

原研アイソトープ事業部における高レベル廃液
処理処分技術の研究・開発の現状と開発課題

1977年6月

中村 治人・前田 頌 (編)

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

JAERI-M 7138

原研アイソトープ事業部における高レベル
廃液処理処分技術の研究・開発の現状と開発課題

日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部

中村 治人 ・ 前田 頌 (編)

(1977年6月6日受理)

原研アイソトープ事業部において再処理高レベル廃液の処理処分技術の研究・開発に従事しているグループが会合を持ち、同廃液の処理処分に関する研究・開発をレビューし、その問題点と今後の研究課題について討議した。本報はその結果をまとめたものである。

まず各グループから研究開発の紹介があり、つぎに先進諸国の研究・開発の様子を調査し、研究計画作成に必要と思われる資料を整理した。

これらの情報に基づき討論の結果、廃棄物処理処分技術の開発は核燃料サイクルの見直しをも含めた総合的かつ長期的観点から進めるべきであり、処分時の安全評価、群分離、消滅処理等は原研の行うべき重要課題であるとの共通認識を得た。

Present Status and Problems on Technology
Development of High Level Waste Management
Being in Progress at Radioisotope Center, JAERI

Haruto NAKAMURA and Sho MAEDA (ed.)

Radioisotope Center, JAERI

(Received June 6, 1977)

Studies and technical developments concerning to the management of the high level waste from the nuclear fuel reprocessing are reviewed. Problems accompanying with the waste management are extracted and then subjects to be studied in future are discussed by co-operation of the study groups of Radioisotope Center, JAERI, which work at studies and technical developments on the waste management. This paper presents the results.

First, studies progressing in each group at present were introduced. Then the present status of R & D concerning the disposal of the high level waste in advanced countries was investigated. Finally data and information considered necessary to make schedule of R & D were accumulated.

On the base of the information obtained above, aims and subjects of R & D were discussed and following consensus of opinions was attained.

The subjects should be taken up from the point of comprehensive and long term view, including the check and review of the nuclear fuel cycle at present. Risk analysis of the ultimate disposal, partitioning and transmutation are particularly important as the subjects to be studied in JAERI.

Keywords: High Level Waste, Geological Disposal, Waste Management, Partitioning, Transmutation, Transuranium, ^{90}Sr , ^{137}Cs , Risk Analysis, Engineered Storage

目 次

1. まえがき	1
2. アイソトープ事業部, 環境安全研究室, 高速炉物理研究室の成果	3
2.1 群分離	3
2.2 分離したRIの固化	3
2.3 グロス固化	4
2.4 密封技術	5
2.5 高レベル放射性物質取扱施設の設計建設	6
2.6 消滅処理	7
3. 高レベル廃棄物処理処分技術開発の現状と問題点	14
3.1 廃棄物の種類と量	14
3.2 グロス固化	14
3.3 中間貯蔵および貯蔵容器	15
3.4 永久処分	16
3.5 群分離	16
3.6 消滅処理	17
3.7 固化体の危険性	18
3.8 各種委員会の概要	19
4. 高レベル廃棄物処理処分技術の開発課題	36
4.1 核燃料サイクルの見直し	37
4.2 化学処理および固化技術の開発	37
4.3 消滅処理技術の開発	38
4.4 固化体の密封保管技術	38
4.5 安全評価上の課題	39
5. まとめ	43
参考文献	45

1. ま え が き

原子力開発における down stream に関する技術は、原子力の他の分野の技術に比べると世界的に見ても立ち遅れており、これが一般的な原子力不信を招く一因ともなっている。世界各国では近年ようやく down stream 関連技術の開発を推進する機運にある。わが国においては昭和51年度の原子力委員会による放射性廃棄物処理の基本方針（研究・開発の方針も含めて）の決定、原子力環境整備センターの設立などにより低レベル廃棄物に関してはある程度の進展は見たものの、キーポイントとも云うべき高レベル廃棄物の処理処分に関する研究は依然として取り残されており、今後早急に研究・開発にいかに取り組んで行くかを決定しなければならない状態にある。そのような観点に立つとき、日本国内で中心的な役割を果し得る機関は原研および動燃団以外にはないが、両機関の研究の現状はこのような要請に即応できる状態とは云い難い。

たとえば現時点では高レベル廃棄物の処理処分方式としてグロス固化がとりあえずとりあげられ、そのための技術開発は原研・動燃団の二つの機関で最優先の順位を与えられているが、それ以外の処理処分方法の開発を遠からず要求されるであろうことは明らかであり、その場合には、研究開発の焦点が核燃料サイクルの見直しをも含めた立場から絞られていることが必要である。この点では原研内に存在する研究は必ずしも共通な認識の上に立っているとはいいがたく、これが高レベル廃棄物の処理処分技術開発の最も適切な実行組織であるべき原研の立場を弱めているといっても差支えないであろう。

アイソトープ事業部では再処理高レベル廃液を対象として分離技術、分離した ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の固化技術、および高放射性物質の密封技術の開発をラジオアイソトープ（以下RIという）製造あるいはRI利用の立場から実施してきた。これまでに原研再処理試験施設の高レベル廃液10ℓからの ^{90}Sr 、 ^{137}Cs などの分離、あるいは ^{90}Sr の新しい固化法の確立などの成果をあげている。また製造部では再処理廃棄物に直接関係はないが工業用線源として大量の ^{60}Co 、 ^{192}Ir 、 ^{170}Tm 密封線源の製造にも経験を積んできた。これらの成果はわずかな手直しでdown streamの問題解決に活用できる技術である。従来の研究開発の過程で、高レベル廃棄物処理処分技術への寄与を常に考慮に入れており、今や研究目的を処理処分技術に移行している分野も多い。

しかしながら最近の社会的要請はこのような消極的な立場からさらに一歩進めて、原研内のこの種研究開発の総合的推進を要求されるに至ったと判断される。まずアイソトープ事業部内の関連グループが研究開発の現況を相互に認識し、共通の基本的考え方をもち、それを基盤として原研内におけるこの種研究への寄与を深めたいと考えた。そこで環境安全研究室員および高速炉物理研究室員の討論参加も求め、7回に渡って合同検討会を開催した。

合同検討会では、各グループの研究開発の実績、および諸外国でのこの種技術の開発状況が簡略にまとめて報告され、これらの情報に基づいて原研が中心になって進めるべき課題について討議して共通の認識を得るに至った。

本報はその概要をまとめたものである。

なお本会の出席者および討議経過は次のようである。

出席メンバー

事業部長 村越駿一、製造部長 天野 恕、製造部次長 阿部俊彦、利用開発室長 榎本茂正、
製造技術課長 四方英治

製造技術課○中村治人、久保田益充、青山三郎、館盛勝一、山口五十夫、佐藤彰、深頼徳之助。

利用開発室○前田 頌、妹尾宗明、下岡謙司。

製造課 立川克浩、加藤 久、木暮広人。

随時参加者

環境安全研究室 田代晋吾、馬場恒孝。 高速炉物理研究室 黒井英雄

(○印は幹事)

第1回 51年11月15日

- 1) 検討会の目的
- 2) 再処理廃液中の貴金属の利用

第2回 51年12月15日

- 1) 製造技術課の群分離技術の開発
- 2) 利用開発室のFP線源固化技術の開発
- 3) 廃棄物処理処分関連委員会の概要

第3回 52年1月19日

- 1) 製造課の線源密封技術の開発および密封技術と工学貯蔵に関する調査報告
- 2) ^{137}Cs , ^{90}Sr の固化体の製造技術についての調査報告
- 3) 環境安全研究室における固化体の安全性試験および α 崩壊の固化体物性への影響についての調査報告

第4回 52年2月18日

- 1) 超ウラン元素の核反応による弱害化に関する研究
高速炉物理研究室の実績と調査報告
- 2) 固化体処分時の安全解析

第5回 52年3月30日

- 1) イスプラにおける消滅処理に関する専門家会議 — 製造部長帰朝報告 —
- 2) FP 合同検討会報告書のまとめ方

第6回 52年4月26日

報告書原案の内容討議

第7回 52年5月11日

報告書原案の内容討議

2. アイソトープ事業部，環境安全研究室， 高速炉物理研究室の成果

2.1 群分離

製造技術課においては核燃料再処理廃液の処理処分法としての群分離と、熱源や線源として有用な RI の製造を目的として分離技術の開発を進めてきた。最初に設計した分離システムでは必要量の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{147}Pm を抽出したあとに生じる廃液を再び再処理施設に戻すという考えから、濃度を段階的に増加した硝酸のみを溶離剤として使用するイオン交換分離法を採用した。この方法により原研再処理廃液 10 ℓ の処理に成功したが、この方法はイオン交換樹脂カラムの交換容量に限度があることから大量の再処理廃液を処理するには適当でないと判断された。このため Fig. 1 に示すような連続操作に適した溶媒抽出法と超プルトニウム元素や希土類元素の分離にすぐれているイオン交換法を組合せた総合分離システムを開発した。この方法では再処理廃液を脱硝して酸性度を下げ、約 0.1 NHNO_3 として HDEHP (di-(2ethyl hexyl) phosphoric acid) で希土類元素および超プルトニウム元素を抽出する。次に pH 5.5 に合わせて ^{90}Sr を抽出する。残留する主な RI である ^{137}Cs はゼオライトに吸着させる。有機相から硝酸で逆抽出した希土類元素と超プルトニウム元素は溶液を脱硝後、イオン交換カラムに吸着、その後 DTPA (diethylene triamine pentaacetic acid) を溶離剤として分離精製する。この方法による分離装置を RI 製造棟ケーブ内に設置し、模擬再処理廃液を用いてのコールド試験を実施した。2, 3 の改善すべき点はあったが基本的には予期した結果が得られ、約 1 kCi の再処理廃液を使った実験にほとんどそのまま移行できると考えられる。しかしそれに先だって α 放射体の漏洩防止のための同ケーブの気密化のための改造と装置の破損防止のためのガラス部品のステンレス製への改良が必要でありこのための準備を進めている。

総合分離システムの各素工程での細部にわたる研究も併行して行なっている。ギ酸を使用する脱硝操作では、ギ酸添加量と硝酸分解量および沈殿生成量の関係、白金元素の影響、分解反応促進剤としての亜硝酸ナトリウムの添加効果等を、溶媒抽出法では抽出剤の耐放射線性、希釈剤の効果、希土類元素の抽出による水相中の酸濃度変化、より高い酸性溶液からの超プルトニウム元素の抽出に適した抽出剤の開拓等を、イオン交換法ではポーラス型樹脂の分離性能と耐放射線性、加圧カラムの開発、有機相から樹脂へのイオンの直接吸着等をそれぞれ検討した。これらの研究はいずれも強放射線下での核種の分離効率を高め、安全性の高い群分離法を確立するもので分離装置の開発と併せて今後も引き続き実施する。

2.2 分離した RI の固化

利用開発室では核燃料再処理廃液に含まれる ^{90}Sr および ^{137}Cs が分離された場合の利用および処分時に必要な固化技術についての研究を行ってきた。 ^{90}Sr については、45~47年度にわたる 3ヶ年計画の下で、熱源調製技術の開発を行った。固化体に適した化合物としてチタン酸ストロンチウム (Sr Ti O_3) を選び、その合成法および固化法について実験室規模で一連の工程を確立した。すなわち、原料の炭酸ストロンチウムと二酸化チタンの混合物の仮焼合成から成形、焼結

に至る工程の検討を行い、ケーブの整備、合成装置の試作等を行った。

また、この研究の経験から、危険性の高い放射性粉体の取り扱いをさげ、より安全な固化技術の開発を目的として、新規な合成法および固化法の研究を引き続いて行った。これらの合成法の比較をFig.2に示す。原料として硝酸ストロンチウムとメタチタン酸を用いることによってチタン酸塩がより低温で合成できることから、金属製の反応器内で一連の工程を進めることを可能とした。このため、従来法で必要であった各工程での試料の装置間の移送の機会を減少させた。また、成形に際してもスラリーの脱水によって得た成形体をそのまま焼結する方法を試み、これに適したジルコニヤ多孔質ルツボの試作を行った。

^{137}Cs については、従来から固化に適した化合物として絶対的なものがなく、化合物の選定のための研究が行われている。利用開発室ではセシウムの固化に適していると考えられる次のような化合物について耐熱性、水に対する溶解度等化学的及び物理的性質の検討を行っている。

ケイタングステン酸を用いた場合には、溶液中のセシウムを沈殿として取り出すことが可能である。この化合物は 1000°C までの耐熱性があり、焼結体の水への溶解度も非常に小さい(20°C において 0.002%)。

リン酸ジルコニウムによるセシウムの固化体の耐熱性はおよそ 1100°C であり、水への溶解度は 2.4% である。

ゼオライトを用いてPolluciteに合成する方法では、アンモニア置換型のゼオライトをセシウム溶液に加え、蒸発乾固して仮焼する方法で、溶液中のセシウムを全量処理する方法を研究している。この化合物は 1200°C までの耐熱性があり、水への溶解度も比較的小さい。

2.3 グロス固化

最近、高レベル廃棄物管理に関する国際的な動きも急速に活発化しており、わが国においても管理技術開発に本格的に取り組む体制が確立しつつある。このような状況のもとで、環境安全研究室では、48年度から技術開発を進めている。すでに50年度までに、高レベル廃液ガラス固化予備試験(1)固化素材の開発、(2)廃液の前処理とオフガスの分析・捕集、(3)溶融するば材料選定試験、(4)エアリフトポンプによる高粘度懸濁液の輸送試験)、ガラス固化試験装置の整備・試験、ガラス固化体の安全性試験(1)ケイ素、ナトリウム、セシウムの浸出性、(2)固化体の熱的特性)、セラミック固化予備試験などの試験を終えた。

51年度の主な成果は次に述べるとおりであるが、このほか固化体の耐放射線性試験、容器封入試験も実施中である。また52年度からは高レベル廃棄物の地層処分時の安全性研究を実施する。

(1) 高レベル廃棄物固化試験装置の整備、試験

すでに試験を実施中のガラス固化試験装置にセラミック固化、仮焼、オフガス処理試験用の装置を接続し、全体を高レベル廃棄物固化試験装置として整備した。この装置は安全性試験に供する各種固化体の作成が主な目的であるが、併せて、ロータリキルンによる仮焼方式、ホットプレス法によるセラミック固化方式、揮発ルテニウムの捕集、窒素酸化物除去などのオフガス処理方法などの試験が実施できるものである(Fig.3)。

