原子力レアメタル利用の可能性

「核燃料サイクルの物質・放射線利用」研究専門委員会

主査 東京工業大学・藤井 靖彦

「2010年春の年会」の企画セッション・報告において発表、討議された内容をまとめたものである。原子力施設で利用した、もしくは生成したレアメタルを利用するには、レアメタルを他の物質とどう分離、回収するのかなどの技術的課題と、回収したレアメタルは放射性ではないが、利用するために社会的に受け入れられるようにするにはどのようなプロセスを取るべきかなどの安全管理、期待される技術など専門委員会で検討した視点を整理した。

はじめに

元素を変換する錬金術は人類の夢であった。化学反応によって原子核を変える錬金術は、今となっては、非科学的ではあるが、錬金術の研究によって、多くの化学的知見が得られた。原子力が開発されたことにより、核分裂によってルテニウム Ru、ロジウム Rh、パラジウム Pd など貴金属が生成され、まさに錬金術の夢が実現した。しかし、生産物としてはウラン U から作るプルトニウム Pu 等に限られており、核分裂で生成した貴金属は放射性廃棄物として処理されてきた。

錬金術の夢に立ち返り、これら貴金属を積極的に回収利用するためには、どんな技術が必要かという視点で2005年、日本原子力学会「核燃料サイクルの物質利用」研究専門委員会が始まった。さらに放射線の利用まで拡大し「核燃料サイクルの物質・放射線利用」研究専門委員会が2009年に設置された。この委員会の主な研究課題は以下の4テーマに代表される。

- (1) 原子力に係る元素の物質利用および分離技術
- (2) 放射線および崩壊熱利用技術
- (3) 回収金属、海水ウラン等新原子力資源利用技術
- (4) 利用に係わる導入シナリオ等の戦略的研究

原子力の利用を推進するためには、資源論(燃料となるウラン等の資源問題)、環境論(放射性物質の環境問題)、社会関係論(社会の原子力受容性)の視点が重要である。特に社会の受容性の観点では、原子力施設の安全、高レベル放射性廃棄物の処理処分、核拡散防止の3点が今後も重要な課題である。市民の安心を得るにはこれらの課題に積極的に取り組み、合理的解決策を見つけ出してゆかねばならない。中でも、放射性廃棄物を有用資源に変える技術開発、もしくは利用可能なエネルギー資源として肯定的に人類に役立てるには、原子力が長期的に

社会の支持を得る重要な鍵と考えられる。

(日本原子力研究開発機構・山岸 功/藤井靖彦)

I. 資源としての希少金属

金属元素の枯渇不安とそれに伴う価格高騰が続いている。このような供給リスクの増大にはいくつかの原因があるが、根本的に、自然が準備した元素構成と人類の需要構成がつりあっていないことに大きな問題がある。例えば、代表的な金属元素について、その2050年までの累積消費予測をまとめると、第1図のようになる¹⁾。この図において、縦軸は、現有の埋蔵量を1としたときの累積消費量を示している。ここで示したほとんどの金属元素において、2050年までに現有埋蔵量を凌ぐ消費が予測されている。とりわけ銀 Ag については現有埋蔵量の10.3倍、インジウム In に至っては72倍もの消費が予測されている。

上記のような希少金属元素の世界レベルでの強いデマンドを背景として、「元素戦略プロジェクト」や「希少金属代替材料開発プロジェクト」が、それぞれ文部科学省と経済産業省の実施事業として、2007年度から開始されている。

第1図 代表的な金属元素の2050年までの累積消費予測¹⁾

Utilization of Nuclear Rare Metal : Yasuhiko FUJII.

(2010年 5月20日 受理)

一方、核燃料サイクルに目を向けると、そこはある意味では希少金属資源の宝庫といえる。例えば、Ru, Rh, Pdといった貴金属核分裂生成物は、軽水炉の使用済み燃料1t当たり数kg生成する。また、生成する放射性同位元素の半減期も比較的短いため、数十年の冷却を経れば、その放射能影響は無視できるまでに低下する。

分離・回収技術の確立や貯蔵・利用に際しての社会的受容が必要不可欠ではあるが、将来ますます顕著になるであろう元素危機を鑑みると、核燃料サイクルからの物質利用は、有用金属のリサイクル・資源開発・備蓄に際しての一つの重要な選択肢になりうるものと思われる。

(大阪大学・黒崎 健)

