

JAERI-M  
7509

核燃料サイクルから発生する放射性廃棄物中の長寿命核分裂生成物およびアクチニド

その発生、処理、処分ならびに相対的有害性（翻訳）

— KFK-2022, H. O. Haug —

1978年2月

（訳）上田 隆三・石森 富太郎

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

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.

核燃料サイクルから発生する放射性廃棄物中の長寿命核分裂生成物  
およびアクチニド

その発生、処理・処分ならびに相対的有害性  
(KFK-2022の翻訳)

原著者 カールスルーエ核研究センター

ハイセヒュミー研究部

H.O.Haug

(訳) 日本原子力研究所

上田隆三<sup>+</sup> 石森富太郎<sup>++</sup>

(1978年1月14日受理)

下記の論文を翻訳したものである。

H.O.Haug : Anfall, Beseitigung und relative Toxizität langlebiger Spaltprodukte und Actiniden in den radioaktiven Abfällen der Kernbrennstoffzyklen. (KFK-2022)

この論文は西ドイツおよび西ヨーロッパの原子力工業から発生する高レベル放射性廃棄物について長期的な観点から論じたものである。

放射性廃棄物とくに高レベル放射性廃棄物の処理・処分は原子力開発上重要な課題である。わが国においても最近この開発に積極的に力を入れつつあるが、この訳が多少とも参考になることを期待する。

この論文の訳出にあたり、心よく許可して下さった著者 H.O.Haug 博士、また、いくつかの個所の翻訳について御教示いただいた来日中のダルムスタット大学 H.Münzel 教授に感謝する。

+ ) 技術相談役

++ ) 日本原子力研究所 R I 事業部

JAERI-M 7509

H.O. Haug: Amount, Disposal and Relative Toxicity of  
Long-lived Fission Products and Actinides in the  
Radioactive Wastes of the Nuclear Fuel Cycles (KFK-2022)

(tr.) Ryuzo UEDA<sup>+</sup> and Tomitaro ISHIMORI<sup>++</sup>  
Japan Atomic Energy Research Institute

(Received January 14, 1978)

### Abstract

This is a translated paper into Japanese of the following article:

H.O. Haug: Anfall, Beseitigung und relative Toxizität langlebiger Spaltprodukte und Actiniden in den radioaktiven Abfällen der Kernbrennstoffzyklen (KFK-2022) (in German)

Dr. Haug talks over high level radwastes from the nuclear industry of West Germany and West Europe in this article. His discussion stands on a view of long range perceptions.

The handling and disposal of radwastes, particularly of high level radwastes, are an important problems in the development of nuclear power industries. The translators hope that the present translated paper becomes a nice aid in this field where stresses are put also here in Japan.

Keywords: Radioactive Wastes, West Germany, West Europe, Actinides, Waste Processing, Waste Disposal, Fuel Cycle, Future View

---

+ ) Expert Advisor

++) Radioisotope Center, JAERI

Dr. H.O. Haug in

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
Heiße Chemie

75 KARLSRUHE , 28.9.77  
Postfach 3640 ar  
Fernschreiber: 7826755  
Fernsprecher: (07247) 821  
bei Durchwahl: 82...  
**2394**

Prof.Dr. R. UEDA  
Japan Atomic Energy Research  
Institute  
1-1, Shinbashi Minato-ku.  
TOKYO 105  
Japan

Dear Prof. Ueda:

The translation of my report KFK-2022 into Japanese and publication as a JAERI-M report was approved both by Prof.Dr. F. Baumgärtner, head of our Institut für Heisse Chemie, and Prof.Dr. H. Böhm, member of the board of directors of the Nuclear Research Center Karlsruhe.

On request of our library and for my own use we would like to get a total of 5 copies of the translated report.

If I can be of further assistance to you, please let me know.

Sincerely,

H. Haug  
(Dr. H. Haug)

Acknowledgements: The author of the original paper approved the Japanese translation and gave the translators English expressions for difficulties in German language.

Several German expressions were interpreted by Prof. Münzel of Darmstadt who visited Tokyo by chance during the translation.

The translators wish to express their sincere thanks for the kindness given than by Dr. H.O. Haug and Prof. H. Münzel.

## (独文の)アブストラクト

西ドイツ(および西ヨーロッパ)の工業的核エネルギー生産からでてくる放射性廃棄物の長期的問題の大きさについて概観した。ウラン-プルトニウム燃料サイクルおよびトリウム-ウラン燃料サイクルのいろいろの型の燃料に対して、軽水炉・高速増殖炉・高温炉の発展と全体に対して占める比重とを関連させて、長寿命の核分裂生成物およびアクチニドの発生量を計算した。アクチニドの量および濃度、再処理(および燃料再加工)で発生する廃棄物の放射能・相対的有害性インデックスならびに放射壊変によるそれらの経時変化を示した。固化した高放射性廃棄物の核種インベントリーの放射性有害性を天然産放射性ウラン鉱石のそれと比較した。検討用に採用した深い地層中の最終貯蔵所の全域にわたって、長期的に( $> 10^3$ 年), 放射性有害性レベルが低ウラン含有量のウラン鉱床に比べて著るしく高くなることはない。比較のために、高レベル放射性廃棄物からのアクチニドの化学分離ならびに原子炉へのリサンクリングについても論じた。

## (英文の)アブストラクト

核燃料サイクルの放射性廃棄物中の長寿命核分裂生成物およびアクチニドの発生量、処理・処分、相対的有害性

西ドイツ(および西ヨーロッパ)の原子力工業から発生する放射性廃棄物の長期的問題についてその大きさを総説した。ウラン-プルトニウムおよびトリウム-ウラン-燃料サイクルのいくつかの燃料のタイプに対して、長寿命核分裂生成物とアクチニドの生成量を計算し、軽水炉、高速増殖炉および高温ガス炉の開発とシェアの予測とを関連させた。再処理(ならびに燃料再加工)の廃棄物のアクチニドの量・濃度、放射能および相対的有害性インデックス、さらに放射性壊変に起因するそれらの変化に触れた。固化した高レベル廃棄物の核種インベントリーの放射性有害性を天然産ウラン鉱石のそれと比較した。長期的( $10^3$ 年以上)にみれば、深い地層中の最終貯蔵所の全領域の放射性有害性のレベルは、低ウラン含有量のウラン鉱床の場合に比べて著るしく高くなることはない。また、高レベル廃棄物からのアクチニドの化学分離および核分裂炉へのリサイクリングも論じた。

## 謝 辞

本研究はプロジェクトPACTの中で始められた。著者は、そのきっかけを与えられたProf. Dr.F.BaumgärtnerおよびDr.G.Höhlein, 原稿を通読のうえ数多くの御教示をいただいたDr.G.Koch, ならびに、草稿を通覧し御忠言をいただいたユーリッヒのKFA所属のDr. E.Merz, GWKのDr.W.SchüllerおよびDr.W.Heinz, Dr.R.Kroebel, R.Kraemer氏, Dr.H.KrauseおよびDr.K.Schefflerに感謝する。燃焼率の計算および炉物理計算を共同してやって下さったDr.P.MeGrathおよびW.Schikorr氏, 原子炉ストラタジーの計算をして下さったDr.P.J.JansenおよびU.Seele夫人にはとくに感謝する。流布の少ない文献の入手に努力されたM.Starch夫人, 図の製作にあたられたM.Linke氏, 原稿を淨書して下さったW.Höhn夫人およびI.Nagele嬢に感謝する。

印刷のため提出 1975年9月26日

## 目 次

概 要 .....	1
1. はじめに .....	4
2. 西ドイツおよび西ヨーロッパにおける核エネルギー利用の発展の予想 .....	6
2. 1 電気エネルギー生産に占める原子力発電所の比率 .....	6
2. 2 各種炉型のシェア .....	7
2. 3 必要な燃料加工能力および核燃料再処理能力 .....	7
3. 燃料サイクルの種類と燃料の処理・加工に伴なって放射性廃棄物中に入る 核分裂生成物およびアクチニド .....	9
3. 1 計算法 .....	9
3. 2 ウラン-プルトニウム-サイクル .....	10
3. 2. 1 U-235/U-238 を使う軽水炉 .....	10
3. 2. 2 プルトニウムをフィードバックさせる軽水炉 .....	11
3. 2. 3 プルトニウム/U-238(酸化物)を用いる高速増殖炉 .....	12
3. 3 トリウム-ウラン-サイクル .....	13
3. 3. 1 U-235/Th-232 を使う高温炉 .....	14
3. 3. 2 U-233 をフィードバックする(U-233, U-235/Th を使う)高温炉 .....	14
3. 3. 3 軽水炉でえたプルトニウムを使う高温炉 .....	15
3. 3. 4 トリウムの増殖用ブランケットをつけた高速増殖炉 .....	15
3. 4 西ドイツおよび西ヨーロッパにおける高レベル放射性廃棄物中の核分 裂生成物およびアクチニドの全量 .....	16
3. 5 燃料サイクルから生ずる中レベル放射性廃棄物および $\alpha$ -放射性廃棄物 .....	17
3. 5. 1 放射性廃棄物の分類 .....	17
3. 5. 2 燃料要素製造の廃棄物 .....	19
3. 5. 3 原子炉の廃棄物 .....	19
3. 5. 4 再処理からの廃棄物 .....	20
3. 5. 5 まとめ .....	20
4. 核燃料再処理の廃棄物流れに入る長寿命核分裂生成物とアクチニド .....	22
4. 1 軽水炉燃料の再処理 .....	22
4. 1. 1 燃料要素の受入れ .....	22
4. 1. 2 チョップブリーチ-ヘッドエンド .....	23
4. 1. 3 抽出プロセスとティルエンド .....	25
4. 1. 3. 1 高レベル放射性液体廃棄物 .....	25
4. 1. 3. 2 中レベル放射性液体廃棄物 .....	26

4.1.3.3 中レベル放射性固体廃棄物	27
4.2 トリウムーウラン燃料要素の再処理	28
5. 相対的有害性インデックス	30
5.1 リスクの解析とハザードインデックス	31
5.2 相対的有害性インデックス	32
5.3 計算法	33
5.4 各種燃料の高レベル放射性廃棄物の相対的有害性インデックス	34
6. 現在とくに重要視されている廃棄物管理の概念	36
6.1 高レベル放射性廃棄物の固化	36
6.2 地下深部の地層中における最終貯蔵	38
6.3 西ドイツにおける岩塩層中の放射性廃棄物最終貯蔵法	41
6.4 代替観念による高レベル放射性廃棄物の最終貯蔵	42
7. 高レベル放射性廃棄物処分用の代替概念	44
7.1 高レベル放射性廃棄物からのアクチニドの化学分離	44
7.1.1 アクチニドの分離度の調査	45
7.1.2 アクチニド分離の化学的問題	47
7.1.3 ネプツニウムの分離	47
7.1.4 アメリシウム／キュリウムの分離	48
7.2 核変換による長寿命放射性核種の消滅	50
7.2.1 軽水炉燃料における超ウランのサイクリング	51
7.2.2 超ウランを別の照射体として再照射し特別に処理すること	52
7.3 宇宙への送り出し	53
8. 参考文献	55
 付録 1. 西ドイツおよび西ヨーロッパにおける原子力発電所の発展の予測	75
A.1 予測対象期間	75
A.2 1次エネルギー消費の伸び	75
A.3 電気エネルギー消費量の伸び	75
A.4 発電設備容量	76
A.5 原子力発電の設備容量	77
A.6 各種炉型の割合	77
付録 2. ウラン-プルトニウム-燃料サイクルにおける超ウランの生成	79
付録 3. 被覆粒子燃料を用いるトリウムーウラン-燃料サイクルについてのノート	81

## 略語集

L W R	— 軽水減速炉
D W R	— 加圧水型炉
S W R	— ふつとう水型炉
S B R	— 高速増殖炉（ここではナトリウム冷却高速増殖炉）
H T R	— 高温炉
F P	— 核分裂生成物
A C T	— アクチニド元素
T U	— 超ウラン元素
P u <sub>fiss</sub>	— 熱中性子束中で核分裂をする同位体 Pu-239 と Pu-241 の混合物
S M	— 重い元素の金属
H A W	— 高レベル放射性廃棄物，第1抽出サイクルの生成物
H A W C	— 高レベル放射性廃棄物濃縮物
H L W	— 固化された高レベル放射性廃棄物
M A W	— 中レベル放射性廃棄物
M W e	— 電気出力メガワット = 1 0 <sup>6</sup> ワット
G W e	— 電気出力ギガワット = 1 0 <sup>9</sup> ワット
T W e · h	— 電力量テラワット時 = 1 0 <sup>2</sup> ワット時
t	— (メートル)トン
s	— 秒
m	— 分
h	— 時
a	— 年
α	— アルファ 壊変
β	— ベータ 壊変
γ	— γ量子の放射
f	— 热中性子により誘導された核分裂
σ <sub>c</sub>	— 中性子捕獲反応断面積
σ <sub>f</sub>	— 核分裂反応断面積

## 概 要

本研究では、西ドイツ（および西ヨーロッパ）における放射性廃棄物の長期的問題の大きさについての概観をおこなった。工業的エネルギー生産にともなって発生する放射性廃棄物の種類と量を推定するために、電力の将来の需要と発電設備容量の予測を行なった。戦略的にみて、原子力発電のシェアをLWR, SBRおよびHTRの諸炉型に分けた。同時に、年間の燃料加工量ならびに必要な再処理能力を、ウラン-プルトニウム-燃料サイクル、トリウム-ウラン-燃料サイクルに分けて計算した（第2章）。

核分裂生成物とアクチニドの生成量を計算するため、両種の燃料サイクルについて 1000 MWe の LWR-, SBR-, および HTR- 標準原子炉用の各種燃料（核分裂性物質-増殖用物質の各種組合せ）をえらんだ（第3章）。燃料 1 トンあたりの核種・元素の濃度、放射能（第3.2 および 3.3 節）、ならびに相対的有害性インデックス（第5.4 節）を、原子炉からひき抜いた時もしくは燃料を再処理した時からの時間の函数として計算した。この際、燃料被ふく材、燃料構造材、燃料および再処理からでてくる放射性廃棄物にわけて考えた。計算結果は  $10^6$  年までの時間に対してグラフの形式で再録した。この際、再処理ではウランとプルトニウムないしはトリウムとウランの諸元素だけが回収され、ガス状でない核分裂生成物；プロタクチニウム、ネプツニウム、アメリシウムおよびキュリウムのアクチニドと全ての壊変生成物は 0.5 ~ 1 % のウラン、プルトニウムあるいはトリウムのロスと共に高レベル放射性廃棄物にゆくと仮定をした。HTR- 燃料（フィード-ブリード-観念）の場合には、プルトニウムも定量的に高レベル放射性廃棄物中へゆくと仮定した。

1970 ~ 2010 年の予測期間に対して、高レベル放射性廃棄物中の核分裂生成物、Pa, Np, Pu, Am および Cm の年間（ならびに積算）発生量を明らかにした（第3.4 節）。ここで両燃料サイクルを比較すると、HTRによっては比較的少量のプルトニウムしか生成されないが、これを定量的に高レベル放射性廃棄物の中に入れる場合には、高レベル放射性廃棄物に入る軽水炉燃料の再処理時のロスに比べてより大量のプルトニウム（Pu-238 の占める割合は約 65 %）になる。

軽水炉燃料用大型再処理施設の例では、中レベルおよび  $\alpha$  放射性廃棄物の発生も議論された（第4章）。また再処理時および燃料再加工時のプルトニウムのロスを 2010 年までにわたって推定した（第3.5 節）。

