

出國報告(出國類別：出席國際會議)

參加 2024 年核燃料循環國際研討會  
(Global 2024)

服務機關：核能安全委員會輻射偵測中心

姓名職稱：陳俊豪 技佐

派赴國家：日本

出國期間：113 年 10 月 6 日~113 年 10 月 9 日

報告日期：114 年 1 月 2 日

## 摘要

第 16 屆核燃料循環國際研討會(International Conference on Nuclear Fuel Cycle, Global 2024)於 2024 年 10 月 6 日至 9 日在日本東京舉行，核心議題圍繞核能系統及燃料循環創新，涵蓋核能政策、先進核能反應爐及核廢料管理等重要議題，特別是在福島核事故後的復建策略及環境修復方面進行深入討論。不僅有助於提升臺灣的核能技術及環境樣品分析能力，也加強了國際間的技術交流與合作。

本報告摘要多個高放射性核廢料中元素分離技術的研究，包括利用管柱分離系統進行鈾、鈾與鏷系元素、使用樹脂分離及鈾、透過 SiO<sub>2</sub>改質 AMP 可加速 AMP-放射性鈾的沉降速度、利用改良 SARRY 第二代系統中的吸附材料處理放射性鋇以提高其吸附效率、使用強氧化劑將氧化態三價的鈾轉換為氧化態五價的鈾而與鏷系元素高效分離、核種溫控分離法等分析技術，對於本中心建置放射性鈾、鋇及鈾核種環境試樣檢測方法的精進與開發具參考價值。

總的來說，此次會議提供了與會者一個關鍵的交流平臺，促進了全球對核能及其可持續發展的關注與討論，並為日後核能的技術創新和國際合作奠定基礎，建議本中心人員可多參與類似相關放射化學、環境化學及輻射度量領域之國際性或全國性會議，以增進我國放射分析技術並能與國際接軌。

## 目次

壹、	前言(含緣起、目的) .....	1
貳、	行程 .....	2
參、	出國紀要 .....	3
肆、	心得與建議 .....	61
伍、	附件 .....	62
附件一	第 16 屆會議「GLOBAL 2024」議程 .....	62

## 壹、前言(含緣起、目的)

GLOBAL 成立於 1993 年，該國際會議於 1993 年首次在西雅圖舉行，是目前規模最大的涵蓋燃料循環、反應器系統、核燃料前後端等核子技術全方面的國際論壇，旨在從全球角度討論核能問題，例如包括核種分離和蛻變(transmutation)在內的處理技術、核武器中的鈾處理等，該會議每兩年舉辦一次，由美國、法國、日本核子學會輪流舉辦，參加人數約 400-600 人。

本次參加的是第 16 屆會議「GLOBAL 2024」，由日本原子力學會(The Atomic Energy Society Japan, AESJ)與國際原子能總署(International Atomic Energy Agency, IAEA)合辦，主題包括核能展望(核能和燃料循環、碳中和選項的展望)、核燃料循環前端(燃料、材料、鈾濃縮、轉換)、先進核能反應爐(FR、HTGR、MSR、SCWR、SMR、ADS 等)、用過核子燃料的處理和回收(用過核子燃料的儲存、運輸、再處理、次鈾系元素的分離等)、廢物管理(廢物處理、地質處置)、除役(反應器、後處理設施等)、國際和社會發展和問題、環境修復(福島淨化/環境修復、社會問題、教育)、核安全(分析化學)等。

GLOBAL2024 口號為透過創新的核能系統和燃料循環實現可持續發展的世界。自工業革命以來，由於對全球環境的顯著影響，能源系統極需轉型。在這轉變中，核電有望成為一種產生低二氧化碳的穩定能源，這一口號旨在透過創新的核能系統，實現更有效的資源利用和減少廢物，為實現永續發展的世界做出貢獻。在當前不可預見的全球能源供應和氣候變遷情勢下，創新核能系統和燃料循環是實現永續世界的關鍵技術。

輻射偵測中心(以下簡稱本中心)為提升國內環境試樣放射性分析技術水平，派員參與以擷取各國對於放射性核種分析的寶貴經驗，並與國際專家學者交流，做為我國放射化學分析技術持續精進與發展之借鏡。

## 貳、行程

行程概要如下：

10月6日	由桃園機場到達成田機場轉至日本新橋。
10月7日~10月9日	赴東京飯野大廳及會議中心參加Global 2024會議
10月10日	由新橋轉至成田機場經桃園機場回高雄。

第一天上午由組委會主席大井川博之開幕致詞，接續兩場全體會議，主要內容為國際核能政策相關議題。第二天議程因有多個場次會議同時進行，優先參與放射化學相關會議，主要內容為核種分離相關放射化學議題，第三天議程則主要為大會全體會議與福島事件議題。



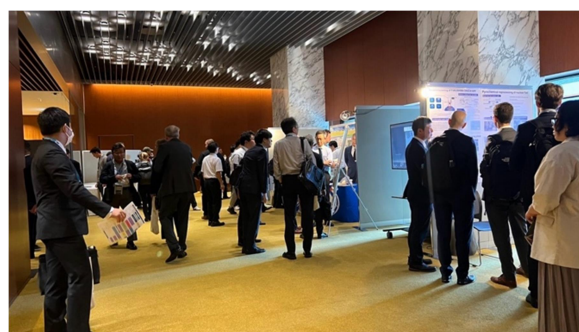
第 16 屆會議「GLOBAL 2024」會議合照



第 16 屆會議「GLOBAL 2024」



東京千代田區伊諾大廳和會議中心現場-1



東京千代田區伊諾大廳和會議中心現場-2

## 參、出國紀要

### 一、國際核能政策議題

會議中由日本、美國、IAEA 分享核能政策和管理議題，可作為我國相關政策發展之參考，摘要如下：

#### (一)日本核能政策與創新

第一天的開場由組委會主席同時也是日本原子力規制委員會(Japan Atomic Energy Commission, JAEC)主席的大井川博之開幕致詞(如圖 1)，後續第一場演講由日本原子力規制委員會委員長上坂滿進行演講，主題為「2024 年日本核能政策與創新」，第二場演講由安岡悟博士(經濟產業省核能政策課國際課課長)演講「2050 核能碳氮中和綠色轉型」(如圖 2)，上述演講主要總結了日本的核能政策、創新發展與綠能轉型，目標與理念為透過創新的核能系統與燃料循環，實現能源安全、經濟效率、環境適應及安全性(3E+S)(如圖 3)並推動核能技術的革新以促進永續發展，減少碳排放並提升能源自給率。核能綠色轉型將成為日本能源政策的重要支柱，結合創新技術與國際合作，助力全球碳中和目標。

呼應國際間 2050 年淨零排放(NZE, Net Zero Emissions)，日本能源以核能、再生能源及化石燃料為主，核能比例隨政策波動(圖 4)，目標在 2030 年能源結構可為再生能源 36-38%，核能 20-22%(圖 5)，配套的核能政策主要分為三個：日本原子力委員會(JAEC)修訂《基本核能政策》，為核能未來發展提供指引，並獲得內閣支持；經濟產業省計劃於 2025 年 3 月前修訂《2040 年能源基本政策》，上述核能政策方向推動核電廠重啟及新一代核反應爐開發，包括小型模組化反應爐(SMR)(圖 6)、高溫反應爐(HTGR)(圖 7)、快中子反應爐及核融合，同時最大化利用現有核設施並加強燃料循環技術，穩定後端處置並建設核能供應鏈，未來計畫至 2050 年實現商業化運行下一代核反應爐，確保能源穩定供應；制定《醫用放射性同位素生產和利用促進行動計畫》，推動診斷與治療相關技術創新，例如小型反應器及醫用放射性同位素的研發，可用於癌症及阿茲海默症等疾病的診斷與治療。資金方面預計在 10 年內投入 150 兆日圓於公共與私人投資，包括日本氣候轉型債券與碳定價政策，同時推動排放交易系統與化石燃料附加費以支持脫碳措施。通過法日等國際合作之聯合投資，提升核燃料供應鏈彈性，降低地緣政治影響風險。通過創新的核能技術和燃料循環，日本和國際社會正努力實現永續發展目標，結合政策規劃與技術革新，核能與再生能源將成為未來能源結構的重要支柱，有望顯著減少碳排放，推動全球氣候目標的實現。對於本中心而言，

核能的使用在國際間持續上升的趨勢凸顯對環境長期監測的重要性，因此維持並建置相關核種分析技術有相當的必要性。



圖 1 2024 年日本核能政策與創新

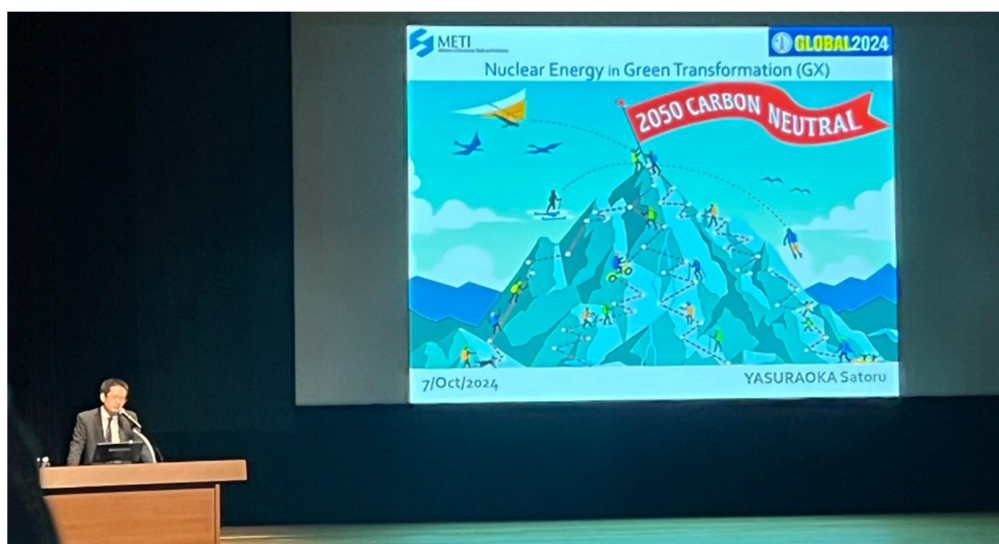


圖 2 演講主題 2050 核能碳氮中和綠色轉型

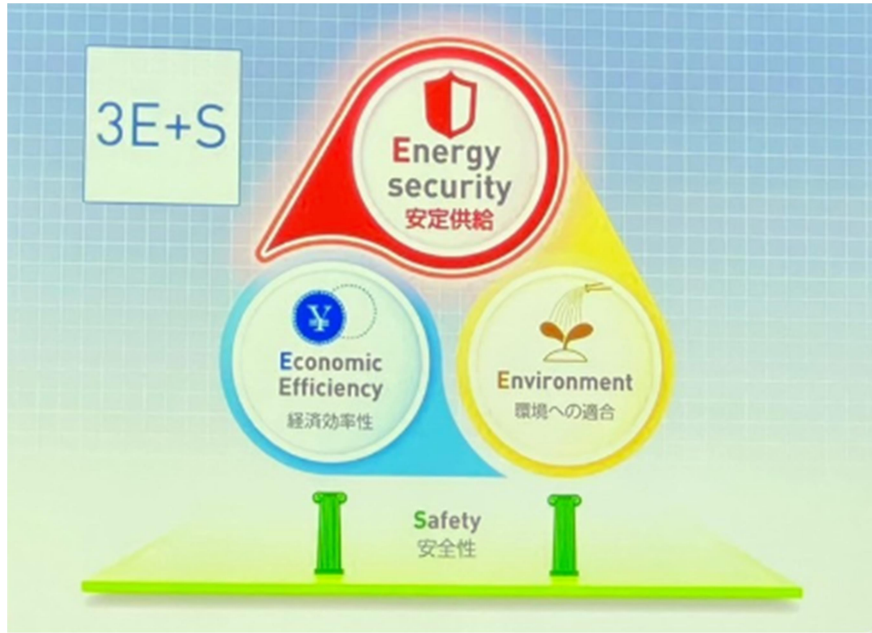


圖 3 能源安全、經濟效率、環境適應及安全性(3E+S)

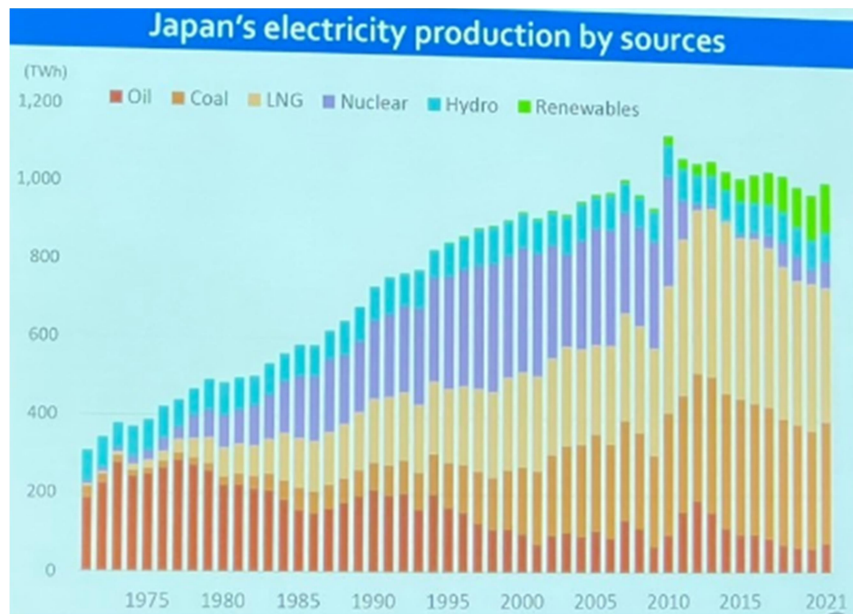


圖 4 日本電力來源



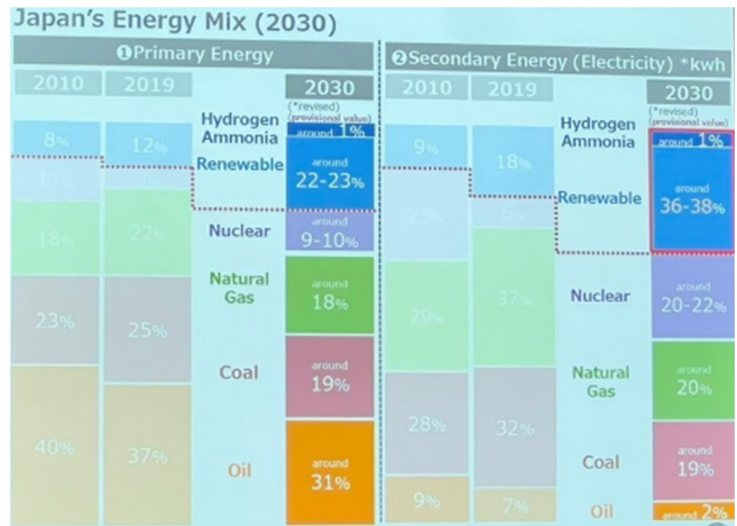
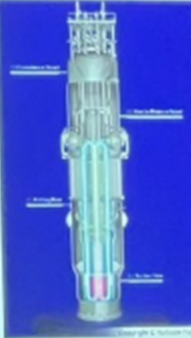



圖 5 2030 年日本能源結構

### International Projects on SMR

**NuScale / VOYGR™**

- ✓ PWR, 50-77MW per module (max 12m)
- ✓ JGC, IHI, Chubu-EPCO, and JBIC involved
- ✓ Grid Connection by 2020s (exp.)





**GE-Hitachi / BWRX-300**

- ✓ BWR, 300MW
- ✓ Hitachi jointly developed with GE
- ✓ Grid Connection in 2029 (exp.)

圖 6 小型模組化反應爐(SMR)

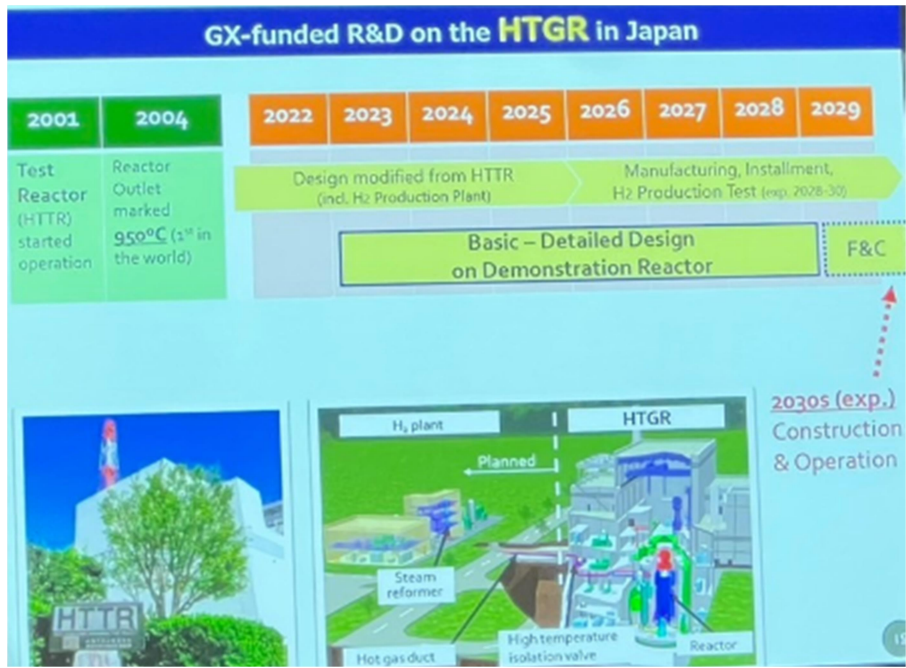


圖 7 高溫反應爐(HTGR)

## (二)美國核能現狀與未來

由喬恩·卡馬克博士(Jon Carmack)(美國能源部核能辦公室核燃料循環副助理部長)演講「美國核能現狀與未來」，如圖 8。核電是美國最大的清潔能源來源，占全國無排放電力的 47% (圖 9)，美國擁有 94 座商業反應器，提供 19%的電力，占清潔能源產量的 48%(圖 10)，針對逐漸提高的核能需求，核能辦公室(Department of Energy office of Nuclear Energy, DOE)推動核能科學與技術以滿足能源、環境和經濟需求，優先事項包括維持現有核電廠運行、建設新型反應器、保障核燃料循環以及促進國際合作，對於核燃料技術與回收，支援低濃縮鈾(LEU)和高含量低濃縮鈾(HALEU)的需求，使用回收技術將用過核子燃料轉化為新燃料，提升資源利用率並減少廢物儲存負擔，特別針對先進反應器和醫療用途(圖 11、圖 12、圖 13)，目標 2024 年生產 900 公斤高含量低濃縮鈾(HALEU)，用於反應器示範和燃料測試。先進反應器與燃料方面，採用如鈉冷快中子反應爐、TRISO 燃料(Tristructural-isotropic fuel)(圖 14)等技術，支持下一代反應器的商業化。國際合作與核燃料供應則投資 50 億美元強化核燃料供應鏈，減少對不安全供應商的依賴，並與英國、法國、日本和加拿大分別加大核燃料的生產和濃縮能力。美國致力於推動核能創新，通過新技術和國際合作確保核燃料循環的可持續發展，為全球能源安全與環境保護做出貢獻，持續改進燃料加工技術，強化安全與經濟性，如化學回收和廢氣管理技術，支援核熱火箭等新興領域，拓展核能應用範圍。

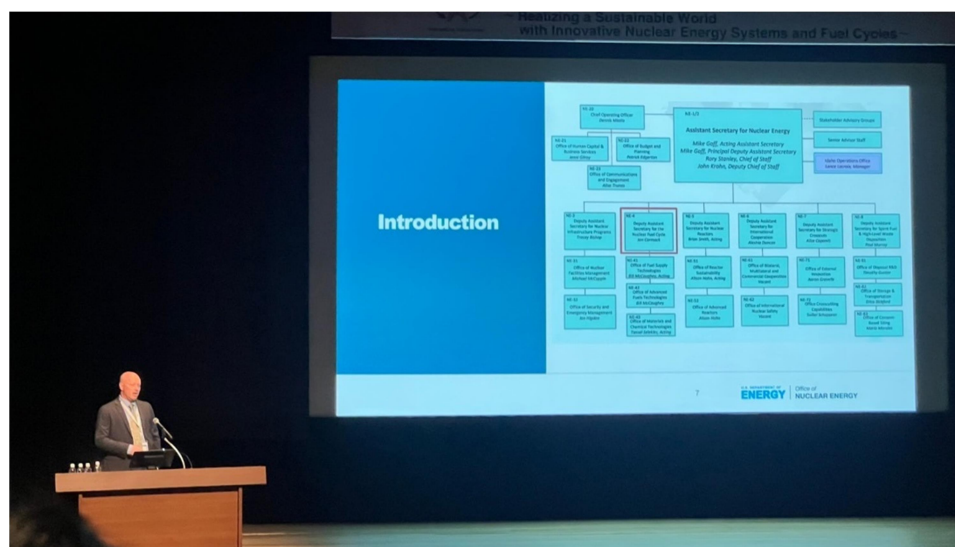


圖 8 演講主題：美國核能現狀與未來

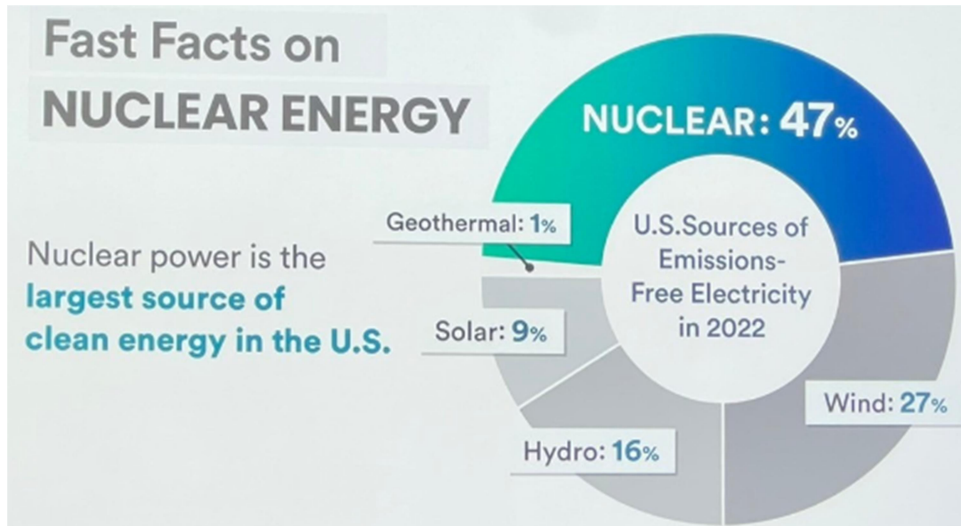


圖 9 美國清潔能源來源佔比



圖 10 清潔能源佔美國全國能源佔比

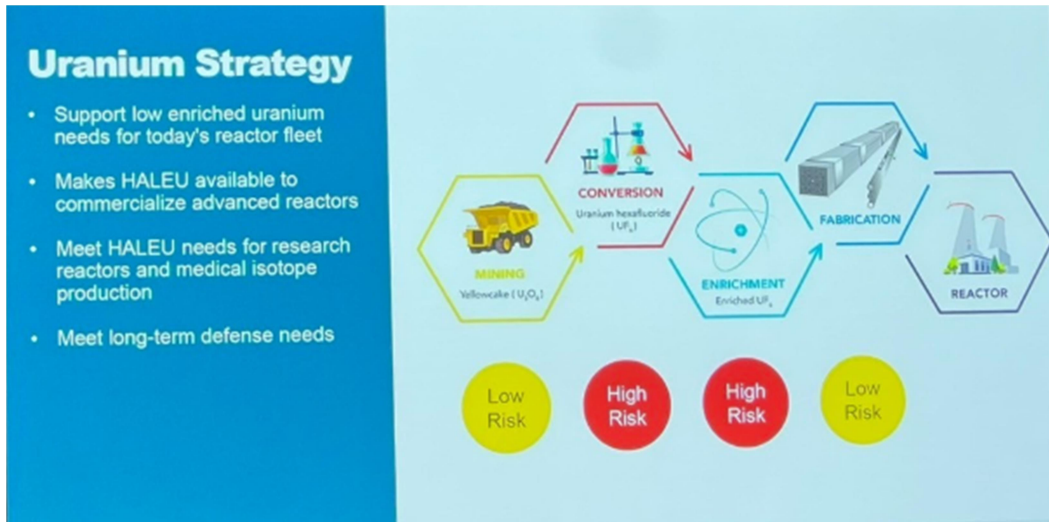


圖 11 高含量低濃縮鈾(HALEU)執行策略

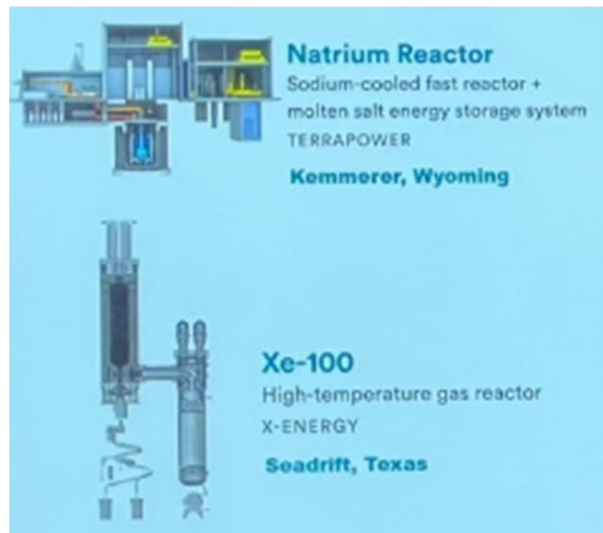


圖 12 高含量低濃縮鈾(HALEU)應用於新世代反應器



圖 13 美國高含量低濃縮鈾(HALEU)生產

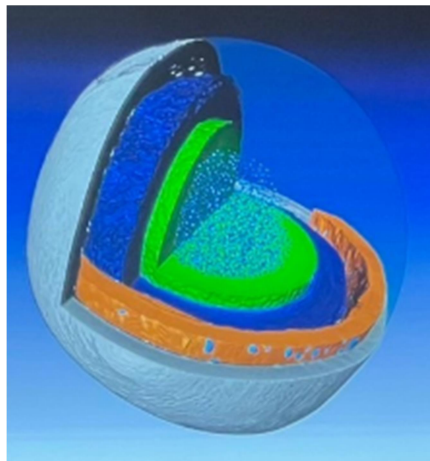


圖 14 TRISO 燃料(Tristructural-isotropic fuel)