Ⅱ．核燃料サイクルと資源

原子力発電では ^{235}U や ^{239}Pu の核分裂反応、

によって、 $7.8 \times 10^7 \text{ kJ/g}^{235}\text{U}$ の莫大なエネルギーが生産され、それとともに、核分裂収率については1 fission 当たり2ヶの核分裂生成物が生ずるので、個数ベースで200%の収率を持ってモリブデン Mo, バリウム Ba などレアメタルに帰属すべき元素が生成する。

第2図に示す周期表では、核分裂生成物としてセレン Se～ジスプロシウム Dy が、アクチニドとしてウラン U～キュリウム Cm までが資源的に有意量(>10 g/t)である。このうち、希ガス、スズ Sn を除く黒枠の元素が、いわゆる希少元素に該当する。人工元素テクネチウム Tc は希少元素に分類した。

これら元素を放射化学特性でグルーピングし、品位(高速炉使用済み核燃料(燃焼度15万 MWd/t, 5年冷却)1t当たりの元素量)、分離法、利用および既往技術との関連で仕分けたものを第1表に示す。同表に分類した元素群ごとに、概要を紹介する。Mo, ルテニウム Ru, パラジウム Pd, ネオジム Nd などは10 kg を超え、Tc, ロジウム Rh, ランタン La, サマリウム Sm など軽・中希土類はkg量あるが、重希土類になるにつれ少なくなる。燃焼度の低い軽水炉使用済み燃料では生成量も少な

Group	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
Period	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
1	1 H																	2 He
2	3 Li	4 Be											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 La	58 Ce	59 Pr	60 Nd	61 Pm	62 Sm	63 Eu	64 Gd	65 Tb	66 Dy	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb	71 Lu	
7	87 Fr	88 Ra	89 Ac	90 Th	91 Pa	92 U	93 Np	94 Pu	95 Am	96 Cm	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No	103 Lr	

第2図 核燃料サイクルのレアメタル資源
原子力レアメタル； 31元素(>10 g/t), 希ガス, ハロゲン, Cd, Sn, Sb, Bk, Cf を含まず。

第1表 主な原子力レアメタルの仕分け

元素群	放射化学特性(Bq/g)	鉱石としての品位 (kg/t, 高速炉使用済み燃料(内側炉心)の例)及び資源的インパクト	分離法の例(SX: 溶媒抽出, IXC: イオン交換クロマト)	利用の例
白金族(ルテニウム Ru, ロジウム Rh)	短半減期核種を含む。Ruは備蓄後40年で<10 ⁴ Bq/g, Rhは80年で<10Bq/g, の安全基準濃度レベルにまで低減。	Ru13.4 Rh3.7 Pd1.8 Tc3.4 量的インパクト大	触媒的電解採取法(CEC) 3級ピリジン樹脂(IXC) MDOA(SX)	備蓄後、通常使用。触媒(水素製造、燃料電池など)利用
テクネチウム Tc, 白金族(パラジウム Pd)	長半減期核種を含む。ただし放射性毒性は極めて低い。			取り出し後、隔離使用。触媒利用。Tcの ^{99m} Tcは核医学用代替利用。
モリブデン Mo, ジスプロシウム Dy, 他、重希土類	取り出し時、安定。	Mo14.3 Dy0.038	MDOA(SX), 3級ピリジン樹脂(IXC)	高純化 Mo の ⁹⁹ Mo- ^{99m} Tc 製薬原料
希土類(La, Nd, Pr, Gd, Tb), インジウム In	La, Nd は取り出し時、Pr, Gd, Tb, In, Ru は備蓄後50年で、それぞれ<0.1Bq/g	La5.3 Nd16.4 Pr4.9 Gd0.67 量的インパクト小	3級ピリジン樹脂(IXC)	先端産業利用
セシウム Cs, ストロニウム Sr	中半減期核種を含む。	Cs16.2 Sr2.0	Cs: AMP(IXC), CCD(SX), 他 Sr: DCH18C6(SX), D18C6-GAALG(IXC)	¹³⁷ Cs の ⁶⁰ Co の代替線源利用。熱電発電利用。
ウラン U, プルトニウム Pu, マイナークチニド(Am, Cm, Np)	長寿命核種(Cmを除く)	N.A.	TODGA(SX), 3級ピリジン樹脂, PDA(IXC), TPEN(SX)	核燃料利用
その他元素(利用優先性が低い元素)	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
自然界の放射性物質(ウラン U, トリウム Th)	N.A.	N.A.	CMPO-TRUEX(SX), 他	核燃料サイクル内で燃焼処理。核燃料利用

