

JAERI-M  
85-030

群分離法の開発：資源としての高レベル廃液

1985年3月

久保田 益 充

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）  
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城  
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department  
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1985

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 山田軽印刷所

群分離法の開発：資源としての高レベル廃液

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

久保田 益充

(1985年1月31日受理)

高レベル廃液を有用元素の資源としてとらえ、廃液に含まれる有用元素の量、放射能特性、利用法、分離法、経済性などについてデータを整理し、考察した。

高レベル廃液の資源化は廃液の処理・処分上有害な元素の分離を進めるものであり、群分離の考え方と一致する。

より経済的な群分離法を確立するためにも、また高レベル廃液の処理・処分に伴うパブリックアクセプタンスを得る上でも、高レベル廃液の資源化は重要な意義があろう。

Development of Partitioning Method:

Highly Radioactive Wastes as Resources

Masumitsu KUBOTA

Department of Environmental Safety Research,

Tokai Research Establishment, JAERI

( Received January 31, 1985 )

Highly radioactive wastes generated from nuclear fuel reprocessing were regarded as resources of useful elements, and the data related to quantities, radioactive properties, utilization, separation and economic value of useful elements in the waste were collected and assessed.

Extensive utilization of the wastes promotes the separation of elements estimated to be hazardous in the treatment and disposal of the wastes and is bound closely with the idea of partitioning.

Regarding the wastes as resources will have important significance not only in establishing a more economical partitioning method but also in obtaining public acceptance of the treatment and disposal of the wastes.

Keywords: Highly Radioactive Waste, Resource, Partitioning, Strontium-90, Technetium-99, Ruthenium, Rhodium, Palladium, Cesium-137, Promethium-147, Neptunium, Americium, Curium

## 目 次

1.はじめに .....	1
2.高レベル廃液に含まれる有用元素の量及び放射能特性 .....	2
3.有用元素の利用 .....	6
4.有用元素の分離法 .....	11
5.経済性 .....	14
6.高レベル廃液の処理・処分に及ぼす効果 .....	27
7.おわりに .....	28
参考文献 .....	29

## CONTENTS

1. Introduction .....	1
2. Quantities and radioactive properties of useful elements in highly radioactive wastes .....	2
3. Utilization of useful elements .....	6
4. Separation method for useful elements .....	11
5. Economic value .....	14
6. Effects on the treatment and disposal of highly radioactive wastes .....	27
7. Conclusion .....	28
References .....	29

## 1. はじめに

使用済燃料を再処理することによってPu及びUを回収し、再び燃料として使用するいわゆる核燃料サイクルを完成させるに当って、高レベル廃液の処理・処分法を確立することは最重要課題の一つとなっている。昭和59年8月に国の放射性廃棄物対策専門部会のまとめた報告によれば、高レベル廃液は全量を一括ガラス固化したのち、地層処分するというシナリオのもとに強力に技術開発を推進することとなっている。同報告においては、また、高レベル廃液の群分離による処理・処分法についても、高レベル廃棄物の管理の合理化・発生量の低減、資源の有効利用等に資する将来技術として、当面基礎研究を行うこととしている。

環境安全研究部群分離研究室では、高レベル廃液の長期にわたる潜在的毒性評価にもとづき、高レベル廃液中の元素を超ウラン元素群、Sr-Cs群、その他の核分裂生成物群の3群に分離する方法を開発し、<sup>(1),(2)</sup>昭和59年には動燃事業団から搬入した高レベル廃液による分離試験を終了した。これにより、対象とした元素の分離回収率は所期の目標値以上となり、これまで開発してきた群分離法の有効性を実廃液により確認した。<sup>(2)~(4)</sup>現在では、1980年にICRP(国際放射線防護委員会) Pub. 30により示された年摂取限度(ALI)を取り入れた高レベル廃棄物の地層処分における環境影響の解析結果<sup>(5)</sup>にもとづき、従来の分離対象核種に加えて、<sup>237</sup>Np及び<sup>99</sup>Tcの分離を重点とした改良型群分離法の開発を進めている。

これらの群分離技術の開発に当って常に考えることは、高レベル廃液を単なる廃液としてとらえて安全な処理・処分法を開発するばかりではなく、核の崩壊エネルギーを利用できる物質を含む資源として、また、天然には少量しか存在しないか、あるいは全く存在しない元素を含む資源としてとらえることが出来ないかということである。云いかえれば、処分上やっかいな廃棄物を価値あるものとしてとらえられないかということである。

資源としての価値ということになれば、高レベル廃液に含まれる有用元素の量は、利用法は、分離法は、経済性はどうかということになる。本報はこれらに関するデータを整理し、若干の考察を加えたものであるが、分離元素の価値は利用の途を積極的に開発して行くことによって、より高まるものと考える。

高レベル廃液からの有用元素の分離には別の観点からも重要な意義があろう。一つには有用元素を除くことによって、高レベル廃液の処理・処分をより容易に出来るのではないかということ、一つには高レベル廃液の資源化と群分離本来の考え方をクロスさせることによって、高レベル廃液の群分離による処理・処分を経済的に有利なものに出来るのではないかということ、一つには高レベル廃液を資源としてとらえることによって、高レベル廃液の処理・処分に係わるパブリックアクセプタンスを得やすいものに出来るのではないかということである。

このため、高レベル廃液に含まれる有用元素の分離に関する経済性の評価では、分離する元素の経済性のみを判断するのではなく、残された高レベル廃液の処理・処分に係わる安全性及び経済性をも考慮した総合的な評価が必要であると考える。このような総合的な評価については将来の課題とし、本報では有用元素の分離が高レベル廃液の処理・処分に及ぼす影響についても、ごく定性的に触れることとする。

## 2. 高レベル廃液に含まれる有用元素の量 及び放射能特性

使用済燃料を溶解し、再処理した後の高レベル廃液には、使用済燃料内に含まれる元素のうちで、U, Puを除いた全ての元素が含まれてくるわけではない。このため高レベル廃液に含まれる全ての元素について、その量を正確に予測することは困難である。

Table 1 には使用済軽水炉燃料中に含まれる元素の量をORIGENコードにより計算し、その有用性が期待される主な元素について求めた結果と、元素の放射能特性を示す。ここで元素重量に記載のない核種はORIGENコードに出力が見られないが、利用上その存在が無視出来ないものを示した。これらの元素のうちで高レベル廃液に含まれる元素についてのみ、その量や放射能特性について概説する。

**Sr** :  $^{90}\text{Sr}$  -  $^{90}\text{Y}$  の放出する $\beta$ 線エネルギーを熱エネルギーや電気エネルギーとして利用することが一般に考えられるが、 $^{90}\text{Sr}$ の全Sr元素量に対する割合は約60%であり、その比発熱量は約0.6W/g Srである。使用済燃料1トンから約500Wの発熱量を持つ $^{90}\text{Sr}$ を得ることが出来る。 $^{90}\text{Y}$ から放出されるごくわずかの1.73MeVの $\beta$ 線による制動放射線がしゃへい上問題となる。

**Tc** : 天然には存在しない元素の一つであり、使用済燃料1トンに約800gが含まれている。超長半減期の $^{98}\text{Tc}$ がほとんどであるが、同時に $^{99}\text{Tc}$ (n, 2n)反応や $^{98}\text{Mo}$ (n, p)反応により生成する $^{98}\text{Tc}$ が含まれる可能性が考えられる。 $^{99}\text{Tc}$ は0.292MeVの $\beta$ 線のみを放出する核種であるが、 $^{98}\text{Tc}$ は0.66MeV及び0.76MeVの $\gamma$ 線を放出し、半減期 $1.5 \times 10^6$ 年の核種である。しかしながら、実際には $^{98}\text{Tc}$ の生成量は無視できるほどに少ないと。いう。

**Ru** :  $^{106}\text{Ru}$ が含まれるために $\gamma$ 放射能が高く、貴金属元素として利用するためには、放射能を減衰させる必要がある。約35年後には $0.002\mu\text{Ci}/\text{g Ru}$ 以下の比放射能となる。この時のRu量は使用済燃料1トンにつき約2kgである。

ここで比放射能が $0.002\mu\text{Ci}/\text{g}$ 以下の元素は放射線障害防止法上の放射性同位元素の定義からはずれることを意味する。

**Rh** : 大部分が安定な $^{103}\text{Rh}$ であるが、利用上では $^{103}\text{Rh}$ (n, 2n)反応によって生成する $^{102}\text{Rh}$ ,  $^{102m}\text{Rh}$ の存在が問題となる。PNL(Battelle Pacific Northwest Laboratories)のRoberは燃焼度33,000MWD/tの使用済燃料から分離したRhに含まれる $^{102}\text{Rh}$ ,  $^{102m}\text{Rh}$ を測定しており、それによれば使用済燃料を原子炉から取り出した時点で、 $^{102}\text{Rh}$  1,900  $\mu\text{Ci}/\text{g Rh}$ ,  $^{102m}\text{Rh}$  290  $\mu\text{Ci}/\text{g Rh}$ の値を得ている。<sup>(6)</sup>このため $0.002\mu\text{Ci}/\text{Rh}$ 以下の比放射能とするためには50年以上の冷却期間が必要となる。

なお、安定なRh元素を得るために、冷却期間の短い使用済燃料からRuを分離し、 $^{103}\text{Rh}$ (半減期39.5日)から生成する $^{103}\text{Rh}$ を回収する方法が考えられる。<sup>(7)</sup>冷却期間が1年の使用済燃料1トンから $^{103}\text{Ru}$ を分離する場合に得られる $^{103}\text{Rh}$ の量は約41gである。

**Pd** : 使用済燃料1トン当たり約1.4kgのPdが含まれる。放射性核種としては超長半減期の $^{107}\text{Pd}$ が存在するが、 $\beta$ 線のみを放出し、その最大エネルギーは40keVと低い。

なお、安定な Pd 元素を得るために、使用済燃料から Ru を分離し、<sup>106</sup>Ru (半減期 368 日) から生成する <sup>106</sup>Pd を回収する方法が考えられる。

Cs : <sup>137</sup>Cs - <sup>137m</sup>Ba からの 0.662 MeV の  $\gamma$  線が利用されるが、この他にも半減期約 2 年の <sup>134</sup>Cs からの  $\gamma$  線が存在することをわざわざしてはならない。使用済燃料 1 トン当たり約 10 万 Ci の <sup>137</sup>Cs が含まれる。

Pm : 最大エネルギー 0.224 MeV の  $\beta$  線を放出する核種として <sup>147</sup>Pm が存在する。単なる  $\beta$  線源として利用する場合には特に問題とならないが、過去において開発された心臓のペースメーカーのためのエネルギー源として利用する場合には、<sup>147</sup>Pm から 0.008 % 放出される 0.121 MeV の  $\gamma$  線及び <sup>147</sup>Pm (n, 2n) 反応によって生成する <sup>146</sup>Pm からの  $\gamma$  線が生体しゃへい上問題となる。燃焼度 30,000 MWD/t の使用済軽水炉燃料中に含まれる <sup>147</sup>Pm に対する <sup>146</sup>Pm の放射能強度比は原子炉使用停止直後で約  $2 \times 10^{-6}$  という。<sup>(8)</sup>

