

ディビジョン番号	17
ディビジョン名	資源・エネルギー・地球化学・核化学・放射化学

大項目	3. 核化学・放射化学
中項目	3-1. 核化学・放射化学
小項目	3-1-8. バックエンド化学

概要（200字以内）	
原子力利用の長期化が不可避となっている状況下で、バックエンドに係るアクチニドや核分裂生成物核種の化学的な研究が重要となっている。特に、アクチニド元素の分離回収技術、核種変換用の核データの測定、放射性廃棄物の処理や処分に関わる化学特性の研究、アクチニド固体化合物の物性研究などが喫緊の課題となっている。	
現状と最前線	
<p>エネルギー資源自給率の強化と温暖化ガス放出削減を目指す我が国にとって、わが国の一次エネルギー供給の約15%を担う原子力エネルギーへの将来的な依存は不可欠であると見られている（原子力委員会・原子力政策大綱（2005年）、経済産業省資源エネルギー庁・原子力立国計画（2006年））。一方、原子力を安全かつ安定に長期にわたって利用するためには、その利用により発生する使用済核燃料や放射性廃棄物の管理が極めて重要である。軽水炉発電所から発生する使用済核燃料1t中に含まれる各元素の放射能は表のとおりであるが、現在の原子力発電規模（約50GW<sub>e</sub>）の下では、一年当たり全国でこの約1000倍弱程度の放射性核種が生産されることになる。我が国では、使用済核燃料を直接処分せずに化学的な処理（再処理）を行った上でプルトニウムとウランを核燃料として再利用し、他の放射性核種を高放射性廃棄物や他の二次廃棄物として埋設処分するという“核燃料サイクル路線”を選択しているが、この過程において化学が果たす役割は極めて大きい。</p> <p>原子力バックエンドにおいて必要となる化学研究の対象は、以下のように分類することが出来る。</p> <ol style="list-style-type: none"> <li>① 使用済核燃料中の核燃料物質や放射性核種を回収・分離するための化学</li> <li>② 安全で効率的な放射性廃棄物を製造するための化学</li> <li>③ リサイクル燃料の製造のための化学（アクチニド固体化学など）</li> <li>④ 放射性廃棄物の埋設処分の安全性に関わる化学（放射性核種の環境中動態化学など）</li> <li>⑤ 放射性核種の核種変換など、先進的な放射性廃棄物削減技術のための核化学的取り組み</li> <li>⑥ 核燃料物質や放射性核種の分析のための化学</li> <li>⑦ 上記に共通な基盤となるアクチニドや核分裂生成物元素の基礎的な化学特性やデータ</li> </ol> <p>原子力は本質的に核的な現象を大規模に利用するものであるため、これらのバックエンドでの化学的取り組みは、無機化学や化学工学的なものに放射化学的・核化学的側面が含まれたものになる。研究対象各種としては、TRUやウランなどのアクチニド元素、希土類元素、バックエンドでの安全評価上重要となるような核分裂生成物元素、<sup>14</sup>Cや<sup>63</sup>Niなどの放射化生成物核種、などが挙げられる。</p> <p>分離化学については、次世代の再処理技術の候補として様々な再処理法についての研究や検討が進められており、主に、①先進的な湿式再処理法、②塩化物溶融塩を用いた乾式再処理法、③フッ化物揮発法、④超臨界二酸化炭素を利用する再処理法、などの研究開発が進められている。アクチニド元素回収の経済性を上げる事や、従来は回収されなかったAm, Cm, NpなどのTRU元素を回収することが、最近の研究開発では重要な目標となってきた。湿式系での分離回収化学としては、TBPを利用した溶媒抽出法の改良、その他の磷酸系抽出剤による溶媒抽出法、アミド系抽出剤による溶媒抽出法、ピロリドン化合物を利用した沈殿分離法、イオン交換法などが着目されている。アクチニド元素に対して高い親和性を持ち、希土類元素や他の核分裂生成物元素との分離係数が良い、実用的な新規の錯体（抽出剤や沈殿剤）の研究開発が中心的に進められており、このために、種々の分光的分析手法の利用、分子軌道法や分子力学計算などの計算化学の利用、各種の放射化学的な実験手法、等の取り組みが進められており、重元素の錯体化学研究の牽引的な取り組みとなっているといえる。アルカリ塩化物溶融塩を溶媒として用いた乾式再処理法の研究では、溶融塩中におけるアクチニドや核分裂生成物元素の化学的な挙動（電解酸化還元、二相分配挙動など）の解明と、その工学的な電解操作での特性について研究が進められてきた。溶融塩による乾式再処理法は、湿式では不可能であったような分離を可能とするだけでなく、非水系の分離化学の代表として着目されている。核種変換のための必須の工程として、希土類元素とアクチニド元素の相互分離が重要な研究課題として挙げられてきた。湿式分離法では、希土類イオンと比べて軟らかさを持つアクチニド元素の特性（共有結合性）を利用するために、窒素や硫黄を含む配位子（ソ</p>	