中レベル放射性廃棄物はその量が多く種類もいろいろであるため、全廃棄物問題の中でかなりの部分に役割りを演ずる。この種の廃棄物のあるものは長寿命の  $\alpha$ - 放射体、とくにプルトニウム（ならびにプロセスによってはネプツニウムの一部）を含む。特殊な廃棄物に少数の例外があるが、中レベルおよび低レベル放射性廃棄物の流れは、その容積が大きいので高レベル放射性廃棄物のように長期間一時貯蔵するわけにはいかない。発生直後に固化し最終貯蔵にまわさなくてはならない。そこでつきのような要求がでてくる。すなわち、中レベル放射性-および  $\alpha$ - 廃棄物中のプルトニウムの含有量をその時々の技術レベルに基づいた到達可能な

最小限にまで下げなくてはならないという要求である。そのようにすれば恐らくコストはいくらか高くなろう。しかし、ここでは長期の安全性を優先させなくてはならないのである。

放射性核種の有害性、その経時変化、各種の廃棄物取扱法のポジティブもしくはネガティブな影響を比較するために、高レベル放射性廃棄物に対して相対的有害性インデックスを計算した。いくつかの種類の燃料を選定したうえその長寿命核分裂生成物およびアクチニドに対する相対的有害性インデックスを一連の図に表示した（第5章）。

高レベル放射性廃棄物の相対的有害性インデックスは最初の400年間に何ヶタも減衰する。その後は数百万年にわたって極めておそい減衰しか示めさない。400年後までは相対的有害性インデックスは主としてストロンチウム-90、セシウム-137などのような核分裂生成物によって決定される。その後は長寿命の超ウランによって決定される。600～700年後には、これらの半減期およそ30年の核分裂生成物は实际上消滅するが、ヨウ素-129および有害性の高い $\alpha$ -放射体であるアクチニドのあるものは1000年以上の半減期をもつ。ウラン-プルトニウム燃料サイクルでは、相対的有害性インデックスは1000年以上経過するとアメリシウム、キュリウム、それらの壊変生成物によって決定されるようになる。非常に長期的にみればネプツニウムが意味をもってくる。こうなってくると1%よりも少ないプルトニウムのロスは高レベル放射性廃棄物の長期的有害性インデックスの低減に対しては無意味になる。トリウム-ウラン-燃料サイクルでは、長期的には相対的有害性インデックスはプルトニウムにより決定される。トリウムおよびウランのほかにプルトニウムも回収する場合には、約1,000年後から10,000年後にかけて、相対的有害性インデックスはプロタクチニウムにより決定され、その後はウランの壊変生成物、ネプツニウムの壊変生成物によって決定される。

LWR、SBRおよびHTRの各炉型について高レベル放射性廃棄物の相対的有害性インデックスを比較すると、トリウム-ウラン-燃料サイクルでは全体としては著るしく僅かしか超ウランが生産されないので、ウラン-234の壊変系列の役割が大きく、同系列中でラジウム-226の濃度が相当に高くなるので長期的有害性インデックスは極めて高くなる。

高レベル放射性廃棄物を最終的に貯蔵するために、西ドイツでは、固化（恐らくガラス化）、固化した廃棄物の一時貯蔵および岩塩層中深くに貯蔵することが考えられている。（何年も液体で一時貯蔵したのち）ガラス化された高レベル放射性廃棄物の予測量も計算された（第6章）。

放射性廃棄物の難溶性マトリックス中に固化されたアクチニドの放射性有害性を、ウラン鉱もしくはトリウム鉱のような天然放射性物質のそれと比較した。天然放射性物質の放射性有害性は放射平衡になっているラジウムによって大体決定されている。（第5章）

廃棄物シリンダーにした固化高レベル放射性廃棄物を岩塩中に空間的にはなれたボーリング孔中に入れる場合、すなわち、第1近似として廃棄物を小さな単位にして大きな岩塩層中に分布させる場合を取りあげ最終貯蔵所の全領域についてつぎのように比較した（第6章参照）。この場合、廃棄物シリンダーとその周囲の岩塩からなる貯蔵所と同じ大きさの低ウラン含有量のウラン鉱床と比較した。ないしは（10<sup>3</sup>年後における）廃棄物中のアクチニドのインベントリの放射性有害性を、ウラン鉱中の核種インベントリの放射性有害性と比較した。“希釈剤として働く”岩塩も含めて考える場合、LWRおよびHTRの高レベル放射性廃棄物に対する

有害性曲線は 1,000 ~ 2,000 年後に；プルトニウムをリサイクルさせる LWR では約 20,000 年後に；SBR では約 5,000 ~ 10,000 年後に；0.2 w/o のウラン含有量の天然産ウラン鉱の放射性有害性よりも低くなる。（HTR の場合にはウラン-234 の壊変系列中で壊変生成物 Ra-226 の濃度が比較的高くなるので > 2,000 年後にふたたび上昇がみられる。）

したがって、検討した最終貯蔵所の全容積についても、長期的 (> 1,000 年) には、地表も含めて他のどこででも見られるような比較可能の地層に比べて放射性有害性レベルが本質的に上昇することはない。

長寿命の  $\alpha$ -放射体は何百万年もにわたって生物圏から閉めだす必要がある。どのような最終貯蔵所のフィロソフィーからいっても、このことは保証できないので、その代わりにアクチニドを分離し、それを核変換および核分裂させて処分することを議論した。この概念は、アクチニドの長期的問題を核分裂生成物の中期的問題に帰するという理論的可能性をもっている（第 7 章）。

高レベル放射性廃棄物濃縮物から超ウランを分離する場合に必要な分離係数を、これらの元素の化学に基づき、燃料加工プロセスの現在の技術に基づいて、明らかにした。高レベル放射性残留物の相対的有害性インデックスが  $10^3$  年後に天然に産出する放射性ウラン鉱石 (5 % ピッチブレンド) の領域にまで減らすためには、再処理分離システム、アクチニド分離システムの全体に対して、非常に高い分離係数が必要になる。このために必要な分離プロセス、とくに高レベル放射性廃棄物からアメリシウムおよびキュリウムを分離する際のプロセスを、まず開発しなければならない。その工学的実施可能性を実証しなくてはならない。

(軽水炉に対する)これまでの計算によると、原子炉内にフィードバックして核変換・核分裂をおこさせて分離したアクチニドを消滅させることは可能である。リサイクリングによって、最終貯蔵所で貯蔵されることになる高レベル放射性残留物中のアクチニドのインベントリをいちじるしく減らすことができる。しかし、被照射体の加工用に適当な技術は未開発である。

アクチニドの化学分離・リサイクリング・核変換の相対的利益を判断するためには、これまでの計算では十分でない。そこでつぎの 2 通りの必要性を生ずる。すなわち、一方では、開発すべき核エネルギー経済において高レベルおよび中レベル放射性廃棄物およびアクチニドの生成・処分の全システムのシステム解析的研究の必要性である。他方では、稼動状態での附加的なリスク、アクチニドリサイクリングのリスク解析ならびにアクチニドを分離する場合、しない場合およびアクチニドをリサイクルする場合、しない場合についての  $10^3$  年後の最終貯蔵所内における全廃棄物のリスクの比較のリスク解析の必要性である。

## 1. はじめに

今後数十年のうちに核エネルギーの利用は急速に増大し、わが国のエネルギー生産のかなりな部分を担うことになろう。核燃料サイクルの各段階でいろいろの化学形、いろいろの濃度で生じてくる放射性廃棄物には廃棄物管理が必要になる。これは放射性廃棄物に対する技術的、経済的ならびに政治的にうけいれることのできる処理処分法のことを意味する。核エネルギー経済の正確な予想は不可能であるにしても、入手できる最良のデータを使って将来の発展を推定しておく必要がある。

- 量的にみて放射性廃棄物の主流は本質的につきの 2つのカテゴリーにまとめられる。<sup>(K3, B11)</sup>
- 第 1 のカテゴリー。半減期約 30 年の Sr-90 および Cs-137 のような核分裂生成物のグループ。これらの核種はおよそ 700 年後には  $10^{-7}$  Bq/m<sup>3</sup> まで、すなわち実用的には完全に減衰してしまう。
  - 第 2 のカテゴリー。I-129 やアクチニドのような長寿命核種のグループ。後者は主として 1000 年以上の半減期をもつ  $\alpha$ -放射体であって、その  $\alpha$ -放射能のためにきわめて毒性が高い。

アクチニドは、とくに核燃料サイクルの 2つの段階で廃棄物管理上の問題の原因となる。すなわち、

- 核燃料再処理の高レベル廃液中に核分裂生成物とともに混入する。
- 再処理からのプルトニウム（およびネプツニウム）で汚染した中レベル廃液中に混入する。
- 燃料再加工の  $\alpha$ -廃棄物（主としてプルトニウムとアメリシウムとを含む）中に混入する。

高レベル廃棄物では、毒性は中期的には核分裂生成物によって、長期的にはアクチニドによって、左右されることになる。核分裂生成物の放射能は数百年の間には幾桁も減衰する。約 4,000 年後にはアクチニドの毒性は核分裂生成物の毒性をしのぐにいたる。<sup>(K3)</sup>

そのほかの中レベルおよび低レベルの廃棄物では、一般に I-129 および Ni-59, 63 を含む廃棄物とプルトニウム（および他のアクチニド）で汚染した廃棄物だけが長期的な問題の対象になる。この状況では、 $\alpha$ -放射体で汚染された廃棄物が大量に、いろいろの性質やアクチニド濃度をもったものが出てくるのが特徴である。

廃棄物問題の解決策はどのようなものであっても、放射性核種が生物圏のサイクルに戻ってくると考えられる総ての途が、その放射能が消滅するまで閉ざされたままになっていなくてはならない。これに対する時間は、アクチニドおよびその壊変生成物を考えると数百万年が必要になる。

現在追究されているストラタジーは、高レベル廃棄物中に濃縮されている非ガス状の核分裂生成物とアクチニド（Pa, U, Np, Pu, Am, Cm）をガラスもしくはセラミックの塊の中に固定し、岩塩層のような深い地層中に最終貯蔵しようとするものである。クリプトン-85 はガスとして、トリチウムはトリチウム水として減衰しつくすまで貯蔵されることになろう。適当な深い地層中に最終貯蔵する方法は長い時間にわたって放射性廃棄物の閉じ込めるのに

非常に安全性をもった方法である。現在の技術水準からいって、今後 $10^3 \sim 10^4$ 年の長期間に亘る安全上の問題、たとえば構造上の安全性とか循環している地下水への絶縁とかを論ずることが可能であろう。また、同じような長期間における鉱床が放射性残留物に対して示す事がらの情報をさらに集めたりすることも可能なはずである。

極端に長い時間における超ウラン元素を含む放射性廃棄物の問題は根本的にジレンマにぶつかってしまう。今後 $10^5$ もしくは $5 \times 10^5$ 年あるいはそれ以上長い時間に対しては、想像することもほとんどできないように思われる。<sup>(W7, H1)</sup>地質学的な時間にわたって廃棄物が回収されるとは考えられないので、最終保管では（固化生成物、カバー類および最終保管場所の）多重コンテインメントに対して極めて高い保証をもたせる必要がある。

そこでアクチニドを化学的に分離すれば“百万年問題”を“700年問題”にちぢめうるかという問題がでてくる。<sup>(K3)</sup> A.F.RUPP 氏は廃棄物の分離に関する論文の中でつきのように言っている：“さらに、使用済み燃料の再処理は、核分裂性物質を原子炉に返えしただけでは終了していないと言いたい。”<sup>(R2)</sup> 廃棄物の最終保管の対象時間を最小限ファクター 1,000 だけ短縮することができた場合には、アクチニドを分離し、別に保管することは真の安全確保となる。<sup>(K3)</sup> 長寿命核種の究極的処分法として、中性子束の照射によって核分裂もしくは核変換させ安定もしくは短寿命の核種に変えることが議論されている。<sup>(K3, C1)</sup> 問題となる核種は原子炉に戻し 1 種の副反応によってふたたび処理される。<sup>(B1, H1)</sup>

この報告書では、核エネルギー利用の予想から出発し、ウラン一プルトニウムおよびトリウム－ウラン－燃料サイクルにおけるアクチニドおよび核分裂生成物の生成、さらにアクチニドを含む放射性廃棄物の発生・とじこめ、その長期の問題にふれる。ここでは、放射性廃棄物の発生、一時保管・処理、最終処分場所への輸送・搬入の間におこりうる危険、リスクについては立ち入らない。

本報告書では、放射性廃棄物の長期問題をいくつか採り上げて解説する。それに加えて廃棄物処理処分に関する未解決の問題や詳細な点について強力な研究を刺戟することに寄与する。放射性廃棄物の取扱いおよびより安全な処分に対する責任は電気エネルギーを原子力発電所でつくる時代を超えて、はるか将来にまでわたっているのである。

## 2. 西ドイツおよび西ヨーロッパにおける 核エネルギー利用の発展の予想

核エネルギー利用に関連してでてくる放射性廃棄物の諸問題の重要性と意義を評価するためには、将来のエネルギー消費量のできるだけ確っかりした予想が必要である。応用システム工学・原子炉物理研究所との協力研究で本研究のためにいくつかの予測をたてた。<sup>(M2)</sup> この場合、すべての個々の仮定を明確にすることに特別の注意を払った。附録1にはこれらの予測を簡潔にまとめてある。

### 2.1 電気エネルギー生産に占める原子力発電所の比率

まず第一に、電気エネルギー生産の最高成長率と最低成長率とを推定した。このようにして求められた年間発電量の範囲(Fig.2.1)から、同様にして推定した稼動率の助けをかりて、1970～2010年の期間に対して予想発電電気容量をもとめた(Fig.2.2)。これにエネルギー生産に占める原子力発電の比率(Fig.2.2)が関係する。ここで戦略的観点から発電電気容量を各種の原子炉々型に配分した。

以上の一連の作業の中で採用した仮定は附録1に簡潔に説明されている。1990年代になって初めて、高温炉・高速増殖炉が核エネルギー生産中に占める割合がはつきりと現われてくるので、予想の対象とする期間を2010年まで延長した。

1970年代には西ドイツの発電の中での核エネルギーの占める割合が急上昇しはじめる。2000年までには、核エネルギーは電力生産の80～85%，すなわち全エネルギー生産の約40%を受け持つことになろう。さらに、1990年代には核エネルギーをプロセス用熱に使うことが急速に重要となってこよう。<sup>(M1)</sup> 今世紀末にむかって高温ガス炉(HTR)が化学工業、石炭液化および冶金用のプロセス熱をまかなうようになろうというもっともな意見もある。<sup>(F2)</sup> 紀元2000年には一次エネルギー生産の約3%はプロセス熱の形でHTRからとるようになるかも知れない。<sup>(M1)</sup> しかし簡単のために、ここで採りあげた予測ではHTRは発電用としてのみ考慮することとした。

エネルギー生産が世界的にどんどん拡大されるので、ここ数十年のうちに原料入手の限界と地球のエコロジカルな負担の限界にぶつかってしまう。<sup>(M3)</sup> 21世紀になるころにエネルギー生産曲線が平坦になることが予想される(S字形)<sup>(W8)</sup>。ここで電力生産に対して、電気エネルギーは他の一次エネルギーに比べて多目的な利用ができるので代替エネルギーになる傾向が強いことを注意しておかなくてはならない。このことは全一次エネルギー消費曲線が平坦になって、しかもまだ他の一次エネルギー源が存在する場合においてもいえる。しかし現時点では電力生産曲線にS字形の平坦部分があらわれるという決定的因素については、今なおよくわかっていない。したがって、本報で利用する予測範囲もS字形エネルギー曲線の下の部分だけを採用してある。

このような予測に大きな不確かさがつきまとうことは避けられないが、他の仮定をしてえら

れた結果と比較するために、西ドイツ、西ヨーロッパおよび米国における相対的成长を換算係数を使って（附録1、A.5を見よ）計算した。その結果をFig.2.3に示し、以前に発表された予測とも比較した。<sup>(S4, U2, U3, A1)</sup> 本研究報告の編集中に、"西ドイツにおける放射性廃棄物"というシステム研究の中で同様の予測が行われた。<sup>(B15)</sup> 原子力発電所の成長状況の楽観的予想と悲観的予想も同じくFig.2.3に示されている。これらでは1985年までは既設原子力発電所および建設計画に基盤をおいている。<sup>(B15)</sup>

