rh	46★ Pd	47★ Ag	48★ Cd	49★ In	50★ Sn	51★ Sb	52★ Te	53★ I	54★ Xe
6	55★ Cs	56★ Ba	57-71★ La-Lu	72 Hf	73 Ta	74 W	75 Re	76 Os	77 Ir	78 Pt	79 Au	80 Hg	81 Tl	82 Pb	83 Bi	84 Po	85 At	86 Rn
7	87 Fr	88 Ra	89-103★ Ac-Lr	104 Rf	105 Db	106 Sg	107 Bh	108 Hs	109 Mt									
Lanthanides																		
Actinides																		

19

## ◆使用済み燃料(SF)中のNRM生成量

FBR MOX, Inner core, 150GWd/t, cooled 5 years



20

## ■SFを“鉱脈”とみると

元素名	鉱石中の含有率 (ppm)	軽水炉使用済燃料中		FBR使用済燃料中		備考*2
		含有率(ppm)	比*1(-)	含有率 (ppm)	比*1(-)	
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
Mo	140	4,021~6,059	36	8,966	84	モンゴルのコルデネット鉱山実績
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
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
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
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1~8%より算定

\* 1: 鉱石中の含有率に対する使用済燃料の含有率の比を、それぞれの中間値にて算出。  
 \* 2: 鉱石中の含有率、備考欄の想定などは、石油天然ガス・金属鉱物資源機構の「世界の鉱業の趨勢 2005」(平成17年8月)に基づく。

21

◆一般鉱石と原子力鉱石の相違点;  
 Sustainable Governance(4つの視点:  
 品位、生産技術、環境負荷指数、放射能)  
 から考える

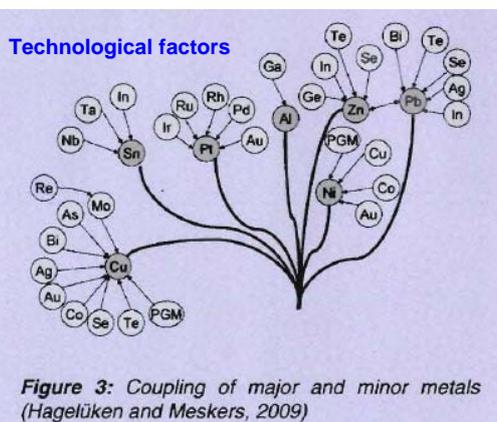


Figure 3: Coupling of major and minor metals (Hagelüken and Meskers, 2009)

P.Wager, et al., Sustainable Governance of Scarce Metals, R'09 Twin World Congress (2009).

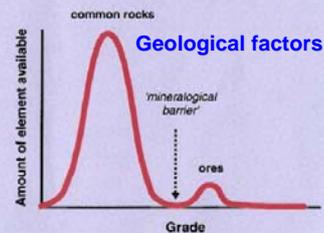
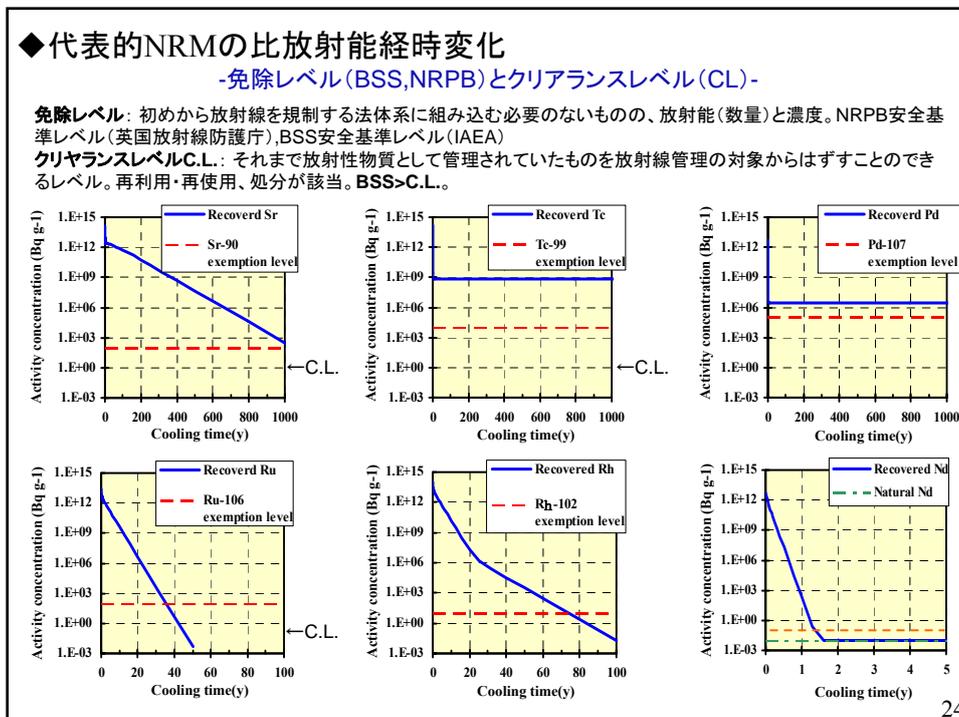
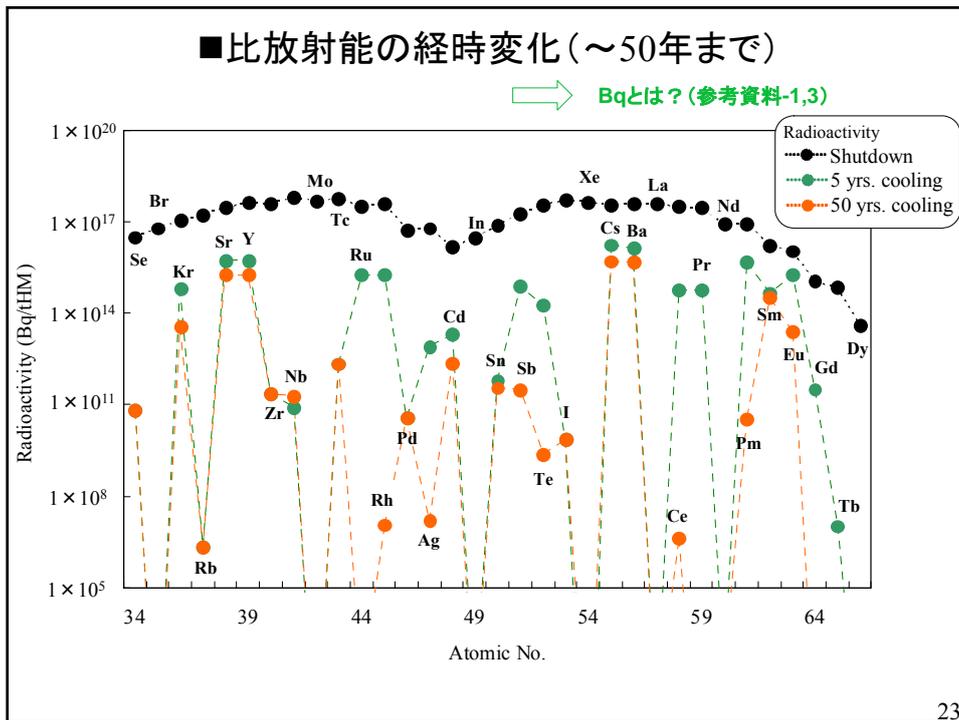


Figure 2: Distribution of geochemically scarce metals in the earth crust (Sklarner, 1976)

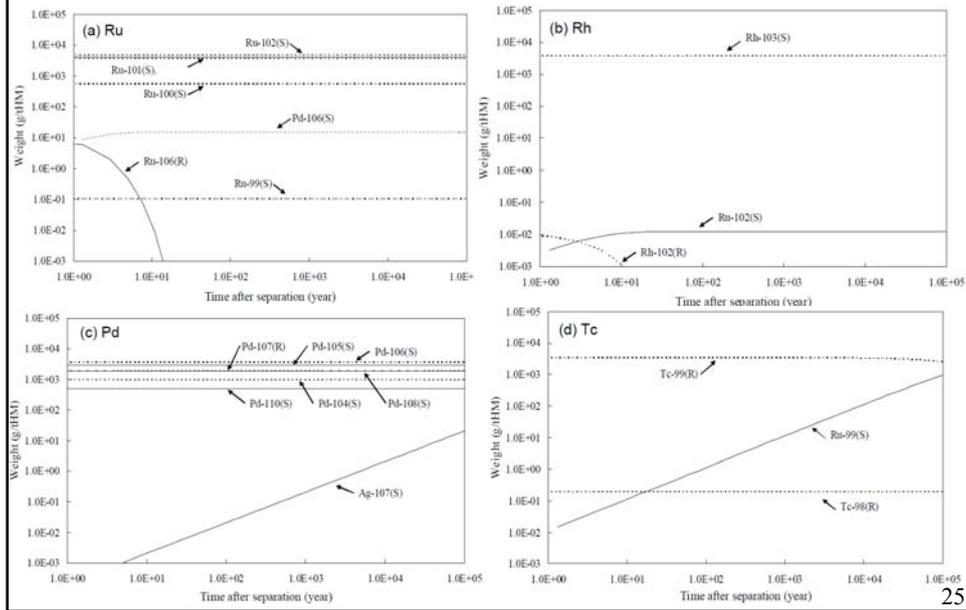
Table 1: Specific greenhouse gas emissions and aggregated environmental impacts of primary metals production (source: ecoinvent 2.0)

Ecological factors	Greenhouse gas emissions [kg CO2-Eq / kg]	Environmental impacts [Ecolindicator'99 - points / kg]
<b>Major (base) metals</b>		
Aluminum (from plant)	12	0.78
Lead (at regional storage)	1.1	0.16
Zinc (at regional storage)	3.4	0.90
<b>Minor (scarce) metals</b>		
Gallium (at regional storage)	190	11
Gold (at regional storage)	13'000	1'600
Indium (at regional storage)	160	33
Neodymium (neodymium oxide, at regional storage)	34	3.2
Palladium (at regional storage)	9'900	9'600
Tantalum (at regional storage)	280	20

22



## ◆代表的NRMの同位体組成の経時変化



25

## ■NRMの放射化学特性

FBR MOX, Inner core, 150GwD/t, cooled 5 years

### Ru, Rh ; Short-lived FP

After 40 years stockpile, radio-activity of Ru will become at below than exemption level (BSS).  
By element separation of Pd/Ru, stable Ru and pure  $^{106}\text{Pd}$  isotope will be obtained.

