



JAEA-Technology

2025-009

DOI:10.11484/jaea-technology-2025-009

高レベル放射性廃液からの発熱性核種の分離

Separation Test of Heat Generating Nuclides from High-level Liquid Waste

宝徳 忍 伴 康俊 今田 未来 北辻 章浩

Shinobu HOTOKU, Yasutoshi BAN, Miki KONDA and Yoshihiro KITATSUJI

原子力科学研究所

NXR開発センター

NXR Development Center

Nuclear Science Research Institute

November 2025

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Technology

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートはクリエイティブ・コモンズ 表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。
本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の
条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）
より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究開発推進部 科学技術情報課
〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.

This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License
(<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).

Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under
the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Library, Institutional Repository and INIS Section,
Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan

E-mail: ird-support@jaea.go.jp

高レベル放射性廃液からの発熱性核種の分離

日本原子力研究開発機構

原子力科学研究所

NXR 開発センター

宝徳 忍、伴 康俊、今田 未来、北辻 章浩

(2025 年 8 月 1 日受理)

使用済燃料の再処理に伴って発生する高レベル廃液 (HLLW) には、発熱性核種である Sr-90、Y-90、Cs-137、Ba-137m 及び Am-241 が含まれており、これらの分離回収は高レベル放射性廃棄物の減容・有害度低減につながる。さらに、分離回収した元素及び核種を精製することで、資源としての有効利用も見込まれる。

本試験では、Sr レジン及び Pb レジンを用いた Sr の抽出クロマト分離、リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) を用いた Cs の共沈分離、アルキルジアミドアミン (ADAAM) を用いた Am の溶媒抽出分離に関する技術開発として、Cs 及び Sr 分離について硝酸溶液系でのコールド試験を行った。その結果を踏まえて、燃料サイクル安全工学研究施設 (NUCEF) の使用済燃料溶解液を使用して各元素を分離するホット試験を実施し、分離した溶液中に含まれる各成分について分析した。

Sr の抽出クロマト分離では、Sr の吸着条件及び溶離条件として硝酸濃度 8 mol/L 及び 0.02 mol/L を適用することにより、他の元素から大部分を分離した。Cs の AMP による共沈分離では、硝酸濃度 3.1 mol/L の HLLW 試験液に AMP を添加することにより 99.9%以上の Cs を選択的に共沈させた。Am の ADAAM による溶媒抽出では、バッチ法による一回の抽出処理によって Am の 81.4%を回収した。

本手法を用いることによって Sr、Cs 及び Am はそれぞれ効果的に分離回収できており、その有効性を実証した。

Separation Test of Heat Generating Nuclides from High-level Liquid Waste

Shinobu HOTOKU, Yasutoshi BAN, Miki KONDA and Yoshihiro KITATSUJI

NXR Development Center
Nuclear Science Research Institute
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received August 1, 2025)

High-level liquid waste (HLLW) produced from reprocessing of spent nuclear fuels contains heat generating nuclides such as Sr-90, Y-90, Cs-137, Ba-137m, and Am-241. Separation and recovery of these nuclides lead to reduce the volume and toxicity of high-level waste. Furthermore, the recovered nuclides and elements could be utilized as resources after purification.

In this test, Sr separation by extraction chromatography using Sr resin and Pb resin, Cs separation by co-precipitation using ammonium phosphomolybdate (AMP), and Am separation by solvent extraction using alkyl diamideamine (ADAAM) were carried out, cold tests were performed for the separation of Cs and Sr in a nitric acid solution. Based on the results, hot tests were performed using dissolution solutions of spent fuel at the Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility (NUCEF), and each component contained in the separated solution was analyzed.

In the Sr separation by extraction chromatography, most of Sr was separated from other elements using 8 mol/L nitric acid for absorption and 0.02 mol/L nitric acid for elution. In the separation of Cs, more than 99.9% of Cs was selectively co-precipitated by adding AMP to the HLLW, in which nitric acid concentration was adjusted to 3.1 mol/L. In solvent extraction of Am by ADAAM, 81.4% of Am-241 was recovered by a single stage batch experiment.

Since Sr, Cs, and Am were properly separated and recovered from HLLW, the effectiveness of the present separation method was successfully demonstrated.

Keywords: HLLW, Strontium, Cesium, Americium, Solvent Extraction, ADAAM, Extraction Chromate, Co-precipitation, AMP

目 次

1. はじめに	1
2. 各元素の分離試験及び分析	2
2.1 試薬	2
2.2 抽出クロマト樹脂による Sr の分離	2
2.3 AMP による Cs の共沈分離	4
2.4 ADAAM による Am の分離	4
2.5 分析方法	5
3. 結果と考察	5
3.1 抽出クロマト樹脂による Sr の分離	5
3.2 AMP による Cs の共沈分離	8
3.3 ADAAM による Am の分離	9
3.4 HLLW からの Sr、Cs 及び Am 分離フローシートの検討	9
4. まとめ	10
謝辞	11
参考文献	11

Contents

1. Introduction	1
2. Separation test and analysis of each element	2
2.1 Reagents	2
2.2 Separation of Sr using extraction chromatography resin	2
2.3 Co-precipitation of Cs by AMP	4
2.4 Separation of Am with ADAAM	4
2.5 Analysis methods	5
3. Results and discussion	5
3.1 Separation of Sr using extraction chromatography resin	5
3.2 Co-precipitation of Cs by AMP	8
3.3 Separation of Am with ADAAM	9
3.4 Proposal on a separation process for recovering Sr, Cs and Am from HLLW	9
4. Conclusions	10
Acknowledgements	11
References	11

1. はじめに

使用済燃料の商用再処理工場で適用されている PUREX 法では、抽出分離工程において U 及び Pu をノルマルドデカン (nDD) で 30% に希釈したリン酸トリブチル (TBP) で抽出分離する。この時に発生する高レベル放射性廃液 (HLLW : High-level liquid waste) は、硼珪酸ガラスと混合し安定な化学形を持つガラス固化処理を行った後、高レベル放射性廃棄物として長期貯蔵される。この高レベル放射性廃棄物には、多種多様な放射性核種が含まれており^{1),2)}、そのうち発熱性の高い核分裂生成物 (FP) として Sr-90、その娘核種の Y-90 及び Cs-137、その娘核種の Ba-137m がある。さらに、アクチノイド元素である Am-241 及び Cm-244 も発熱性核種として知られている。これらの核種が、長期保管における高レベル放射性廃棄物の発熱の大部分を占める³⁾。これらの核種をガラス固化処理の前にあらかじめ除去できれば、高レベル放射性廃棄物の長期保管時におけるリスクの低減及び廃棄物処分場の縮小等の利点がある。これによって、バックエンド分野における重要な課題である廃棄物処分の負担及び環境への負荷の低減が見込まれる。さらに、発熱性核種を再利用して資源化するなど、高レベル放射性廃液から選択的に分離回収する技術開発が進められている^{4),5)}。

日本原子力研究開発機構 (原子力機構) では、燃料サイクル安全工学研究施設 (NUCEF : Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility) の BECKY (Back-end Fuel Cycle Key Elements Research Facility) に設置されたコンクリートセル (以下、セルとする) において、HLLW に含まれる発熱性核種の分離技術の開発を進めている。その一環として、セル内の貯槽に使用済燃料溶解液を保管している。本研究では、この溶解液を採取し、採取液中の U 及び Pu を nDD で 30% に希釈した TBP (30%TBP/nDD) で抽出分離処理した溶液 (以下、HLLW 試験液) を使用して各元素の分離試験を行った。なお、分離対象は Sr、Cs 及び Am であり、各元素の発熱に関する特性^{3),6)}及び本試験で採用した分離手法について以下に記す。

Sr-90 (半減期 : 28.74 年) は β 壊変により Y-90 (半減期 : 64.10 時間) となる。いずれも β 線放出核種であり、FP として HLLW に含まれる。Sr-90 及び Y-90 からの発熱は、燃焼度 45GWd/t の加圧水型原子炉 (PWR) の UO_2 燃料を 50 年冷却後に再処理して発生する HLLW において、204W/tHM (Sr-90 : 35.33W/tHM、Y-90 : 168.5W/tHM) であり、HLLW からの全発熱量の 33.5% を占めるとされている。HLLW 中の Sr の分離法として、イオン交換法及び溶媒抽出法があり⁷⁾、クラウンエーテル抽出剤を配位子とする抽出クロマト樹脂 (Sr レジン及び Pb レジン) は市販品として入手できる。この樹脂は高濃度の硝酸領域において Sr に対する選択的吸着力を有しており、他元素との効果的な分離が期待できるため^{8)~11)}、本試験における Sr 分離に適用した。

Cs-137 (半減期 : 30.04 年) は β 壊変により Ba-137m (半減期 : 2.552 分) となるが、Ba-137 に壊変する際に 662keV のエネルギーを持つ γ 線を放出するため、作業従事者の放射線外部被ばくの要因となる主な核種の一つである。HLLW における発熱量 (再処理後の冷却期間 50 年) は 202W/tHM (Cs-137 : 50.22W/tHM、Ba-137m : 151.7W/tHM) であり、HLLW からの発熱量の 33.2% を占めている。Cs の分離は、酸性溶液中の Cs にリンモリブデン酸アンモニウム (AMP) を添加すると、Cs が特異的に AMP と共沈するため、溶液中の他の元素との分離が

簡易な方法によって行うことができる¹²⁾。本試験ではこの性質を活用して HLLW 試験液中の Cs 分離に AMP を用いた共沈法を適用した。

Am-241（半減期：432.2 年）は Pu-241 の β 壊変で生成する。使用済燃料中のマイナーアクチノイド元素（MA）の主要な核種であり、使用済燃料を保管する間にその存在量が増加する。原子力機構が開発した SELECT（Solvent Extraction from Liquid-waste using Extractants of CHON-type for Transmutation）プロセスには、溶媒抽出法によって HLLW から希土類元素（RE）及び MA を分離するステップが含まれており¹³⁾、Am の 94.9%以上を HLLW から分離した¹⁴⁾。HLLW における Am の発熱量（再処理後の冷却期間 50 年）は 175.82W/tHM であり、全発熱量の 28.9%を占めている。本試験では、HLLW 試験液に SELECT プロセスの抽出剤候補の一つであるアルキルジアミドアミン（ADAAM）抽出剤を用いた溶媒抽出法^{15)~17)}を適用し、Am に対する選択的分離能力について評価した。

2. 各元素の分離試験及び分析

商用再処理工場で実用化されている PUREX 法では、燃料溶解液から U 及び Pu を 30%TBP/nDD で抽出分離することで HLLW が発生する。ここでは NUCEF のセル内貯槽液から採取した使用済燃料溶解液中の U 及び Pu を 30%TBP/nDD を用いて抽出分離した液を HLLW 試験液として Sr、Cs 及び Am の分離試験に供した。なお、本試験で使用した HLLW 試験液の基となる使用済燃料は、PWR の使用済燃料（平均燃焼度：33GWd/t 及び 45GWd/t）及び新型転換炉（ATR）原型炉ふげんの使用済 MOX 燃料（平均燃焼度：40GWd/t）が混合された溶解液である。

抽出クロマト法による Sr 分離及び共沈法による Cs 分離については予備検討として非放射性試薬を用いたコールド試験を実施した。その結果を踏まえて、試験条件を検討し HLLW 試験液による試験を実施した。

2.1 試薬

硝酸は林純薬工業の試薬特級、12-モリブド(VI)リン酸三アンモニウム（リンモリブデン酸アンモニウム：AMP）は和光純薬工業の和光一級を使用した。模擬 HLLW 中の各元素（Sr、Y、Zr、Mo、Ru、Pd、Cs、Ba、Nd、Eu）の調製には富士フイルム和光純薬の ICP 分析用標準液または原子吸光分析用標準液を使用した。調製した模擬 HLLW の元素濃度を表 1 に示す。使用済燃料溶解液を処理するための TBP は和光純薬工業の和光特級及び nDD は東京化成工業のものをを使用した。また、液体シンチレーション試料の調製で使用したカクテル剤は米国 National Diagnostics 製のエコシンチ XR を使用した。

2.2 抽出クロマト樹脂による Sr の分離

Sr 分離試験用の抽出クロマト樹脂は、米国 Eichrom Technologies にて市販されている抽出クロマトグラフィー用レジン（Sr レジン及び Pb レジン）を用いた。これらの抽出クロマト樹脂は、クラウンエーテル（4,4'(5')di-*t*-butylcyclohexano 18-crown-6）を含浸させた樹脂

であり、硝酸濃度 6 mol/L (M) 以上の条件で Sr (II) に対して高い吸着特性を示すため、Sr を他の FP 元素等から分離できる^{9),10)}。Sr レジンと Pb レジンは元素の抽出挙動が類似しており、各樹脂 1mL あたりの Sr の吸着量は Sr レジンが 6mg、Pb レジン 4.5mg である。ただし、Sr レジンはメーカー推奨の使用期限が 1 年となっており、Pb レジンよりも若干高価である。実用的な Sr 分離技術の開発の観点から両者を比較するため、Sr レジン及び Pb レジンの双方を用いた 3 種類の試験を実施した。各試験の具体的な内容を以下に記す。

(1) 模擬 HLLW のバッチ分離試験 (コールド試験)

Sr レジン及び Pb レジンの元素の吸着特性を把握するため、HLLW に含まれる主な元素 10 種類を選定し、模擬 HLLW としてこれらの元素を含んだ 6M 硝酸溶液を調整した。この模擬 HLLW 1mL に、Sr レジン及び Pb レジンをそれぞれ 1g 添加し、1 時間攪拌した。そして、30 分静置の後、溶液中の元素の濃度分析を行い、Sr レジン及び Pb レジンの吸着特性を調べた。