大型原子力発電所ブロックの増設とその運転開始により、また認可手続きおよび建設開始の遅延に基づく変更などにより、実際には階段状に上昇がおこる。これは、とくに、核エネルギー導入期にあたる1970年代にはつきりとあらわれている。放射性廃棄物の生成量の推定における（2年程度の）時期のずれはあまり大きな意味がない。

## 2.2 各種炉型のシェア

原子炉戦略の計算では、二三の簡単な場合について核分裂生成物および超ウラン元素生成に関する基礎データをうる必要がある。そのために軽水炉・高速増殖炉・高温ガス炉の市場占有率<sup>(U1)</sup>ならびに、それらによって規定される燃料加工能力・核燃料再処理能力を推定することを試みた。軽水炉・高速増殖炉（酸化物）および高温ガス炉を考慮したストラタジー用には、1000MWeの標準原子炉を基本として採用した。えられた最低・平均・最高の予想原子力発電容量をTable 2.1にまとめてある。（標準原子炉のデータはTab.3.1にかかげてある。）また、これらの結果を、西ドイツに対するものと、西ヨーロッパに対するものに分けてFig.2.4に図示した。ここに西ヨーロッパに対する値は附録1のA.5にあたえてある4.7という換算係数を使って西ドイツに対する値から算出したものである。

## 2.3 必要な燃料加工能力および核燃料再処理能力

原子炉のストラタジーと同時に、燃料加工および使用済み燃料要素の再処理に対する年間処理量を計算した。この際、約2年の炉心外期間を仮定した。これは、軽水炉燃料に対しては1年、高速増殖炉燃料に対しては0.9年の再処理用期間と、燃料要素加工用の1年とを見込んだものである。

1000MWeの標準原子炉の公表データ（Tab. 3.1）にしたがって年間の燃料加工必要量を計算した。ウラン一プルトニウム一燃料サイクルの場合の必要量をFig. 2.5に、トリウム一ウラン一燃料サイクルの場合のそれをFig. 2.6に示した。いずれの場合も、西ドイツおよび西ヨーロッパに対する、最小、平均、最大の推定値が示してある。

同様に、Fig. 2.7と2.8には燃料再処理の年間処理量の計算値を、両種の燃料サイクル別に示してある。この予測は西ヨーロッパを対象としてこれまでにえられた推定ときわめてよく一致する。<sup>(M5, F4)</sup> 工業的再処理は西ヨーロッパを対象に行なわれており、ECに對しては行なわれていない。原子力の分野では輸送問題と資本の投下状況のため、国という点は地理的条件ほど大切なからである。

Fig. 2.7には(Windscale 1号工場の廃止後の)最新の状況<sup>(B19)</sup>にもとづいて西ヨーロッパにおける軽水炉燃料用再処理能力が下記のように増強される様子も図示してある：

工 場 名	年間処理量	運 転 開 始
WAK	3 5 <sup>tSM</sup>	運転中
La Hague	8 0 0	1981年より(1976年以降段階的に)
Windscale II	8 0 0	1983年より
K E W A	1 5 0 0	1985年より

したがって、EC諸国だけでなく西ヨーロッパ全体を考えると、明らかに再処理能力が不足することがわかる。

### 3. 燃料サイクルの種類と燃料の処理・加工に伴なつて放射性廃棄物中に入る核分裂生成物およびアクチニド

現在および将来の発電用原子炉の燃料サイクルはいろいろな種類があろうが、本研究ではウランープルトニウムーサイクル<sup>(B1)</sup>とトリウムーウランーサイクルとの2つの有力な燃料サイクルについて考えた(Fig. 3.1)。この分類法の主な根拠は、再処理の方法がことなること(ウランープルトニウムーサイクルではPurex法により、トリウムーウランーサイクルではThorox法による)および得られた核分裂性物質の再加工法がことなることである。

それぞれの燃料サイクルの中でも、添加もしくは生成によって生ずるさまざまの核分裂性物質—母物質—組合せがある。その中からいくつかの組合せを選び出し、核分裂生成物および超ウランの生成の計算に用いた。

上記のように2つの燃料サイクルに分類した場合、ウランープルトニウムーサイクルではU-238から生じた核分裂性のプルトニウムが、また、トリウムーウランーサイクルではTh-232から転換された核分裂性のU-233が残る。核分裂性のU-235はいずれの燃料サイクルでもこれを動かし始めるのに必要であり、両サイクルの中で重要な役割をする。ただ、ウランープルトニウムーサイクルでは低濃縮の形(2~4%濃縮)が一般であり、トリウムーウランーサイクルでは高濃縮の形(約9.3%濃縮)が一般である。

#### 3.1 計算法

原子炉の中性子束中で重い核が核分裂して核分裂生成物を生成すること、中性子捕獲と $\beta$ -壊変とを繰返して重い核種を競合生成してゆくこと、ならびに生じた放射性核種の壊変することは、コンピューターのプログラムORIGEN<sup>(B3)</sup>を用いる燃焼度計算で算定されている。これらの計算では461の核分裂生成核種を考慮したほか、分枝反応系列とTl-204からEs-253にいたる諸核種の $\alpha$ -壊変諸系列の引き戻し効果とを正しく電算機で取扱う配慮がされている(Fig. 3.2)。基礎になる1000MWe標準原子炉および燃料の概念はTable 3.1にまとめである。この計算では、

- 燃料要素被覆材および構造材
  - 燃料 および
  - 処理・加工からなる放射性廃棄物
- に対して
- 核種もしくは元素の濃度(g/t 重金属)
  - 放射能(Ci/tSM)
  - 壊変熱(Watt/tSM) ならびに
  - 相対的有害性

を、原子炉への装入もしくは再処理をしてから後の時間の関数として求めたものである。これらの計算の結果を主としグラフの形式で個々の燃料の種類に対して再録しておく。

Table 3.2には、各種の原子炉々型ならびに燃料の種類の異った場合の使用すみ燃料中の核分裂生成物とアクチニドの濃度を比較対照表の形でまとめてある。

### 3.2 ウラン-プルトニウム-サイクル

商業用原子力発電所では広く軽水炉（LWR）が用いられている。軽水を用いて中性子を減速し、冷却するこの原子炉には加圧水型と沸騰水型の2つの炉型があり、低濃縮ウラン（2～4%U濃縮したU-235）を使って運転されている。

同様に、ウラン-プルトニウム-サイクルに対しては、現在開発中の高速増殖炉（SBR）があげられる。これはLWR燃料から得られるプルトニウムを核分裂性物質として使って運転される。

ウラン-プルトニウム-燃料サイクルのもっとも重要な段階は、Fig. 3.1の上半分に示されている。燃料サイクルのすべての段階において、いろいろな物理的・化学的の形状をした放射性廃棄物がきわめて広範囲な放射能レベルであらわれてくる。したがって、二三の重要な廃棄物の流れもFig. 3.1に示されている。

量的にいってもっとも重要な放射性廃棄物の流れは、  
 - 燃料の加工および再加工、  
 - 原子炉の運転、および  
 - 使用すみ燃料要素の再処理  
 の各段階であらわれる。

しかし、再処理に際して、  
 - 放射化された被覆材および構造材、  
 - 核分裂生成物、および  
 - 超ウラン諸元素  
 の大部分は分離される。ここで、Purex 法の第1抽出サイクル中に、

- 不揮発性の核分裂生成物の99%以上、  
 - 若干の超ウラン  
 - 改変生成物、および  
 - ウラン、プルトニウムのロス分  
 は、“高レベル廃液”の中に入る（4.1.3.1節参照）。

以下には各種の燃料についての計算を行なうが、これは主として高レベル廃棄物ならびに放射化された被覆材・構造材に関連するものである。

#### 3.2.1 U-235/U-238 を使う軽水炉

軽水炉では燃料として低濃縮ウランが必要である。現在既設の大型発電炉には2.8～3.3%U濃縮したウランが使われている。このような燃料の燃焼率は、はじめに装荷したウラン全量の2～3%（重量百分率）である（この際、使用すみ燃料中に生じたプルトニウムの含有量は0.8～1.2%に達する。）

1000 MWe の標準原子炉のつきのようなデータ (Einwurf KWU) に基づいて、軽水炉燃料の処理から生ずる放射性廃棄物の計算をした：

- 3.3%濃縮ウラン-235を用いる平衡燃料サイクル
- 負荷率0.8%の場合、年間に1/3炉心に相当する26.0トンの燃料交換
- 燃焼率34,000 MWd/t SM
- 燃料被覆材および燃料構造材 414 kg/t SM
- (ジルカロイ-4およびステンレス鋼)
- 150日の冷却期間の後の再処理

Fig. 3.3 および 3.4 には、軽水炉燃料の再処理ででてくる高レベル廃棄物について、長寿命核分裂生成物およびアクチニドの濃度と放射能を10<sup>6</sup>年の期間にわたって再録した。ウランのロスは0.5%，プルトニウムのロスは0.5%と仮定した（その他の仮定については3.4を参照のこと）。

再処理に際して実際上定量的に高レベル廃棄物の中に入るアメリシウム-241の量は、Pu-241(β-放射体、半減期14.5年)の壊変によってAm-241を生ずるため、再処理する時期に強く左右される。3.3%濃縮ウランを用いた軽水炉燃料では、34,000 MWd/t SM燃焼した後には、アメリシウム-241の濃度[g/t SM]は冷却期間とともに次のように増加すると計算される。<sup>(H6)</sup>

冷却期間					
	150d	270d	1y	3y	5y
Am-241	47.2	63.3	75.9	168	265
	10y				
					426

### 3.2.2 プルトニウムをフィードバックさせる軽水炉

軽水炉燃料の再処理では、将来ますます多くのプルトニウムを生ずるようになる。プルトニウムはその炉物理的特性から現在開発中の高速増殖炉の燃料として用いるのが最もよい（3.2.3参照）。この炉型が市場に導入されるまでは、80年代の終りに向ってプルトニウム量が急速に蓄積されるという問題がおこる。

安全性、経済性、ならびに適切なプルトニウム工学の発展によって、軽水炉にもフィードバックするのがよいといわれている（プルトニウムのサーマル利用<sup>(A3, M6)</sup>）。これには1gのU-235の代用をさせるのに1.25gのPuが必要になる（これに反して、高速増殖炉では約0.7gのPuが1gのU-235の代用をする<sup>(H2)</sup>）。沸騰水型-ならびに加圧水型-原子炉における含プルトニウム燃料要素の試験照射が、米国においても<sup>(A3)</sup>西ドイツにおいても<sup>(M3, L1)</sup>進行中である。

超ウラン元素生成の計算をする目的で、プルトニウムリサイクルを実際に実現できる可能性に基いて、自給生産の範囲でプルトニウムのフィードバックが達成できるような炉型をえらんだ。すなわち、特定の原子炉で生産されたプルトニウムだけがこの炉にリサイクルされるのである。リサイクルされるプルトニウムの同位体組成としては、つぎのように仮定した。すなわち、3.3%濃縮ウランを用い34,000 MWd/t SMまで燃焼させ、150日冷却させたりえ、

さらに1年間をかけて燃料要素をつくる加圧水型標準原子炉の平衡サイクルに対して計算した同位体組成を用いたのである。核分裂性物質のおよそ19%が核分裂可能なプルトニウムによっておき代えられることになる。

軽水炉にリサイクルした後のプルトニウムの同位体組成は附録2のTable A 2.1に示した。リサイクルされたプルトニウムを含む使用済み軽水炉燃料の高レベル廃棄物では、結果としてFig. 3.5に示した濃度になる。アメリシウムおよびキュリウムの生成量は、ウランサイクルの場合にくらべて何倍にも増える。放射能の曲線は、さきにFig. 3.4に示したとおりである。

軽水炉におけるプルトニウムリサイクリングの場合にも、Pu-241の壊変によって高レベル廃棄物中のアメリシウム-241の量(単位g/t SM)は再処理する時期に大きく左右される。<sup>(H6)</sup>

冷却時間						
	150d	270d	1 a	3 a	5 a	10 a
Am-241	80	102	120	246	385	603

### 3.2.3 プルトニウム/U-238(酸化物)を用いる高速増殖炉

プルトニウムの再使用には、その炉物理的特性のため、とくに核燃料としてプルトニウムを使うように設計された高速増殖炉(SBR)がもっとも適している。この種の原子炉では、Pu-239およびPu-241がよくできるように経済的な最適化が行なわれているほか、これらの炉で燃焼が進むほど核分裂性物質がよけいに増殖される目的での最適化が行なわれている。したがって、長期的にみれば天然ウランの高度利用(約30から50%)が達成される。

高速中性子の領域では中性子のエネルギーが増してゆくと、中性子捕獲断面積( $\sigma_r$ )は核分裂断面積( $\sigma_f$ )よりも急激に減少する。さらに、熱中性子では核分裂しない超ウラン元素の同位体も、高速中性子では核分裂する。この2つの原因から高速炉では(プルトニウムのインベントリが大きいことを考えれば)生成される超プルトニウム核種の量は比較的小さい。

ナトリウム冷却1000MWe標準原子炉(Entwurf Interatomプロジェクトの高速増殖炉)のつきのようなデータ(Tab. 3.1参照)を考慮して、放射性壊変の計算をした:

-軽水炉-プルトニウムを使う平衡サイクル

-炉心および内部ブランケット系列におく期間1.6年、外部ブランケット系列におく期間3.2

年

-炉心における平均燃焼率7000.0 MWD/t SM

-負荷率0.8の場合の年間燃料交換量25.0 t SM

-燃料要素被覆材、構造材640 kg/t SM(不銹鋼)

-150日冷却したのちの炉心とブランケット(平均燃焼率3400 MWD/t SM)との共通再処理

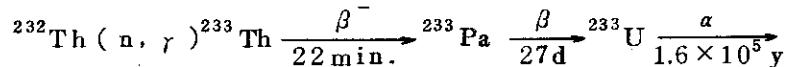
計算でえられた濃度と放射能をFig. 3.6および3.7にグラフにして示した。

Fig. 3.7では、高速増殖炉でえたプルトニウムを利用した場合の放射能の変化も示しておいた。このプルトニウムは重いプルトニウムの同位体が少なく、アメリシウムおよびキュリウム。

ムの生成も少なくなる。

### 3.3 トリウムーウランーサイクル

核エネルギーの利用には、U-235およびPu-239/Pu-241のほか、同じく熱中性子で核分裂をひきおこしするU-233も問題になる。天然ウランの中には存在しないU-233は、つきの核反応にしたがってうることができる：



出発物質は天然に存在するトリウム-232 ( $\alpha$ -放射体、半減期  $1.39 \times 10^{10}$  年) である。

トリウムーウランーサイクルの応用は、とくにガス冷却高温炉の場合にすぐれている。高温炉は低濃縮ウラン(約5～10%に濃縮したU-235)を使った簡単な燃料で運転できる。<sup>(S8)</sup>しかし、長期的には生成したU-233をフィードバックする閉じたトリウムーウランーサイクルの方が経済的である。<sup>(B5)</sup>これは、一方では、純U-233炉心はU-235炉心に比べてずっと大きな転換因子をもっているため、熱中性子領域における増殖されたU-233の核的性質がよいからである。また他方では、U-233のフィードバックを伴なうトリウムーウランー燃料サイクルでは、後から装荷するU-235の量を30～50%減らすことができ、それに応じて分離作業量が減るからである。

トリウムーウランーサイクルにおける放射性廃棄物の生成については、下記の問題点がある：一生ずるプルトニウムは量的にいり生成するネプツニウムと同じオーダーになる。比較的量が少ないためと熱中性子で核分裂できるプルトニウム同位体の存在比が小さい(核分裂性プルトニウム 25%, Pu-238 約65%)ため、再処理での分離や原子炉へのフィードバックを考えなくてもよいように思われる。したがって、プルトニウムは長期の廃棄物問題になってくるであろう。