### (三) IAEA 國際核能政策

由 Clément Hill 博士(國際原子能總署,核燃料循環與材料主管)演講「核電反應器燃料和核能永續性燃料循環方案的持續活動」(如圖 15),截至 2024 年,全球共有 415 座核電反應器運行,國際原子能總署(IAEA)透過支持其 178 個成員國,推動核能在和平、健康與繁榮方面的應用,包括核能系統與燃料循環的技術與政策支持,透過開辦研討會、技術工作小組及研究計畫,專注於事故容忍燃料(Accident Tolerant Fuel, ATF)的研究,並確保鈾資源供應足夠以增強安全性與經濟性,亦進行先進反應器技術(如 SMR)研發,以及用過核子燃料管理與儲存的挑戰,包括多次回收與延長其儲存壽命。核燃料循環策略則探索直接處置、再處理和快中子反應爐等選項,提升經濟性與永續性。同時提供技術文件、數據分析與電子學習資源,內容涵蓋核燃料製造、儲存、回收與管理實務,完善審查與服務,例如審查鈾生產週期、用過核子燃料管理與放射性廢棄物處置,確保國際良好地實踐與安全標準確實落實。

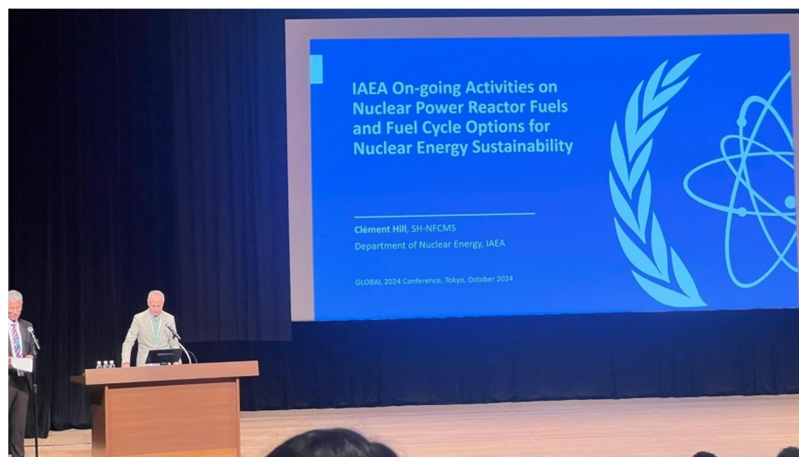


圖 15 演講主題：核電反應器燃料和核能永續性燃料循環方案的持續活動

## 二、放射化學相關議題

### I. 關注核種分離的技術與應用

#### (一)鹽酸(HCl)體系核種分離層析後處理新製程

針對下一代核燃料的再處理需求，開發基於鹽酸(HCl)體系的核種分離層析後處理技術，以實現多核種的高效分離，降低用過核子燃料再處理的技術瓶頸。選擇 HCl 體系進行核種分離的理由包括氯離子在金屬離子配位中表現出高變化性和靈敏度，優於硝酸根離子，且在核種分離中，HCl 能支持多種金屬離子的精確調控。而使用選擇層析法則是可透過管柱分離系統，能高效分離多種元素，適用於小型再處理設施，近期亦開發出耐 HCl 腐蝕的新型材料，適用此技術的應用。該研究成功展示了基於鹽酸(HCl)體系的層析後處理新製程，其具備實現核種分離高效性、材料利用率提升與低溫操作優勢，為未來核燃料再處理奠定了重要基礎。

用過核子燃料經分解(Dissolution)後核種分離步驟如圖 16 所示，包括五個步驟，首先去除 Cs 與 Sr，使用 AMP(磷鉬酸銨)嵌入二氧化矽製成吸附劑(圖 17)，專門從高放廢液(HLW)中高效移除銻，此種做法亦可應用於本中心現行 Cs-137 分析方法中的自然沉降法，透過與二氧化矽結合增加比重可加速沉降速度，達到快速分離的目的，此方法可作為快速濃縮方法建立的參考。去除 Sr 的方法則考慮以無機吸附劑、無機-有機混合型吸附劑的去除方法。接著進行 AMP-SiO<sub>2</sub>管柱吸附實驗(圖 18)：在 2M 的 HCl 溶液中，AMP 吸附銻的分配係數(Kd)達到高峰值，顯示其對 Cs 的高選擇性(圖 19)與吸附能力，達到高效移除銻的目標。移除銻與銻之後，接著是鉑族金屬(PGM, Platinum-group metals)與 Tc 的回收，透過吡啶樹脂(圖 20)進行預過濾，回收鉑族金屬如 Ru、Rh、Pd，以及 Tc，利用吡啶樹脂的氮配位體(圖 21)與金屬間形成穩定的化學鍵，提高選擇性與吸附效率，在濃 HCl 條件下，對鉑族金屬(PGM)與 Tc 的分配係數呈穩定分佈(圖 22、23)，回收率均超過 99%。接著進行鈾的粗略回收，利用 27.4kHz、15kPa 條件下，射頻功率 100W 電漿氧化技術將 UO<sub>2</sub>轉化為 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>，生成細粉，SEM 圖像顯示，電漿氧化生成的 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>粉末平均粒徑約 30.32±20.07 微米，與高溫氧化生成的粉末粒徑(51.53±29.14 微米)相似，後續以 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>和 HCl 溶解以回收鈾(圖 24)，HCl 溶液中 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>的溶解性：添加 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>後，U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>的溶解效率顯著提升，且隨溫度升高(40°C 至 80°C)溶解量增加(圖 25)，該步驟能在低溫條件下完成氧化，降低能量耗損且保持元素完整性。接著將鈾、鈾與鐳系元素(Ln)的分離，使用加入吡啶樹脂的管柱分離系統，利用控制 HCl 濃度的方法，在濃 HCl 環境中實現鐳系元素(Ln)與 U、Pu 的分離(圖 26)，接著亦以管柱法將 Ln 分離出來(圖 27)。最後，進行 Am 與 Cm 的分離，通過 TODGA(N,N,N,N Tetraoctyl Diglycolamide, 四