After 80 years stockpile, radio-activity of Rh will become at below than exemption level (NRPB).  
By element separation of Rh/Ru, stable pure  $^{103}\text{Rh}$  and  $^{102}\text{Ru}$  isotopes will be obtained.

### Pd, Tc ; Long-lived FP

Low radio-toxicity (e.g., Exemption Level  $\geq 10^4\text{Bq/g}$ )  
 $^{99}\text{Tc}$ :  $10^4$ (BSS)  
 $^{107}\text{Pd}$ :  $10^5$ (NRPB)

### La, Nd, Ru\*, In\*, Pr\*, Gd\*, Tb\* (\*after 50 years) ; Very low radio-active FP

Less than  $0.1\text{Bq/g}^*$ . Note that radio-activity of a hot-spa water of Jachmov / Czech for cure is  $10.5\text{Bq }^{222}\text{Rn/ml}$ .

Seem to become highly strategic and important resources in the forefront industries.

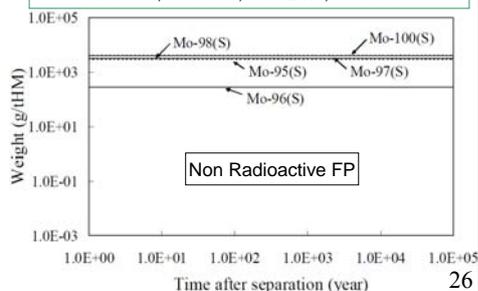
### Cm, Cs-Ba, Sr-Y, Rh, Eu, Cf ;

High Radiation & Exothermicity (e.g.,  $>0.1\text{W/g}$ )  
 $^{137}\text{Cs}$ , as instead of  $^{60}\text{Co}$

### Mo, Dy, Er, Yb ; Stable FP

Would be of great value. Higher order isotopic abundance of FBR Mo would be beneficial for production of  $^{99}\text{Mo}$ ( $\rightarrow^{99\text{m}}\text{Tc}$ ).

Natural Mo(%);  $^{92}\text{Mo}$ :14.8,  $^{94}\text{Mo}$ :9.25,  $^{95}\text{Mo}$ :15.9,  $^{96}\text{Mo}$ :16.6,  $^{97}\text{Mo}$ :9.5,  $^{98}\text{Mo}$ :24.1,  $^{100}\text{Mo}$ :9.63



26

## ■先進的(環境負荷低減)分離技術

- 1) ソフト&ソルト・フリープロセス
  - 常温・常圧プロセス
  - 湿式プロセス(現段階では、非SXプロセスに統一)
  - グリーンケミストリー(二次廃棄物低減化プロセス)
- 2) 物質の高度分離(高除染、高回収、高純度)を達成
- 3) 媒体としては硝酸に加え、塩酸、他を許容する
- 4) 既往工学装置類の利用(工学的“冒険”はしない)
- 5) (核変換・利用のための)LLFPの同位体分離に挑戦する
- 6) An分離及びガラス固化プロセスの双方に共通する妨害核種(白金族、Tc、Cs他)については、主(アクチニド)分離の前段で分離する



- 1) 優先分離対象NRM;
  - 軽白金族(Ru,Rh,Pd),Tc, Mo, Zr
  - 希土類元素(Y, La~Dyまで)
  - Cs, Sr
  - アクチニド(UからAm,Cmまで)
- 2) 分離手法;
  - (元素分離)固体吸着法(S)、イオン交換クロマト法(IXC)、電解法(EE)、溶媒抽出法(SX)(比較として)、他
  - (同位体分離)レーザー化学法(LC)、他

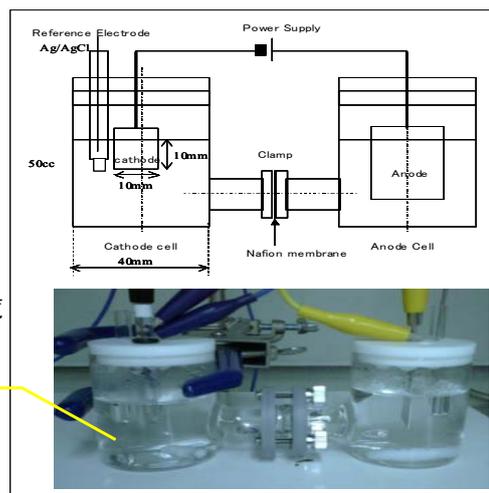
27

## ◆ 軽白金族及びテクネチウムの分離

### (1) 触媒的電解採取法(CEE)

- 1/ 基本的に放射線場の影響を受けない
- 2/ アクチノイド/Cs/Sr/Other FPsとの分離が可能
- 3/ 二次的廃棄物発生量が少ない
- 4/ (定電流電解法の場合)工学的展開が容易
- 5/ 白金族の製造で産業実績が豊富(ほぼ100%。電気化学便覧第5版、pp.9-10、平成12年)

Catholytes ;  
S・HLLW etc, for electrolytic extraction runs  
NaOH or Sea Water in the case of H<sub>2</sub> production runs

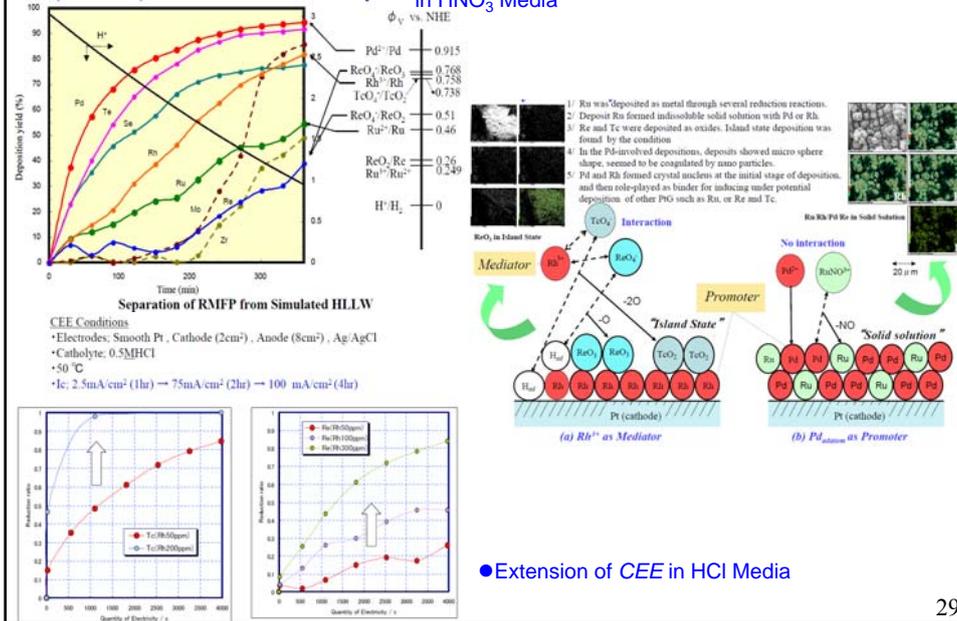


Electrolytic Cell employs for Separation of RMFP from Simulated HLLW and for Generation of Hydrogen by Electrolysis

28

## CEE (2)

- Basis of CEE (Catalytic Electrolytic Extraction) utilizing UPD (Under Potential Deposition) effect in HNO<sub>3</sub> Media



29

## CEE (3); 共存イオン種 による析出促進効果の違い(塩酸溶液系)

CEEの発現は金属によって異なる;

1/ PdのCEE効果 → 大:Ru、中:Tc\*、小;Re \*ロシアKRI 共同研究データ(硝酸系)

2/ RhのCEE効果 → 大:Ru、Re、Tc

3/ Re(Tc?)及びRuにはCEE効果はない。Pd,Rh間は競争的

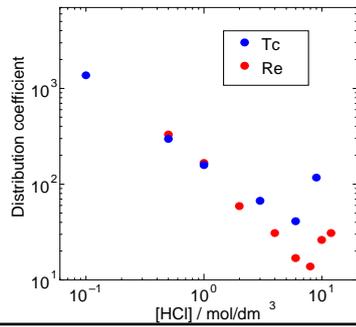
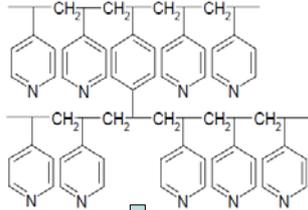
Run	RMFP	Reduction Ratio (%)				
		Pd	Ru	Rh	Re	Tc
1	Pd	97.8	—	—	—	—
2	Ru	—	17.6	—	—	—
3	Rh	—	—	90.2	—	—
4	Re	—	—	—	13.2	—
5	Tc	—	—	—	—	57.5
6	Pd-Ru	>99	>99	—	—	—
7	Pd-Rh	99.1	—	98.9	—	—
8	Pd-Re	99.1	—	—	17.6	—
9	Ru-Rh	—	99.2	93.5	—	—
10	Ru-Re	—	6.8	—	11.3	—
11	Rh-Re	—	—	92.2	41.6	—
12	Rh-Tc	—	—	>99	—	99.7
13	Pd-Ru-Rh-Re(3.5:4:1:0.5)	>99	83.3	>99	91.4	—
14	Pd-Ru-Rh-Tc(3.5:4:1:0.5)	>99	86.9	>99	—	68.9

