

・分離変換技術高度化のためのマイナーFP 元素の溶媒抽出挙動解明

核燃料サイクルにおける使用済燃料の再処理法として、PUREX 法という溶媒抽出法が採用されています（図 1）。これは、使用済燃料を溶解した硝酸溶液と、抽出剤を含む有機溶液を接触させることにより、目的元素を抽出分離する溶媒抽出法のひとつです。

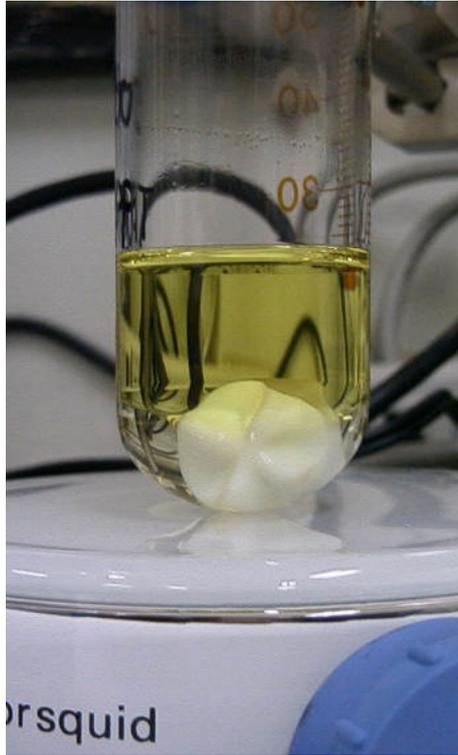


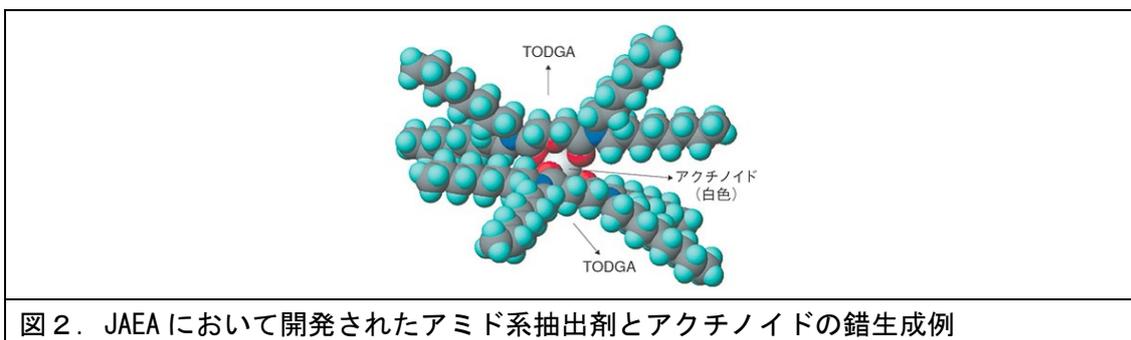
図 1. PUREX 実験例：リン酸トリブチル(TBP)が溶存するドデカン（有機相）とウランが溶存する硝酸（水相）を用いた溶媒抽出実験の写真。

PUREX 工程において、核燃料物質である、ウラン、プルトニウムは抽出・回収されますが、核分裂生成物元素（FP 元素）や超ウラン元素（TRU）の中には、抽出分離されずに、硝酸に残るものがあり、この廃硝酸溶液は、高レベル放射性廃液（HAW）となります。硝酸中で 1 価の陽イオンとして挙動するセシウム、2 価の陽イオンとして挙動するストロンチウム、および 3 価の陽イオンとして挙動するランタノイド（Ln）は、PUREX 行程において、抽出されにくい核分裂生成物元素（FP 元素）として知られています。TRU であるネプツニウム（Np）、アメリシウム（Am）、キュリウム（Cm）はマイナーアクチノイド（MA）と呼ばれる元素群ですが、中でも Am と Cm、およびそれらの陽イオンは、化学的性質がランタノイドに似ているため、PUREX 行程においてランタノイド核種と似た挙動を示します。MA 核種の多くは α 核種であるため放射性毒性が高く、Ln 核種の多くは β 核種であることから、 γ 線源となります。このため、HAW から Ln、Am、Cm を分離回収することで、HAW の放射性毒性の低減化が可能となることから、有効な化学分離法（分離技術）が検討されています。

放射性毒性が強く半減期の長い核種に粒子線を照射して核反応させることで、ターゲット

核種を短寿命核種あるいは安定核種に変換する技術を核変換技術といいます。核変換システムとしては、高エネルギー中性子を用いる原子炉を利用する高速炉体系と、加速器により製造される高エネルギー中性子を付属原子炉に打ち込む加速器駆動体系が検討されています。MA や、半減期が長く放射性廃棄物処分時に環境負荷が大きくなる長寿命核分裂生成物（LLFP）の核変換を目指し、対象核種を化学的に回収する技術（分離技術）開発と、回収した核種を核変換するために必要となる、核反応断面積などの核データの取得が精力的に行われており、将来的な分離変換技術の構築が期待されています。

