



平成26年10月9日-10日  
国際シンポジウム  
“放射性廃棄物低減に向けた現状と将来の展望  
～ゼロリリースを目指して～”

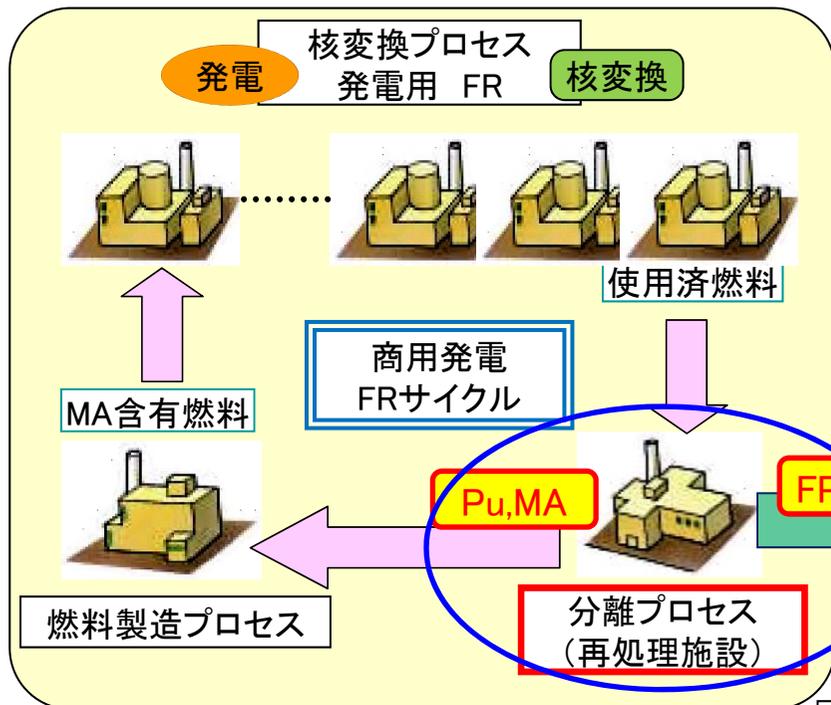
# 研究開発の現状と展望 ー元素分離ー

---

日本原子力研究開発機構  
原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター  
森田 泰治

# 高速炉サイクル型と核変換専用サイクル型(階層型)

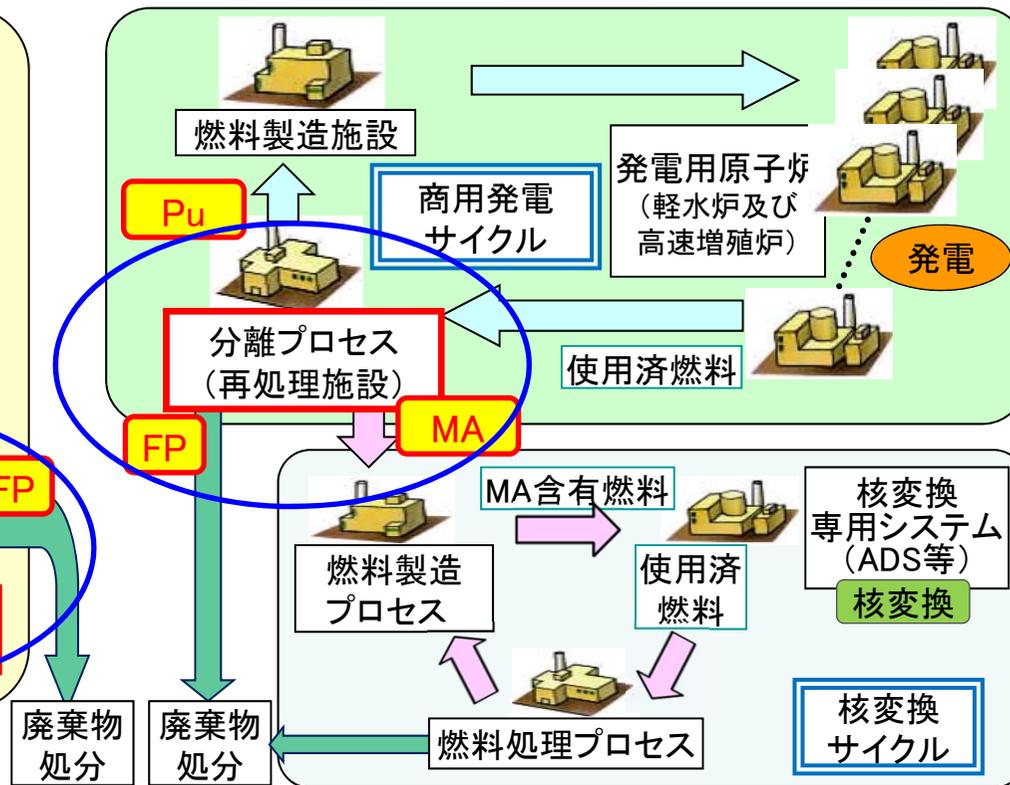
## 高速炉サイクル利用型



- ・発電炉を用いた分離変換技術
- ・ひとつの閉サイクル内でPuと共にMAをリサイクル
- ・発電炉(高速炉)内でMAを核変換

分離プロセス(再処理施設)では両方で共通技術適用が可能

## 階層型



- ・発電用サイクルに核変換サイクルを付設
- ・核変換専用システム(加速器駆動システム: ADS)
- ・コンパクトな核変換サイクルにMAを閉じ込める

MA : マイナーアクチノイド = Np, Am, Cm (Minor Actinides)  
 FP : 核分裂生成物 (Fission Products)  
 ADS : 加速器駆動システム (Accelerator Driven System)