Np : 超長半減期の核種であることから、 $\alpha$  放射性核種としての比放射能は低い。<sup>237</sup>Np の娘核種として 0.31 MeV の  $\gamma$  線を放出する <sup>233</sup>Pa (半減期 27.0 日) が共存する。

Am : <sup>241</sup>Am からの  $\alpha$  線と低エネルギーの  $\gamma$  線 (0.06 MeV) が利用されるが、高レベル廃液から回収する Am には <sup>241m</sup>Am, <sup>243</sup>Am も同時に含まれてくる。いずれの核種も <sup>241</sup>Am と同様に半減期が長く、 $\alpha$  線と低エネルギーの  $\gamma$  線を放出する。 $\alpha$  放射性核種としての比放射能は 2.6 Ci/g と比較的高い。<sup>241</sup>Am は <sup>241</sup>Pu (半減期 13.2 年) の娘核種であることから、使用済燃料の冷却期間が長くなるにつれて、高レベル廃液に含まれる量も増加する。

高純度の <sup>241</sup>Am は長期間貯蔵した Pu の精製工程からの副産物として得ることが出来る。使用済燃料の再処理によって得られる Pu を 5 年間貯蔵した場合には、Pu 10 kg 当り約 220 g ( $\sim 750$  Ci) の <sup>241</sup>Am が得られる。

Cm : 使用済燃料 1 トン当たり約 27 g の Cm が含まれる。原子炉使用停止直後の使用済燃料中では <sup>242</sup>Cm の放射能強度が約 5 万 Ci と最も高いが 5 年後では <sup>244</sup>Cm が主体となる。<sup>244</sup>Cm は  $\alpha$  放射性核種で比発熱量は 2.6 W/g Cm と高い。放出する  $\gamma$  線の割合は 0.02 % 以下と低い。

Table 1-a Useful elements in spent fuel

Element	Nuclide	Half-life	Radiation Energy (MeV)	g	Quantity in 1 ton *	W	Remark
					Ci		
Sr	Sr-86			1.23-01			
	Sr-87			5.85-05			0.592W/gSr
	Sr-88			3.49+02			
	Sr-90, Y-90	27.7y	$\beta^-$ , $\gamma$ ; 1.75 (0.02%)	4.85+02	1.37-05	4.94+02	
Tc	Tc-99	$2.12 \times 10^5$ y	$\beta^-$ , no $\gamma$	8.41-02	1.43+01	9.69-03	17mCi/g Tc
Ru	Ru-99			1.93-02			
	Ru-100			5.62+01			24Ci/g Ru
	Ru-101			7.77+02			
	Ru-102			7.69+02			
	Ru-104			5.45+02			
	Ru-106	368d	$\beta^-$ , $\gamma$ ; 0.512 (21%), 0.622 (11%)	5.17+00	5.22-04	1.84+2	
	Rh-106		1.05 (1.5%), 1.13 (0.5%), 1.55 (0.2%)				
Rh	Rh-103			3.88+02			
	Rh-102m	2.9y	$\gamma$ ; 0.418 (13%), 0.475 (95%), 0.632 (54%), 0.698 (41%), 0.768 (30%), 1.05 (41%), 1.11 (22%)				
	Rh-102	206d	$\beta^-$ , $\gamma$ ; 0.475 (57%), 0.511 (25%), 0.628 (4%), 1.103 (30%), 1.35 (0.5%), 1.57 (0.2%)				
	Pd-104			2.46+02			
Pd	Pd-105			2.95+02			79 $\mu$ Ci/g Pd
	Pd-106			4.45+02			
	Pd-107	$7 \times 10^6$ y	$\beta^-$ ; 0.04, no $\gamma$	2.32+02	1.11-01	9.18-06	
	Pd-108			1.56+02			
	Pd-110			3.35+01			
	Cs-133			1.01+03			
Cs	Cs-134	2.046y	$\beta^-$ , $\gamma$ ; 0.57 (23%), 0.605 (98%), 0.796 (99%), 1.038 (1.0%), 1.168 (1.9%), 1.365 (3.4%)	3.50+01	4.55+04	4.82+02	57Ci/g Cs
	Cs-135	$3.0 \times 10^6$ y	$\beta^-$ , no $\gamma$	3.24+02	2.86-01	1.39-04	
	Cs-137, Ba-137m	30.0y	$\beta^-$ , $\gamma$ ; 0.662 (85%)	1.10+03	9.61+04	5.10+02	0.40W/g Cs
Pm	Pm-147	2.62y	$\beta^-$ , no $\gamma$	3.11+01	2.89-04	1.49+01	0.48W/g Pm
	Pm-146	4.4y	$\beta^-$ , $\gamma$ ; 0.453 (65%), 0.75 (65%)				

\* PWR fuel originally at 3.3% U-235 enrichment and exposed to burnup of 33,000 MWD/MT at 30MW/MT and having a cooling time of 5 years

Table 1-b Useful elements in spent fuel

Element	Nuclide	Half-life	Radiation Energy (MeV)	g	Quantity in 1 ton *	Remark
					Ci	W
Np	Np-237	$2.14 \times 10^5$ y	$\alpha, \gamma$ ; 0.030 (1%) 0.086 (14%) 0.145 (1%) Pa-233 $\gamma$ ; 0.31 (44%) $T_{1/2}$ 27.0 d	4.84+02	3.41-01	1.00-02 0.705mCi/gNp
Am	Am-241	458 y	$\alpha, \gamma$ ; 0.060 (36%) 0.101 (0.04%)	2.43+02	8.32+02	2.78+01
	Am-242m	152 y	$\alpha, \gamma$ ; 0.049 (0.20%) 0.087 (0.036%) 0.110 (0.025%) 0.163 (0.025%)	9.21-01	8.68-02	1.45-02 0.084W/gAm
	Am-243	$7.95 \times 10^3$ y	$\alpha, \gamma$ ; 0.044 (4%) 0.075 (50%)	9.50+01	1.83+01	6.67-01
	Cm-242	162.5d	$\alpha, \gamma$ ; 0.044 (0.041%) 0.89 ( $3 \times 10^{-5}$ %)	6.54-03	2.16+01	7.98-01 75.2Ci/gCm
Cm	Cm-243	32 y	$\alpha, \gamma$ ; 0.209 (4%) 0.228 (12%) 0.278 (14%)	7.27-02	3.34	1.23-01 2.63W/gCm
	Cm-244	17.6 y	$\alpha, \gamma$ ; 0.043 (0.02%) 0.82 ( $7 \times 10^{-5}$ %)	2.51+01	2.03-03	7.12+01
	Cm-245	$9.3 \times 10^8$ y	$\alpha, \gamma$ ; 0.13 (5%) 0.173 (14%)	1.95	3.45-01	1.08-02
	Cm-246	$5.5 \times 10^3$ y	$\alpha$	2.24-01	6.92-02	2.27-03
	Cm-247	$1.6 \times 10^7$ y	$\alpha$	2.90-03	2.56-07	8.04-09
	Cm-248	$4.7 \times 10^5$ y	$\alpha$	1.96-04	8.04-07	1.02-07
Kr	Kr - 83			4.08+01		
	Kr - 84			1.11+02		21.5Ci/gKr
	Kr - 85	10.76 y	$\beta$ ; 0.67 max $\gamma$ ; 0.514 (0.41%)	2.00+01	7.83+03	1.25+01
	Kr - 86			1.92+02		0.034W/g Kr
Xe	Xe - 128			2.98		
	Xe - 130			1.07+01		
	Xe - 131			4.09+02		
	Xe - 132			1.15+03		
	Xe - 134			1.53+03		
	Xe - 136			2.32+03		

### 3. 有用元素の利用

前章で述べた元素の特性を活かした利用法として、すでに実用化されている分野及び今後考えられる分野について以下に述べる。

**Sr** : 米国 Hanfordにおいて、高レベル廃液から回収されてきた<sup>90</sup>Srの量は、1983年現在で約90 MCiに達すると推定され、その大部分は SrF<sub>2</sub> として固化貯蔵されている。この回収はむしろ高レベル廃液をアルカリ性溶液として貯蔵してきたタンクの腐蝕の問題を解決するために実施されたものであるが、大量の<sup>90</sup>Srを利用するための技術が同時に開発されてきた。

大量の<sup>90</sup>Srから得られるβ線エネルギーを電気エネルギーに変換し利用するシステムとして、最初に実用化したものは、北極圏 Axel Heiberg島での気象観測のためのもので、約20年以上も前のことである。今日では電気出力500Wにも達するシステムが10年間以上も無人のまま使用出来る技術であるという。米国 Teledyne Energy System が<sup>(9)</sup> 1981年までに開発し、実用化してきたシステムの数と用途などを Table 2 に示す。

このようなシステムの用途としては他に無人レーダ基地、海底通信や石油生産基地、通信リレー基地、無人ミサイル基地などでの利用が検討されている。この他少量の<sup>90</sup>Srを用いるものとして厚さ計、静電気除去装置などへの利用がある。

**Tc** : 炭素鋼材の20年間におよぶ耐蝕性試験において、10 ppmの塩素イオンが含まれている水に、5 ppmの<sup>99</sup>Tcを添加した場合には、鋼材の表面光沢はもとのままであり、一方<sup>99</sup>Tcを含まない場合には、蒸留水のみでも13年後には鋼材の大部分が腐蝕して、くずれてしまった<sup>(10)</sup>という。このように水に少量の<sup>99</sup>Tcを添加することで鋼材の腐蝕を防止できることがから、動力炉の一次、二次冷却水循環系での利用が考えられる。またこのような防蝕効果は<sup>99</sup>Tcを金属に数 ppm入れるだけで達成されるといわれており、酸性溶液中でもすぐれた耐蝕性を示す金属容器の開発に有効と考えられる。

Tcはまた有機化学分野での触媒としても有効と考えられ、直鎖状炭化水素から環状炭化水素を合成する時の触媒として研究されている。この場合の触媒作用としては Re よりはすぐれ、Ptよりは劣っているが、Ptは不純物による触媒作用の低下が大きい<sup>(11)</sup>に対して、Tcはその影響が少ないとされている。

このような Tc の防蝕性や触媒作用は、白金族元素と類似のものであり、Tcは資源に乏しい白金族元素の一部を肩代り出来る元素と考えられよう。

この他に、元素固有の性質として Tc は、比較的高い温度で超電導性を示す物質であり、将来の有効利用が考えられよう。

**Ru, Rh, Pd** : 高レベル廃液から得られるこれらの元素は、多少なりとも放射性核種を含んでいるが、その比放射能は Ru の場合を除いて低く、天然に得られる白金族元素を、限られた分野で補うことの出来る貴重な資源であると考えられる。現在、天然に得られる白金族元素は、通信機器、電気部品、レーザ用ミラー、赤外線レンズ、航空機用エン

ジン、自動車用接触コンバータなどばかりではなく、石炭やその他の炭素を含む物質を液体燃料に転換する時にも利用されており、さらにはガソリンやチッ素肥料の生産工程における触媒としても利用される。

Fig. 1 には米国において1979年から1983年までに使用されたRu, Rh, Pd 金属の主な用途別割合を示す。<sup>(13)</sup> このように白金族元素は産業面ばかりでなく、国防上からも重要な物質となっており、白金族元素の約99%をソ連や南アフリカ共和国から輸入している米国では、高レベル廃液からのRu, Rh, Pd の回収が積極的に考えられている。<sup>(13)</sup>