セラミック固化系は総圧力10 ton、最高温度 1200°C のホットプレス装置を備えており、ゼオライトを添加剤としたセラミック固化試験を実施中である。仮焼系はロータリキルン(SUS-310S

製、内径120mm、長さ2970mm)を備え、回転(最高50rpm)させながら、3段の加熱炉(12+4+4kW)で最高650°Cに加熱できる。動燃模擬廃液による試験を実施し、良好な結果を得た。

今後も、この装置を用いて各種固化体を作成し、総合的な安全性試験を進めていく予定である。

(2) ガラス固化体の熱処理による浸出性への影響

ガラス固化体の貯蔵、処分時には含有廃棄物から発生する崩壊熱のために、固化体内部はかなりの高温になると推定されている。本試験は、高温時で発生すると考えられる失透が固化体の浸出率にどのような影響を与えるかを検討したものである。

実験では、模擬廃液として14種の元素を用いた非放射性溶液を使用し、実験室規模装置とベンチスケールの装置によって、種々の条件下で試験用ガラス固化体を作製した。熱処理は粉碎固化体を720°Cの電気炉内に100時間～250時間保持して行った。この熱処理温度は熱的特性試験の結果によって失透が最も発生しやすい温度として決めたものである。浸出試験はJIS-R-3502に準拠した粉末煮沸法を用い、ガラスの構成成分であるケイ素、ナトリウムと廃棄物成分の最も代表的成分であるセシウムについて測定した。

その結果、熱処理による浸出率は、処理時間、固化体中の廃棄物含有率、ナトリウム含有率が増えるほど増加することがわかった。その増加の程度はガラス固化体の種類により異なるが、多くて3～4倍であった。

2.4 密封技術

製造課においては ^{60}Co 、 ^{192}Ir 、 ^{198}Au 、 $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 等の密封線源の製造のため遠隔操作による密封技術を確立した。これまでの製造経験はTable 1のようである。再処理廃液の固化体の密封においてはキャニスターの大きさ等においてRI線源の密封技術と多少異なる点もあるかと思われるが、基本となる技術は共通であると考えられる。次に各種線源の製造経験に基づいて密封技術の開発状況を述べる。

1) 密封容器の材質と形状

カプセルの材質としては次の条件を考慮して選択した。①耐蝕・耐熱性である。②機械的強度が高い。③密封時の溶接性に優れている。④低エネルギー放射体にたいし γ 線の吸収が小さい(^{170}Tm 線源)⑤諸外国での経験が豊富である。⑥低価格で入手しやすい。以上の理由からTable 1に示す材質を選んだ。線源の大きさについてもTable 1に示した。米国において開発されている固体廃棄物のキャニスタも300 typeステンレス鋼であり ^{192}Ir 、 ^{60}Co 大線源に使用しているものと同種である。また廃棄物処理において問題となっている超ウラン元素は希土類元素と化学的性質が類似しており、 $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 線源の製造経験は分離後の超ウラン元素の成形密封技術の開発に有効であると考えられる。

2) 溶接方式および溶接治具

遠隔操作溶接治具の設計製作が比較的容易なタングステンアーク溶接法(直流TIG溶接)を採用した。

溶接治具の主な構成はカプセル支持用チャック、トーチ支持部からなり、チャックは最大80回/minまで自由に遠隔により回転数を選ぶことができる。トーチ支持部はX、Y、Z軸にネジ式

移動方式でマンプレータによる位置の調節が可能な構造である。

溶接条件は、①電流、②放電時間、③回転数、④ガス流量およびパージ時間、⑤カプセル—電極棒間隔、等の相関関係から決まる。コールドで充分試験し条件を設定した上で作業を行った。カプセル電極棒間の位置調節は特に重要である。本装置ではこの位置決めをマンプレータ操作によっているため微妙な位置合せが困難であった。この点での精密な遠隔操作化が今後の課題となっている。

3) 溶接部の検査

前述のようにコールド状態で溶接条件を選ぶのであるが、その時の検査方法としては、溶接部の切断面の顕微鏡検査、X線写真検査、カラーチェック等一般の溶接箇所の検査法を活用する。そして溶接状態に十分再現性があることを確かめた上で実際の製造に着手する。

製品の全品検査法としては温水中での加熱による気泡試験および煮沸冷却をくり返すことによる放射性物質の漏洩試験が採用されている。この方法では気密性は検査できるが溶接部の堅牢性を調べることはできない。廃棄物固化体容器のように大型の容器であり、極端に長時間保管することを必要とする容器については溶接部の厚さ等堅牢性に関する試験が必要であろう。超音波探傷法やX線検査等の活用が考えられる。

2.5 高レベル放射性物質取扱施設の設計建設

昭和35年度にRI製造棟の建設に着手し、41年度にはほぼ完成した。本建家のホット区域の延面積は約1400m²であり、同区域はRIの定常製造のために使用する高レベルのRI取扱用セルのあるホット区域とセミホット実験室のあるセミホット区域に分けられている。主な設備としては重コンクリートケーブ3基、鉛遮蔽10cmのセル22基、5cmのセル26基がある。

また管理方式の特徴としては、放射性物質の移動経路と人が常時作業する区域を分け汚染の拡大を防いでいることである。

本施設の設計および建設担当者はRI製造作業にも参加し、常に使用状態を知り機能性を確めながらさらにそれぞれの使用目的に合致した施設に改造したり増設したりしている。

代表的な増設施設としては⁹⁹Mo製造施設があげられる。同施設はウランを照射し、硝酸に溶解したのち有機溶媒で⁹⁹Moを抽出する施設であり、毎週約1000CiのFPから20Ciの⁹⁹Moを定常製造する。現在定常化のための取扱量増加の過程にある。この施設は放射性ヨウ素および希ガスの漏洩を防ぐため α 放射体取扱施設と同等の気密度を備えたケーブ1基、セル4基および大小9基の廃液タンクからできており、再処理施設の小型施設と考えられるような施設である。

群分離技術開発のための施設およびそこでの作業内容はFig.4のようであり、現在02ケーブの改造を実施中である。

02ケーブは β - γ 放射体化学処理実験用として41年度に建設されたもので、FPの分離実験に使用されてきた。

48年度には原研再処理廃液約10ℓを使用して⁹⁰Sr、¹³⁷Cs等の分離実験が実施された。さらに動燃団の α 放射体が含まれる再処理廃液kCi量を取扱うため、地下室に6基のタンクを新設するとともにケーブを気密構造に改造している。53年度には完成する予定である。

404号室01セルはマンプレーターを装備した鉛10cm厚の気密型セルで6基の附属タンクがあ

り、 α 放射体も取扱うことが可能である。

さらにこのセルに連結した位置に群分離後の固形化技術の開発用セルを建設する予定である。

なおこれらの施設建設に当って放射線漏洩テスト等決められた多くの試験検査を行っているが、一つの試みとしてアクチバブルトレーサーを使って、使用時の汚染状態をあらかじめ調べる技術についても検討している。

これらの施設の建設とその使用経験は、高レベル廃液の処理処分技術の開発施設として欠くことのできない、高レベル放射性物質取扱施設の設計建設に役立つものとする。

2.6 消滅処理

超長寿命の超ウラン元素を弱害化するための核反応としては (n, f) 反応が最も有望である。その場合中性子吸収断面積 (σ_a) と核分裂反応断面積 (σ_f) との比 (σ_f/σ_a) が大きいほどよい。そのためには中性子エネルギースペクトルが高エネルギー側によっていなければならない。したがって熱中性子炉である軽水炉における消滅処理は効率が悪い。経済性を重んじた通常の発電用高速炉においてもまだエネルギースペクトルが消滅処理の観点からは低すぎる傾向がみられる。そこで高速炉物理研究室では専焼炉について炉物理上の計算による検討を行った。

再処理によりPuおよびUを除いた超ウラン元素混合物のみにより原子炉を構成するとして、臨界量および各核種の燃焼率を計算した。設計条件はTable 2 のようである。臨界半径は約30cmであることがわかった。各核種の燃焼率はTable 3 のようであった。熱出力3000 MWのLWR 10基から生ずる超ウラン元素を燃焼させるのにこの専焼炉一基が必要である。専焼炉の熱出力は、1000 MWと見込まれる。専焼炉における中性子エネルギースペクトルは高エネルギー側によっており熱中性子炉におけるような中性子毒となる特殊な妨害核種はなくFPの除去率は80%程度であれば充分である。