PUREX 系において抽出回収にくい Am、Cm、Ln の 3 価陽イオンを硝酸溶液から選択的に回収できる抽出剤が、日本原子力研究開発機構（JAEA）において開発されました（図 2）。



JAEA 分離変換グループにおいては、

- ① HAW から Ln、Am、および Cm を分離回収する。
- ② 行程①後に Ln と Am&Cm をそれぞれ分離回収する。
- ③ 行程②後に、Am と Cm をそれぞれ分離回収する。

というプロセスに着目し、各行程に適したアミド系抽出剤の合成と抽出プロセスの構築を進めています。

当研究室では、同グループとの協力研究体制の下、同グループが開発した新規抽出剤を用いて様々な元素の溶媒抽出挙動を研究しています（図 3 参照）。

The periodic table
www.webelements.com

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	
Hydrogen 1 H 1.008																	Helium 2 He 4.0026	
Lithium 3 Li 6.94	Beryllium 4 Be 9.0122	Key: Element Name Atomic number Symbol Atomic weight (mean relative mass)										Boron 5 B 10.81	Carbon 6 C 12.011	Nitrogen 7 N 14.007	Oxygen 8 O 15.999	Fluorine 9 F 18.998	Neon 10 Ne 20.180	
Sodium 11 Na 22.990	Magnesium 12 Mg 24.305	Scandium 21 Sc 44.956	Titanium 22 Ti 47.887	Vanadium 23 V 50.942	Chromium 24 Cr 51.996	Manganese 25 Mn 54.938	Iron 26 Fe 55.845	Cobalt 27 Co 58.933	Nickel 28 Ni 58.693	Copper 29 Cu 63.546	Zinc 30 Zn 65.38	Gallium 31 Ga 69.723	Germanium 32 Ge 72.630	Arsenic 33 As 74.922	Selenium 34 Se 78.971	Bromine 35 Br 79.904	Krypton 36 Kr 83.796	
Rubidium 37 Rb 85.468	Sr 87.62	Yttrium 39 Y 88.906	Zirconium 40 Zr 91.224	Niobium 41 Nb 92.906	Molybdenum 42 Mo 95.94	Technetium 43 Tc 98.906	Ruthenium 44 Ru 101.07	Rhodium 45 Rh 102.91	Palladium 46 Pd 106.42	Silver 47 Ag 107.87	Cadmium 48 Cd 112.41	Indium 49 In 114.82	Sn 50 118.710	Sb 51 121.76	Te 52 127.60	Iodine 53 126.90	Xenon 54 Xe 131.29	
Cesium 55 Cs 132.91	Ba 137.33	* 57-70	Lu 174.97	Hf 178.49	Ta 180.95	W 183.84	Re 186.21	Os 190.23	Ir 192.22	Pt 195.08	Au 196.97	Hg 200.59	Tl 204.38	Pb 207.2	Bi 208.98	Po [209]	At [209]	Rn [222]
Francium 87 Fr [223]	Ra [226]	** 89-102	Lr [262]	Rf [261]	Db [262]	Sg [263]	Bh [264]	Hs [265]	Mt [266]	Ds [271]	Rg [272]	Cn [285]	Nh [286]	Fl [289]	Mc [290]	Lv [293]	Ts [294]	Og [294]
		*lanthanoids		La 57 138.91	Ce 58 140.12	Pr 59 140.91	Nd 60 144.24	Pm 61 [144.91]	Sm 62 150.36	Eu 63 151.96	Gd 64 157.25	Tb 65 158.93	Dy 66 162.50	Ho 67 164.93	Er 68 167.26	Tm 69 168.93	Yb 70 173.05	
		**actinoids		Ac 89 [227]	Th 90 232.04	Pa 91 231.04	U 92 238.03	Np 93 [237]	Pu 94 [244]	Am 95 [243]	Cm 96 [247]	Bk 97 [247]	Cf 98 [251]	Es 99 [252]	Fm 100 [257]	Md 101 [258]	No 102 [259]	

図 3. 当研究室が抽出挙動を研究している元素。

セレン、ジルコニウム、パラジウム、スズについては、それぞれ、Se-79, Zr-93, Pd-107, Sn-126 といった LLFP が HAW 中に溶存しており、それらの分離挙動は、分離変換技術開発にとって有用な情報となります。アンチモンの FP 核種は、強い γ 線源となるため、HAW からの除染が不十分なまま分離プロセスに混入してしまうと、システムの遮蔽設計計算に影響を及ぼします。その他、ロジウムは、安定同位体 Rh-103 が多く含まれるため、使用済燃料から単離することができれば、将来的な貴金属資源の有効利用を実現できる可能性があります。この他、比較対象として、ウランや Ln の抽出挙動を詳細に調べています。このテーマは、当研究室で取り組んでいる、原子力バックエンド化学の大切な課題のひとつです。国立研究所の研究者たちと共に、原子力分野が対峙している最先端の研究課題に取り組んでいます。