いが、それでも天然鉱石と比べると、例えば、Rh の含有量は1,500倍以上であり、使用済み核燃料は極めて高品位な“レアメタル鉱脈”ということができる。

放射化学的には、Mo, Dy は取り出し時(5年冷却)にはすでに非放射性に、La, Nd は極めて低比放射能(<0.1 Bq/g)に減衰している。ちなみに0.1 Bq/g とは我々人体の含有放射能と同程度、チェコのヤヒモフ温泉水の放射能濃度10.5 Bq²²²Rn/ml の1/100程度である。もし50年備蓄冷却したとすると、Ru, インジウム In, プラセオジム Pr, ガドリニウム Gd など0.1 Bq/g を下回る。ちなみに Ru についてはその時点でクリアランスレベル値も下回る。Ru は備蓄40年で、Rh は80年でそれぞれの安全基準値以下に減衰する。軽水炉使用済み燃料の場合、今後、中間貯蔵を経ると60年以上の冷却期間が想定されるので、40～80年の備蓄は非現実的な(冷却)期間とはいえないのではないかと。我が国の「元素戦略」で重要元素と位置づけられている In および Dy については量的には1t 当たり数十 g 程度と少ないが、In についても少なくとも50年の備蓄冷却を経て極めて非放射性に近いレベルまで減衰することは注目値する。一方、Pd や Tc は長寿命核種(¹⁰⁷Pd, ⁹⁹Tc)を含むが、両者とも低エネルギーのβ⁻核種であるので、放射性毒性は低い。他方、冷却効果が期待できないセシウム Cs, ストロニウム Sr, Cm などについては初期の高発熱性(>0.1 W/g)や高線量に着目した放射化学的利用の可能性が想定される。

核分裂起源のレアメタルは現行核燃料サイクルにおいては高レベル放射性廃棄物として扱われているが、それらを新たな資源に転換するには、新たな研究開発²⁾と核燃料サイクルの設計思想自体のコペルニクス的転回とが必要になろう。

(日本原子力研究開発機構・小澤正基)

Ⅲ．原子力産業におけるレアメタルのリサイクルの課題

原子力産業におけるレアメタルのリサイクルとして研

究開発されているに2事例について紹介する。レアメタルのリサイクルとして研究開発されているテーマとしては、再処理工場の「高レベル廃液中に核分裂生成物として含まれる白金族元素の回収」と使用済みの被覆管やチャンネルボックスなどの「ジルコニウム廃棄物のリサイクル技術」がある。

1. 高レベル廃液からの白金族元素の回収

高レベル廃液 HLLW 中には、第2表に示すように、Ru, Pd, Rh など白金族や Tc などの核分裂生成物 (FP) が含まれている。このうち、Ru と Rh は数十年でウラン鉱石以下の放射性毒性 (Hazard Index) となる。そこ

第2表 模擬白金族 FP の回収率

模擬FP組成	Pd	Ru	Rh	Re ¹⁾	Tc
Pd:Ru:Rh:Re (3.5:4.1:1:0.5) ²⁾	>99	83.3	>99	91.4	—
Pd:Ru:Rh:Tc (3.5:4.1:1:0.5) ²⁾	>99	86.9	>99	—	68.9

¹⁾:Tc模擬物質、²⁾:高速炉の使用済み燃料組成

第3図 酸化還元電位

第4図 電解回収試験結果³⁾

で、これらの白金族 FP や Tc を回収し、再利用する概念が検討されている (Adv.-ORIENT Cycle²⁾)。この概念では、白金族 FP を電解法で陰極に回収し、この電極を水素製造用の触媒 (電極) として使用するものである。白金族 FP などの標準酸化還元電位は第3図に示す。白金族元素の模擬の FP を用いた電解回収試験の結果を第4図に示す。Ru, レニウム Re (Tc の模擬物質), Pd および Rh の溶液中の濃度が減少し、陰極に回収できることがわかる。また、これらの模擬の白金族 FP の回収率を第2表に示す。Tc の回収率が若干低い (68.9%) もの、投入した全量のはほぼ83%以上回収できることを確認している³⁾。

2. ジルコニウム廃棄物のリサイクル技術⁴⁾

使用済みのジルコニウム廃棄物 (燃料被覆管やチャンネルボックス) は現在、水洗し、そのまましくは圧縮 (HIP) 処理してドラム缶につめて処分することになっている。このジルコニウム廃棄物の処分に要するコストは燃料サイクルコストの再処理廃棄物の処理費用の1/3と試算されている。そこで、使用済みジルコニウム廃棄物から放射能の高いコバルト Co やニオブ Nb を分離してジルコニウム Zr を回収するリサイクル技術を開発している。ジルコニウム廃棄物の再利用の概念およびその原理を第5, 6図に示す。