なお、Table 3 には米国が1973年から2000年までに必要とする白金族元素の量と、商業用原子炉から発生する使用済燃料に含まれるTc を含めた貴金属元素の量を示す。これによれば、使用済燃料から得られる貴金属元素の量は250トンに達し、Ru の全てとRh の約50%を使用済燃料からの元素で賄えることになる。

使用済燃料から放射性核種を含まない安定な白金族元素を得るために、<sup>103</sup>Ru 及び<sup>106</sup>Ru を冷却し、安定なRh, Pd を分離する方法があるが、万能な方法としては、Lawrence Livermore National Laboratory で開発されている<sup>(14)</sup> レーザによる同位体分離などが考えられる。

Cs : <sup>137</sup>Cs は透過型厚さ計、密度計、レベル計としても使用されるが、大量には照射用線源としての利用がある。

米国 Hanford において1967年以降高レベル廃液から回収してきた<sup>137</sup>Cs の量は1983 年現在で約90 MCi に達しており、<sup>(15)</sup> その大部分はCsCl として固化貯蔵されている。

米国 Sandia National Laboratories では米国エネルギー省と環境庁からの基金によって、大量<sup>137</sup>Cs の利用について調査研究してきた。この研究によって汚泥殺菌のための経済方法として、<sup>137</sup>Cs γ線照射技術を1日当たり8トンの乾燥汚泥処理能力を持つパイロットプラントにより実証してきた。<sup>(16)</sup> この照射においては約1 MCi の<sup>137</sup>Cs が使用された。これらの成果は、現在では都市部の下水処理に広く適用していくこうという国策としての“Sewage Sludge Irradiation Program”へと発展している。<sup>(17)</sup>

汚泥処理技術の開発と併行して、米国農業省とフロリダ州は共同で、マンゴとグレープフルーツに寄生するみばいの横行をおさえるため、<sup>137</sup>Cs 線源による低線量(<100 krad) 照射を試験してきた。<sup>(18)</sup> これらの成果として、現在では政令によってその照射が認められる状況となっている。

この他に<sup>137</sup>Cs γ線の照射利用として考えられてきた用途には、廃水処理からのそう類を動物のえさとして利用するための殺菌、豚肉の施毛虫駆除、フロリダみかんの害虫駆除、リンゴのがの駆除、極地における下水処理、反すう動物のえさを分解変化させることによる消化性の増大などがある。

<sup>137</sup>Cs は半減期が<sup>60</sup>Co の5.27年に比して30.17年と長く、それだけ使用期間も長く出来ること、<sup>60</sup>Co のようにわざわざ原子炉によって製造するのではなく、原子力発電に伴って必然的に発生してくるものであることから、経済的に利用出来る可能性があるものとして、<sup>60</sup>Co 線源に代る積極的な利用が開発されるべきであると考える。

特に食物照射に関しては、最近では一般に使用される化学的な殺菌剤が発がん性、突

然変異誘発性を持つ場合が指摘されており、 $\gamma$ 線照射が食物の長期貯蔵の面ばかりではなく、外国では食物衛生学の面からも受け入れられるようになってきている。このため照射線源の需要は日々にではあるが、増加して行くものと考えられ、限られた $^{60}\text{Co}$ の供給を補うものとして $^{137}\text{Cs}$ の利用が増加するものと考える。

Pm :  $^{147}\text{Pm}$ の低エネルギー $\beta$ 線を利用した夜光塗料や厚さ計、蛍光灯の点灯管などの放電管に使用される。高レベル廃液から回収される核種のうちで、我が国に輸入される量の最も多いものは $^{147}\text{Pm}$ であり、年間 3,000~6,000 Ci が輸入され、<sup>(20)</sup>その大部分は時計などの夜光塗料の原料として使用されている。この量は我が国で販売される非密封の放射性同位元素(R I)のうちで最大となっている。なお、過去においては心臓のペースメーカーのためのエネルギー源として $^{147}\text{Pm}$ の大量利用が米国などで開発された。

Np :  $^{237}\text{Np}$ は比放射能の低い核種であることから、放射線を利用する分野ではほとんど使用されていない。主に $^{237}\text{Np}$ は $^{237}\text{Np}(\text{n}, \gamma) ^{238}\text{Np} \xrightarrow{\beta}$ 反応によって $^{238}\text{Pu}$ を製造するための照射用ターゲットとして使用されている。なお、 $^{238}\text{Pu}$ は過去においては $^{147}\text{Pm}$ に比べて線源をコンパクトに出来、しかも人体への被曝も少なく出来ることから、心臓ペースメーカーのエネルギー源として開発してきた。現在では $^{238}\text{Pu}$ は主に宇宙開発の分野で使用されている。

Am :  $^{241}\text{Am}$ は低エネルギーの $\gamma$ 線を放出することから、厚さ計、硫黄分析計、蛍光X線分析装置に、またX線を放出することから、イオン化式煙感知器や水分計( $^{241}\text{Am}$ -Be 中性子線源として利用)にとその用途は多種多様なものとなっている。なお、我が国で劇場、ホテル、旅館、高層建築、学校などに取り付けられているイオン化式煙感知器のはほとんどは、5  $\mu\text{Ci}$  前後の $^{241}\text{Am}$ 箔状線源が使用されている。

この他、 $^{241}\text{Am}$ は $^{241}\text{Am}(\text{n}, \gamma) ^{242}\text{Am} \xrightarrow{\beta} ^{242}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha} ^{238}\text{Pu}$ 反応によって製造する $^{238}\text{Pu}$ の照射用ターゲットとしても使用出来る。先きに述べたような $^{237}\text{Np}$ から製造する $^{238}\text{Pu}$ には $^{237}\text{Np}(\text{n}, 2\text{n}) ^{236}\text{Np} \rightarrow$ 反応によって生成する $^{236}\text{Pu}$ が1 ppm程度含まれ、生体しゃへい上問題となるが、 $^{241}\text{Am}$ からの $^{238}\text{Pu}$ にはこのような不純物が含まれてこない。

Cm :  $^{242}\text{Cm}$ 及び $^{244}\text{Cm}$ は米国において、主に宇宙用エネルギー源として使用してきた。このうち特に $^{244}\text{Cm}$ は高レベル廃液に比較的多く含まれ、価格が安く、しかも比発熱量(2.83 W/gCm)が高いことから、 $^{238}\text{Pu}$ よりも有利なエネルギー源と考えられる。また、 $^{244}\text{Cm}$ は自発中性子発生源としてすぐれている $^{252}\text{Cf}$ を製造するための照射用ターゲットとしても使用される。

Table 2 Terrestrial applications of isotope-fueled generators

GENERATOR MODEL	NO. MFG.	YEAR	PRESENT OR FORMER APPLICATION	USER	STATUS (1981)
SENTRY	1	1961	ANTARCTIC WEATHER STATION	WEATHER BUREAU	4 YEARS SERVICE DECOMMISSIONED
SNAP-7 SERIES 7A-7E	6	1961-1965	BUOYS, OIL PLATFORM, WEATHER STATION, LIGHTHOUSE, ACOUSTIC BEACON	USCG USN PHILLIPS	IN STORAGE OR DEFUELED
SENTINEL ZSA	1	1966	OCEANOGRAPHIC	USN	ON STANDBY-BERING STRAITS-OPERABLE
ZSB	1	1968	SUBSEA	EXXON	IN-STORAGE-OPERABLE
3	3	1967	SUBSEA	ARCO	IN-STORAGE-OPERABLE
ZSC-1	1	1967	SUBSEA	USN	OPERATING-SAN JUAN SEAMOUNT
ZSA	1	1967	COMMUNICATIONS RELAY	USAF	OPERATING-ALASKA
ZSD	3	1969	WEATHER STATION	USN	SCHEDULED ANTARCTIC WEATHER STATION DEPLOYMENT
ZSE	3	1968	SUBSEA, SEA SPIDER, MONITOR AMCHITKA	USN/USAEC	SCHEDULED USAF ALASKA COMMUNICATIONS RELAY(1)
ZSF	5	1970	PAWS WEATHER STATION BUOY DATA DEMO	USN FAA FAA TELEDYNE	NAVY STORAGE (2) SCHEDULED ANTARCTIC (1) FAA STATION (1) TELEDYNE STORAGE (1)
8	1	1968	WEATHER STATION	USN	OPERATING-SAN MIGUEL ISLAND
ZSC-3	1	1969	ESSA EXPERIMENT	USN	OPERATING ANTARCTIC WEATHER STATION
ZSE	4	1971	SUBSEA	USN	SCHEDULED SUBSEA DEPLOYMENT(1) SCHEDULED USAF ALASKA (1)
100F	1	1972	COMPUTER POWER SOURCE	USN	SCHEDULED USAF ALASKA
ZSE	1	1971	DEMO	COMMERCIAL	OPERATING AS REMOTE COMMUNICATIONS POWER SOURCE
8S	22	1970-1982	COMMUNICATIONS RELAY	COMMERCIAL	OPERATING AS REMOTE COMMUNICATIONS POWER SOURCE
ZSF	3	1977	WEATHER STATION	COMMERCIAL	OPERATING AS REMOTE DATA COLLECTION POWER SOURCE
1S	4	1981	COMMUNICATIONS RELAY	COMMERCIAL	OPERATING AS REMOTE COMMUNICATIONS POWER SOURCE
TOTAL	62				

Table 3 Cumulative need and availability - 1973 to 2000

Metal	Estimated U.S. Need (g × 10 <sup>6</sup> )	Estimated Availability <sup>a</sup> (g × 10 <sup>6</sup> )
Technetium	---	60
Ruthenium	12 to 18	100
Rhodium	59 to 87	31
Palladium	750 to 1000	60

<sup>a</sup>From commercial reactor (30 000 MWd/tonne heavy metal exposure) FPs.

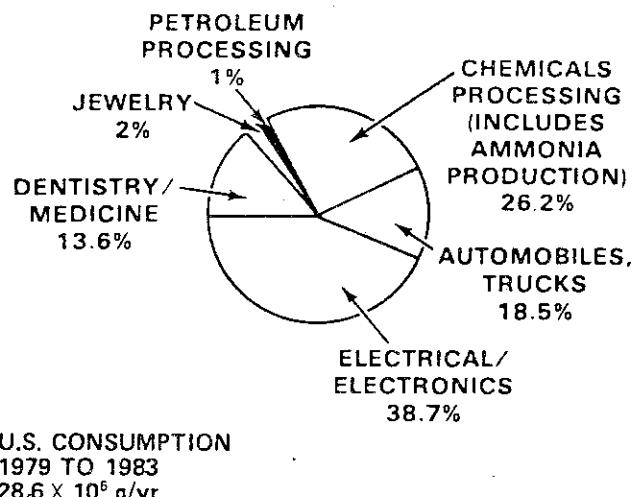


Fig. 1a. Palladium metal uses and consumption 1979 to 1982.