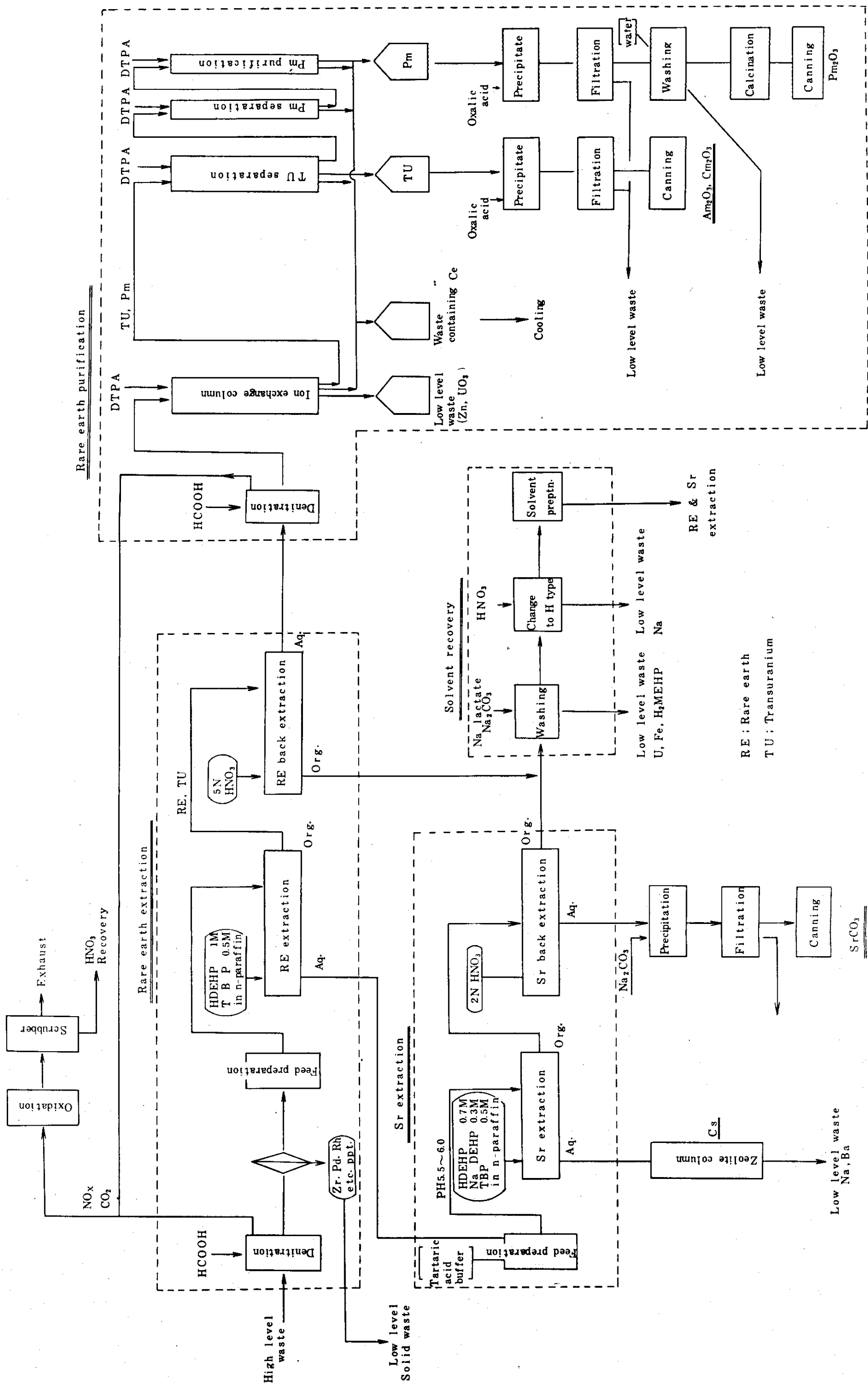


Fig.1 高レベル廃液からのラジオアイソトープの分離スキーム

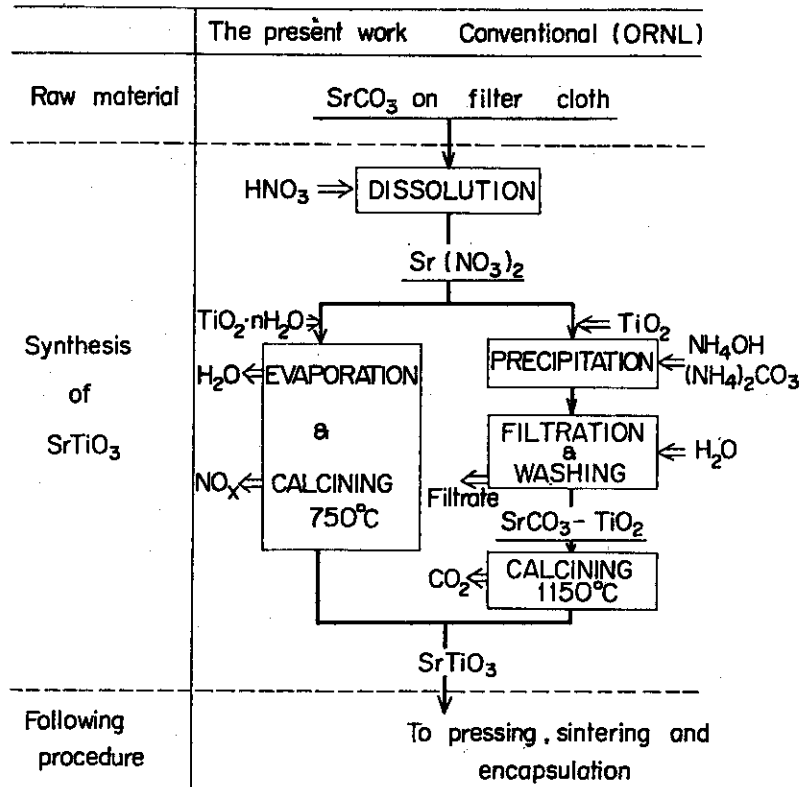


Fig. 2 SrTiO₃の合成法についてORNL法と原研法の比較

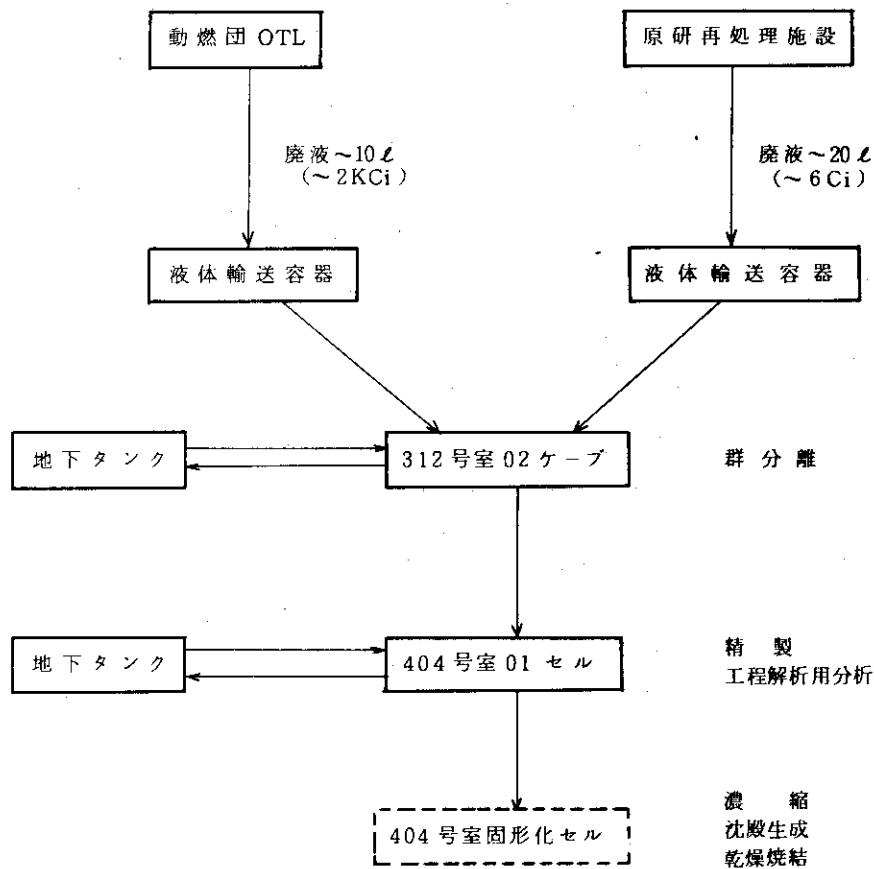


Fig. 4 群分離・固化実験フローシート

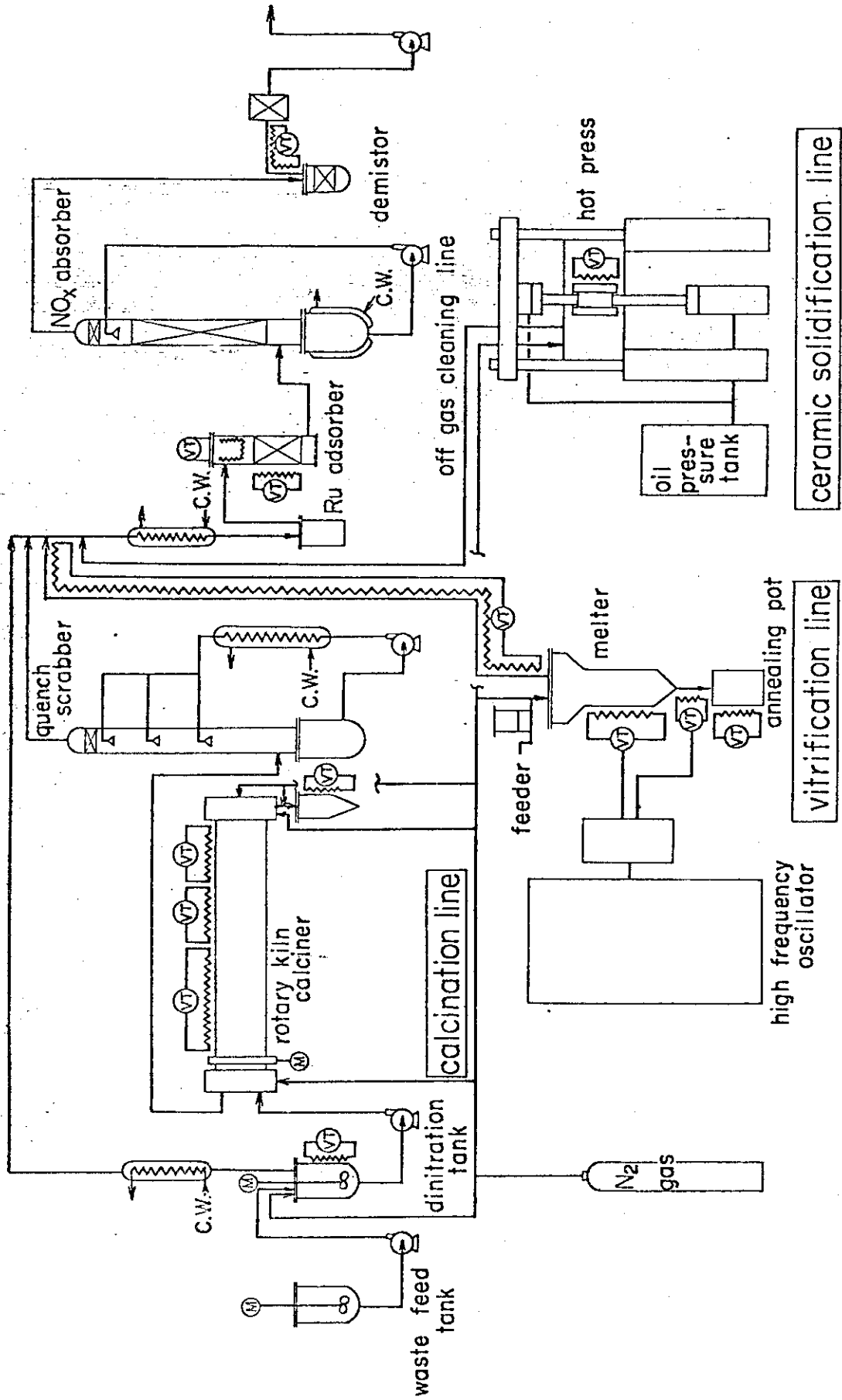


Fig. 3 高レベル廃棄物固化試験装置フローシート

Table 1 密封線源の製造実績

種類	線源強度 Ci/個	カプセル材質	溶接部 (mm)		密封前の線源の状態
			直径	容器壁厚	
^{60}Co	419	SUS-316 L	10	0.76	1mm ϕ \times 1mm厚の線源を Al インナーカプセルに封入
^{192}Ir	10	SUS-304	5	1.0	2mm ϕ \times 2mm厚
^{170}Tm	36	Ti	6	1.5	3mm ϕ \times 3mm厚 Tm_2O_3 を 0.2mm厚の Al ジャケット内に封入

Table 2 超ウラン元素専焼炉設計基礎データ

ABFR (Actinide Burning Fast Reactor)

Fuel : XO_2

Coolant : Na

Structure : SUS

ratio : fuel/coolant/structure = 40/30/30

 $K^\infty = 1.85$ Bare critical : $r = 30.0$ cmMass coeff. = $2.2\% \Delta k/k/\text{cm}$.

Fuel dep. coeff. : BOL = 1.

EOL = ?

Table 3 専焼炉中での燃焼率

Nuclide	depletion in %	depletion in kg
^{237}Np	-4.5	-1.75
^{238}Pu	+640.0	+6.70
^{239}Pu	-7.8	-7.17
^{240}Pu	-0.7	-0.22
^{241}Pu	-8.2	-0.7
^{242}Pu	+5.0	+1.1
^{241}Am	-3.6	-5.5
^{243}Am	-3.0	-2.4
^{243}Cm	-34.0	-2.2
^{244}Cm	+7.0	+0.4
the other actinide		+0.36
		-3% Δk

3. 高レベル廃棄物処理処分技術開発の現状と問題点

3.1 廃棄物の種類と量

米国のプルトニウム拡散防止政策による再処理の中止あるいはU-Puの混合燃料、さらにはトリウム燃料サイクルなどへの移行を考えると、廃棄物の種類は変る可能性はある。しかしこれら燃料サイクルを考えたときの廃棄物については十分なデータがなく推定するのが困難であるので、ここでは現実に存在する軽水炉—Purex法再処理を考えたときの廃棄物の年間発生量をTable 4に示した¹⁾。同表は750 ton/yearの割合で燃料を再処理したときの値である。わが国の再処理予定数量は1985年までは210 ton/year、1990年には1,710 ton/yearを予定しているため、比例計算により大略のわが国の廃棄物発生量を推察することができる。

本検討会が討議の対象としている主な廃棄物は高レベル廃棄物であり、同廃棄物の代表的組成はTable 5のようである²⁾。わが国が保有する唯一の高レベル廃液は原研の再処理試験施設の廃液であり、Table 6の左欄の濃度の溶液が約11m³ある³⁾。近い将来得られる可能性がある動燃団の廃液組成は右欄に示す組成であると推定される⁴⁾。同廃液の特質は溶媒洗液を混合貯蔵するためNa量が多い点である。

3.2 グロス固化

高レベル廃液中に含まれる水および硝酸を除き、仮焼して硝酸塩を分解し酸化物としたのち、ガラス素材を加えてガラス化する、あるいはセラミック素材を加えセラミックとする。さらに熱伝導性、浸出性を改善するため多重構造体とすることも考えられている。現時点ではガラス固化体を最終固化体とする考え方が大勢を占めている。次に各工程ごとに技術開発の状況を簡単に述べる。

i) 仮焼

蒸発、加熱装置についての技術開発が主体であり、次のような方法が検討されている。

- イ) ポット仮焼……同一容器内で蒸発乾固し、加熱して硝酸塩を分解する。ガラス化も同一容器内で行う。
- ロ) スプレー固化……加熱した容器内に廃液を噴射して蒸発・硝酸塩分解を同時に行う。固形媒体を使い流動床とする方法もある。
- ハ) ロータリーキルン……加熱回転ドラムの中で蒸発、硝酸塩分解を行う。

これらの方法についての各国の開発状況はTable 7のようである。

仮焼時に¹⁰⁶Ruの揮発が問題となるので、これを防ぐため仮焼処理の前処理としてギ酸で硝酸を分解する方式が開発されている。

ii) ガラス化と固化体の改良

¹³⁷Cs等の揮発を防ぎ、溶融炉材の腐蝕を少なくするためできうる限り低温で溶融すること、浸出率が低いことなどがガラスの種類を決める条件である。各種のガラスが検討されているがホウケイ酸ガラスが現在最も有力である。仮焼体とガラス固化体との特性の比較をTable 8に示す²⁾。

熱伝導度および浸出率がガラス化することにより著しく改善される。浸出率の高い核種は ^{137}Cs および ^{90}Sr であり、その程度はFig. 5⁵⁾に示すようである。

ガラス固化体の自己発熱による熱的影響として失透現象があげられる。失透により浸出率は約10倍になる。失透は700°C付近で最もよく進行し500°C以下では非常に遅いと考えられている。失透の原因となる主な結晶はケイ酸亜鉛(Zn_2SiO_4)、モリブデン酸塩($(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})\text{MoO}_4$)および尖晶石相($\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Zn}, \text{Ni}$ 等の酸化物)である。そのほか浸出を助ける原因として機械的衝撃や熱衝撃による亀裂があげられるが、それによる表面積の増加は10倍以下である⁶⁾。

放射線の影響については、貯蔵初期の数年間においては崩壊熱の影響が大きいがその後は放射線自身の影響が主体となる。特に α 放射線の影響が大きいと考えられ ^{244}Cm ($t_{1/2}=18$ 年)を添加して長期に受ける α 放射線線量と同じ線量が短期間で得られるようにして試験が行なわれている。

主な試験項目は蓄積エネルギー、密度、浸出率、物理的強度、 α 崩壊から生ずるHeの挙動である。ガラス固化体中のHeの拡散係数は25°Cで $2.5 \times 10^{-2} \text{ mm}^2/\text{s}$ であり、キャニスタ中のガス圧は 10^4 年で約100 kg/cm²となると推定される。蓄積エネルギーは26 cal/gであり、密度は照射量にはほぼ比例して上昇し100年相当で0.7%増加する。浸出率および強度は約500年相当の自己 α 放射線照射では変化がない⁶⁾。

固化体の性状改善としては熱伝導率増加と浸出率低下が主な目的となっている。熱伝導率の改善のためにはガラス固化体をビーズ状にして溶融金属内に入れる方法が開発されている。浸出率を高める原因となっているものとしてセシウムとモリブデンがあげられるがセシウムはPollucite($\text{CsAlSi}_2\text{O}_3$)とし、モリブデンはモリブデン酸ストロンチウム(SrMoO_4)として結晶化し、低浸出性とする方法が開発されている⁷⁾。さらにストロンチウムとセシウムはゼオライトに吸着し、超プルトニウムはチタン系吸着体に吸着させほかのFPから分離し、吸着体を焼結する方法なども開発されている⁸⁾。

各国でのプラント規模での技術開発の状況はTable 7のようであり、処分用固化体としてはガラス固化体を考えている。

3.3 中間貯蔵および貯蔵容器

Purex法による再処理工程において、高レベル廃液はステンレス鋼製の廃液タンク内に貯留し短寿命核種の減衰を待つ。最初の5年間で急速に減衰し、10年経過すると大部分の放射能は ^{90}Sr と ^{137}Cs (半減期約30年)となり、減衰速度は極めて緩慢となる。したがって最初の5年間は冷却が容易な液体状で貯蔵するのがよいと考えられる。また廃液の処理処分法が確立していない現状を考えると多種類の処理法に適應しやすい液体状での貯蔵は有利である。

ステンレス鋼タンク内での貯蔵経験は先行諸国においては20年以上の経験がある。米国のIdaho⁹⁾における実廃液貯蔵後のステンレス鋼タンクの腐蝕状況を調査した結果はTable 9のようである。この結果より腐蝕速度は1 mil/year以下であることは十分保障できる。

しかし地震等外力による機械的破壊の危険性および破損した時の汚染の拡大性を考えると可能な限り早く固化して貯蔵することが望まれる。

固化体にしたのちにおいても永久処理処分法が定まらない現時点においては回収可能な状態で

貯蔵するのがよいとされている。

米国においては各種の貯蔵方式が検討されており、その結果をまとめたものがTable 10である。大別して i) 空冷地上保管, ii) 空冷地下保管, iii) 水中保管 である。人口密度が高く、国土の狭いわが国においては ii) および iii) が有望である。永久処分場が決った場合には、同処分場において監視しながら回収可能な状態で保管し、安全が確認された時点で永久処分のため、埋込み密閉処理を施すのがよいと思われる。