-(U-235の燃焼用粒子とTh-232/U-233の増殖用粒子とを使いわける)フィードブリード増殖概念が提案されている。これでは、燃焼用粒子のウランは“価値がなくなつてもう使わなくなるまで”<sup>(S6)</sup> 1度あるいはせいぜい2度燃焼させて最初の高濃縮ウラン-235を数パーセントまでに下げる<sup>(D2, S6)</sup>ことを考えている。これはすなわち、さらに再処理をしないで高レベル放射性廃棄物として最終処分してしまうべきだという意味である。<sup>(M4)</sup>

-2回原子炉で使ってU-235が4～5%になってしまった燃焼用粒子の再処理には次のような目的ぐらいしかあるまい。すなわち、被覆粒子の比較的信頼できる閉じこめの中にある核分裂生成物やアクチニドの酸化物を、もっと信頼性の高い貯蔵用形態(ガラス、セラミックなど)にすることぐらいである。このような操作をしても利点があるかどうか疑わしい。そのうえ、このような処理をすれば当然、中低レベルの廃棄物を生じ、廃棄物の容積が増大することになる。

### 3.3.1 U-235/Th-232 を使う HTR

トリウム高温炉は高濃縮ウラン(93%濃縮U-235)および10~20倍量のトリウムを使って運転が始まられる。<sup>(S6)</sup>HTRでは濃縮度が高く、また熱力学的効率が大きい(39~42%)ので、重金属のインベントリーは軽水炉の約1/3量になる。軽水炉に比べて高温炉では燃焼率が高く、燃料要素の装入期間が4年と長いので、年間追加荷量は同じ発電容量の軽水炉の約1/4量にすぎない。(Table 3.1も参照)

ヘリウム冷却高温炉について、つぎの燃料概念に基いて、<sup>(D5)</sup>放射性廃棄物の計算をした:  
-U-233のフィードバックをしない開いた燃料サイクル。

-炭素とトリウムの原子数比 250

-燃料要素の寿命 4年

-平均燃焼率 95,000 MWd/t SM

-稼動率0.8の場合、年間燃料交換量 約7.6 t SM (1000 MWeあたり)

-270日の冷却期間のうちに再処理

高レベル廃棄物の組成に対しては、混合酸化物燃料、燃焼-増殖システムにしたがった燃料の何れであるかに拘らず、1回の再処理が行なわれ、その際にはPa、Np、AmおよびCmならびに1% Th、1% Uのロスが高レベル核分裂生成物廃棄物中に入ると仮定した。プルトニウムに対しては、定量的に廃棄物に入るか、あるいはプルトニウムを分離する場合には1%が廃棄物へゆくと仮定した。

計算の結果をFig. 3.8 および3.9にまとめておく。

### 3.3.2 U-233をフィードバックする(U-233, U-235/Th を使う)高温炉

トリウム高温炉は転換比の大きい転換炉である。燃料の全需要をカバーするためには、再処理をしてえられたU-233をフィードバックしたのち、燃え残りのU-235の一部で補充しなくてはならない。この炉型のエネルギー生産の内訳は、U-235によるもの約1/3, Th-232/U-233増殖サイクルによるもの約2/3である。<sup>(L1)</sup>

燃焼-増殖システムでは燃料サイクルと増殖材サイクルとが再処理で重なりあうことは好ましくない。

-U-235を強く燃焼させ、およそ75%にも達すると、残りのウランから多量のU-236を生ずる。“これは再処理の魅力を減退させるものである”<sup>(L1)</sup>したがって、残りのU-235はただもう一度だけ原子炉に装荷すべきである。<sup>(B6,S6)</sup>

-およそ8%までも消費されたトリウムには貴重なU-233が含まれている。その処理には強い遮蔽と遠隔操作が必要になる。

再処理でえられたU-233を被覆粒子燃料に再加工すること、トリウムはTh-228が充分減衰するまで約15~20年貯蔵すること(Th-228の壊変系列には高エネルギーのγ-量子があらわれる。)は予め考慮に入れてある。比較的小量のU-235を含む燃焼用粒子も第1回炉内装荷終了後は取りあえず中間貯蔵される。<sup>(T2)</sup>これらは後に廃棄物として処分されるか、あるいは処理される。処理時に分離されたウランの利用法はまだはっきりしない。

General Atomic社の概念は、<sup>(S6,D2)</sup>経済的な根拠からもう一回だけ4年間の原子炉照射を繰

り返すことにしている。それ以後は燃焼用粒子の再処理はもう考えていない。

燃焼核の高濃縮ウランは当初約 6 % の U-238 を含んでいる。それから中性子捕獲によってプルトニウム、アメリシウムおよびキュリウムが形成される。したがって燃焼した粒子には超ウラン元素の大部分が含まれることになる。

高レベル放射性廃棄物の計算には、開かれた U-235 サイクル (3.3.1 節参照) の場合と同様に標準原子炉の U-233 リサイクリングを考慮した。<sup>(D5)</sup>

ここでもまた、生じたプルトニウムの全量 (もしくは分離の場合は 1 %) が放射性廃棄物の中に入ると仮定された。

(1 % Th および 1 % U のロスも含めた) 廃棄物中の全濃度計算値を Fig. 3.10 に示した。この図では増殖用粒子と燃焼用粒子に分類していない。(5.4 章ではそうでない。参照のこと。) 全放射能は Fig. 3.11 に示した。10<sup>3</sup> 年以上もたつと、廃棄物中のプルトニウムが全放射能に与える影響はわずかになる (再び 5.4 章参照のこと)。

### 3.3.3 軽水炉でえたプルトニウムを使う高温炉

核分裂性物質として U-235 の代りに軽水炉でえたプルトニウムを、増殖材としてのトリウムとともに、高温炉に入れられる可能性についても研究が進んでいる。<sup>(A3 D2, G3)</sup> しかしその後、混合した U-Pu - 炉心は炉物理的に難点があるようになってきた。比較的新しい計算によれば、全炉心を 2.5 年後にとりかえる場合には、U-235 を完全に軽水炉でえたプルトニウムで置換できる。このプルトニウム炉心は第 1 炉心として良好な特性を示している。またウラン炉心への移行も困難なく行なわれよう。

今日の情勢では高速増殖炉に比べて高温炉の導入の方が時間的に早くなることは、まずありそうもない。この燃料概念が実現するかどうかは明白ではない。

長期の廃棄物問題にとって、高温炉では U-238 が存在しないので核分裂性のプルトニウム同位体はきわめて迅速に燃焼することは興味深い。軽水炉において繰返しフィードバックする場合 (附録 2, Tab. A. 2.1 参照) のように U-238 から新たに Pu-239 をつくり、核分裂性成分を再生することがないからである。高温炉では核分裂性同位体をわずかしか含まない "価値のない" プルトニウムが急速に生成される。このプルトニウムはもう一度だけ燃焼用粒子に加えられる。ここで U-235 の場合に類似した問題がおこってくる。すなわち、これを軽水炉用プルトニウムあるいは高速増殖炉用プルトニウムに混合してよいのか、または再処理をしない燃焼ずみ粒子を高レベル固体廃棄物として最終的貯蔵をしなくてはならないのかという問題がおこってくるのである。

### 3.3.4 トリウムの増殖用ブランケットをつけた高速増殖炉

高温炉では冷却ガスの出口温度が約 950 ~ 1100 °C と高いので、とくにプロセス用熱の生産に適している。そのため、1990 年代には電力生産が急上昇するのと相まって、プロセス用熱生産のための核エネルギーの利用も急上昇すると期待されている。<sup>(M1)</sup>

軽水炉で第 1 炉心用のプルトニウムの全需要量が作られるにしたがって高速増殖炉が建設されてゆくと仮定される。この場合、高速増殖炉の増殖能力を自分のための需要、すなわち増殖

炉の倍増に結びつけることはもはや必要でなくなる。<sup>(S7)</sup> このような場合には、増殖能力を高温炉のためのU-233の増殖にふりむけることになろう。純U-233/トリウムからできた炉心をもつ高温炉の転換率を0.8とすると、その1基は同じ大きさで転換率1.23くらいの高速増殖炉1基を必要とすることになる。

この考えは、プルトニウム/U-238炉心をもつた高速増殖炉にU-238の軸方向ブランケットと、トリウムの半径方向のブランケットをつけたものによって達せられる。このPu/U-238炉心では高速増殖炉のセルフサステイニングに必要なプルトニウムを生産する。増殖増は軸方向のブランケット内でU-233を生成する。<sup>(F3, W2)</sup> したがって、高温炉内の高いU-233転換率の長所は完全に利用されることになる。

この燃料サイクルの概念は紀元2000年以前に実現することはまずないので、ここでは言及するにとどめる。放射性廃棄物の発生については、純U-233炉心では使用すみU-235燃焼用粒子からのU-236/U-235混合物がでないことになる。また、超ウラン元素の生成もわずかである。

### 3.4 西ドイツおよび西ヨーロッパにおける高レベル放射性廃棄物中の核分裂生成物およびアクチニドの全量

前節に示したように、いろいろの炉型や燃料の種類による核分裂生成物およびアクチニド生成を概観してみたあと、つづいて第2章の原子炉ストラタジーにしたがってアクチニドの全量を計算した。

計算にあたっては、下記のように現在の燃料取扱い概念にしたがった保守的な仮定をした：一ウランとプルトニウムないしはトリウムとウランだけを回収する。

一ガス状核分裂生成物(Kr, Xe, H-3)ならびに99.9%のヨウ素を分離し、別の廃棄物として取扱う。

一ガス状でない核分裂生成物；ネプツニウム、アメリシウム、キュリウムおよび超キュリウム元素のアクチニド；ならびに、プロタクチニウムおよび総べての壊変生成物は高レベル廃棄物に入る。

一ウランとプルトニウムないしはトリウムのロスは、高レベル廃棄物の流れに0.5%，なお開発が進められている(高温炉、高速増殖炉の)燃料加工時には1%になる。

一高温炉燃料の場合はプルトニウムも廃棄物に入る。

以下に示すグラフは、西ドイツおよび西ヨーロッパに対する平均的想定および最大想定時の計算結果である。

Fig. 3.12は核分裂生成物の年間全生成量を再録したものである。

ネプツニウム、全プルトニウム、廃棄物になるプルトニウム(軽水炉ー、高速増殖炉ー燃料から0.5%，高温炉燃料から100%)、アメリシウムおよびキュリウムの年間生成物はFig. 3.13~3.17に示されている。

ここで両燃料サイクルを比較すると、高温炉では比較的少量のプルトニウムしか生成しないことがわかる。しかし、これが定量的に高レベル廃棄物に入ることになると、軽水炉燃料の再

処理の際に高レベル廃棄物に入る(0.5%の)ロス分よりも大量のプルトニウムが高レベル廃棄物に入ることになる。

ウラン-プルトニウムサイクルおよびトリウム-ウランサイクルの高レベル廃棄物中のアクチニドの年間生成量をまとめて、Fig.3.18～3.20に示しておく。

最後に、高レベル廃棄物中の超ウランの蓄積総量をFig.3.21に示す。

### 3.5 燃料サイクルから生ずる中レベル廃棄物および $\alpha$ -放射性廃棄物

放射性廃棄物は核燃料サイクルのすべての段階でいろいろな化学的・物理的形状を呈して、さまざまな放射能濃度で生じてくる。その特性にしたがって放射性廃棄物はつきのようにいくつかの重要なタイプに分類される。この際、簡単にするために、広く用いられている慣用語を利用するのがよからう：

—高レベル廃棄物

— $\alpha\beta\gamma$ -廃棄物

被覆材および構造材からの廃棄物

その他の中レベル $\alpha\beta\gamma$ -廃棄物

— $\alpha$ -廃棄物

—中レベルおよび低レベルの $\beta\gamma$ -廃棄物

以下の諸節では廃棄物のタイプを詳細に定め、燃料サイクルの個々の施設で生ずる廃棄物の量を推定することを試みた。

#### 3.5.1 放射性廃棄物の分類

ここに用いる術語は、ウィーンの国際原子力機関<sup>(11)</sup>が固体および液体廃棄物に対して提案しているカテゴリーとできるだけ一致する放射能範囲に定めた。(Table 3.3 および 3.4)

—高レベル廃棄物

“高レベル液体廃棄物”といえば再処理の第1抽出サイクルの Raffinate 溶液を濃縮したもの(HAWC)を指す。したがって、つきのような特徴をもつ：

- ガス状でない核分裂生成物の 99%以上ならびに相当量のアクチニド核種を含む。
- 強い透過力をもつ放射線をだすので、厚い遮蔽を必要とする。
- 自ら発熱するので、その貯槽は冷却しなければならない。

液体高レベル廃棄物は IAEA-カテゴリー 5 に相当する。その固化生成物は、ここでは“固化高レベル廃棄物”(略号 HLW)とよぶことにする。

(高レベル液体廃棄物の定義とアナロガスに)高温炉燃料の使用ずみフィード粒子は、“高レベル固体廃棄物”に分類される。

—中レベル $\alpha\beta\gamma$ -廃棄物

これは発熱がわずかであるので高レベル廃棄物から区別される。また遮蔽も少ししか必要としない。このような廃棄物は $\beta\gamma$ -放射能のほか相当量の $\alpha$ -放射能も含み、IAEA の提案中に特有のカテゴリーがないものである。

- 被覆材および構造材の廃棄物

再処理のとき、燃料要素を切断し細かく刻み燃料物質を溶かし出したのち、残留物として残るものである。これは比較的高い放射能をもつた、中性子で放射化された生成物（その中で長期的にはNi-59とNi-63が興味がある）を含んでいる。また、0.3%までのプルトニウムを含むことがある。被覆材一および構造材一廃棄物は熱を発生し、遮蔽を必要とする。

- その他の中レベル $\alpha$  $\beta$  $\gamma$ -廃棄物

再処理に際して生成する（また、少量には原子炉運転時にも発生する<sup>(B11)</sup>）。これには、遠隔操作と遮蔽を必要とするほどの濃度に核分裂生成物を含む。

- $\alpha$ -廃棄物

長寿命できわめて毒性の高い $\alpha$ -放射体、とくにプルトニウムおよび少量の他のアクチニド（Np, Am-241, U-233）で汚染された液体もしくは固体の廃棄物である。 $\alpha$ -廃棄物の発熱は僅かであり、適当な包装をしたのちは遮蔽を必要としない。

固体 $\alpha$ -廃棄物は、紙、布、木、合成樹脂、ゴム、ガラス、セラミック、金属のようないろいろの物から成る。これには可燃性のものが多く含まれる（容積で1/2～2/3）。

燃料調製時、燃料再加工時ならびに再処理時に、大容積の $\alpha$ -廃棄物が発生する。

IAEAの提案<sup>(11)</sup>によれば、固体 $\alpha$ -廃棄物は元来カテゴリー4に入る。米国の勧告<sup>(B11, U7)</sup>によれば、下限としては10 nCi/gが提案されている。この $\alpha$ -放射能は地球の比較的高い天然ラジウム濃度に相当する。

- 中レベル一および低レベル $\beta$  $\gamma$ -廃棄物にはつきのようなものがある：

- プロセス流れの除染時に廃棄物となる濃縮物、泥など。（たとえば、原子力発電所、再処理工場で）
- トリチウム（半減期 12.3年） 軽水炉の運転時にきわめて希薄なトリチウム化した水の形で現われ、再処理時にはずっと大量に発生する。
- 希ガスKr-85（半減期 10.8年） 原子炉運転時に破損燃料要素から小量遊離される。再処理工場では、燃料要素の切断時および燃料物質の溶解時に遊離される。
- C-14（半減期 5736年） 小量には、ガス冷却高温炉のグラファイトマトリックス中に放射化生成物として生成する。また、トリウム-ウラン-サイクルの再処理工場のヘッドエンドでグラファイトを燃焼させる場合に、きわめて希薄な放射能濃度で<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>として発生する。
- I-129（半減期  $1.6 \times 10^6$ 年） 核分裂生成物として、燃料物質の蒸発時もしくは溶解時に廃ガスから分離される。または、おそらくとも高レベル液体廃棄物の固化時、ガラスもしくはセラミックにするための融解時に分離される。
- その他の固体廃棄物 燃料サイクルのすべての施設で大容積に発生する。取扱い・輸送に際して遮蔽を必要としない。