CEE Conditions; Electrodes; Smooth Pt, Cathode (2cm<sup>2</sup>), Anode (8cm<sup>2</sup>), RE; Ag/AgCl, Catholyte; 0.5M HCl, Temp.; 50 °C, Ic; 2.5mA/cm<sup>2</sup> (1hr) → 75mA/cm<sup>2</sup> (2hr) → 100 mA/cm<sup>2</sup> (4hr)

30

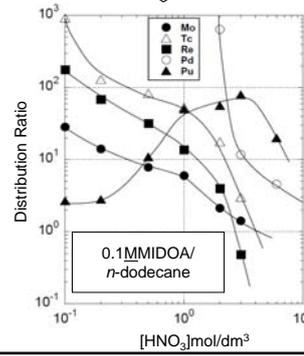
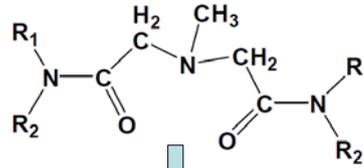
## イオン交換クロマト分離法 (IXC) 及び 溶媒抽出法 (SX)

Tertiary Pyridine Resin (TPR)



MIDOA

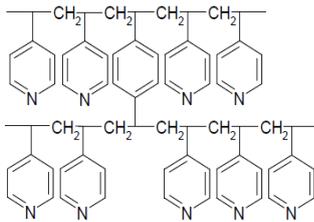
(Y. Sasaki, et al., *Chem. Lett.* **36**, 1394 (2007).)



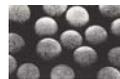
31

## ◆ アクチニド及びランタニドの分離

(1) 3級ピリジン樹脂の基本特性

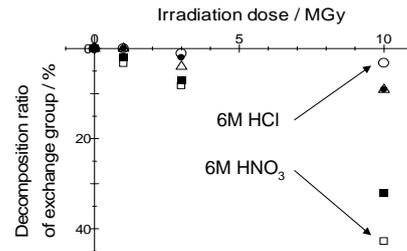
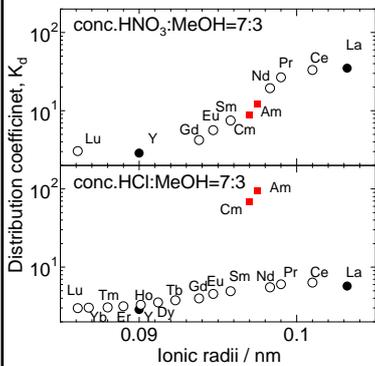


Radiation Stability  
HNO<sub>3</sub> vs. HCl  
media



High Porous Silica  
Carrier φ 60 μm

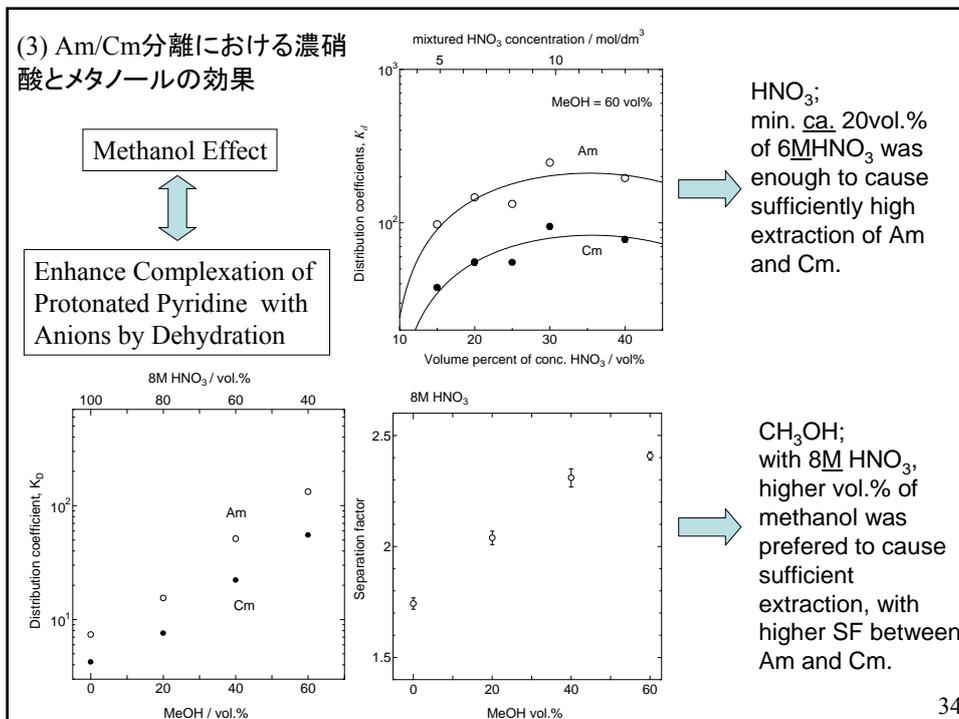
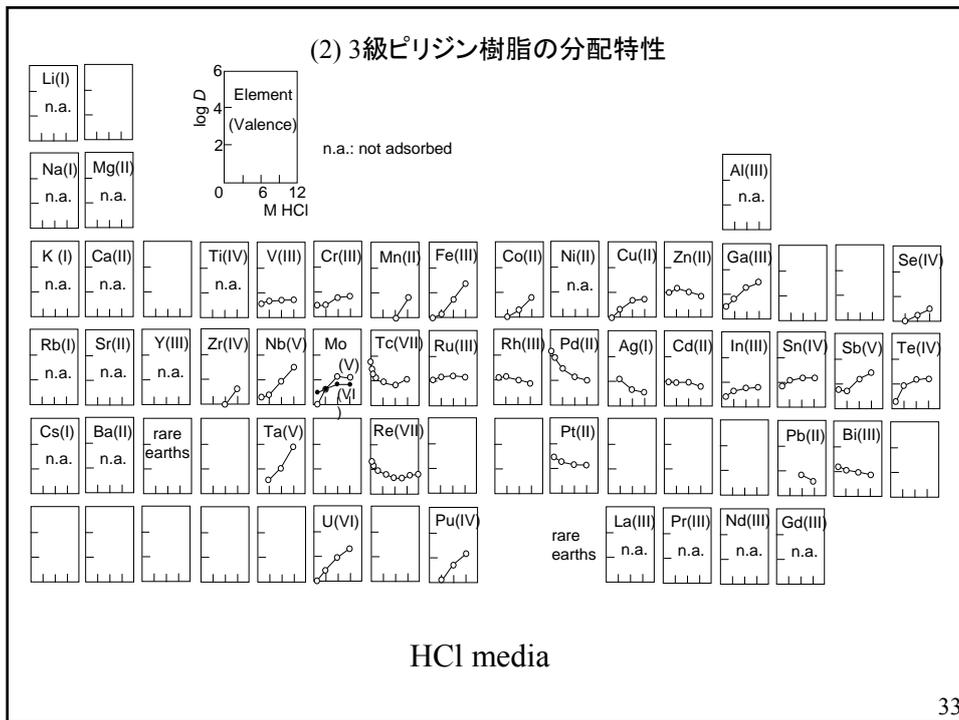
Separability  
HNO<sub>3</sub> vs. HCl  
media