米国において考えられているキャニスタはFig.6に示す容量200ℓのステンレス鋼製容器である。1本当たりの発熱量は約5kWであり、中心温度がガラスの軟化点700℃となることを予想している。発熱量の時間変化はTable 11のように推定される。キャニスタは保護容器の中に入れて二重構造で貯蔵されるので、キャニスタの表面温度は数百℃となる。溶融ガラス(1050℃)によっても容器(SUS304L)の腐蝕は2.5mm/月程度であった。各種の条件でガラス固化体を数年間貯蔵したのち容器壁面に穴を開け金相学的な試験をした結果によると、キャニスタの内外共腐蝕は非常にわずかであった。腐蝕が見出されたものについてみると特に問題になるのは応力腐蝕である。⁶⁾

3.4 永久処分

各国とも2000年代には定常的な処分を行うことを目標として調査、試験を急いでいる。陸地深地層処分を中心に考え、海洋底基盤(玄武岩)への埋設についても調査が進められている。

各国が主に調査検討を進めている陸地深地層はTable 12のようである。岩塩層は水の浸入がないとの理由から、岩塩層のある国はいずれも有力候補として検討している。次に地殻の安定している花崗岩や硬質岩が挙げられている。一方可塑性に富み亀裂等不慮の水脈が出来難い粘土層も捨て難い候補となっている。

海洋底処分の候補地としては、海盆中央部の深海域がよいとされ、米国においてはハワイ群島の北約1,500 km (30°N, 158°E) や大西洋のバーミューダ島の西方約800 km (33°N, 58°W) などが候補海域となっている。英国も高レベル廃棄物の海洋底処分に強い関心を持っている。¹⁰⁾

地層処分時特に問題になるのは放射能による発熱により温度上昇が起り、地層の性状を変える可能性があることである。Fig.7に1本当たり約4kW(ウラン約4トン分)の固化体を入れ岩石中に埋めたときのキャニスタ間の距離とキャニスタ表面の温度の関係を示す。この図より約10mの間隔をおけばよいことがわかる。この間隔で埋設するとすると1GWの発電量に対しキャニスタが約10本、約1000m²の土地面積が必要である。¹¹⁾

3.5 群分離

高レベル廃棄物のHazard Indexの時間変化はFig.8のようであり、約500年以後のHazard Indexを上げている主な核種は²⁴¹Am, ²⁴²Cm等の超ウラン元素である。¹²⁾

これ等超ウラン元素を分離することにより、廃棄物の処分を簡易化し、他方分離した超ウラン元素は消滅処理等特別な処分をすることができる。

分離法としては溶媒抽出法とイオン交換法を組み合わせた方法が最も有力であるが、未だパイロットプラント規模で実施できるようなまとまった方法は見出されていない。しかし⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs

については米国の Hanford において実規模で分離が実施されている。分離した ^{90}Sr , ^{137}Cs は水中で工学貯蔵され、残りはタンク内でケーキ状で貯蔵されている。

超ウラン元素はカルホルニウム等さらに原子番号の多い核種の製造を目的として、再処理工程から分離する方法が検討された。ネプツニウムは原子価を調節することによりウラン、プルトニウムと同時に TBP 中に抽出し、ウラン精製系で回収する。アメリカニウム、キュリウムも硝酸アルミニウムの高濃度溶液から TBP で抽出することができる。¹³⁾

高中性子束炉で照射した超ウラン元素の相互分離には塩化リチウム系で高分子アミンによる抽出分離法が使われている。

塩素イオンを含む系はステンレス鋼が使えないこと、高塩濃度系は廃棄物量を増すことから上記2法は廃液処理法としては使用し難い。その後 DEHPA (di (2 ethyl hexyl) phosphoric acid) を使った Talspeak process が開発された。¹⁴⁾ さらに高レベル廃液の酸濃度をできる限り変えないで超ウラン元素を抽出するため、DBBP (di butyl -butylphos phato) などの溶媒も検討されている。

希土類元素と超ウラン元素は化学的性質が非常に類似するため、錯化剤によるわずかな錯塩形成定数の差を利用して分離する。錯化剤としては DTPA (diethylene triamine pentaacetic acid) NTA (nitri lotriacetic acid) などが使われる。

イオン交換樹脂および上記有機リン酸系エステルは放射線により分解され、それぞれ約 1×10^6 Rad, 1×10^7 Rad 以上の照射線量には耐えられない。約5年間貯蔵した高レベル廃液中の放射線線量率は約 5×10^6 Rad/hr で数時間～数十時間で上記線量に達することを考えると、かなりの頻度で交換する必要がある。そこで無機イオン交換体法や沈殿法が耐放射線性的方法として期待される。セシウム、ストロンチウム分離用の無機イオン交換体としてはゼオライトがある。¹⁵⁾ 超ウラン元素についてはチタン酸を使う試みがなされている。

群分離する時点としては、2～5年貯留し短寿命 RI の減衰を待つことが考えられているが、米国においては既に多量の仮焼固化体の蓄積があるので、同固化体を溶解して超ウランを分離することを考え、固化体の溶解法が検討されている。¹⁶⁾ その結果によると濃硝酸にフッ化水素を加え加熱することにより約70%溶解することができるが、90%以上溶解するにはアルカリ溶融等の激しい方法によらなければならない。

群分離を考える場合、溶液中にイオン状で存在する超ウラン元素のみでなく、沈殿、容器に吸着した状態で存在するものについても考慮しなければならない。このような状態で存在する量の測定およびその溶解に関する研究も重要な課題としてとりあげられている。

3.6 消滅処理

再処理廃液中に含まれる長寿命核種を短寿命核種に変換する考え方は1964年頃に始まった。初期においては ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{85}Kr 等も消滅の対象核種として挙げられていたが現在は超ウラン元素のみが対象核種として考えられている。計算によるシステムサーベとそれに必要な基礎的な核データの集積が進められているのが現状であり、原理的な検討に留まっている。

消滅処理システムとして成り立つための主な条件は次のようである。

- i) エネルギーバランスが成り立つこと

- ii) 核種変換が自然崩壊より早いこと
- iii) 最終廃棄物量が増加しないこと
- iv) 弱害度が大きいこと

以上の考え方から高速炉に超ウラン元素を recycle させる方法が最も有力な方法としてあげられている。この方法により再処理廃棄物の長期保管後の Hazard Index を約 $\frac{1}{50}$ に減少させることができる。¹⁷⁾ さらに安全性および効率性を考え、2.6 節で述べたように超ウラン元素のみにより原子炉を造り専焼炉とする提案もなされている。

また高エネルギープロトンにより Cascade spallation 反応を利用した方法の提案もある。反応原理は 1964 年に見出され、水力発電の余剰電力をプルトニウムとして貯蔵する方法として研究が進められた。リニア-アクセレータで加速した 1 GeV のプロトンを ^{238}U に照射すると Cascade spallation で 2 MeV 中性子が 50~100 コでき、その中性子で ^{239}Pu を製造する。このときの核反応による発生エネルギーとリニア-アクセレータの消費電力はほぼ同じであり、電力収支ゼロで ^{239}Pu ができる。ウランターゲットを超ウランにおきかえて消滅処理システムとして活用する考えである。

1977年3月にはイタリアの ISPRA 研究所で消滅処理に関する国際専門家会議が開かれ活発な討論がなされている。

3.7 固化体の危険性

高レベル廃棄物の危険度の尺度として、Hazard Index が主に使われているが、固化体の毒性を一般の毒物と比較してどの程度のものであるかを知り、固化体の浸出率、地層中での浸出した RI の吸着を考慮した毒性評価を行わなければ、適切な固化体の危険性評価とは云えない。このような立場から次のような報告がなされている。

i) 固化体と一般毒物との比較

一般毒物の致死量と固化体の致死量を比較し Table 13 に示す。¹¹⁾ 10年後の固化体の致死量は青酸カリの約 $\frac{1}{20}$ であるが 500年後になれば通常の化学試薬として使われている硝酸ニッケル以下の毒性となる。また発ガン性物質として考えると 1000 年後の固化体は水銀の $\frac{1}{10}$ 程度の毒性である。¹⁸⁾ 以上のように 10年後程度の貯蔵期間の短い固化体は強い毒性を持つが ^{90}Sr , ^{137}Cs が減少する 500 年後の固化体は致死量から考えるかぎり一般に使用されている毒物のような強い毒性はない。

500年後の 1g の固化体を飲んだときの一生 (50年) の間に骨に受ける被曝線量は約 25 rem であり、自然放射能から受ける約 6 rem の約 4 倍である。キャニスタから 10m 離れた位置での線量率は約 100 mR/hr である。¹¹⁾ このように固化体の毒性は一般の毒物とあるいは自然放射能と比較すれば軽微な毒性といえよう。しかし放射性物質に対する一般人の恐怖、これまで自然に存在しなかったものであり、今後どのような毒性が見出されるか不明であること、一般の毒物は化学形を変えれば毒性がなくなるものが多いが、放射性物質は容易に消し去ることができないことなどを忘れてはならない。

ii) 各核種の地中移動速度

アフリカのガボン共和国オクロ鉱山に 10^9 年前天然の原子炉が存在したと推定されている。その地域の各元素の同位体分析をすることにより、各核種の移動の様子を知ることができた。その結

果セシウム、ストロンチウムは移動しているが希土類元素など重い元素は移動していないことがわかった。¹⁹⁾

Burkholderらは米国における2000年度までに蓄積する原子力関係施設から出る全ての廃棄物を固化体として地層処分したとき、固化体が溶解し地中を拡散し生態圏に入った時の体内摂取による被曝線量を計算した。²⁰⁾計算に当って固化体の溶解速度は0.3%/yとし、土壌に対する各元素の吸着平衡定数をTable 14のように定める。水の移動速度は0.3m/yとし、移動する層の厚さは160mとして計算した。計算結果をTable 15に示す。自然放射能による線量6rem以上になるのは ^{14}C が浸出してくる約1550年後の肝臓の被曝線量62remと 1.46×10^4 年後の ^{237}Np (^{241}Am , ^{245}Cm , ^{241}Pu の娘を含む)による骨の被曝線量12remである。

海洋底に処分したときに放射性物質が各障壁を通過する期間はTable 16のようであると推定されている。¹⁷⁾各核種の移動速度を考慮すると生活圏に入るまでに長期間を要し、危険度は非常に小さくなる。しかし次に述べる拡散防止障壁の破壊現象がある確率で起ることを忘れてはならない。

iii) 障壁破壊の確率

上記安全解析においては地層は安定し変化はないものとしているが、地震による地殻変動等自然現象による拡散地層の変化、地下資源の開発のための掘削等による人工的な地層の破壊の確率がないとは云えない。このほか容器の破損、固化体への溶岩の接触による浸出性劣化等そのほかの障壁に対しても破壊・劣下が起る確率がある。このような現象を系統的に抽出する方法としてFault Tree Analysisが活用されている。固化体の地層処分に対しこの方法により77の原因が抽出されている。¹⁷⁾

各原因の起る確率とその現象により障壁の破壊される程度を知ることにより、処分地区から生態圏に浸出して来るRIの量を知ることができる。しかし各原因の起る確率を正確に知ることは非常に困難であり、今後これらの数値の精度をどのようにしてあげるかが重要な課題である。

3.8 各種委員会の概要

諸外国においては以上のような活発な技術開発が実施されているのに対し、わが国においては未だ本格的開発体制は整っていない。しかし委員会活動は比較的活発である。

昭和46年8月より約2年間にわたり、原子力産業会議主催の「核分裂生成物等総合対策懇談会」(FPC)が開かれた。大略次のような結論を得ている。

FPの利用：群分離して貯蔵保管し、必要に応じ製品化する。しかし現時点においては、FPの蓄積量に見合う需要はない。

処理処分：グロス固化技術の確立を早急に行い、さらに優れた方法として群分離固化技術の開発が必要である。

消滅処理： ^{85}Kr , ^{90}Sr , ^{137}Cs , 超ウラン元素の消滅処理が可能である。実用化までには多岐にわたる困難な研究開発が必要であるが、今後開発を進める価値がある。

昭和50年7月から約1年間、科学技術庁主催の「放射性廃棄物対策技術専門部会—研究開発分科会—高レベル廃棄物ワーキング・グループ」が開催された。当面緊急を要する技術開発と永久処分方式確立のための研究開発に分けて研究課題が整理され、Table 17, 18に示すような実施計画書が作成された。これによると、動燃団に固化プラントを建設し60年度にホット運転を開始す

る。これと並行して代替法に関する基礎研究を進め60年度に Check and Review を行う。これらの研究開発を進めるため動燃団に高放射性物質処理技術開発施設 (CPF) を建設し、57年度からホット運転に入る。

原研内の委員会としては廃棄物処理処分研究委員会中に高レベル小委員会が設けられている。同委員会は49、50年度は基礎的問題について検討し、51、52年度は応用的問題について検討を進めている。

Table 4 核燃料再処理施設からの放射性廃棄物の年間発生量 (U処理量750 ton/年)