$\beta$ ,  $\gamma$ -廃棄物はI-129を例外として、30年以下のうちの寿命のものまでの比較的短い半減期の放射性核種からなる。そのため放射性同位元素が減衰するまで数百年安全に貯蔵すればよいことになる。それゆえ、本研究では部分的にしか対象としなかった。

### 3.5.2 燃料要素製造の廃棄物

燃料要素の製造に際して液体および固体の廃棄物が生ずる。これは、濃縮ウラン、プルトニウムおよびアメリシウム、あるいはU-233で汚染されている。

この研究ではPu-もしくはU-233-含有燃料の調製時にての $\alpha$ -廃棄物にとくに注目している。著者の推定によれば、これまでのような比較的小規模作業では、プルトニウムのロスは数パーセントのオーダーになる。これは規模が大きくなれば減少し、1%くらいになろうと期待される。

楽観的とみられるTuy1らの報告<sup>(T1)</sup>によれば、1990年にはプルトニウムのロスが直線的に減少すると0.25%になろうとされる。BLOOMEKE, KEEおよびNICHOLS<sup>(B8)</sup>による新しい報告では、将来の大型施設での燃料調製加工時のプルトニウムのロスは0.75%になろうとしている。

燃料要素の再加工時に $\alpha$ -廃棄物の中に入ると推定されるプルトニウムのロスをFig.3.2.2に示した。この図では、計算のために、Pu-ロスは1970年に3%，1990年に1%と直線的に減少すると仮定されている。

燃料加工時には、プルトニウム（もしくはU-233）1トン当たり約750~850m<sup>3</sup>のコンパクトにしてない $\alpha$ -廃棄物が発生すると推定される。<sup>(B8, T1)</sup>これを10kg Pu/t SMの軽水炉燃料に換算すると、約7~9m<sup>3</sup>  $\alpha$ -廃棄物/t SMになる。

USAECの報告<sup>(U6)</sup>では、つぎのように計算されている：

Pu-リサイクルをする軽水炉 11.6 m<sup>3</sup>  $\alpha$ -廃棄物/t SM

高速増殖炉 9.6 " " "

アメリシウム-241

軽水炉からえられるプルトニウムには11.5~14%のPu-241が含まれる。これは半減期14.9年で壊変してアメリシウム-241になる。<sup>(N1)</sup> アメリシウムの含有量が2000ppmを超すと、<sup>(K8)</sup> プルトニウムの加工をするにはAm-241の $\gamma$ 線に対して遮蔽を追加するか、あるいはアメリシウムを化学的に分離しなくてはならない。12%Pu-241の場合、約4ヶ月後にはこのアメリシウム濃度に達する。分離された（同位体的に純粋な）Am-241のうち小量は用途があるが、大部分は廃棄物になると考えなくてはならない。

### 3.5.3 原子炉の廃棄物

原子力発電所の運転中に、気体、液体および固体放射性廃棄物を生ずる。気体廃棄物は放出を計画的におくらせ（冷却期間）、充分希釈してから環境へする。<sup>(H14)</sup>

液体の低レベルおよび中レベル $\beta$   $\gamma$ -廃棄物から、イオン交換あるいは蒸発によって放射性物質を濃縮する。濃縮物を脱水し、固化する。そのほか、フィルターからの乾燥泥状濃縮物や使用ずみイオン交換体などもある。これらは、多量のコンパクトにした固体 $\beta$   $\gamma$ -廃棄物（たとえば、運転によって発生するフィルター、汚染した部分品、ならびに一般の固体廃棄物）と一緒にして、セメント、瀝青、あるいは合成樹脂とともに200ℓ缶中で固化する。

1000MWeのBWRおよびPWRの原子力発電所の運転にともなう $\beta$   $\gamma$ -廃棄物の年間発生量を文献<sup>(U6, B8, H14)</sup>より集めた。高速増殖炉および高温炉に対しては文献B8, U6に推

定値があるのみである。

	m <sup>3</sup> βγ 廃棄物	200 ℥ 缶の数
BWR	120 - 240	600 - 1200
PWR	80 - 160	400 - 800
FBR	28 - 56	135 - 270
HTR	112	(560)

破損した燃料要素から一次冷却系の水浄化装置をへて、この種の廃棄物となるα-放射体（プルトニウム）の含有量については、著者の手許には何らの資料もない。しかし、軽水炉からの廃棄物は大容積であるので、その含有量は  $10 \mu\text{Ci/kg}$  以下になっているはずである。したがって無視してよい。

### 3.5.4 再処理からの廃棄物

再処理の第1抽出サイクルでウランおよびプルトニウムから核分裂生成物を分離する際に、同時にその他のアクチニドも高レベル廃棄物に入る。したがって、中レベルおよびα-放射性廃棄物では、超ウラン問題はつきの諸問題に帰せられることになる：

- プルトニウムのロス

- Pu-241 の壊変生成物である Am-241

- 化学的操作スキーム如何によつてはウランおよびプルトニウムとともに抽出されるネプツニウムの一部

これまでに運転されているプロトタイプの施設では使用量の数%という比較的大きなロス全量を示しており、大型商業用再処理工場における Pu-ロスを見積ることは困難である。しかし将来の大型施設では技術が改良されると仮定してよからう（4.1.3.2 参照）。

そのため、Table 3.5 では 1990 年以降の期間に対して、再処理の全ロスを 1% プルトニウムであると見積った。1970 年から 1990 年までは、Fig. 3.2 2 の曲線に対して中レベル廃棄物中のプルトニウムロスが 2% から 0.4% へと直線的に減少すると仮定した。

高レベル放射性廃棄物用の計算と矛盾せぬように、中レベル放射性廃棄物に対して、 Raffinat 流れ（蒸発濃縮物）のフィードバックによりネプツニウムは實際上完全に高レベル放射性廃棄物に入ると仮定した。すなわち、中レベル放射性廃棄物中のネプツニウム量はプルトニウム含有量に比べて無視できるとしたのである。

Table 3.5 には、軽水炉燃料再処理から生ずる各種の放射性廃棄物を、生成・取扱いの種類、これらの廃棄物中に入ったプルトニウムのロスの大きさにしたがつてまとめた。<sup>(T1)</sup> 表中の “確からしい平均値” は、大型施設がほぼ完全に運転された場合のものと理解されたい。

### 3.5.5 まとめ

Table 3.6 には、再処理以外の燃料サイクル施設の運転によって発生する放射性廃棄物の量を文献の報告にしたがつて推定した値を示す。この量は 1000 MWe の原子力発電所を年間運転した場合のものである。一部では文献データは大きくバラツキを示しており、表中の値

を与えていた報告はきわめて希れである。

少なくとも軽水炉の燃料サイクルのための長期的廃棄物問題を粗く推定するため、それぞれの原子炉ストラタジーの計算に応じて、前節で仮定した  $\alpha$   $\beta$   $\gamma$ -および  $\alpha$ -廃棄物流れに入るプルトニウムのロス量を取扱い、Fig. 3.2.2にまとめた。

## 4. 核燃料再処理の廃棄物流れに入る長寿命核分裂生成物とアクチニド

使用すみ燃料要素の再処理の目的は：

- 核分裂生成物（および若干のアクチニド）の分離とそれをつづいて固化生成物に転換すること。固化生成物は  $10^6$  年以上の期間の安全な最終貯蔵に適していること。
- 未使用のウラン（ないしはトリウム）および炉内で生じたブルトニウムの回収。

濃縮物の塩類含有量をできるだけ少なくするために、プロセス流れ・廃棄物流れができるだけ非放射性の化学薬品を使わなくてすむように、努力が払われている。そうすることによって、一方ではブルトニウムを含む流れのフィードバックが可能になり、他方では中レベルおよび低レベル放射性廃棄物の容積を最小にすることが達成される。

### 4.1 軽水炉燃料の再処理

照射した燃料を溶解したのち、本質的には、核分裂生成物、ウランおよびブルトニウムの 3 つのプロセス流れができる。

この際、放射性廃棄物はすべてのプロセスの段階で発生するが、本質的にはつきのものがあげられる：

- 放射性廃ガスならびに燃料溶解後の残留物以外の燃料要素の解体時における固体廃棄物。
- 漏別あるいは遠心分離によって燃料溶液を透明にする際の残留物。
- 第 1 抽出サイクルの水を含んだ Raffinat のような高レベル核分裂生成物の溶液。
- ウランおよびブルトニウムの流れをさらに精製するためのつきの抽出サイクルからである廃棄物。
- 溶媒の洗浄時における廃棄物。
- 使用すみの有機溶媒および希釈用溶媒。
- 除染作業、保守作業、修理作業にともなって発生する液体廃棄物。
- 全施設から発生する固体の可燃性ならびに不燃性の放射性廃棄物（使用不能になった装置の部分品も含む）。

#### 4.1.1 燃料要素の受入れ

原子炉から出された使用すみ燃料要素は壊変熱の発生も大きいし、放射能も強い。したがって、燃料要素を再処理施設に搬入するには水槽中に入れて行う。輸送容器の除染、すなわち洗浄に際しては低レベル放射性の水ができる。貯蔵槽中の水にも同様に少量の核分裂生成物および放射性の腐食生成物が含まれる。このような水は漏過レイオン交換して精製する。

イオン交換樹脂は年間何回も再生しなくてはならない。その時に発生する再生溶液は中レベル放射性廃液を入れる。再生溶液の年間発生量は、カールスルーエの再処理工場（WAK）では  $30 \sim 40 \text{ m}^3/\text{年}$  である。著者によれば、大型再処理施設では年間  $600 \sim 1200 \text{ m}^3$  になろ

うと推定されている。ここで中レベル放射性廃液に入ってくる超ウラン元素の量は未詳であるが、恐らくごく微量であろう。

イオン交換樹脂は時々交換しなくてはならない。<sup>(T1)</sup> その発生量は大型水槽の物年間  $5.6 \text{ m}^3$  までであろう。そのプルトニウム含有量は不詳であるが、無視できる程度と思われる。<sup>(T1)</sup>

#### 4.1.2 チョップリーチ ヘッドエンド

再処理作業プロセスでは、まず被覆材を除去するために化学的もしくは機械的除去操作を行わなくてはならない。

燃料要素の被覆材を選択的に溶解すること（ケミカルデクラッディング、たとえば、EUROCHEMIC社で実際に行われた）は塩類含有量の高い液体 $\alpha\beta\gamma$ 廃棄物を大量にだす。これを液体のまま貯蔵し後に固化するには相当の費用がかかる。さらにEUROCHEMIC社の運転経験によれば、被覆材を溶かすと約1～2%の燃料物質も溶解する。したがって1～2%のアクチニドもこの廃液に入ることになる。

このようなわけで、本編では大型再処理施設の場合にのみ問題になってくるチョップリーチ法だけを取りあげることにする。この方法では燃料集合体の末端部品のような構造部分品を鋸で切断し、燃料棒を3～5 cmの長さの小片に切る（チョッピング）。核燃料物質を硝酸で溶かしだす。被覆材の小片は固体の不溶性残留物としてのこる。

燃料棒のチョッピング時にも、被覆材のついた燃料片を溶解槽中で溶かす時にも、ガス状あるいは易揮発性の核分裂生成物（トリチウム、Kr-85, I-129, 131）および元来は揮発性ではない核分裂生成物・アクチニドのエアロゾルが廃ガス中に放出される。その回収は廃ガス精製システムで行われる。

ヘッドエンドで発生するさまざまの不揮発性放射性廃棄物のうち、本報ではとくに超ウラン、I-129あるいはNi-59, 63を含むものを取りあげる。その例としてつぎのものがある：

- 被覆材および構造材。
- 金属クズの入った泥。
- ゼオライトなどの吸収材。
- アブソリュートフィルター。

$\beta\gamma$ 放射性放射化生成物を含有しているために、今のところ構造材ならびに被覆材の切断片は中レベル放射性固体廃棄物として取扱われ、200 lのドラム缶中でセメント固化して貯蔵される。

コンパクトにならない被覆材廃棄物の発生量は下記の数字に達する。

$0.34 \sim 0.56 \text{ m}^3 / \text{t SM}$ <sup>(T1)</sup>

軽水炉では  $271 \text{ Kg}$ ,  $0.21 \text{ m}^3$  ジルカロイ/t SM  
 (高速増殖炉では  $1370 \text{ Kg}$ ,  $0.86 \text{ m}^3$  不銹鋼/t SM) } (B17)

軽水炉では  $414 \text{ Kg}$  ジルカロイ/t SM  
 (高速増殖炉では  $640 \text{ kg}$  不銹鋼/t SM) } 本報

したがって、被覆材および構造材の廃棄物は、年間  $1500 \text{ t}$  の軽水炉燃料を処理する大型再処理工場では  $450 \sim 750 \text{ m}^3 / \text{年}$  の発生量と近似される。そのプルトニウム含有量は約  $15 \text{ Kg}$

Pu/年である。

燃料物質を溶かし出した被覆管片は、放射化生成物のほかに溶けなかった燃料物質の形で少量の核分裂生成物とアクチニドをも含んでいる。軽水炉燃料の被覆管廃棄物の超ウラン(ブルトニウム)含有量は、重金属1トンあたり0.02~0.2重量パーセントと推定される。<sup>(T1)</sup>これは、被覆管切断1m<sup>3</sup>あたり大約4~40gブルトニウムに相当する。ニューヨーク州West ValleyにあるNuclear Fuel Service社の第1回再処理操業期には被覆切断片について不溶性燃料を分析している。<sup>(U4, U5)</sup>その平均では、被覆片にくつついで失われるウラン、ブルトニウムのロスはそれぞれ1%に達する。<sup>(A5)</sup>

燃料要素を鋸でひき機械的に切断するときにできる泥は、200ℓドラム缶内で固化し、セメント詰めにして、一般的の固体廃棄物として取扱う。ブルトニウム含有量はわからぬが、恐らく無視できる程度のはずである。<sup>(T1)</sup>

溶解槽からの廃ガスは硝酸を回収する目的で洗浄される。廃ガス中に含まれるヨウ素は吸収カラムを通して除かれる。核分裂で生ずる希ガス(クリプトン-85)と遊離されたトリチウムとは、これまでの小型施設では煙突を通して捨てられていた。将来ヨーロッパに作られる大型再処理工場では、地域的被曝負荷量を減らす目的で廃ガスをさらに処理し、トリチウムと核分裂で生じた希ガスとを分離することが計画されている。それについてはここでは立ち入った議論をしない。

長寿命I-129の生成量は、34.000MWd/t SMの燃焼率の軽水炉燃料で、236g I-129/t SMに達する(Tabelle 3.2によれば全ヨウ素生成量は277g/t SMになる。)したがって1000MWe・年あたり約7.2Kgのヨウ素が生成し、そのうち6.2KgがI-129ということになる。廃ガスからのI-129の吸収には、洗浄カラムを使い操作や(カールスルーエ核研究センターで開発された銀をしみ込ませた無機吸収材<sup>(K14, W9)</sup>あるいは銀-ゼオライトのような)固体ベット吸収法などいろいろの手法が用いられるようになった。銀-ゼオライトの消費量は平均して0.002m<sup>3</sup>/s SMになると報告されている。<sup>(T1)</sup> 1500 mt/年を処理する大型再処理施設の場合には、年間およそ415Kgのヨウ素(うちI-129は355Kg)を生ずる。これを10~20倍量の担体にしみ込ませた450~550Kgの銀で固定する。この量は200ℓドラム缶内にセメント詰めにすると200~400缶/年になる。