# 高レベル放射性廃液 -MA等分離の対象廃液-

PWR使用済燃料：初期濃縮度4.5%、燃焼度45GWd/t、5年冷却

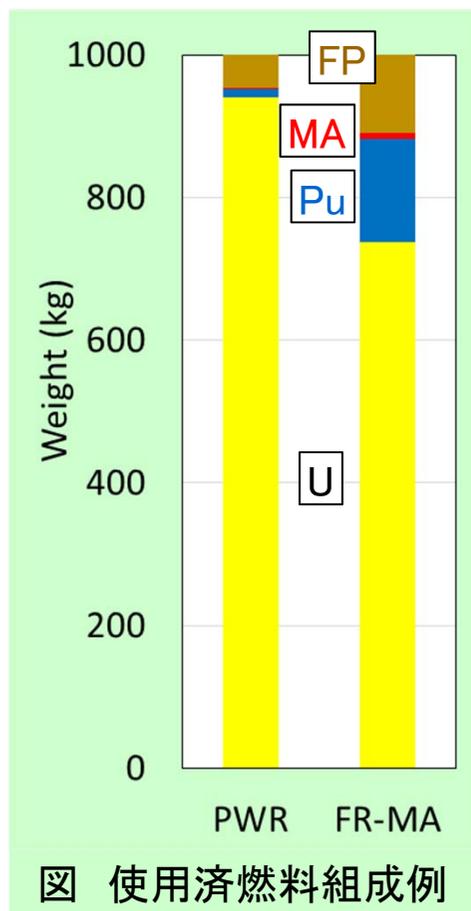
MAリサイクル高速炉使用済燃料(FR-MA)：炉心燃料+軸方向ブランケット(69.4%:30.6%)

炉心部：初期組成 Pu19.6%、MA0.92%、燃焼度147.1GWd/t、5年冷却

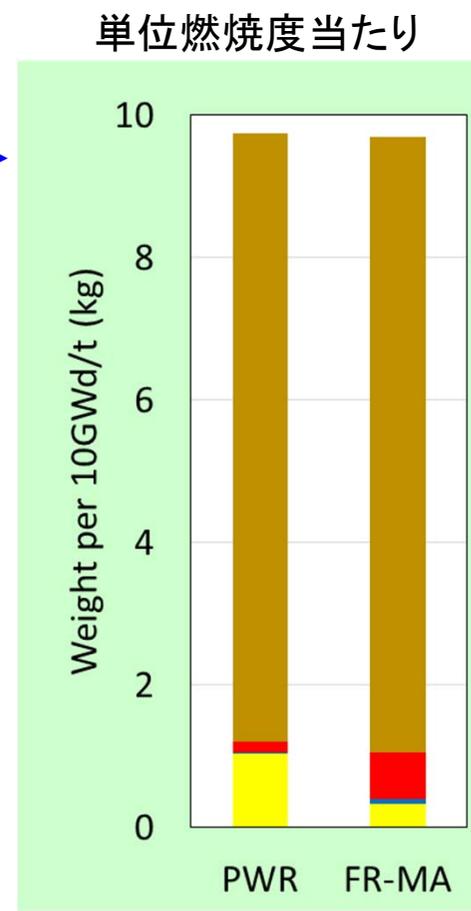
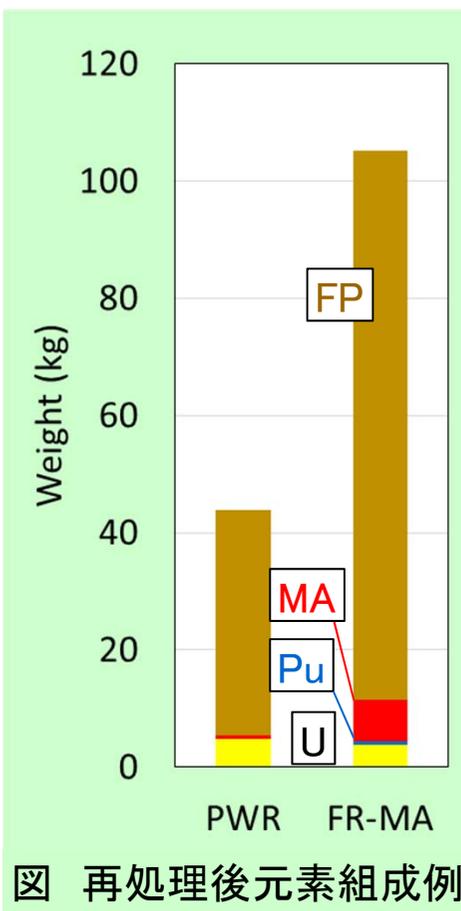
ブランケット部：劣化ウラン(0.3%)、燃焼度21GWd/t (平均燃焼度108.5GWd/t)