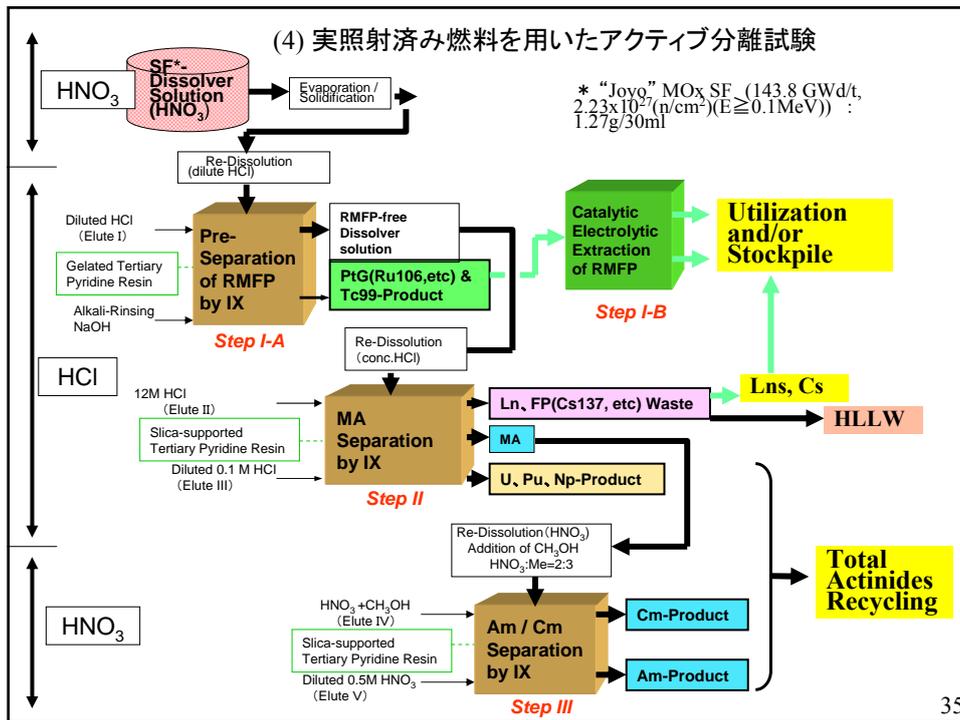


• HNO<sub>3</sub> 中では, 分離係数はイオン半径のみに依存する。

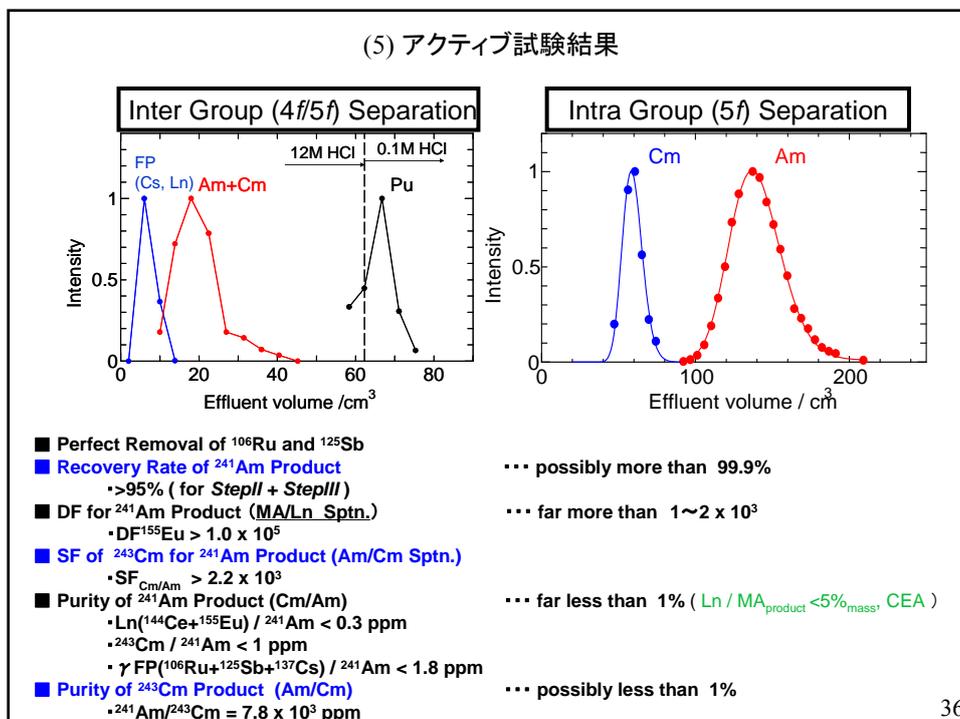
• HCl 中では, 分離係数は、イオン半径ではなく、むしろ 4f / 5f 元素のソフト性の差異に依存する。

32



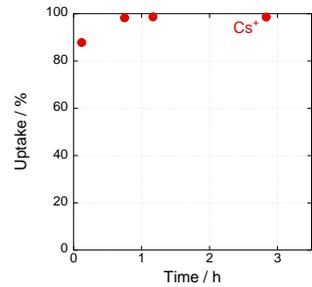
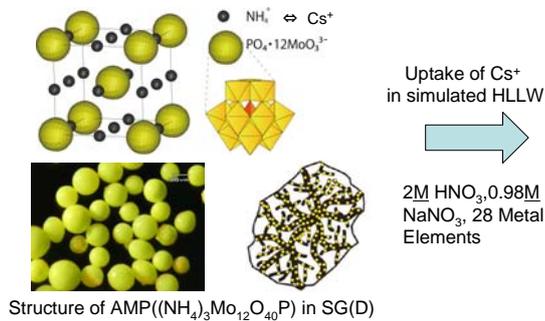


35

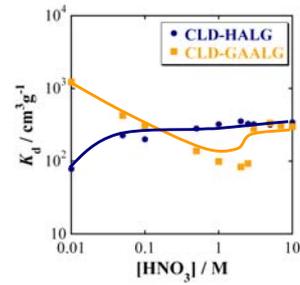
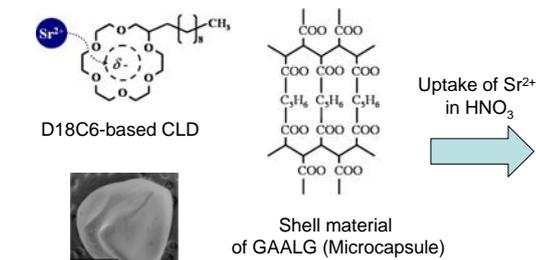


36

## ◆ セシウム及びストロンチウムの分離



Time dependency on uptake of Cs<sup>+</sup>



Acid dependency on uptake of Sr<sup>2+</sup>

Structure of CLD-GAALG

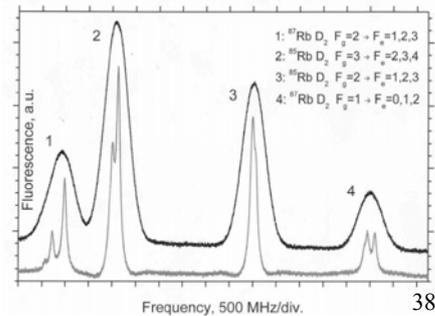
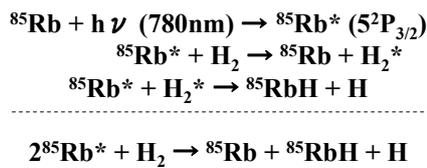
37

## ■ アルカリ金属 (Rb, Cs) の同位体分離研究

ISTC Collaboration with IP, Armenian Academy of Science (2002-2004)

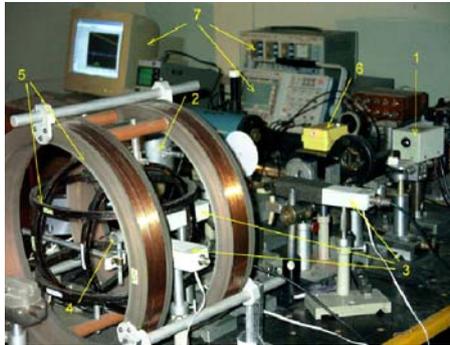


### Laser-chemical Isotope (<sup>85</sup>Rb) Separation - Mechanism



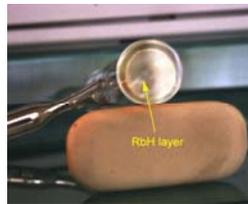
38

◆ レーザー化学法 (LCIS) による<sup>85/87</sup>Rbの同位体分離



1: 波長可変ダイオードレーザー、2: Rb(Cs)セル、3: 発光ダイオード、5: 交互直交ヘルムホルツコイル

Desk-top LCIS Equipments



<sup>85</sup>RbH Deposits at the Cell Window

Item	Figure
Rb vapor density	$5 \times 10^{14}$ atom/cm <sup>3</sup>
H <sub>2</sub> density (converted into pressure)	5 Torr
Cell temperature	220~240°C
Laser power, Irradiation time	50mW, 30min~2.5hour
<sup>85</sup> Rb ratio	72% (Before exp.) 98.4% (After two exps.)
<sup>87</sup> Rb ratio	28% (Before exp.) 1.6% (After two exps.)

$$\frac{Y/(1-Y)}{X/(1-X)}$$



Head Separation Factor was 2.99 (1st), and 23.9 (2nd)

■ NRMの利用(過去の調査例)

表-1 動力炉より発生する燃料中にふくまれる元素ならびにRIの価値評価 (BNWL-25より引用)

元素あるいはRI	可能性のある用途	半減期(年)	比出力 (Cwt/g)	おおよその含有量 (g/ton) 25000 MWD/t の場合	見積り価格 (\$/t 使用済み燃料)	ペーパーリー数 (x10 <sup>6</sup> ) 10 <sup>6</sup> MWD の場合
Kr-85	特殊照明, 放射線源	10.4	0.54	1.7	1,700	8.7
Sr-90	熱源, 放射線源	28	0.95	4.11	822	
Tc-99	耐食材料, 合金材	$2.1 \times 10^5$	-	628	628	
Rh	工業, 電気および装飾関係	安定	-	337	674	
Ru	工業ならびに電気関係	安定 (+1yRu-106)	-	1,707	354	
Pd	工業, 電気および装飾関係	安定	-	976	244	
Xe	特殊照明	安定	-	3,987	1,196	
Cs-137	熱源, 放射線源	30	0.42	950	950	
Ce-144	熱源, 放射線源	0.78	25.6	241	260	
Pm-147	熱源, 放射線源	2.6	0.33	133	335	
U-238	親物質	$4.5 \times 10^9$	-	$8.9 \times 10^5$	0	12.3
U-236	Np-237の標的	$2.4 \times 10^7$	-	3277	36,070	
Np-237	Pu-238の標的	$2.2 \times 10^6$	-	316	6320	
Am-241	熱源 (Cm-242の標的)	488	0.1	56	2,800	
Cm-242	熱源 (縮減してPu-238となる)	16.8日	120	23	3,450	
Am-243	Cm-244の標的	7,650	-	87	39,120	
Cm-244	熱源	176	2.8	22	19,800	
Pu-238	熱源	90	0.56	-	3,450	
Pu-239	核分裂性物質	$2.4 \times 10^4$	-	5,453	49,100	
Pu-240	親分物 (Pu-241の原料)	$6.8 \times 10^3$	-	1,517	7,585	
Pu-241	核分裂性物質 (Am-241の原料)	13	-	1,412	24,000	
Pu-242	Am-243の標的	$3.8 \times 10^5$	-	386	15,050	