(2) 模擬 HLLW のカラム分離試験 (コールド試験)

Sr レジン及び Pb レジン、それぞれ 2mL をポリエチレン製のカラム (内径: 12mm^φ) に充填し、硝酸濃度 6M でコンディショニングした。その後、模擬 HLLW 1mL、洗浄液 (6M 硝酸) 20mL、溶離液 (0.02M 硝酸) 20mL を順次通液し、カラムからの排出液を 1mL ごとに回収した。回収液中の元素の濃度分析を Cs は ICP-MS、それ以外の元素は ICP-AES によって行った。

(3) HLLW 試験液のカラム分離試験 (ホット試験)

分離フローを検討するために、カラム分離試験の供給 (Feed) 液は、HLLW 試験液及び HLLW 試験液から Cs 及び Am を除去した溶液の 2 種類を使用した。以下に各溶液を使用した試験の手順を示す。

① HLLW 試験液

上記(2)のカラム分離試験と同じ条件によって、セル内で Sr レジン及び Pb レジン各 2mL が充填されたカラムに HLLW 試験液、洗浄液及び溶離液を通液し、カラムからの排出液を回収し、 γ 線放射能測定及び ICP-AES による元素濃度分析を行った。

② HLLW 試験液から Cs 及び Am を除去した溶液

セル内で HLLW 試験液中の Cs を AMP によって除去した溶液を搬出し、グローブボックス内で Am の ADAAM 抽出剤による分離を行った。そして ADAAM 抽出剤によって処理した溶液の硝酸濃度を 8.9M に調整した後、Sr レジン及び Pb レジンを充填したそれぞれのカラムに、供給液 2mL 通液、洗浄液 (8M 硝酸) 20mL、溶離液 (0.02M 硝酸) 20mL を随時通液した。各カラムからの排出液 (Sr 溶離液) を回収し、 α 線、 β 線及び γ 線放射能測定並びに ICP-AES による元素濃度分析を行った。

(4) Sr-90 及び Y-90 の液体シンチレーションカウンタによる測定

分離回収した Sr 溶離液中に含まれる Sr-90 及び娘核種である Y-90 並びに他の β 線放出核種の定量分析を液体シンチレーションカウンタで行った。Sr-90 の分析は、従来から一般的に行われている β 線のシンチレーション光を測定する方法^{18),19)}以外にチェレンコフ光を測定する方法がある。後者は液体シンチレータを使用することなく短時間で精度の良い分析を

行えるため^{20)~22)}、ここでは3本の光電子倍增管による TDCR (Triple to double coincidence ratio) 技法によるチェレンコフ光測定法を適用した。測定試料は Sr 溶離液 (8mL) と液体シンチレーションカクテル剤 (12mL) の混合した溶液 (試料①) 及び Sr 溶離液 (8mL) (試料②) の2種類を調製した。

Sr を分離した直後から Sr-90 の娘核種である Y-90 の生成が始まるので、測定は試料からの Sr 分離後 1 時間以内に開始した。試料測定は 3 回の異なるタイミングで行った。最初に Sr の β 線放出核種 (Sr-89 及び Sr-90) を測定するためにそれぞれ 300 秒で 2 回測定を行った。次に、Y-90 の生成を確認するためにそれぞれ 1,800 秒で 5 回測定を行った。最後に、Sr-90 と Y-90 が放射平衡に達する期間 (約 2 週間) 試料を保管した後、それぞれ 1,800 秒で 5 回測定を行った。これらの測定結果から Sr-90 及び Y-90 の β 線スペクトルの変化の確認及び放射能濃度の評価を行った。

2.3 AMP による Cs の共沈分離

硝酸溶液中で AMP 共沈法による Cs の選択的分離を確認するため、以下の3種類の試験を行った。具体的な試験手順は以下のとおりである。

(1) 硝酸 Cs 溶液による試験 (コールド試験)

Cs を 33.8、84.5、169、338、676mg/L の濃度で含んだ 3.1M 硝酸溶液 6mL にそれぞれ 50mg の AMP を添加し、30 分混合、一晚静置した後、沈殿物をメンブレンフィルタ (孔径: 0.45 μ m) でろ過し、ろ液中の Cs 濃度を ICP-MS によって測定した。AMP による Cs の共沈分離試験の様子を写真 1 に示す。

(2) 模擬 HLLW 液による試験 (コールド試験)

HLLW を模擬して調製した溶液 (硝酸濃度 3.0M、10 元素含有 (Sr、Y、Zr、Mo、Ru、Pd、Ba、Nd、Eu、Cs)) 5mL に AMP を 10mg 及び 15mg 添加し、30 分混合、一晚静置した後、メンブレンフィルタ (0.45 μ m) で沈殿物をろ過し、ろ液中の各元素の濃度を Cs は ICP-MS、それ以外の元素は ICP-AES によって測定した。

(3) HLLW 試験液による試験 (ホット試験①)

上記(2)で行った試験結果を踏まえて、まず 1 回目の処理として HLLW 試験液 10mL と AMP 30mg を混合する条件で試験を行った。次に 1 回目の処理後の HLLW 試験液 5mL を分取したものに AMP10mg を混合する条件で 2 回目の処理を行い、ろ液中の各核種の濃度を γ 線放射能測定によって行った。

(4) HLLW 試験液による試験 (ホット試験②)

上記(3)で行った試験条件とは別に、まず 1 回目の処理として HLLW 試験液 10mL と AMP 80mg を混合する条件で試験を行った。次に 1 回目の処理後の HLLW 試験液をメンブレンフィルタ (0.45 μ m) でろ過した溶液にさらに AMP80mg を混合する条件で 2 回目の処理を行い、ろ液中の各核種の濃度を α 線及び γ 線放射能測定によって行った。

2.4 ADAAM による Am の分離

AMP で Cs を分離した HLLW 試験液の硝酸濃度を 1.4M に調整し、これを抽出の元液とし

て使用した。Am の抽出剤は株式会社ケミクレア製の ADAAM を nDD で 0.2M に希釈したものを使用した。スクリーキャップ付きのバイアル瓶（ガラス製）に水相及び有機相をそれぞれ 1.8mL 加え、Am の抽出処理として 1 分間振とう混合した。そして静置及び分相後、有機相を 1.6mL 採取し、これに 0.01M 硝酸を 3.2mL 加え、Am の逆抽出処理のため 1 分間振とう混合し、静置及び分相後、各相の各核種の濃度を α 線及び γ 線放射能測定によって行った。

2.5 分析方法

硝酸濃度の分析はメトローム製の自動滴定装置の 888 Titrande を使用して、炭酸ナトリウム溶液による中和滴定法により行った。非放射性試料の Cs 濃度の分析はアジレント・テクノロジー製の誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）Agilent 7500 を用いて行った。Cs 以外の元素の濃度分析は島津製作所製の誘導結合プラズマ発光分析装置（ICP-AES）ICPS-7510、放射能測定（ α 線、 γ 線）は ORTEC 製の Si 表面障壁型半導体検出器（SSD）、Alpha ensemble 8ch α 線スペクトロメータ、放射線スペクトルの解析を行うマルチチャンネルアナライザー（MCA）はセイコーEG&G 製の MCA-7 を使用した。また、ホットセルからの試料搬出時の表面線量当量率は応用技研製の電離箱式サーベイメータ AE-133V/Λ2+によって測定した。さらに、 β 線放射能測定は Hidex 製の液体シンチレーションカウンタによって行った。

3. 結果と考察

3.1 抽出クロマト樹脂による Sr の分離

(1) 模擬 HLLW のバッチ分離試験

各元素の試験前後における濃度の割合（試験後濃度／試験前濃度）を表 2 に示す。試験後の溶液中に残った Sr の割合は、Sr レジン及び Pb レジンを使用した場合のそれぞれについて 6.91% 及び 8.80% であり、Sr の大部分が樹脂に吸着された。その他の元素では Pd と Ba の一部が樹脂に吸着されているが、その割合は 50% 未満であり樹脂を充填したカラムへの洗浄液の通液によりその大部分は流出し、Sr と分離できると考える。その他の割合はほぼ 100% であり、樹脂を充填したカラムに HLLW 及び洗浄液を通液した際に樹脂に吸着されずに流出して、Sr から分離されると思われる。

(2) 模擬 HLLW のカラム分離試験

分離試験の処理フローを図 1 に示す。Sr レジン及び Pb レジンを充填したカラムからの回収液中の各元素の濃度を図 2 及び図 3 にそれぞれ示す。また、カラムからの回収液中の各元素濃度、回収液量から算出した物質質量及びそれに基づいて求めた回収率を表 3 に示す。この結果は、Sr レジン及び Pb レジンの双方とも硝酸濃度が 6M の条件で Sr を樹脂に吸着及び保持し、硝酸濃度が 0.02M の溶離液をカラムに流すことで Sr を溶離、回収したことを示している。なお、表において N.D.（Not detected）は検出限界以下であることを示す。溶離液

中に微量の Ba の同伴が見られたが、Ba の大部分は洗浄液によって除去されているため影響は小さいと考えられる。

(3) HLLW 試験液のカラム分離試験 (6M 硝酸による処理)

本試験の供給液及び回収液の元素及び核種の物質量を計算した結果を表 4 に示す。なお、表において各樹脂の洗浄液と溶離液の濃度は使用した HLLW 試験液 (1mL) と比較のため、カラム分離試験での濃度分析の結果を供給排液 (1mL)、洗浄液 (20mL) 及び溶離液の液量 (20mL) によって物質量 (μg) に換算した値である。その結果において、前項で行った予備試験で得られた結果から想定していたよりも Sr 溶離液に Pd 及び Ba 等の不純物元素の混入が多かった。この原因は予備試験で使用した模擬 HLLW と HLLW 試験液の液性の違い (共存する元素及び元素の化学形等) による影響があったものと考えられる。これらの不純物元素をさらに除去するには、洗浄液の液量を増やすか、より分離効率が高くなるように洗浄液の硝酸濃度を 6M よりも高くする必要があることが分かった。なお、Sr レジンと Pb レジンの結果に大きな差は見られず、本試験における両者の分離性能はほぼ同等であった。

(4) HLLW 試験液のカラム分離試験 (8M 硝酸による処理)

上記(3)で行ったカラム分離試験では、HLLW 試験液の洗浄液の硝酸濃度が 6M では不純物 (Pd、Ba) の混入が多く見られたことから、HLLW 試験液及び洗浄液の硝酸濃度を 8M 以上の条件によって Sr 分離試験を行った。

Sr レジンの溶離液中に含まれる元素の ICP-AES による分析時の画面を図 4 に示す。この図のグラフの横軸は波長、縦軸は信号強度である。また、グラフの左上に分析元素、右上に測定に使用した波長が記載されている。この図から Sr 及び Ba においてはピークが検出されて有意な量が検出されているが、その他の元素は明確なピークが現れていないことからカラム分離によって Ba 以外の元素はほぼ除去されたことが分かった。また、ICP-AES による各回収液の元素分析を行った結果を表 5 に示す。Sr レジン及び Pb レジンを用いた試験の溶離液中の Sr 濃度はそれぞれ 1.50mg/L 及び 1.58mg/L (液量から換算した Sr 量 : 約 30 μg) であり、両者に大きな差異は見られなかった。Cs を除去した HLLW 試験液中の Sr 濃度は 136mg/L であり、これを 0.8mL 使用してカラム分離試験を行ったことから、カラムに供給した Sr の量は 108.8 μg である。カラム分離試験で回収した Sr の量 (希釈・分取による倍率を考慮した値) は 91.7 μg であり、これはカラムに供給した Sr の量の 84.3% に相当する。15.7% の差は、供給液の前処理で溶媒抽出によって Am の分離処理を行ったことによる希釈、分取の影響及び試料分析の誤差によるものが含まれると考える。また、コールド試験で Sr 溶離液への同伴が見られた Pd は検出下限値未満であったが、Ba が 0.4mg/L の有意な濃度で同伴していることが確認された。Sr レジン及び Pb レジンは特性上 Ba (II) を吸着しやすいため、カラム試験による処理で Sr 溶離液中に同伴したと思われる。さらに Ba を Sr から分離するにはクロマト樹脂の洗浄時の洗浄液の量をより増やすなどの対策を講じる必要があると思われる。なお、溶離液に微量の P 及び Zr が検出されているが、図 4 の ICP-AES による元素分析プロファイルを見ると波長のピークは現れていないことから検出下限値に近い、極めて微量の濃度であることが分かった。