※JAEA Review 2008-037「再処理プロセス・化学ハンドブック第2版」のデータに基づく。いずれも使用済燃料1ton当たり

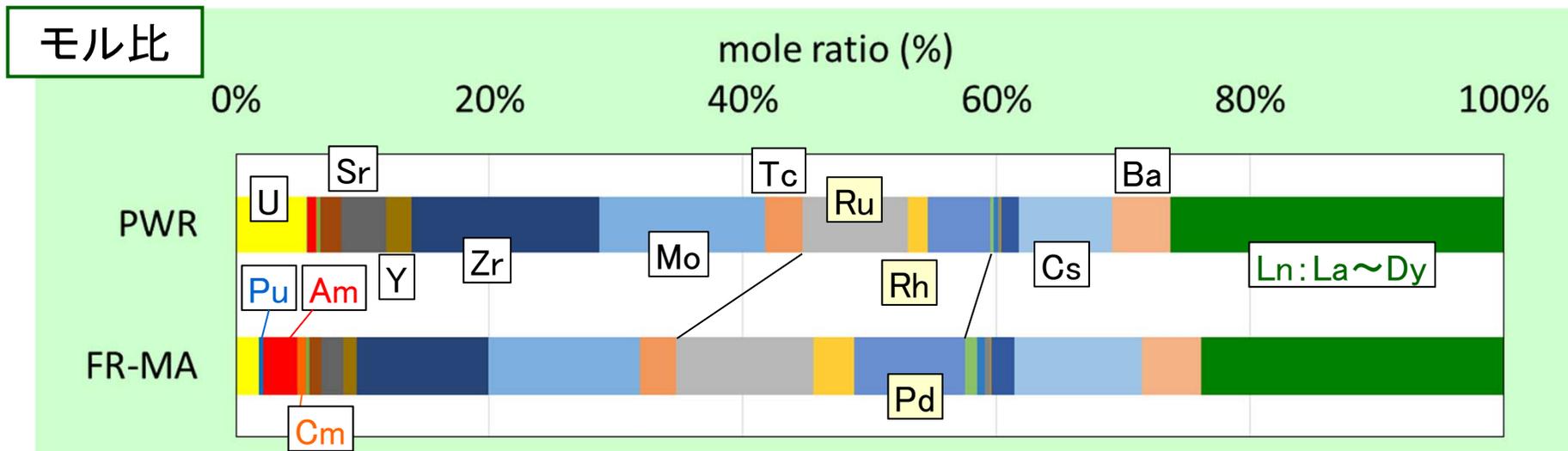
PWRでは残留Uの割合が大きい。FR-MAではMA、Puの割合が大きい



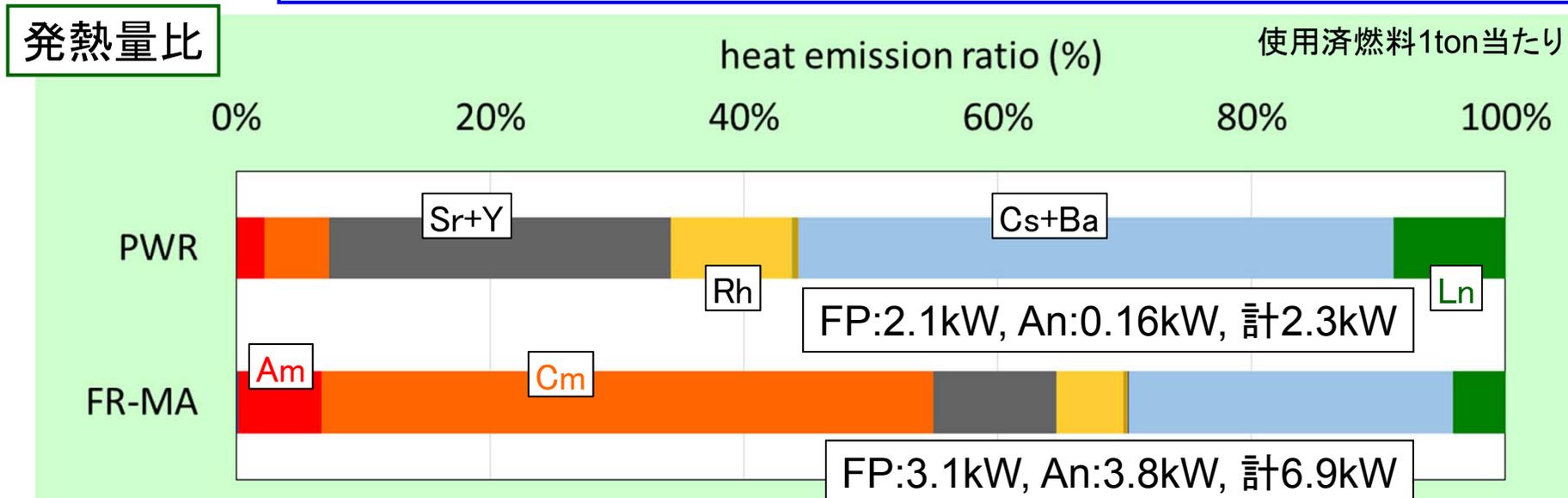
再処理  
(U,Pu回収)  
U,Pu 99.5%  
Np 95%  
Kr, Xe 100%  
Br, I 99%  
除去



# 高レベル放射性廃液 -MA等分離の対象廃液-



FR-MAでは、Am-Cm及び白金族元素 (Ru, Rh, Pd)の存在割合が大きい



FR-MAではCmの発熱割合が非常に大きい

※JAEA Review 2008-037「再処理プロセス・化学ハンドブック第2版」のデータに基づく

# 分離対象元素

## 1) マイナーアクチノイド(MA) = Np, Am, Cm

- 長寿命核種で、核変換の対象。
- Npは、U, Pu分離の際同時に分離可能。よってAm, Cm中心。
- Am, Cmは、III価が安定(An(III))で、希土類元素(RE)が同じ挙動をとりやすい。