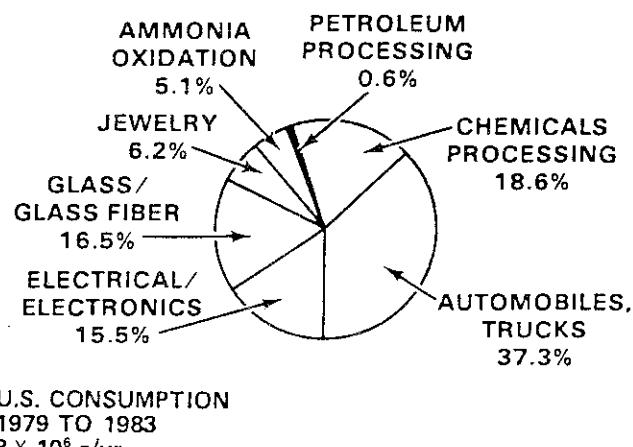


Fig. 1b. Rhodium metal uses and consumption.

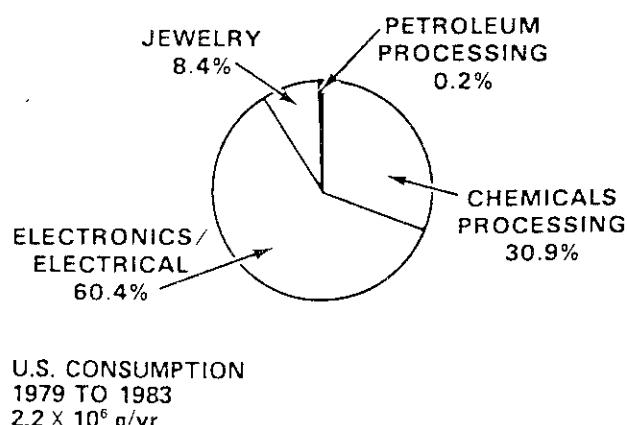


Fig. 1c. Ruthenium metal uses and consumption.

## 4. 有用元素の分離法

ここでは、高レベル廃液に含まれる有用元素の分離法について詳細に述べることをさけ、これまで諸外国で研究されてきた高レベル廃液からの主な分離法について元素ごとに整理した。なお、Np, Am, Cmなどの超ウラン元素の分離法については、森田や<sup>(21)</sup>館盛<sup>(22)</sup>らの報告があるので割愛する。

Sr :

### 無機イオン交換体法

- フランスとベルギーで開発されたポリアンチモン酸によるSr分離法。<sup>(23)～(25)</sup>
- PNLでは2M HNO<sub>3</sub>溶液の高レベル廃液からSrの吸着に使用。イオン交換速度遅い。溶離にはAgNO<sub>3</sub>を使用。<sup>(26)</sup>

### 有機イオン交換体法

- HanfordではPbSO<sub>4</sub>沈殿法により分離したSrの精製に使用。陽イオン交換樹脂を使用しEDTA(エチレンジアミン4酢酸)により溶離。
- Savannah Riverではアルカリ性の高レベル廃液からSrを吸着するため選択性あるイオン交換体を試験。<sup>(27), (28), (29), (30)</sup>

### 沈殿法

- Hanfordで開発されたPb担体を使用する硫酸塩沈殿法。<sup>(31)～(33)</sup>高レベル廃液からMCi量のSrの回収に使用。pH1でNa<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, Pb(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>により沈殿し、その後NaOH+Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>で複分解。

### 溶媒抽出法

- ORNL(Oak Ridge National Laboratory)で開発されたD2EHPA(ジ-2-エチルヘキシリリン酸)<sup>(34), (35)</sup>による抽出法。
- Hanfordでは酸性高レベル廃液にEDTAなどの錯化剤を加えた後、pH4.8とし、0.5M D2EHPA+0.3M TBP(リン酸トリブチル)によりSrと希土類元素を抽出。

Tc, Ru, Rh, Pd

### 陰イオン交換体法

- Hanfordでアルカリ性高レベル廃液からの分離に使用。<sup>(36)</sup>

### 沈殿法

- PNLで開発されたRh, Pd精製法。<sup>(40)</sup> H<sub>2</sub>SによりRh, Pdを沈殿後、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>+HClO<sub>4</sub>に溶解し、加熱することによりRuを、さらに臭化水素酸を加えてSbをそれぞれ蒸留して除く、最後にヨウ化水素酸を加えてRh, Pdを沈殿。
- Hanfordで開発されたRh精製法。<sup>(41)</sup> 4M HNO<sub>3</sub>溶液を濃縮することでRh<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を沈殿、その後亜硫酸水素ナトリウムで融解し、Ru, Tcを蒸発。

### 溶媒抽出法

- ORNL で開発された TBP による Tc 抽出法。<sup>(42)</sup> 0.5 ~ 1.0M HNO<sub>3</sub> 溶液から 45% TBP により Tc を抽出し 0.005M HNO<sub>3</sub> で逆抽出後、陰イオン交換体法により精製。
- ORNL で開発されたピリジンによる Tc 抽出法。<sup>(43)</sup> Fe(OH)<sub>3</sub> 共沈法などによる粗分離の後、Tc 精製に使用。
- 東ドイツで開発されたトリー n - オクチルアミンによる 0.5M HNO<sub>3</sub> 溶液からの Pd, Tc 抽出法。<sup>(44)</sup>
- Hanford で開発されたトリカプリルモノメチル塩化アンモニウムによる抽出クロマトによる方法。<sup>(45)</sup>
- Hanford で開発されたシクロヘキサンによる Tc 抽出クロマト法。<sup>(11)</sup>
- 米国で開発されたトリカプリルメチル硝酸アンモニウムによる約 2M HNO<sub>3</sub> 溶液からの Pd, Tc 抽出クロマト法。<sup>(46)</sup>

#### 溶融法

- PNL で開発された高レベル廃液酸化物からの Ru, Rh, Pd 回収法。<sup>(47), (13)</sup>  
高レベル廃液酸化物、ガラス形成材、PbO 等の金属酸化物、木炭等の還元剤を混合し、1,100°C で溶融。Ru, Rh, Pd は溶融金属中に、他の核分裂生成物はガラスを形成。
- ORNL で開発された使用済燃料溶解残渣からの Ru, Rh, Pd 回収法。<sup>(48)</sup>  
不溶解性残渣を 950°C 溶融 Mg で処理しその後溶融 Mg を溶融 U-Cr と接触、Ru は U-Cr 相へ、Pd は Mg 相に移行。

#### Cs :

##### 無機イオン交換体法

- PNL で開発された約 1M HNO<sub>3</sub> 溶液からのリン酸チタンによる Cs 吸着法。<sup>(49), (26)</sup> 溶離には 5M NH<sub>4</sub>Cl を使用。
- Hanford で開発されたアルカリ性高レベル廃液からのゼオライトによる Cs 吸着法。<sup>(50)~(53)</sup>
- Hanford で開発された酸性高レベル廃液からの合成ゼオライトによる Cs 吸着法。<sup>(54)</sup>

##### 有機イオン交換体法

- Savannah River で開発されたアルカリ性高レベル廃液からの Duolite CS-100 による Cs 吸着法。<sup>(55)</sup>

##### 沈殿法

- イギリスやフランスで開発され、Hanford で酸性高レベル廃液からの回収に使用されたリンタングステン酸による Cs 沈殿法。<sup>(56), (57)</sup>
- Hanford で開発された金属フェロシアン化物による Cs 沈殿法。<sup>(58)</sup>
- ORNL で開発された CsAl(SO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> · 12H<sub>2</sub>O としての Cs 沈殿法。<sup>(59)</sup>

##### 溶媒抽出法

- ORNL で開発されたアルカリ性高レベル廃液からの BAMBP (4-sec-ブチル-2-α-メチルベンジルフェノール) による Cs 抽出法<sup>(60)</sup> で Hanford で工学的試

(61), (62)  
験。

- Hanford で開発された BAMBP + D2 EHPA による Cs, Sr, RE 共抽出法。 (63), (64)
- Hanford で開発されたジピクリルアミンによる抽出法。 (65), (66)
- イギリスで開発されたポリ臭化物による抽出法。 (67)

## 5. 経済性

最近7～8年間に報告された高レベル廃液から有用元素を分離回収するとした場合のコスト解析に関する主な文献及び<sup>137</sup>Cs線源の経済性解析に関する文献を以下に紹介し考察する。また白金族元素の経済性について考察する。

### 5.1 XN-FR-ER-2にみられるコスト解析

米国エネルギー省の要請に応じてExxon Nuclear Company, Inc. が1978年にまとめた報告書<sup>(25)</sup> XN-FR-ER-2 "Study of the Separation and Recovery of Selected Radioisotopes from Commercial Nuclear Wastes" に記載された内容について述べる。

それによれば、有用元素を分離回収するためのプラントとしては比熱出力30MW/MTで燃焼度33,000MWD/tまで使用し、150日間冷却した3.3%濃縮ウラン燃料を年間2,100トン処理する再処理工場に対応して考え、分離する元素のコスト解析を行っている。この際、Csのみを回収する場合、Cs+Srを回収する場合、Cs+Sr+Am+Cm+Pm+Np+Tc+Rh+Pdを回収する場合、Xe+Krを回収する場合の5つのケースについて最適と考える分離回収法を検討し、コストを解析している。なお、回収されるこれらの元素の最終的な化学形、純度、回収率、年間製造量はTable 4に示す値としている。

同時に多元素を回収するための分離フローとしては、Fig. 2が考えられており、これまでに検討してきた分離法の中から、この解析のために考案された方法である。その概略は次のようにある。

- (1) 2.0 M HNO<sub>3</sub>溶液である高レベル廃液を水によって希釈し、1.0 M HNO<sub>3</sub>溶液とする。
- (2) 遠心分離法により不溶性残渣は1M HNO<sub>3</sub>で洗滌する。
- (3) 液液に亜硝酸塩を加えてNp(V)に調整した後、D2EHPAによりPu, U, Zr, Nbを抽出する。
- (4) ラフィネート溶液をヒドラジンと硝酸ヒドロキシルアミンにより処理し、Np(IV)に調整する。
- (5) Np(IV)をD2EHPAにより抽出する。
- (6) ラフィネート溶液を無機イオン交換体であるリン酸チタンのカラムに通しCsを吸着する。
- (7) カラム通過液をpH約2.5にした後、D2EHPAにより希土類元素及びAm, Cmを抽出する。
- (8) ラフィネート溶液からトリラウエルアミンによりTc及びPdを抽出する。(Rhの大部分は燃料溶解時に不溶であるとしている)
- (9) pH約4.5に調整した後、D2EHPAによりSrを抽出する。

このような全体的なフローは概念的なものであり、個々のプロセスではその操作が可能であっても、全体的な流れの中で個々のプロセスが最適であるかどうかは検討が必要であるとしている。

これらのフローのもとに求めた Cs のみを回収する場合の施設建設費は  $\$4.8 \times 10^7$  (120 億円), Sr のみを回収する場合には  $\$9.5 \times 10^7$  (240 億円), Sr + Cs を回収する場合には  $\$1.12 \times 10^8$  (280 億円), 同時に多元素を回収する場合には  $\$3.78 \times 10^8$  (945 億円) になるとしている。

これらの推定のもとに求めた製品のコストは Cs のみを回収する場合に  $\$0.13$  (33 円)/Ci<sup>137</sup>Cs Sr のみを回収する場合に  $\$0.43$  (108 円)/Ci<sup>90</sup>Sr, Cs + Sr を回収する場合に  $\$0.08$  (20 円)/Ci<sup>137</sup>Cs,  $\$0.38$  (95 円)/Ci<sup>90</sup>Sr になるとしている。同時に多種類の元素を回収する場合を Table 5 に示す。なお、これらのコストはいずれも 1977 年現在のものであり、かっこ内の値は 1 ドルを 250 円とした時のものである。