烷基二甘醇胺)樹脂實現 Am 與 Cm 的相互分離, Am 和 Cm 在 1M HCl 中分離效率顯著, 色譜數據顯示分離效果優於傳統方法(圖 28)。

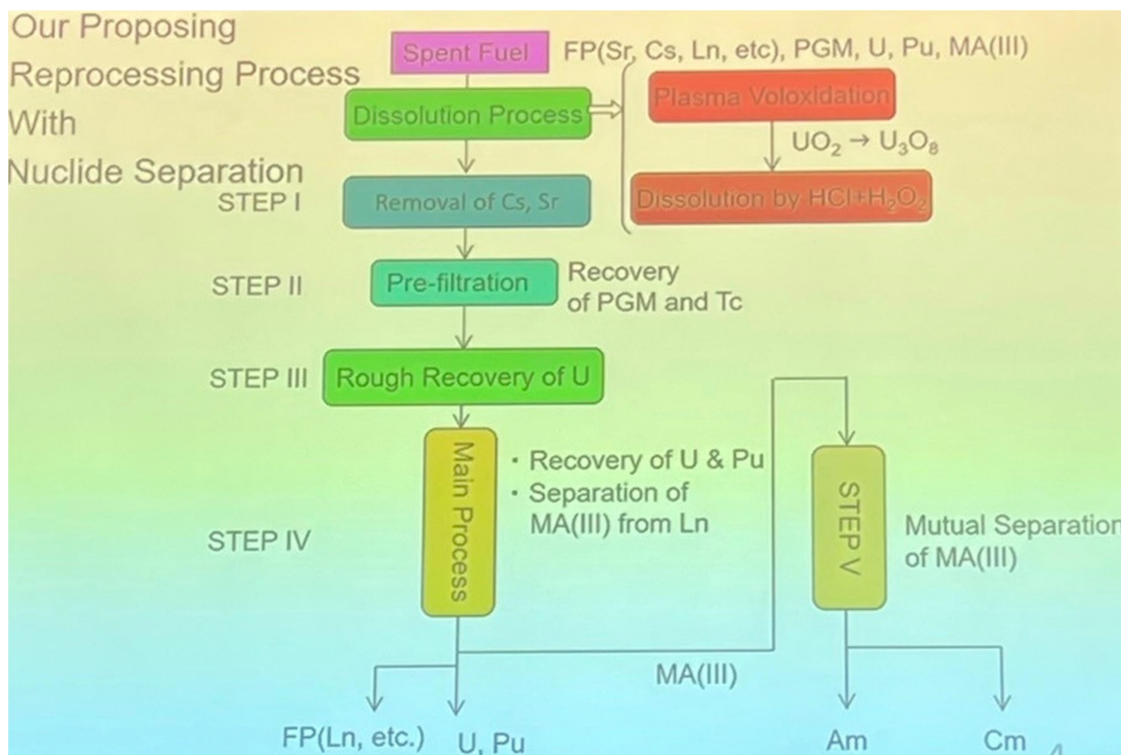


圖 16 用過核子燃料經分解(Dissolution)後核種分離步驟

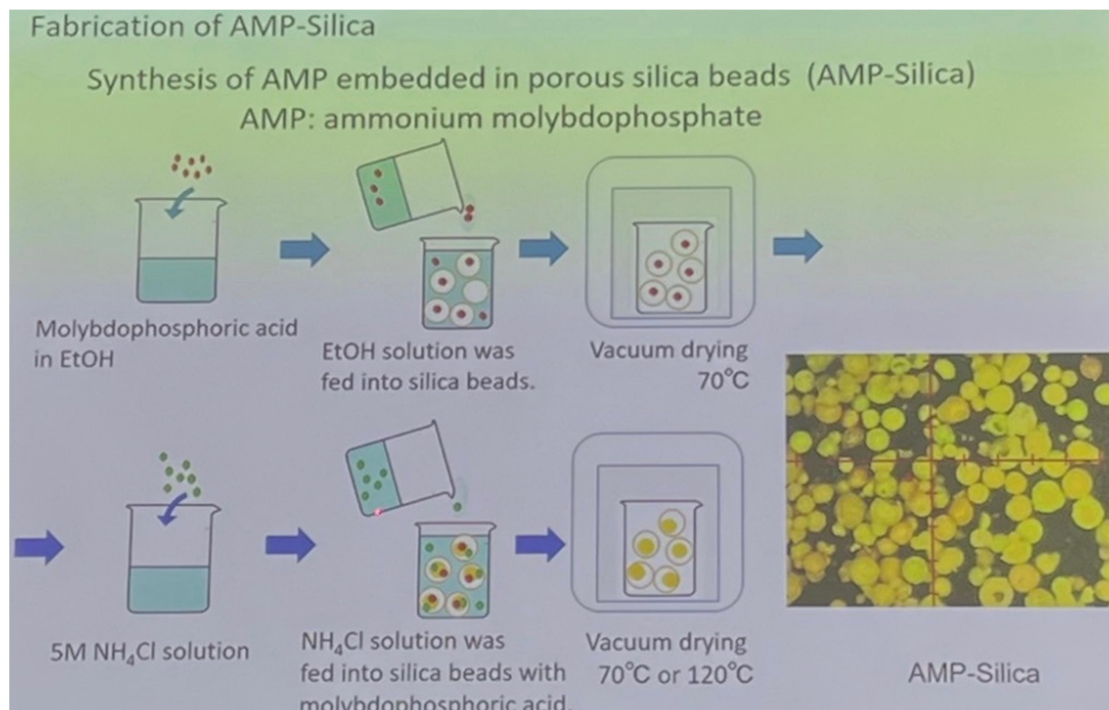


圖 17 磷鉬酸銨嵌入二氧化矽珠製成吸附劑

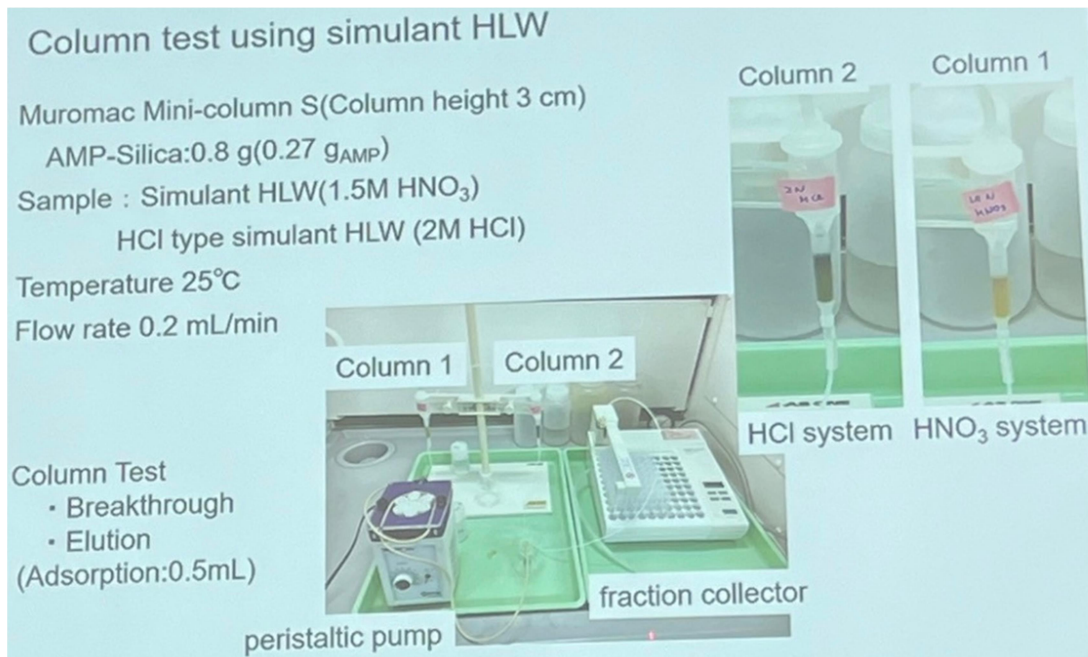


圖 18 AMP-SiO<sub>2</sub>管柱吸附實驗裝置

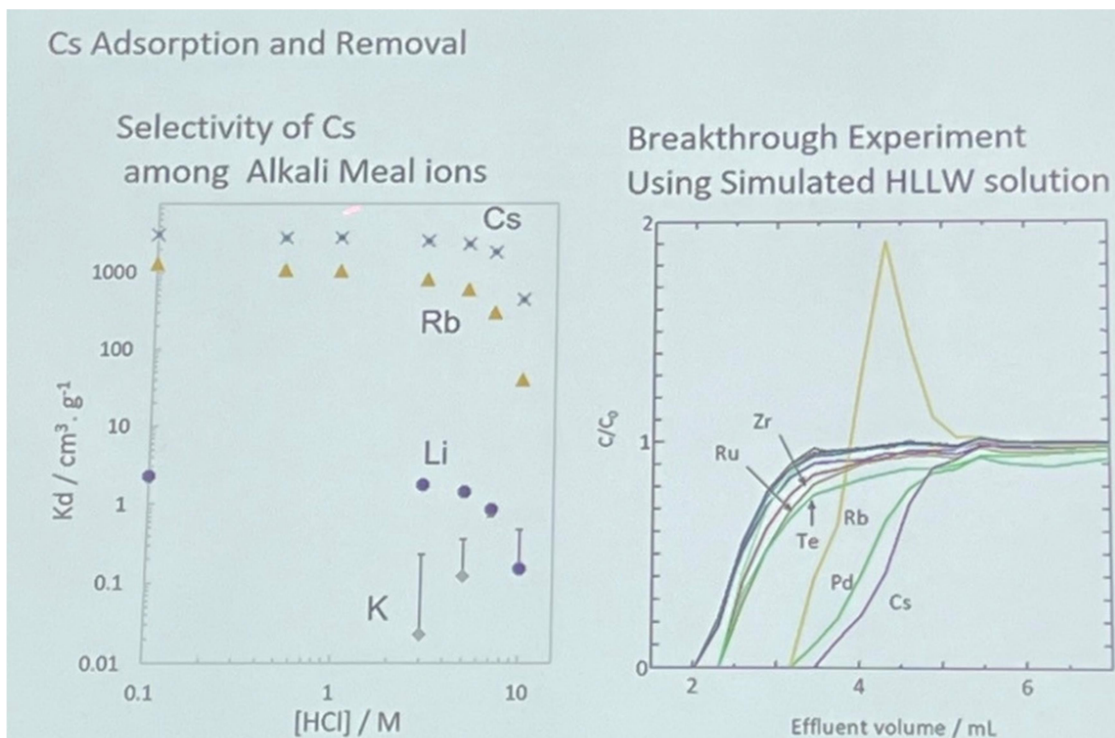


圖 19 AMP 吸附銫分配係數(K<sub>d</sub>)與對 Cs 高選擇性

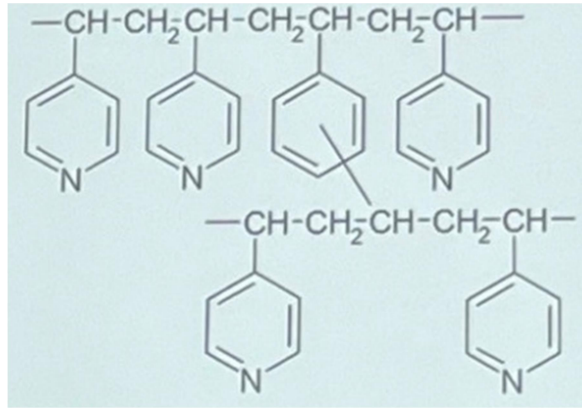


圖 20 吡啶樹脂化學結構圖

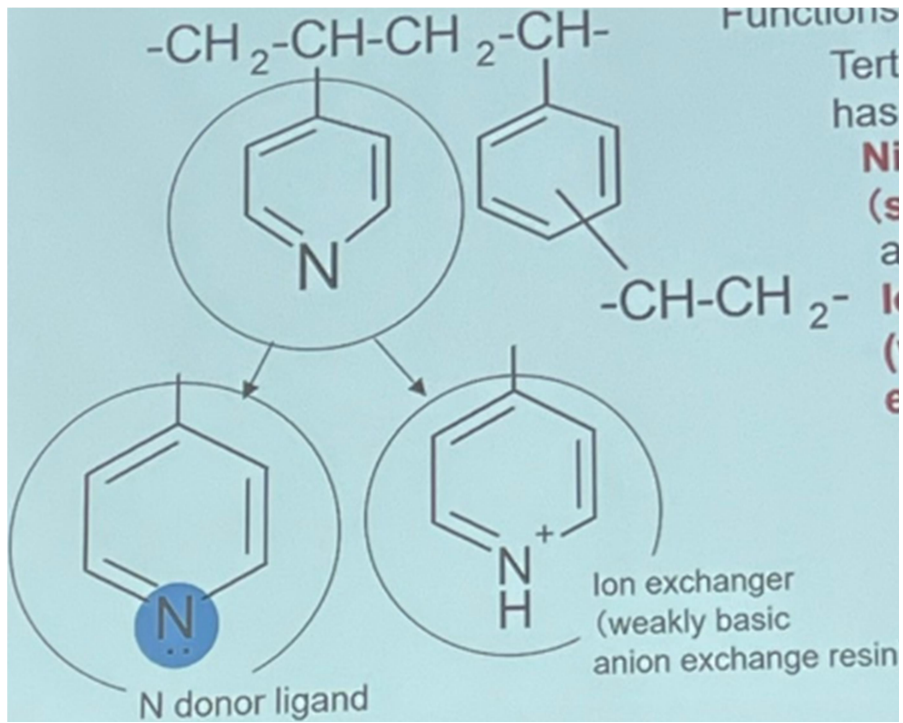


圖 21 吡啶樹脂化學結構-氮配位體

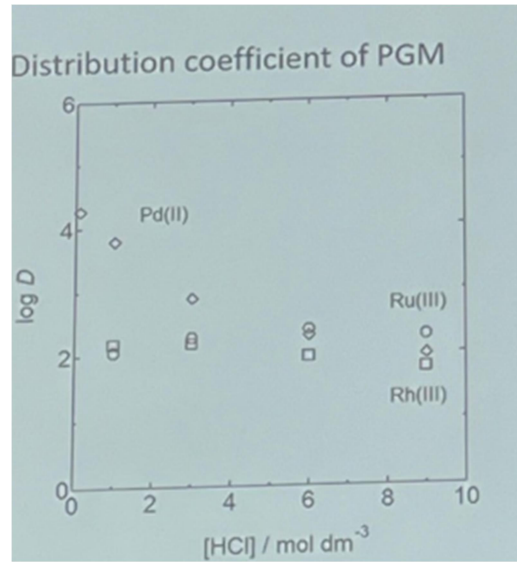


圖 22 鉑族金屬(PGM)的分配係數分佈

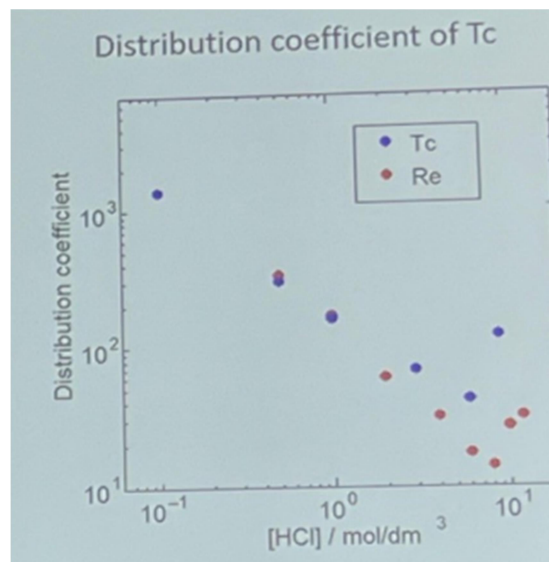


圖 23 Tc 的分配係數分佈

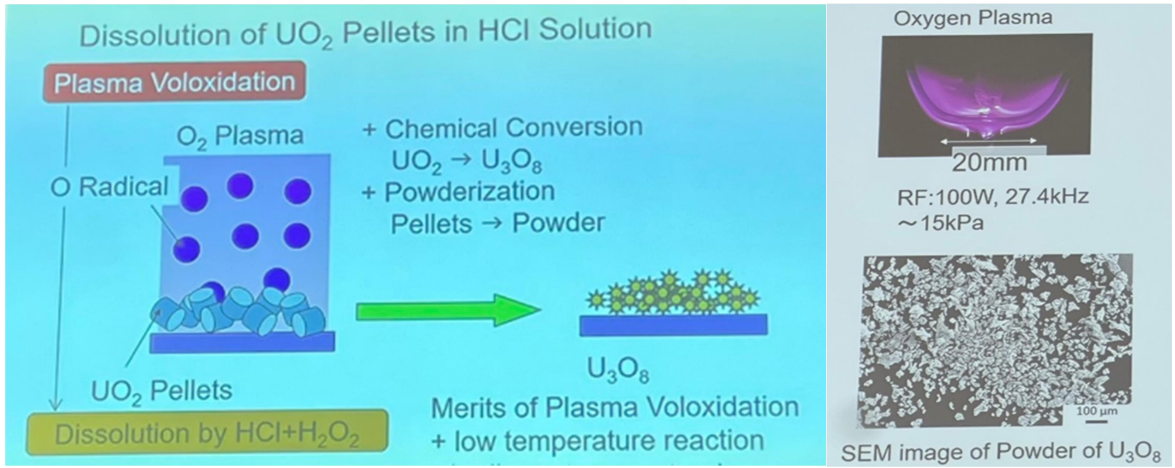


圖 24 鈾的粗略回收方法

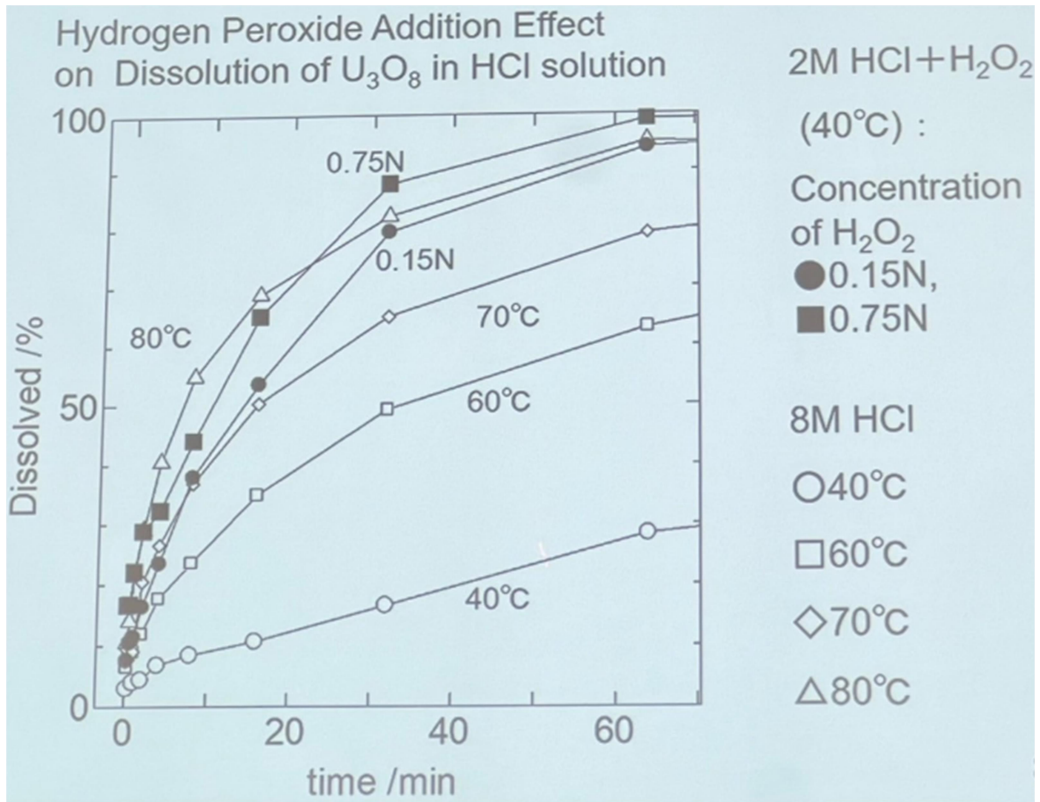


圖 25 加  $H_2O_2$  後  $U_3O_8$  的溶解效率隨溫度升高

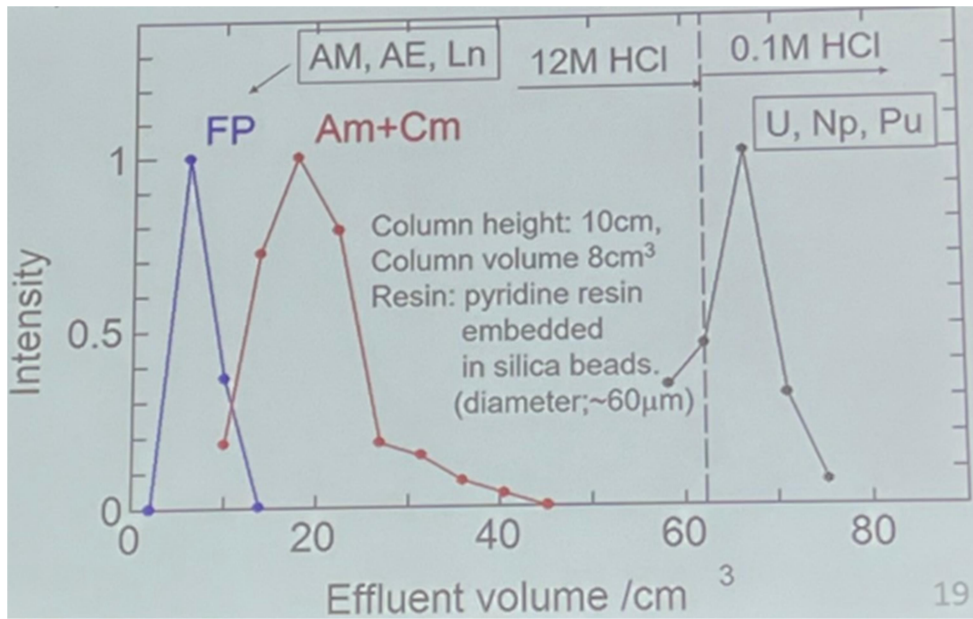


圖 26 鈾與鈾的分離結果

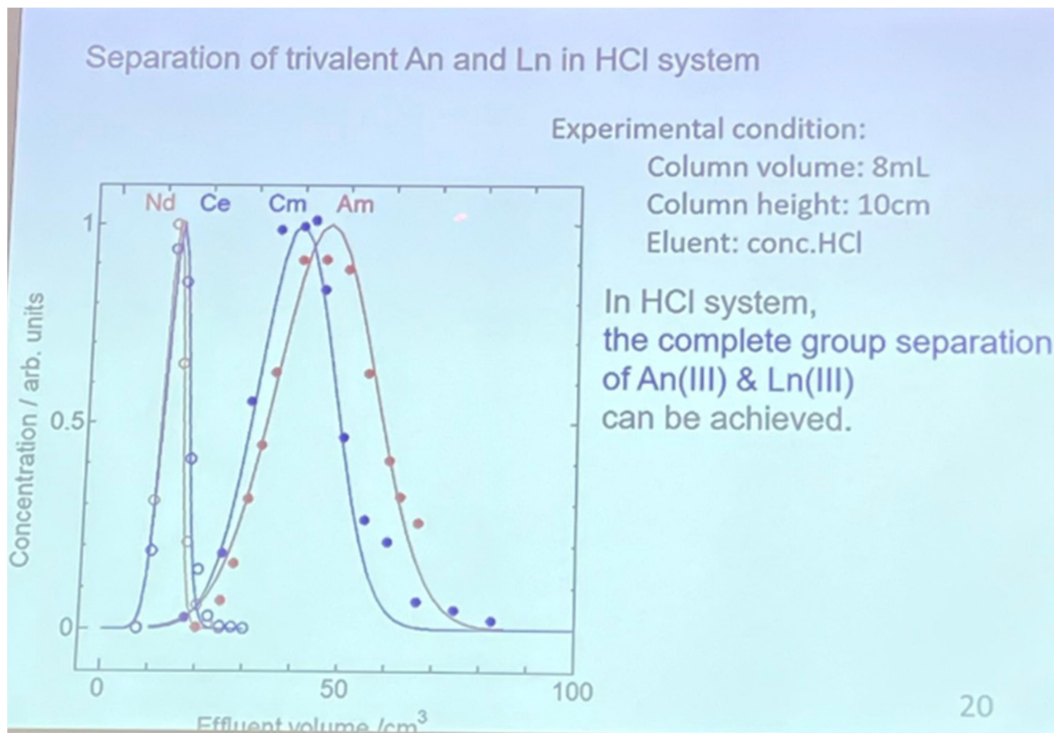


圖 27 以濃 HCl 將 Ln 進行分離

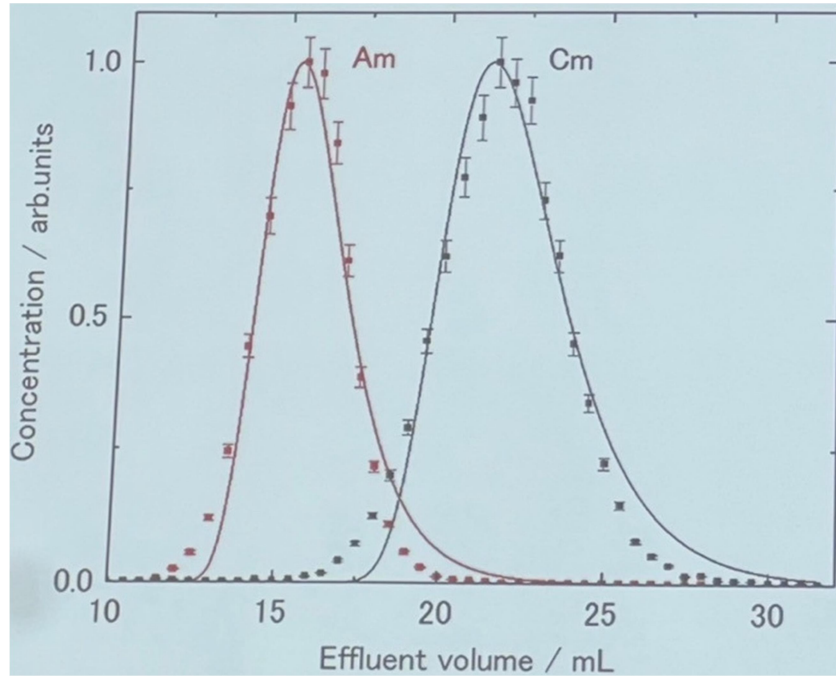


圖 28 Am 與 Cm 的分離

## (二)基於二維奈米通道的放射性核種分離研究

隨著核能技術的發展，核燃料的回收利用與放射性廢料的處理問題逐漸成為環保和能源領域的重要挑戰，在傳統的放射性廢水處理技術中，常見的分離方法包括化學沉澱、離子交換以及膜過濾，然而，這些技術在處理高濃度放射性廢水時，面臨著成本高、處理效率低及設備耐用性差等問題，特別是在處理含有多種重金屬和放射性元素的廢水時，現有技術往往無法滿足高效、低能耗及環保的要求，基於此背景，二維奈米通道材料(如石墨烯及其衍生物)(圖 29)作為一種新型的分離膜材料，逐漸成為研究的熱點，由於其在奈米尺度下的結構特性，這些材料具有極高的選擇性和透過性，且能夠在極端環境下保持穩定性，這使得它們在放射性核種分離領域具有廣泛的應用前景。

石墨烯與氧化石墨烯膜的新型膜材料的強韌性和高表面積使得它們不僅能在高酸和高鹼環境中穩定運行，還能夠應對高放射性廢水中的腐蝕性物質。石墨烯是一種由碳原子組成的單層原子厚度的二維材料，具有非常高的比表面積( $2,630\text{m}^2/\text{g}$ )、優異的機械性能以及出色的導電性，這些特性使石墨烯成為膜材料中極具潛力的候選者，尤其在液體過濾和分離技術中，石墨烯膜的孔徑大小可以控制在奈米級範圍，這使其能夠精確篩選出分子或離子。而氧化石墨烯(GO, graphene oxide)是石墨烯的一種氧化形式，通常含有大量的羧基(-COOH)和羥基(-OH)官能團，這些官能團使 GO 具有良好的水溶性，並能與各種金屬離子和放射性核種進行強的靜電相互作用，在放射性核種的分離中，氧化石墨烯膜能夠利用其表面化學性質進行選擇性分離(圖 30)。石墨烯基複合膜則是將石墨烯與其他材料(如聚合物、金屬氧化物、碳奈米管等)結合製成的複合膜，旨在提升膜的機械強度、熱穩定性和過濾性能，這些複合膜可以進一步提高膜的耐用性，使其在高溫、高壓或高放射性環境下仍能長時間穩定運行。石墨烯基奈米孔膜是利用石墨烯基材料製作的奈米孔結構，可以精確地控制孔徑大小，實現對不同粒徑和電荷的物質的選擇性過濾，例如，奈米孔可以設計成適合透過特定尺寸的離子或分子，從而提高分離效率，這些奈米孔的結構和性質，可以精確篩選出核種並有效地排除其他無關物質。

放射性核種分離機制是一種孔結構與選擇性過濾，石墨烯及其氧化衍生物膜結構特徵，其孔徑大小分布，對放射性核種的分離性能有著至關重要的影響，當膜的孔徑設計為接近放射性核種的離子半徑時，這些核種會受到靜電吸引作用，有助於提高分離效率，例如，鈾和鈾離子的半徑與某些膜孔結構相近，這使得膜能夠在分離過程中選擇性地吸附和過濾這些放射性核種(圖 31)，加上靜電作用和吸附效應，氧化石墨烯



膜的表面帶有大量的羧基、羥基等極性官能團，這些官能團能與帶電的放射性離子發生靜電作用，進一步增強對這些離子的吸附和篩選作用，例如，鈾( $\text{UO}_2^{2+}$ )和鈾( $\text{Pu}^{4+}$ )等帶正電的離子，會被氧化石墨烯表面的負電荷強烈吸附，從而實現高效分離。這些膜的親水性質也有助於它們在高酸性或鹼性環境中的穩定性，並且能夠有效避免膜的堵塞現象，保持長期的運行穩定性。

鈾與鈾的分離實驗對比了氧化石墨烯膜與傳統的聚合物膜在鈾和鈾分離過程中的效果，結果顯示，氧化石墨烯膜在高酸環境中對鈾( $\text{UO}_2^{2+}$ )和鈾( $\text{Pu}^{4+}$ )離子的選擇性分離效果顯著優於傳統膜材料，氧化石墨烯膜能夠在為 3 mol/L  $\text{HNO}_3$ 的條件下，達到鈾和鈾離子的分離因子達 1,000 以上，顯示出非常高的分離效率。在高酸廢水中的分離測試：在高酸廢水的分離測試中，氧化石墨烯膜表現出極為穩定的性能，能夠在強酸性條件下長時間運行而不失效，這是由於氧化石墨烯的結構能夠有效抵抗酸性腐蝕，並且表面官能團能夠維持良好的分離效果。除了鈾和鈾，氧化石墨烯膜還成功地分離了其他放射性核種，如錒系元素，這些元素通常對常規膜材料具有較高的滲透性，研究發現，氧化石墨烯膜對這些元素的分離效率可達 90%以上，顯示其具有強大的篩分能力。

總而言之，結合酸度和 GO 氧化程度可進行層間距調整，層間距可在 11.4-15.5 Å 範圍內調整，調整至 13.9Å，使  $\text{UO}_2^{2+}$ 可與其他離子完全阻擋和分離(圖 32、圖 33、圖 34)，透過化學氧化和 GO 篩選並藉助溶劑萃取，開發了 An 與 Ln 分離方法，透過此方法，在高酸性條件下實現了錒系元素與錒系元素(U、Np、Pu、Am)的基團分離，分離因子超過 100(圖 35、圖 36)，此種鈾、鈾、鈾的核種分離技術將有助於本中心對該核種進行環境監測之技術開發。

儘管基於二維奈米通道的放射性核種分離技術展示了良好的成效，但仍然面臨一些挑戰，包括石墨烯及其衍生材料的製備成本仍然較高，這限制了其在商業化應用中的普及，因此，未來需要開發更加低成本的製備方法，並進一步提高材料的產量和穩定性，儘管氧化石墨烯膜在高酸環境中表現出良好的穩定性，但在長期的運行中，如何保持膜的高效性並避免膜材料的結構衰退仍然是需要解決的問題，雖然目前的實驗結果表明基於石墨烯的分離膜具有優異的性能，但如何將這些技術應用於大規模的工業化生產，仍然需要進一步的技術突破和工程優化。

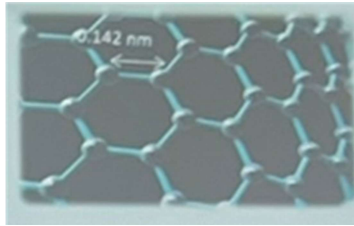


圖 29 二維奈米通道材料

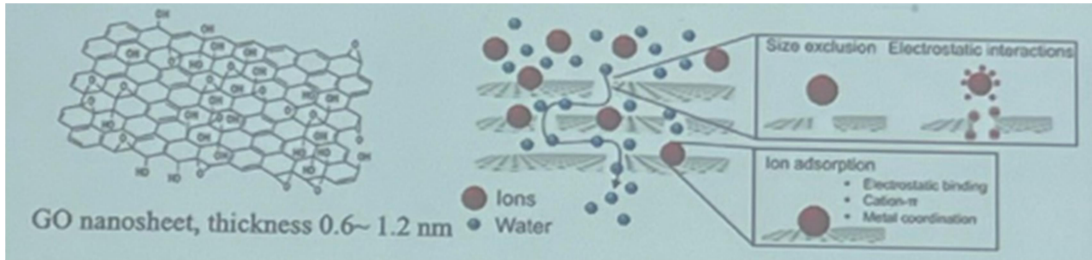


圖 30 氧化石墨烯具水溶性與放射性核種進行靜電作用

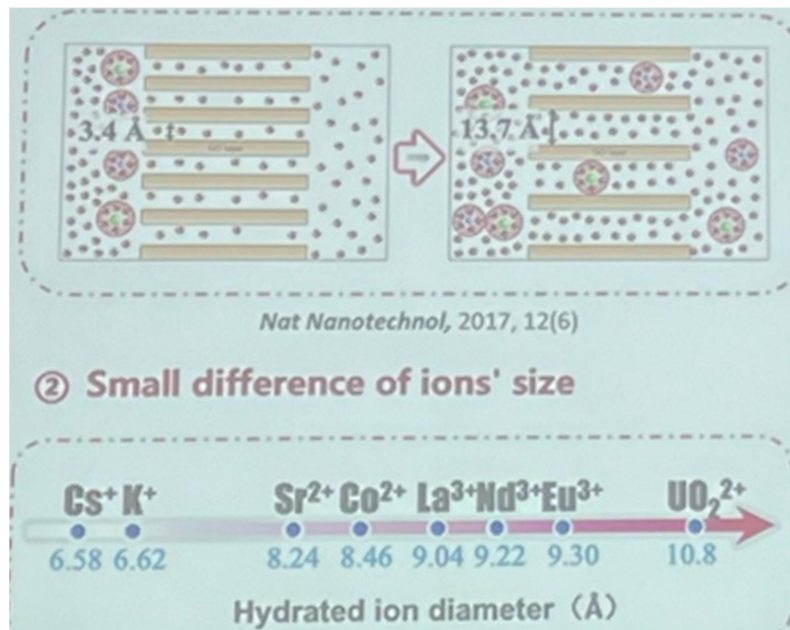


圖 31 膜的孔徑接近放射性核種離子半徑受靜電作用

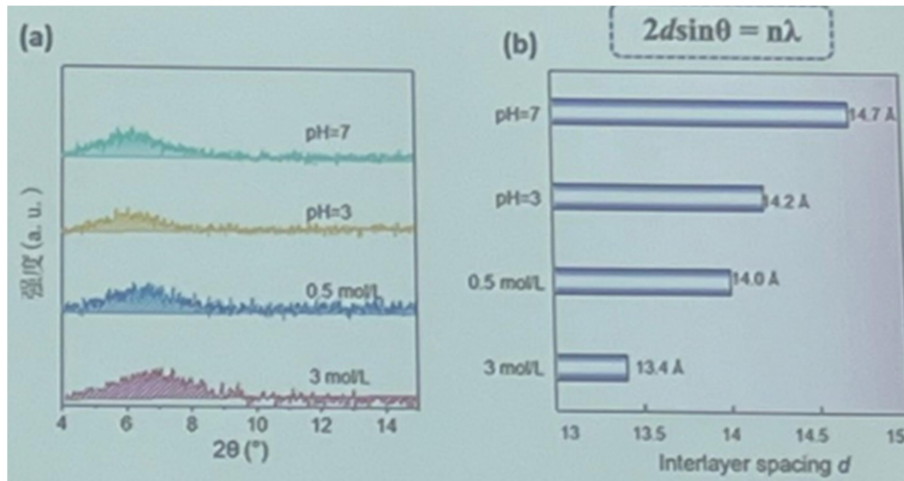


圖 32 酸性程度對 GO 間距的影響

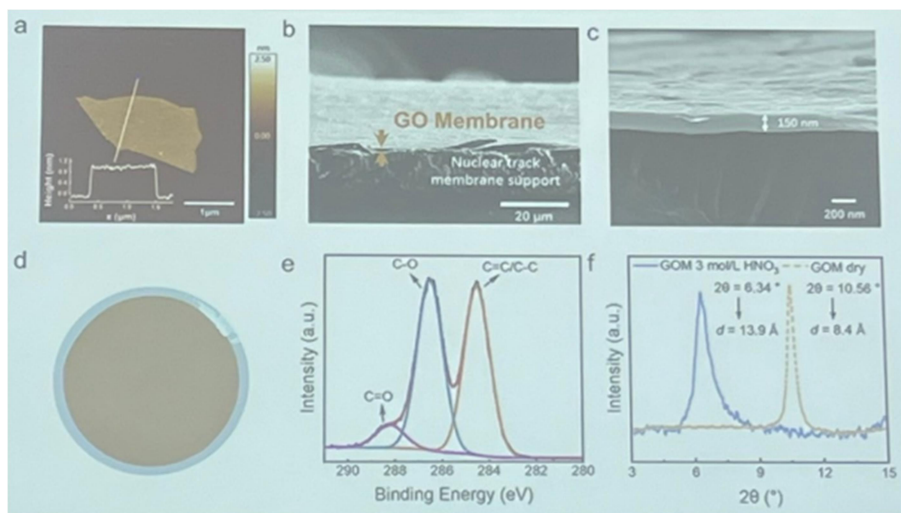


圖 33 層間距調整至 13.9Å 使  $\text{UO}_2^{2+}$  分離

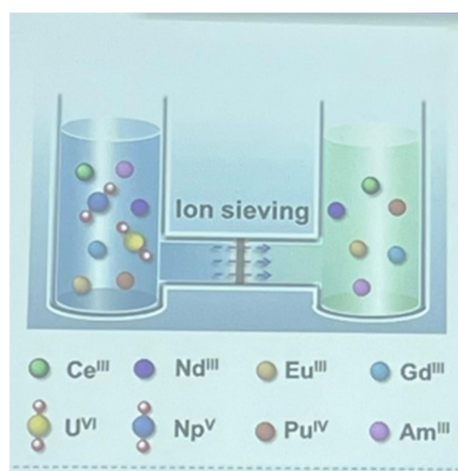


圖 34  $\text{UO}_2^{2+}$  可被完全阻擋

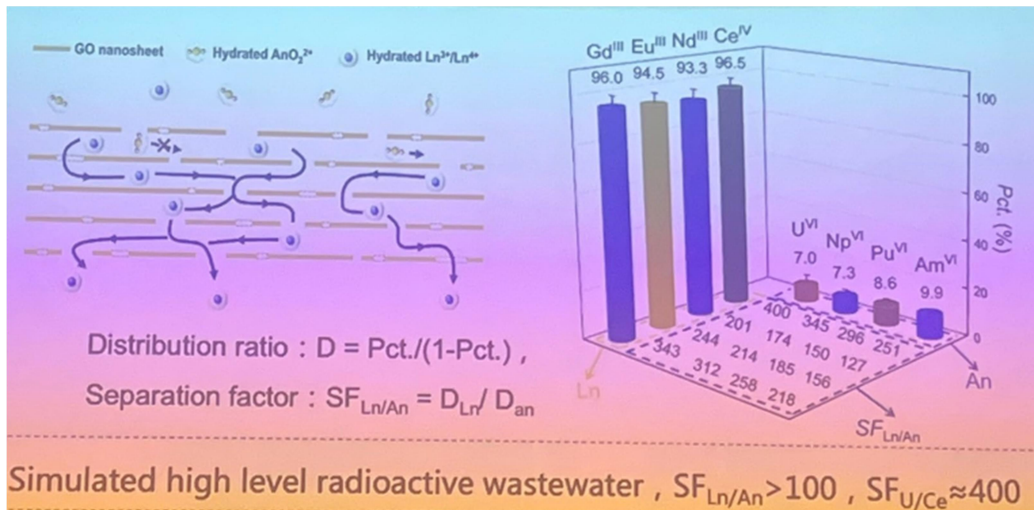


圖 35 化學氧化搭配 GO 篩選之 An 與 Ln 分離方法

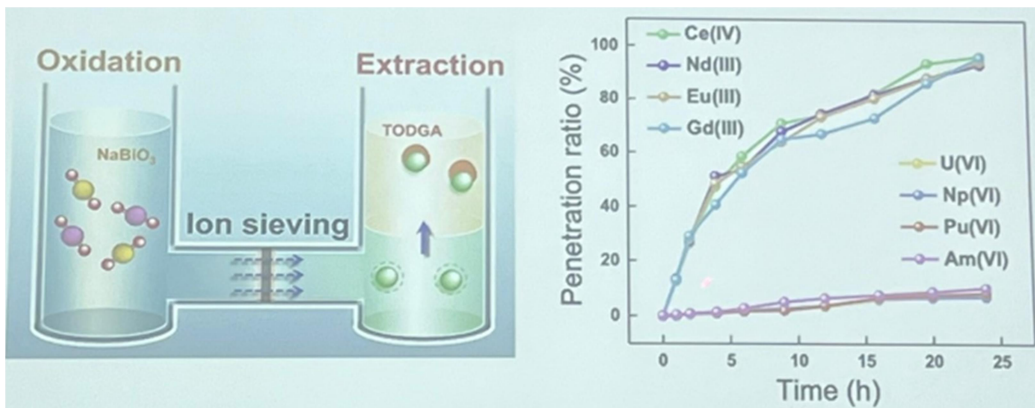


圖 36 鐳系元素與錒系元素基團分離

### (三)透過氧化態控制超高效率分離銩和鑷系元素

銩(Americium, 化學符號 Am)是周期表中的第 95 號元素, 屬於超鈾元素, 其原子量在 238 以上, 銩的主要同位素包括 Am-241 和 Am-243, 其中 Am-241 具有較高的放射性和相對較短的半衰期(約 430 年), 是目前核能廢料處理中最為關注的同位素之一。鑷系元素(Lanthanides, Ln)則是指元素周期表中位於鑷(La)至鑷(Lu)之間的 15 個元素, 這些元素廣泛存在於核廢料中, 且大部分具有類似的化學性質, 這使得它們在廢料處理過程中的分離變得特別困難。在核能的發電和核武器的應用過程中, 大量含有銩和鑷系元素的放射性廢料被產生, 這些元素的共存不僅增加了廢料處理的複雜度, 也提高了儲存和處理過程中對環境和人類健康的風險, 因此, 研究高效的分離方法不僅對於安全處理核廢料至關重要, 還有助於資源回收和環境保護。銩和鑷系元素在化學性質上具有顯著的相似性, 特別是在它們的氧化態為+3 時, 這些元素的離子半徑相似, 並且在強酸環境下的化學行為幾乎相同, 這使得傳統的溶劑萃取、離子交換等分離技術無法有效區分它們, 因此, 對這些元素進行分離處理, 需要創新且高效的方法, 特別是能夠針對氧化態的控制技術。鑷系元素與銩之間的分離主要依賴於它們在不同氧化態下的化學特性差異, 鑷系元素通常存在於+3 氧化態下, 而銩則可以在+3、+4、+5 和+6 等多種氧化態中存在(圖 37), 這種氧化態的變化對分離過程有著至關重要的影響, 並且氧化態的改變可以顯著影響它們的溶解度、配位能力和萃取行為。