An(III)/REモル比: PWRで0.025、FR-MAで0.136

- An(III)の分離は、通常2段階で達成。

## 2) 発熱性元素 = Sr, Cs

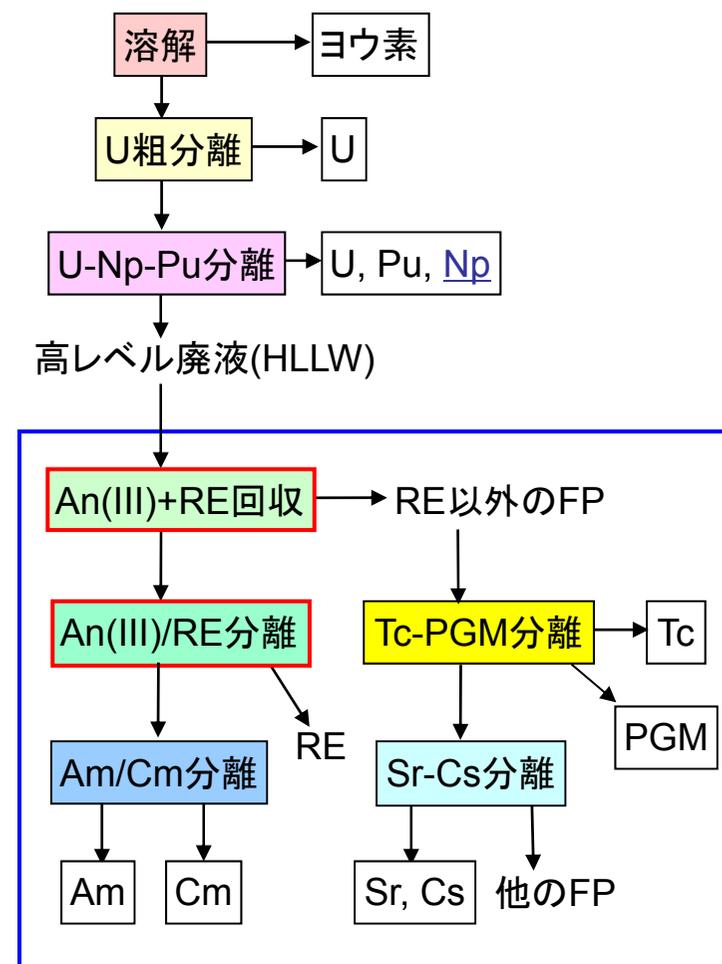
- FPの発熱の大部分を占める。
- Sr, Cs分離後の廃液は、高含有固化体にできる。

## 3) 白金族元素(PGM) = Ru, Rh, Pd

- 有用元素である。
- ガラス固化の妨害元素でもある。

## 4) 長寿命核分裂生成物 = Tc

- 白金族元素とともに分離されることが多い。
- 核変換の対象となる。一方、有用元素でもある。



分離プロセス概念の一例

PGM=Ru, Rh, Pd (Platinum Group Metals)



# 溶媒抽出法と抽出クロマトグラフ法

1) 溶媒抽出法: 抽出剤を含有する有機相と硝酸溶液等の水相との間の分配平衡が元素により異なることを利用する分離法。

利点: 連続多量処理が容易。高い回収率と高い分離度。工業的な経験が豊富。

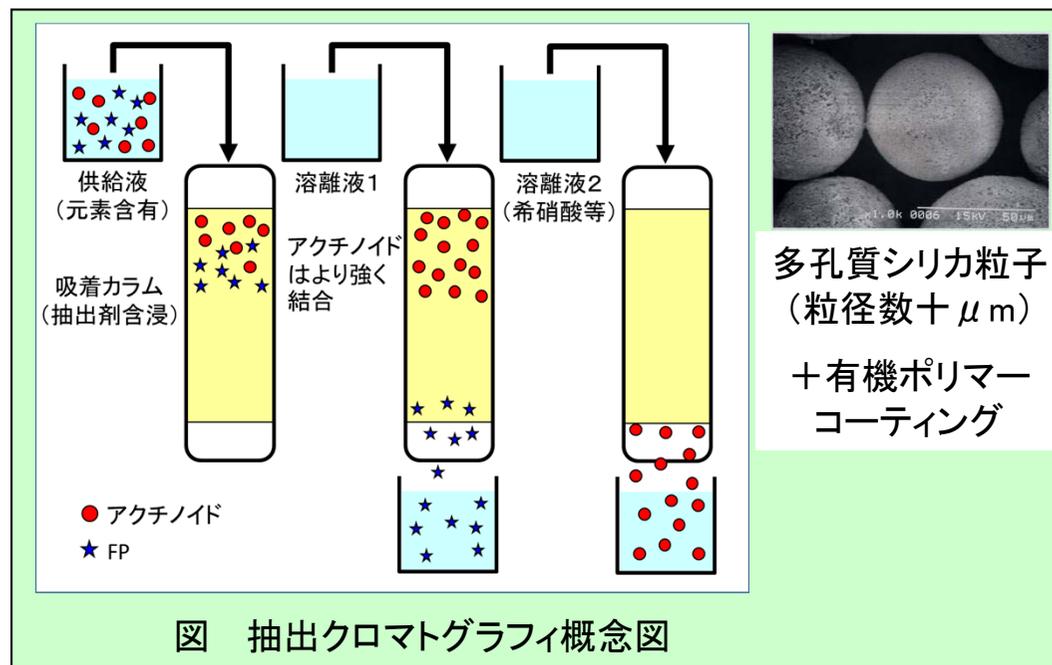
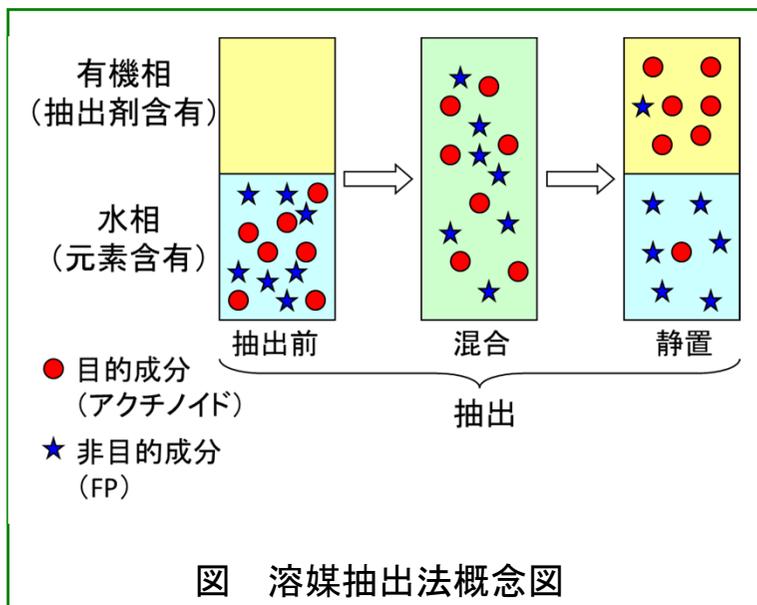
課題: 廃溶媒の処理、装置規模拡大の可能性。第三相生成防止。