銀-ゼオライトのブルトニウム含有量はわからない。しかし廃ガスはヨウ素の吸収の前に別の吸収カラムも通るので、無視できる程度であることはまちがいない。

ブルトニウムについては、切断時・溶解時の廃ガス用フィルター(たとえばFilterkerzen)とか、ヘッドエンドセル排気用アソリュートフィルターが興味深い。定期的に交換されるフィルターの容積は施設によって異なる。処理量によってよりも施設の特殊性によって左右されることの方が大きいようである。だいたいのオーダーは0.015~0.1m<sup>3</sup>/t SMと報告されている。<sup>(T1)</sup> フィルターはβγ-核分裂生成物放射能のため、中レベル固体αβγ-廃棄物として取扱われる。フィルターにブルトニウムがついていることは確実であるが、ブルトニウム含有量について測定や推定が行われたことはない。

#### 4.1.3 抽出プロセスとティルエンド

核分裂生成物の分離およびウランとプルトニウムとの分離は工学的な処理施設で行われる。それは現在も、現在の開発をとり入れた近い将来も、リン酸トリブチル(TBP)を抽出剤に使う液々抽出法による。この方法はいわゆる Purex-プロセス(もしくはその変形)である。

(B<sup>2</sup>) Purex-プロセスの最重要廃棄物流れをフローシートの形式を用いて Fig. 4.1 に示しておく。

第1抽出サイクルでは、まずウランとプルトニウムをTBPの20~30%高沸点炭化水素(n-ドデカン、ケロシンなど)溶液を使って、多段抽出装置で抽出する。水を含んだRaffinat(HAW)はほとんどすべてのガス状でない核分裂生成物といくらかの超ウラン元素とを含む。このHAWは蒸発缶内で濃縮される。えられた高レベル放射性廃棄物の濃縮物(HAWC)は冷却装置のついたタンクに入れ、後に固化するまで中間的に貯蔵しなくてはならない。

##### 4.1.3.1 高レベル放射性液体廃棄物

Purex 法の高レベル放射性廃棄物の流れには99%以上のガス状でない核分裂生成物が入る。したがって、これは比較的容積は小さいが全燃料サイクルの中で最も高い放射能をもった放射性廃棄物である。この高レベル放射性廃棄物の濃縮物は核分裂生成物、アクチニド、腐食生成物ならびにプロセス中に添加した非放射性化学薬品(たとえば可溶性中性子毒物であるガドリニウムまたはホウ素)硝酸塩の4~6モル/lの硝酸溶液である。

核分裂生成物以外の化学種の組成範囲はプロセススキームが変動すると若干変動する。しかし、将来の再処理施設では、後続する廃棄物処理をさらに困難にしない目的で、第1抽出サイクルに分解できない化学種(金属塩類)を添加することを極力さけることになるだろう。そのようなわけで、亜硝酸ナトリウムおよびスルファミン鉄の代りに、酸化窒素、硝酸ウラン(IV)硝酸ヒドロキシルアミンあるいは電解還元、電解酸化を利用できる場合には、とくに廃棄物流れ中のナトリウムおよび硝酸イオンの含有を避けることができる。大型施設ではもちろんガドリニウムのような可溶性中性子毒を大量に添加して臨界になるのを防ぐ。

これらの結果えられるいわゆる“クリーンウエスト”的組成を Tabelle 4.1 に示す。(P<sup>3</sup>, B<sup>8</sup>) (米国プログラム “Waste Solidification Engineering Prototype”, WSEP 中でカテゴリ PW-4 m として記載されている廃棄物, (S<sup>1</sup> 中の Tabelle 2, 第 4 列) ないしは可溶性中性子毒としてのガドリニウム(M<sup>10</sup>)を含むカテゴリ PW-7 として記載されている廃棄物がその一例である)。個々の核分裂生成物の量は Tabelle 3.2 から転用した。

高レベル放射性廃液の濃縮の上限は、一方において固型物含有量(沈殿の形成)により、また他方においては熱変熱に基づく自然発熱によって制限される。

Ru, Nb, Zr および少量のウランおよびプルトニウムを含む溶解槽からの不溶性残留物、もしくはリン酸ジルコニア、モリブデン酸ジルコニアなどの形をした不溶性沈殿<sup>(S<sup>2</sup>)</sup>は、高レベル放射性廃棄物濃縮物の中につねに存在する。<sup>(B<sup>18</sup>)</sup> 塩類含有量が 90 g/l を超すと沈殿を生ずる。<sup>(B<sup>3</sup>)</sup> したがって、濃縮しうる限度は、核分裂生成物の含有量により、すなわち、燃料の燃焼度により、また適用した再処理法のプロセススキームにより、左右される。

軽水炉燃料の高レベル放射性廃棄物濃縮液の容量についての文献の報告は広い範囲でバラツ

キを示していて、 $200\ell/tU^{(F_4)} > 378\ell/t SM^{(S_{11})}$   $600^{(M_5)} \sim 1250\ell/t SM^{(O_1, B_8)}$ などがみられる。

最後にあげる数値は（約33000MWd/tの）高燃焼率の軽水炉燃料を（約150~180日と）比較的短かい期間冷却した場合のもので、強制熱除去の必要性が現実的な問題とまっている（約20KWth/t SM）。何年間も貯槽に貯えた後には、約400ℓ/t SMくらいに容積を減少させることができる。高レベル放射性廃液の酸度があまり高くなく、中性もしくはアルカリ性で貯蔵される場合には容積は3~4倍も増加する。<sup>(O1)</sup>

塩類含有量の低い高放射性 Purex-核分裂生成物濃縮液は冷却装置のついたステンレス製タンク中に強酸性溶液（2~5M HNO<sub>3</sub>）として貯えられる。この廃液は自ら発熱するので、腐食速度が大きくならないように、60℃ぐらいの温度で貯蔵される。

壊変熱による濃度の制限については、EUROCHEMIECおよびWAKでは、貯槽の冷却能力として7~9Watt/ℓを目標としている。将来の冷却装置つき貯槽としては一般に12~16Watt/ℓのものが考えられている。すなわち、貯槽注入速度に応じて約3.200~3.500Ci/ℓの当初放射能を入れられるものである。Tabelle 4.2にはいろいろな冷却期間に対して限界容積をまとめてある。本報告書では、（約1年貯蔵後に）処理された重金属1トンあたり平均600ℓになると仮定した。

#### 4.1.3.2 中レベル放射性液体廃棄物

第1抽出サイクルでウランおよびプルトニウムを分離したのち、ウランーおよびプルトニウムー流れは第2抽出サイクルにかけ、核分裂生成物とくにジルコニウムおよびルテニウムをさらに除染する。生成物溶液を最終的に精製するには、固体ベッドカラム（イオン交換体もしくは吸着材）を通すか、もう一度抽出サイクルにかける。水を含んだRaffinat溶液は蒸発器で濃縮する。濃縮物は残留する硝酸とともに溶解槽に戻すか、中レベル放射性廃液中に入れる。

塩類含有量の少ない水溶液のαβγ-廃棄物流れは：

—ウランーおよびプルトニウムー流れの精製を目的とした第2および第3抽出サイクルの

Raffinatとして、

—ウランおよびプルトニウムの最終精製時に、

発生する。

再処理施設のフローシートによっては、Raffinat流れの一部はリサイクルされる。

塩類含有量の高い水溶液のαβγ-廃棄物流れは、

—抽出用溶媒の洗浄時に、

—除染溶液の濃縮物として、

発生する。

溶媒が放射線をうけると、とくに第1抽出サイクルでは、TBPのいろいろな（放射線）分解生成物を生ずる。これは、製品の抽出や核分裂生成物の除染によくないし、また、プルトニウムのロスを大きくする作用もある。この分解生成物を絶えずサイクルに用いられる溶媒から除く必要がある。これは炭酸ナトリウム溶液および硝酸で溶媒を洗浄することによって行われる。溶媒の洗浄時に生ずる水溶液も濃縮され、塩類含有量の高い中レベル放射性廃液となる。

米国における工業的原子力エネルギー生産にともなって発生する放射性廃棄物の量を最近 BLOOMEKE, KEE および NICHOLS が推定している。<sup>(B8)</sup> 彼らは再処理時のプルトニウムのロスをきわめて低く見積っている。しかし、WAK および EUROCHMIC のようなプロトタイプの施設では、プルトニウムおよびウランのロスは一部では取扱量の数パーセントにのぼっている。NFS 社の工場運転では、<sup>(A5)</sup> 1.42% (Yankee 炉の燃料) および 2.96% (Dresden 1 炉の燃料) プルトニウムのロスが報告されている。しかし、将来の大型施設に対しては、つぎのような技術改善が行われよう：

— Raffinat 流れの広範囲なフィードバック。

— 溶媒洗浄法の改良。

— プルトニウムで汚染した水溶液の廃棄物流れを廃棄物取扱い施設中で固化する前に再精製（すなわち、プルトニウムの分離）にかける。

— プルトニウム残留物を乾式酸化したり、プルトニウムで汚染した可燃性固体廃棄物を燃やしたりする。

— プルトニウムを含む灰は一時保管し、のちに処理する。

したがって、中レベル放射性廃棄物の組成は、上記の傾向の少くとも一部は技術的に実現されると仮定して推定することとした。プルトニウムを含む廃棄物に関する限り、Tabelle 4.3 にまとめた。

液体  $\alpha\beta\gamma$ -廃棄物となって失なわれるプルトニウムのロスは、1990 年以降になると、つぎのようになるであらうと推定した：

	本 報	文献 (B8)
{ リサイクルされない濃縮された生成物中の U および Pu }	0.1 %	0.1 %
{ 溶媒精製時に生ずる洗浄液の濃縮物中の U および Pu }	0.15 %	0.01 %
{ フィードバックされない除染溶液の濃縮物中の Pu }	0.05 %	—

中レベル放射性廃棄物の濃縮物の全量は、(塩類含有量 50% の) アスファルト化を行って固化すると考えられる。発生する  $\alpha\beta\gamma$ -廃棄物量は  $1.2 \sim 1.6 \text{ m}^3/\text{t SM}$  と推定されるが、これは  $6 \sim 8 \text{ 缶/t SM}$  に相当する。これを基として計算すると、 $1500 \text{ mt/year}$  の軽水炉燃料用処理施設では、 $1800 \sim 2400 \text{ m}^3/\text{年}$  のアスファルト固化した中レベル廃棄物がでることになる。これは年間 9,000 ~ 12,000 缶の廃棄物がでることに相当する。

#### 4.1.3.3 中レベル放射性固体廃棄物

中レベル固体廃棄物は再処理施設の抽出部およびテールエンドで、イオン交換体、シリカゲル、排気フィルター、ポックスフィルター、装置部分品、一般の可燃・不燃性廃棄物のいろいろの形態をとって発生していく。不燃性廃棄物は圧縮包装される(減容率は 4 ~ 8% と推定される。<sup>(U8, R3)</sup>)。(全体およそ 50 ~ 70% をしめる<sup>(T3)</sup>) 可燃性廃棄物は湿式<sup>(C5, 3)</sup>もしくは乾式<sup>(L6, Z2, S6)</sup>で燃焼して容積を減らす。

固体廃棄物の一部はプルトニウムで汚染された $\alpha$ -廃棄物であり、とくにプルトニウムティルエントで発生するものが多い。可燃性 $\alpha$ -廃棄物の燃焼残留物からのプルトニウムの回収は興味が深かそうに思われる。この残留物中のプルトニウム含有量が比較的高く、その容積が割合に小さいからである。プルトニウムの回収、とくに乾式燃焼によってえられる灰からの回収は、未だ解決されていない化学的問題である。<sup>(S16)</sup>

著者によれば、プルトニウムのロスはプルトニウムの回収をしない場合で0.3~0.5%取扱量と推定される。(大型施設で)プルトニウムを回収をする場合には0.1%以下がるはずである。セメントで固化した $\alpha$ -廃棄物の全量は軽水炉燃料用大型再処理施設の場合、およそ100~300m<sup>3</sup>/年と推定される。これは500~1500缶/年に相当する。

#### 4.2 トリウムーウラン燃料要素の再処理

U-235とU-233の混合が起らぬないように、HTTR燃料の処理ではプロセスを2つの部分にわけることが考えられている。グラファイトを燃焼させるとときに、U-233およびTh-增殖材粒子のバイロカーボン層も露出し燃えてしまう。しかし、U-235の燃焼核の炭化ケイ素は燃えない。分離は、Fig. 4.2に示したように篩によるなどの機械的方法、あるいは炭素層のとれた増殖材核の選択的溶解法かによって行う。選択的溶解法では、まだ炭化ケイ素でおおわれている燃焼核は不溶残留物としてのこる。

増殖材  $\text{ThO}_2 - {}^{233}\text{UO}_2$  はいわゆる Thorex - 試薬(濃硝酸、フッ化水素酸および硝酸アルミニウムの混合物)で溶かさなくてはならない。溶液が透明になったのちに、リン酸トリブチルを溶媒に用いた多段抽出プロセスにかける。第1抽出サイクルでウランとトリウムの共通抽出(共通除染)を行って核分裂生成物を分離する。<sup>(B6, K5)</sup> つきの抽出サイクルで、ウランの選択抽出を行い、ウランをトリウムから分離する。

比較的少量のプルトニウムはつきの諸法で分離される:

- Pu(IV)として抽出して分離する。この方法では、プルトニウムのおよそ90%はトリウムフラクションに、およそ10%はウランフラクションにと分配される。<sup>(W1)</sup>
- 第1抽出サイクルで(スクラブ用溶液に)還元剤を加えてPu(I)にまで還元することにより、プルトニウムを高レベルの核分裂生成物の廃棄物中に入れてしまう。<sup>(B6)</sup>

分離された燃焼核は炭化ケイ素の被覆をすりつぶし、残るバイロカーボンを燃やしたのち溶解される。不溶性残留物を分離したのち、独立したTBP-抽出プロセスによってU-235を回収・精製する。

回収したU-235はもう一度だけ原子炉に装入してよい。<sup>(S6)</sup>しかし、この場合特定の燃料要素に集中して使用すべきである。リサイクルしSiCで被覆したU-235粒子は8年の照射期間を経た後は、ふたたび処理はしない。それゆえに、グラファイトを燃焼したのち、高レベル放射性固体廃棄物として分離される。

トリウム燃料の処理時に発生する各種の放射性廃棄物をFig. 4.2のフローシートに基づいて、<sup>(B8)</sup>まとめたものを Tabelle 4.4に示す。

したがって、フィードブリードの計画では、固体および液体の高レベル放射性廃棄物はつき

の形状で発生してくる：

- 燃焼したのち再処理されないU-235粒子。
- 両方の抽出プロセスに由来する液体高レベル放射性廃棄物濃縮物。

Table 4.4には、トリウム燃料処理に際して発生する中レベル放射性廃棄物の一次評価もつけ加えた。

## 5. 相対的有害性インデックス

放射性廃棄物の取扱い・保管に関する議論では、放射性物質の特性、個々の相対的な意味、ならびに放射壊変による特性の経時変化については正確な知識をもつことが前提となる。

放射性物質は物理的には、単位時間あたりの壊変数(キューリー数)、放射線の種類およびエネルギーによって特徴づけられる。同様に、放射性廃棄物の特性も、廃棄物の発生時(一般に化学分離時)から始まる時間の関数としての放射能濃度(単位重量あたりのキューリー数)によって記載される。

アイソトープの特徴的な放射能および対象としている元素あるいはその化合物に関する生化学的プロセスは、これらの物質の放射能の有害性の度合いを決定するものである。放射能の種類、エネルギーのほかの重要な因子は、人間の組織にとりこまれるか、生物学的半減期はいくらか、問題とすべき臓器に濃縮されたり貯蔵されたりするか、などである。生物学的挙動および問題とすべき臓器に対する最大許容線量に基づいて、国際放射線防護委員会(ICRP)は、飲料水および呼吸用大気中の放射性核種の最大許容濃度値( $MPC_w$ および $MPC_a$ )、ならびに最大許容身体負荷量の値( $MPBB$ )を提案した。<sup>(12)</sup> これらに基づいて、西ドイツの第一次放射線防護規程では水および空気中の最大許容濃度が拘束力あるものとして規定された。(放射線防護規定の改正案では、水および空気中の最大許容濃度の代りに、最大許容放射能摂取量が採用されるはずである)。<sup>(13)</sup>