## 5.2 BNWL - 2063 にみられるコスト解析

米国 PNL が 1977 年にまとめた報告書<sup>(68)</sup> BNWL - 2063 "Selection and Evaluation of Process for Recovery of Beneficial Isotopes from Commercial Reactor Wastes" に記載された内容について述べる。

ここでは 1 日当り 5 トンの使用済燃料を処理する再処理工場からの高レベル廃液を全て処理する場合について解析している。この際、Cs のみを回収する場合、Sr のみを回収する場合、Cs + Sr + Pm + Am + Cm + Np + 白金族元素を回収する場合の 4 つのケースについてコストを解析している。

Cs の分離回収フローを Fig. 3 に、また Sr の分離回収フローを Fig. 4 に示す。5.1 の場合と違なる点は Sr の分離に無機イオン交換体であるポリアンチモン酸を使用することであり、この場合には 1M HNO<sub>3</sub> 溶液からの分離が可能となっている。

同時に多種類の元素を回収するための分離フローを Fig. 5 に示す。なお、このフローにおいて白金族元素の 25 % から 75 % は燃料溶解時における不溶解性残渣及び脱硝時における沈殿に含まれるとしており、溶液からの回収は現実的ではないとしている。

これらのフローのもとに求めた Cs や Sr のみを回収する場合の施設建設費は  $\$3.7 \times 10^7$  (93 億円), Cs + Sr を同時に回収する場合には  $\$5.1 \times 10^7$  (130 億円), 多元素を同時に回収する場合には  $\$1.43 \times 10^8$  (358 億円) になるとしている。

これらの推定のもとに求めた製造コストは Cs のみを回収する場合に  $\$0.45$  (113 円)/Ci<sup>137</sup>Cs, Sr のみを回収する場合に  $\$0.60$  (150 円)/Ci<sup>90</sup>Sr, Cs + Sr を回収する場合に  $\$0.31$  (78 円)/Ci<sup>137</sup>Cs,  $\$0.42$  (105 円)/Ci<sup>90</sup>Sr になるとしている。同時に多元素を回収する場合を Table 6 に示す。なお、これらのコストはいずれも 1977 年現在のものである。

これらの解析においては、白金族元素を除く他の元素の高レベル廃液からの回収率は 50 % であり、年間の製造量は <sup>137</sup>Cs について 69 MCi, <sup>90</sup>Sr について 51 MCi であるとしている。

### 5.3 DPST-82-842 にみられるコスト解析

米国 Savannah River で 1982 年にまとめた報告書<sup>(6)</sup> DPST-82-842 "Radioisotopes for Heat-Source Applications" に記載された内容について述べる。

米国国防省が 1990 年までに必要とする長寿命のエネルギー源としての RI 量は熱エネルギーとして 1MW になると予想されている。この要求を満たすために考えられる RI として<sup>90</sup>Sr, <sup>147</sup>Pm, <sup>238</sup>Pu を取り上げ、米国内で製造できる推定量、それぞれの RI を製造するための施設の建設費、製造コストを求めている。

なお、現在 Hanford 及び Savannah River で貯蔵中のアルカリ性高レベル廃液に含まれる<sup>90</sup>Sr の比放射能では比発熱量 0.7 W/cc 以上の線源を得ることは出来ないこと、従って、新らな使用済燃料の再処理なくして、Savannah River 及び Hanford で発熱量 1MW の RI を得ることは不可能であるとしている。再処理が行われる場合には、Savannah River 及び Hanford で 1983 年から 1996 年までに<sup>90</sup>Sr で 0.70 MW, <sup>147</sup>Pm で 0.15 MW を供給出来るという。さらに Savannah River では<sup>238</sup>Pu で 0.15 MW を供給出来るという。

Savannah River で考えられる製造コストは<sup>90</sup>Sr について \$180(4.5 万円)/W { \$1.2 (300 円)/Ci }, <sup>147</sup>Pm について \$450(11 万円)/W { \$0.16(40 円)/Ci }, <sup>238</sup>Pu について \$1,160(29 万円)/W { \$39(9,800 円)/Ci } になという。なお、これらのコストはいずれも 1983 年現在のものである。

### 5.4 CH 2M-HILL で行われた経済性解析

5.1 ~ 5.3 がいずれも高レベル廃液から有用元素を回収する場合のコスト解析を行っているのに対して CH 2M-HILL "Comparison of Radioactive Isotopes Co-60 versus Cs-137" では<sup>(15)</sup> 現在使用されている<sup>60</sup>Co 線源の将来における需要の増大を予想した時に、<sup>137</sup>Cs 線源が<sup>60</sup>Co 線源の代わりになり得るかどうかを線質、線源の需給関係、線源コストなどの面から比較評価している。その内容について述べ、若干の考察を加える。

初めに、両核種の放射能特性の比較を Table 7 に示す。<sup>137</sup>Cs の  $\gamma$  線エネルギー (0.66 MeV) は<sup>60</sup>Co (1.33 MeV, 1.17 MeV) に比べて低く、しかも  $\gamma$  線の放出割合も<sup>60</sup>Co に比べて 2.35 分の 1 と低い。しかしながら、<sup>137</sup>Cs の半減期は<sup>60</sup>Co の約 5.7 倍となっている。

照射線源としての線質の面では、Fig. 6 に示すように<sup>60</sup>Co が密度の高い試料に対して均一な線量分布を与えるのに対して、<sup>137</sup>Cs の場合には、比較的低い密度の試料に対して有利なものとなっている。線源強度の経年変化では、<sup>60</sup>Co の場合には年当り 12.3% が減少するのに対して<sup>137</sup>Cs の場合には 2.3% と少なく、<sup>60</sup>Co と同じ 12.3% 減少するのには 5.7 年かかる。このため、<sup>137</sup>Cs 線源を交換する頻度は<sup>60</sup>Co に比べて少なくてすむ。

なお、線源内での自己吸収がなく、放出された  $\gamma$  線がすべて試料に吸収されたとした時に、<sup>60</sup>Co 照射と同一の線量を<sup>137</sup>Cs 照射によって得るためにには、<sup>137</sup>Cs の線源強度を<sup>60</sup>Co の 4.45 倍にすることが必要である。

現在全世界で稼働している大型の照射施設は約 130 ケ所にのぼり、線源容量は 70 M Ci にな

るといわれており、このうち約 33 MCi(1983 年現在) の  $^{60}\text{Co}$  線源及び約 1.7 MCi の  $^{137}\text{Cs}$  線源が米国内で使用されているという。現在製造されている  $^{60}\text{Co}$  線源は殆んどがカナダ製であり、米国で製造されている  $^{60}\text{Co}$  は年間約 1 MCi にすぎない。カナダでの供給能力は現在約 13 MCi / 年であり、1990 年には 63 MCi / 年になるといわれる。

$^{137}\text{Cs}$  の供給能力に関しては、現在 Hanford でアルカリ性高レベル廃液から分離した約 90 MCi の  $^{137}\text{Cs}$  が CsCl 固化体 (CsCl WESF カプセル) として貯蔵されている。

CsCl WESF カプセルの仕様は Fig. 7 に示すようであり、カプセル当たり約 70,000 Ci の  $^{137}\text{Cs}$  が含まれている。なお、Table 8 には現在から将来にわたって米国内で得られる高レベル廃液や使用済燃料に含まれる  $^{137}\text{Cs}$  の全量を示す。

線源の需要予測に関しては、今後 10 年間にわたって全世界で必要とする  $^{60}\text{Co}$  線源の量は 400 MCi から 500 MCi のオーダーになるだろうといわれる。そのうちの約 20% は食物照射と汚泥などの廃棄物処理関係に使用されると推定されている。

$^{60}\text{Co}$  の 400 MCi に相当して必要な  $^{137}\text{Cs}$  の量は CsCl WESF カプセルを用いた場合に、照射に有効に使われる  $\gamma$  線の割合を考慮すると、6.73 倍の約 2,700 MCi になるといわれる。10 年後の 1993 年までに米国内で得られる  $^{137}\text{Cs}$  の全量は 650 MCi と推定されるので、その量は全世界で必要とされる量の約 25% に相当するという。

今後 10 年間に必要とする照射線源の全てを  $^{60}\text{Co}$  でまかなうことは不可能であるとみられており、その場合には  $^{137}\text{Cs}$  線源が不足を補うことになろうし、大量に高レベル廃液から回収されるようになれば、 $^{137}\text{Cs}$  線源の使用される割合は、供給できる価格に依存することになろう。

1984 年中期での米国における  $^{60}\text{Co}$  の価格は約 \$1 (250 円)/Ci となっている。一方、米国エネルギー省によって決められた  $^{137}\text{Cs}$  の価格は \$0.10 (25 円)/Ci であるので、線源の利用効率を考慮したとしても、 $^{137}\text{Cs}$  線源がより安価であるとしている。

$^{137}\text{Cs}$  の半減期が  $^{60}\text{Co}$  に比べて長いことから、補充に必要な量も少なくてすむ。 $^{60}\text{Co}$  の場合と同じ照射線量を得るために 6.73 倍の放射能量の  $^{137}\text{Cs}$  を使用したとしても、20 年間照射を考えると  $^{60}\text{Co}$  の価格は \$1.76 (440 円)/Ci、 $^{60}\text{Co}$  換算での  $^{137}\text{Cs}$  の価格は \$0.73 (183 円)/Ci になるという。このため、 $^{137}\text{Cs}$  線源がより経済的であるとしている。

この他に線源の輸送、補充操作と運転停止期間などに係わる費用を考慮した場合にはさらに  $^{137}\text{Cs}$  線源が有利であるとしている。

我が国における最近の線源需要は Table 9<sup>(20)</sup> に示すようであり、これによれば、 $^{60}\text{Co}$  の輸入量は 0.5 MCi から 1982 年には 3 MCi となっている。これを  $^{137}\text{Cs}$  線源で置き換えるとすれば、3 MCi から 20 MCi の需要となる。この値は 30 トンから 210 トンの使用済燃料に含まれる量に相当する。将来における線源需要の増加と輸入の困難さを考慮すれば、我が国における高レベル廃液からの  $^{137}\text{Cs}$  の回収は充分経済的であると考える。

## 5.5 白金族元素の経済性

先ず初めに 5.1 で述べた使用済燃料から回収する白金族元素のコストと天然に得られる白金族元素の価格を比較してみる。

Table 10 には米国における、1978年から1983年にかけての白金族元素の市場価格を示す。<sup>(13)</sup> 1980年まではRu を除く白金族元素 の価格が多少変動し、上昇しているが、1981年以降は安定している。このため、将来もこの価格が変動しないものとすれば、Table 5 に示す使用済燃料から回収する場合のコストである\$ 12.3 (3080 円) /g Pd，及び\$44.1 (11,000 円) /g Rh は Pd について約 2.7 倍，Rh について約 2.3 倍となっている。この程度の差は、将来における天然資源の枯渇による価格の上昇と、使用済燃料からの回収技術の向上を考慮すれば、近い将来においてなくなることが充分考えられる。