	Low Specific Activity Waste												Total Volume 111,125
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	
	Intermediate Level Waste						Alpha Waste						
	High Level Waste	Leached Hulls	Salts	Slurry	Resin	Equipment	HEPA Filters	Solvent	Combustible	Combustible	Slurry	Salts	
Original quantity (ft. ³)	1,400	9,200	4,800	1,635	730	10,360	2,000	200	17,000	35,000	23,300	5,500	
Percent of total	1.3	8.3	4.3	1.5	0.6	9.3	1.8	0.2	15.3	31.5	21.0	4.9	
Physical form	Solid	Solid	Slurry	Slurry	Solid	Solid	Solid	Liquid	Solid	Solid	Slurry	Slurry	
Chemical form	Calcine oxide of MFP and added inerts	Zr alloy or stainless steel	Sodium nitrate 40% solution + mercuric iodate	Filter aid	Organic and mineral resins	Metal	General dust on glass filter	Diluent TBP	Paper, cloth, rubber, plastic, miscellaneous	Same	Water treatment, sludge, CaF ₂	Sodium nitrate 40% solution	
Radio-activity (ft. ³ /final volume)	99.95% of activity in fuel. ~1 x 10 ⁵ Ci of mixed FP/ft. ³	0.05% of activity in fuel. 500 Ci ⁶⁰ Co/ft. ³	20-40 Ci of mixed FP. 0.01 Ci 129I. <0.1 g Pu/ft. ³	1-10 Ci/ft. ³ MFP. <10 nCi Pu/g	1-10 Ci/ft. ³ MFP. <10 nCi Pu/g.	<1,000 mr/hr. <10 nCi Pu/g.	1-500 mr/hr. <0.5 Ci β/ft. ³ 75% <10 nCi, 25% ~5 mCi Pu/g.	>100 Ci ft. ³ MFP. <10 ~Ci Pu/g.	~500 mr/hr. ~3 g Pu/ft. ³	<200 mr/hr. <10 nCi Pu/g.	<200 mr/hr. <10 nCi Pu/g.	<200 mr/liter <10 nCi Pu/g.	
Process	Calcine	—	DRY	DRY	Concrete	Decon-concrete as necessary	Compaction	Burn or distill	Compaction	Compaction or incineration	—	Dry or absorb	
Shipping container	1 ½' x 15' canisters	Steel canisters	Steel canisters	55-gal. drums	55-gal. drums	Special container as required	Special container or drum	Mix with LLW waste	55-gal. drums	55-gal. drums	55-gal. drums	55-gal. drums	
Final volumes (ft. ³)	2,800	9,200	4,300	1,470	1,460	15,500	500	10	3,700	7,000	20,700	5,000	
Percent of total	3.9	12.8	6.0	2.0	2.0	21.6	0.7	0.01	5.2	9.8	28.9	7.0	

Table 5 高レベル廃液中に含まれる主な物質

Material ^b	Grams/t from Reactor Type ^a		
	LWRC	HTCR ^d	LMFBR ^e
Reprocessing chemicals			
Hydrogen	400	3,800	1,300
Iron	1,100	1,500	26,200
Nickel	100	400	3,300
Chromium	200	300	6,900
Silicon	-	200	-
Lithium	-	200	-
Boron	-	1,000	-
Molybdenum	-	40	-
Aluminum	-	6,400	-
Copper	-	40	-
Borate	-	-	98,000
Nitrate	65,800	435,000	244,000
Phosphate	900	-	-
Sulfate	-	1,100	-
Fluoride	-	1,900	-
Subtotal	68,500	452,000	380,000
Fuel product losses ^{f,g}			
Uranium	4,800	250	4,300
Thorium	-	4,200	-
Plutonium	40	1,000	500
Subtotal	4,840	5,450	4,800
Other transuranium elements ^g			
Neptunium	480	1,400	260
Americium	140	30	1,250
Curium	40	10	50
Subtotal	660	1,440	1,560
Other actinides ^g	<0.001	20	<0.001
Total fission products ^h	28,800	79,400	33,000
TOTAL	103,000	538,000	419,000

SOURCE: U.S. Atomic Energy Commission, High-Level Radioactive Waste Management Alternatives, WASH-1297 (May 1974).

^aWater content is not shown; all quantities are rounded.

^bMost constituents are present in soluble, ionic form.

^c233U-enriched PWR, using 378 liters of aqueous waste per metric ton, 33,000 MWd/t exposure. [Integrated reactor power is expressed in megawatt-days (MWd) per unit of fuel in metric tons (t).]

^dCombined waste from separate reprocessing of "fresh" fuel and fertile particles, using 3,785 liters of aqueous waste per metric ton, 94,200 MWd/t exposure.

^eMixed core and blanket, with boron as soluble poison, 10% of cladding dissolved, 1,249 liters per metric ton, 37,100 MWd/t average exposure.

^f0.5% Product loss to waste.

^gAt time of reprocessing.

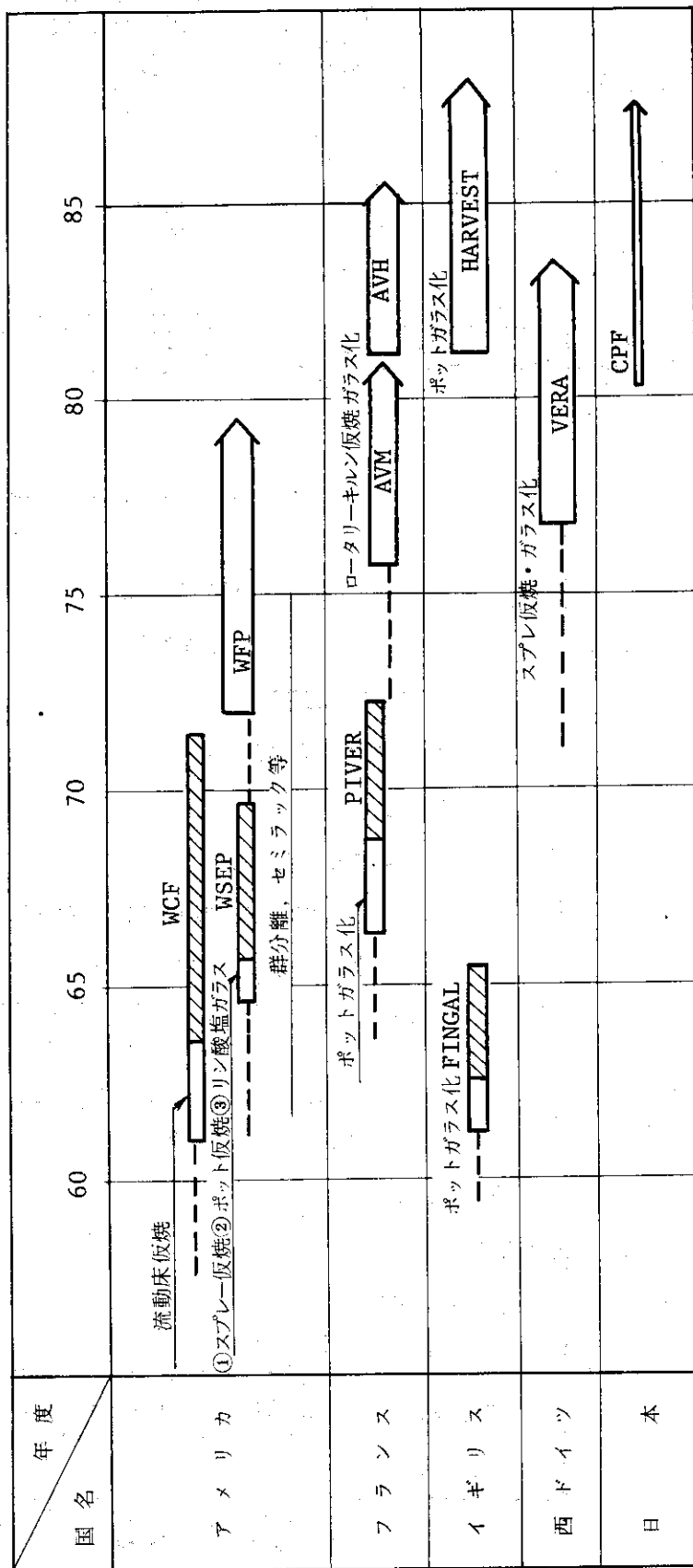
^hVolatile fission products (tritium, noble gases, iodine and bromine) excluded. Not all these are in fact considered volatile, e.g., ¹²⁹I is assumed to be present and is an important long-range nuclide.

Table 6 わが国の再処理廃液の組成

原 研 (実測)	動 燃 団 (推定)
³ H	Na 0.97 mol/l
⁹⁰ Sr	Rb 0.0066 "
¹⁰⁶ Ru	Cs 0.034 "
¹²⁵ Sb	Sr 0.016 "
¹³⁴ Cs	Ba 0.022 "
¹³⁷ Cs	Y 0.087 "
¹⁴⁴ Ce	La 0.016 "
¹⁴⁷ Pm	Ce 0.030 "
¹⁵¹ Sm	Hd 0.072 "
¹⁵⁴ Eu	Zr 0.067 "
¹⁵⁵ Eu	Mo 0.074 "
²⁴¹ Am	Fe 0.076 "
²³⁸ Pu	Co 0.0060 "
²³⁹ Pu	Ni 0.029 "
²⁴² Cm	Cr 0.0074 "
Na	Te 0.0076 "
Al	3.79×10 ⁻² mol/l
Fe	3.15×10 ⁻³ "
U	3.40×10 ⁻³ "
	7.26×10 ⁻³ "

(73.2.20 現在)

Table 7 各国の固化処理技術の開発状況



WCF: Waste Calcining Facility
 WSEP: Waste Solidification Engineering Prototype
 WFP: Waste Fixation Program
 PIVER: Pilot Incorporation de Verr
 AVM: Atlier Vitrification Marcoule
 AVH: Atlier Vitrification La Hague
 HARVEST: High Active Vitrification Engineering Study
 VERA: Verfestigung Hochradioaktiver Spaltproduktlösungen

Table 8 代表的な高レベル廃液固化体の性質

	Calcine	Borosilicate Glass
Form	Granular	Monolithic
Description	Amorphous	Black glass
Fission product oxide, mol %	Up to 90	Up to 30
Bulk density, g/cm ³	1.0-1.7	3.0-3.4
Thermal conductivity, W/(m ²) (°C/m)	0.15-0.4	0.8-1.2
Leachability at 25 °C, g/cm ² -day	1-10 ⁻¹	10 ⁻⁵ -10 ⁻⁷
Relative surface/volume ratio ^a	10 ⁴	1
Hardness	Soft	Very hard
Frangibility	Crumbly	Brittle
Residual nitrate, wt %	<4.0	<0.005
Volume, liter/1,000 MWdth	1.5-5.0	1.5-5.0
Maximum stable temperature, °C	600	600 ^b

SOURCE: Summary of data presented to NAS-NRC Panel on Engineered Storage by J. L. McElroy, Battelle Memorial Institute, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, Washington.
^aBased on monolith glass samples approximately 25 X 250 cm long and calcine particles averaging between 10 and 100 μ (0.001-0.01 cm) in diameter.
^bOnset of devitrification.

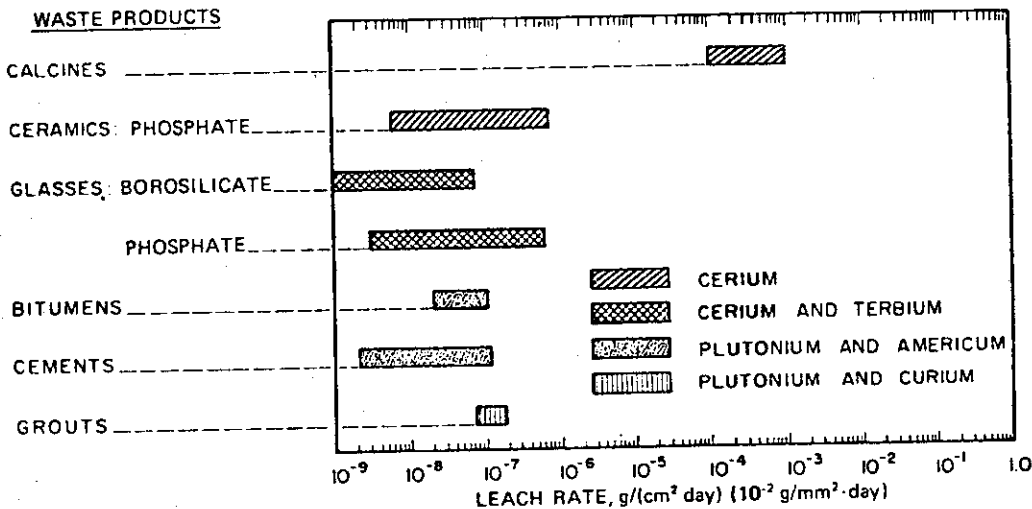
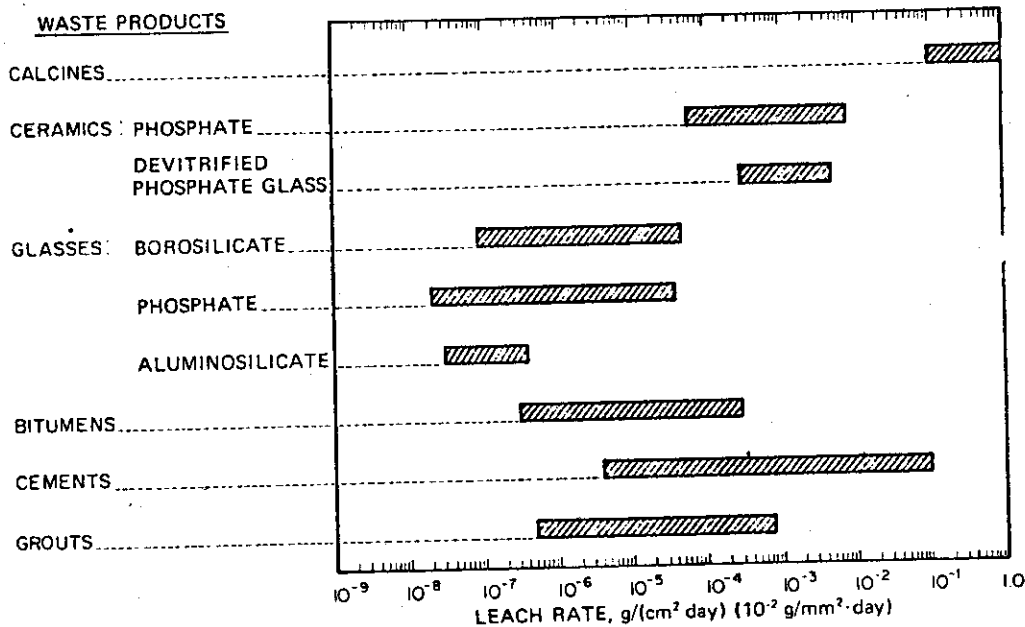


Fig.5 固化体からの各元素の浸出率

Table 9 高レベル廃液タンクの耐腐蝕性試験

Tank No.	Initial Service	Vessel Construction Material (Stainless Steel)	Total Service (Years)	Type of Service (years)		18" height 2nd- & 3rd- Cycle	Over-All Average Corrosion Rate (Mils per Year)
				1st Cycle Al	1st Cycle Al/Zr		
WM-180	February 1953	348	13.6	13.3	---	0.3	1×10^{-3}
WM-181	February 1953	348	19.1	---	---	19.1	9×10^{-4}
WM-182	May 1955	304L	13.2	11.2	2.0	---	7×10^{-3}
WM-183	May 1958	304L	13.3	13.3	---	---	2×10^{-3}
WM-184	May 1958	304L	14.3	---	---	14.3	1×10^{-6}
WM-185	February 1959	304L	13.2	9.6	3.6	---	2×10^{-2}
WM-186	April 1962	304L	9.5	---	---	9.5	9×10^{-4}
WM-187	December 1959	304L	13.1	4.5	8.6	---	2×10^{-2}
WM-188	June 1964	304L	8.3	1.0	7.3	---	1×10^{-2}
WM-189	July 1966	304L	7.1	---	7.1	---	$(a) 9 \times 10^{-2}$
WM-190	Not in Service	304L	---	---	Spare Tank	---	---

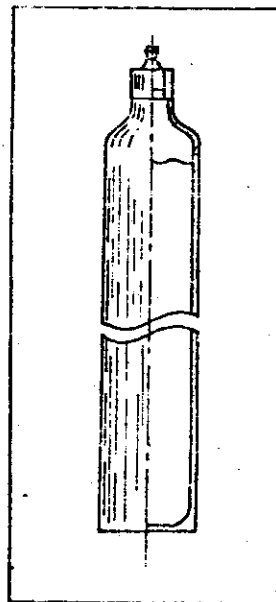
(a) No coupons installed in this tank for this period of service. Estimate based on tank WM-188.