放射能の害が強く、しばしば $10^3$ 年以上の半減期をもつ、廃棄物中の $\alpha$ -放射体であるアクチニドに対しては、1620年の半減期をもち水に対して最低の最大許容濃度値を示す $\alpha$ -放射体である天然の壊度生成物、Ra-226とつきの3点で比較することができる:

- 超ウランに対する現行の $MPC_w$ 一値はRa-226の放射能の毒性との比較に基づいて決められている。<sup>(12)</sup> 骨をクリティカルオーガンと考えRa-226に対する最大許容線量に基づいた値が決められている。
- 難容性マトリックス中に固化された放射性廃棄物中に含まれるアクチニドは、ウランもしくはトリウムの鉱物や鉱石のような天然放射性物質と比較される。これらの物質の放射能の毒性は主として平衡にあるラジウムの毒性によって決められる。
- 固化した高レベル放射性廃棄物が廃棄物シリンダーの形で岩塩に所々空間的にはなれて掘ったボーリング孔に入れてある最終貯蔵所(第6章参照)の全貌は、第1次近似として廃棄物が小さな単位で大きな岩塩層に分布していると解釈してよい。そこで貯蔵所(廃棄物シリンダー+周りの岩塩)と同じ大きさのウラン鉱床と比較された。ここでもまた、廃棄物のアクチニド成分の放射性毒性を $10^3$ 年後に鉱石の核種成分の放射性毒性と比較することに基づいて比較が行われた。

## 5.1 リスクの解析とハザード・インデックス

放射性廃棄物の保管・最終処分をしたあとの長寿放射性核種の危険の程度を正確に把握するためには、詳細なリスクの解析が必要である。その際、放射性物質の遊離をひきおこすメカニズム、その確率、および遊離が人間にあたえる研究しなければならない。そのようなリスクの解析は、まず、廃棄物保管システムの説明・定義および放射性廃棄物の核種組成の特徴づけから始まる。

核種組成の特性・放射線毒性の比較を簡単化し、一般化するため、文献では2、3の簡単なパラメーターを提案し利用している。地下深くの地層の中に入れられた放射性物質が人類の生物学的サイクルの中にまで戻ってくるには、まず第一に、移動の媒体となる水が必要であるということから出発する。それゆえ、BELLとDILLON<sup>(B1)</sup>は、いろいろな放射性核種の摂取毒性として、ある放射性同位体の与えられた量を飲料水を最大許容濃度( $MPC_w$ )にまで希釈するために必要な水の量を用いて定義している。理論的に多量な水を必要とするほど、それだけ毒性が高いことになる。“障害の尺度(hazard measure)”<sup>(B1, C1)</sup>あるいはそれに相当する“放射線障害尺度(radiotoxic hazard measure)”<sup>(H 13)</sup>をある核種混合物に対して定めるためには、個々の核種に対して必要な水の量を加算する：

$$HM = \sum \frac{Q_i}{MPC_{w,i}} \quad [m^3] \quad (1)$$

ここに、HMはhazard measure for ingestion、 $Q_i$ は核種*i*の放射能、 $MPC_{w,i}$ は水中における核種*i*の最大許容濃度である。

例として、それぞれの嬗変生成物と平衡にある各1gの天然ウランおよびトリウムに対する値を示しておこう。<sup>(B1)</sup>

	放 射 能		hazard measure [m <sup>3</sup> ]
	$\alpha + \beta [\mu Ci]$	$\alpha [\mu Ci]$	
U (1g)	4.81	2.76	1.5.1
Th (1g)	1.09	0.65	3.78

hazard measureに似たパラメーターに“hazard index”がある。<sup>(B1, Appendix III ref - C1)</sup> CLAIBORNE<sup>(C4)</sup>によれば、これはむしろウラン鉱石とトリウム鉱石を現場で比較するのに適しているという。hazard index, HIはディメンジョンのない量であって、固化された放射性核種混合物の単位容積あたりのhazard measureとして定義されている。

$$HI = \frac{HM}{容 積} \quad (2)$$

ここでは例として、主としてセンウラン鉱(密度 $8 \sim 10 g \cdot cm^{-3}$ )からなるピッチブレンド<sup>(C4)</sup>および0.2%Uをふくむウラン鉱石カルノウ石(密度 $3 g \cdot cm^{-3}$ )のhazard in-

dexをあげておく。

ピッチブレンド,	70% U	hazard index	$10^8$
カルノウ石鉱,	0.2% U		$10^5$

hazard indexは、放射性廃棄物中の各種の核種の有害性、その経時変化の相対的比較をするのによいし、また、ある程度までは、廃棄物の取扱い法、一時貯蔵法、最終処分法のいろいろな操作の善悪両方の影響を比べるのによいと考えられている。hazard indexはリスク解析でのリスクに対しては尺度にならない。リスクは、確率（もの予期される頻度）と結果（もの大きさもしくは人への放射線の負荷）との積として定義される。これに対して放射性廃棄物のhazard indexでは、放射性核種が洩れだすかもしれない確率、その経過、可溶性ならびに不溶性化合物の差異、核種の環境における分率・濃縮・固定・輪廻のメカニズム、生物による摂取の可能性、人類の栄養源連鎖（critical pathways）、等々については顧慮しない。

GERAおよびJAKOBS<sup>(G2, G6)</sup>が提案しているように、そのようなファクターを単に確率を使う補正によって考慮するわけにはいかない。また、消化器を通す摂取と呼吸器を通す摂取にわけ、それぞれに重みをつけて考慮するわけにもいかない。補正係数<sup>(G6, M8)</sup>に入ってくる諸量のうち既知のものがあまりにも少ないのである。廃棄物管理システム全体の詳細なリスクの解析では、特定の最終貯蔵物の立地・周辺条件で必要になる条件よりもずっと多数の条件を考えなくてはならない。さらに、これについては Battelle Pacific Northwest Laboratories<sup>(S10, S15)</sup>およびMcGRATH<sup>(M8)</sup>の報告がある。

## 5.2 相対的有害性インデックス

Ingestion hazardsとhazard indexを使うことに対して議論があり異論があるにもかかわらず、放射性廃棄物の核種成分の放射性有害度と放射壊変によってひき起こされるその変化との簡単な比較を全く断念するわけにはいかない。

放射性物質は今まで常に、すなわち生物の進化過程の全期間を通じて、地殻中および地表近くではウラン鉱物およびトリウム鉱物の形状で存在してきた。したがってウラン鉱石の放射能および放射性有害度は受け入れ可能なリスクと見なせる。

それ故に、“相対的有害性インデックス”が提案される。これは天然放射性物質、すなわちウラン含有量の低いウラン鉱石との比較に基づくものである。標準値としては2000 ppm (= 0.2重量パーセント) Uを含むウラン鉱物が選ばれた。これは、たとえばコロラド高原におけるように地表近くで天然に産出する典型的なものである。

相対的有害性インデックスRTIとしては、一定量の固化された廃棄物の放射性核種成分により、MPC<sub>w</sub>まで汚染されうる水の容積と、同量のウラン鉱石(0.2 w/o U)の放射性核種成分によりMPC<sub>w</sub>まで汚染されうる水の容積との比で定義される：

$$R T I = \frac{\frac{H M_{W a s t e}}{H M_{U-o r e}}}{\left( \sum_i \frac{Q_i}{M C P_{w, i}} \right)_{W a s t e} \left( \sum_j \frac{Q_j}{M C P_{w, j}} \right)_{U-O r e}}$$

天然産ウランの放射性有害性は主として Ra-226 の娘核種の高い有害性に基因している。したがって現物での比較も可能なようと思われる。長期 ( $> 10^4$  年) の廃棄物中のアクチニドの放射性有害性も壊変生成物ラジウムによって大体定められるからである。ウラン鉱石中ではラジウムは实际上不溶な形で含まれている。アクチニドを含む廃棄物を地層中に最終貯蔵する場合にも類似した関係がみられる。この場合も廃棄物を難溶性マトリックス(ガラス、セラミックスなど)中に固定することになろうと考えられるからである。

再処理の高レベル放射性廃棄物に対しては、固化生成物(たとえばガラス)中では廃棄物酸化物は 2.5 w/o の濃度になろうと仮定されている。そこで 6.1 節に計算してあるように、処理された燃料 1 トンあたりの固化生成物の量(軽水炉で 180 kg/t SM, 高速増殖炉で 220 kg/t SM, 高温炉で 475 kg/t SM) がでてくる。この量に基づいて相対的有害性インデックスが計算される。相対的有害性インデックスは廃棄物の量に依存しない。

本報で用いた相対的有害性インデックスと類似して KUBO と ROSE<sup>(K3)</sup> は “相対毒性( relative toxicity)” という相対的な量を定義している。しかし、これは 1.4 w/o U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> (1.18%U に相当) のウラン鉱の濃度を基準にしている。

また CLAIBORNE も、その新しい論文<sup>(04)</sup>の中で、高レベル放射性廃棄物用の相対量として、ウラン鉱に直接関係するパラメーターを用いている。“障害基準(hazard criterion)” P として、高レベル放射性廃棄物の hazard index を高ウラン含有量(70 w/o U) のピッチブレンドの hazard index と比較し、再処理後 10<sup>3</sup> 年間の期間に対してパーセントで表わす：

$$P = \frac{100 \cdot H I_{W a s t e}}{H I_{P i t c h b l e n d (70 \% U)}} \quad (4)$$

### 5.3 計算法

3 つの炉型およびいろいろの種類の燃料(第 3 章参照)の高レベル放射性廃棄物に対する相対的有害性インデックスを、計算プログラム ORIGEN<sup>(B3)</sup> を用いて、再処理後 10<sup>6</sup> 年までの期間に対して計算した。ウラン-プルトニウム燃料サイクルの燃料に対しては再処理前に 150 日冷却し、トリウム-ウラン-サイクルでは 270 日冷却するとした。燃料加工概念についてのその他の仮定は第 3.4 節に述べたものである。

用いられた MPC<sub>w</sub> は、リストアップされている限り計算プログラム ORIGEN<sup>(B3)</sup> に記憶させた US Radiation Concentration Guide (RCG) の値(10 CFR 20)である。

用いた RCG - 値は広汎にわたって (Sr-90, I-129 および Ra-226 は例外), 第一次放射線防護規程<sup>(S3)</sup> の MPC<sub>w</sub> ( $\mu\text{Ci}/\text{m}^2$ ) と一致する。

核種	RCG + ORIGIN	ICRP <sup>(I2)</sup>	第一次放射線 防護規程 <sup>(S3)</sup>
Sr-90	$3 \cdot 10^{-7}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-7}$
I-129	$6 \cdot 10^{-8}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Ra-226	$3 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$

RCG にリストアップされていない値に対しては、プログラム ORIGIN の中では LaVERNE<sup>(C1) Appendix I</sup> によって計算された値を用いた。CLAI BORNE よりれば, <sup>(C1)</sup> LaVERNE の値は RCG の規則にしたがってリストにのらなかつた核種に対して用いられる値として、ずっと現実的な値をあたえるという。このことは就中ネプチニウム壊変系列においていちじるしい。

HAMSTRA はアクチニド壊変系列の最重要核種を作り、RCG, ICRP<sup>(I2)</sup> 文献 B 1, 文献 C 1 などの MPC - 値を比較した。<sup>(H13)</sup> その結果、放射性廃棄物の最終貯蔵の計算用には、標準 - MPC - 値の公式リストをできるだけ早期に作るべきであることがわかった。(これは CLAI BORNE の結果にも似ている。<sup>(O1)</sup>)

#### 5.4 各種燃料の高レベル放射性廃棄物の相対的有害性インデックス

各種の燃料もしくは個々のコンポーネントの相対的有害性インデックスの計算結果を Fig. 5.1 ～ 5.1 3 に図示する。

再処理の高レベル放射性廃棄物の相対的有害性インデックス(たとえば Fig. 5.1 参照)は、最初の 400 年に何ヶタも減衰し、その後は数百万年にわたって極めてゆるやかに減衰する。400 年まではその相対的有害性インデックスは主として核分裂生成物 Sr-90 および Cs-137 によって決定され、その後は長寿命の超ウラン核種によって決定される。

核分裂生成物にだけに注目すると、(Fig. 5.2 参照)、つきの 2 グループの放射性核種にはっきりと分類できる: 第 1 のグループは Sr-90, Cs-137 および Sm-151 のように 600 ～ 700 年後には減衰して実際上なくなってしまうものであり、第 2 のグループは I-129, Zr-93/Nb-93m, Te-99 および Cs-135 のような長寿命の核種のグループである。後者の相対的有害性インデックスは数十万年にわたってほとんど変わらない。

$1.6 \times 10^7$  年の半減期をもつ I-129 は、現在行われている操作改良によれば、燃料の溶解時に早くも分離される。あるいは遅くとも、液体高レベル放射性廃棄物を固化し、ガラスまたはセラミックに融解する際に揮発する。揮発による分離であるので、図中では I-129 は別にわけて示されている。まず一度分離され、そのときに特別の最終貯蔵形態とされるはずである。岩塩中の最終貯蔵についてはつきの疑問をたしかめておくべきである。すなわち、塩類鉱床の仮想的溶解時に、鉱床中の非放射性ヨウ素との同位体希釈によって、どの程度まで I-129

の有害性が減少されるかという疑問である。

他方、アクチニドのグループはどうであろうか？アクチニドおよびその壊変生成物のカーブはおよそ400年の後、核分裂生成物の曲線をよこぎり、その後はずっと相対的有害性インデックスを左右する。どのような種類の燃料においても、アクチニドの相対的有害性インデックスは当初はゆっくりと減少し、ついで $10^5$ 年後以上で上昇し極大値をへる。この極大はアクチニドの壊変系列中のラジウム同位体、とくにRa-226によるものである。

500年以上後にどのアクチニドが相対的有害性インデックスに対して決定的な寄与をするかを示すために、以下のいくつかの図中に、各種の燃料ごとに個々のアクチニド元素とその壊変生成物の寄与分を示した。

ウラン-プルトニウム-サイクルでは、数万年後までの相対的有害性インデックスは主としてアメリシウムおよびキュリウム（およびその壊変生度物）によって決定される（たとえばFig. 5.3 参照）。壊変期間をもっと長くとった場合には、長寿命のネプツニウム-237およびその壊変生成物が重要になってくる。その他のアクチニド（Es, Cf, Bk, Pa, Ac）の寄与は無視できるほど少ない。

トリウム-ウラン-サイクルでは、長期的にみれば、プルトニウムとその壊変生成物に起因する相対的有害性インデックスが卓越している。トリウムとウランのほかにプルトニウムも回収される場合だけは、高レベル放射性廃棄物の相対的有害性インデックスは $10^3 \sim 10^4$ 年においてはプロタクチニウムにより、もっと後ではウランおよびネプツニウムないしはその壊変生成物により決定される。

Fig. 5.4 では、ウランおよびプルトニウムの回収率が、98.5%, 99%, 99.5%および99.8%となる場合、すなわち除染係数が50, 100, 200および500となる場合の影響を示した。

プルトニウムのロスが1%より小さい場合には、高レベル放射性廃棄物へ入ってゆくこのロスをさらに低下させても、高レベル放射性廃棄物の長期的有害性インデックスの低減にはそれほど寄与しないことは容易にうなづける。アクチニドを分離して長期の有害性インデックスを低減する問題は第7章で論ずることとする。

トリウム燃料サイクルでは全体として生成する超ウラン元素の量は少ないけれども、長期の有害性インデックスは極めて高くなる。その原因是、Pu-238はじめウラン-234などの( $4n+2$ )-壊変系列の寄与が大きいことにある。この系列ではRa-226の濃度が相対的に大きくなるのである。