2) 抽出クロマトグラフ法: 抽出剤を適当な単体に保持し、固液間抽出で分離。

利点: 希釈剤不要。特に高い分離度。装置がコンパクト(抽出剤の高密度充填)

課題: 原子力界での工業的な経験が少ない。遠隔操作、保守性。液量増大の可能性。

従来技術では単体(吸着剤)の膨潤が問題となったが、多孔質シリカの適用で解決



# An(III)+RE回収用新抽出剤開発

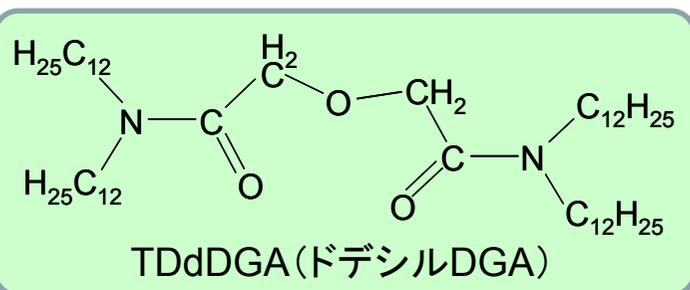
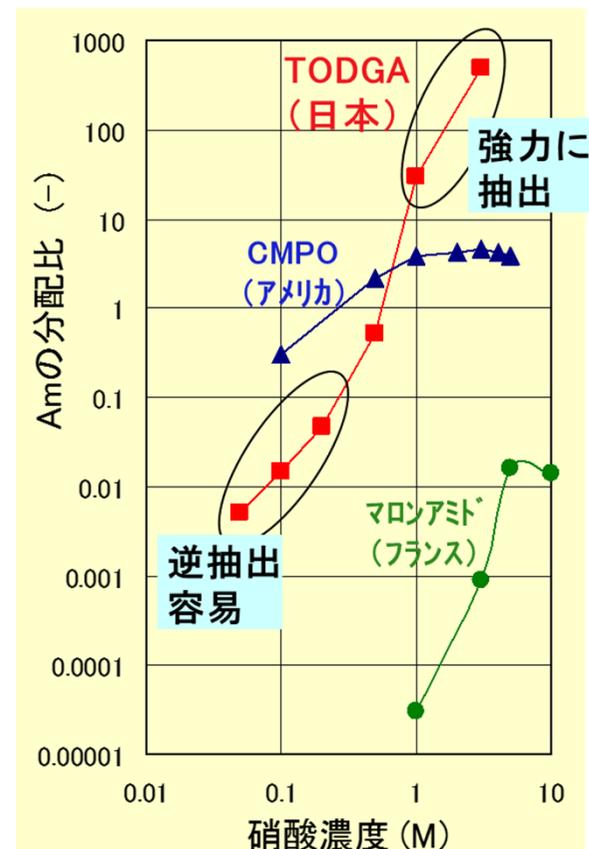
## An(III)+RE抽出剤の要件

- ・ 高硝酸濃度の溶液からAn(III)を抽出：沈殿生成防止
- ・ 高い抽出能力、効率的な逆抽出
- ・ リン元素を含まない化合物：二次廃棄物発生抑制



## 上記要件を満たす3座配位のDGA系抽出剤を開発

- ・ 1~3M硝酸溶液からAn(III)を抽出、0.1M硝酸で逆抽出
- ・ アミド系化合物(CHON原則)：廃棄物低減
- ・ ドデカンに易溶
- ・ TDdDGAでは、抽出容量が大きく、飽和濃度まで元素を抽出しても第三相を生成しない
- ・ 耐放射線性は許容レベル



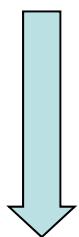
抽出クロマトグラフ法への適用も検討

## 分離技術開発の現状：TDdDGA抽出法

- ・ Amトレーサー含有模擬廃液による連続抽出試験を実施し、Am抽出率99.99%以上を達成。
- ・ プロセスシミュレーション技術を開発
- ・ プロセス条件の最適化を検討
- ・ 次のステップは実廃液試験