ICPP の 300,000 gallon tank

Table 10 中間貯蔵方式の比較

Cooling method	Sealed Storage-Cask Concepts			Water Basin Concepts	
	SSCC-Shielded	SSCC-Thick Wall	SSCC-Unshielded	Air-Cooled Vault Concept (ACVC)	WBC
	Air natural circulation	Air natural circulation	Air natural circulation	Air natural circulation	Water-forced circulation and cooling towers
Confinement method	2" Wall sealed carbon-steel cask welded closure	14" Wall sealed carbon-steel cask welded closure	8" Wall sealed carbon-steel cask welded closure	0.5" Wall carbon steel overpack welded closure	0.5" Wall, stainless steel overpack welded closure
Biological shielding	38" Thick concrete sleeve	11" Thick concrete sleeve	None (distance)	Concrete vaults	Water basin
Storage concept	Vertical outdoor on 20-foot centers	Vertical outdoor on 20-foot centers	Horizontal outdoor 20 ft apart	Vertical indoor	Vertical indoor
Maximum normal operating temperature (°F)					
Canister (outer surface)	470 ^d	450 ^d	455 ^d	620 ^b	484
Overpack (outer surface)	245 ^d	170 ^d	180 ^d	400 ^b	127
Concrete (inner surface)	155 ^d	122 ^d	NA	200 ^b	NA
Dose rates (mrem/h) Outside surface	2 (concrete sleeve)	2 (concrete sleeve)	14,000	<2 (top of deck)	<1 (water surface)
Within array	<4	<4	10,000	NA	NA
Resources (to year 2010)					
Land (acres)	1,100	1,100	2,300	100	150
Water (gal/yr)	75 x 10 ⁶	75 x 10 ⁶	75 x 10 ⁶	75 x 10 ⁶	1,500 x 10 ⁶
Carbon steel ^c (tons)	0.28 x 10 ⁶	2.3 x 10 ⁶	0.98 x 10 ⁶	0.15 x 10 ⁶	0.22 x 10 ⁶
Stainless steel (tons)	42	42	42	42	45,000
Concrete (yd ³)	2.7 x 10 ⁶	1 x 10 ⁶	0.09 x 10 ⁶	0.34 x 10 ⁶	0.14 x 10 ⁶
Personnel	330	330	330	280	330
Power (kWe)	2,500	3,000	3,000	2,100	10,000
Capital ^d (in 1973 dollars)	900 x 10 ⁶	2,600 x 10 ⁶	1,130 x 10 ⁶	460 x 10 ⁶	740 x 10 ⁶
Cumulative operating costs (in 1973 dollars through year 2010)	220 x 10 ⁶	200 x 10 ⁶	190 x 10 ⁶	165 x 10 ⁶	220 x 10 ⁶

SOURCE: *Retrievable Surface Storage Facility: An Alternative Concept Engineering Studies*, ARH-2888, Rev., Atlantic Richfield Hanford Company, Kaiser Engineers (July 1974).
^a80 °F ambient air temperature.
^b110 °F ambient air temperature.
^cIncluding structural and reinforcing steel.
^dIncluding cost of steel overpacks and concrete shields.



寸法

直径 15~60cm
 長さ 60~300cm
 標準 30cm φ × 300cm
 この中に $\frac{1}{2}$ 入れて約200ℓ

材質

ステンレス鋼

発熱率

1~20 kW/本
 標準 5 kW/本

Fig. 6 キャニスタの形状

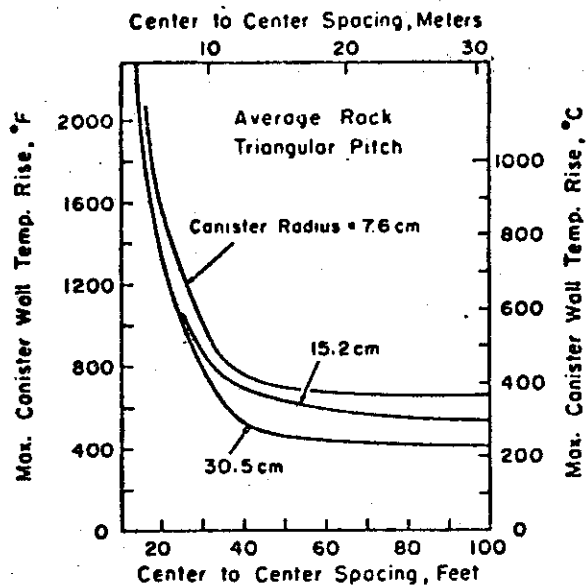


Fig. 7 キャニスタ半径および貯蔵間隔と
 キャニスタの表面温度との関係
 (10年後の廃棄物約 4 kW/キャニスタとして計算)

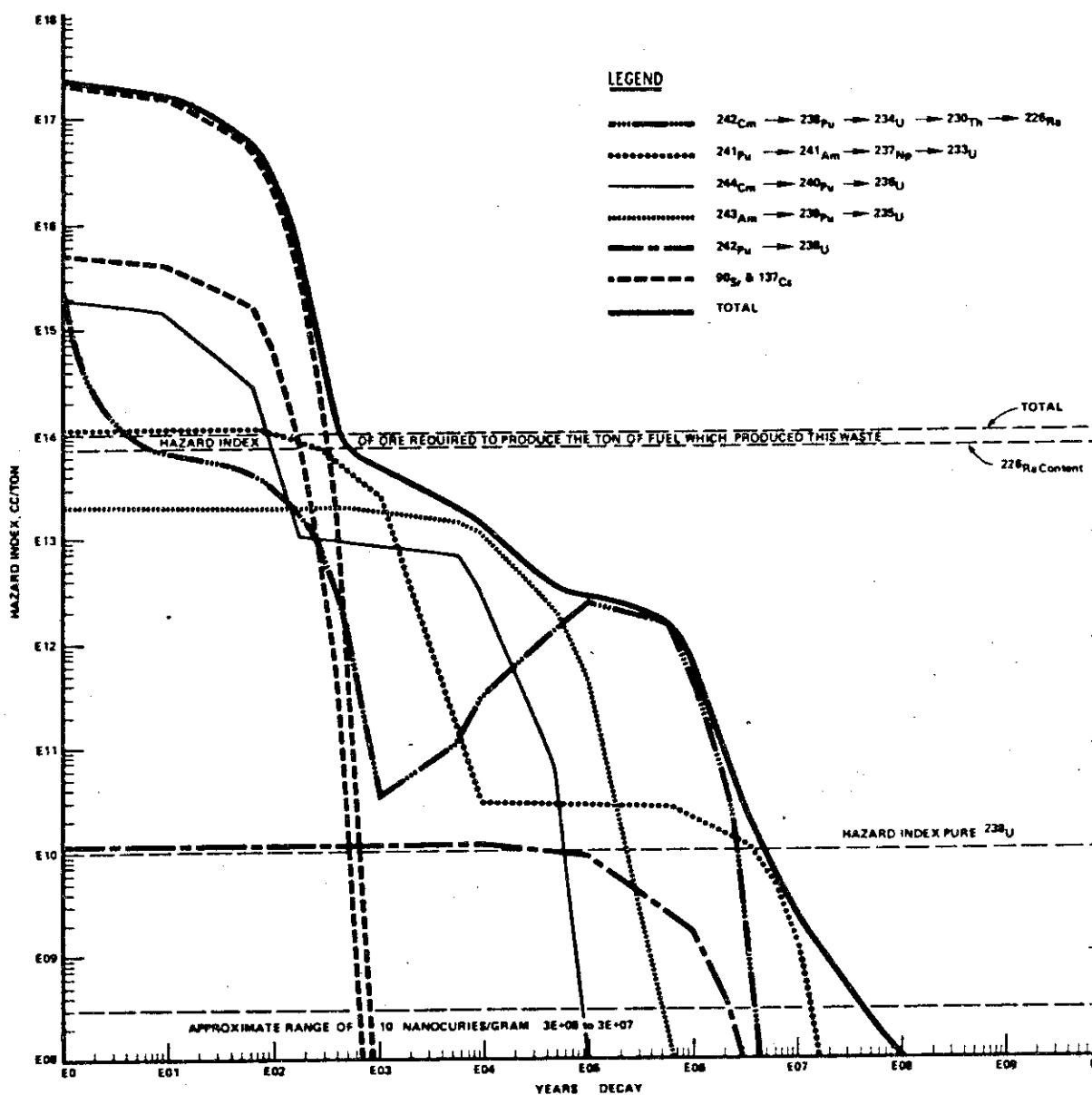


Fig.8 高レベル廃液の Hazard Index
 (1tonのUの再処理より生ずる廃液を飲料水の許容濃度にまで希釈するに必要な水の量として表した)

Table 11 高レベル廃液および固化体の発熱量

	In Liquid Storage ^a		Ommobilized in Glass ^b	
	Ci/ℓ (TBq/ℓ)	W/ℓ	Ci/Canister(TBq/Canister)	W/Canister
150 days	5530 (204.6)	26	17,700,000 (654,900.0)	83,600
1 yr	2800 (103.6)	13.6	8,960,000 (331,520.0)	43,600
2 yr	1525 (56.4)	7.2	4,880,000 (180,560.0)	23,160
3 yr	1000 (37.0)	4.5	3,200,000 (118,400.0)	14,480
5 yr	602 (22.3)	2.5	1,930,000 (71,410.0)	7,840
10 yr			1,280,000 (47,360.0)	4,480
100 yr			142,000 (5,254.0)	460
1,000 yr			464 (17.168)	10.9
10,000 yr			138 (5.106)	3.1
100,000 yr			66 (2.442)	0.28
1,000,000 yr			16 (0.592)	0.01

a Concentrated to 800 ℓ/MTU (0.8 ℓ/kg).

b In canister containing waste from 4 MTU.

Burnup = 33,000 MWD/MTU

Table 12 各国の固化体処分のための候補地層

国名 地層	アメリカ	フランス	イギリス	西ドイツ	ユーロケミック (ベルギー)	日本
岩塩層	○	○		○		
花崗岩層	○	○	○			○
粘土層	○	○				
深海洋底			○			○

Table 13 致死量からみた高レベル廃液固化体と他の毒物との比較

Element	Compound	LD-50(Av) mg/kg		LD-50 Man (g) (extrapolated)
Selenium	Na ₂ SeO ₃	5	Rabbit, mouse Rat, guinea pig	0.35
(Cyanide)	KCN	10	Rat	0.7
Mercury	HgCl ₂	23	Rat, mouse	1.6
Arsenic	As ₂ O ₃	45	Mouse, rat	3
Barium	BaCl ₂ , Ba(NO ₃) ₂	250	Rat	18
Copper	CuO, CuCl ₂	300	Rat	21
Nickel	Ni(CO ₃) ₂	1620	Rat	110
Aluminum	AlCl ₃ Al ₂ (SO ₄) ₃	4000	Rat, mouse	280
Nuclear waste				
10 yr				0.03
500 yr				170

Table 14 地下水中の土壌への吸着平衡定数

Element	K^{-1}
Tritium	1
Beryllium	3×10^{-3}
Carbon	1×10^{-1}
Sodium	2×10^{-2}
Chlorine	1
Argon	1
Potassium	6×10^{-3}
Calcium	1×10^{-2}
Iron	3×10^{-4}
Cobalt	3×10^{-3}
Nickel	3×10^{-3}
Selenium	1×10^{-2}
Krypton	1
Rubidium	2×10^{-3}
Strontium	1×10^{-2}
Yttrium	1×10^{-4}
Zirconium	1×10^{-4}
Niobium	1×10^{-4}
Molybdenum	4×10^{-2}
Technetium	1
Palladium	9×10^{-4}
Cadmium	1×10^{-4}
Tin	9×10^{-4}
Antimony	1×10^{-2}