表-2 地球上におけるRIのエネルギー利用

出力レベル	使用するRI	応用の分野	応用の測定基準
Microwatts	Pu-238	心臓のペースメーカー, 生医学的計測	長寿命, 信頼性, 安全性
100 ~ 1000mW	Pu-238, Sr-90, Pm-147	海洋学の計測, ケーブル用電源, 水中兵器	信頼性, 安全性
10 ~ 200watts	Sr-90	同位体, マイクロ波自動中継所, 海洋学の地質観測と計測	信頼性, 安全性
1 ~ 10 KW	Co-60, Sr-90, Ce-144	同位体の支援施設, 探査探査と調査, 軍用通信	信頼性, 安全性

出典:  
PNCT-7099(1970)  
BNWL-25(1965)

◆ロシアにおける $^{90}\text{Sr}$ 及び $^{238}\text{Pu}$ の利用例



**$^{90}\text{Sr}$  Battery (KRI)**  
23,000Ci  $^{90}\text{Sr}$  150W



**$^{238}\text{Pu}$  pacemaker (KRI)**  
ca.150mgPuO<sub>2</sub>  
 $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}(\beta^-) \rightarrow ^{242}\text{Cm}(\alpha) \rightarrow ^{238}\text{Pu}$

旧フロービンラジウム研究所本部にて撮影

◆人工元素、テクネチウム(Tc-99)の利用

アメリカ

- 1/ NASAのW/Tc合金開発プロジェクト(1964)  
TcのWへの延性付与、Reより優れる。ジェットエンジン合金の改良
- 2/ その他、常磁性、高温超伝導性、対腐食抑制効果、Tc合金コイルの医学利用に注目。



➡ Prof. V. Peretroukhin checks the electric battery based on  $\beta$ -emission of technetium-99

ロシア

- 1/  $\beta$ -emission を利用する 長寿命Tc電池 (1978-1983, O.Balakhovsky)
- 2/  $\beta$ -Sourcesを利用する眼球の欠陥検査及び医学療法 (1983 - 1993, K. Bukov)
- 3/ 腐食抑制剤 (1960-1975, Kuzina)
- 4/ 付着抑制剤 (1975 - 1987, S.Bagaev, S.Kryutchkov, K.German)
- 5/ Tc 触媒 (1975 - 2000, G. Pirogova)

日本

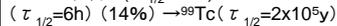
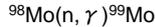
- 1/ 過去に利用研究実績なし。
- 2/ 水素製造触媒利用の研究開始(JAEA, 2002-)。その他の電極触媒利用研究開始 (JAEA, 2008-)

## 99mTc

### 99mTcの製造法

(1) FPからの分離:  $^{235}\text{U}$ 高濃縮U(90%)/Al合金の中性子照射、無担体 $^{99}\text{Mo}$ を分離する(クロマトグラム法)。300TBq/g以上の放射能の製造。約100GBq/g(担体 $\text{Al}_2\text{O}_3$ )のアイソトープジェネレーターの製品化が実現。一種のイオン交換再処理を行うためのホットセルが必要。

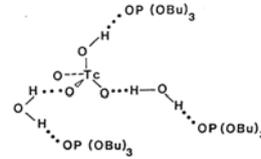
(2) 濃縮 $^{98}\text{Mo}$ の中性子照射



この反応で生ずるMoの比放射能は低い。モスクワ付近で実施

注: Gatchinaで高濃縮 $^{98}\text{MoO}_3$ を照射、KRI / St.Petersburgで照射後の $^{99}\text{MoO}_3$ を硝酸溶解、MEK(Methylethylketone)を用い、遠心抽出器により $\text{TcO}_4^-$ 塩を分離。DF>10<sup>6</sup>。生理食塩水で再溶解後、所定の化学形に変換、病院へ供給する(所定時間約4~5時間=製剤+輸送時間)

### テクネチウム錯体の例



Possible structure of  $\text{TcO}_4^-$ -TBP extraction complex.

$^{99\text{m}}\text{Tc}$ 標識化合物(放射性医薬品); Tcの高錯体形成能を利用。錯体の血流移動。腫瘍に集積。短半減期(6h)の $\gamma$ 線を利用して追跡。1964年から実用化。

### Tc-99m核医学診断法(抜粋)

化学形または化学結合	利 用
過テクネチウム酸塩	シンチグラフィ(甲状腺・胃・脳腫瘍・唾液腺)、甲状腺機能診断
ポリリン酸塩またはヒソリン酸メチレン	シンチグラフィ(骨) <b>骨イメージ</b>
硫黄コロイド	シンチグラフィ(肝臓・脾臓)
イミノニ酢酸塩	機能診断(肝臓・胆管)
チオグルコース、ジメルカプトコハク酸	シンチグラフィ(腎臓)
アスコルビン酸鉄錯体	シンチグラフィ(腎臓)
エチレンジアミンテトラアセタ錯塩 EDTA	シンチグラフィ(腎臓・脳腫瘍)
グルコヘプトナト錯塩	機能診断(腎臓)
アルブミン顆粒	シンチグラフィ(肺)
フィチン酸塩(モノイノシット六リン酸塩)	シンチグラフィ(肝臓・脾臓・骨髄)、血球の標識

43

## カナダの原子炉停止で放射性検査薬が供給不安に

2007年12月14日 読売新聞

<http://www.yomiuri.co.jp/iryou/new>

OYT8T00797.htm



$^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$ は種々の化学形に容易に変換できる長所。我が国は $^{99}\text{Mo}(\beta, \gamma)$ ( $\tau_{1/2}=66\text{h}$ )を毎日輸入。生理食塩水でMoから溶離(カウミルキングによるアイソトープジェネレータ)。

がんや心臓病の検査など医療現場で広く使われる放射性物質「モリブデン99」が、世界的な供給不安に陥る可能性が出てきた。

生産拠点であるカナダの原子炉が、11月中旬から管理上の問題で停止したためだ。

モリブデン99から作る製剤での医学検査は、日本国内で年間約100万件も実施されており、放射性医薬品メーカーなどでつくる日本アイソトープ協会が医療機関に緊急連絡を出すなど対応に追われている。

停止したのはカナダ原子力公社のオンタリオ州にある研究炉。モリブデンに放射線を照射して「99」を生産、世界の半分の生産量を占めている。

カナダ原子力安全委員会による11月の立ち入り検査で安全装置の不備が発覚、停止に追い込まれた。カナダ議会は12日、運転を120日間暫定的に認める緊急法案を可決。今月20日前後にも再稼働が可能になる見込みだが、その後の供給体制も不安を残したままだ。

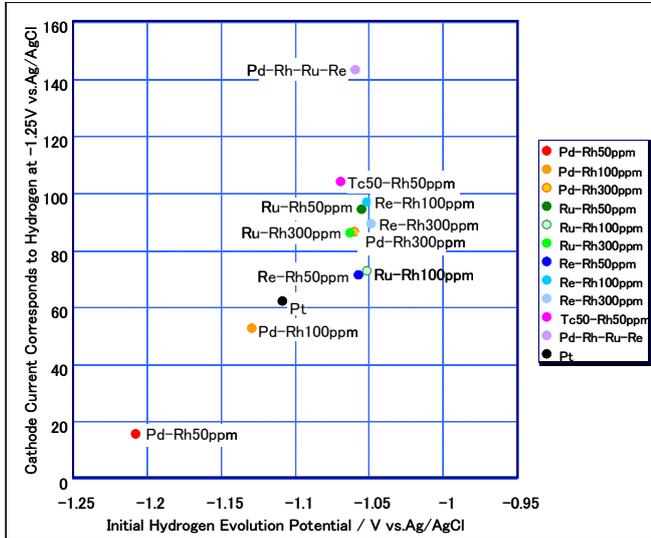
「99」が原料のテクネチウム製剤は医療現場で診断に広く使う。「99」の半減期は約67時間、テクネチウム製剤の半減期は7時間と長期貯蔵が不可能。国内生産していない日本は毎週、カナダから空輸している。

AP通信によれば、今回の停止により、米国では多くの病院で、検査件数が通常の2~3割に落ち込んだという。日本も輸入元が代替入手先の確保を急いでいるが、これまでほぼ全量をカナダに依存し、他国の生産はいずれも少量のため、同協会は「17日以降、必要量を安定的に確保できるかどうかは不透明」とみる。

京都大薬学部の佐治英郎教授は「テクネチウム製剤は検査に欠かせない薬。日本でも研究炉などを利用して、緊急時に国内生産・供給できる体制を整えるべきだ」と話している。

44

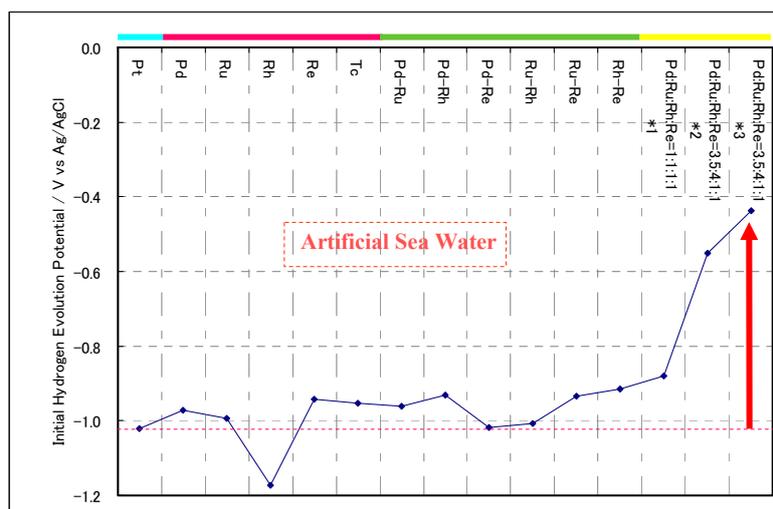
◆析出NRMの水素製造触媒活性;アルカリ水の電解



Catalytic ability of RMFP deposit electrodes on electrolytic H<sub>2</sub> production