採用創新的氧化態控制的方法來實現銩與鑷系元素的高效分離, 使用強氧化劑(例如鉍酸鈉  $\text{NaBiO}_3$ )和其他氧化劑(如  $\text{Ag(II)} / \text{S}_2\text{O}_8^{2-}$ )來將 Am(III)氧化為更高價態(如 Am(V) 和 Am(VI))(圖 38), 這一過程使得 Am 的化學性質發生變化, 從而能夠與鑷系元素進行有效的分離。在這些氧化劑的幫助下, 發現 Am(III)能夠在短時間內被氧化為 Am(V), 並且該氧化態的 Am(V)能夠與鑷系元素在有機溶劑中形成穩定的配合物, 在此過程中, 使用了 TODGA(N,N,N'-三乙基三辛基胺)作為萃取配體(ligand), 並選擇正十二烷作為溶劑, 這樣的配體和溶劑組合能夠提高 Am(V)在有機相中的穩定性(圖 39), 並有效實現其分離。這些氧化劑能夠在常溫下實現高效的氧化反應, 並且在酸性條件下(1M 至 14M  $\text{HNO}_3$  的範圍)依然能夠保持其穩定性, 此研究還探索了氧化過程中反應的時間、氧化劑濃度、溶劑選擇等因素, 並對其進行了詳細的優化。

經過多次實驗, 成功實現了 Am(III)向 Am(V)的氧化, 並在有機溶劑中穩定地保持了 Am(V)的存在, 實驗結果顯示, 使用鉍酸鈉作為氧化劑可以在 15 分鐘內完成 Am(III)的氧化, 並且這一氧化過程對 Am 的分配具有顯著影響, 氧化態的變化使得 Am(V)在溶劑中具有更高的萃取效率, 從而能夠實現與鑷系元素的高效分離。分配比(SF 鑷系元

素(Ln)/Am)的測定結果顯示，Am 與鑷系元素(Ln)的分配比可以達到  $10^4$  以上，這表明氧化態控制方法具有極高的分離選擇性和效率，研究還發現，該分離方法能夠在 1M 至 14M 的  $\text{HNO}_3$  酸度範圍內穩定運行，並且分離過程持續時間可達 5 小時以上，顯示出其在實際應用中的穩定性和可操作性(圖 40)。

為了深入了解氧化過程中的分子機理，該研究還進行了量子力學與分子動力學模擬，這些模擬提供 Am(V)形成的詳細分子結構，並能幫助理解在不同配體(ligand)和氧化劑條件下，氧化態變化的具體過程，模擬結果顯示，在溶劑化環境中，配體和溶劑分子對 Am(V)的穩定性有著重要的影響(圖 41)，尤其是在高濃度酸性條件下，通過這些模擬，研究者能夠精確預測不同氧化劑和配體的效果，並對氧化過程的反應動力學進行了細緻分析，這些結果對未來在核廢料處理過程中的應用提供了理論支持。

實現了通過氧化態控制技術將 Am 與鑷系元素高效分離，並且成功在有機溶劑中穩定製備 Am(V)，實驗結果表明，該方法具有非常高的選擇性和分離效率，尤其是在氧化劑的選擇、溶劑的選擇及反應條件的優化方面，顯示出其在實際應用中的巨大潛力。這一研究成果為核廢料處理提供了新的技術路徑，並為資源回收、環境保護和放射性物質安全管理提供了重要參考，隨著研究的深入，這一方法有望應用於其他超鈾元素的分離，並對核能的可持續發展做出貢獻，此種鈾的核種分離技術將有助於本中心對該核種進行環境監測之技術開發。

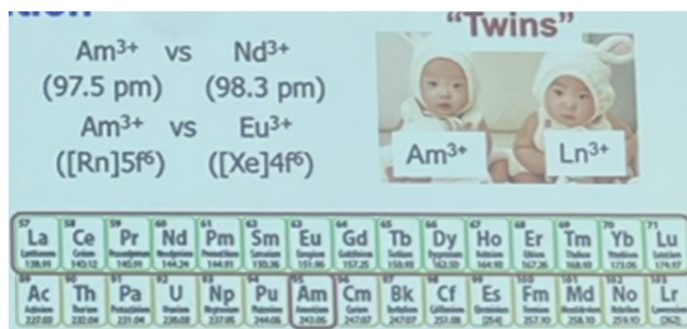


圖 37 鑷系元素與鈾的氧化態

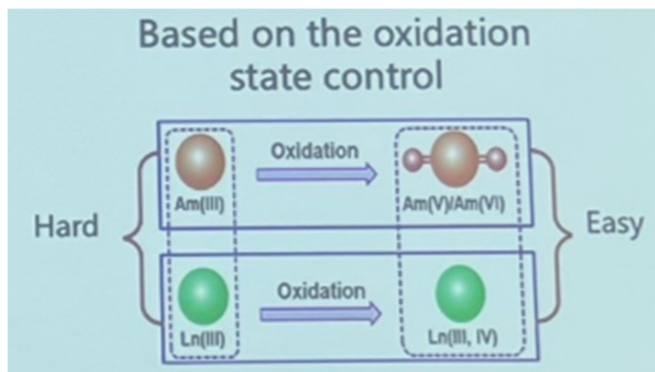


圖 38 分離使用的 Am 與 Ln 氧化態

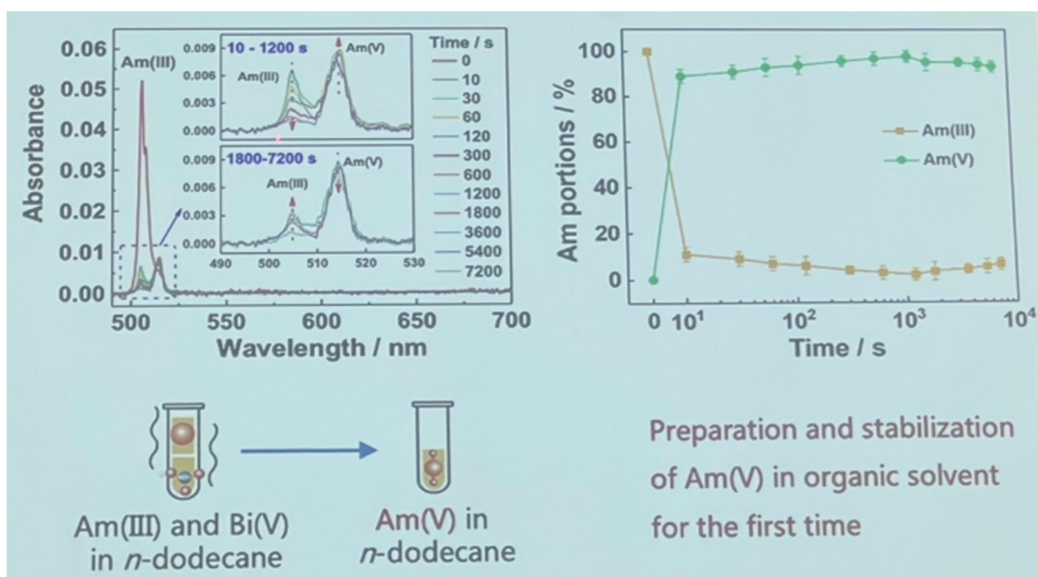


圖 39 Am(V)在有機相中的穩定性

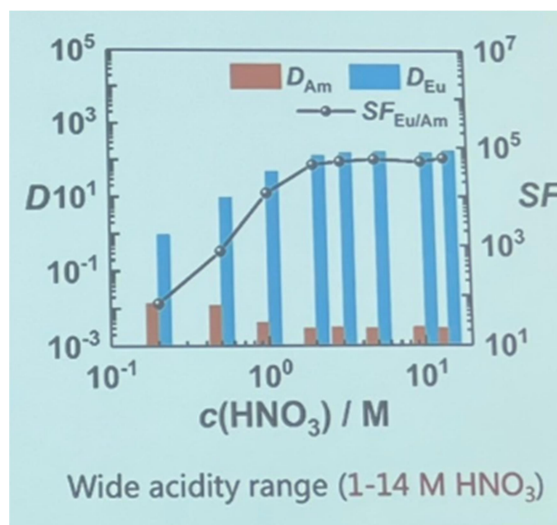


圖 40 鐳系元素(Ln)與 Am 的分配比(SF)測定結果

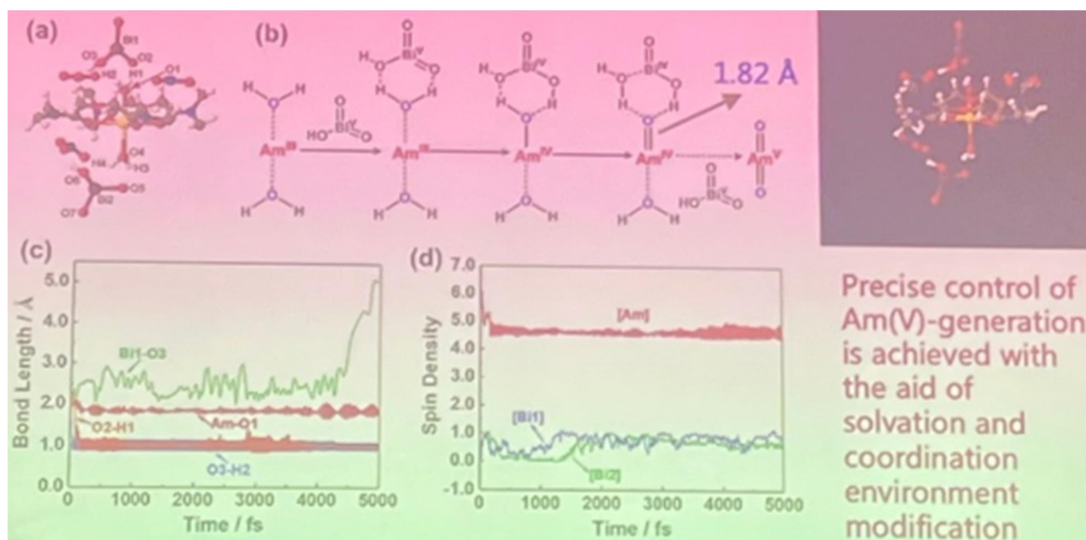


圖 41 模擬 Am(V)形成的詳細分子結構

## II. 特定萃取劑的性能研究

### (一)使用兩性離子聚合物進行鐳系元素分離

在核能燃料循環的高放射性廢液中，鐳系元素(Ln)和次錒系元素(MA, minor actinide)的分離是降低核廢料毒性(圖 42)和推動可持續核能利用的重要技術挑戰之一，Ln 的存在會干擾 MA 在蛻變(transmutation)過程中的核反應效率，且因 Ln 和 MA 的化學性質相近，分離技術需要具備極高的選擇性和穩定性。現有的三種分離技術，包括溶劑萃取法(圖 43)：需大量有機溶劑，容易引發環境污染和安全問題且分離過程複雜，適應性有限；樹脂分離法(圖 44)雖選擇性較高，但吸附容量受限，適用範圍窄、易受溶液化學性質和方法條件影響，操作靈活性差；溫控分離法(圖 45)，涉及熱敏性材料，簡化了洗脫和廢液處理流程，技術瓶頸主要集中在分離效率和選擇性控制，上述方法均有其限制。因此研究以熱敏性兩性離子聚合物為核心材料，通過創新設計表面修飾聚合物來實現三個材料特性，可高選擇性吸附鐳系元素(Ln)，以溫度可控制的吸附與脫附過程，無需額外化學試劑，減少廢液排放，並且基於可調控化學結構的分離技術開發，提升材料重複使用壽命。與傳統溶劑萃取法相比，本技術可完全避免有機溶劑，並顯著降低化學試劑消耗。與樹脂分離技術相比，聚合物吸附能力更強，選擇性更高，並具備良好的重複使用性能。此材料的吸附與分離機制是利用材料的熱敏性行為(圖 46、圖 47、圖 48)，UCST (Upper critical solution temperature) (約 50°C)是吸附過程的臨界溫度，當溫度超過 UCST，聚合物變得更親水，與鐳系元素(Ln)的靜電吸附增強，而降低溫度至 UCST 以下時，吸附的鐳系元素(Ln)離子解離，實現再生回收。



材料選用方面以聚磺丙基甜菜鹼甲基丙烯酸酯(PSBMA) (圖 49)和聚磺丙基二甲基丙烯酰胺丙基磺酸(PDMAPS)作為基材(圖 50)，二氧化矽微粒為基底，表面積  $300 \text{ m}^2/\text{g}$ ，孔徑  $10 \text{ nm}$ ，顆粒大小  $75 - 150 \text{ }\mu\text{m}$ ，使用原子轉移自由基聚合(ATRP, Atom-transfer radical-polymerization)技術，將聚合物接枝於二氧化矽微粒上，通過氨基硅烷化反應將陽離子功能團引入聚合物，增強與鑰系元素(Ln)的靜電相互作用。並以紅外光譜(IR)用於確認結構中的功能基團(C=O、S=O)等(圖 51)，以及熱重分析(TG-DTA)評估聚合物的熱穩定性及相變行為(圖 52)，最後以接觸角測試檢測溫度變化下表面親疏水性的變化。

吸附實驗方面，將  $0.01 \text{ ppm}$  鑰系元素(Ln)(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> 溶液加入裝有聚合物的反應容器，調節溫度至  $60^\circ\text{C}$ ，攪拌  $30$  分鐘，測量剩餘溶液中鑰系元素(Ln) 濃度。接著進行脫附實驗，將吸附完成的樣品冷卻至  $10^\circ\text{C}$ ，測量脫附出溶液中的鑰系元素(Ln)含量，約  $70\%-85\%$  的吸附鑰系元素(Ln)被成功脫附，證實了 UCST 控制的吸附與脫附過程的高效率，重複  $10$  次吸附/脫附循環後，聚合物結構穩定，吸附能力僅下降約  $5\%$ 。在  $\text{pH} = 7$  條件下，聚合物對重鑰系元素 (Dy, Ho, Tm, Yb) 顯示高選擇性吸附能力，吸附率達到  $80\%-90\%$ (圖 53)，而輕鑰系元素(La, Ce, Pr)吸附率相對較低，選擇性較差，反映出與元素半徑相關的靜電作用差異。

兩性離子聚合物在鑰系元素分離中的顯著潛力，溫控反應特性和選擇性吸附性能使其適合在核燃料循環中的應用，尤其是次鈾系元素(MA)、鑰系元素(Ln)高選擇性分離需求，未來研究方向可朝優化聚合物結構以提高輕鑰系元素的分離能力，並開發更大規模的分離系統，提升工業應用的經濟性和實用性。

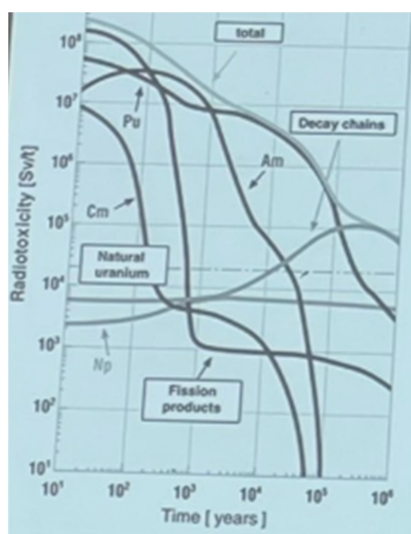


圖 42 鑰系元素(Ln)和次鈾系元素(MA)的核種毒性

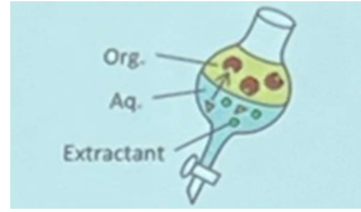


圖 43 溶劑萃取法示意圖

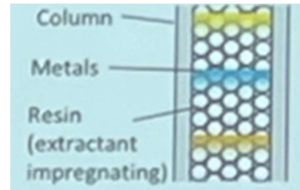


圖 44 樹脂分離法示意圖

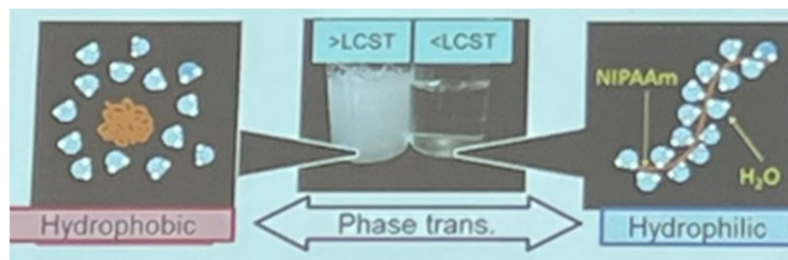


圖 45 溫控分離法示意圖

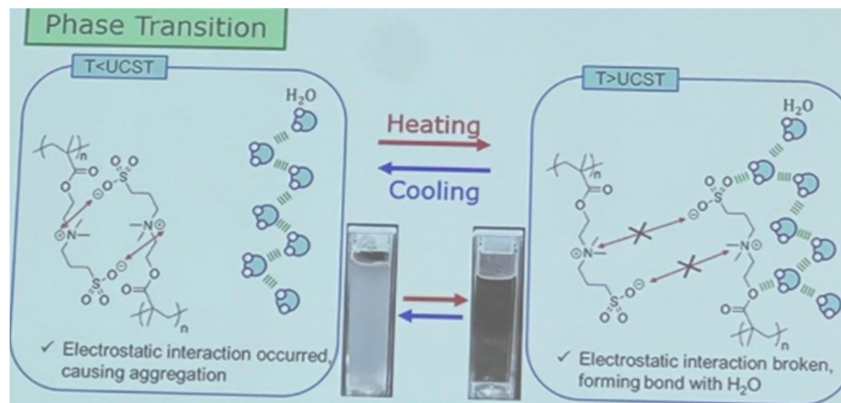


圖 46 UCST(Upper critical solution temperature)熱敏性行為

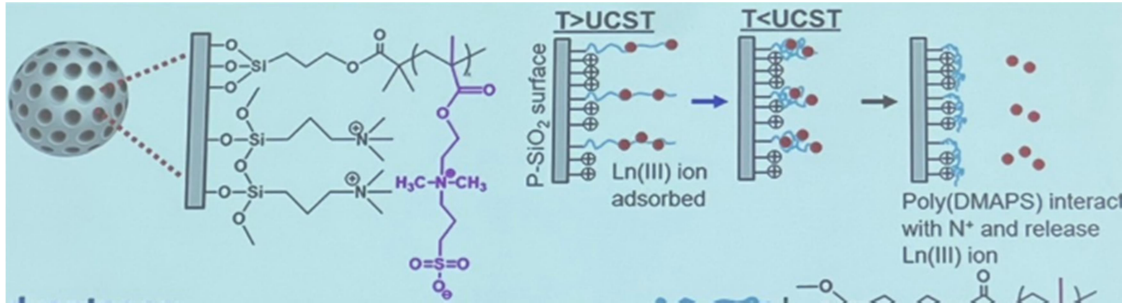


圖 47 DMAPS 接枝於二氧化矽微粒的熱敏行為

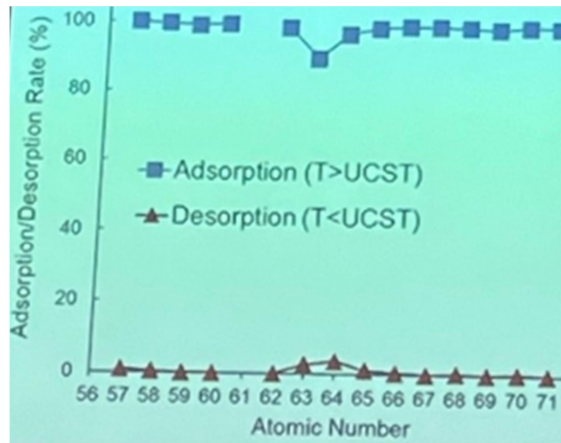


圖 48 不同元素吸附與脫附率

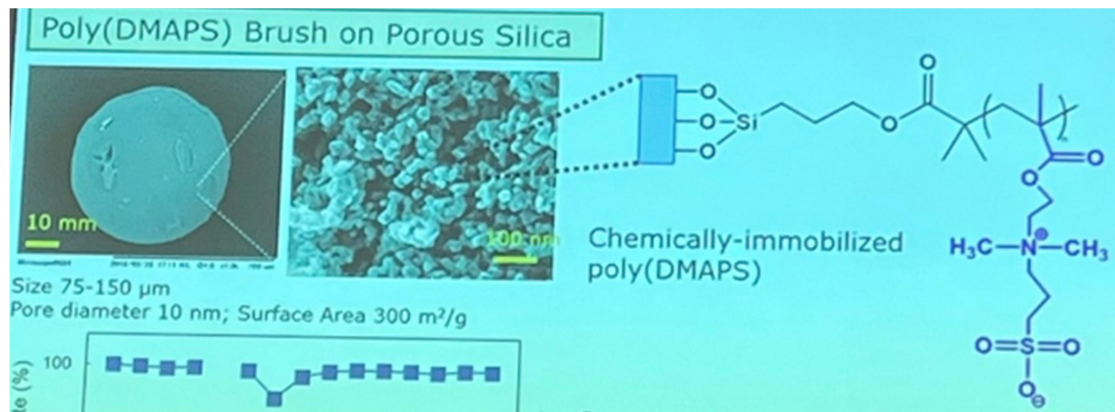


圖 49 聚磺丙基二甲基丙烯酰胺丙基磺酸(PDMAPS)結構

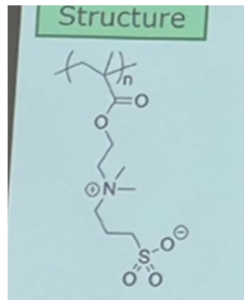


圖 50 聚磺丙基甜菜鹼甲基丙烯酸酯(PSBMA)結構

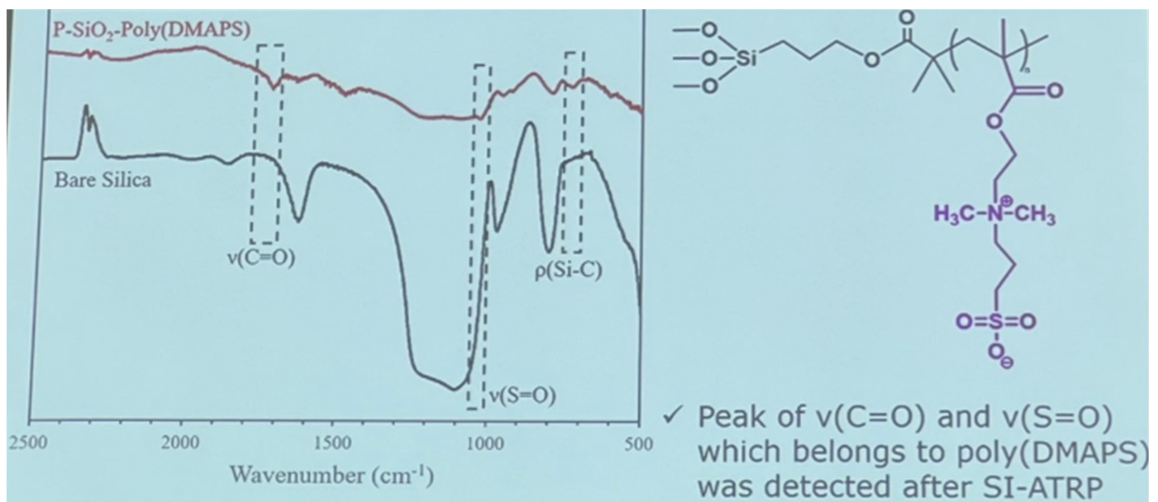


圖 51 紅外光譜(IR)分析結果

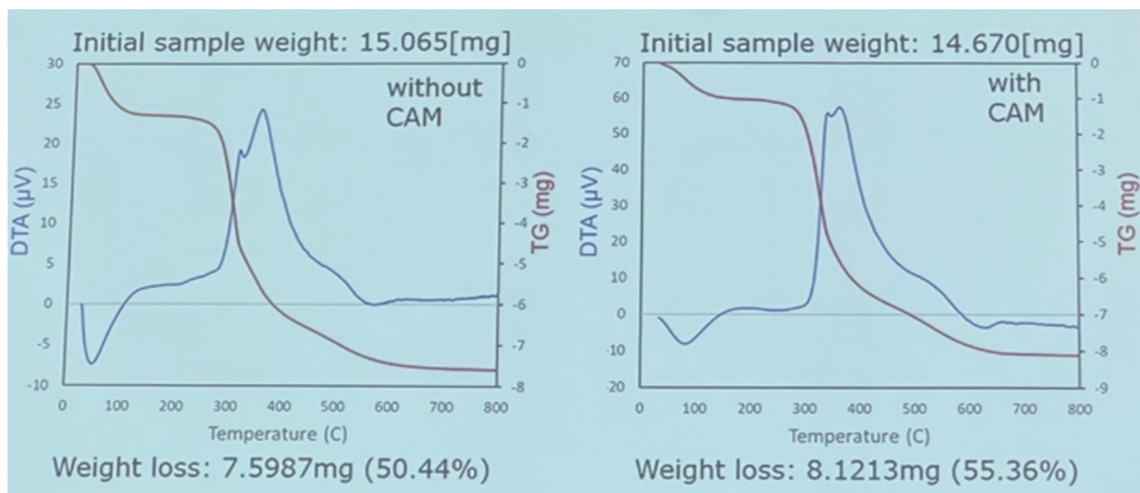


圖 52 熱重分析(TG-DTA)評估

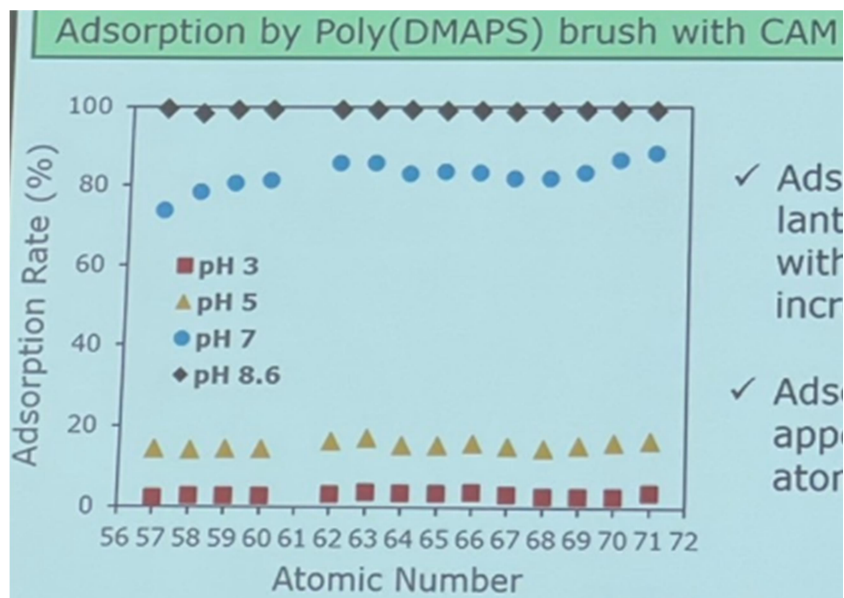


圖 53 DMAPS 對重鑷系元素之吸附能力

## (二) DGA 樹脂在鹽酸水溶液中 Am/Cm 的分離行為

為解決核廢料管理中的放射性長期存在之問題(圖 54)，分離鈾系元素(Am 和 Cm) 的高效技術備受重視，這些元素在核廢料蛻變(transmutation)(圖 55)中起著關鍵作用，分離它們能降低廢料的放射性和長期發熱量，然而，由於 Am 和 Cm 在化學性質(如氧化態、離子半徑)及溶液行為的高度相似性，使得分離工作充滿挑戰，因此，該研究利用N,N,N',N'-四辛基二甘醇醯胺(TODGA)提取劑，探討在不同濃度鹽酸條件下，對 Am 和 Cm 的分離效果，優化實驗參數以達成高效分離。