* K^{-1} = nuclide velocity/water velocity

Table 16 海底処分をしたときの障壁通過期間

障壁	通過年数(a) 推定値	備考
キャニスタ	$> 10^3$ (b)	完全な均一腐蝕とする
金属 (Zr, Mo, Ti)	?	加工困難
セラミック	$> 10^4$ (b)	10^{-5} g/cm ² /day 速度で完全溶解
固化体	?	物性測定, 試料採取必要
岩石	?	
locally melted	$>> 10^1$	
monolithic crystalline		
pillow structure		
堆積カラム		
間隙水	$> 10^6$	熱による移動を無視
イオン交換	?	イオンにより異なる。TUについては最も吸着率が高い
海底境界層	$\geq 10^2$	固定腐蝕共生物学的化学的機構によるのでイオンにより異なる
水層	$\leq 10^3$	内部構造, 生物学的機構に関してよくわかっていない
中間水	10^0	物理的, 生物学的な運動が早い
搅拌層(上層 300 m)		
短絡/追加構造		
プラグ	?	深海における経験不足
附加物(MnO ₂ , SiO ₂)	?	実証的データを得難い
熱的效果	?	全プロセスを一般に加速する
生物学的効果	?	実証的データを得難い

a) これらの時間の精度は暫定的なもので新しい評価値が漸次出ている
 b) 媒体内における水の循環や温度による

Table 15 高レベル固化体処分地よりのRIの地下水中への
浸出による個人被曝線量

Years Since Burial	Peak Nuclides	Dose, mrem										Remarks
		Skin	Body	GI-LLI	Thyroid	Bone	Liver	Lung	Kidney			
2.50E2	³ H, ⁹⁹ Tc, ¹²⁹ I	1.3E1	2.3E2	2.6E4	1.4E4	5.4E2	8.0E2	7.5E0	1.7E1	GI-LLI: 100%	⁹⁹ Tc	
1.55E3	¹⁴ C	8.0E-3	6.3E4	3.8E4	6.2E4	3.1E5	6.2E4	6.2E4	6.2E4	Bone: 100%	¹⁴ C	
3.73E3	⁹³ Mo	4.4E-7	3.5E-1	2.1E0	2.5E-7	2.5E-7	1.3E1	2.5E-7	2.5E-7	Liver: 100%	⁹³ Mo	
1.46E4	⁴¹ Ca, ⁷⁹ Se, ²³⁷ Np, ⁹⁰ Sr	3.1E2	1.3E3	2.0E3	2.7E2	1.2E4	3.5E3	2.7E2	2.7E2	Bone: 96%	²³⁷ Np+D	
4.85E4	¹⁰ Be, ⁶⁰ Co, ⁵⁹ Ni	1.0E-2	4.5E1	2.0E1	8.6E-3	2.7E2	9.5E1	8.6E-3	2.2E-2	Bone: 100%	⁵⁹ Ni	
7.26E4	⁸⁷ Rb, ²²⁶ Ra	6.2E-3	9.1E-2	7.1E-2	5.1E-3	5.7E-1	1.2E-1	5.1E-3	1.7E-2	Bone: 58%	²²⁹ In, 31% ²²⁵ Ra+D	
1.45E5	¹³⁵ Cs	6.7E-3	3.5E2	2.0E1	3.8E-3	9.4E2	8.4E2	6.5E2	1.2E-2	Bone, Liver, Lung: 100%	¹³⁵ Cs	
1.61E5	¹⁰⁷ Pd, ¹²⁶ Sn	7.5E2	8.2E2	2.4E3	7.2E2	4.6E3	8.6E2	7.0E2	7.0E2	Bone: 100%	¹²⁶ Sn+D	
3.62E5	¹⁶⁶ Mn, ^{Ho}	1.8E-3	2.1E-2	2.7E-2	1.5E-3	2.3E-1	5.5E-3	1.5E-3	4.8E-3	Bone: 61%	²²⁹ Th, 33% ²²⁵ Ra+D	
4.82E5	²⁴⁷ Cm	1.3E-3	1.3E-2	1.7E-2	1.3E-3	1.4E-1	7.5E-3	1.1E-3	3.1E-3	Bone: 56%	²²⁹ Th, 31% ²²⁵ Ra+D	
1.45E6	⁹³ Zr, ¹¹³ mCd, ²⁴³ Am, ²⁴⁴ Pu	3.5E-3	7.5E-1	6.6E2	4.4E-4	7.5E0	1.8E0	4.4E-4	2.8E-1	GI-LLI: 100%	^{93m} Nb, 24% ²⁴² Pu Bone: 56% ^{93m} Nb, 34%	
2.07E6	²³⁸ U	8.9E-1	1.1E3	2.9E1	7.5E-1	2.4E3	2.9E2	7.5E-1	1.2E1	Bone: 86%	²²⁶ Ba+D, 7% ²¹⁰ Pb+D	
2.41E6	²³¹ Pa	2.4E-2	3.4E1	7.3E-1	2.1E-2	6.8E1	8.7E0	2.1E-2	2.1E-2	Bone: 88%	²²⁶ Ra+D, 7% ²¹⁰ Pb+D	
7.23E6	²³² Th	2.5E-6	6.3E-3	3.7E-2	2.3E-4	9.6E-2	3.1E-3	2.3E-4	2.3E-4	Bone: 44%	²³² Th+D, 35% ²²⁴ Ra+D 21% ²³⁸ Th+D	

* LST008 Dose Input File

Background: 6000 mrem

MCRP Radiation Limit for Organs: 75,000 mrem

アメリカの2000年までの廃棄物の貯蓄を考え、処分して100年後から浸出が始まるとし、
浸出率は0.3%/yとし、拡散距離10mileとする。

Table 18 群分離・消滅処理研究開発基本計画 (案)

項目	実施所	人員	期間	予算 (百万円)	分担	内容・規模	年次															
							1975	1980	1985	1990												
システム評価	分離システム評価	0.5	4	50	原・大・動 民	物質収支・経済性	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
	最終廃棄物の安全評価	1	4	50	原・大・動	熱計算, 臨界量環境安全	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
	核データの集積評価	0.5	13	50	原・大	反応断面積 反応率, 反応偏値	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
	消滅反応炉概念設計	3	9	100	原・大	炉定数, 感度解析	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
化学処理技術	高レベル廃液からのAmCm ⁹⁰ Sr ¹³⁷ Csの分離技術	10 10 3	8 4 6	200 500 30	原・動	コールド, トレーサー-小規模 中規模 コールドトレーサー	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
	分離物の固化封入	3 3	8 4	200 100	原・動	小規模 中規模	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
	消滅処理用化学処理 および物性試験	2 3	5 2	50 100	原・動	小規模 中規模	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
	基礎核データの測定	3	6	200		積分測定, 反応率 比反応度物値	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
消滅処理技術 施設	照射試験	2	3	300		照射物組成分析	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
	化学処理施設 物理実験施設					CPF (原研施設) 原研 動燃	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→

4. 高レベル廃棄物処理処分技術の開発課題

高レベル廃液は短半減期核種が減衰するまでの5～10年間タンク内で貯蔵し、その後固化して地層処分するのが当面最も手近かな方法であると考えられるが、固化体の地層処分方式について社会的了解が得られていない現時点においては、処分方式が確立されるまでは監視の下に貯蔵することとなる。

固化化する前に液体のまま貯蔵するときの安全性については、先行諸国において、既に20年以上の液体状高レベル廃棄物の貯蔵経験があり、少なくともこの期間以内の貯蔵技術は確立されていると考えてよい。この経験は外国での経験であり、地震が多く、人口密度が高い等の固有の事情があるわが国においては、そのままその方式を適用することは困難であろう。したがってわが国においては、液体貯蔵期間を可能なかぎり短縮する必要がある。

固化方式の技術開発は先行諸国においては既に実証試験を終り実プラントの段階に達しようとしている。これら技術を活用し、わが国の国情に合致するよう改良をはかることにより、比較的短期間内でのグロス固化に関する実証試験が可能となると考えられる。

処分場所、処分方式については先行諸国においても、ある程度の試みはなされたものの未だ明確な見通しを得るに至っていない。わが国におけるこの分野の研究開発はほとんど皆無に近い。地層が不安定であり人口密度の高い国土の中で処分場所を見出すことは極めて困難である。その困難を克服するためには処分時の安全解析に必要な固化体の健全性、地層の安定性、地層中での放射性物質の移動速度等多くのデータの集積を行い、安全性に関し社会的了解が得られるようわが国情に合致した処分方式を確立することが必要である。

高レベル廃棄物中の超長寿命核種や高放射能を有しグロス固化したとき浸出性が高く放射エネルギーの大きい ^{137}Cs や ^{90}Sr の量は廃棄物全体中のわずかな量であり、これらの核種を分離することにより残りの大部分の廃棄物は簡易な処分法により処分することができる。

超長寿命核種は核反応を使って短寿命核種に変換することにより弱害化できる可能性があり、廃棄物の処分法に関する根本的な解決策としてこの面の研究促進が重要である。 ^{90}Sr や ^{137}Cs については、分離することによりよりグロス固化をするときより低浸出率の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の化合物に変えることができ、グロス固化体より安全な管理を可能にすることができるであろう。

廃棄物処理処分技術としてはグロス固化のみでなく、以上のような優れた技術を完成しなければ問題を根本的に解決することにはならないと考えられる。

高レベル廃液の処理処分技術の開発に関しては、動燃団および原研が主体となり、大学およびその他の研究機関がこれに協力する体制で実施するよう科学技術庁放射性廃棄物対策技術専門部会の報告書にも述べられている。

既に再処理施設を持ち高レベル放射性処理技術開発施設の建設が決まっている動燃団においては、当面最も手近な方法となりつつあるグロス固化に関する実証試験に主力を注ぎ、原研は浸出率、熱的特性等地層処分時の安全性試験を行う。

原研の主な使命はより安全性の高いグロス固化体の開発、化学分離と核反応を組合せることに

よる超長寿命核種の弱害化、浸出率の高い ^{90}Sr 、 ^{137}Cs を浸出率の低い固化体にするための開発等新処理処分技術の開発にある。また燃料サイクル全体を安全性の立場から見直し、廃棄物処理処分の問題を根本的に解決する方針を出す所に原研の使命がある。

次に原研が中心になって行なうことが望まれる課題について詳細に述べる。

4.1 核燃料サイクルの見直し

Purex法による核燃料再処理はウランおよびプルトニウムの回収再利用を目的とし、永久処分に関する費用を無視し、燃料のみを対象とした経済性に基づいて実施されているシステムである。

環境安全性の立場から社会的に厳しく再評価され、またプルトニウムの拡散防止政策から米国が商業再処理を中止した。わが国の再処理計画も中止することを求められている。それらの因子を考慮に入れ、安全性、経済性、国家関係等の立場から核燃料サイクルを見直し最も合理的なシステムとすることが要求されている。

ウラン資源がなく、またウラン濃縮に関する自主技術が実用化されていない状態で、米国から再処理計画の中止を求められていることを考慮に入れ、燃料組成自身まで考え直す必要がある。プルトニウム核兵器拡散防止のための新燃料の条件は、簡単な処理および取扱い技術によりその燃料を使って核兵器が製造できないことにある。例えばウラン・プルトニウムの混合燃料として臨界量を増せばよい。またプルトニウム・超ウラン元素混合燃料とし、また放射能量を多くして取扱を困難にすれば、プルトニウムを利用することは可能である。特に後者の方法を採用すれば前述の専焼炉の役割も同時に果すこととなる。

唯一の実用再処理システムとも云えるPurex法が長い期間の技術開発により初めて確立し、Voloxidation等による改善提案も容易に取り入れることのできない現実を考えると新燃料を使つての新しい核燃料サイクルの確立はきわめて困難であると想像される。しかし限られた核燃料資源を有効かつ広い意味で安全に利用するためには新たな核燃料サイクルを実現することが必要であり、これはわが国唯一の総合的な原子力開発研究を目的とする研究機関である原研の重要な研究課題である。

しかし当分の間は軽水炉—Purex法による再処理のシステムは続行されるものと考えられるので、このシステムから出る廃棄物を対象として開発課題を検討することとした。

4.2 化学処理および固化技術の開発

現在までに行なわれてきた化学処理技術すなわち群分離の開発では、再処理の場合のようにウランやプルトニウムをTBPを抽出剤とするPurex法によって分離するといった定まった方法はなく、群分離の対象とする核種さえも一様でない。当面原研としては超プルトニウム元素、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs などを対象として群分離技術の開発を進めることとなるが、いずれにしても分離法は次の条件を満たす方向で考える必要がある。

- 1) 目的とする核種について必要な除染係数が得られること。
- 2) 強放射線下でも充分安全であること。
- 3) 新たな廃棄物を多量に発生しないこと、試薬の回収と再使用が可能であること、出来るだけ少ない量と種類の試薬で再処理廃液の連続的な処理が可能であること。

- 4) 単純な分離法で装置化が容易であること。
- 5) 環境への放射能の放出の少ない分離法であること。

具体的には当面つぎのような研究開発を行なう必要がある。

- 1) 高レベル再処理廃液の組成と成分元素の化学形
- 2) 前処理工程としての脱硝操作における元素の挙動
- 3) 溶媒抽出法およびイオン交換樹脂法を主体とした群分離法の研究—特に高い酸性度での超ウラン元素の抽出の可能性と超プルトニウム元素と希土類元素の分離度を高めるための研究
- 4) 試薬の放射線分解に伴って起こる除染係数の変化および試薬の安定性
- 5) 試薬の回収と精製法

群分離後の各フラクションは固化する必要があるが、固化体はつぎのような特性を持ったものでなければならない。

- 1) 放射性核種の固化体からの浸出性が地下水か海水中で極めて低いこと。
- 2) 一定量の放射性核種を出来るだけ少ない表面積の固化体として処分できること、ならびに熱伝導性や耐熱性などの熱的特性がすぐれていること
- 3) 機械的、熱的、化学的な衝撃に対して強く、耐放射線性においてすぐれていること。

群分離後の各フラクションの固化法を確立するためには当面つぎのような技術開発が必要であろう。

- 1) 各フラクションに含まれる元素に最も適合した安定固化体の選択
- 2) 溶液状態の各フラクションから効率的に固化体を合成する方法
- 3) 温度、炉材、加熱方式等を含めた成型焼結法

未解決の分野が多い群分離と分離した成分の固化技術に比べて高レベル再処理廃液のグロス固化技術は実用化段階にまで進んでいる。しかしながら、現在ホウケイ酸ガラス固化が有力視されているものの、処理温度の高いことによるルテニウム、セシウムなどの揮発とその際のオフガス処理の問題、失透、相分離などにみられる熱的不安定さ、熱伝導率の小さいことからくる熱除去の問題などまだ完全には解決されていないいくつかの問題が残っている。それゆえに、今後の開発目標としてはこれらを解決することが中心となる。ガラス固化法の持つこれらの欠点を根本的に検討するという考え方で、原研としてはセラミック固化、金属固化などのような、よりすぐれた新しい方式の固化法の開発にも力を入れる必要がある。一方、これらの固化法の開発は我が国の現状を考えた場合、処分方式の問題と無関係には進められないので処分時の安全性研究が固化法の開発とともに非常に重要となる。

4.3 消滅処理技術の開発

核種変換を必要とする核種は核燃料サイクルを環境安全性および経済性の立場から見直して始めて決められるものであるが、まず最も Hazard Index の高い超ウラン元素の消滅処理から開発研究を進めるべきであろう。

超ウラン元素を核分裂反応により短寿命核種に変換する方法として、高速炉の燃料体に組み込む方法、超ウラン元素のみを燃料とする専焼炉による方法および加速器を使う方法等が考えられる。

これらの方法を開発するための研究課題としては大別して炉物理上の研究開発と化学分離に関する研究開発がある。

a) 炉物理上の研究開発課題

超ウラン元素は入手し難く、取扱いも困難であるため実験的データの報告が少なく基礎的な核データの実測から開始しなければならない。また超ウラン元素を含む燃料を使っての新型原子炉設計のためのデータ解析も重要な課題である。このような観点から次のような研究課題があげられる。