Sr レジン及び Pb レジンで処理した洗浄液、溶離液の放射能測定の結果及びグローブボッ

クス内での試験の様子を表 6 及び写真 2 にそれぞれ示す。なお、表 6 において各樹脂の洗浄液と溶離液の濃度は供給液（2mL）との比較のため、それぞれの回収液の液量によって濃度を物質量に換算した値である。また、Sr レジン及び Pb レジンを用いた試験で回収した溶離液の γ 線スペクトルを図 5 及び図 6 にそれぞれ示す。溶離液には γ 線核種はほとんど存在せず検出下限値未満（バックグラウンドレベル）であった。ICP-AES 分析で検出された Ba は γ 線放射能測定では検出されていないことから、Cs-137 の崩壊によって生成した Ba-137 等の安定核種であるものと考ええる。また、Sr レジン及び Pb レジンを用いた試験で回収した溶離液の α 線スペクトルを図 7 及び図 8 にそれぞれ示す。ごく微量の Np-237 及び Cm-244 がスペクトルに現れているが、Np-237 が 12Bq/mL、Cm-244 が 3Bq/mL と双方ともバックグラウンドレベルに近いものであり、調製した試料数（n=3）における測定誤差が 10%を超えていたため、評価としては検出下限値以下の値と判断した。それ以外に Pu-239 と Pu-240 及び Pu-238 と Am-241 の存在が確認された。本試験では使用済燃料溶解液から 30%TBP/nDD を用いたバッチ抽出法で U 及び Pu を分離したが、分離操作が一回であったため HLLW 試験液中に微量の Pu が残留したと思われる。商用再処理工場ではミキサセトラ等を用いた連続多段抽出法が適用され、大部分の Pu は抽出分離工程で除去されることから、本試験で残留していた Pu による α 線放出核種の評価についての議論はここでは除外する。

今回、比較検討のため Sr レジン及び Pb レジンの 2 種類の抽出クロマト樹脂を使用した試験及び試料分析を行った。その結果、双方の抽出クロマト樹脂の特性に大きな差は見られずほぼ同等の性能を有していることを確認した。

(5) 分離した Sr の核種及び Y-90 の分析

Sr を分離した試料を調製してから 1 時間以内に液体シンチレーションカウンタでチェレンコフ光測定法により 300 秒間の測定を 2 回行った結果を図 9 及び図 10 に示す。また、図 11 及び図 12 には 1,800 秒間の測定を 5 回行った結果を示す。

Sr 溶離液と液体シンチレーションカクテル剤を混合した溶液（試料①）は Sr-90（ β 線最大エネルギー：0.546MeV）と Y-90（ β 線最大エネルギー：2.280MeV）が測定され、Sr 溶離液（試料②）では Y-90 のみが測定された。また、1,800 秒の繰り返し測定を行った結果の図 11 及び図 12 において Sr-90 のピークに大きな変化は見られなかったが、Y-90 のピークは時間の経過とともに計測カウントが上昇しており、Sr-90 の崩壊による Y-90 の生成過程を確認した。また、試料の放射平衡後（Sr 分離から 19 日後）に測定を行った結果を表 7 及び図 13 に示す。測定の結果、得られた放射エネルギーは Sr-90 が 916Bq 及び Y-90 が 890Bq であり、両者は放射平衡となっていることからほぼ同じ値となった。なお、表 7 において試料の測定値 DPM（Disintegration per minute）は 1 分間あたりの崩壊数である。この結果からカラム分離試験によって回収した Sr 溶離液（回収量：20mL）の Sr-90 の濃度は 591 μ g/L、回収量は 11.8 μ g である。また、Sr 溶離液の ICP-AES 測定の結果、Sr 濃度は 1.5mg/L であったことから、全 Sr のうち 39.4%が Sr-90 であることが分かった。さらに、試験での分取量及び試料調整時の希釈倍率に基づくと、HLLW 試験液の Sr-90 の濃度は 36.1mg/L となった。

試料の測定において、Sr の同位体のうち Sr-90 以外の短半減期の β 線放出核種（Sr-89：半減期 50.53 日、 β 線最大エネルギー 1.495MeV）はスペクトルからは確認できなかった。

これは、試験で使用した HLLW 試験液は運転停止後の期間が 30 年以上経過した使用済燃料を使用していることから、短半減期の Sr 核種は減衰し存在はないものと考えられる。

3.2 AMP による Cs の共沈分離

(1) 硝酸 Cs 溶液による試験 (Cs 単独系)

ろ液中の Cs 濃度の測定結果から求めた、Cs の共沈物への移行率及び Cs の除染係数の初期 Cs 濃度依存性を図 14 及び図 15 にそれぞれ示す。なお、Cs 沈殿移行率は(1)式及び除染係数 (DF) は(2)式によって求めた。

$$\text{Cs 沈殿移行率 (\%)} = 1 - (\text{AMP 処理後の溶液中 Cs 濃度} / \text{溶液中の初期 Cs 濃度}) \cdots (1)$$

$$\text{除染係数} = \text{溶液中の初期 Cs 濃度} / \text{AMP 処理後の溶液中 Cs 濃度} \cdots \cdots \cdots (2)$$

Cs 単独系における Cs の AMP 沈殿への移行率は 90% 以上であり、初期 Cs 濃度が 338mg/L 以下の条件では除染係数の値が 100 以上となった。

(2) 模擬 HLLW による試験 (10 元素共存系)

AMP 共沈試験前後の元素濃度及び液中存在率を表 8 に示す。ここでの液中存在率とは、共沈試験前後の試験液中の各元素濃度の比を百分率で示したもので、以下の(3)式により求めたものである。

$$\text{液中存在率 (\%)} = \text{AMP 処理後の溶液中 Cs 濃度} / \text{溶液中の初期 Cs 濃度} \times 100 \cdots (3)$$

試験に使用した AMP の量が 10mg 及び 15mg のどちらの条件においても試験前後における Cs の濃度が大きく減少し、99% 以上が AMP と共沈した。Cs 以外の元素は試験後もその大部分が溶液中に残存した。なお、Mo は試験前よりも試験後の方が高い濃度を示し、P は模擬 HLLW の調整時に加えていなかったが試験後に有意な濃度で検出された。Mo 及び P は AMP の構成元素であることから、共沈試験中にその一部が溶出したと考えられる。

(3) 使用済燃料溶解液による Cs の AMP による沈殿分離

使用済燃料溶解液を処理して調製した HLLW 試験液を使用して、上述の試験結果から 99% 以上の Cs 分離が見込まれる条件 (溶液 10mL に対し AMP-30mg) で試験を行った。試験液中の各核種の γ 線放射能測定結果を表 9 に示す。1 回の処理での Cs-137 の AMP 沈殿への移行率は 65.1% であった。1 回の AMP 処理ではまだ不十分であったので、得られたろ液の一部 (5mL) を分取し、さらに 10mg の AMP を添加して 2 回目の処理を行った場合、2 回の処理の合計で Cs-137 の 98.7% が AMP と共沈して溶液から分離された。また、放射能測定の結果から Cs-137 以外の核種の液中放射能濃度に大きな変化は見られず、Cs-137 が選択的に AMP と共沈し、他の元素から分離された。

コールド試験の結果から想定していた AMP での 1 回の処理で Cs の 99% 以上を溶液中から分離することはできなかった。これは、多種多様の元素及び放射線を放出する核種が含ま

れている実燃料溶解液由来の HLLW 試験液と模擬 HLLW との液性の違いや含まれる元素の化学形等の違いによる影響であると思われる。AMP による 2 回の処理後の回収溶液 (約 5mL) の試料瓶表面の線量当量率は約 10mSv/h であった。グローブボックスでの取り扱いが可能なレベル (およそ 1mSv/h 以下) とするには AMP の添加量を増やす等の処理によってさらに Cs-137 を溶液中から分離する必要がある。

上記の結果から、HLLW 試験液に添加する AMP 量を増やして試験を行う必要があるため、使用済燃料溶解液を 30%TBP/nDD で処理した HLLW 試験液を再度調整した。これを用いて、80mg の AMP による Cs の共沈分離を 2 回行い、分離前後の α 線及び γ 線放射能測定を行った。表 10 に放射能測定の結果、写真 3 及び写真 4 にホットセル内でのマスタースレーブマニプレータによる試料分取の様子及び HLLW 試験液に AMP を添加した時の様子を示す。2 回の AMP による共沈処理により、HLLW 試験液中の Cs-137 の 99.98% を分離した。AMP 共沈物をろ過した後の溶液 (約 10mL) の試料瓶表面における線量当量率は、1 回目の処理では 12mSv/h、2 回目の処理では 6mSv/h であった。AMP で処理する前の試料の表面線量当量率は 1Sv/h を超えていたため、Cs-137 の分離により試料溶液の表面線量当量率が大幅に減少した。しかし、2 回処理後の溶液であっても 10mL 全量をグローブボックスで取り扱うには線量当量率が高いため、セル内で溶液を 1mL 分取し、これをグローブボックスに搬出して、試験及び試料分析に使用した。写真 5 にセルから搬出した AMP 処理後の HLLW (1mL) を示す。HLLW 中の Cs はほぼ分離されているが、さらに試料溶液の表面線量当量率を低下させ、より多くの液量をグローブボックスで取り扱えるようにするには、HLLW から Cs 以外の放射性核種 (例えば、Eu-154 等) を分離する必要がある。

3.3 ADAAM による Am の分離

グローブボックスにおいて AMP で Cs を除去した HLLW を ADAAM 抽出剤 0.2M と混合し、静置及び分相後、有機相を 1.6mL 採取し、これに 0.01M 硝酸を 3.2mL 加え、Am の逆抽出処理として振とう混合した。表 11 に抽出処理前、抽出処理後及び逆抽出処理後の各液の α 及び γ 放射能測定結果を示す。また、写真 6 に抽出処理時における振とう混合及び静置の様子を示す。表 10 での放射能測定の結果から ADAAM 抽出剤による Am-241 の分配比は 1.76、Cm-244 は 0.35 となり、硝酸濃度 1.5M で行われた試験でのそれぞれの文献値 2.55、0.43 と近い値であった^{15)~17)}。

AMP で Cs を分離した HLLW 0.8mL (Am-241 量: 187.2 μ g) に ADAAM 抽出剤を適用し、バッチ法による 1 回の抽出処理を行い、Am-241 の回収量及び回収率としてそれぞれ 94.4 μ g 及び 81.4% を得た。回収した Am-241 の溶液には Cm-244 以外にも微量の放射性核種 (Eu-154、Np-239) が検出された。回収率としては充分ではないが、抽出処理の回数を増加することによって、回収率の向上及び同伴する核種の除去が可能であると考ええる。

3.4 HLLW からの Sr、Cs 及び Am 分離フローシートの検討

今回、HLLW 試験液から Sr、Cs 及び Am それぞれを分離する試験を実施した。試験は、(1) ホットセル内での AMP 共沈法による HLLW からの Cs 分離、(2) Cs を分離した HLLW に

ADAAM を適用した Am の溶媒抽出分離、(3)Cs 及び Am を分離した HLLW に Sr レジン及び Pb レジンを適用した Sr の抽出クロマト分離の順序により処理を行った。(1)の Cs 分離により HLLW 試験液の表面線量当量率が大幅に低下するため、(2)及び(3)の試験は少量の試料ではあるものの HLLW 試験液をセルから搬出してグローブボックスで試験を実施することが可能となった。今回実施した分離試験の手順フローを図 16 に示す。この手順以外に、ホットセルで Cs の共沈分離をした後、Sr の抽出クロマト分離を行い、さらに Am の溶媒抽出分離をするという順番も考えられる。しかし、Cs、Am 及び Sr の分離に適した硝酸濃度はそれぞれ 3M、1.4M 及び 8M であるため、硝酸濃度の変化をできるだけ小さくして液量の増加を少なくなる手順を選択した。さらに、抽出クロマト法による処理では、カラムに供給する試料の 10 倍の液量で洗浄及び溶離処理を行うため液量が増加する。できるだけ前段のステップで液中の放射性核種を除去する方が廃液処理及び作業者の被ばく低減化の点で望ましいことから今回の試験では、抽出クロマト法による Sr の分離処理を最後に行うフローを採用した。

4. まとめ

使用済燃料の再処理工程で発生する HLLW 中の発熱性核種の分離技術開発を行った。共沈法による Cs 分離、溶媒抽出法による Am 分離及び抽出クロマト法による Sr 分離を順次適用することにより、各元素の相互分離が可能であることを HLLW 試験液を用いたホット試験で明らかにした。

使用済燃料溶解液を処理して得た HLLW 試験液に AMP を適用し、HLLW 中の Cs-137 の 99.98% を共沈分離した。また、ADAAM 抽出剤を使用した溶媒抽出法で Am を分離し、Am-241 の回収率として 81.4% を得た。分離した Am 溶液への Cm の同伴が見られたが、その他の FP 元素との分離が可能であることを明らかにした。さらに、Sr レジンまたは Pb レジンをを用いた抽出クロマト法で HLLW 試験液から約 30 μ g の Sr を分離した。分離した Sr 溶液には Sr 1.5mg/L に対して 0.4 mg/L の濃度で Ba が存在したが、それ以外の元素はほぼ分離した。Sr レジン及び Pb レジンの分離性能の差はほとんどなく、双方とも HLLW 中の Cs を除去した後の溶液から Sr を分離するのに有効であることが分かった。

Sr を回収した溶液に対して液体シンチレーションカウンタによる β 線放射能分析を行い、全 Sr の 39.4% が Sr-90 として存在し、HLLW 試験液の Sr-90 濃度が 36.1mg/L であることを明らかにした。また、液体シンチレーションカウンタによる繰り返し測定を行い、Sr-90 の娘核種である Y-90 のエネルギーピークが成長する過程の観察及び放射平衡への到達を確認した。

本分離手法は使用済燃料の再処理で発生する HLLW に含まれる元素のうち、Cs、Sr 及び Am の効率的な分離回収プロセスの開発につながる。本試験は単段のバッチ抽出法及び泳動距離（カラム長）の短い抽出クロマト法を適用したものであるため、処理量が限定的であり微量の不純物元素の混入も見られた。今後のスケールアップ、分離精度の向上及び効率的な処理を達成するには、多段の連続抽出法及び泳動距離の長い抽出クロマト法の適用が必要である。改良の余地は残されているが、今回得た成果は今後の再処理及び廃棄物処理処分に与える負担の低