研究方法與實驗條件流程可參照圖 56，先做樹脂與設備準備：使用 TODGA 樹脂，其在鹽酸溶液中對鈾系元素具選擇性吸附性(圖 57)，樹脂管柱尺寸高 10 cm，內部體積 8.5 mL，洗脫液使用 0.1M 至 1.2M 不等濃度的 HCl 溶液，以流速 0.5 mL/min 進行洗脫，進樣體積 0.5 mL，洗脫出液：以 5 mL 為單位收集分段進行測量，使用感應耦合電漿質譜儀(ICP-MS)進行 Am 和 Cm 濃度測量，分析參數包括分離係數( $\alpha$ ) (圖 58)、解析度(R) (圖 59)、理論板數(N) (圖 60)，只有在適當解析度和理論板數時才能實現有效分離。

實驗結果觀察在 1M HCl 中，Am 的洗脫順序總是先於 Cm，表明 TODGA 樹脂對 Cm 具有較高的親和力，而洗脫曲線顯示 Am 峰值流出體積( $V_r$ )約為 15.33 mL，而 Cm 則約為 21.33 mL，呈現清晰分離(圖 61)，圖 62 與表 1 顯示不同 HCl 濃度對分離效果的影響，最佳條件為使用 1.0M HCl，其分離係數  $\alpha$  為 1.512，解析度 R 為 1.000，理論板數可見 Am 波峰 N 為 563，Cm 波峰 N 為 537，峰距顯著增加且重疊區域最小。

最佳條件確認(圖 63)在 1.0M HCl 中，TODGA 樹脂能達到最佳的分離效果，具有最高的解析度和管柱效果，HCl 濃度的提升會增加 TODGA 對 Cm 的吸附能力，但峰寬也隨之加大，過高的濃度(如 1.2M)會導致峰重疊增加，降低分離效率，分離因子與理論板數的關聯性：分離因子  $\alpha$  隨濃度上升而增加，但只有在適當解析度和理論塔板數支持下，才能實現有效分離，該研究結果可為實現更高效的鈾系元素分離提供技術支持，建議進一步探索其他洗脫條件(如溫度、流速)對分離效率的影響。在此研究中，考慮了 HCl 濃度和流速對於分離相似性核種的影響，採用相同的邏輯進行管柱法的環境監測時，亦需對這些參數進行確認，以達到最佳的分析效果，同樣研究方法，做為本中心後續開發分析方法的參考，且此種鈾的核種分離技術將有助於本中心對該核種進行環境監測之技術開發。

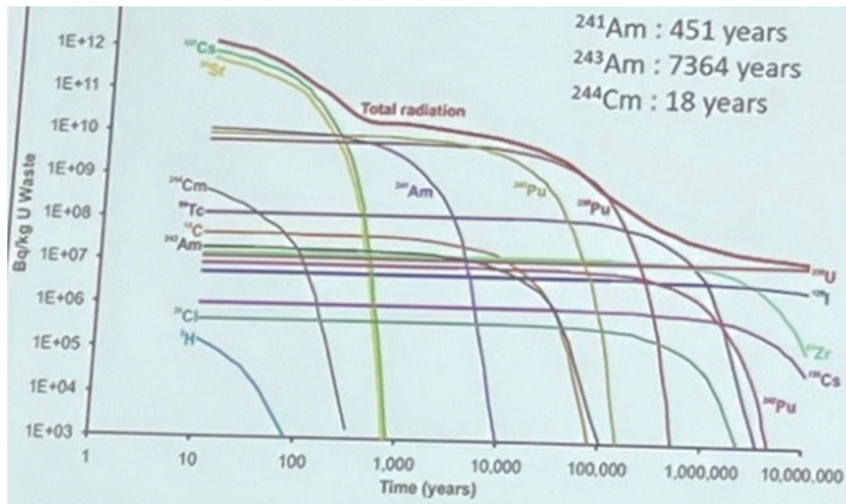


圖 54 核廢料放射性與時間關係圖

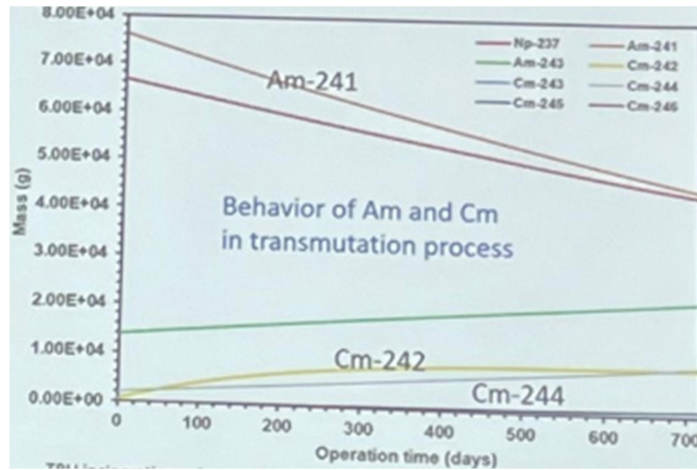


圖 55 錒系元素(Am 和 Cm)的蛻變

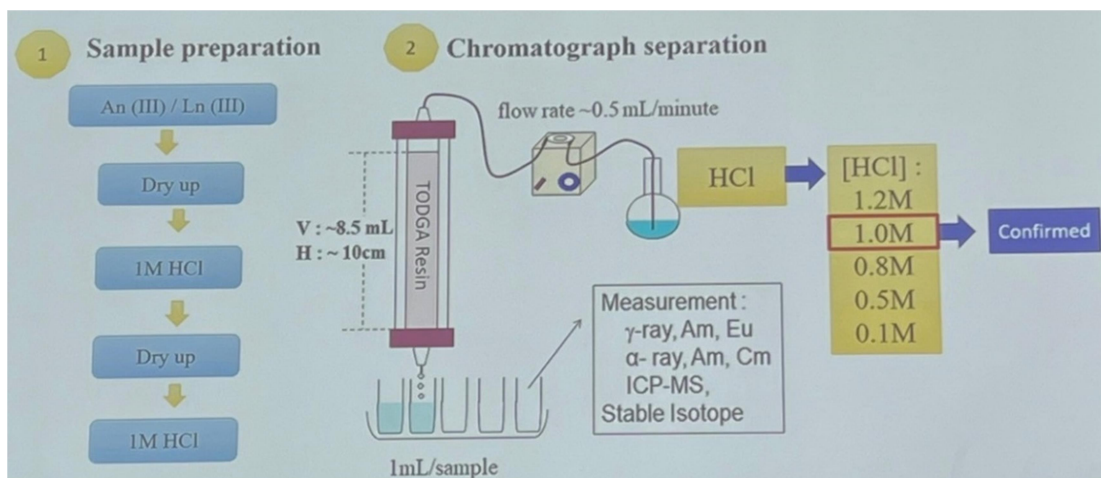


圖 56 Am 和 Cm 分離研究方法

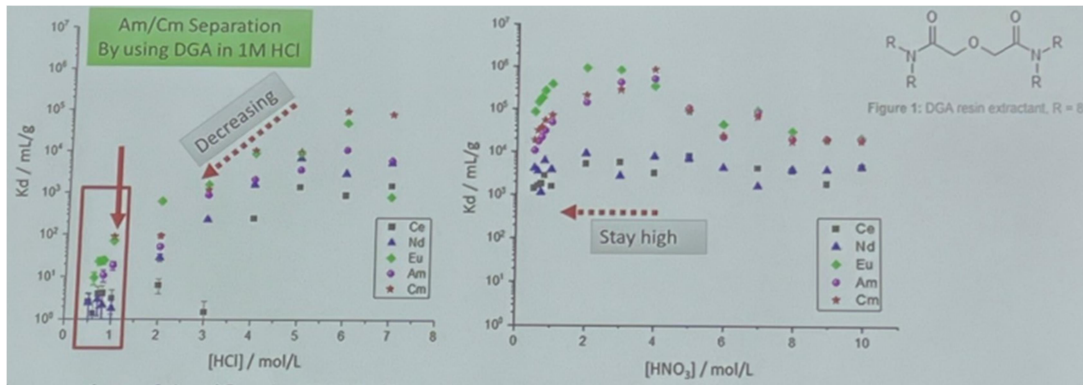


圖 57 鈾系元素不同酸溶液的選擇係數(Kd)

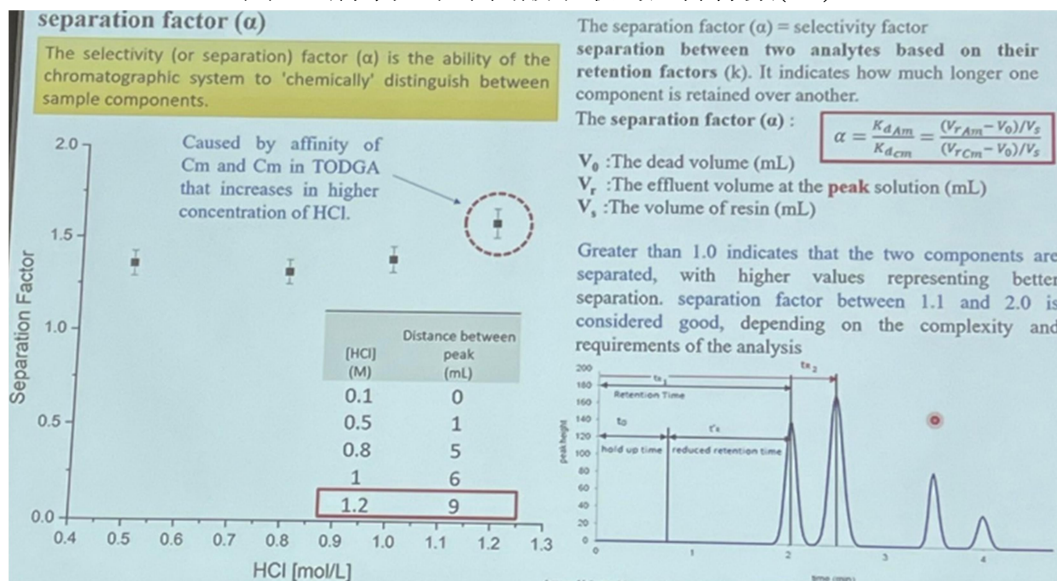


圖 58 分析參數：分離係數( $\alpha$ )

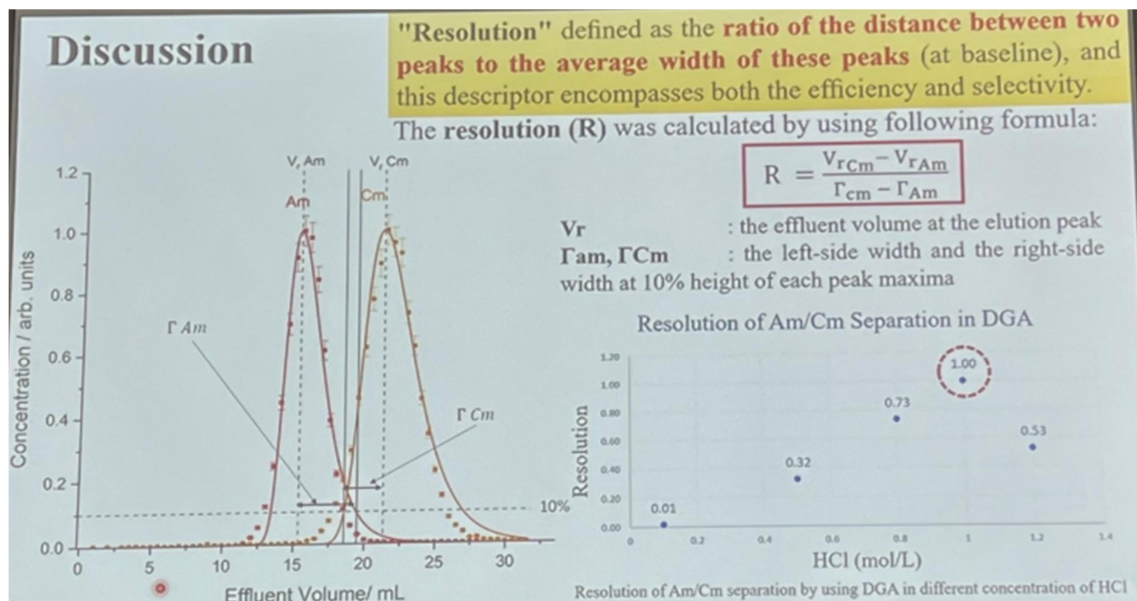


圖 59 分析參數：解析度(R)



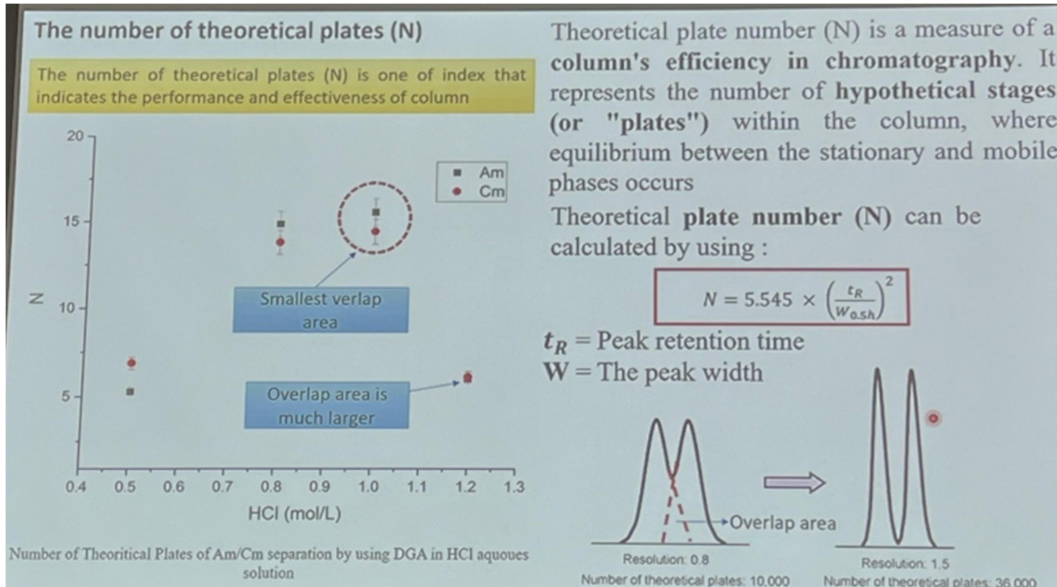


圖 60 分析參數：理論板數(N)

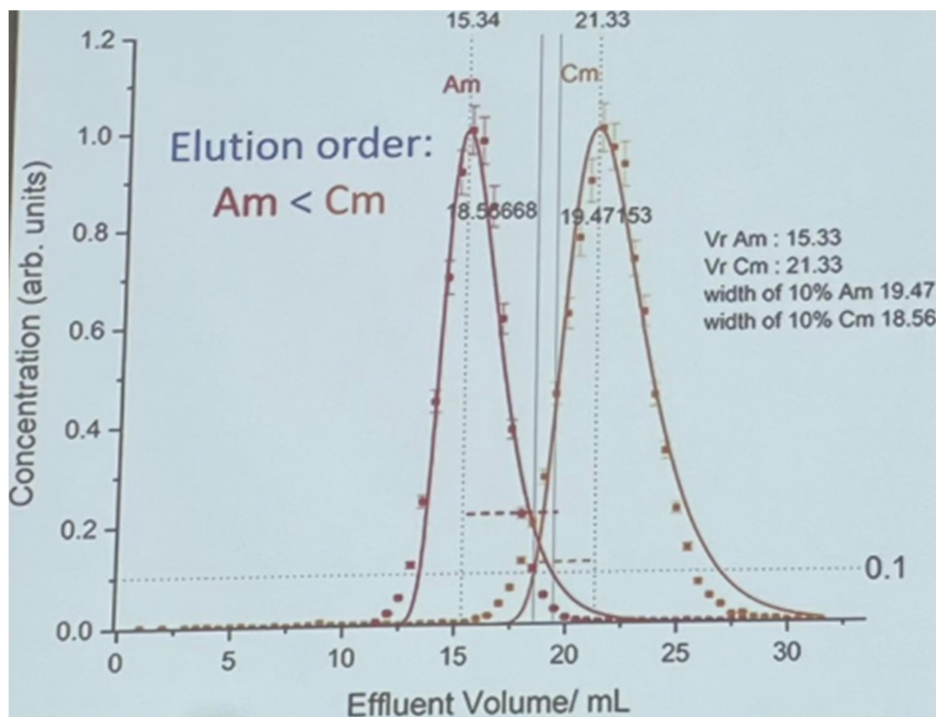


圖 61 Am 與 Cm 的洗脫曲線

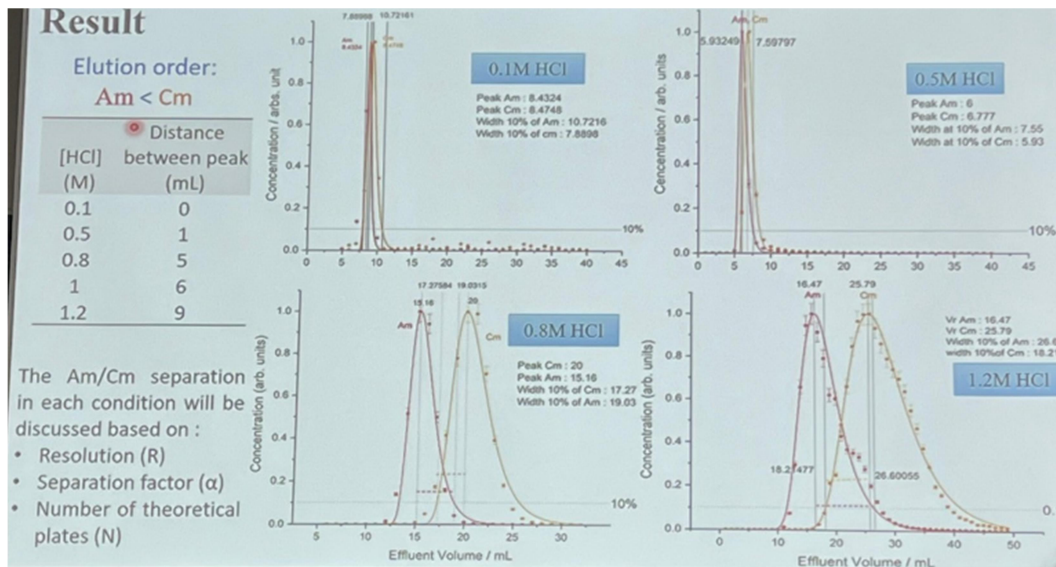


圖 62 不同 HCl 濃度對分離效果的影響

HCl 濃度 (M)	解析度 (R)	分離係數 ( $\alpha$ )	理論塔板數 (N)
0.1	0.015	1.008	極低
0.5	0.322	1.357	111-189
0.8	0.733	1.427	483-492
1.0	1.000	1.512	537-563
1.2	0.526	1.738	94-116

表 1 各濃度下的分離指標數值

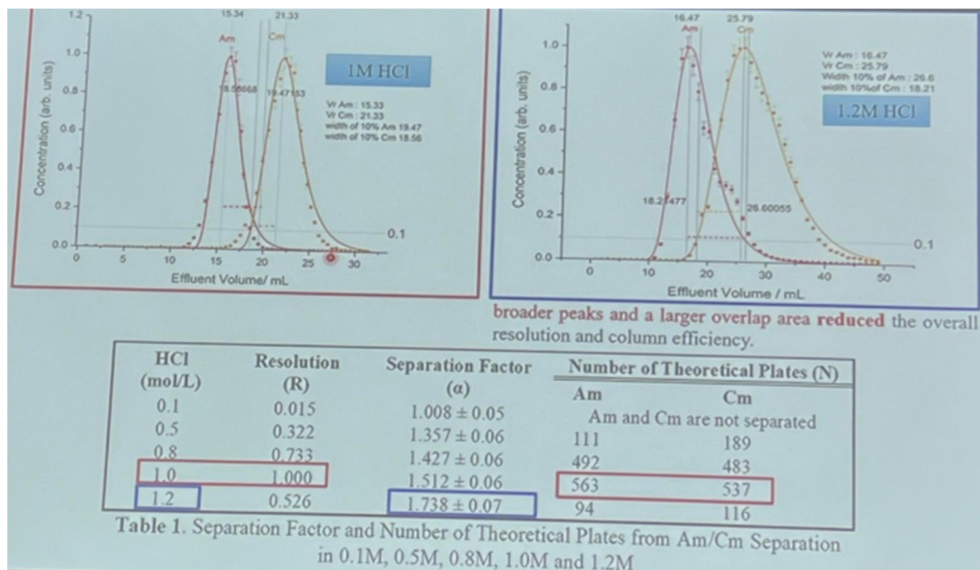


圖 63 最佳分離條件：HCl 濃度、分離係數( $\alpha$ )、解析度(R)、理論塔板數(N)

### (三)使用 TODGA 和 ADAAM 萃取劑及掩蔽劑 DTBA 分離次錒系元素

該研究由日本原子力開發研究機構(Japan Atomic Energy Agency, JAEA)和大阪大學的研究人員共同研究，聚焦於高放射性廢棄物(HLW)中錒系元素(An)與鏷系元素(Ln)分離技術，特別是對鋂(Am)和錒(Cm)的高效分離，這對核廢料管理及蛻變(transmutation)技術的應用具有重要意義，透過 TODGA、ADAAM 和 DTBA 這三種化學試劑進行分離實驗，以期為未來的高放射性廢物處理技術提供有效方案。以下是模擬高放射性廢棄物的組成(圖 64)，該研究中，模擬的高放射性廢棄物溶液包括了多種金屬元素，這些元素的濃度範圍涵蓋了核廢料中常見的成分，包括鏷系元素(Ln)元素的濃度為 100 mM，其中包括了 La(11.9 mM)、Ce(22.8 mM)、Pr(10.7 mM)、Nd(20.3 mM)，錒系元素的濃度：Am(2.34 mM)和 Cm(0.217 mM)，這些元素的濃度與實際廢料中的元素組成相近，確保了分離實驗的現實性和有效性。