- 1/ 単味よりも混合析出物の活性が高い(混合効果)
- 2/ -1.05Vが水素発生電位の限界電位と考えられる。
- 3/ 2元系ではTc-Rh及びRe-Rhの活性が高い。Tc及びReは二元系ではPd及びRuの代替となる可能性が高い。
- 4/ Pd-Rh系では、表面Rh原子数が多いほど活性が増大する。しかしながら、Pdは活性に寄与しない
- 5/ 活性支配元素はRh及びRuの可能性が高い
- 6/ 硝酸起源よりも塩酸起源のTc(金属?)の活性が高い(→今後確認する必要あり)
- 7/ 4元析出系触媒の活性は白金電極(平滑及び白金黒)を上回る。平滑白金の2倍程度。人工海水の電解でも同様な傾向
- 8/ 4元析出系触媒は安定な球状析出で、水素吸着席が著しく多く、電解時の過電圧が著しく小さい(反応抵抗が小さい)

◆析出NRMの水素製造触媒活性;人工海水の電解



\*1 Pd:Ru:Rh:Re = 1:1:1:1 \*2 Pd:Ru:Rh:Re = 3.5:4:1:1;Pd/(Ru+Rh+Re)=1.6 Block Addition of Pd<sup>2+</sup>  
 \*3 Pd:Ru:Rh:Re = 3.5:4:1:1 ;Pd/(Ru+Rh+Re)=1.6 Divided Addition of Pd<sup>2+</sup>

Initial Hydrogen Evolution Potentials on Various RMFP deposit Pt Electrodes

## ■利用に向けての新視点

### 1/ 非核的利用。安定、短寿命、低放射性毒性( $\beta^-$ )のもの

- Rh; 有用、最高価格元素
- Ru; 極めて有用、有望
- Pd; 有用、低毒性、最小限の管理
- Tc(Tc-99); 未知、限定的管理、Re代替元素
- Mo; 非放射性、核医薬品Tc-99m源
- 希土類(La, Nd, Dy, ...); 微・非放射性

### 2/ 核的利用。放射線及び熱源利用

- Cs-137; 殺菌・除菌用放射線源、非破壊検査用Co-60代替線源
- Sr-90、Cs-137、Ce-144、Pu-238(深宇宙探査用動力源)、Pm-147、Am-241、Cm-242/244; 動力用熱源

### 3/ 核分裂性、燃料親物質

- Np-237、Am-241、Cm-242,244

### 4/ 同位体市場

47

◆ 同位体の市場価格 (ORNL, etc)

Element	Isotope	Price(\$/g) (A)	Price(¥/g) 27th Feb.,2003	Amount (g/THM) (B)	Abun- dance	Rad. or Stable	$\tau_{1/2}$	Solubilit y (C)	RR by CEE (D)	Property of isotopes in the spent fuel(S/THM) A*B*C*D
Tc	Tc98	3.00E+10		est. 2.66E-02	0	rad. $\beta^- \gamma$	4.2×10 <sup>6</sup> y	0.8	0.9	
	Tc99	ca.100		1.09E+03	100	rad. active f	2.1×10 <sup>5</sup> y			LLFP 7.85E+04
Ru	Ru99	39.040		2.55E-02	0					
	Ru100	43.170		1.38E-02	3.3					3.75E+06
	Ru101	35.050		1.18E+03	28.6					2.61E+07
	Ru102	20.410		1.52E+03	36.4					1.95E+07
	Ru104	27.300		1.32E+03	31.6					2.27E+07
	Ru106			1.47E+01	0.4	rad. active f	372.6d			
Rh	Rh102			4.39E-03	0					
	Rh103	29		1.28E+03	100				0.99	2.94E+04
	Rh106			1.38E-05	0	rad. active f	29.80s			
Pd	Pd104	63.800		1.71E+02	5					8.64E+06
	Pd105			9.85E+02	28.6					
	Pd106			1.07E+03	31					
	Pd107			5.67E+02	16.4	rad. active f	7×10 <sup>6</sup> y		0.99	LLFP
	Pd108			5.20E+02	15					
Se	Pd110	67.090		1.37E+02	4					7.28E+06
	Se76			3.25E-02	0					
	Se77			1.86	2.7					
	Se78			5.37	7.8					
	Se79			8.57	12.5	rad. active f	6×10 <sup>4</sup> y		0.9	LLFP
	Se80			1.67E+01	24.4					
Te	Se82			3.60E+01	52.6					
	Te122	76.850		1.37E+00	0					
	Te123	140.000	est.	5.27E-02	0	radioactive	1.3×10 <sup>13</sup> y			
	Te124	29.230		1.16E+00	0					
	Te125	16.040		2.48E+01	2.8					2.86E+05
	Te126	8.950		4.02E+00	0					
	Te128	4.340		2.25E+02	25.1					7.03E+05
Te130	4.490		6.40E+02	71.4	radioactive	2.4×10 <sup>21</sup> y			LLFP 2.09E+06	
U	U234	61,800		6.94E+01		radioactive	4.54×10 <sup>5</sup> y			
Ag		0.2	20.16							
Au		10	1,455							
Ru										
Rh	Natural									
Pd			980							
Pt		12	2,756							
Diamond		28,000	1,126,514/ct							

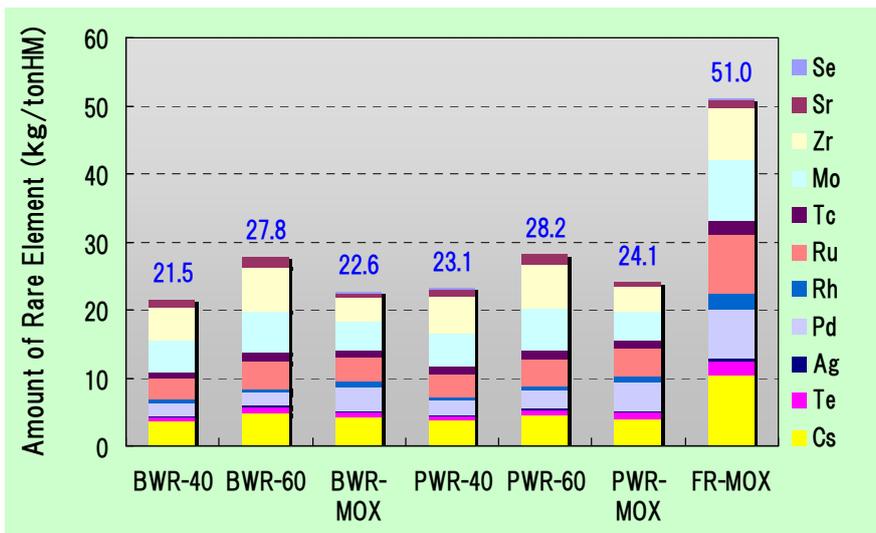
48

## ■利用“ビジネスモデル”

- 1/ 低環境インパクト分離技術 (LGET)によるレアメタル生産・利用: 現行のAu、Pd生産技術は他元素に比べ桁違いにEcological Factors (Kg CO<sub>2</sub>-Eq/Kg)が高いといわれる。ここにNRMの出番はないか?
  - 例1) Mo, Dy, La, Nd(取り出し時)、Ru, In, Pr, Gd, Tb(50年冷却後)、Rh(100年冷却後)
  - ・冷却・備蓄後利用
    - 例7) FP・Ru → RI免除レベル以下 (40年)→ クリヤランスレベル以下(50年)
    - 例8) FP・Rh → RI免除レベル以下 (80年)
  - ・冷却後高度元素分離による安定同位体生産 (ただし、Ru-99, Ru-102は $\leq 0.1\text{g/t}$ )
    - 例2) FP・Ru/Pd分離 → Pd-106(s)
    - 例3) FP・Rh/Ru分離 → Rh-103(s) 29\$/g, Ru-102(s) 20,410\$/g
    - 例4) FP・Pd/Ag分離 → Ag-107(s)
    - 例5) FP・Tc/Ru分離 → Ru-99(s) 39,040\$/g
- 2/ 安定元素希釈
  - 例6) FP・Pd → RI免除レベル以下
- 3/  $\beta$ -封じ込め利用
  - 例9) FP・Pd(Pd-107), Tc(Tc-99)
- 4/ 核種変換利用
  - 例10) Tc-99 → 安定Ru-100~102
- 5/ 低コスト同位体分離による安定核種利用
  - 例11) 原子レーザー法 → 白金族の同位体分離(LLNL, 1982)
  - 例12) レーザー化学法 → アルカリ金属以外への適用性?