フトドナー)の研究が進められており、溶融塩系では、両者の活量係数の差が拡大されるような液体金属の利用により酸化還元電位の差を拡大する分離法が模索されてきた。リサイクル燃料のための化学研究においては、アクチニドの金属、ハロゲン化物、窒化物、炭化物等、核燃料利用のポテンシャルを持つアクチニド化合物の固体化学研究が進められてきた。実際の化合物を合成して化学的な特性を評価する研究だけでなく、第一原理による分子軌道法、半経験的な手法による分子軌道法、分子動力学計算などの計算化学による取り組みも進められてきている。また、信頼できる熱力学的なデータの充足、マイクロ分光手法による錯体の構造研究など、の基礎的な取り組みも進められてきた。

核種変換に必要な、放射性核種の信頼できる核反応断面積データを強化する研究が続けられてきた。特に、主要なアクチニド核種や長半減期核分裂生成物核種の中性子吸収断面積や中性子誘導核分裂反応断面積などについては、評価済みデータベース (JENDL 等) においても不足があり、このため、研究炉を用いた放射化学法、パルス中性子照射での即発ガンマ線の測定、鉛スペクトロメーターによる測定、などの手法を用いた核反応断面積を測定する研究が続けられてきた。これらの研究については、測定器の高度化 (全方位ゲルマ検出器) や、十分な放射性核種試料の入手、J-PARC の利用 (計画中) などの高度な取り組みが展開されている。

高レベル放射性廃棄物や TRU 廃棄物の地層処分を初めとして、浅地中処分や余裕深度処分対象の廃棄物の埋設処分の成立性や信頼性を評価するために、放射性核種の処分環境での化学研究が進められている。高レベル放射性廃棄物の処分の安全評価では、9 種の核分裂元素を含む 20 あまりの核種が処分後の影響を考える上で着目すべき核種として報告されている。最も重要な安全評価シナリオである地下水移行シナリオに関して、放射性核種の廃棄体からの溶出、人工バリア中での挙動、天然バリア中での化学的な挙動、などが鋭意研究されてきた。処分サイトでの放射性核種の移行は、雰囲気酸化還元性、地下水の動きや水質、有機物やフミン酸の存在、炭酸イオンの有無、生物活動の影響、コロイドの生成、岩石の性状などによって大きく影響を受けるため、特殊な条件下での多岐にわたる研究が進められてきた。地球化学的な条件と放射性核種の化学的 (放射

化学的) な特性を関連付けた研究として重要な位置づけとなっている。更に深地中環境だけでなく、土壌、河川、海洋などでの放射性核種の動態も重要な研究課題である。

バックエンド化学の研究は、放射化学や核化学研究の工学的な応用 (実用) に直結する研究として重要であるが、同時に、放射化学や核化学研究が取り組むべき高度な基礎研究の意義付けともなっている点を指摘したい。例えば、アクチニドの熱力学データの精密な測定、TRU 核種の核反応断面積の精密測定、計算化学手法の重元素への拡張、高度な分光的手法の適用、放射性核種の環境中での化学挙動の同定、など、かつての基礎化学研究だけでは取り組めなかったような研究が、バックエンド工学からのニーズによって進められている。我々が取り組んできた放射化学・核化学研究は、原子力利用との深いつながりにおいて、応用研究としても基礎研究としてもその意義が高いものである。