以 TODGA(四辛基-二甘醇醯胺)萃取錒系元素(An)和鏷系元素(Ln) (圖 65)，使用有機相 0.1 M TODGA/正十二烷(C<sub>12</sub>H<sub>26</sub>)，及水相 3 M HNO<sub>3</sub>，模擬高放射性廢棄物溶液中具有代表性的酸度條件，鏷系元素(Ln)初始濃度：100 mM，包括 La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd 等元素。TODGA 顯示出對三價和四價錒系元素，例如 Am(III)、Pu(IV)的強選擇性，尤其是在高酸性條件下，Nd 的最大萃取量可達 100 mM，並且在 TODGA 濃度達 0.7 M 時無出現有機相與水相的分層現象，這對萃取效率有相當大的幫助，分配比(D 值)對於鏷系元素(Ln)和錒系元素(An)，分配比均顯示出高達 1000 的值(圖 66)，顯示出 TODGA 在高酸性條件下的強萃取能力，過批次萃取可達到超過 99%的鏷系元素(Ln)分離效率，最後以 TALSPEAK 概念法(圖 67)以 TODGA-DTBA 系統進行錒系元素(An)與鏷系元素(Ln)分離。使用的試劑包含掩蔽劑 0.3 M DTBA(二乙烯三胺-N,N',N''-三乙酸)，用以有效掩蔽鏷系元素(Ln)元素，提高分離效果，1M HNO<sub>3</sub>作為水相，pH 控制在 1.3 至 1.5 之間，這有助於提高萃取過程中的選擇性(圖 68)，有機相則以 0.7 M TODGA/正十二烷，這樣的溶劑系統在實驗中展示了強大的萃取能力，最後以 DTBA 進行掩蔽處理，選擇性地將鏷系元素(Ln)與錒系元素(An)分開，尤其是在低 pH=1 ~ 2 條件下。對 Am 和 Cm 的分離因子顯示出明顯的優勢，Am(DTBA)形成穩定的錯合物，能夠有效隔離 Cm，鏷系元素(Ln)元素的去除率達到 80%，而 Am 的回收率接近 99.5%。這一結果意味著，該系統能夠只需少數幾個萃取步驟就可實現高效分離。然而，酸鹼度穩定性尚有改進空間，在實驗過程中，酸性條件下水相和有機相之間的酸鹼度變化對分離效果有影響，操作過程中需要精確的控制。由於高濃度的 HNO<sub>3</sub>會影響分配比，需要調整水相的酸濃度，確保最優的萃取條件，此種錒的核種分離技術將有助於本中心對該核種進行環境監測之技術開發。

另一種做法是以 ADAAM(烷基二醯胺)分離 Am 和 Cm(圖 69、圖 70、圖 71)，建立水相 1.5M HNO<sub>3</sub>，模擬高酸性條件下的核廢料組成，加上有機相：0.5M ADAAM，這是一種強選擇性的萃取劑，可與銻(Am)和錒(Cm)形成穩定的絡合物，Am 的分配比(D 值)顯示為 96.47%，Cm 的回收率則達到 98%，這表明 ADAAM 在此條件下能夠有效地從混合水相中分離出 Am 和 Cm，在這一過程中，ADAAM 對 Am 的親和力遠高於對 Cm 的親和力，這使得分離過程變得更加高效，Am/Cm 的分離因子(SF)可達到 6.9，顯示出 ADAAM 在分離過程中的強選擇性。錒系元素(An)和鐳系元素(Ln)的共萃取，在 TODGA 溶液中，使用 0.7 M TODGA 和 3M HNO<sub>3</sub>在多階段萃取中成功實現了錒系元素(An)和鐳系元素(Ln)的分離，通過加入 DTBA，能夠有效減少鐳系元素(Ln)的回收率，從而提高 Am 和 Cm 的回收率，利用 ADAAM 和適當的酸性條件，將 Am 和 Cm 高效分離，並在回收過程中實現高純度，未來可精簡萃取過程，減少萃取次數，提高效率並探索更高效的掩蔽劑或共萃取劑，以實現更高的選擇性和分離效果，此種銻的核種分離技術將有助於本中心對該核種進行環境監測之技術開發。

Composition of simulated HLW	
La: 11.9 mM	Am: 2.34 mM
Ce: 22.8	Cm: 0.217
Pr: 10.7	all Ln: 92.86 mM (100 mM Ln as the aimed solution)
Nd: 38.0	
Sm: 7.2	
Eu: 1.23	
Gd: 1.03	
Spent U (1t)/ 1000 I dissolving obtained from JAEA-rev. 2015-002	

圖 64 高放射性廢棄物(HLW)所帶核種

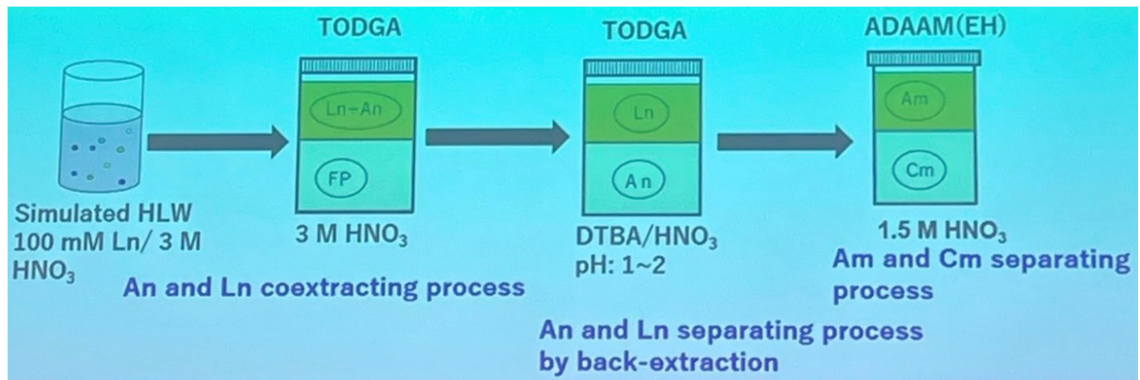


圖 65 TODGA 萃取鈾系元素(An)和鏷系元素(Ln)實驗流程

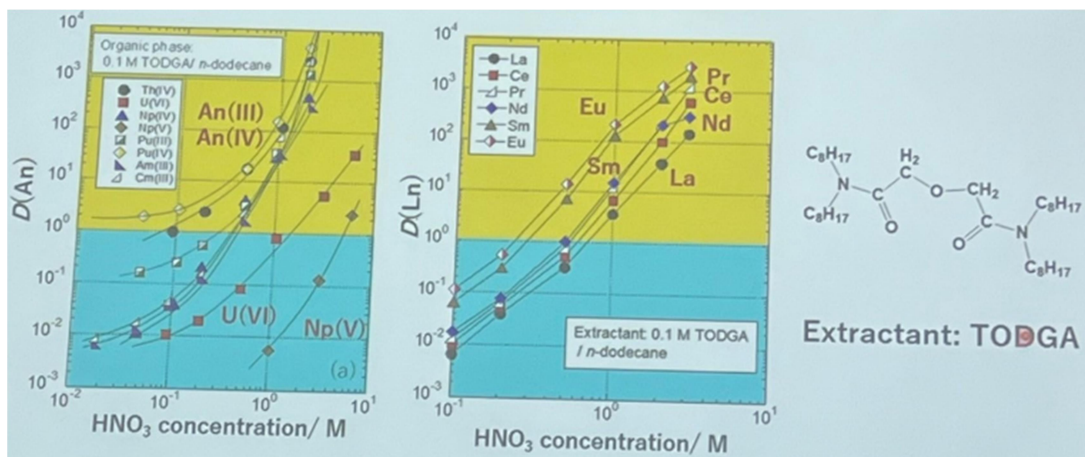


圖 66 0.1M TODGA 對於鏷系元素(Ln)和鈾系元素(An)之分配比(D)

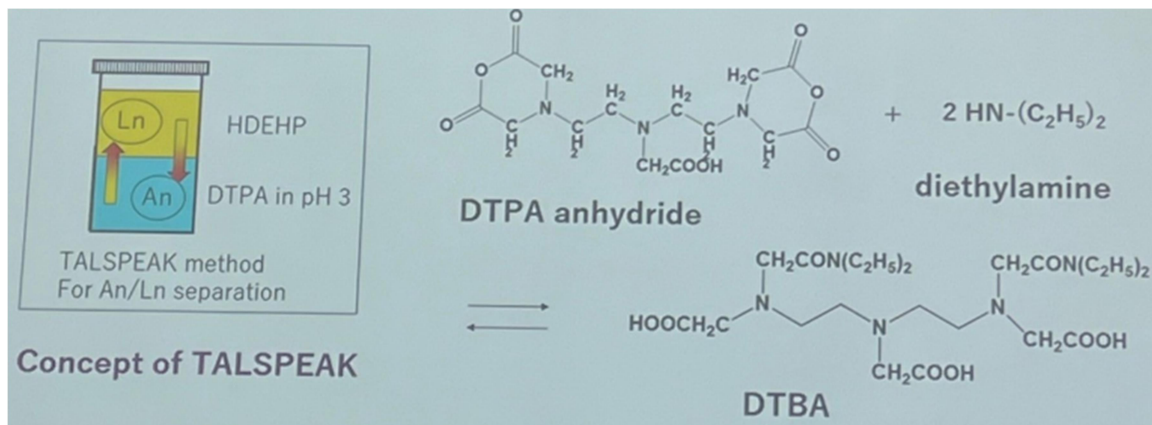


圖 67 TALSPEAK 概念法

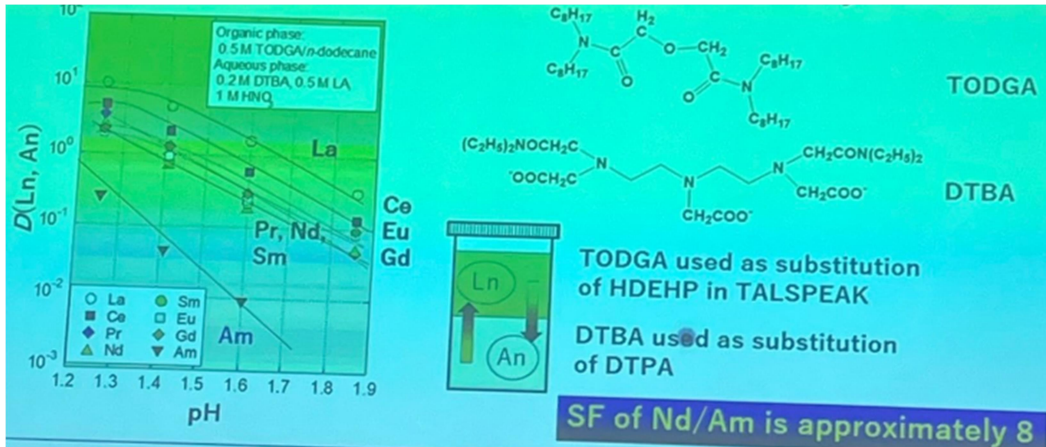


圖 68 pH 控制 TODGA-DTBA 系統

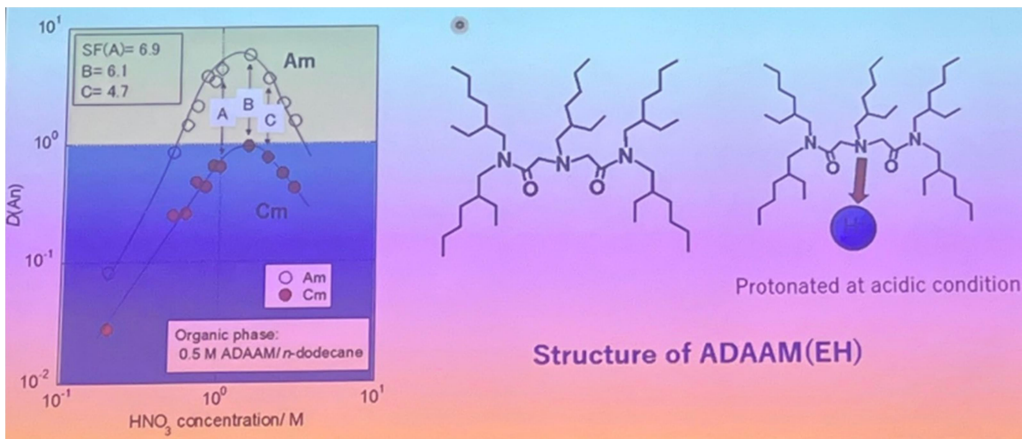


圖 69 以 ADAAM 分離 Am 和 Cm

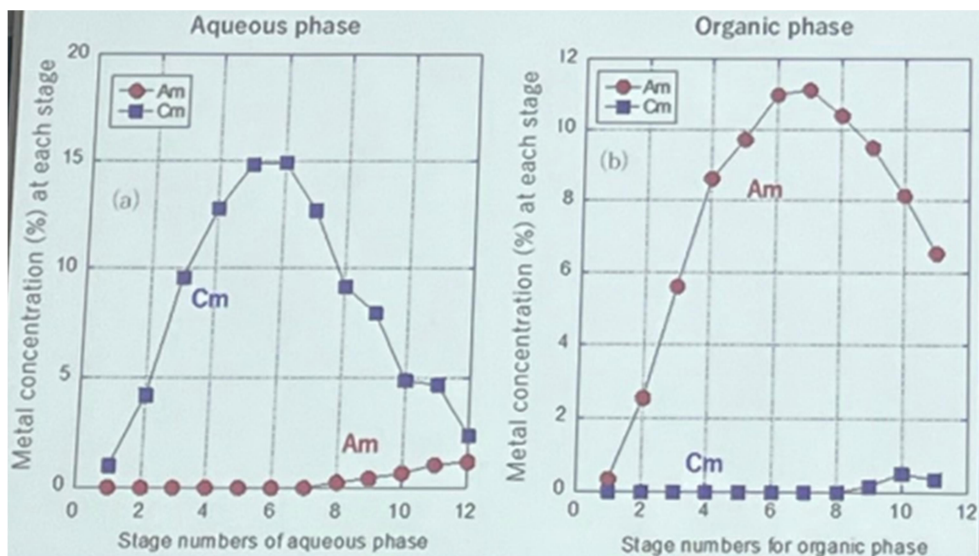


圖 70 以 ADAAM 分離 Am 和 Cm-2

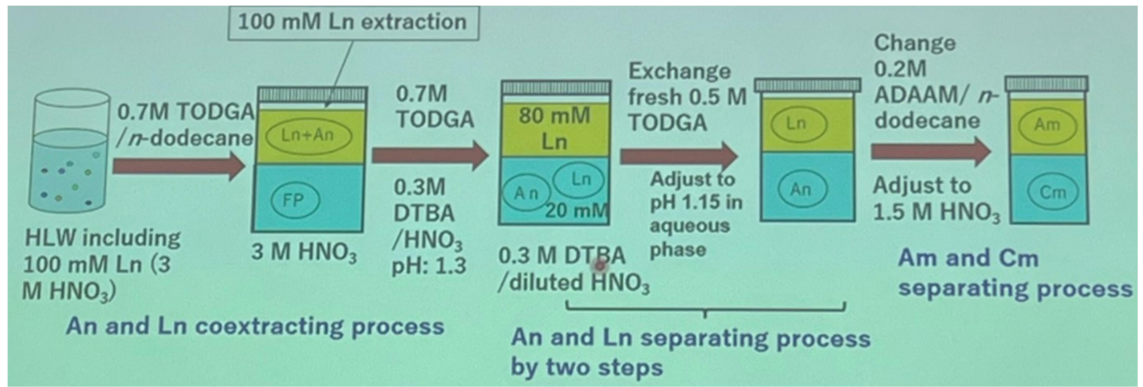


圖 71 ADAAM 分離 Am 和 Cm 實驗流程

#### (四)以 TPEN 類似結構的極性離子液體對鐳系元素(Ln)(III)的萃取性能研究

在核燃料循環中，蛻變(transmutation)策略被廣泛應用於減少放射性廢料的半衰期及毒性，次錒系元素(MA)因其具有長半衰期和強放射毒性，在核能技術中對其進行有效的分離與處理成為當前的重要挑戰，次錒系元素(MA)和鐳系元素(Ln)之間的分離與 Am 與 Cm 等高放射性元素的分離(圖 72)，由於這些元素間的化學性質相似，且其在溶液中的分配受多種因素影響，因此，開發高選擇性且高效的萃取劑成為核燃料循環技術中迫切需要解決的問題。

N,N,N',N'-四(2-吡啶甲基)乙二胺(TPEN)是具有六個軟氮供體的分子，可在分子層次上選擇性地識別和配位不同的金屬離子，這使其在金屬離子萃取中顯示出良好的潛力，然而，TPEN 本身的水溶性及其容易質子化的特性，限制了其在非水性溶劑中的應用，因此，該研究提出將 TPEN 類似結構與疏水性離子液體結合，來實現對三價鐳系元素(Ln)(III)的高效萃取。離子液體(IL, Ionic liquid)是一類由有機陽離子和無機陰離子組成的化合物，具有低蒸汽壓、良好的熱穩定性和化學穩定性，通過將 TPEN 類似結構與離子液體結合，預期可以克服水溶性和質子化問題，並且提供良好的金屬萃取性能。

研究的目標為合成 TPEN 類似結構的疏水性離子液體(IL-TPTNA)，並與  $\text{NTf}_2^-$  陰離子結合，評估其對三價鐳系元素(Ln)(III)離子的萃取能力(圖 73)，並優化萃取條件，包括 pH、溫度、時間等，探討最佳萃取效果，探討分析萃取過程中的機理，並深入理解 IL-TPTNA 對不同鐳系元素(Ln)(III)金屬的選擇性。IL-TPTNA 的合成過程包括多步反應步驟，最初通過合成 TPEN 的前驅化合物，隨後將其轉化為包含氨基和醯胺基團的離子液體結構，在反應中，使用了氨氣、過氧化氫和  $\text{NTf}_2^-$  陰離子作為反應試劑，並控制反應溫度和反應時間來優化產率。合成的 IL-TPTNA 經過質譜(MS)、核磁共振(NMR)、紅外光譜(IR)等分析，證實了其結構的正確性，這些數據顯示，IL-TPTNA 具有良好的化學穩定性，並能夠有效地用於後續的金屬萃取實驗。

進行萃取實驗(圖 74)需準備含有目標金屬離子的水相(1.5 mL)，並根據需要調節 pH 值至所需範圍，接著配製 IL-TPTNA 的離子液體相(1.5 mL)，並將其與水相混合，以在振蕩器中混合兩相，設置震蕩速度為 160 rpm，震蕩時間從 10 分鐘到 12 小時，萃取後，使用離心分離兩相，並測量水相中的金屬離子濃度，利用 ICP-AES 進行金屬離子濃度分析，計算萃取效率，為了找出最佳的萃取條件(圖 75)，進行了不同 pH 值、時間和金屬濃度的試驗，結果表明， $\text{Eu}^{3+}$  在 pH 為 5.5 至 6.0 時具有最高的萃取效率，並且萃取效率隨著時間延長而穩步提高，最終在 12 小時達到穩定狀態，在 pH 為 5.5 至 6.0 的範圍



內，IL-TPTNA 顯示出對  $\text{Eu}^{3+}$  的優異萃取能力，這一範圍內， $\text{Eu}^{3+}$  與 IL-TPTNA 中的  $\text{NTf}_2^-$  基團和 TPEN 類似結構的配位基團形成穩定的配合物，有效提高了萃取效率，當萃取時間延長至 12 小時， $\text{Eu}^{3+}$  的萃取率達到 72%，在此時間後，萃取達到平衡狀態，顯示出穩定的萃取性能，在不同的  $\text{Eu}^{3+}$  初始濃度條件下，萃取效率呈現出濃度依賴性，隨著初始金屬濃度的增加，萃取效率有所提升，但當金屬濃度達到一定值後，萃取效率達到飽和，這表明離子液體的萃取容量存在一定的上限，根據密度泛函理論(DFT)計算(圖 76)和 X 射線晶體學分析(圖 77)， $\text{Eu}^{3+}$  離子與 IL-TPTNA 中的氮原子和氧原子進行了強配位反應。X 射線吸收精細結構光譜(EXAFS) (圖 78)分析進一步證實了  $\text{Eu}^{3+}$  與吡啶基團的氮原子以及醯胺基團的氧原子形成了穩定的配位結構，從實驗結果及理論分析來看，IL-TPTNA 作為金屬萃取劑，其主要萃取機構包括金屬離子與配位基團的靜電和配位作用。在較高的 pH 值下，IL-TPTNA 的分子結構發生變化，有效提升了其對  $\text{Eu}^{3+}$  的萃取能力。

該研究展示了 IL-TPTNA 這一新型疏水性離子液體在萃取三價鐳系元素( $\text{Eu}^{3+}$ )中的高性能，其設計結合了軟氮供體和硬氧供體，有效實現了金屬離子的高選擇性萃取，IL-TPTNA 在核能放射性廢料處理中的應用潛力巨大，尤其在分離次錒系元素(MA)與鐳系元素(Ln)元素和重稀土元素方面表現出優異的性能，這一新型萃取劑為未來的核能循環提供了重要的技術支持。

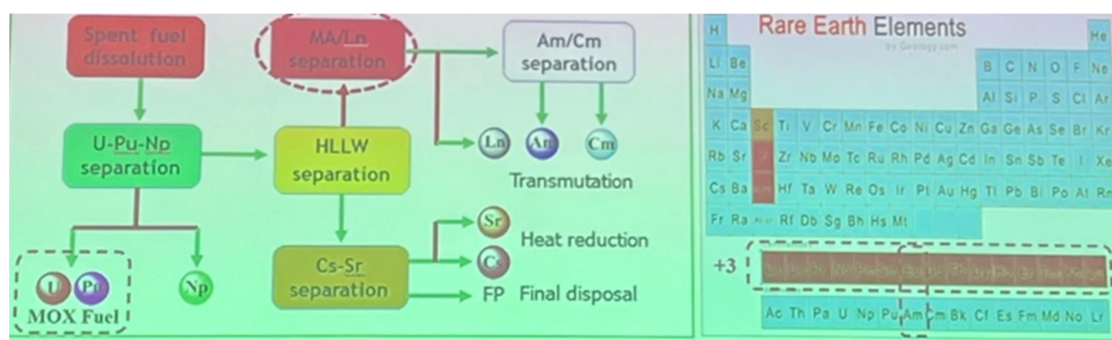


圖 72 次錒系元素(MA)和鐳系元素(Ln)與 Am 與 Cm 等高放射性元素的分離

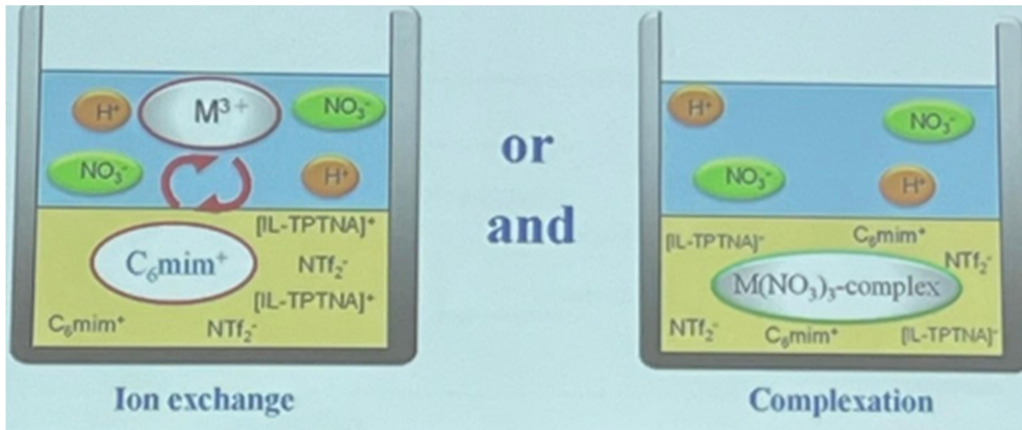


圖 73 IL-TPTNA 與  $\text{NTf}_2^-$  結合萃取(Ln)(III)