なお、1983年における価格を適用した場合、使用済燃料 2,000 トンに含まれる白金族元素の価格は Ru 4.3 トンで \$6.7M(16 億円)，Rh 0.78 トンで \$15M(38 億円)，Pd 2.8 トンで \$12M(30 億円) となり、全体では白金族元素 7.9 トン \$33M(83 億円) となる。勿論、使用済燃料に含まれる白金族元素には、放射性核種が含まれており、天然から得られる白金族元素と比較することには種々の問題があろう。

Table 4 Product summary

	<u>Isotope Recovery Case</u>	<u>Product Recovered</u>	<u>Product Form</u>	<u>Product Chemical Purity (%)</u>	<u>Product Radiochemical Purity (%)</u>	<u>Approximate Percent Recovered</u>	<u>Annual Production (kg)</u>
1.	Cs Recovery Cs	CsCl	Cast Solid	>97	>99	99	7,200
2.	Sr Recovery Sr	SrTiO <sub>3</sub>	Powder	>98	~100	97	3,900
3.	Cs+Sr Recovery Cs Sr	CsCl SrTiO <sub>3</sub>	Cast Solid Powder	>97 >98	>99 ~100	99 97	7,200 3,900
4.	Multi-Isotope Recovery	Cs SrTiO <sub>3</sub> AmO <sub>3</sub> CmO <sub>3</sub> PmO <sub>3</sub> NpO <sub>2</sub> NaTc <sub>27</sub> Rh Pd	Cast Solid Powder Powder Powder Powder Solution Metal Powder Metal Powder	>97 >98 >99 >95 >99 >99 >99 >100*	>99 ~100 ~98 ~98 ~98 ~98 ~100* ~100*	99 97 95 95 95 95 90 90	7,200 3,900 230 90 210 960 1,600 1,730 2,400
5.	Xe & Kr Recovery Xe Kr	Xe Kr	Gas Gas	>99 >75	- -	99 99	11,400 1,000

\*Design Basis Goal is approximately 100% radiochemical purity.

Table 5 Summary of individual isotope prices for multi-isotope recovery facility

<b>Capital Investment:</b>	<b>\$378 million (1977 dollars)</b>
<b>Operating Cost:</b>	<b>\$ 60.1 million/yr (1990-2000, 1977 dollars)</b>
	<b>\$ 56.2 million/yr (2001-2019, 1977 dollars)</b>
<b>Discounted Cash Flow Return:</b>	<b>15%</b>
<b>Equity:</b>	<b>100%</b>

<u>Form of Product Isotope Compound</u>	<u>Key Isotope</u>	<u>Revenue Required By Product Isotope (\$Millions/year)</u>	<u>Kg. Compound</u>	<u>Annual Production of Key Product Isotope Curies</u>		<u>Product Isotope Price</u>
				<u>Grams</u>	<u>Curies</u>	
Cesium Chloride	Cs-137	32.2	7200	2.55x10 <sup>6</sup>	2.21x10 <sup>8</sup>	\$0.15/Ci Cs-137
Strontium Titanate	Sr-90	32.2	3900	1.10x10 <sup>6</sup>	1.56x10 <sup>8</sup>	\$0.21/Ci Sr-90
Americium Oxide	-	32.2	230	-	-	\$140/g Compound
Curium Oxide	Cm-242 & 244	32.2	90	6.95x10 <sup>4</sup>	3.95x10 <sup>7</sup>	\$0.82/Ci Cm-242+244
Promethium Oxide	Pm-147	38.1	210	2.23x10 <sup>5</sup>	2.06x10 <sup>8</sup>	\$0.18/Ci Pm-147
Neptunium Oxide	-	32.2	960	-	-	\$33.50/g Compound
Sodium Pertechnetate	-	32.2	1600	-	-	\$20.10/g Compound
Palladium Metal	-	29.5	2400	-	-	\$12.30/g Compound
Rhodium Metal	-	32.2	730	-	-	\$44.10/g Compound
<b>Total Annual Revenue, Multi-Isotope IRF</b>		<b>293</b>				

Table 6 Cost estimates for products from a multi-product recovery plant - 100% market<sup>(a)</sup>

<u>Product</u>	<u>Cost (\$)</u>
$^{137}\text{Cs}$	0.25/Ci
$^{90}\text{Sr}$	0.34/Ci
$^{244}\text{Cm}$	12.2/Ci
$^{241}\text{Am}$	19.3/Ci
$^{137}\text{Np}$	47.7/g
$^{147}\text{Pm}$	0.69/Ci
Ru, Rh, Pd, Tc	8.8/g

- (a) Assumptions:
- A market exists for 100% of production of each of the seven products.
  - One-seventh of total sales come from each product -- \$120.37 million = \$17.2 million

Table 7 Isotope comparison

<u>Quantity</u>	<u>Co-60</u>	<u>Cs-137</u>	<u>Ratio of Co-60 to Cs-137</u>
Gammas per decay	2.0	0.85	2.35
Energy (MeV) per gamma	1.33, 1.17	0.662	1.89
Energy (MeV) per decay	2.5	0.56	4.45
Half-life (years)	5.27	30.17	0.17

Table 8 Estimated inventories of  $^{137}\text{Cs}$  from various sources

<u>Source</u>	<u>Effective Inventory Date</u>	<u>MCi</u>
<u>Hanford</u>		
- Cesium chloride capsules through 6/82	1/83	63.6
- Cesium chloride capsules through 10/83 <sup>a</sup>	1/83	27.7
- Stored wastes <sup>b</sup>	1/83	26
- Future wastes	1/83 to 1/91	38.7
<u>Savannah River Plant</u>		
- Current wastes	1/83	102
- Future wastes	1/83 to 1/2001	109
<u>Commercial Spent Fuel</u>		
- Accum. through 1981	1/83	510
- Accum. through 2020	1/2021	11,000

<sup>a</sup>Completion date established through personal communication with I.E. Reep of Rockwell-Hanford.

<sup>b</sup>Cesium contained in current waste but not considered recoverable.

Table 9 Amounts of sealed radioisotopes distributed

Kind of Sources (unit)	Fiscal Year	1978	1979	1980	1981	1982
$\alpha$ -Ray Sources (mCi)		—	—	1	(0.)	(0.)
$\beta$ -Ray Sources (mCi)		40 580	63 410	53 430	59 150	68 810
$\gamma$ -Ray Sources	$^{60}\text{Co}$ Large Sources (Ci)	502 570	525 830	1 410 460	544 750	3 054 920
	$^{137}\text{Cs}$ Large Sources (Ci)	6 200	4 000	—	—	—
	Others (Ci)	14 190	10 980	14 310	15 340	15 440
Neutron Sources (mCi)		3 110	9 710	13 480	10 680	83 670
Other Sources (mCi)		260 350	1 232 550	6 117 400	164 910	732 000

Table 10 Range of prices (in dollars per gram) for noble metals - Period mid-1978 through mid-1982

Element	July 1978	July 1979	July 1980	July 1981	July 1982	Jan. 1983
Palladium	2.25	3.22 to 3.54	7.23	4.50	4.50	4.18
Rhodium	16.08	25.72	25.72	19.29	19.29	19.29
Ruthenium	1.93 to 2.09	1.45	1.45	1.45	1.45	1.45
Platinum	7.07	11.25	13.5	15.27	15.27	15.59