減並びに回収分離した元素の線源や熱源としての有効利用を支える技術への応用が期待できると考える。

謝 辞

本試験の実施にあたっては、理工科学株式会社の川崎倫弘氏、一般財団法人放射線利用振興協会の八木敏夫氏及び石原明宏氏、原子力エンジニアリング株式会社の黒澤達也氏、柴田光敦氏、佐川浩氏、草野光氏のご協力をいただいた。また、安全研究センター廃棄物・環境安全研究グループの邊見光氏には液体シンチレーションカウンタによる試料測定についての助言をいただいた。関係各位に対してここに深く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 石川 博久 他, “高レベル放射性廃液組成分析結果(Ⅱ)”, PNC TN8410 97-015(1997), 30p.
- 2) 再処理プロセス・化学ハンドブック検討委員会, “再処理プロセス・化学ハンドブック 第3版”, JAEA-Review 2015-002 (2015), 726p.
- 3) 森田 泰治 他, “高レベル廃液の発熱量評価—群分離プロセス安全評価のための基礎データ—”, JAEA-Data/Code 2019-015 (2020), 45p.
- 4) 星 陽崇 他, “新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発—Cs・Sr 分離技術開発—”, JAEA-Research 2010-016 (2010), 70p.
- 5) 山岸 功, “無機イオン交換体を用いた酸性媒体からの Sr 及び Cs の分離と固定化(文献調査)”, JAERI-Review 2001-027 (2001), 52p.
- 6) 日本アイソトープ協会, “アイソトープ手帳 12 版”, 丸善出版, (2020), 211p.
- 7) 近藤 康雄 他, “群分離法の開発: 使用済燃料中に含まれる有用元素の回収及び利用法(文献調査)(受託研究)”, JAERI-M 91-147 (1991), 191p.
- 8) C. L. Riddle, et al., “Fission product extraction (FPEX) : Development of a novel solvent for the simultaneous separation of Strontium and Cesium from acidic solutions” , Solvent Extr. Ion Exch., 23, pp.449-461 (2005).
- 9) E. P. Horwitz, et al., “A novel strontium-selective extraction chromatographic resin”, Solvent Extr. Ion Exch., 10, p.313 (1992).
- 10) E. P. Horwitz, et al., “A lead-selective extraction chromatographic resin and its application to the isolation of lead from geological samples” , Anal. Chim. Acta., 292, pp.263-273 (1994).
- 11) D. J. Wood, et al., “Effect of the interference of alkali and alkaline earth metal ions on the extraction of ^{90}Sr from acidic nuclear waste solutions by 18-Crown-6 derivatives” , Solvent Extr. Ion Exch., 13, 5, pp.829-844(1995).

- 12) 金沢 徹, “放射性廃液を含む酸性溶液からの Cs 分離法の検討及び ICP-AES を用いた元素分析”, JAERI-Tech 2004-050 (2004), 53p.
- 13) Y. Ban, et al., “Extraction of Trivalent Rare Earths and Minor Actinides from Nitric Acid with *N,N,N',N'*-Tetradodecyldiglycolamide (TDdDGA) by Using Mixer-Settler Extractors in a Hot Cell”, Solvent Extr. Ion Exch., 37, 1, pp.27-37 (2019).
- 14) Y. Ban, et al., “Minor Actinides Separation by *N,N,N',N',N'',N''*-Hexaocetyl Nitrilotriacetamide (HONTA) Using Mixer-settler Extractors in a Hot Cell”, Solvent Extr. Ion Exch., 37, 7, pp.489-499 (2019).
- 15) H. Suzuki, et al., “Continuous extraction and separation of Am(III) and Cm(III) using a highly practical diamide amine extractant”, J. Nucl. Sci. Technol., 54, 11, pp.1163-1167 (2017).
- 16) H. Suzuki, et al., “High-performance alkyl diamide amine and water-soluble diamide ligand for separating of Am(III) from Cm(III)”, Anal. Sci., 33, pp.239-242 (2017).
- 17) 佐々木 祐二, “Am/Cm 分離用抽出剤、ADAAM による抽出特性”, 日本原子力学会 2022 年秋の大会予稿集, 3D01 (2022).
- 18) 文部科学省, “放射能測定法シリーズ No.2 放射性ストロンチウム分析法” (2007).
- 19) 文部科学省, “放射能測定法シリーズ No.23 液体シンチレーションカウンタによる放射性核種分析法” (1996).
- 20) Jennifer M. Olfert, et al., “Rapid determination of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ in water samples by liquid scintillation and Cherenkov counting”, J. Radioanal Nucl. Chem., 300, pp.263-267 (2014).
- 21) M. Tayeb, et al., “Evaluation of interferences on measurements of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ by TDCR Cherenkov counting technique”, J. Radioanal Nucl. Chem., 300, pp.409-414 (2014).
- 22) 大野 峻史, “液体シンチレーションカウンタを用いたチェレンコフ光測定による放射性 Sr (^{89}Sr 及び ^{90}Sr) 測定法の検討”, 新潟県放射線監視センター年報, 第 12 巻(2014).

表 1 調製した模擬 HLLW の元素濃度

元素	濃度(mg/L)
Sr	57.4
Y	55.9
Zr	57.2
Mo	57.9
Ru	55.3
Pd	56.4
Ba	55.6
Nd	55.6
Eu	57.2
Cs	56.5

表 2 抽出クロマト樹脂と混合後の溶液中濃度の割合 (試験後濃度／試験前濃度)
(%)

	Sr	Y	Zr	Mo	Ru	Pd	Ba	Nd	Eu	Cs
Srレジン	6.91	100.5	99.0	94.4	94.8	79.2	51.8	99.8	97.5	104.0
Pbレジン	8.80	98.2	98.6	93.4	94.1	76.6	57.6	99.6	97.0	106.0

硝酸(6M)：10mL、 模擬 HLLW：1mL、 双方の樹脂 1g を 1 時間混合、 30 分静置後の溶液中濃度

表 3 抽出クロマト樹脂通液後の各回収液の物質質量及び回収率（(回収液の濃度×回収液量) / (模擬 HLLW 濃度×供給液量)）

樹脂	元素	Sr	Y	Zr	Mo	Ru	Pd	Ba	Nd	Eu	Cs
Sr レジン	供給排液	N.D.	0.88	N.D.	0.18	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.03
	洗浄液	0.18	58.1	61.5	57.0	55.1	54.8	41.0	58.8	58.7	57.3
	溶離液	63.6	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	10.2	N.D.	N.D.	N.D.
	回収率(%)	111.1	105.4	107.5	98.8	99.5	97.2	92.1	105.8	102.7	101.6
Pb レジン	供給排液	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.01
	洗浄液	0.19	59.6	64.0	58.2	55.0	55.7	49.9	60.6	60.9	55.8
	溶離液	65.1	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	回収率(%)	113.8	106.6	111.9	100.5	99.3	98.8	89.7	109.0	106.4	98.9

供給排液：1mL、洗浄液：20mL、溶離液：20mL カラム内径：12mm^φ 樹脂量：2mL 流速（自然落下）：約 0.7mL/min

表 4 HLLW 試験液のカラム分離試験（硝酸濃度 6M）における供給液及び回収液中の物質質量

元素 または 核種	物質質量 (μg)				
	供給液	Sr レジン (供給排液+洗浄液) (溶離液)		Pb レジン (供給排液+洗浄液) (溶離液)	
Sr	65.2	0.604	93.0	0.721	93.7
Y	61.3	52.0	< 0.036	58.5	< 0.035
Zr	2.00	1.16	< 0.16	1.69	< 0.14
Mo	221	203	< 0.16	224	< 0.16
Ru	140	116	< 0.01	125	< 0.98
Pd	79.7	52.7	9.10	58.5	9.58
Ba	201	118	7.67	112	2.91
Nd	698	605	< 0.002	725	< 0.021
Eu	33.4	30.1	< 0.067	33.4	< 0.073
Cs-137	54.7	50.4	< 4.96×10^{-5}	48.2	1.34×10^{-4}
Eu-154	0.221	0.206	< 3.41×10^{-5}	0.191	< 2.29×10^{-5}
Np-239	< 1.01×10^{-4}	2.38×10^{-6}	4.06×10^{-7}	1.87×10^{-6}	2.74×10^{-7}
Am-241	105	95.8	< 2.42×10^{-3}	90.9	< 2.29×10^{-3}

各回収液の液量 供給排液：1mL、洗浄液：20mL、溶離液：20mL

カラム内径：12mm^Φ、樹脂量：2mL、流速（自然落下）：約 0.7mL/min

表 5 HLLW 試験液のカラム分離試験（硝酸濃度 8M）における各回収液の ICP-AES による元素濃度分析結果

樹脂	回収液	P	Sr	Y	Zr	Mo	Ru	Pd	Ba	Nd	Eu
Sr レジン	供給排液	22.4	N.D.	0.90	0.10	1.30	1.43	0.07	1.45	1.53	0.41
Pb レジン	+ 洗浄液	24.8	N.D.	0.96	0.10	1.43	1.53	0.07	1.62	1.67	0.44
Sr レジン	溶離液	0.26	1.50	N.D.	0.08	0.004	N.D.	N.D.	0.41	N.D.	N.D.
Pb レジン		0.58	1.58	N.D.	0.08	N.D.	N.D.	N.D.	0.42	N.D.	N.D.

(mg/L)

供給排液：2mL、洗浄液：20mL、溶離液：20mL、カラム内径：8mm^φ、樹脂量：2mL、流速（自然落下）：約 0.5mL/min

表 6 HLLW 試験液のカラム分離試験（硝酸濃度：8M）の放射能分析結果

試 料 名	Sr分離（抽出クロマト）			
	物質 量 （μg）			
	供給液	樹脂	供給排液+洗浄液	溶離液
硝酸濃度 (mol/L)	8.9		8.0	0.02
Cs-137 (γ)	4.26×10^{-3}	Srレジン	2.12×10^{-3}	$< 3.51 \times 10^{-4}$
		Pbレジン	2.11×10^{-3}	$< 3.63 \times 10^{-4}$
Eu-154 (γ)	0.127	Srレジン	6.44×10^{-2}	$< 1.43 \times 10^{-4}$
		Pbレジン	6.46×10^{-2}	$< 1.46 \times 10^{-4}$
Np-237 (α)	< 236	Srレジン	< 195	< 4.28
		Pbレジン	< 127	< 4.43
Np-239 (γ)	2.32×10^{-5}	Srレジン	1.11×10^{-5}	$< 6.01 \times 10^{-7}$
		Pbレジン	1.16×10^{-5}	$< 6.20 \times 10^{-7}$
Am-241 (γ)	23.0	Srレジン	11.4	< 0.0148
		Pbレジン	11.8	< 0.0150
Cm-244 (α)	3.40	Srレジン	1.71	$< 9.93 \times 10^{-6}$
		Pbレジン	1.65	$< 7.95 \times 10^{-6}$
備 考	2mL		2mL+20mL	20mL

供給液：2mL、供給排液：2mL、洗浄液：20mL、溶離液：20mL

カラム内径：8mm^φ、樹脂量：2mL、流速（自然落下）：約 0.5mL/min

表 7 放射平衡後の Sr 溶解液の液体シンチレーションカウンタ（チェレンコフ光測定法）による試料測定結果

	試料① (DPM)	平均値 (DPM)	試料② (DPM)	平均値 (DPM)	B.G. (DPM)	平均値 (DPM)	正味 ⁹⁰ Sr (DPM)	⁹⁰ Sr放射能量 (Bq)
	⁹⁰ Sr - ⁹⁰ Y		⁹⁰ Y		H ₂ O			
放射平衡後試料 (1,800秒測定)	108,258	108,387	53,347	53,394	32	32	54,960	916
	108,280		53,534		32			
	108,374		53,374		33			
	108,462		53,398		34			
	108,562		53,319		31			

DPM：1 分間当たりの崩壊数

表 8 模擬 HLLW を用いた AMP 共沈試験前後の元素濃度及び液中存在率

	Sr	Y	Zr	Mo	Ru	Pd	Ba	Nd	Eu	Cs	P
混合液（分析値）	89.7	88.2	88.4	87.5	84.9	85.2	87.0	90.3	90.4	77.4	—
AMP-10mg	90.0	88.4	86.9	109.0	82.9	85.8	88.8	89.5	90.8	0.75	6.4
液中存在率（%）	100.3	100.2	98.3	124.6	97.7	100.7	102.0	99.2	100.5	1.0	—
AMP-15mg	89.8	88.2	86.1	155.1	81.7	84.9	88.9	88.6	89.3	0.32	36.5
液中存在率（%）	100.0	100.0	97.4	177.2	96.3	99.7	102.1	98.1	98.8	0.4	—

液中存在率（%）：共沈試験後濃度／混合液濃度（分析値）×100

表 9 HLLW 試験液による Cs 分離試験の試料測定 (γ 線放射能) 結果

試料名	放射能濃度 (Bq/mL)							溶液からの ¹³⁷ Cs除去率
	Am-241	Np-237	Eu-154	U-237	Np-239	Cs-134	Cs-137	
使用済燃料溶液 (U,Puを取り除いたもの)	2.10×10^7	$< 8.90 \times 10^{5*}$	3.21×10^6	$< 8.79 \times 10^5$	$< 1.25 \times 10^6$	$< 1.38 \times 10^5$	2.89×10^8	—
AMP処理① (HLLW-10mL + AMP-30mg)	2.12×10^7	$< 6.66 \times 10^{5*}$	3.25×10^6	$< 4.80 \times 10^5$	8.80×10^5	$< 8.31 \times 10^4$	1.01×10^8	65.1%
AMP処理② (AMP処理①液-5mL + AMP-10mg)	2.11×10^7	$< 7.85 \times 10^{5*}$	3.21×10^6	$< 7.97 \times 10^4$	8.88×10^5	$< 1.95 \times 10^4$	3.64×10^6	98.7%