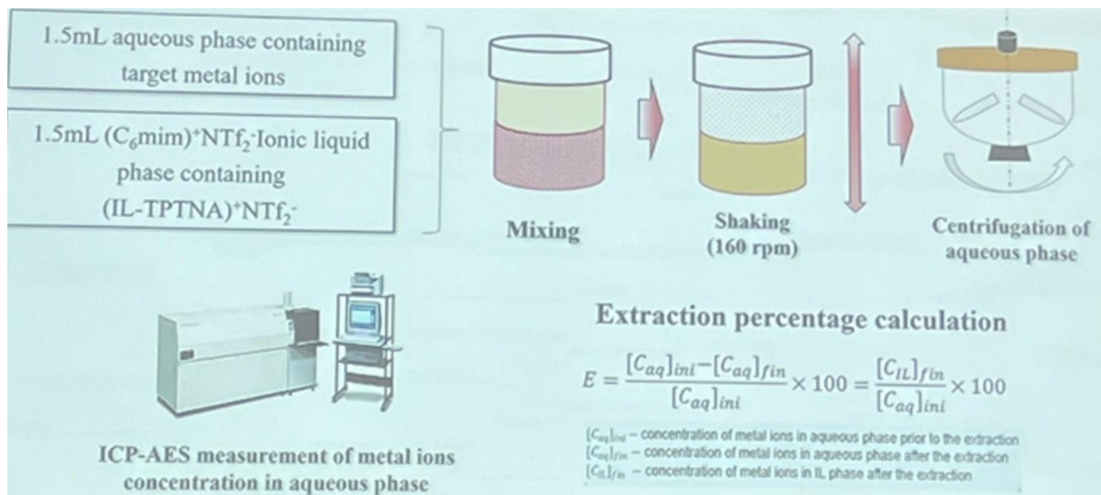


圖 74 萃取實驗設計

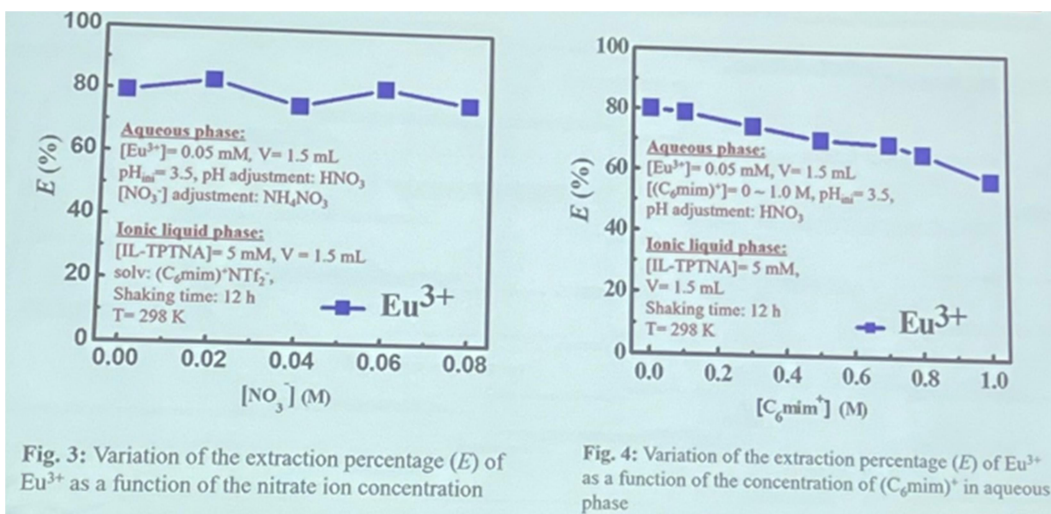


圖 75 萃取條件的優化

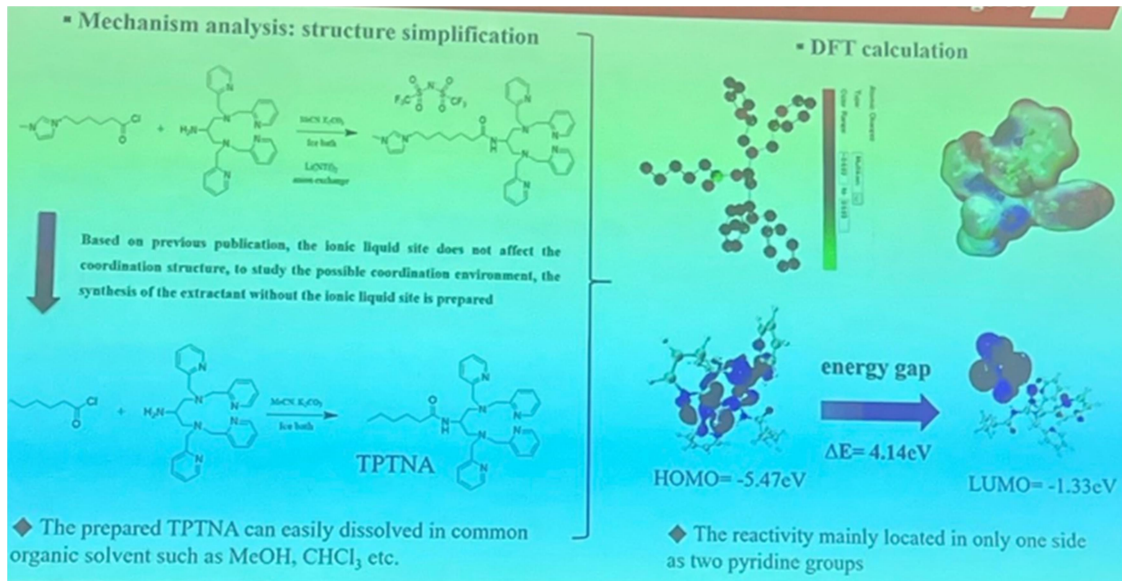
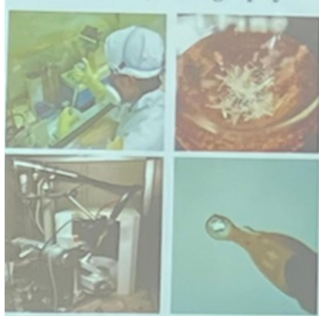


圖 76 密度泛函理論(DFT)

**▪ x-ray crystallography**  


Crystallographic Data of Eu(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> (TPTNA) complex	
Formula	C <sub>33</sub> H <sub>41</sub> EuN <sub>10</sub> O <sub>10</sub>
Formula weight	889.72
Crystal size (mm)	0.3*0.3*0.15
Crystal system	monoclinic
Space group	P-1
a (Å)	14.2603(4)
b (Å)	8.5116(3)
c (Å)	16.3797(6)
Alpha (deg)	90.000
Beta (deg)	98.887(7)
Gamma (deg)	90.000
V (Å <sup>3</sup> )	1964.27(12)
Z value	2.00
V/Z	982.1(6)
Calculated density (g/cm <sup>3</sup> )	1.416
R <sub>1</sub>	0.043
wR <sub>2</sub> (all)	0.0616

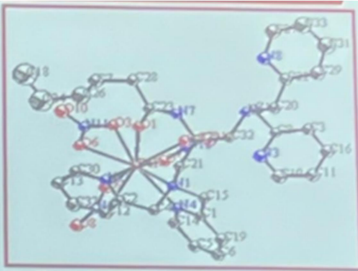
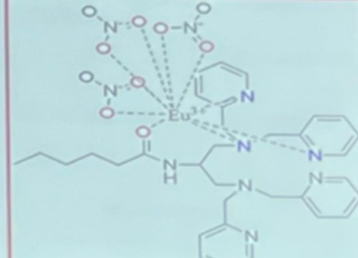

  


圖 77 X 射線晶體學分析

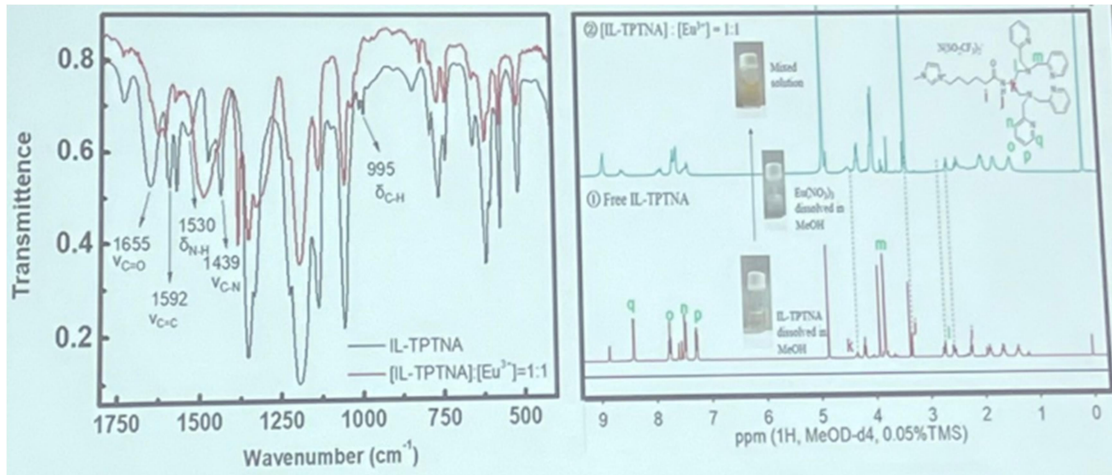


圖 78 X 射線吸收精細結構光譜(EXAFS)分析

### 三、福島相關議題

福島第一核電廠除污除役工程公司社長演講「福島第一核電廠淨化工程-土地除役的現狀與挑戰(圖 79)，東京電力公司(Tokyo Electric Power Company, TEPCO)針對福島核事故的後續處理，包括用過核子燃料的移除、儲存與處理、ALPS 處理水的海洋排放(圖 80)、燃料碎片的回收等，東京電力採取了多項措施。

對於福島第一核電廠放射性污染水處理活動起源於 2011 年 3 月 11 日的東日本大地震導致東京電力公司(TEPCO)的福島第一核電廠發生了嚴重事故，隨後對放射性污染水的處理成為當務之急，為了解決反應爐建築內污染水的增加問題，東芝能源系統與解決方案公司自事故後推出了兩類污染水處理系統，這些系統自 2011 年及 2013 年開始運作，旨在降低污染水中的放射性濃度，並支持核電廠的除役進程，污水處理系統的實施包括 SARRY™與 ALPS 系統，簡化主動水回收系統(SARRY™, Simplified Active Water Retrieve and Recovery System II)於 2011 年首次啟用，專注於從受污染的海水中去除銫與銱放射性，每組處理能力為 600 立方公尺/天，包含五個帶有前置與後置過濾器的除銫吸附劑容器(不銹鋼製成)。截至 2024 年 4 月，該系統已處理超過 200 萬立方公尺的污染水。而多核種除去設備(ALPS)自 2013 年啟用，針對污染水中除氬以外的放射性核種進行全面去除，包括銱去除的預處理系統及多種吸附劑容器以最終去除所有核種與每組處理能力為 250 立方公尺/天，後續於 2014 年推出的改良型 ALPS(圖 81)進一步提高了效率，截至 2024 年 3 月，ALPS 及其改良版本共處理了超過 125 萬立方公尺的污染水。兩者自啟用以來，已成功處理大量放射性污染水，ALPS 處理水在排放前經過二級處理和稀釋，並嚴格監控氬濃度以符合國際標準，對福島第一核電廠的穩定與安全運行提供了重要支持，這些系統的穩定運行對長期除役進程至關重要。改良 SARRY 第二代系統中的吸附材料處理放射性銱以提高其吸附效率，可作為本中心對於銱的放射化學分析技術精進參考。



圖 79 福島第一核電廠淨化工程/土地除役的現狀與挑戰

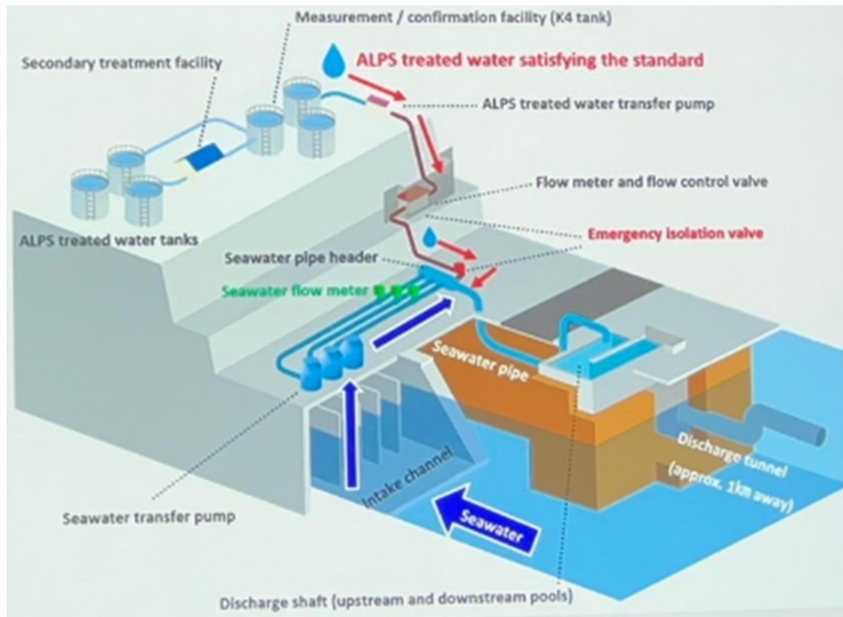


圖 80 多核種除去設備(ALPS)處理後的水排放至海洋示意圖

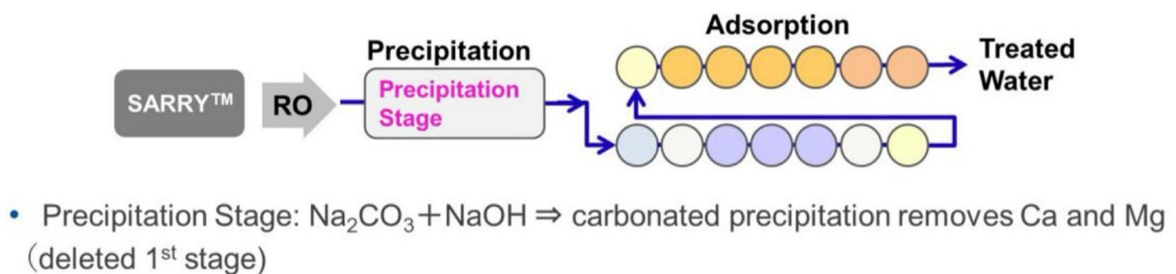
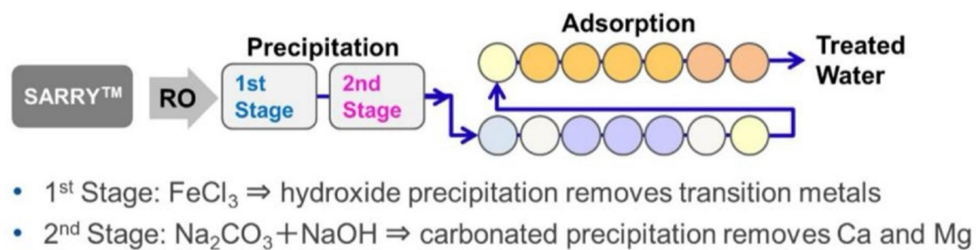


圖 81 原 ALPS 系統與改良版本

此外，為了確保福島核電廠事故後的環境安全，並為未來的核能發展提供參考，還進行用過核子燃料移除(圖 82)與處理，東京電力使用機械臂(圖 83、圖 84、圖 85、圖 86)和無人機(圖 87)進行反應爐內部調查與燃料碎片回收，並將回收的燃料運送至分析設施進行測試和評估，回收工作包括新設備測試、內部調查和遠端操作技術的應用。用過核子燃料池中儲存的燃料已逐步移除，並採取相關準備措施，用過核子燃料池設置於每個反應器建築物上方，主要用於儲存已用過的燃料組件，並且為降低風險，進行了相關的燃料清除工作。核能排放的劑量率低於國際標準，並持續監測當地環境，針對福島核電廠周邊的空氣劑量率進行監測(圖 88)，亦進行氡監測顯示。福島地區的

土地復育工作(圖 89)持續進行，包括將污染土壤運至臨時儲存設施(ISF)，恢復土地供當地居民重新利用。支持被疏散居民的重建，疏散人數顯著下降，但截至 2024 年，仍有約 2.5 萬人未返回家園(圖 90)，這些旨在逐步降低核事故後的環境與社會影響，東京電力公司正積極推進以創新核能系統和燃料循環為基礎的永續發展策略，實現核能可持續發展與災後重建。