# 溶媒抽出法によるAn(III)／RE分離

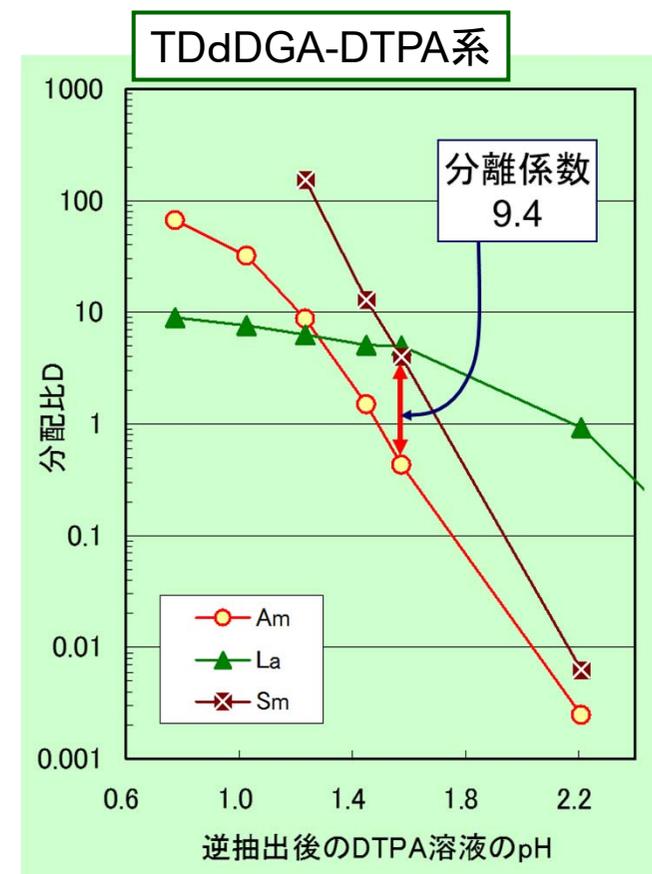
DIDPA抽出法、CMPO抽出法いずれもAn(III)／RE分離に錯形成剤DTPAを利用：  
 An(III)との錯形成がより安定であることを利用し、An(III)を選択的に逆抽出  
 問題点：  
 ・ 元素量の多いREが有機相に残るため、その後処理の負担が大。  
 ・ pH領域での錯形成を利用するため、pHの制御が必要。  
 ・ 錯形成剤や、pHを維持するための緩衝液などが二次廃棄物となる。



抽出剤TDdDGA+水相中錯形成剤DTPAによるプロセス構築を検討  
 →分離係数9.4を確認

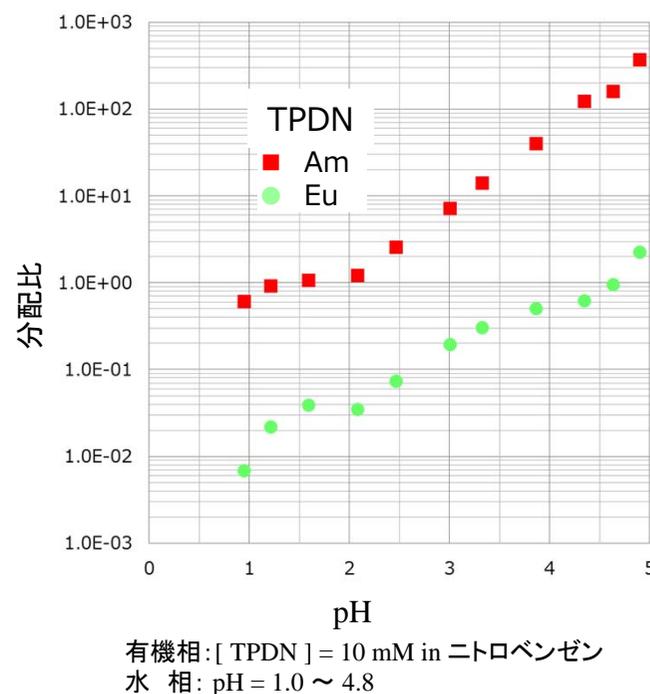
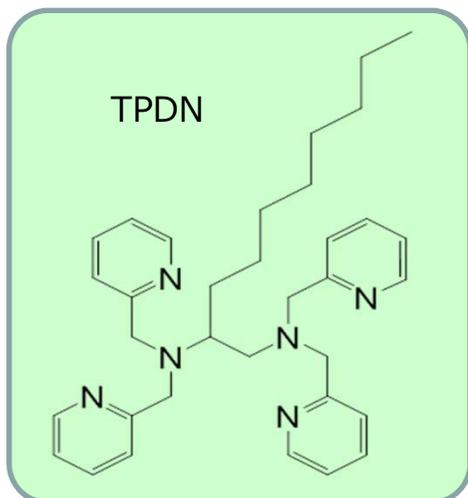
- ・ ソフトドナー系抽出剤を利用する分離法の研究  
 ※ソフトドナー：窒素(N)、イオウ(S)などの配位子 ↔ ハードドナー：酸素(O)  
 ソフトドナー抽出剤はREよりもAm,Cmと良く結合
- ・ 或いはハイブリッド型抽出剤（ソフトドナー、ハードドナー両者を持つ抽出剤）による分離

候補抽出剤選定、基礎データ取得段階

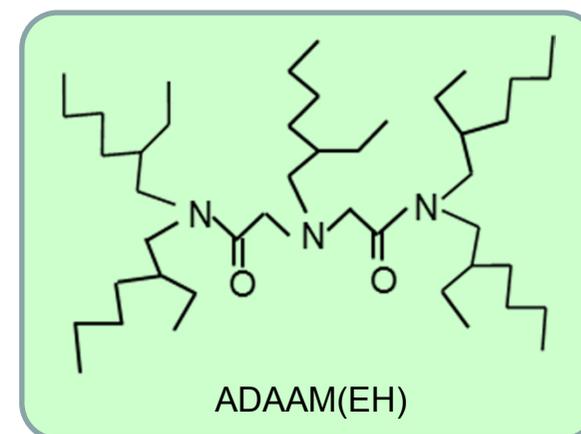


# 溶媒抽出法によるAn(III)／RE分離

多座配位ドナー抽出剤  
TPDNでAm/Euの分離  
を確認(左図)