*: 84keV バックグラウンドピークによる影響のため、“<”表示。

表 10 HLLW 試験液による Cs 分離試験試料の放射能測定結果 (AMP 共沈)

試 料 名	Cs分離 (AMP共沈)	
	核種濃度 (mg/L)	
	HLLW試験液	AMP処理液
硝酸濃度 (mol/L)	3.1	3.0
Cs-137 (γ)	116	0.0181
Eu-154 (γ)	0.464	0.465
Np-237 (α)	< 996	< 785
Np-239 (γ)	$< 1.88 \times 10^{-4}$	1.47×10^{-4}
Am-241 (γ)	234	236
Cm-244 (α)	15.2	14.8
備 考		10mL+AMP80mg 2 回処理

表 11 HLLW 試験液による Am 分離試験の試料測定結果 (ADAAM 抽出)

試 料 名	Am分離 (ADAAM抽出)			
	核種濃度 (mg/L)			
	抽出元液		ADAAM抽出	ADAAM逆抽出
硝酸濃度 (mol/L)	1.4		1.3(水相)	0.06(水相)
Cs-137 (γ)	6.08×10^{-3}	有機相	$< 1.57 \times 10^{-3}$	$< 6.90 \times 10^{-6}$
		水相	5.05×10^{-3}	< 0.0584
Eu-154 (γ)	0.172	有機相	0.0122	4.82×10^{-5}
		水相	0.175	6.16×10^{-3}
Np-237 (α)	$< 1.02 \times 10^3$	有機相	< 889	< 471
		水相	< 346	< 129
Np-239 (γ)	6.03×10^{-5}	有機相	2.68×10^{-5}	2.82×10^{-7}
		水相	2.81×10^{-5}	1.40×10^{-5}
Am-241 (γ)	88.0	有機相	56.4	0.803
		水相	32.0	29.5
Cm-244 (α)	5.85	有機相	1.56	8.46×10^{-3}
		水相	4.41	0.732
備 考			混合比 1 : 1 (1.8mL : 1.8mL)	混合比 1 : 2 (1.6mL : 3.2mL)

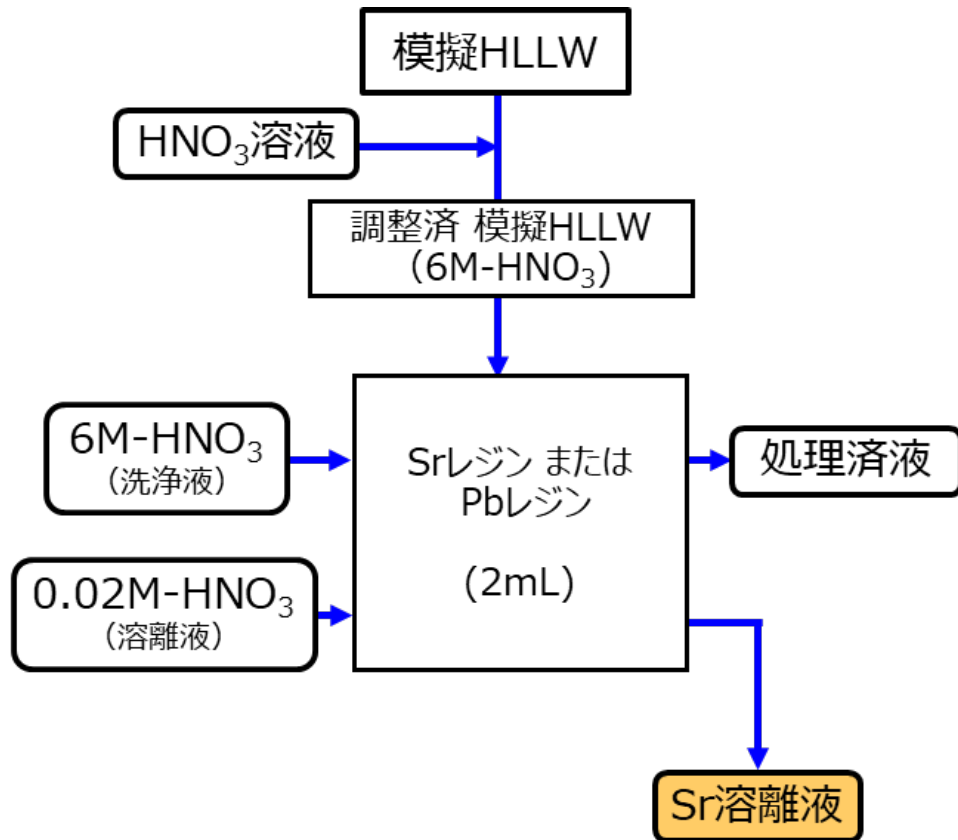


図1 抽出クロマト樹脂を用いた模擬 HLLW からの Sr 分離試験の処理フロー

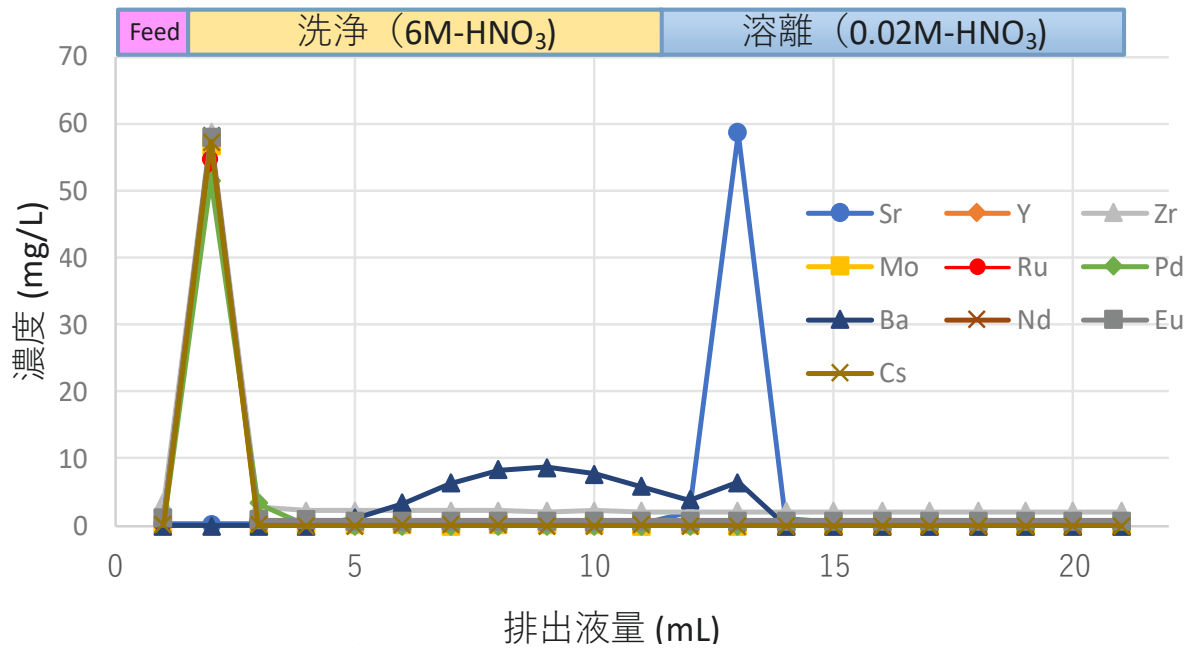


図2 Sr レジンを充填したカラムからの回収液中の各元素濃度
(カラム：内径 8mm^Φ、樹脂量：2mL、流速：0.5mL/min (重力落下)、温度：室温)

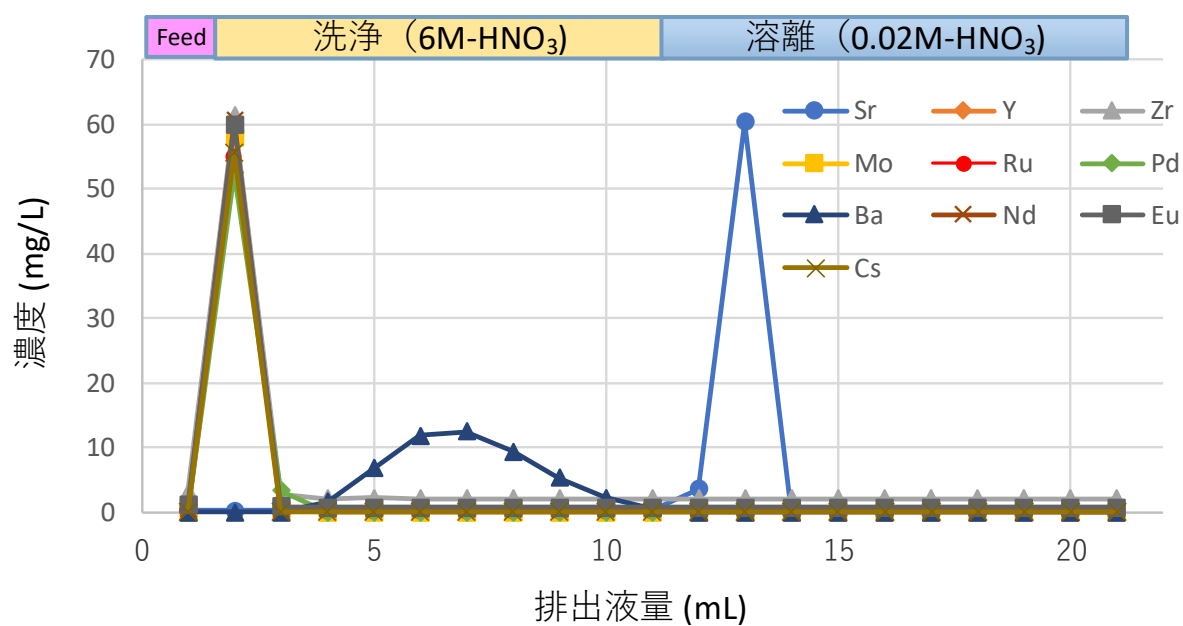


図3 Pb レジンを充填したカラムからの回収液中の各元素濃度
(カラム：内径 8mm ϕ 、樹脂量：2mL、流速：0.5mL/min (重力落下)、温度：室温)