49

## ◆炉型別NRM生成量

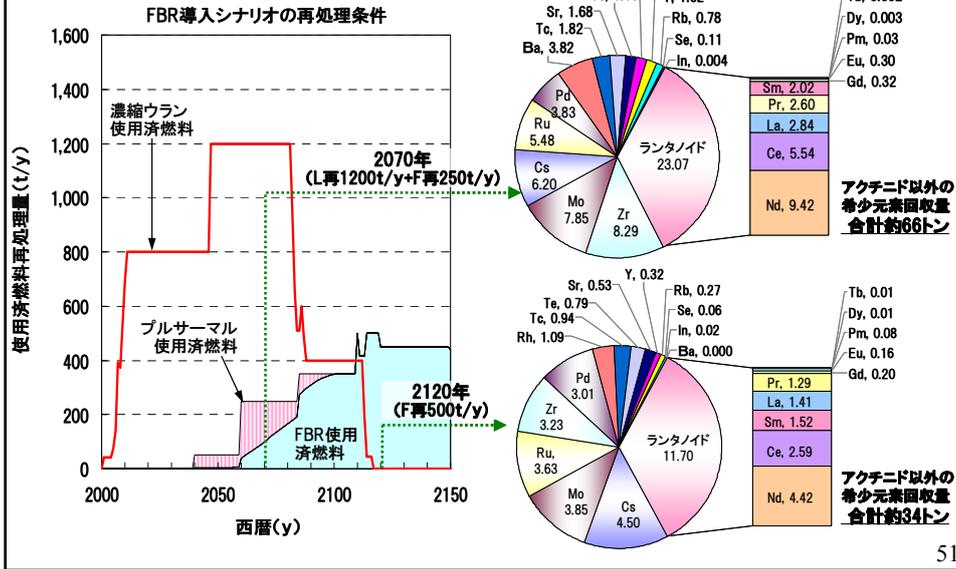


BWR-40(45,000MWd/t, 3.8%EU), BWR-60(60,000MWd/t, 4.9%EU), BWR-MOX(45,000MWd/t, 3.9%EU, 3.8%Puf)  
 PWR-40(49,000MWd/t, 4.6%EU), PWR-60(60,000MWd/t, 5.3%EU), PWR-MOX(49,000MWd/t, 3.9%EU, 5.9%Puf)  
 FR-MOX(90,000MWd/t, 0.3%EU, Inner core18.3%Puf, Outer core20.9%Puf)

50

## FBR導入シナリオによるNRM回収予測 (回収率99%として)

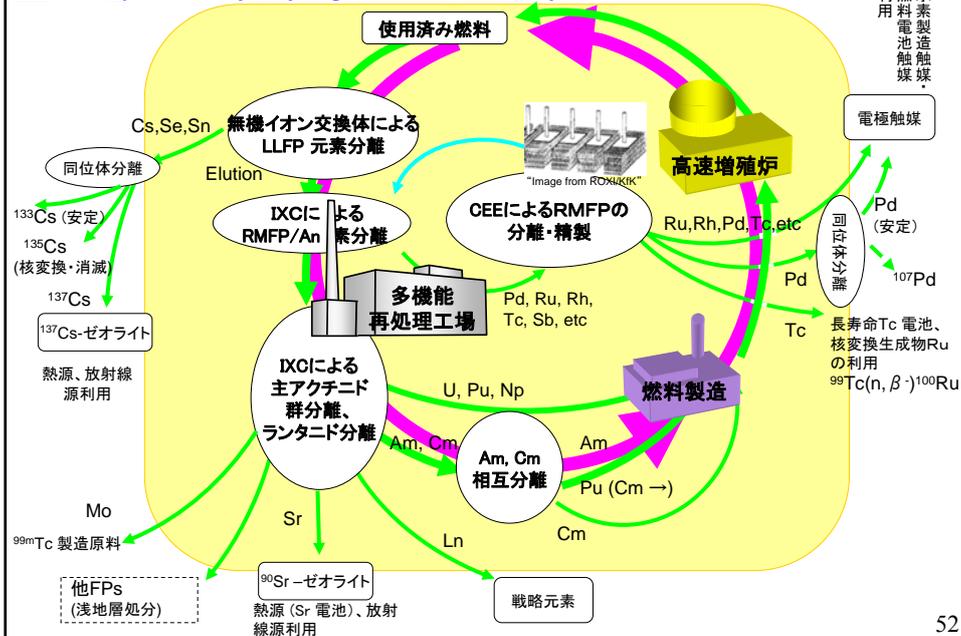
- ・白金族の我国における国内需要の例(2006); Ru:3.7t, Rh:2.7t, Pd:50.6t
- ・2070年の核燃料サイクルを想定すると、2006年需要のRu全量、Rh約40%、Pd約7%、をまかなうことができる



51

## ■新核燃料サイクルコンセプト ; Adv. -ORIENT Cycle

Advanced Optimization by Recycling Instructive Elements Cycle



52

## ■新核燃料サイクルの研究開発戦略

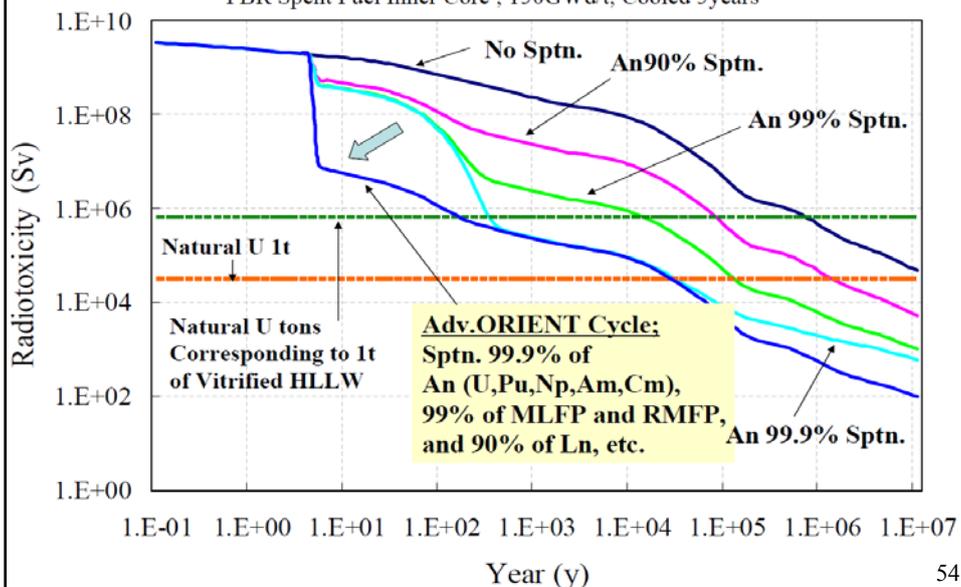
- ***Trinitarian* Research on Separation, Transmutation and Utilization (S&T,U) of Nuclides and Elements, Based on FBR Fuel Cycle. A *Copernican Revolution* on Fuel Cycle Strategy.**
- **Reduction of Volume and Toxicity of Rad. Wastes.**
  - Within a few hundred years, let the radiotoxic inventory decrease to the level of natural U tons corresponding to 1t of vitrified HLLW.
- **Multi-functional and Compact Reprocessing Process and Plant.**
  - Separate all actinides, LLFP(<sup>135</sup>Cs,etc), MLFP (<sup>137</sup>Cs,<sup>90</sup>Sr) and prioritized NRM (light PGM,Tc, Mo and Ln, etc). Target S.F. are not uniformly, as 90-99.9% .
  - Direct and deep separation of all actinides into 3-4 groups, U+Pu+Np, Am and Cm from the spent fuel.
  - High purity for NRM in utilization, low DF allowed for An in burning.
  - Hydrometallurgical Separation: Adopt *Soft* processes and *Salt-free* reagents for suppressing the secondary rad. wastes.
  - Allow hydrochloric acid media as well, for the sharp separation.
- **Challenge Isotope Separation of LLFP (<sup>135</sup>Cs, etc) and NRM.**
- **Contribute to Improve Existing Reprocessing and Vitrification Processes.**

53

## ◆Adv.-ORIENT Cycleの導入効果; 固化体毒性(Sv)の低減

Provided, 1 t HLLW(FBR)  $\cong$  60 t Natural U

FBR Spent Fuel Inner Core ; 150GWd/t, Cooled 5years



54

## ■ Vision and Strategy; One Conclusion

Through *Adv.-ORIENT Cycle*,

■ Products; **Energy** and **Nuclear Rare Metals** (\*actinides are consumed in the cycle)

5 years (at the reprocessing); **Pd, Tc** (long-lived, but low radio toxicity)  
**Mo, Dy** (non radioactive), **La, Nd** (<0.1Bq/g)  
**Cm, Cs, Sr** (highly exothermic)  
~50 years (after stockpile); **Ru** (below than exemption (BSS) level),  
**In, Pr, Gd, Tb** (<0.1Bq/g)  
~100 years (after stockpile); **Rh** (below than exemption (NRPB) level)

■ Wastes; Around **100 years**, the radiotoxic inventory will decrease to the level of natural U tons corresponding to 1t of vitrified HLLW.

, will be realized. **Low Greenhouse Gas Emission Technology** (KgCO<sub>2</sub>-Eq/Kg) seems to be Key.