本法の原理は、溶融塩中での電解法により陽極で Zr を溶解し、放射化物質である Co, Nb は固形分として陽極バスケット内に堆積させる。溶解した Zr は放射性物質と分離され、陰極に回収されるので、インゴットとする。

中部電力浜岡発電所1号機の燃料貯蔵プールに保管中

第6図 ジルコニウム廃棄物のリサイクルの原理⁴⁾

第5図 ジルコニウム廃棄物の再利用の概念⁴⁾

第7図 実廃棄物を用いた電解精製試験の結果⁴⁾

のチャンネルボックスの実廃棄物からホットサンプルを採取し、原理を確認する電解精製試験を実施した。その結果を第7図に示す。電解精製試験を3回繰り返すことにより⁶⁰Coのクリアランスレベル相当まで放射能を除去できる(除染)ことを確認した。

しかしながら、高レベル廃液から回収した白金族FPにもジルコニウム廃棄物のリサイクル技術により回収したZrにも若干の放射能が残っており、再利用する場合には人体には影響しないので遮蔽は必要ないが、管理区域設定は必要である。

また、後述するように、社会的受容性の観点からは突っ込んだ討議が重要である。(東芝・藤田玲子)

Ⅳ. 高エネルギー放射線の化学反応への利用

放射性廃棄物を人類のために直接利用するのはそう簡単ではなく、英知・工夫を必要とする。例えば化学反応への応用を考えてみると、これらの放射線(γ 線等)は化学反応を促すには十分に高いエネルギーを持ちながらも、透過力が高すぎて実際に化学反応を促進することは難しい。一方で、放射線が水や固体材料に入射した時に起こるコンプトン効果や非弾性散乱を利用すれば、化学反応を引き起こすことが可能なエネルギー(数~数十eV)を持った多数の電子を間接的に得ることができる。本章では、 γ 線を金属片等の固体に照射して低エネルギー電子へ変換し、実際に水の分解反応に利用できるかどうかを試してみた。

γ 線照射によって固体から水中に放出される電子のエネルギーや数、そしてそれらが水に与えるエネルギーは、共存させる固体の種類だけでなく、その幾何学的構造、例えばその固体の厚さや並べ方(間隔等)によっても影響されるはずである。そこで仮想的に、金属板2枚を水の入った容器内に置き、周囲から γ 線照射するという単純な系を考えて、金属板に挟まれた水層の平均的な吸収線量と、発生する低エネルギー電子(1 keV以下)の密度をモンテカルロシミュレーションによって計算した(第8図(a))。その結果、原子番号の大きい金属板を置いた方が、水層の吸収線量と電子密度は高くなることが示唆された。また、金属板の間隔が狭くなるほど一度放出された電子が次の金属板に衝突する頻度が高くなっ

第8図 (a) 2枚の金属板に挟まれた水領域の電子密度・吸収エネルギーの金属板間隔に対する変化
(b) 水単位体積当たりからの水素生成量のステンレス鋼板間隔に対する変化

て、連鎖的に放出される電子の数が増えていき、水の吸収線量も単調に増大することも予測された。

そこで、実際に、水中に固体材料を共存させることによって水の分解反応が促進されるかどうかを調べてみた。容器の中に蒸留水と金属片を入れて γ 線を照射すると、金属片の量が多いほど、さらに原子番号の大きい金属を用いるほど、水単位体積あたりの水素生成量が増加した。また、水中にステンレス鋼板を等間隔に並べる際に、ステンレス鋼板の厚さと、並べる間隔を変えてみたところ、水単位体積あたりの水素生成量はステンレス鋼板同士の間隔が狭くなるほど増加した(第8図(b))。このように、実験結果は計算結果とよく対応しており、水の分解は固体表面の近傍の領域ほど促進されることや、水素生成効率を向上させるうえでは薄い金属を狭い間隔で並べるのが効果的であることもわかった。

そこで第8図(b)の実験データを基に水と共存させる固体の厚さ・間隔をパラメータとした水素発生量に関する半経験式を導出してみた(詳細は省略する)。この式によって予測した値は、実際に試したハニカム型金属材や金属酸化粉末を用いた場合の実験結果と実験誤差の範囲内でよく一致し、有効であることが示された。また、この式によって、固体の構成元素や幾何学的構造の最適条件、つまり γ 線から低エネルギー電子へのエネルギー変換による水素生成の上限もおおむね予測できるようになった。

さらに最近では、固体材料への触媒添加や犠牲剤を利用した逆反応抑制にも着手し、現段階において、当初の効率に比べて200倍以上の水素を生成させることに成功している。高エネルギー放射線の特徴を活かした新規な