ハイブリッド型抽出剤  
ADAAM(EH)を検討中  
Am/Eu間の分離係数20  
以上を確認



抽出クロマトグラフ法への適用も検討

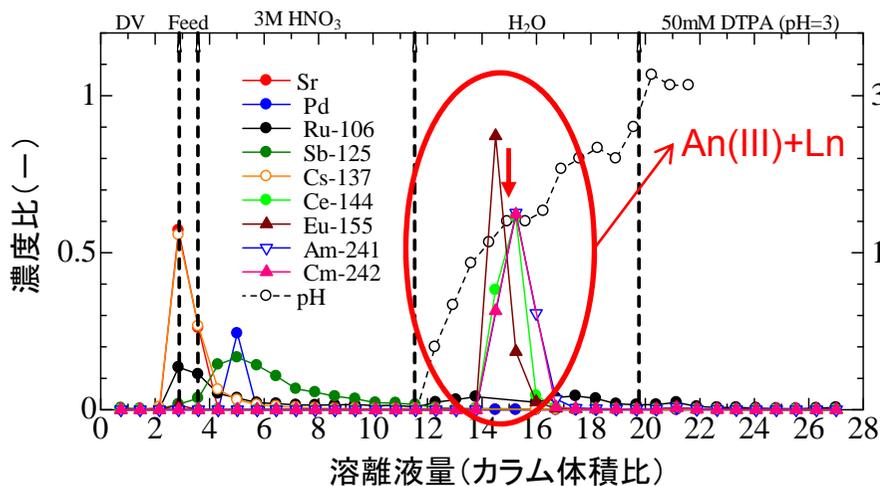
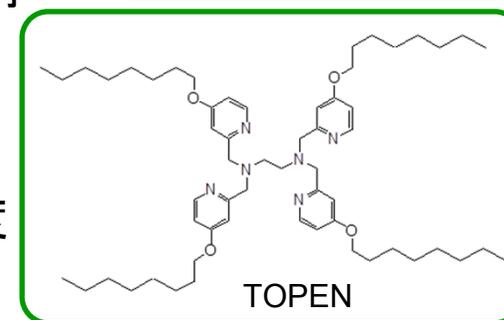
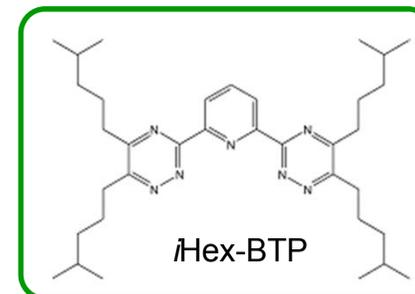
## 分離技術開発の現状と今後

- 抽出データの取得を継続（抽出速度、抽出容量、化学的安定性、耐放射線性等）
- MA+RE分離プロセスと併せ、整合性のあるプロセス設計を実施。
- プロセス条件の最適化、模擬液による連続抽出試験を経て、実液試験に移行

# 抽出クロマトグラフ法によるAn(III)分離

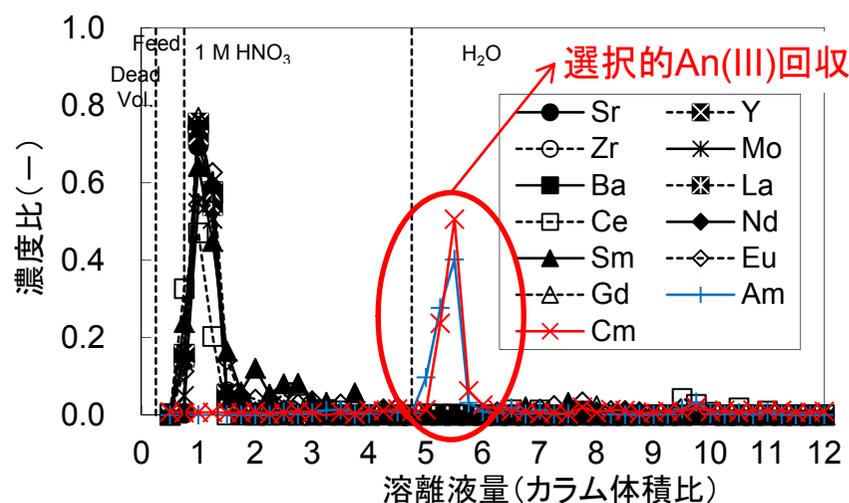
## ■ 分離技術開発とその評価

- 1) An(III)+RE回収法で、**CMPO** 或いは **TODGA** 含浸吸着剤を検討
  - 実廃液試験でAn(III)の吸着と、一部のランタノイド(Ln)と同時の溶離を確認(左下図)
- 2) An(III)/RE分離法で、**R-BTP**、**HDEHP** 及び **TOPEN** 含浸吸着剤を用いる方法を検討し、実廃液試験を実施。
  - 最適なR-BTPである**iHex-BTP**含浸吸着剤による分離で、An(III)の吸着と選択的溶離を確認(右下図)。
  - **HDEHP** 及び **TOPEN** 含浸吸着剤では、供給液の硝酸濃度低減が必要だが、吸着と溶離ひとつおりの分離性能を確認



実廃液を用いた**CMPO**含浸吸着剤によるカラム分離試験の結果 (常陽使用済燃料、CPF)

S. Watanabe, et al., *Proc. of GLOBAL2011* (2011)



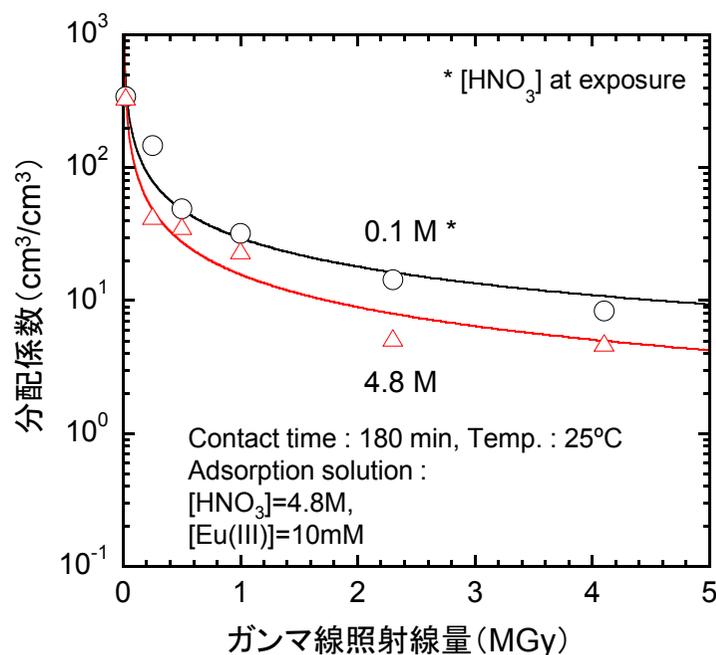
実廃液を用いた**iHex-BTP**含浸吸着剤によるカラム分離試験の結果 (ふげん使用済燃料、TRP)