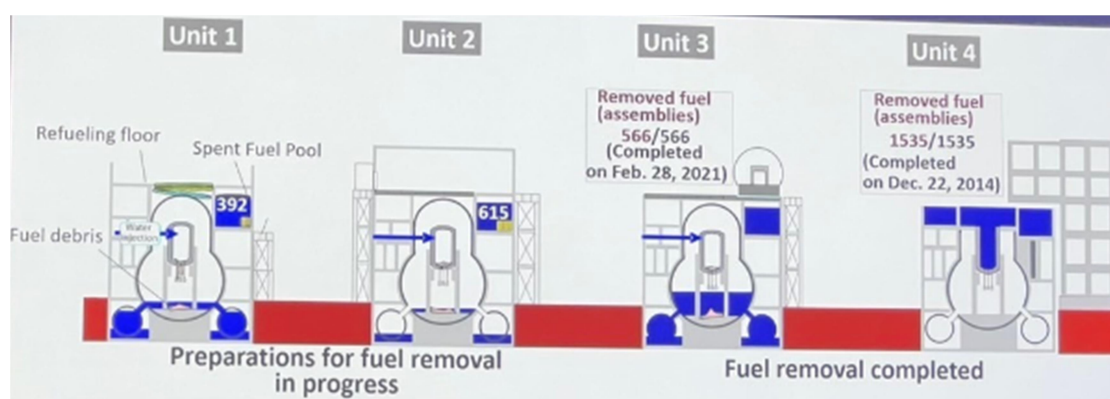


圖 82 福島事故後燃料清除作業

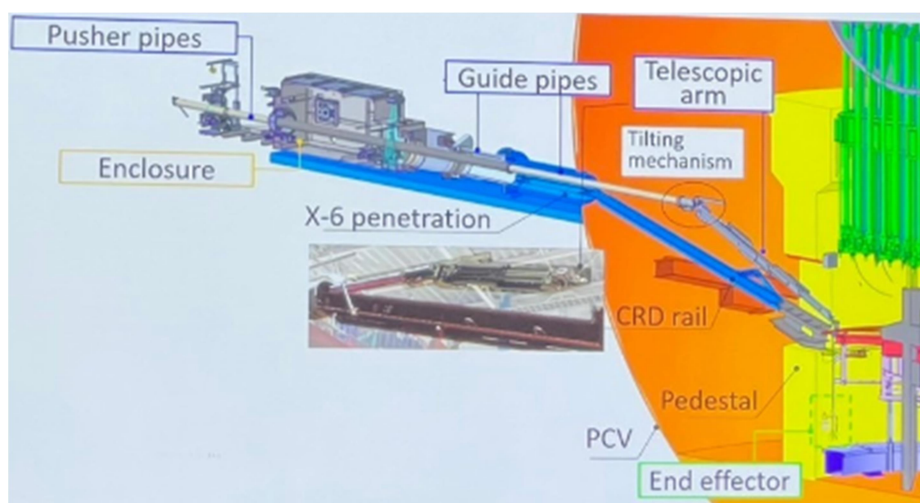


圖 83 利用機械臂回收燃料碎片

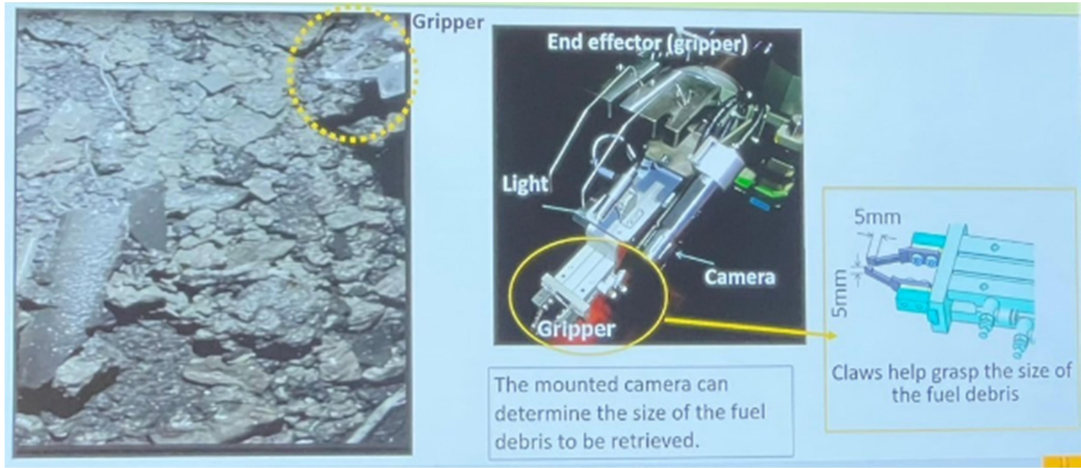


圖 84 利用機械臂回收燃料碎片-2

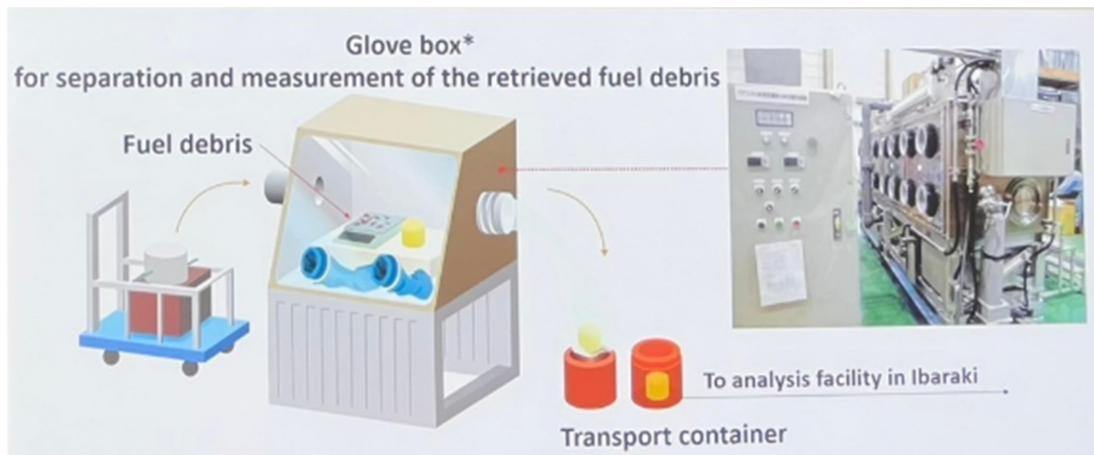


圖 85 利用機械臂回收燃料碎片-3

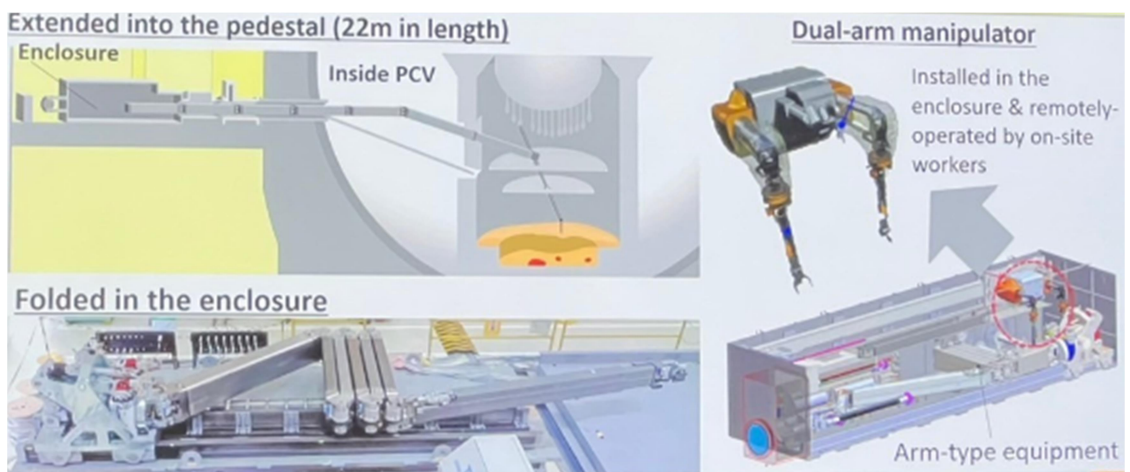


圖 86 利用機械臂回收燃料碎片-4



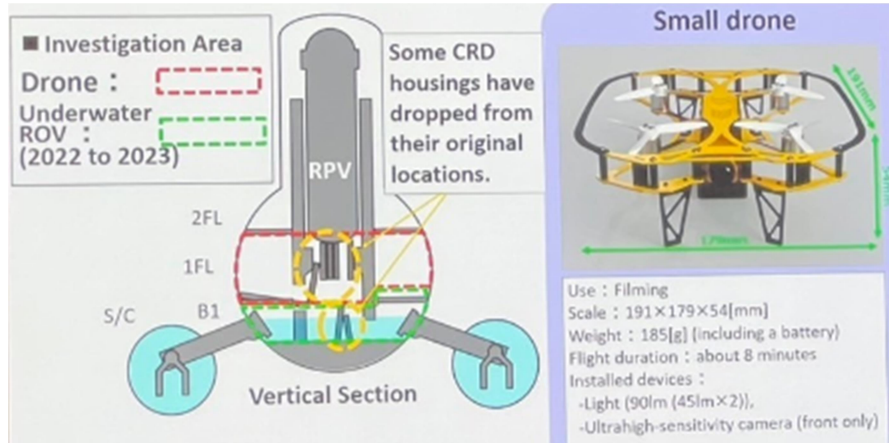


圖 87 利用無人機調查燃料碎片

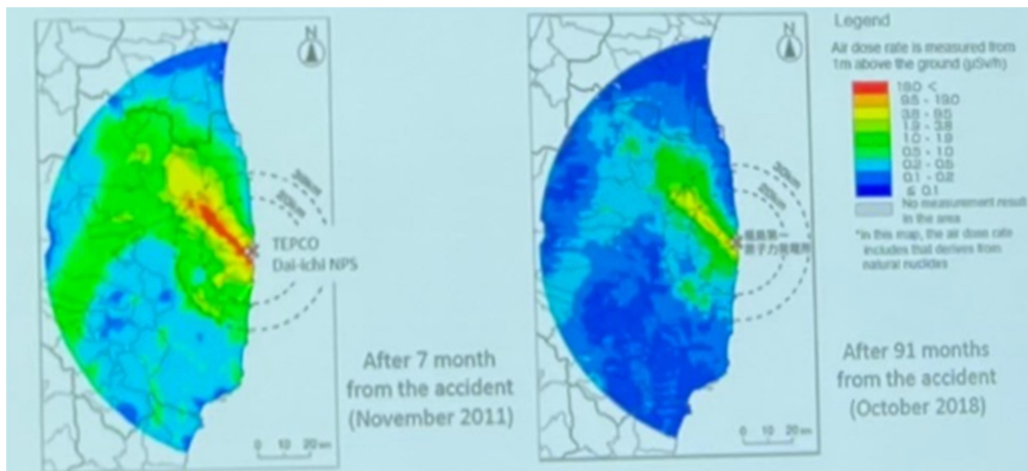


圖 88 福島核電廠周邊環境(<80km)空氣劑量率

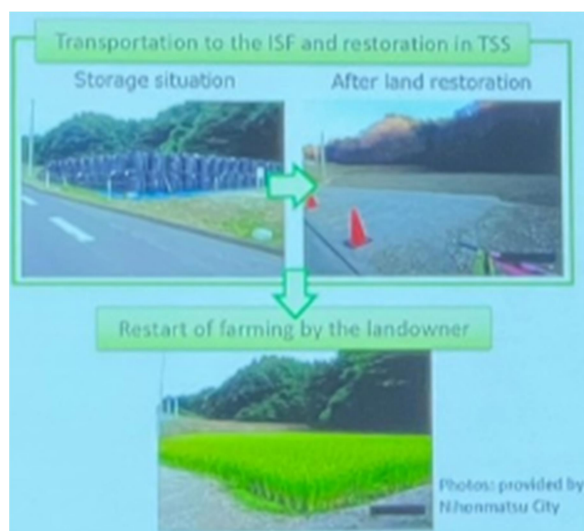


圖 89 福島地區的土地復育工作

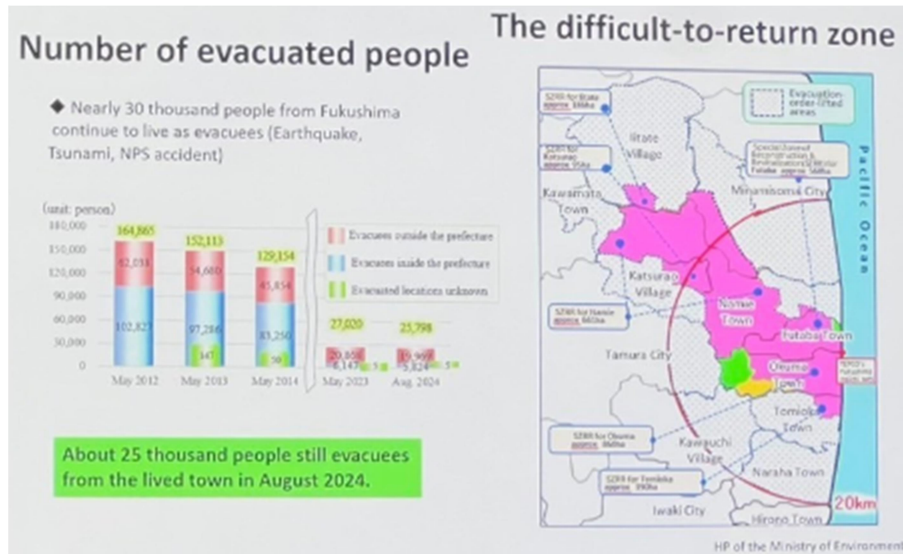


圖 90 例年疏散人數與回歸人數

福島地區設有臨時儲存設施(TSS)(圖 91、圖 92)以暫存核廢料和受污染土壤，例如福島縣大熊町臨時儲存設施(圖 93)在震後復興、核能創新、農業修復及教育支援等多方面的努力，支援當地居民重建生活，演講如圖 94。福島縣於震後 13 年，福島地區仍面臨著農業修復、教育合作、核事故後的環境復原等問題，重建工作的範圍不限於指定的重建區域，還包括難以返回的地區，福島縣在核事故後經歷了多年的恢復與重建，目前在環境、經濟和社會方面仍面臨諸多挑戰。震後的復興計畫以福島支援計畫協助環境清理，分析輻射影響，並提供有關長期復興的建議，專家進行地區對話和除污論壇，以促進民眾理解，透過與政府、學術界及其他機構的合作，提供包括環境修復、輻射影響分析、農業修復方法等方面的支持，舉辦座談會、專家派遣等活動以促進社會復興，復興計畫的使命是幫助災後地區實現全面復興，推動可持續發展和社會重建，並提升當地居民的生活福祉。具體辦理了派遣專家至環境再生廣場、農業修復、學校教育合作等項目，此外，還有對除役工作及輻射影響的詳細解釋和支持，具體活動包括出版政策建議、舉辦座談會以促進經驗分享並派遣專家前往現場進行技術支持和環境修復指導。農業修復方面進行農業技術研究，包含水稻試驗(圖 95)，降低放射物質對農產品的影響，重振當地農業。在專項領域中，支援計畫重點關注福島電廠以外的農業修復方法，通過創新技術提升農產品質量。教育方面亦有所推動，包括福島教育機構核能課程，合作培育核子技術專才，以增強年輕世代對核技術及環境影響的認識，同時與當地學校合作，改善教育資源和學習條件。居民需求與意見、地方重建建議亦透過問卷調查等方式蒐集居民對政府支援措施的意見，並在福島創新海岸計畫下，發展難返地區的重建策略。

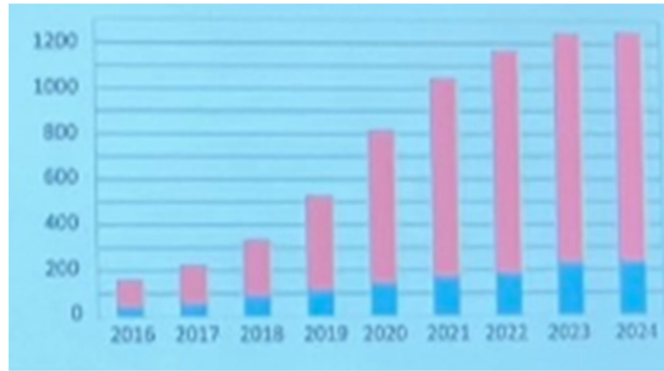


圖 91 臨時儲存設施(TSS)數量

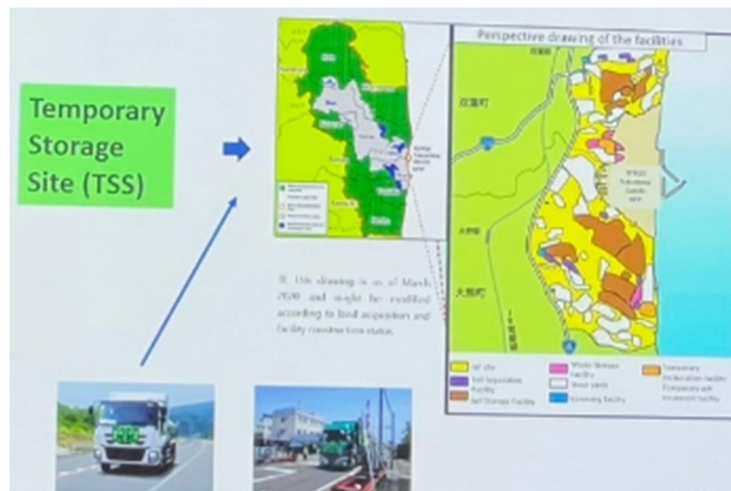


圖 92 臨時儲存設施位置



圖 93 福島縣大熊町臨時儲存設施

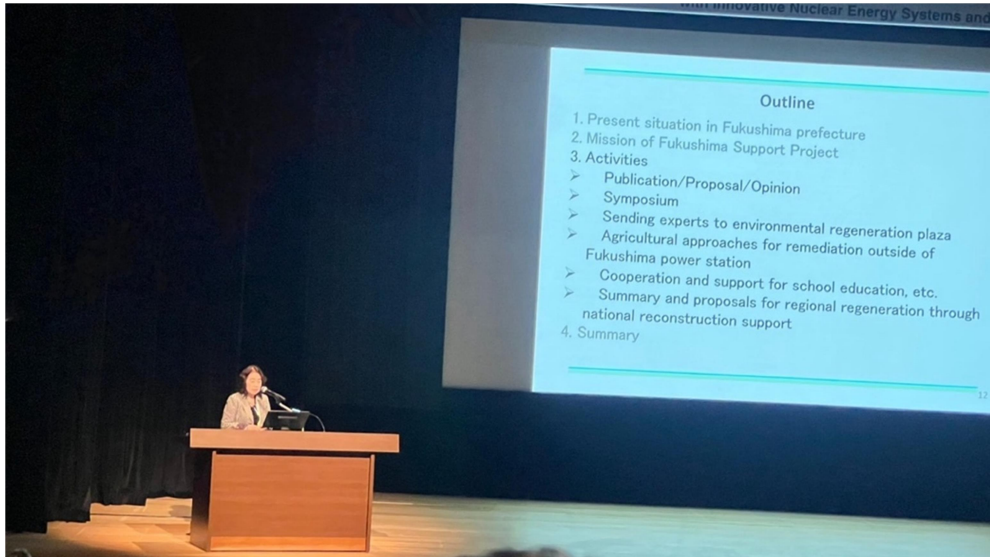


圖 94 演講議題:福島縣大熊町臨時儲存設施簡介

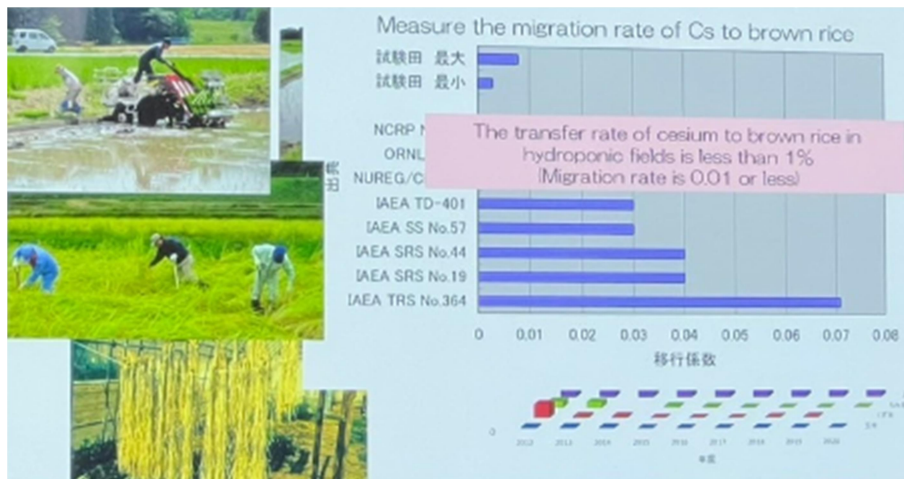


圖 95 水稻試驗-銫元素遷移率研究

關於農業修復方法方面(如圖 96)，以附近農田進行放射性銫除污的實驗(如圖 97)，特別是放射性銫從土壤遷移到水稻的行為，例如放射性銫與鉀的遷移行為，銫向糙米的遷移率非常低，與稻草或穀殼相比，轉移率更加微小，從 2012 年至 2022 年研究發現，銫的轉移因子均低於 1%(圖 98)，且與鉀相比，相對較低(圖 99)，如再補充鉀肥可以減少銫的轉移，而沸石的添加對抑制銫的遷移有輕微的效果(圖 100、圖 101)，實驗數據與趨勢：在長達十一年的實驗中，土壤中銫濃度顯示出持續下降的趨勢，糙米中放射性銫濃度在過去七年的測量中保持在非常低的檢測極限範圍內，經過多年的測試(從 2012 到 2022 年)，糙米中的放射性銫濃度逐年下降，並且低於食品安全標準(100 Bq/kg)(圖 102)，上述實驗展示了相關的除污方法如何有效降低農田中的放射性污染，為福島地區的農業復興提供了積極的科學證據。鉀肥與沸石的添加對於放射性銫的抑制效果，對於銫分析的材料選用亦有參考價值，可嘗試以不同的材料強化分析量能。



圖 96 演講議題：福島第一核電廠外的農業修復方法

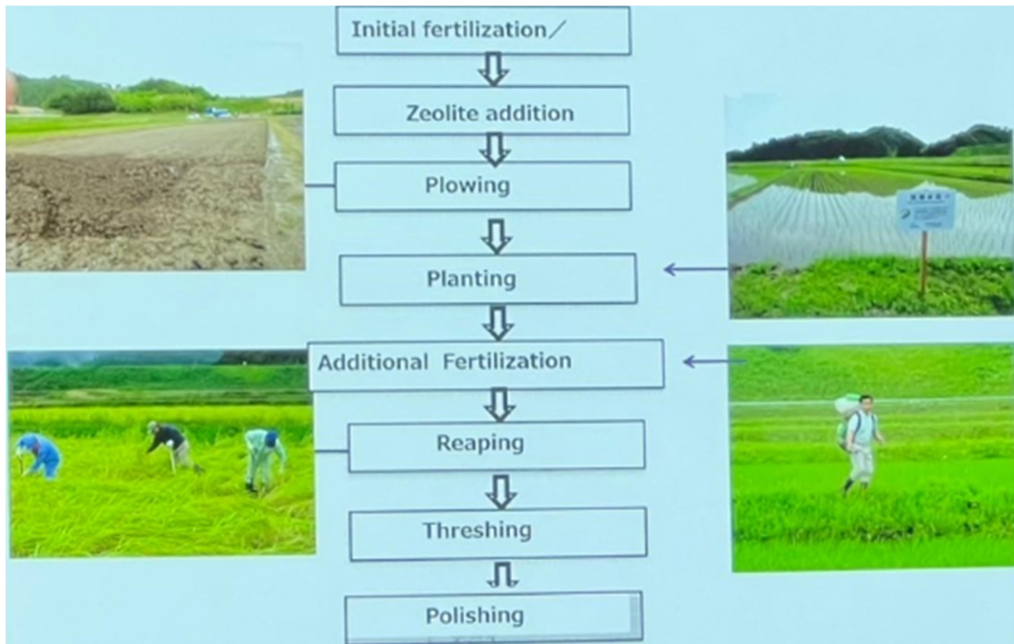


圖 97 水耕稻田除污實驗

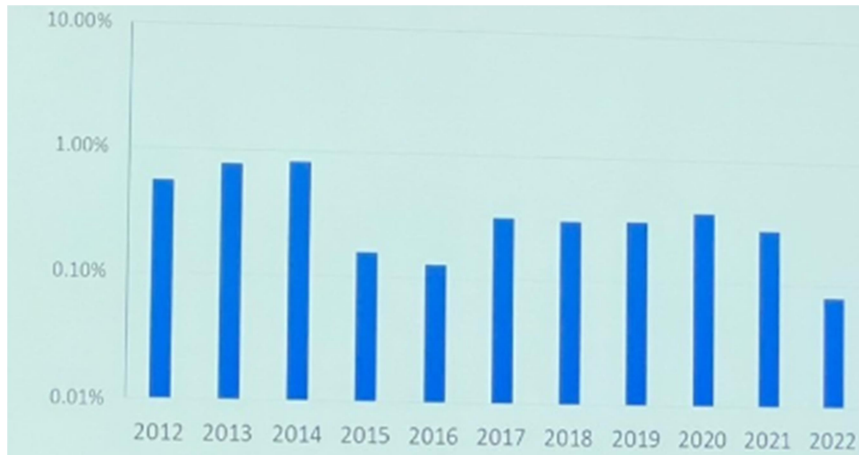


圖 98 2012~2022 年放射性銫從土壤遷移到水稻的轉移因子

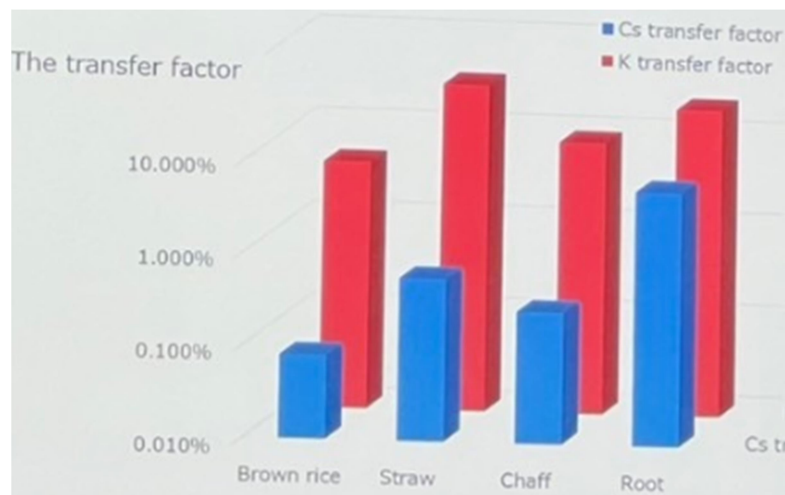


圖 99 銫與鉀從土壤遷移到水稻的轉移因子

	Additional K fertilization	Zeolite Add.	Chaff	Straw	Root
A	60kg/0.1m <sup>2</sup>	Zero	140	190	2800
B	60kg/0.1m <sup>2</sup>	100kg/0.1m <sup>2</sup>	120	140	2700
C	60kg/0.1m <sup>2</sup>	200kg/0.1m <sup>2</sup>	110	160	1800
D	Zero	Zero	190	190	2100
E	Zero	100kg/0.1m <sup>2</sup>	120	180	2000
F	Zero	200kg/0.1m <sup>2</sup>	150	150	1900
				Soil	5400Bq/kg

圖 100 A~F 區添加鉀肥與沸石對銫活度的影響-1

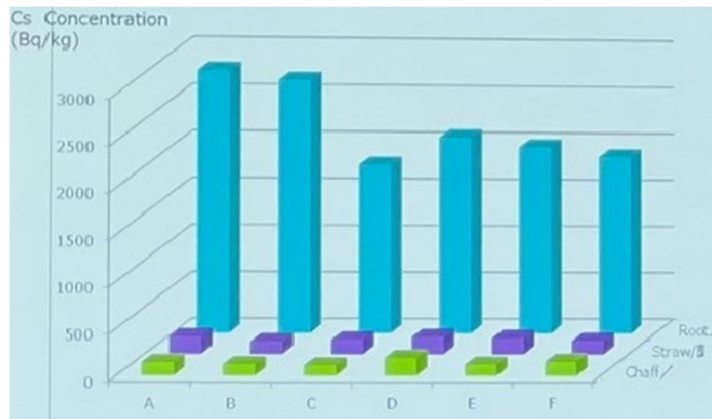


圖 101 A~F 區添加鉀肥與沸石對銫活度的影響-2

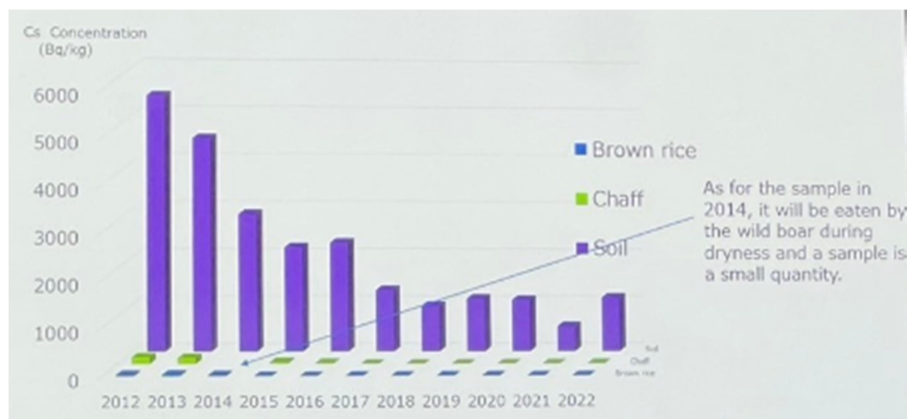


圖 102 2012~2022 年銫濃度在不同物質的監測量

## 肆、心得與建議

本次參加的「GLOBAL 2024」國際會議，係由日本原子力學會（AESJ）與國際原子能總署（IAEA）共同辦理，透過與全球核能領域的同行交流，掌握國際間放射化學核種分析及輻射度量技術之最新發展、創新策略及科學新知，以及福島第一核電廠及其周圍環境復育及輻射監測狀況，同時也了解日本與國際社會在核能政策上正結合政策規劃及技術創新使核能與再生能源成為未來能源結構的關鍵支柱。此行所見所聞有助於擴展國際視野，了解全球放射性分析領域發展趨勢及重點，提供未來技術發展規劃方向之參考，持續精進本中心放射分析技能。相關建議如下：

一、 針對放射化學核種的萃取與分離技術，涉及萃取溶液種類及濃度、核種吸附材料特性及其結構修飾或改質、前處理流程設計、吸附材料再利用率及結構穩定度等，本次會議研究成果發表包含透過  $\text{SiO}_2$  改質 AMP 可加速 AMP-放射性銫的沉降速度；利用改良 SARRY 第二代系統中的吸附材料處理放射性銻以提高其吸附效率；使用強氧化劑氧化態三價的銻轉換為氧化態五價的銻而與鏷系元素高效分離等分析技術，建議本中心可參考上列技術策略，精進與開發環境試樣放射性銫、銻及銻之檢測方法。

二、 本次會議中所介紹之核種分離技術—溫控分離法，利用溫度控制鏷系元素與吸附材料之親、疏水性，以達到核種萃取純化，與現行核種分離技術之溶劑萃取法及樹脂分離法相較，不僅減少使用化學試劑，吸附材料對核種選擇性高並具備良好的重複使用性能，建議本中心可持續蒐集核種溫控分離法相關資訊，作為環境試樣放射分析技術精進發展之方向。

三、 藉由參與國際性或全國性研討會，可得知目前世界各地檢測技術發展成果及趨勢，認識最新計測儀器設備，並與其他實驗室技術交流及互換資訊，有助於未來環境輻射分析業務規劃及研究方向的訂定。建議本中心人員可多參與放射化學、環境化學及輻射度量領域之國際性或全國性會議，增進檢驗新知，以持續精進我國放射分析技術與國際接軌。



# 伍、附件

## 附件一 第16屆會議「GLOBAL 2024」議程

Date	Time	Inno Hall	Room B1	Room B2	Room B3	Room C	Room A1	Room A2	Room A3
Oct. 6 Sunday	Registration 16:00-18:00								
Oct. 7 Monday	9:30-9:40	(Opening Speech) Dr. Hiroaki Ojawa (Chair of Organizing Committee)						Welcome Reception ※Voluntary Participation	
	9:40-10:20	Plenary I Dr. Mitsuru Uesaka (Chairperson, Japan Atomic Energy Commission)							
	10:20-10:30	Plenary II 1. Mr. Satoru Yasunaka (Director for International Affairs, Ministry Policy Division, Ministry of Economy, Trade and Industry) 2. Dr. Gilles Bernard-Michel (Nuclear Counsellor, French Embassy) 3. Dr. Jon Carmack (Deputy Assistant Secretary for Nuclear Fuel Cycle, Office of Nuclear Energy, U.S. DOE) Section, JAEA)			Short Break				
	10:30-12:30								
	12:30-14:00			Lunch					
	14:00-15:20	Fukushima Session	Track7: Institutional and policy issues	Track1: Research into different energy sources	Track4: Radiation and Radiolysis	Track3: Reactor Physics			
	15:20-15:30			Short Break					
	15:30-17:30						Poster Session		
Oct. 8 Tuesday	9:00-10:20	Track 8 Panel Session Enabling Technologies and Innovation in Fuel Cycle Security and Non-Proliferation, Research, Education and Workforce		Track1: Deployment scenario for fast reactors and P&T	Track4: Nuclide separation	Track3: Reactor Physics	Track3: Components	Track3: Micro Reactor	Track6: TEPCO Fukushima Daiichi NPP Decommissioning
	10:20-10:40		Track6: Fuel Debris	Track1: Back-end facility, recovered uranium and nuclear-renewable hybrid	Track4: Nuclide Separation	Track3: Safety	Track3: Components		Track6: Decommissioning technology
	10:40-12:00	Track3: Reactor Concept		Coffee Break					
	12:00-13:30		Track8: Nuclear Non-Accountancy in Nuclear Fuel Cycle	Track1: Investigation on Fuel Cycle based on Actinide Management	Lunch				
	13:30-15:10	Track2: Fuel fabrication facilities, fuel design and analysis codes		Track4: Nuclide Separation		Track3: Safety	Track3: Hydraulics Analysis	Track9: RI, etc.	Track6: Decommissioning of Nuclear Facility
	15:10-15:30		Track5: Waste treatment for immobilization 1	Track1: Plutonium utilization scenario in LWRs	Coffee Break				
	15:30-17:30	Track8: Proliferation Resistance, Security of Advanced Reactors		Track4: Pyroprocessing		Track3: Safety	Track2: Fuel fabrication and behavior	Track9: Safety, Accident	Track5: Performance management system
	18:30--	Plenary III 1. Mr. Masahisa (Executive President and CEO, Japan Atomic Energy Agency) 2. Mr. Masanori Koguchi (President, Japan Atomic Energy Agency)		Banquet at Imperial Hotel					
Oct. 9 Wednesday	9:00-10:00								
	10:00-10:20	Track1: Uranium supply chain and international activities	Track8: Destructive Assay Technology, Analytical Methods	Track5: Waste treatment for immobilization 2 - Solidification	Coffee Break				
	10:20-12:00		Track9: Destructive Assay Technology, Analytical Methods	Track5: Waste treatment for immobilization 3 - Adsorbent, et al.	Track4: Reprocessing	Track3: Reactor Concept		Track4: Off gas, aerosol	Track4: Storage
	12:00-13:30			Lunch					
	13:30-15:10		Track6: Non-destructive Assay Technology(I)	Track5: Waste treatment for immobilization 3 - Adsorbent, et al.	Track4: Extraction Chromatography	Track3: Reactor Concept		Track4: Dissolution, undissolve residue	Track4: Storage, Shipping
	15:10-15:30			Coffee Break					
	15:30-17:10		Track8: Non-destructive Assay Technology(II)	Track5: Analysis of waste & waste form properties	Track4: Extraction Chromatography	Track3: MSR		Track4: Other	
	17:10-17:20			Short Break					
	17:20-17:40	Closing							