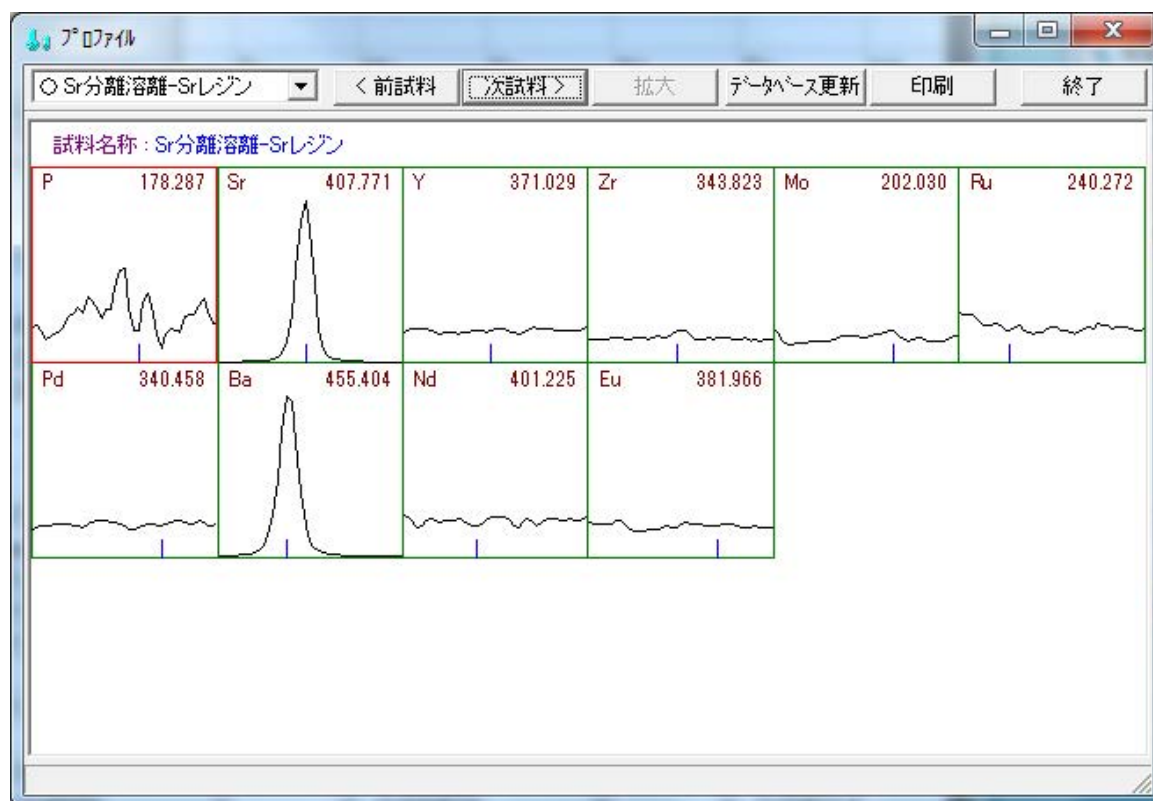


図4 Sr レジンの Sr 溶離液の ICP-AES による元素分析プロフィール

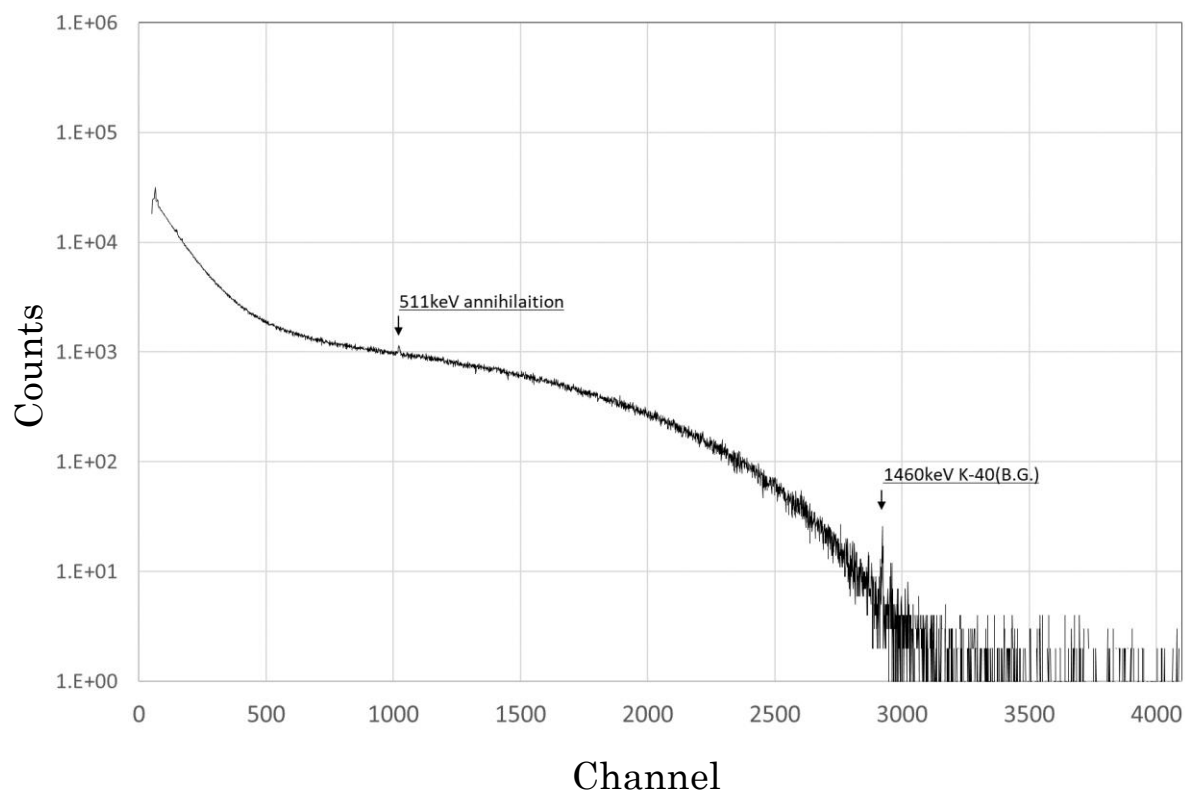


図 5 Sr レジンの Sr 溶離液の γ 線スペクトル

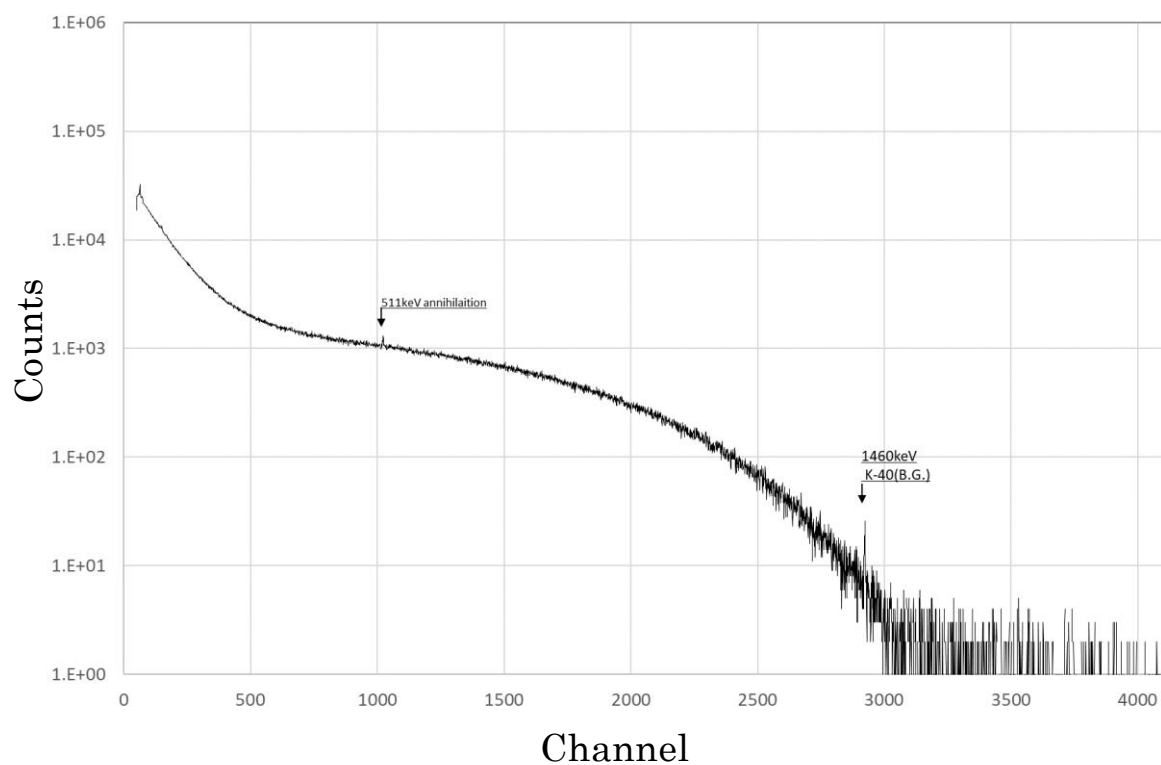
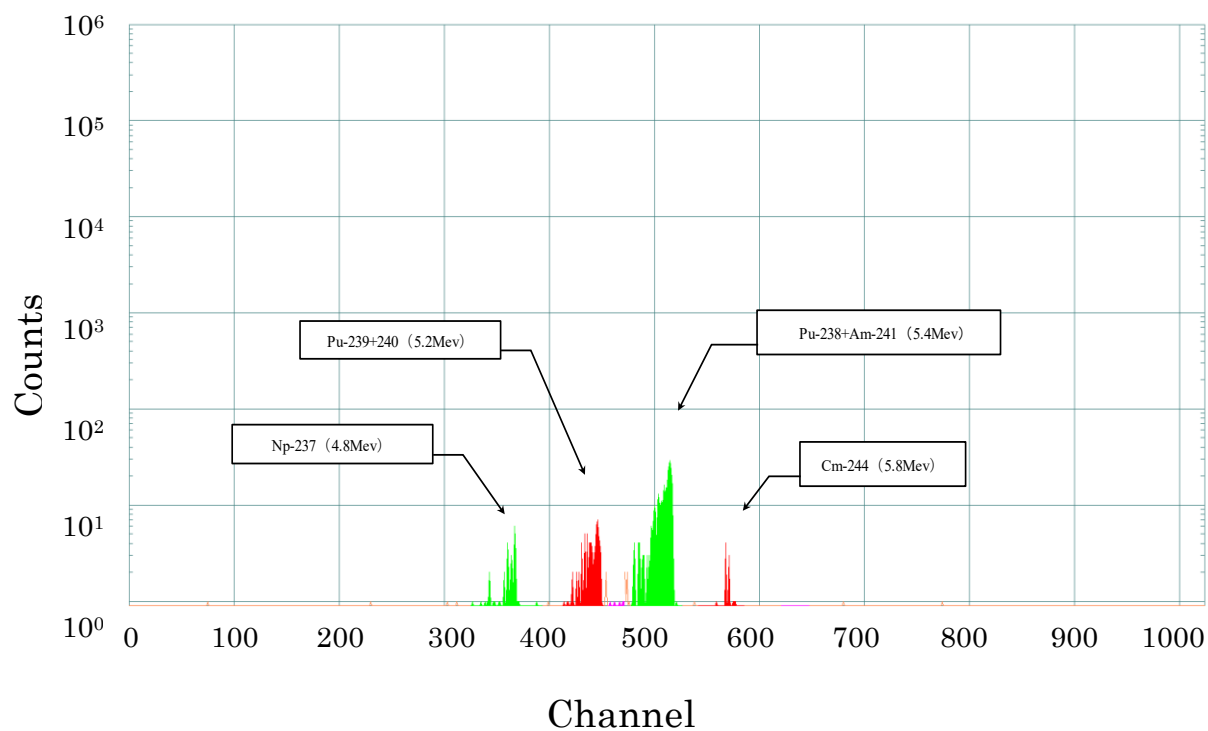
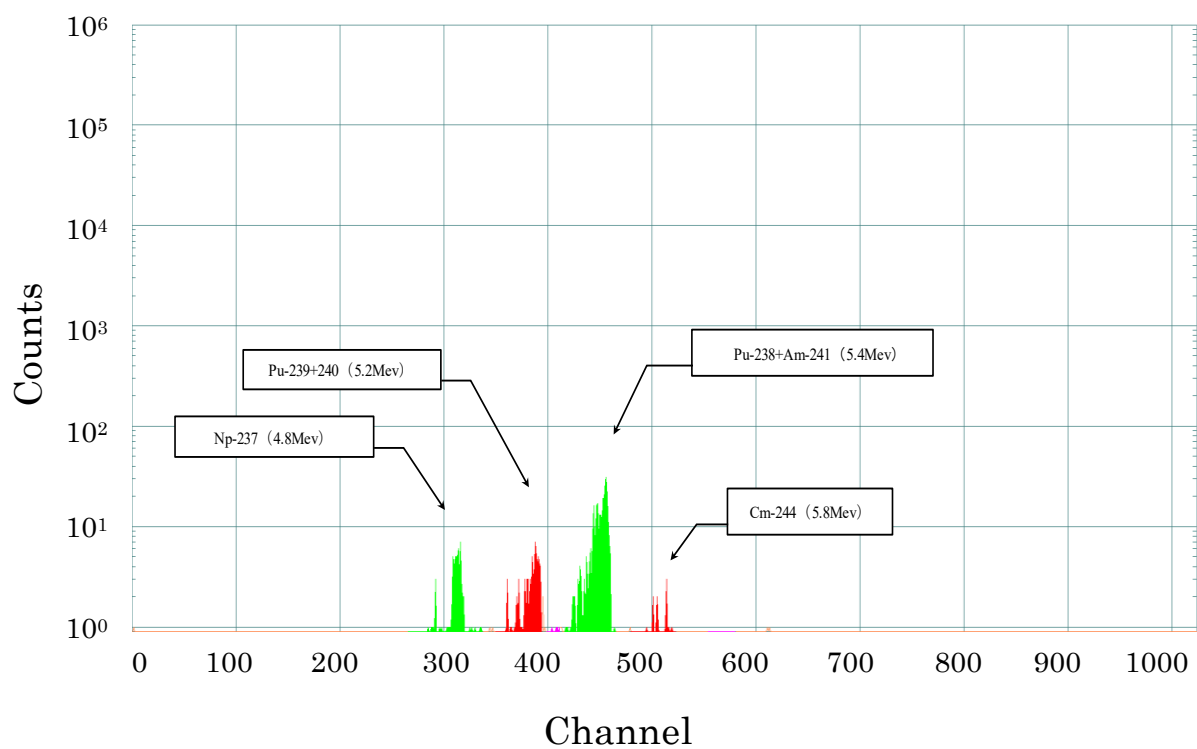


図 6 Pb レジンの Sr 溶離液の γ 線スペクトル

図 7 Sr レジンの Sr 溶離液の α 線スペクトル図 8 Pb レジンの Sr 溶離液の α 線スペクトル

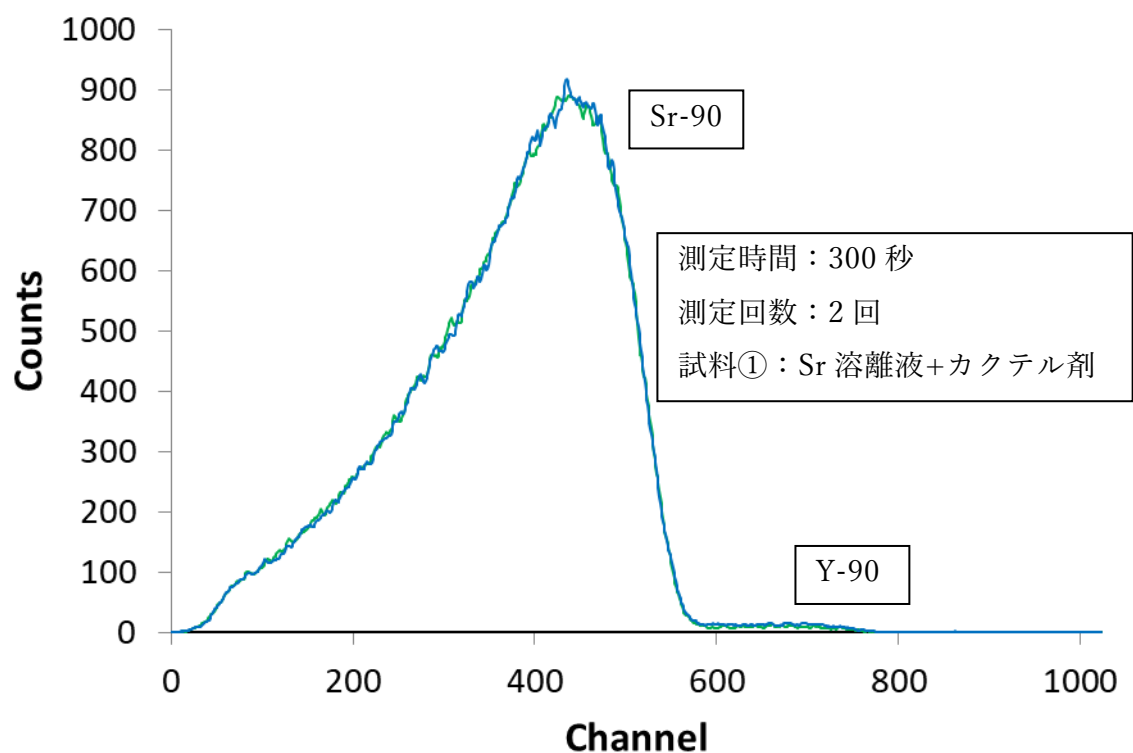


図 9 液体シンチレーションカウンタによる Sr-90 及び Y-90 の β 線スペクトル
(チェレンコフ光測定法：Sr 分離直後の試料)