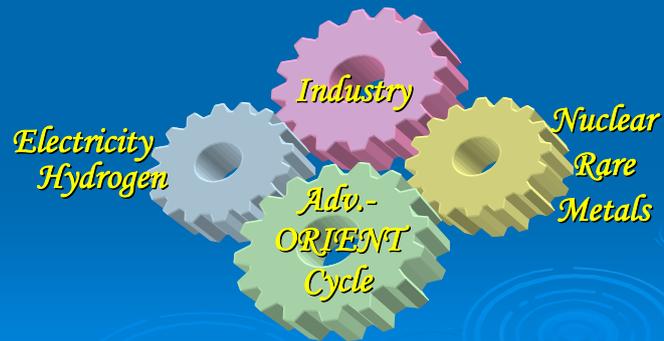
55

## まとめ

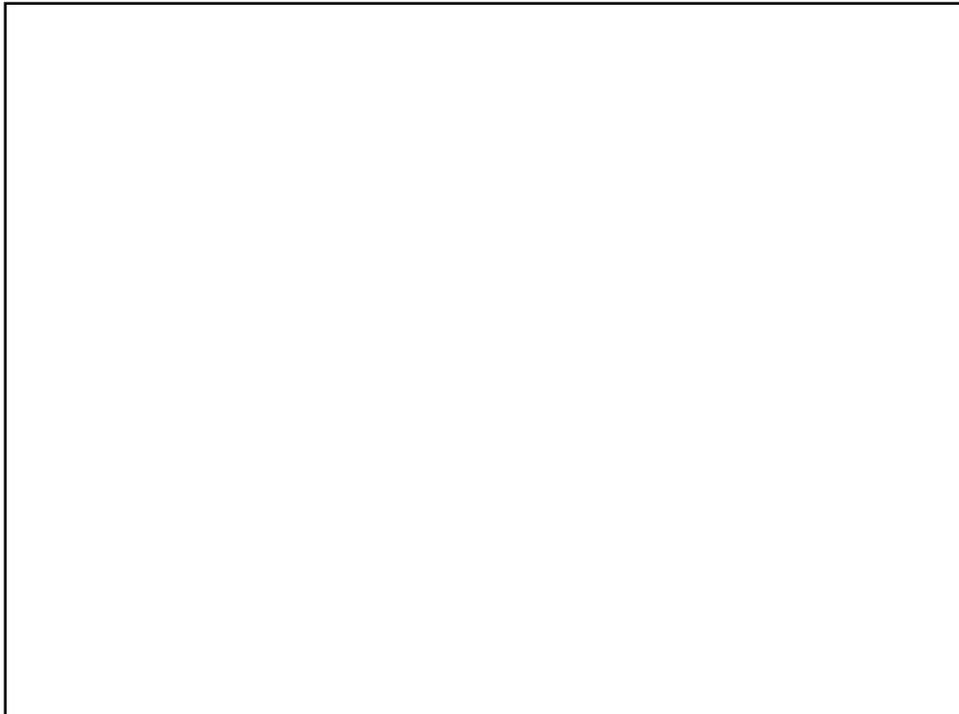
- 再処理課題(放射性廃棄物)の解決に向けての戦略; 守るより攻めろ。“負”を克服する以上に、“正”を伸ばせ!
- レアメタルは先端産業に直結した重要元素で、我国のGDPを制する。白金族、希土類及びReなどは、その資源が局在化しており、産油国における原油の取り扱い同様、“戦略物質”として扱われる可能性に十分留意し、今から対策を講ずる必要がある。
- 核分裂反応はエネルギーの生産とともに31種を超えるレアメタルを有意量、創生している。使用済み燃料を“廃棄物”ではなく“人工資源”として捉えるべきである。
- “原子カレアメタル”(NRM)については個々の放射化学特性に応じ、利用モデルを描くことができるが、今後、社会的に受容される導入シナリオの構築及び技術(特に環境負荷低減技術)の進展が必要である。
- NRMの内、Mo / Tc / Zr / Ru, Rh, Pd (軽白金族) / Cs / Sr / La, Nd, Dy (希土類) は、放射化学特性、技術的有用性及び資源地政学などの視点から、極めて重要と考えられる(特に、代替物質としてのTc、代替線源としてのCs、<sup>99m</sup>Tc製造源としてのMo)。
- 先進オリエントサイクル研究では、ソフトでソルト・フリーな環境適応型分離技術を開発しているが、さらに“非CO<sub>2</sub>放出型分離・利用技術”を目指すことが重要となろう。アクティブ試験+工学規模試験への展開が必要である。

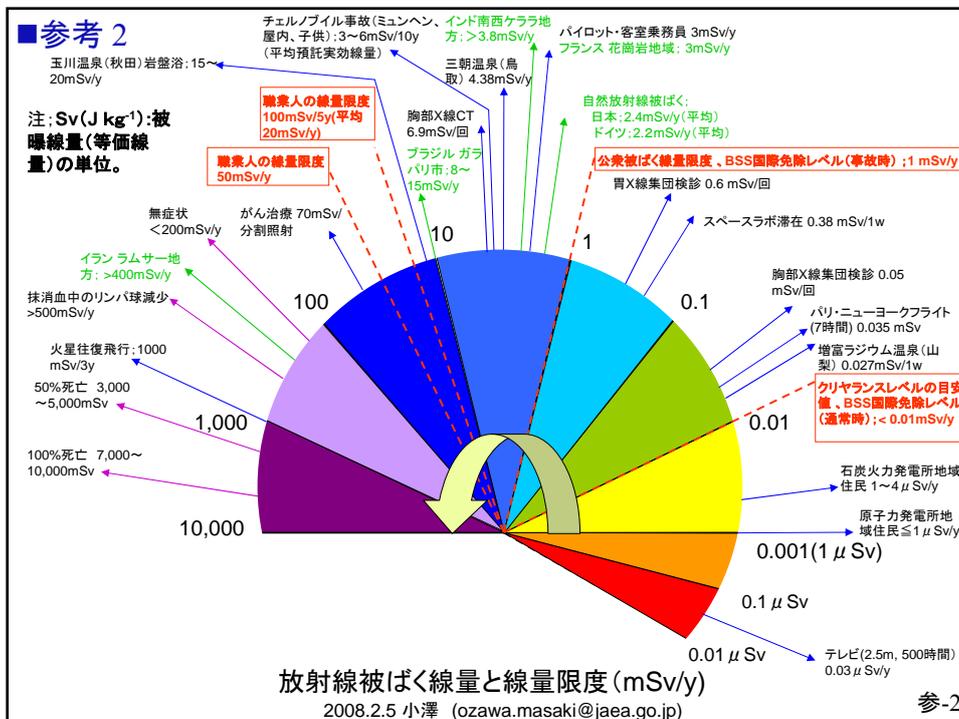
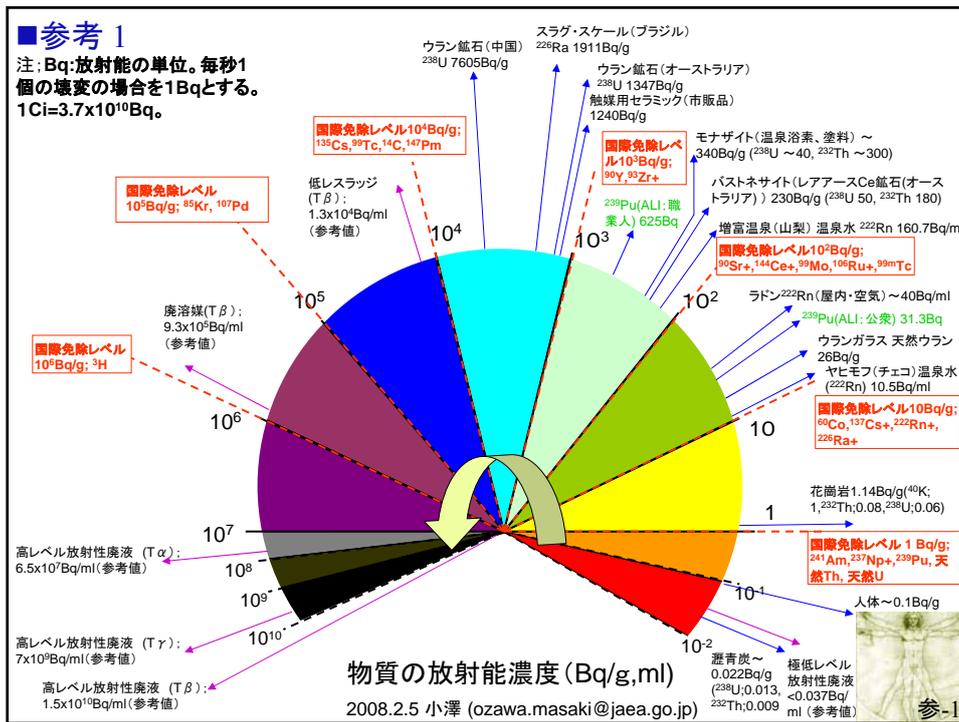
56

*Adv.-ORIENT Cycle, A Challenging Fuel  
Cycle Strategy Turning Wastes into  
Resources*



57





◆BqとSvの相関の例

表 A-6 内部被ばく線量換算係数 (吸入・経口)

単位 核種	(μ Sv/Bq)	
	吸入	経口
H-3	2.6E-05	1.7E-05
C-14	5.6E-04	5.6E-04
Cl-36	5.5E-03	8.2E-04
Ca-41	3.5E-04	3.3E-04
Mn-54	1.7E-03	7.3E-04
Fe-55	6.9E-04	1.6E-04
Co-60	4.1E-02	7.0E-03
Ni-59	3.6E-04	5.4E-05
Ni-63	8.4E-04	1.5E-04
Zn-65	5.0E-03	3.9E-03
Sr-90	3.4E-01	3.6E-02
Nb-94	9.0E-02	1.4E-03
Tc-99	2.0E-03	3.4E-04
I-129	4.7E-02	7.4E-02
Cs-134	1.4E-02	2.0E-02
Cs-137	8.7E-03	1.4E-02
Eu-152	5.9E-02	1.6E-03
Eu-154	7.0E-02	2.5E-03
Pu-239	1.2E+02	9.7E-01
Am-241	1.2E+02	1.0E+00



参-3