水素製造方法として確立できるよう、本システムの更なる改良・検討を行っていきたい。

(名古屋大学・吉田朋子)

V. 原子力廃棄資源利用の社会的プロセス

本章では、元素利用と廃棄物処理・処分の負荷低減を絡めて論旨を展開していく。HLLW から特定元素を分離することで、ガラス固化体の発生量、処分面積、放射性毒性などを低減できる可能性があり、同時に分離した元素を利用することもできる。適切に分離対象元素(群)を選定することで元素利用と廃棄物処理・処分の負荷低減が両立し、可能性としての利点が生じる。追求する利点によって分離対象元素(群)は異なり、分離対象元素を特定することは可能性を絞り込むことを意味する。現状では、元素の需要が社会状況に依存することや高レベル放射性廃棄物処分への利点の効果度などの不確定要素が存在し、追求すべき利点を確定するには至っていない。

そこで、可能性を極力消さずに不確実性に対処可能とすることを基本方針とする。それには、適切な元素群に分離し、“準”安定な状態に固定化し、備蓄することが戦略(第9図)となる。適切な期間の備蓄は、Ru, Rh などの短寿命核種の減衰をもたらす。分離せずにガラス固化した場合でも数十年間冷却・貯蔵される。この戦略導入で地層処分開始時期を遅らせることにはならない。この戦略では、備蓄していることを“市民社会に見せること”(備蓄 Pd などを金塊、仏像などにして知らしめる)とともに備蓄の一部を水素・燃料電池などに適用し、利用可能なことを“市民社会に見せること”，そこから、分離・利用の社会的・技術的成立性を評価することが必須となる。

そして、適切な時期に意思決定するまで、望まない影響を及ぼさないこと、多大なコスト負担とならないことを担保せねばならない。その上で、原子力廃棄資源利用の技術動向や社会状況を鑑み、判断すべきとした時点で、市民社会と協働して、利用の是非などを判断していく。そのためには、意思決定する際の基礎情報(社会的影響評価と科学的事実)を整備しておかねばならない。

まず明らかにすべきは、第10図に示す総合的な経済性評価である。第10図で、ケース A は現行再処理路線を示し、原子力廃棄資源利用評価の基準となる。「分離・備蓄戦略」を導入した場合(ケース B~D), 「分離・備蓄

第9図 分離・備蓄戦略と意思決定

第10図 原子力廃棄資源利用導入の経済性評価概念

労力」, 「備蓄体を処分体に変える労力」, 「利用した収益」として整理を行える。ケース B は、分離した元素が最大限利用され、それに伴い「処分労力」も低減した理想ケースである。ケース C は、元素は利用せず、備蓄体をケース A と同じ処分体に戻すことになった場合で、「分離・備蓄」, 「備蓄→処分体」労力が超過となる。ケース D は、ケース C の発展型として、分離・備蓄の効果を活かした処分システムに再構築し、全体の労力低減が可能となるとしたものである。ケース D の労力がケース A より低ければ、元素の資源利用が行われなくとも「分離・備蓄戦略」は有効になる。これらが、この戦略を採用するか否かの検討初期の判断情報になる。

近年、研究開発の方向性に市民の意向を反映させることを目指した「上流からの関与」が標榜されている⁵⁾。この取組の基本理念は、重大な意思決定がなされていない段階(=上流, 検討初期)だからこそ市民参加に実質的な意義を求めることができると捉えることであり、市民社会の納得、決意を導く行為でもある。原子力廃棄資源利用の導入には市民社会の納得・決意が不可欠であり、上流からの関与を通じて取組まねばならない。分離・備蓄戦略は、市民社会の「上流からの関与」に整合し、適合するものである。

(若狭湾エネルギー研究センター・篠田佳彦)

—参考文献—

- 1) 原田幸明, 他, “2050年の金属使用量予測”, 日本金属学会誌, **71**, 831-839 (2007).
- 2) M. Ozawa, et al., *Solvent Extr. I Res. Dev. (Japan)*, **17**, 19-34 (2010).
- 3) 小澤正基, 他, 水素エネルギーシステム, **33**[1], 1-7 (2008).
- 4) 藤田玲子, 他, “ジルコニウム廃棄物のリサイクル技術の開発”, 日本原子力学会和文論文誌, **6**[3], 343-357 (2007).
- 5) J. Wilsdon, et al., See-through Science Why public engagement needs to move upstream, www.demos.co.uk/files/Seethroughsciencefinal.pdf, (2004).