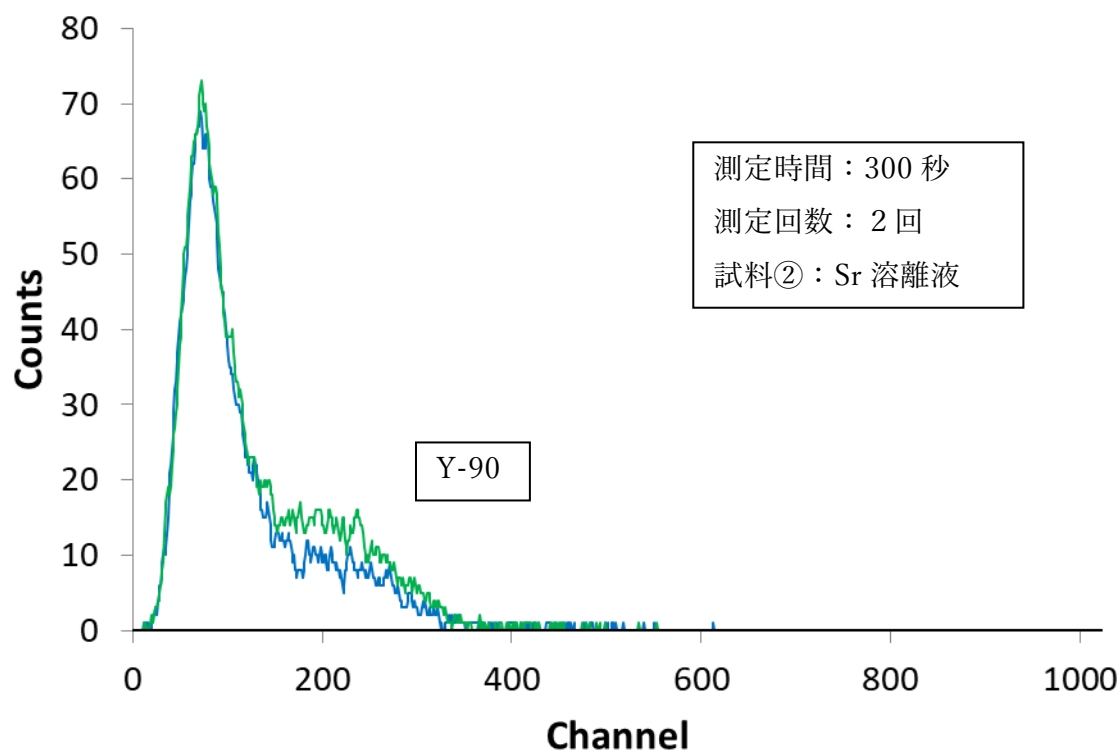


図 10 液体シンチレーションカウンタによる Y-90 の β 線スペクトル
(チェレンコフ光測定法：Sr 分離直後の試料)

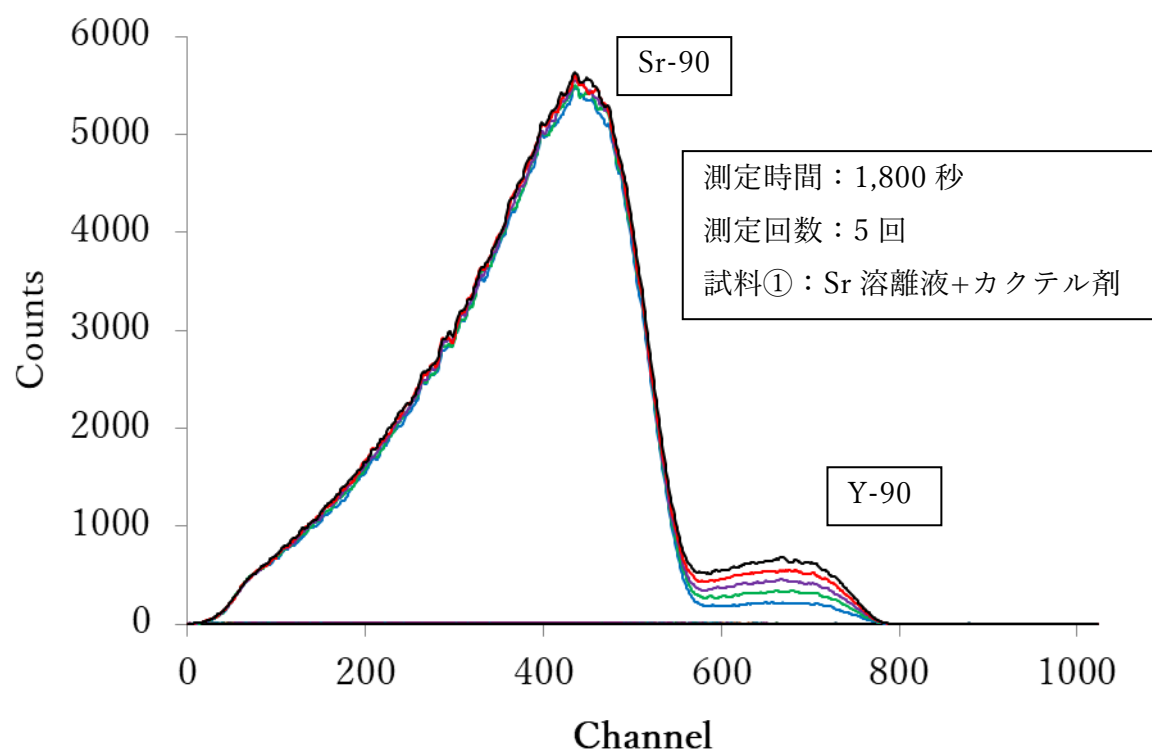


図 11 液体シンチレーションカウンタによる Sr 分離後試料の Sr-90 及び Y-90 の β 線スペクトル (チェレンコフ光測定法：1,800 秒計測)

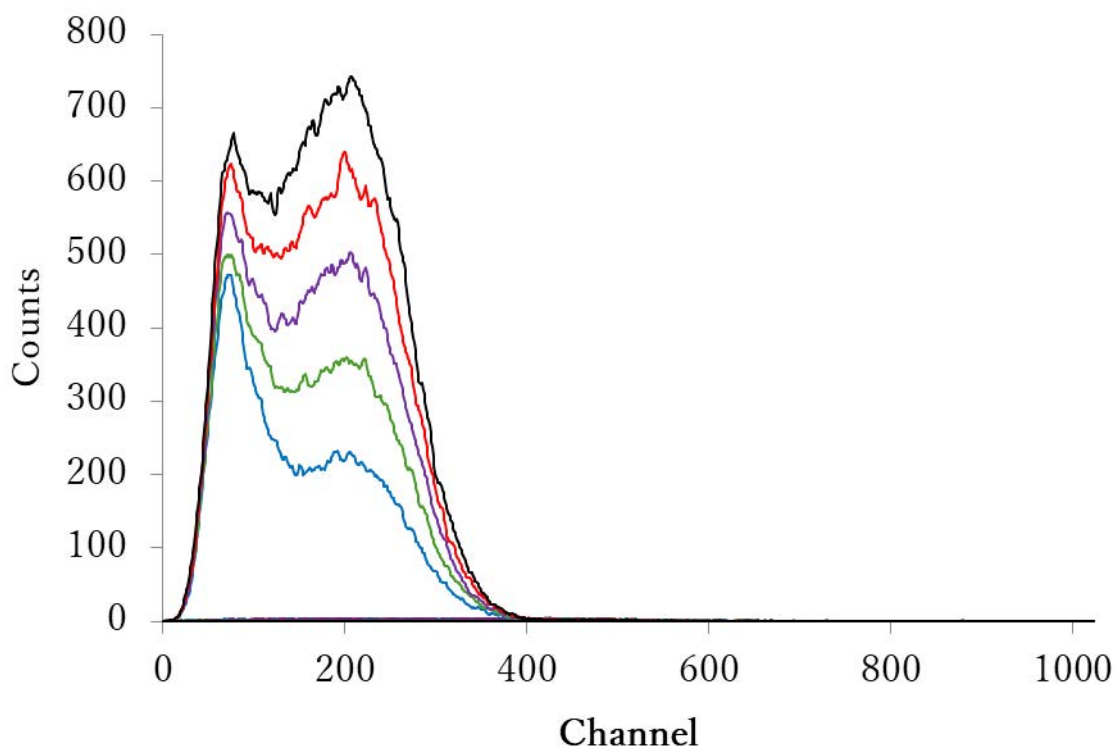


図 12 液体シンチレーションカウンタによる Sr 分離後試料の Y-90 の β 線スペクトル (チェレンコフ光測定法：1,800 秒計測)

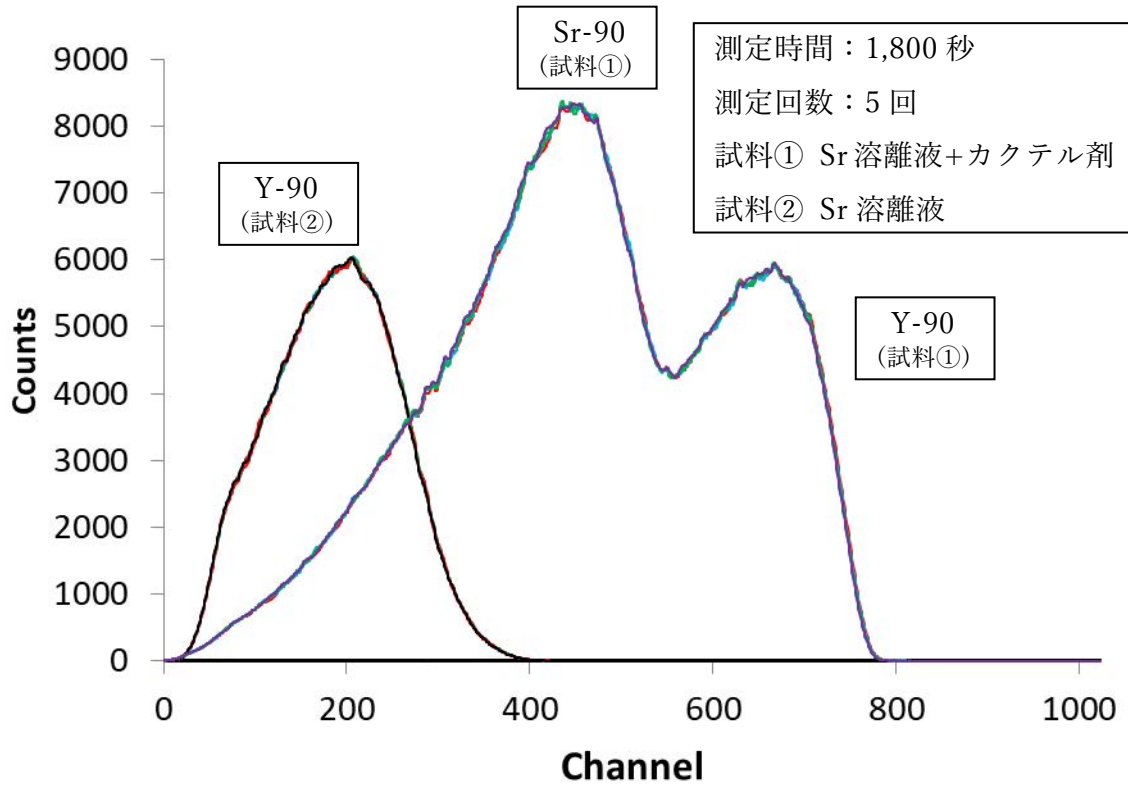


図 13 液体シンチレーションカウンタによる放射平衡後試料の Sr-90 及び Y-90 の β 線スペクトル (チェレンコフ光測定法: Sr を分離して 19 日後)