- 1) 核反応断面積の測定
- 2) 臨界実験装置による積断面積、反応率比、反応度値の測定
- 3) 高速炉 (JOYO等) での照射による超ウラン元素の Burnup および核種生成量の測定
- 4) 炉定数、感応度解析

b) 化学分離に関する研究開発

高レベル廃液からの超ウラン元素の分離に関する研究開発については既に述べたとおりである。消滅処理技術開発のためにはさらに次の2つの課題が解決されなければならない。

- 1) 核反応断面積等物理定数を測定するための、ターゲットの製造および照射後処理
- 2) 超ウラン元素燃料の再処理技術の開発

4.4 固化体の密封保管技術

放射性物質の移動を考えた場合、固化体自身を第一次障壁と考え、容器は第二次障壁と考えるべきであろう。中間貯蔵、輸送の段階では固化体による第一障壁では明らかに不十分であり、第二次障壁である容器の持つ役割は重大である。金属容器による密封技術については一般産業でも多く使われており、原子力関係においては原子力電池の線源製造においても既に技術開発が行なわれているのでそれらの技術の活用が期待される。既にこれらの技術は確立しているとの印象が強く固化体の密封技術の開発に関する報告は少ないが次のような事項を考慮した技術開発が必要である。

1. 材質、形状の選択

- (a) 熔融ガラス注入時の高温 (約 1000°C) における耐腐蝕性、熱応力に対する機械的強度の改善
- (b) 密封後の除染、貯蔵プールへの投入による温度変化に対する強度の改善
- (c) 運搬時の事故を考えたときの破損防止対策

2. 溶接技術

- (a) 遠隔溶接装置の開発。特に溶接物—電極間隔、電極移動、電流、シールドガスパージ等の自動制御化
- (b) 溶接時の汚染防止対策
- (c) 高放射線下での溶接部の検査方法、特に溶接部の機械的強度に関連する検査法

固化体の再処理施設内保管および輸送に関しては、使用済燃料とはほぼ同じ技術が活用できると考えられる。しかし燃料に比較してはるかに長期の貯蔵が必要であり、設備の耐久性について同技術を再検討する必要がある。

永久処分安全確認のための中間貯蔵技術に関しては永久処分と合せて考えなければならない。種々の永久処分方式を併行して考え、特にモニタリング方式について開発研究を進めるべきであろう。

4.5 安全評価上の課題

既存の処理処分法では、安全性評価の対象は主として固化体およびその周囲の障壁にしばられるだろう。例えば地中埋没法では、固化体から浸出した物質が途中の地層、地下水等を経て地表に達し、生態圏での移動ののちに人間に到達する。それらの経路の連続した因果関係を明確にし種々の現象の発生確率、およびその結果生じる被害の大きさを正確に把握しなければならない。この段階においては、全量固化法に比べ、群分離法によって得られる固化体の方が安全上より優れた特性を有する可能性は高い。しかしながら、他方において、処理工程もまた全体系の安全解析の中に含まれなければならない課題である。

再処理から処分に至る全段階を通して放射性物質が生態圏に到達するまでの主な障壁およびその破壊要因と障壁を通過する期間を決める係数について考察しTable 19に示す。表中二重枠の段階が主要障壁と考えられる。すなわち輸送までの段階では容器および装置が放射性物質閉じ込めの主な障壁であり、500年頃までの貯蔵では固化体の低浸出性に期待がかけられ、更に長期の貯蔵では地層に障壁効果を頼っている。この考察は一例にすぎず、処理処分法の改善によりまた社会的に受け入れられる評価基準の推移により異なってくるものと思われる。

放射性物質の毒性についての考え方も安全評価に当って重要である。放射線によるガン発生率の増加、死亡率の増加、遺伝的影響などが主な評価の尺度になっているようであるが、これまで存在しなかった物質の蓄積に起因する未知の被害に対する不安感も無視できない。このような因子をどのようにして評価に織り込むかも考慮する必要があるであろう。

各核燃料サイクルの段階で取扱う物質の危険性（核兵器としての危険性も含めて）、その拡散、人間社会への被害の与え方等の総合的評価に基づいて処理処分方式が決定されるべきであろう。まず評価に対する基本事項について考え方を整理し、安全解析の手法を確立することが重要な課題である。

以下に、安全解析上必要と思われる項目を処理段階にわけて列挙した。

1. 固化プロセス

- a) 処理する液体（全量固化では高レベル廃液、群分離では分離後の溶液）および各段生成物、最終固化体の組成、放射エネルギー、化学毒性、揮発性、化学的安定性、熱的安定性、耐放射線性、放射線分解生成物
- b) プロセスから環境へ漏洩する物質の特性、漏洩率等
- c) 捕集装置の特性
- d) 装置の特性（物理的・化学的強度、気密度、耐放射線性、耐熱性）
- e) 生成する廃棄物特性（量、質）
- f) 天変地異による事故の確率とその大きさと放出量

2. 化学分離（wet）プロセス

- a) 処理する廃液、中間生成物、最終生成物の組成、放射エネルギー、化学毒性、揮発性、化学的安

定性，熱的安定性，耐放射線性，放射線分解生成物

- b) 化学試薬の毒性
- c) プロセスから環境へ漏洩する物質の化学特性，放射能，漏洩率
- d) 捕集装置の特性
- e) 装置の特性
- f) 新たに生成する廃棄物の特性（量，質）
- g) P. P.破壊の確率（主として超 プルトニウム元素）
- h) 天変地異による事故の確率とその大きさ，放出量

3. 中間貯蔵

- a) 固化体の特性：化学的安定性，熱的安定性，耐放射線性，揮発性，浸出率，機械的強度，容器との共存性
- b) キャニスタの特性
- c) キャニスタ保護容器の特性
- d) 施設の特性
- e) 立地特性
- f) 確率論的な事故，災害と漏洩物の質，量
- g) 生態圏における移行経路
- h) 環境調査

4. 永久貯蔵

- a) 固化体特性
- b) キャプセル特性
- c) コンテナ特性
- d) 障壁特性（地層，地下水，海水 etc），確率論的安定性，変動率
- e) 浸出物の質，量
- f) 生態圏までの移行機構
- g) 生態圏における移行経路
- h) 環境調査

5. ま と め

近年ようやく高レベル再処理廃液の処理処分技術の重要性がわが国においても改めて認識され、51年10月には原子力委員会において高レベル廃棄物の長期保管、処分は国の責任の下で実施される方向が決定された。国の方針を実行するための技術的裏付けの任に当るべき原研においても、副理事長を中心として核燃料サイクルの見直しをも含めた広い視野での高レベル廃棄物の処理処分の研究開発戦略が検討されており、それに伴って、所内の関連研究を統合集中して、研究開発の効率化を計ることも計画されている。

本検討会に会同した各グループにおいては既に次のような実績があり、その経験・蓄積はこの分野の研究開発に貢献できるものと考えらる。

- 1) 原研再処理廃液 10 ℓ から希土類元素 (超ウラン元素を含む), ^{90}Sr , ^{137}Cs などをイオン交換法で分離し、実廃液処理の経験を得た。さらに動燃団再処理廃液 1 k Ci から超ウラン元素等を群分離するための分離スキムの開発を進めると共に実験施設の整備を行っている。(製造技術課)
- 2) ^{60}Co , ^{192}Ir , $^{170}\text{Tm}_2\text{O}_3$ 等の密封線源の製造を行い、高放射性物質の密封技術の経験を得た (製造課)
- 3) ^{90}Sr , ^{137}Cs の新しい固化法の開発を行った (利用開発室)
- 4) ロータリーキルンによる仮焼系, 誘導加熱金属炉によるガラス固化系, ホットプレスによるセラミック固化系等からなる固化試験装置を整備し固化試験を行った。またガラス固化体を中心に浸出性, 熱的特性, 耐放射線性を調べた (環境安全研究室)
- 5) 再処理廃液中に含まれる超ウラン元素混合物のみにより燃料要素を構成する専焼炉の実現性を核物理的に検討し, 臨界半径が 30 cm であるとの結論を得た。(高速炉物理研究室)

わが国および諸外国の高レベル廃棄物処理処分法の開発の現状について調査検討した結果次の共通認識を得た。

- 1) 高レベル廃液の処理処分技術は核燃料サイクル中最も遅れた部分であり、先行諸国においても 2000 年には処分法を定常化することを目指して開発中である。わが国のこの分野の遅れは特に著しい。
- 2) 当面グロス固化を行い陸地地層処分を行う方向で、処分技術の確立を急がざるを得ないが、群分離し消滅処理を行う等の方式により超ウラン元素等長半減期核種の処分方式を確立する必要がある。
- 3) 処理処分時の安全評価法のための評価基準、評価方式、評価のための基礎データ等いづれも不十分な状態である。処理処分法の選定の基準になる分野であるだけに国際ベースでの意見統一が急がれている。
- 4) 核兵器拡散防止をも含めた広い意味での安全評価、経済性評価および将来のエネルギー対策から核燃料サイクルについて再評価し新技術を開発する必要性が議論されている。

エネルギー源の相当部分を核エネルギーに依存しようとし、また人口密度、地質の安定性等廃棄物の処分に関し諸外国に比較し多くの困難な要因を持つわが国としては、高レベル廃棄物処理

処分技術の開発は特に急ぐ必要がある。

この分野での技術開発は動燃団および原研が主体となり大学およびその他の研究機関がこれに協力する体制で実施されることとなろう。再処理施設を持ち既に高レベル放射性処理技術開発施設の建設が決まっている動燃団においては当面最も手近な方法となりつつあるグロス固化に関する実証試験に主力を注ぎ、原研は核燃料サイクルの見直しをも含めた新処理処分技術の開発を行うべきであろう。

以上の認識に立って考えると、次の研究課題は原研が中心になって進めるべきであろう。

- 1) 高レベル廃棄物を十分考慮に入れた核燃料サイクルの見直し、地層・海底処分時の安全解析および評価方法の開発、消滅処理や宇宙処分等の実現性の評価などのソフトウェアの開発。
- 2) 処分時の安全評価データの蓄積、群分離・消滅処理技術の開発等による最終処分時の問題点を長期的観点から根本的に解決するための研究開発
- 3) 早急に実施に移されようとしている動燃団再処理廃液固廃事業の支援業務としての処分時の安全評価。

これら研究開発は原研内の総合的知識と技術の結集によって達成されるものである。研究開発を進めるに当ってはこれまで経験されたことのない非密封大量放射性物質の取扱い技術が必要であり、この点においてはこれまでの事業部の実績の延長としてこの仕事をとらえることができる。

原研においては既に環境安全研究センター（仮称）の構想が提案され、廃棄物処理処分技術開発に関する分野の集結の動きがあり、その実現を期待する。本検討会グループにおいては引き続き相互の知識経験の情報交換と研究協力を目的とし会合を持ち、さらに交流の輪を拡大することにより廃棄物処理処分技術の開発に貢献したい。

本検討会に参加し高レベル廃液処理に関し多くの情報と意見を述べていただいた環境安全研究室田代普吾、馬場恒孝両氏に深く感謝する。また消滅処理に関しては高速炉物理研究室の、黒井英雄氏に感謝する。

参 考 文 献

- 1) North, E.D. "Solid waste generation in reprocessing nuclear fuel" Radioactive wastes from the nuclear fuel cycle AIChE Symposium Series 72, No.154, 5~9 (1976).
- 2) Panel on Engineered Storage Committee on Radioactive Waste Management National Research Council; "Interin Storage of Solidified Radioactive Waste" 17~18 (1975).
- 3) 中村, 久保田, et al "再処理廃液からのRI分離技術の開発" JAERI-M 6958 (1977)
- 4) 佐々木, 坂田, et al "高放射性廃液固化処理試験(その3)模擬廃液の仮焼に及ぼすFe, Alの添加効果" 日本原子力学会 52年会予稿集 J37 (1977)
- 5) Richardson, G.L.; "Technologies for recovery of transuranics and immobilization of non-high-level wastes" HEDL-SA-856 (1976).
- 6) John, E.M.; "High-Level Waste Glass" Nucl. Technol., 32, No.1, 72~87 (1977).
- 7) Gregory, J.M.; "High-Level Waste Ceramics; Materials Considerations, process simulation, and product characterization" Nucl. Technol. 32, No.1, 92~105 (1977).
- 8) Schwoebel, R.L. "Inorganic ion exchange process for partitioning high-level commercial waste" SAND-76-5396 (1976).
- 9) Hoffman, T.L.; "Corrosion evaluation of stainless steels in ICPP high level radioactive waste service" ICP-1072 (1976).
- 10) 江村悟: "高レベル廃棄物の処理・処分" 原子力工業 23, No.4, 27~30 (1977)
- 11) Cohen, B.L.; "High-level radioactive waste from light-water reactors" Rev. Mod. Phys., 49, No.1 (1977).
- 12) Rodger, W.A.; "Critical evaluation of the limit of transuranic Contamination of low level waste" Radioactive wastes from the nuclear fuel cycle AIChE Symposium Series 72, No.154, 33~9 (1976).
- 13) Bond, W.D., Lenze, R.E.; "Feasibility studies of the partitioning of commercial high-level waste generated is spent nuclear fuel reprocessing" ORNL-5012 (1974).
- 14) Weaver, B. and Kappelmann, F.A.; "TALSPEAK: A new method of separating Americium and Curium from the lanthanides by extraction from a aqueous solution of an aminopolyacetic acid complex with a monoacidic organophosphate or phosphonate" ORNL-3559 (1964).
- 15) 菅野, 三村, 北村: "ゼオライトによる放射性廃液の処理(I) Na型, Cs型および Sr型ゼオライトの加熱変化" J. At. Energy Soc. Japan 18, No.8, 518~523 (1976)

- 16) Wheelwright, E.J., "Partitioning of long-lived nuclides from radioactive waste; FY1975 Annual Report BNWL-1926 (1976).
- 17) Schneider, K.J., et al. "High-level radioactive waste management alternatives" BNWL-1900 (1974).
- 18) Verkerk, B.,; "Actinide partitioning arguments against" IAEA-SM-207/41 (1976).
- 19) Walton, R.D.; "Relevance of nuclide migration at OKLO to the problem of geologic storage of radioactive waste" LA-UR-75-876 (1975).
- 20) Burkholder, H.C. et al.; "Incentives for partitioning high-level waste" BNWL-1927 (1975).