Y. Sano, et al., *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.* 9 012064 (2010)

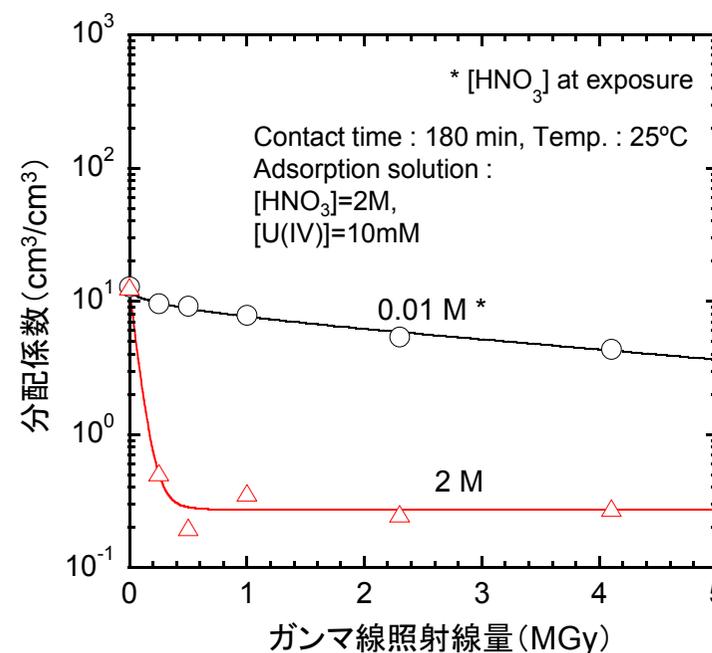
# ガンマ線照射による吸着材劣化評価

## ■ 吸着剤の耐放射線性評価

- CMPO含浸吸着剤とTODGA含浸吸着剤はほぼ同等の耐放射線性
- R-BTP含浸吸着剤は、高濃度硝酸系で不安定
- 低濃度硝酸系では、R-BTP, HDEHP及びTOPEN含浸吸着剤はほぼ同等の耐放射線性



TODGA含浸吸着剤による4.8M硝酸からのEu  
吸着分配係数のガンマ線照射線量依存性



Hex-BTP含浸吸着剤による2M硝酸からのU(IV)  
吸着分配係数のガンマ線照射線量依存性

# 核分裂生成物の分離

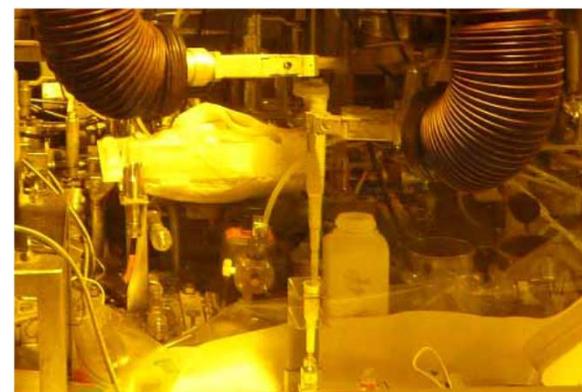
## ◎ Sr-Cs分離

### (1) 無機イオン交換体吸着法

- Srをチタン酸で、Csをゼオライト(モルデナイト)で吸着。吸着後の交換体はそのまま焼成することで安定な固化体にできる。
- 実廃液試験を実施し、分離性能を確認。
- 欠点: 酸濃度低下が必要

### (2) 抽出クロマトグラフ法

- Sr用にクラウンエーテル、Cs用にカリックスクラウンを含浸させた吸着剤により分離
- 最小規模実廃液試験を実施。
- 欠点: 抽出剤が高価



抽出クロマトグラフ法によるSr-Cs分離の最少規模実廃液試験

個々の分離工程の性能は確認済み。  
MA分離を含めて、整合性のあるプロセスを組むことが肝要

## ◎ Tc-白金族元素(Ru, Rh, Pd)分離

- 活性炭吸着法でトレーサー試験を実施。
- 脱硝沈殿法で、実廃液試験を実施。分離性能を確認。
- Pd分離でオキシム抽出法、Ru分離で電界酸化揮発法を検討。

## ◎ その他の元素

- Zr, MoはAn(III)分離の際の妨害元素で、DIDPA抽出法では事前に沈殿として除去
- 酸性抽出剤HDEHPによるZr-Mo抽出分離プロセスの開発を実施。

## まとめ

- An(III)分離、FP分離について、分離性能が確認済みの要素技術は複数存在。
- 常に、さらなる高性能化を追求すべき。
- An(III)分離の対象となる、軽水炉使用済燃料からの高レベル廃液と、高速炉使用済燃料からU, Pu分離後の溶液で、アクチノイド含有量に配慮すれば同じ分離手法を適用することは可能である。
- FP分離を含め、全体として整合性のあるプロセス構築が必要。
- 実廃液試験を実施するとともに、工学規模コールドモックアップ試験を実施して、工学規模ホット試験に結び付けるべき。