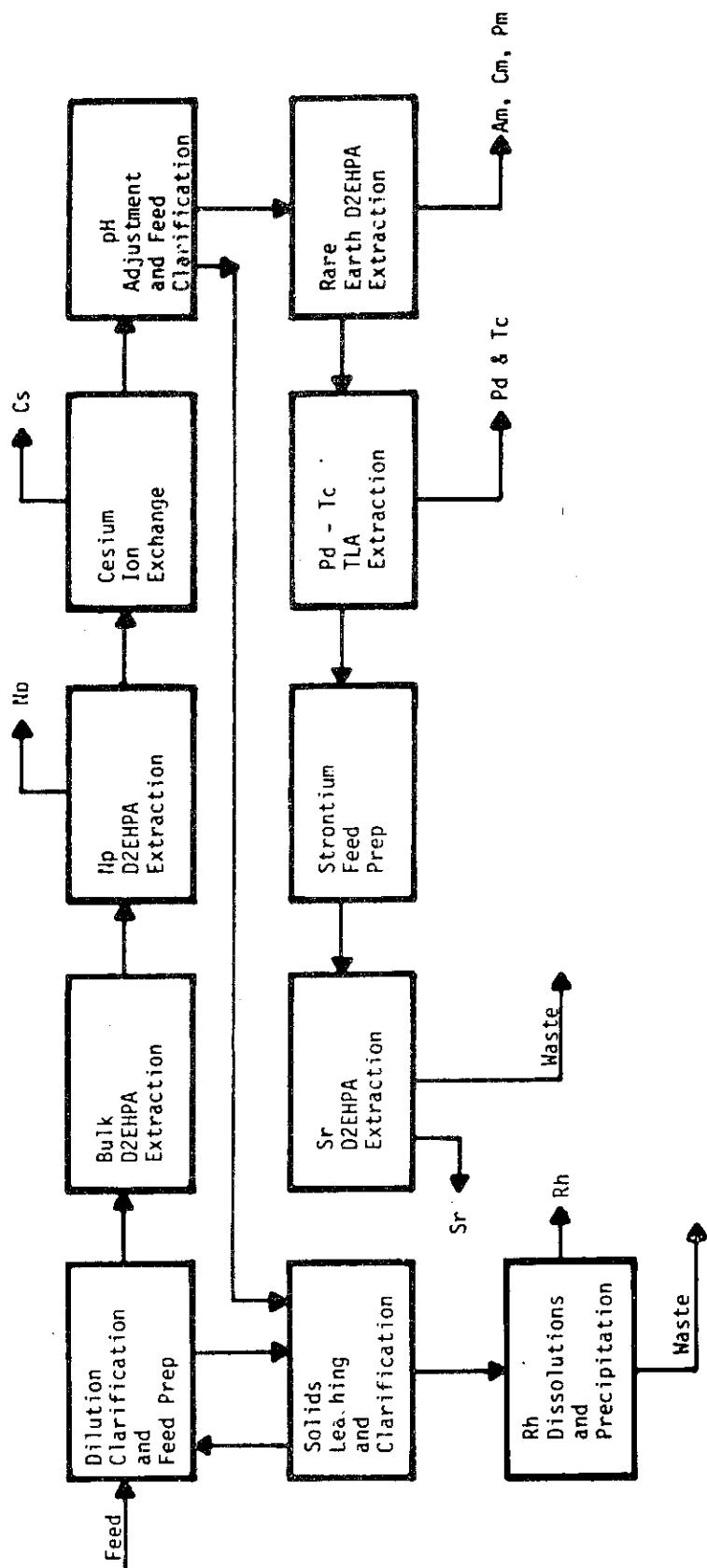


Fig. 2 Basic multi-isotope recovery flow sketch

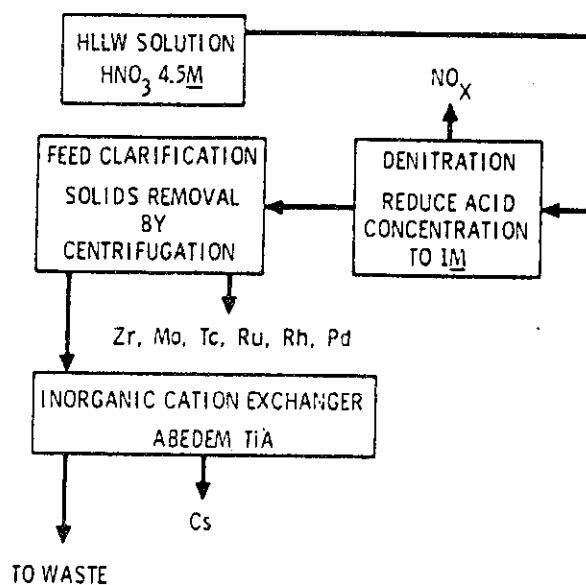


Fig. 3 Concept for cesium recovery

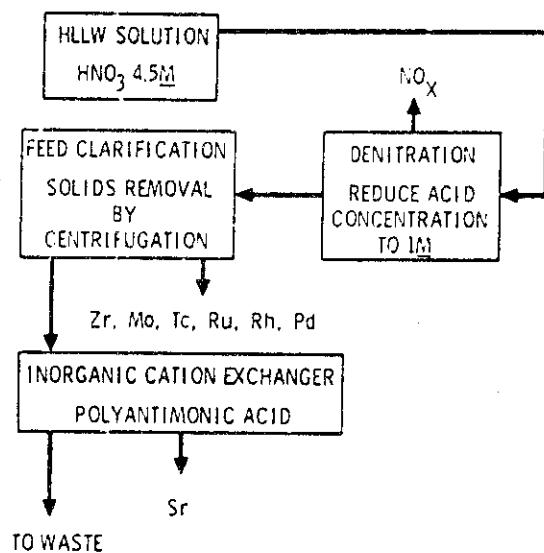


Fig. 4 Concept for strontium recovery

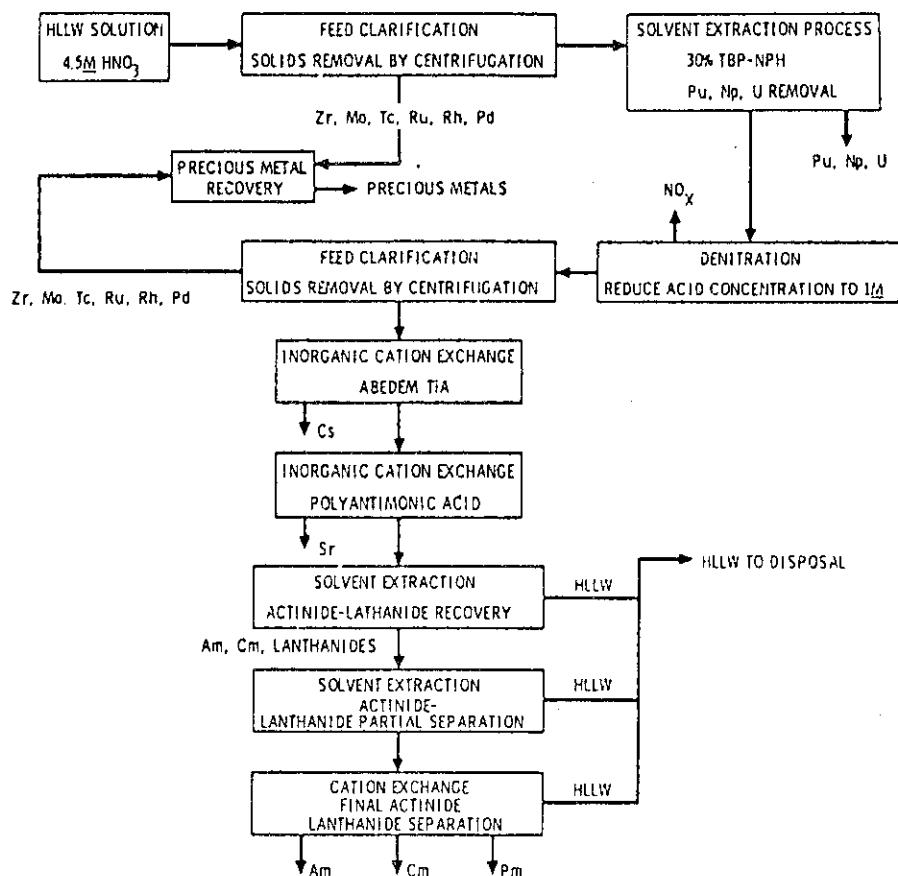
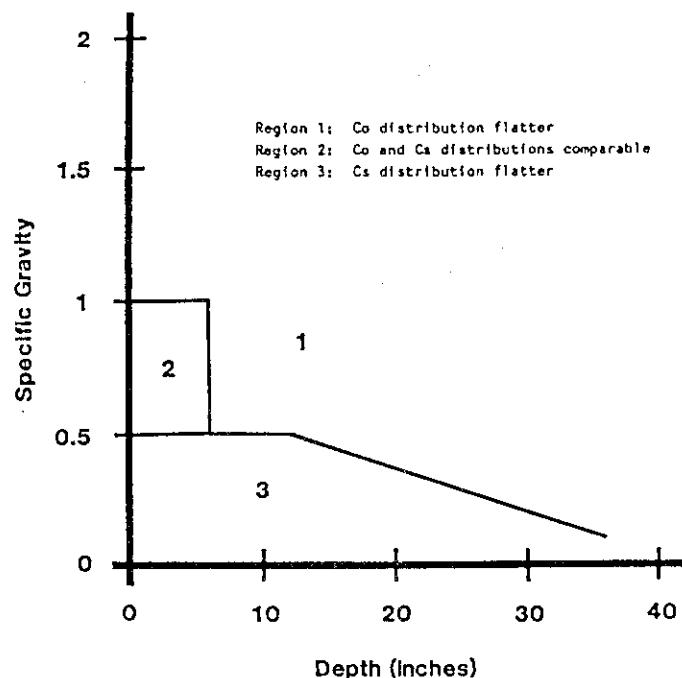


Fig. 5 Concept for multi-isotope recovery plant

Fig. 6 Depth-dose distribution between <sup>60</sup>Co and <sup>137</sup>Cs for one-sided irradiation

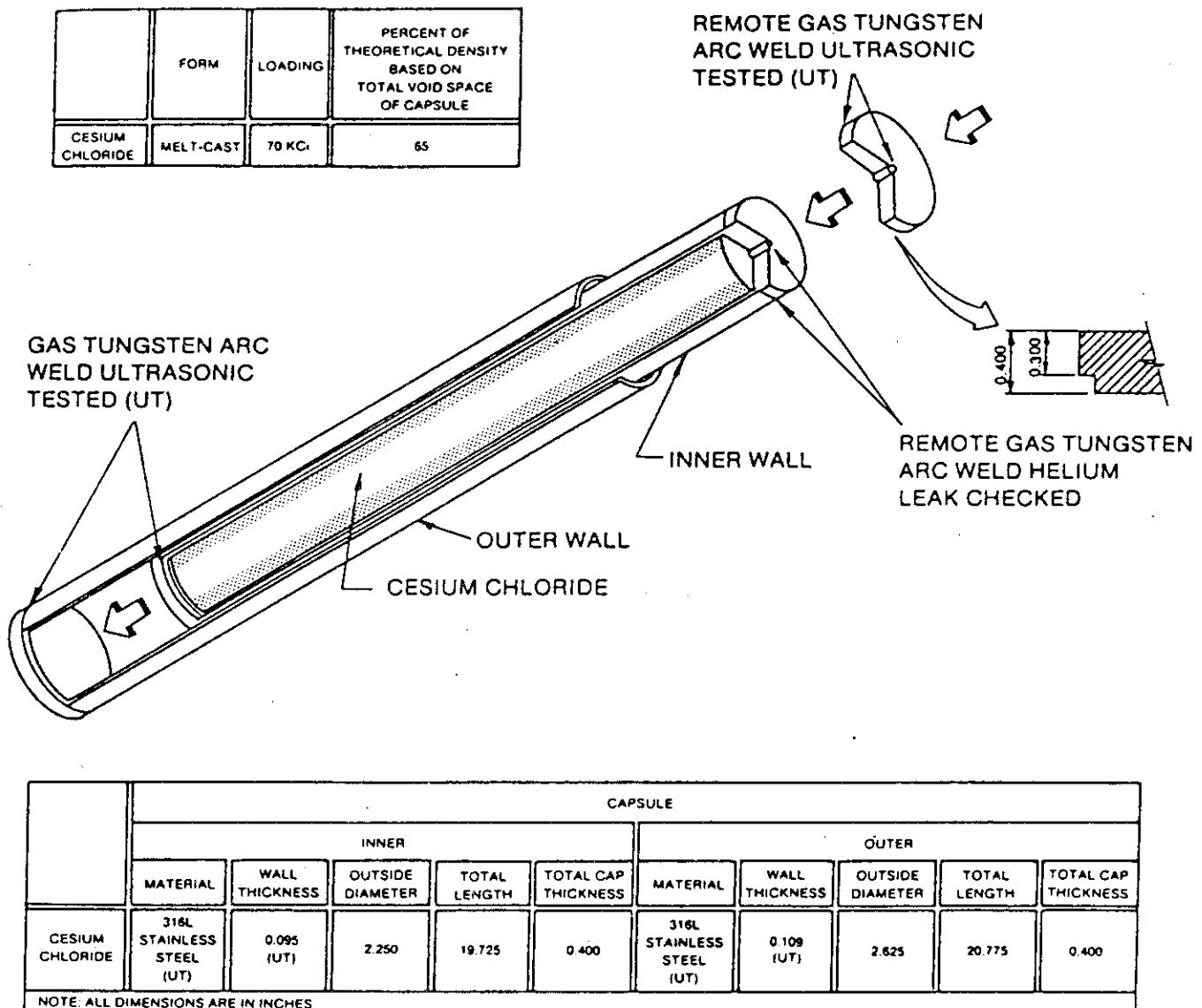


Fig. 7 Waste encapsulation and storage facility (WESF) capsule

## 6. 高レベル廃液の処理・処分に及ぼす効果

我々はすでに群分離法の有効性評価に関するものとして、高レベル廃液から Sr, Cs, Tc 及び超ウラン元素を分離した時の高レベル廃液の処理・処分に及ぼす効果について、定量的に評価してきた。<sup>(5)</sup> ここでは、有用元素として取り上げたそれぞれの元素について、分離回収した場合の高レベル廃液の処理・処分に及ぼす効果について定性的に述べる。

Sr : 再処理後 5 年以上を経過した高レベル廃液中に含まれる元素のうちで Cs と並んで発熱量の多い元素であり、Sr の分離は高レベル廃液固化体の発熱量を約半分に低下する。このため高レベル廃液固化体の処分にいたるまでの貯蔵期間を短縮出来る、あるいは一定容積の固化体に含有出来る高レベル廃液の量を増加出来る、すなわち固化体の発生量を少なく出来るなどの利点が考えられる。また固化体を深地層などに処分した時に考えられる処分環境での熱的問題を低減出来よう。

Tc : 高レベル廃液固化体を地層処分する場合に、地層を比較的移行しやすい元素の一つと考えられており、Tc の分離によって高レベル廃液固化体の処分による環境影響を少なくすることが出来よう。