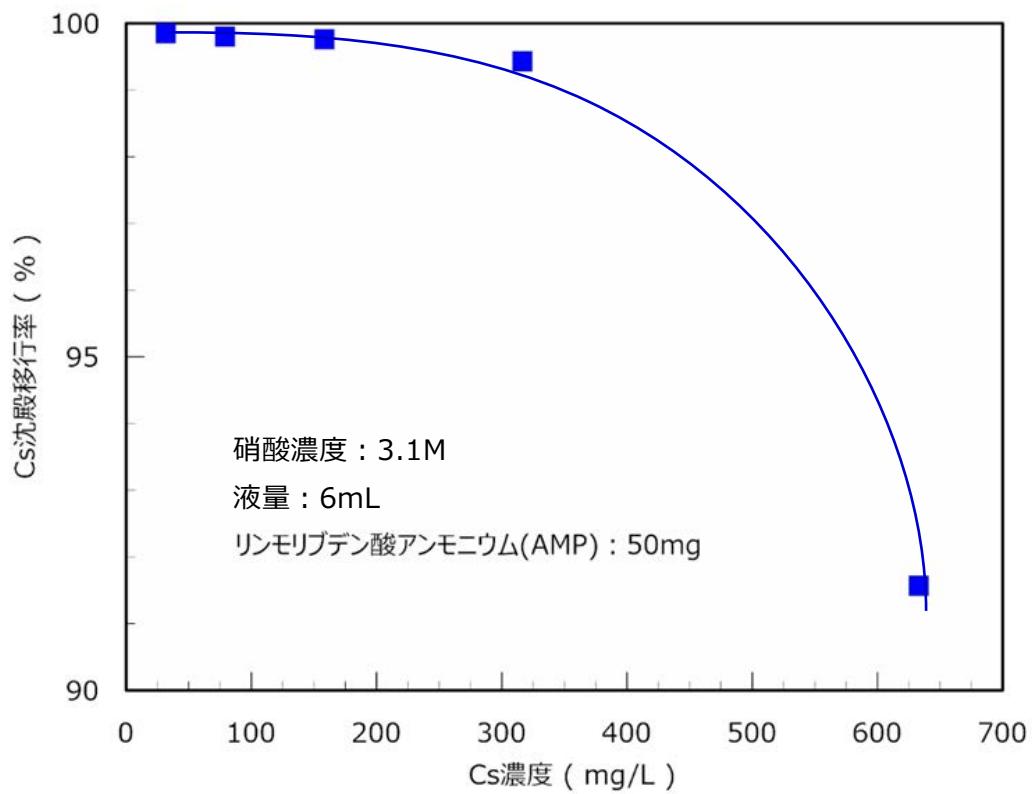


図 14 Cs の AMP 沈殿への移行率

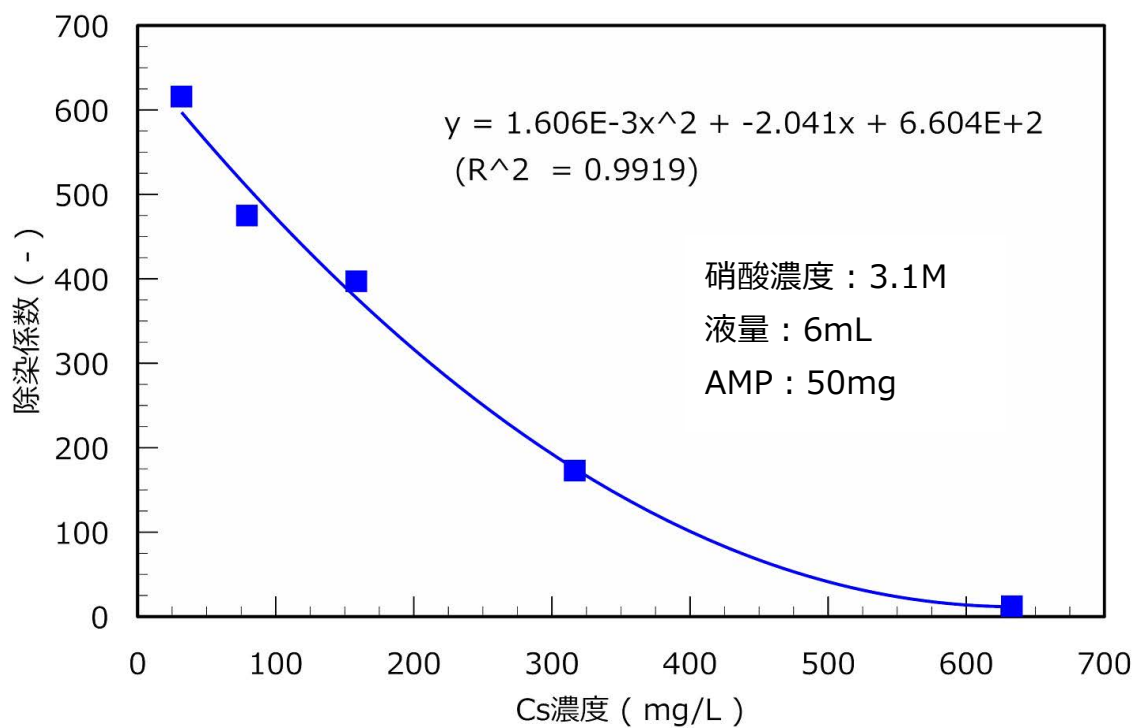


図 15 溶液中 Cs からの AMP 共沈による除染係数 (DF) の関係

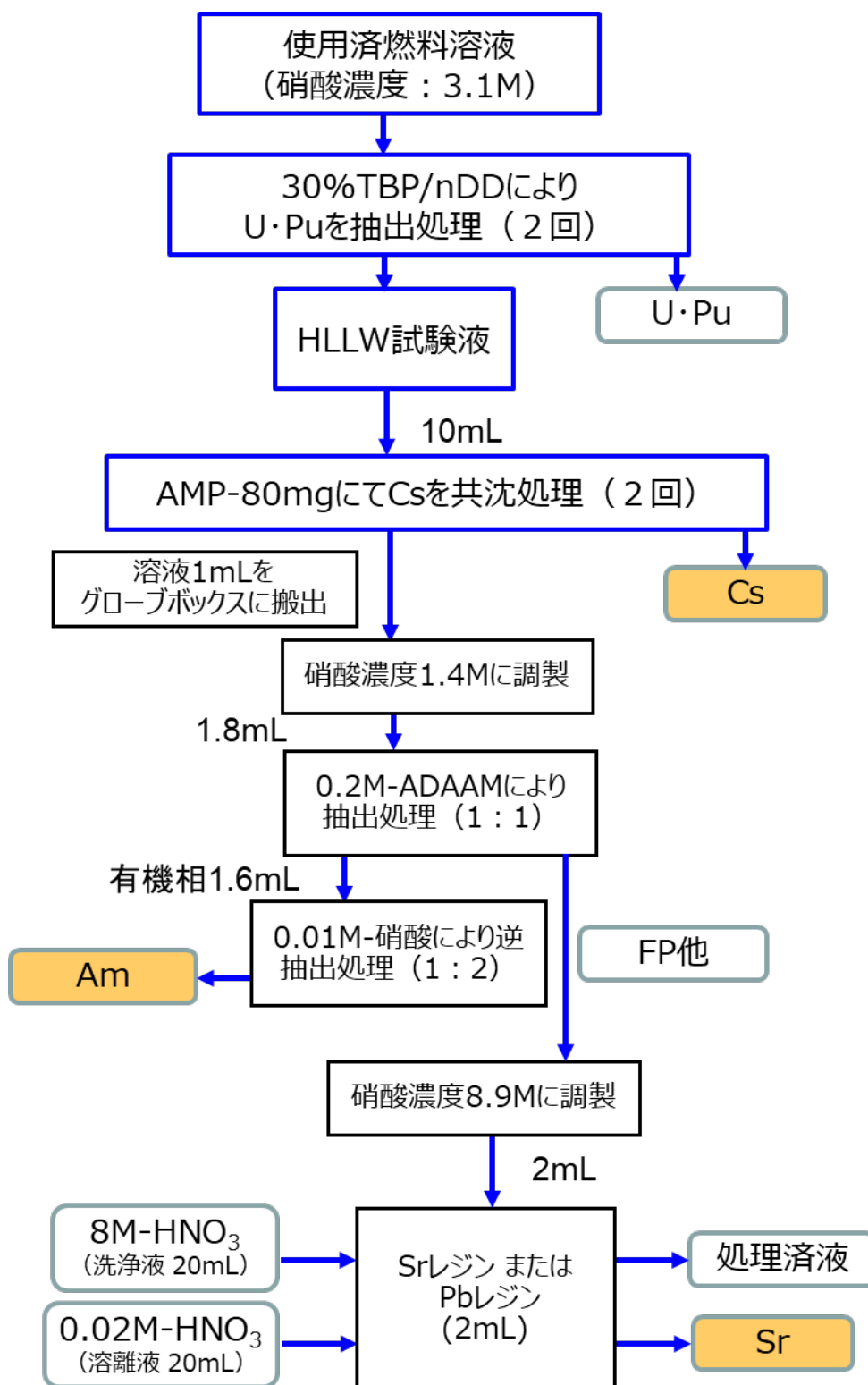


図 16 使用済燃料溶解液による分離試験のフロー

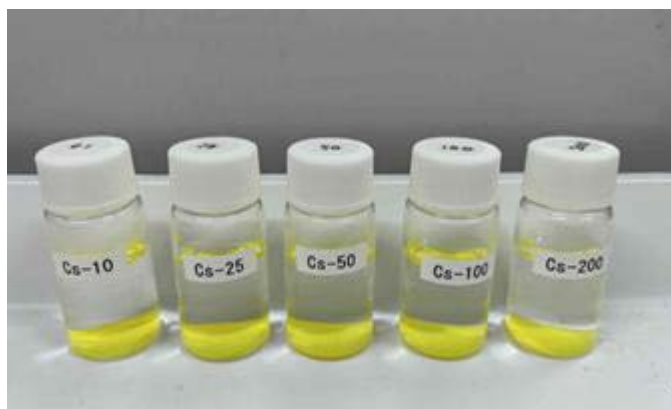


写真1 Cs と AMP の共沈（コールド試験）
(左から Cs 濃度 33.8、84.5、169、338、676mg/L、3.1M 硝酸 6mL、50mg AMP を混合)



写真2 グローブボックス内での抽出クロマト法による Sr の分離
(左：Pb レジン、右：Sr レジン、樹脂量：2mL)



写真3 ホットセル内でのマニプレータ操作による溶液の分取



写真4 HLLW 試験液に AMP を添加した状態 (HLLW 試験液 : 10mL、AMP : 80mg)

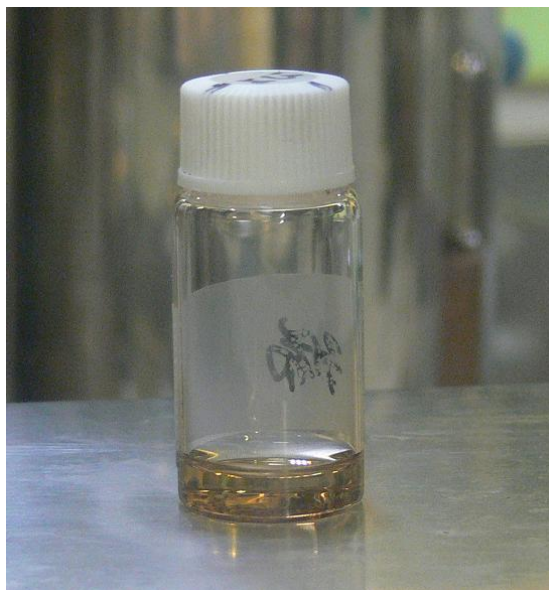


写真 5 セルから搬出した AMP 処理後の HLLW 試験液 (1mL)

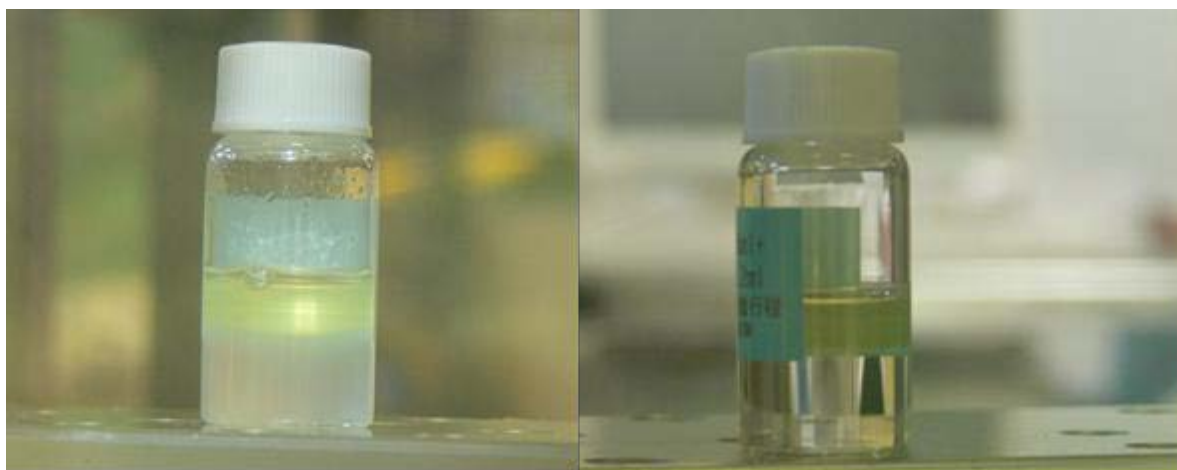


写真 6 ADAAM 抽出剤による Am の分離 (左：振とう混合直後、右：静置後)

This is a blank page.