冷却時間	PWR 44000Mwd/t 単位: Bq/t					ORIGEN-2 計算による 主要核種 (質量数)
	1年	3年	10年	30年	50年	
U	1.73E+11	1.61E+11	1.27E+11	7.58E+10	5.98E+10	232,235,236,238
Np	1.15E+12	1.15E+12	1.15E+12	1.15E+12	1.15E+12	236, 237
Pu	6.16E+15	5.61E+15	4.06E+15	1.64E+15	7.08E+14	238,239,240,241,242
Am	1.86E+13	3.68E+13	8.77E+13	1.63E+14	1.88E+14	241,242m,243
Cm	6.75E+14	1.71E+14	1.13E+14	5.29E+13	2.49E+13	242,244
H	2.53E+13	2.27E+13	1.53E+13	4.98E+12	1.62E+12	3
Se	2.02E+10	2.02E+10	2.02E+10	2.02E+10	2.02E+10	79
Kr	4.25E+14	3.73E+14	2.38E+14	6.52E+13	1.79E+13	85
Sr	3.68E+15	3.32E+15	2.81E+15	1.75E+15	1.09E+15	90
Y	4.00E+15	3.32E+15	2.81E+15	1.75E+15	1.09E+15	
Zr	1.07E+15	4.82E+11	8.90E+10	8.90E+10	8.90E+10	93,95
Tc	6.23E+11	6.23E+11	6.23E+11	6.23E+11	6.23E+11	99
Ru	1.24E+16	3.12E+15	2.53E+13	2.71E+07	2.88E+01	106
Rh	1.24E+16	3.12E+15	2.53E+13	8.27E+07	4.66E+05	102
Pd	5.67E+09	5.67E+09	5.67E+09	5.67E+09	5.67E+09	107
Ag	8.26E+13	1.09E+13	9.06E+09	1.39E+06	1.24E+06	110m
Cd	3.02E+12	2.53E+12	1.82E+12	7.02E+11	2.71E+11	113
Sn	2.33E+13	8.89E+11	4.74E+10	4.49E+10	4.32E+10	126
Sb	5.14E+14	3.11E+14	5.40E+13	4.05E+11	4.58E+10	124,125
Te	2.37E+14	7.70E+13	1.32E+13	8.83E+10	5.92E+08	127m
I	1.55E+09	1.55E+09	1.55E+09	1.55E+09	1.55E+09	129
Cs	1.14E+16	8.07E+15	4.38E+15	2.56E+15	1.61E+15	135,137
Ba	4.74E+15	4.52E+15	3.85E+15	2.42E+15	1.53E+15	
Ce	1.93E+16	3.25E+15	6.38E+12	1.46E+06	1.34E+06	144
Pr	1.95E+16	3.29E+15	6.45E+12	1.19E+05	2.18E-03	
Pm	3.96E+15	2.33E+15	3.67E+14	1.86E+12	9.75E+09	147
Sm	1.72E+13	1.70E+13	1.61E+13	1.38E+13	1.18E+13	151
Eu	8.82E+14	7.19E+14	3.61E+14	5.90E+13	1.10E+13	154,155

#### 将来予測と方向性

・ 5 年後までに解決・実現が望まれる課題

(1) 高放射性廃液からのアクチニド核種の高精度分離回収技術。(2) アクチニド核種の変換のための核データの高精度化と拡充。(3) 地層処分におけるアクチニド元素の移行挙動の基礎化学データの拡充。(4) マイナーアクチニド酸化物の特性解明。

・ 10 年後までに解決・実現が望まれる課題

(1) アクチニド元素とランタニド (核分裂生成物元素) の効率的な分離法。(2) アメリカウムとキュリウムの実用的な分離技術。(3) 地層処分におけるアクチニド元素の移行挙動のフルモデル化。

#### キーワード

アクチニド、マイナーアクチニド、地層処分、核種変換、高放射性廃棄物

(執筆者: 山名 元)