Cs : Sr と同様の効果が期待される。また再処理後 5 年以上を経過した高レベル廃液中に含まれる元素のうちで、最も多量に  $\gamma$  線を放出する元素であることから、高レベル廃液固化体の貯蔵、輸送、処分時における線量を低くすることが出来よう。これはまた、地層処分後に固化体近傍に地下水などが浸入した時の水の放射線分解などを少なくし、工学バリヤの性能をより長く維持することにもなる。

Ru, Rh, Pd : 高レベル廃液をガラス固化体とする場合に、金属状態で固化体中に分散することが考えられ、ガラスの均質性を低下し、失透現象を助長する可能性も考えられることから、これらの元素の分離によって固化体の健全性をさらに向上させることが出来よう。

Pm : 高レベル廃液の処理・処分に及ぼす効果はほとんど考えられない。

Np : 高レベル廃液の長期にわたる潜在的毒性の評価からは、 $10^4$  年以降で最も高い毒性を示す元素である。また、高レベル廃液固化体を地層処分する場合に比較的移行しやすい元素の一つと考えられている。このため、Np の分離によって高レベル廃液固化体の処分による環境影響を大巾に少なくすることが出来よう。

Am :  $^{241}\text{Am}$  は半減期 458 年で  $^{237}\text{Np}$  に崩壊する核種であり、 $^{241}\text{Am}$  の分離によって Np と同様の効果が期待されよう。また、長期にわたる高レベル廃液固化体の健全性に及ぼす  $\alpha$  放射線の影響を少なくすることが出来よう。

Cm : 再処理後、約 60 年頃までは、 $\alpha$  放射能強度の最も高い元素である。このため、Cm の分離によって Am の場合と同様に、高レベル廃液固化体の健全性に及ぼす  $\alpha$  放射線の影響を少なくすることが出来よう。

## 7. おわりに

使用済燃料の再処理に伴って発生する高レベル廃液を資源としてとらえ、有用と考えられる元素、すなわち、Sr, Tc, Ru, Rh, Pd, Cs, Pm, Np, Am, Cmについて使用済燃料に含まれる量、放射能特性、利用法、分離法、経済性、高レベル廃液の処理・処分に及ぼす効果などを文献を中心に整理し、考察してきた。

これらの元素のうち、<sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>147</sup>Pm, <sup>241</sup>Amは現在我が国に輸入され、工業的に利用されている核種である。年間の使用量は使用済燃料1トンに含まれる量の10分の1以下となっているが、外国からの輸送がますます困難になるような状況のもとで、国内で得られ、しかも原子炉などの運転に左右させられることなく供給出来るRIとして、その分離製造技術の開発を進める必要があろう。また、<sup>60</sup>Co線源のように特定の国の供給能力に依存して価格が変動することのない、経済的な線源として<sup>137</sup>Csなどの分離・利用を積極的に考える必要があろう。

このように高レベル廃液を資源としてとらえ、有用な元素を分離することが高レベル廃液固化体を処分する上で安全評価上重要な元素を分離することであり、群分離の考え方と一致する。従って、高レベル廃液から有用な元素を分離回収することによる経済性評価に当っては、同時に高レベル廃液の処理・処分に及ぼす効果を含め、総合的に評価することが必要であろうし、また逆の考え方として、高レベル廃液の群分離による処理・処分を評価する場合には、分離された元素の資源としての経済性をも考慮することが重要なことと考える。

米国における大量の<sup>137</sup>Csや<sup>90</sup>Srの分離は、アルカリ性溶液である高レベル廃液のタンク貯蔵中に発生した容器の腐蝕による漏洩事故をきっかけとして、出来るだけ早期に溶液中の放射能を除去し、固化体に転換する必要性から行われたことではあるが、この操作自体、発熱量の大きい大部分の放射能を他の核分裂生成物から分離するという群分離の一つの考え方であり、多量に発生した<sup>137</sup>Csや<sup>90</sup>Srについて、線源としての利用技術を開発していることが、高レベル廃液の資源化を進める途であり、延てはより経済的な高レベル廃液の処理・処分法の開発に結びついて行くようと考える。

群分離研究室における改良型群分離法の開発では、高レベル廃液から超ウラン元素、Sr, Cs, Tcなど長期にわたって有害な元素を分離し、それぞれの元素に適した処分を考えることによって、高レベル廃液のより安全な処分法を開発して行こうとするものであるが、分離された元素の利用法を積極的に開発することが高レベル廃液の資源化であり、群分離をより経済的なものにして行くと考える。また同時に、高レベル廃液の資源化への努力が高レベル廃液の処理・処分を進める上で必要なパブリックアクセプタンスをより得やすいものにして行くよう思う。

最後に<sup>137</sup>Cs線源の経済性解析について、CH 2 M - HILLの資料を御提供頂いた千代田化工建設㈱顧問 村上昌俊氏に深く感謝する。

## 参 考 文 献

- (1) M. Kubota, H. Nakamura, S. Tachimori, T. Abe, H. Amano ; IAEA-SM-246/24 (1981).
- (2) M. Kubota, I. Yamaguchi, K. Okada, Y. Morita, K. Nakano, H. Nakamura ; Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 26, 551 (1984).
- (3) 久保田, 山口, 岡田, 森田, 中村 ; JAERI-M 83-011 (1983).
- (4) 山口, 久保田, 岡田, 森田, 中村 ; JAERI-M 84-070 (1984).
- (5) 中野, 久保田, 中村 ; JAERI-M 84-123 (1984).
- (6) F. P. Roberts ; BNWL - 1693 (1972).
- (7) H. F. Mc Duffie ; ORNL/TM-6654 (1979).
- (8) E. J. Wheelwright ; "Promethium Technology", American Nuclear Society (1973).
- (9) P. J. Dick, J. W. Mc Grew ; Trans. Am. Nucl. Soc., 43, 91 (1982).
- (10) G. H. Cartledge ; Corrosion, 29, 9 (1973).
- (11) L. E. Bruns ; Trans. Am. Nucl. Soc., 43, 93 (1982).
- (12) E. R. Merz ; Inst. Chem. Eng. Symp. Ser. (GBR), 78, T4/1-4/13 (1982).
- (13) G. A. Jensen, A. M. Platt, G. B. Mellinger ; Nucl. Tech. 65, 305 (1984).
- (14) Los Alamos National Lab. ; LASL-77-36 (1977).
- (15) CH 2 M HILL ; "Comparison of Radioactive Isotopes Co-60 Versus Cs-137" (1984).
- (16) Sandia National Lab. ; SAND 80-2744 (1980).
- (17) W. C. Remini, W. A. Frankhauser ; Trans. Am. Nucl. Soc., 43, 88 (1982).
- (18) M. Welt, S. R. Miller ; Trans. Am. Nucl. Soc., 47, 59 (1984).
- (19) J. S. Sivinski ; Trans. Am. Nucl. Soc., 43, 89 (1982).
- (20) 科学技術庁原子力安全局編；放射線利用統計 (1983).
- (21) 森田, 久保田 ; JAERI-M 84-043 (1984).
- (22) 館盛 ; JAERI-M 8249, JAERI-M 8330 (1979).
- (23) L. H. Baetsle, D. V. Deyck, D. Huys, A. Guery ; EUR-2497 (1965).
- (24) L. Baetsle, D. Huys, P. Speckaert ; BLG-487 (1973).
- (25) C. Konecny, V. Kourim ; Radiochem. Radioanal. Lett. 2(2), 47 (1969).
- (26) Exxon Nuclear Company, Inc. ; XN-FR-ER-2 (1978).
- (27) L. A. Bray, et al. ; Chem. Eng. Progress, 47, 60 (1964).
- (28) E. J. Wheelwright ; BNWL-SA-1945 (1968).
- (29) J. R. Wiley ; DP-1408 (1976).
- (30) R. M. Wallace, R. B. Ferguson ; DP-MS-80-65 (1980).

- (31) L. A. Bray, H. H. Van Tuyl ; HW-65934 (1961).
- (32) G. L. Richardson ; BNWL-4 (1965).
- (33) R. Shor, R. H. Lafferty, P. S. Baker ; ORNL-11C-36 (1971).
- (34) D. E. Horner, K. B. Brown, D. J. Crouse, B. Weaver ; Nucl. Sci. Eng., 17, 234 (1963).
- (35) R. P. Wischow, D. E. Horner ; ORNL-3204 (1962).
- (36) Hanford Products Operation ; HW-72669 (1963).
- (37) R. E. Burns, R. L. Moore, A. M. Platt, W. H. Swift ; Chem. Eng. Prog. Symp. Series, 60, 47 (1964).
- (38) W. W. Schulz, G. L. Richardson ; HW-79762 (1964).
- (39) J. V. Panesko ; ARH-1279 (1969), ARH-1982 (1972).
- (40) F. P. Roberts ; BNWL-1693 (1972).
- (41) J. V. Panesko ; ARH-911 (1968).
- (42) R. F. McCallum, H. T. Blair, R. W. McKee, D. J. Silviera, J. L. Swanson ; ONW 1-422 (1983).
- (43) K. V. Kotegov, O. N. Pavlov, V. P. Shedov ; Adv. Inorg. Chem. Radiochem., 2, 1 (1968).
- (44) M. Richter, G. Gorski, M. Gründing ; Isotopenpraxis, 20, 3S, 97 (1984).
- (45) C. A. Colvin ; ARH-1346 (1969).
- (46) E. P. Horwitz, et al., US patent 4162231 (1979).
- (47) G. A. Jensen, A. M. Platt, G. B. Mellinger, W. J. Bjorklund ; Trans. Am. Nucl. Soc., 43, 90 (1982).
- (48) H. F. McDuffie ; ORNL / TM-6654 (1979).
- (49) Y. M. Jones ; BNWL-270 (1966).
- (50) L. L. Ames, J. L. Nelson ; HW-69263 (1961).
- (51) L. A. Bray ; BNWL-288 (1967).
- (52) R. P. Popovich ; HW-84461 (1964).
- (53) J. S. Buckingham ; ARH-SA-49 (1970).
- (54) P. P. Murphy, J. S. Buckingham ; RHO-CD-456 (1977).
- (55) P. M. Wallace, R. B. Ferguson ; DP-MS-80-65 (1980).
- (56) V. Kourim, O. Vojtech ; Atomic Energy Review, 12(2), 215 (1974).
- (57) S. J. Beard, W. C. Schmidt ; HW-81092 (1964).
- (58) S. J. Beard, W. C. Schmidt ; HW-75051 (1962).
- (59) R. E. Lewis, C. L. Ottinger ; DP-1066 (1966).
- (60) D. E. Horner, K. B. Brown, D. J. Crouse, B. Weaver ; Nucl. Sci. Eng., 17, 234 (1963).
- (61) G. L. Richardson ; HW-80686 (1964).
- (62) L. A. Bray ; BNWL-68 (1965).

- (63) L. A. Bray ; Nucl. Sci. Eng., 20, 362 (1964).
- (64) G. L. Richardson ; HW-81091 (1964).
- (65) L. A. Bray, F. P. Roberts ; HW-76222 (1963).
- (66) G. L. Richardson ; HW-75447 (1963).
- (67) F. W. C. Pummery, J. H. Moss ; AERE-R-3596 (1960).
- (68) D. K. Davis, J. A. Partridge, O. H. Koski ; BNWL-2063 (1977).
- (69) Savannah River Laboratory Technical Division ; DPST-82-839 (1982).