最後にFig. 5.14には、軽水炉・高速増殖炉・高温炉の3炉型の高レベル放射性廃棄物の相対的有害性インデックスを直接比較できるようになっている。この図では、相対的有害性インデックスのベースになる0.2w/o Uを含むウラン鉱石のほか、ピッチブレンドならびに $\alpha$ -廃棄物用に米国で提案されている $10\mu Ci/kg$ という $\alpha$ -放射能の限界値（これは0.36w/o Uのウラン鉱石に相当）のベースも書き込まれている。これらよりも上部に位する放射性廃棄物は $\alpha$ -廃棄物として取扱うように区別される。

## 6. 現在とくに重要視されている廃棄物管理の概念

西ドイツにおける将来の核工学の発展が考えられ、廃棄物の量が予測され、その放射能が予測されたので、次には放射性廃棄物の隔離保管の解決法が必要になる。これは長期的にも人類の環境を危険にさらすことがないよう高い安全性をもたねばならず、広範囲で利用できなくてはならない。さらに経済的に負担に耐えられるものでなければならない。

次にのべる議論に便利なように、放射性残留物の隔離の種類をつきの3グループに分ける：

- 消滅(最終処分)      Ultimate disposal
- 最終貯蔵(長期処分)    Long term disposal
- 中間貯蔵(臨時保管, 工学保管)    interim storage, engineered storage

消滅とは、放射性廃棄物隔離の面からみて有効な操作をすることによって、どんな条件になつても生物圏にもはや帰って来ないことを意味する。これを行うことができるのは、(たとえば太陽系の外へのようす) 宇宙への送り出し、もしくは、核変換および核分裂(第7章参照)によるものだけである。

最終貯蔵の定義は、放射性残留物を放射性核種が実際上完全に減衰しつくすまで地中で長期にわたって貯蔵する廃棄物隔離法である。ここで貯蔵をはじめてから数年は廃棄物を再び引き出せないものとみます。“長期にわたって”的意味は、ここでは地質学的年代にわたって廃棄物の隔離を行って、長寿命の核種もその放射性嬗変生成物も減衰しきってしまう時間をいう。しかし、この概念では、ある特別な都合の悪い条件の下では、放射性物質が生物圏内に帰ってくるのをコントロールしきれないことも絶対にないとは言えない。この種の隔離法には、たとえば塩類鉱床のような地下深くの一定の地層中へ最終貯蔵する方法などがある。

管理貯蔵では最終貯蔵と異って廃棄物をいつでも再び引き出せると考える。この種の貯蔵ではたえず監視をする必要がある。この種の貯蔵法には、たとえば、液体放射性廃棄物のタンク貯蔵、あるいは固化した廃棄物の貯蔵庫内貯蔵などがある。

### 6.1 高レベル放射性廃棄物の固化

西ドイツでは放射性廃棄物は最終貯蔵のために固型化される。輸送を行なうため、また最終貯蔵を究極的に封印するまでに時間があるので、固化生成物を適当な輸送用容器および貯蔵用容器に入れて放射性核種が遊離放出するのを防ぐ。固化生成物は、また、長期にわたって思いがけない放出に対する安全バリアーの役割も果たすものである。そのため、固化生成物は極めて安定であり、溶出に対する抵抗が強くなくてはならない。もちろん長期的にみれば、まず第1に最終貯蔵所が損傷をうけず、隔離性の高いことが保証されている必要があることはいうまでもない。

高レベル放射性廃棄物に対しては、固化生成物の品質について、とくにむずかしい条件がつけられている：

- 溶出に対する抵抗が高いこと。
- 高レベル放射性廃棄物に含まれる全ての元素の酸化物をよくとかすこと。
- 製造時の温度が低くても均一な生成物がえられること。
- 機械的強さの大きいこと。
- 熱伝導性のよいこと。

固化生成物としては、ガラス類、ガラス状セラミック類、金属マトリックス中にうめこんだガラス球などが開発されている。ほとんどの経験はガラス類に関するものである。西ドイツでも他の諸国においても、その特性がよいのでホウケイ酸ガラスが注目されている。しかし、まだ開発研究は終っていないし、これを採用するという決定が下されたわけでもない。<sup>(L3, S2)</sup>

ホウケイ酸ガラスは廃棄物の酸化物を約20~25%も溶かす性質をもっている。リン酸ガラスは溶出に対して抵抗が強いうえに約35%の酸化物をとかす性質がある。

ガラス類の欠点はその高温特性である。<sup>(L3)</sup> 媾変熱で加熱されると結晶化がすすむ恐れがある。たとえば、リン酸ガラスは400°C以上で結晶化する傾向があり、その結果溶出し易さは $10^3$ 倍程度に高くなる。<sup>(B14)</sup> ホウケイ酸ガラスは(500~700°Cという)もっと高い温度ではじめて結晶化がおこるが、非晶質部分だけは溶出に対して抵抗が大きいけれども、結晶した部分ではそうではないようである。<sup>(E3)</sup> このようにガラスは調製してもすぐに結晶しやすいという傾向がある。

熱伝導度を高めるとガラスブロックの内部と取りこまれた塩の間の温度差を小さくできる。これによってガラスブロックの中心でも結晶化の温度範囲以下にできる。金属マトリックスを使うと熱伝導はよくなる。この場合ガラスは小球にして埋めこまれる。<sup>(B2)</sup> 金属マトリックスはもちろん塩化ナトリウムおよび水に対して耐食性をもっていなくてはならない。その場合はこのようなブロックはガラスブロックにみられたような高い抗溶出値をもつことになる。

金属マトリックスで行ったと同様により特性をもった固化生成物は、目下開発中のテルミット法による高レベル放射性廃棄物の固化によってもえられる。<sup>(B1)</sup>

ガラス中におけるプルトニウム、アメリシウムおよびキュリウムの挙動については明らかでない点が多い。現在できている製品では、アクチニドを高レベル放射性廃棄物の主成分と一緒に固化するか、あるいは固化以前に分離し別の方法で処理しなければならないか、という問題が解決されていない。<sup>(L3)</sup>

ホウケイ酸ガラスの収容能力は、量的には廃棄物酸化物の約25%であり、岩塩を通しての熱除去が第6.3節に与えたジオメトリーに従って行われる場合には熱的に40W/cm<sup>2</sup>に限られる。(再処理後4年に行う)ガラス化に対して3.2および4.1または4.2のデータを用いた場合には、1トンの軽水炉燃料(3.3%U-235サイクル、3400MWd/t SMの燃焼率)および高温炉燃料(9.3%U-235サイクル、95000MWd/t SMの燃焼率)あたりTabelle 6.1の値になる。

ガラス中の酸化物25%，ガラスの密度g=2.8 g·cm<sup>-3</sup>の場合、(平均値として)つきのガラス量になる：

	重量 (kg/t SM)	容積 (l/t SM)
軽水炉の廃棄物	180	65
Gd入り軽水炉の廃棄物	250	90
高速増殖炉の廃棄物	225	80
高温炉の廃棄物	475	170

(150日冷却後軽水炉燃料を再処理した場合を考えて) 3年以内の液体一時貯蔵では熱的  
IC40w/lが制限値になる。

廃棄物の古さ(年)	1	3	5	10
放射能 (kCi/t SM)	17000	710	465	325
発熱量 (kW/t SM)	8.3	3.2	1.9	1.2
ガラス量 (l/t SM)	207	80	(48)	(30)

本報では、一時貯蔵は十分に長く熱的制限は問題にならないと仮定する。

Table 6.2 では、軽水炉-、高温炉-燃料の固化した高レベル放射性廃棄物(HWL)(たとえば25w/o廃棄物酸化物、密度 $2.8 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ のガラス)中のアクチニド濃度(g/kg固化生成物)を比較してある。この計算では再処理後5年の時点をとり、高温炉では全プルトニウムを高レベル放射性廃棄物に入れると仮定している。

プルトニウムリサイクルでは高レベル放射性廃棄物中の核分裂生成物含有量はほとんど変わらないが、超ウラン元素とくにアメリシウムとキュリウムの含有量は大幅に上昇する。

高温炉の固化高レベル放射性廃棄物では、軽水炉と比較した場合、プルトニウム含有量が1ケタくらい高いことが顕著な差異である。(この際のプルトニウムは約6.5%のPu-238、約1.5%のPu-239を含む)。<sup>(S14)</sup>

Fig. 6.1には西ドイツ(および西ヨーロッパ)でのガラス化高レベル放射性廃棄物の年間生産量を示してある。計算に際しては、Fig. 2.7に示した再処理能力の需要にもとづき、また4年間液体で高レベル放射性廃棄物濃縮物を一時貯蔵すると仮定した。最終貯蔵所に蓄積されるガラスの量をFig. 6.2に示す。

## 6.2 地下深部の地層中における最終貯蔵

放射性核分裂生成物廃棄物は何百年も貯蔵しなくてはならない。長寿命の $\alpha$ -放射体のアクチニド(たとえばプルトニウム)を含む廃棄物は何百万年も貯蔵しなくてはならない。最終装荷を行い最終貯蔵所を封印した後は、もはや管理・監督の必要でないことが保証されていなければならぬ。監視システムというものは数百年も保証できるものではなく、まして数万年数百万年ともなると全く保証できるものではない。

したがって最終貯蔵については、考え及ぶかぎりのどのような状況になっても放射性核種が決して生物圏に戻ってこれないことが要求される。最終貯蔵に対してはとくに地下深部の地層

が注目されている。安全性としては、まず第一に最終貯蔵所が損傷をうけず、閉ざされていることが必要である。したがって、地層の選択・貯蔵条件の選択については、リスク解析によって将来長期にわたっても、許容範囲が広く、放射性核種の放出につながるかもしれない因果関係を明らかにできるかどうかが要求される。ここでは、貯蔵中におこりうる事故の解析ばかりでなく、地震・大洪水・地下貯蔵所の浸水・火山作用・隕石落下・山脈の変貌などおこりうる大災害およびサボタージュや戦争による破壊の解析も含まれる。

地下深部の地層に貯蔵する場合、放射性核種が戻ってくるときの運搬媒体としては水がとくに重要である。したがって、最終貯蔵中の放射性廃棄物がふたたび生物圏に戻ってこないとはかぎらない水に触れさせないことが大切である。放射性物質が实际上減衰しつくすまで、貯蔵所は乾いたままでいなくてはいけないのである。

上記の諸条件は深部にある岩塩層の場合にもっともよくあてはまる。<sup>(K1, K2)</sup> 岩塩中の貯蔵は原理的にはどのようなレベルの放射能にも適切である。塩類鉱床にはつきのような長所がある：

— 岩塩が存在するということだけで、地下水とほとんど接触のなかったことがわかる。そうでなければ岩塩層は生成後の地質年代の間に溶出してしまったにちがいないからである。

岩塩鉱山は全く乾いた鉱山なのである。

— 巨大な造山運動の圧力の下では岩塩は可塑的にふるまう。したがって、割れ目はひとりでに閉じてしまう。

— それゆえ、岩塩は全く緻密であり、液体や気体を通さない。

— 岩塩は他の岩石に比べると比較的良い熱伝導体である。そのため、放射収束によって生ずる熱をよく伝え除去することができる。

— 岩塩鉱山で例がみられるように、岩塩中には比較的低コストで大きな空間をつくることができる。これは支柱で支えなくとも長期間つぶれない。

— 浸水が起り貯蔵所が水につかった場合でも、岩塩は水を通さないので食塩水は外に向って漏れ出ることがないので、貯蔵所の封印までの搬入の期間に対して安全ファクターとなる。

— 岩塩は多くの国々で大量の存在する。

低レベル、中レベル放射性固化廃棄物の岩塩層中における最終貯蔵は適切な解決策であるとみなされるのであるが、一方高レベル放射性廃棄物を岩塩中に貯蔵することに対しては深い考慮が払われている：<sup>(K3)</sup>

— 岩塩が存在することは水がなかったという地質学的な過去を保証するものである。しかし、欠点として岩塩は水溶性であり、将来地質構造の変化により水が浸入するかもしれない点があげられる。

— 不安全性の大きいものとして人為によるものがあげられる。たとえば、ボーリングによって水が浸入したり、また流し去ったりすることを除外して考えられない。現在まで岩塩鉱山で一連の例があつて凹みが水びたしになっていたこともあるのである。

このような一部よく知られていない業者が、米国においてカンサス州の Lyons Mine を放射性廃棄物の最終貯蔵所とすることを断念させた根拠の一つとなっている。<sup>(K3)</sup> 何百年も何千年

もたつうちに、高レベル放射性廃棄物の最終貯蔵に関する情報が失なわれ、（たとえば資源を求めて）新しくボーリングが行われないとは言いきれない。たとえば米国で考えられているように、<sup>(B1)</sup> 岩塩層を高レベル放射性の  $\alpha$ -廃棄物の最終貯蔵所に利用する際、岩塩層の下には石油がよくあるのは周知のことであるので、このような配慮をないがしろにするわけにはいかないのである。

他方、著者の意見によれば、とくに高レベル放射性廃棄物を充分深所に（たとえば深さ1000m以上）に埋める場合、岩塩ドームの状況を考えなくてはならない。ASSE-Sattel（第6.4節参照）は約300~>3000mの深さ（下限はまだよくわからない）を例示している。一方では大隕石がおちるという仮想事故に対して、他方では最終貯蔵所の情報が失われた場合に対して、また（岩塩取得、貯蔵所空洞化のような）人為による働きに対し、放射性物質の上部に強力な岩塩塊をおくと同時に、岩塩ドームの下の資源に対する探求も興味がなくなるほど深いところにおくことになろう。

岩塩層と岩塩ドームの関係を、HAMSTRA<sup>(H15)</sup>に基づきFig. 6.3に図示する。

ここでは高レベル放射性残留物をガラス体に融して固化し貯蔵すると仮定しよう。有望な操作概念によれば、液体廃棄物を蒸発乾涸し、煅焼し、ホウケイ酸ガラスを加えて融解する。<sup>(G4)</sup> 取扱いや輸送がしやすいように、ガラスを不銹鋼製容器にそそぎこみ、密閉する。

岩塩中の高レベル放射性廃棄物最終貯蔵所のモデルのスケッチをFig. 6.4に示す。高放射性の廃棄物シリンダー（直径約20cm、長さ約80~100cm）は自己発熱を考慮して、別々の空間的に分離されたボーリング孔の中につみかさねられることになる。ボーリングの上部はコンクリートと塩で密封される。ボーリング孔の距離と深さは、シリンダー間の塩の最大許容温度によって定められる。このようにすれば熱除去がきわめてよくなり、ガラスブロック（もしくは類似の物質）の表面温度、中心温度が高くなることはない。ホウケイ酸塩ガラスの場合、中心温度500~600°C、表面温度300~400°Cと計算されている。<sup>(K2, K4)</sup> 計算によれば、ボーリング間隔は、深さ50m、つみ重ねたシリンダーの高さ約40m（ガラス柱の容積125m<sup>3</sup>）の場合に、約10mが必要になる。

モデルとして考える場合、まず一定量の岩塩に対する高レベル放射性廃棄物の放射性核種の負荷量を見積る。ついで、同量の（ウラン-およびトリウム-鉱物のような）天然放射性物質と比較する。<sup>(B1, H13, V2, K3)</sup> ここでつきの諸事項が仮定される：

- 岩塩堆の一定の場所には、高放射性ガラスブロックの搬入はただ1回だけとする。
- ガラスブロックを挿入したのちは搬入路をふさぎ、密封する。
- ガラス柱の間の岩塩の量だけを考慮に入れる。

Fig. 6.4のような高放射性最終貯蔵所のモデルを使うと、つきの数字が得られる：

ガラス柱の距離	10m
ガラス柱の高さ	40m
ガラス柱の容積	1.25m <sup>3</sup>
周囲の岩塩の量	( $\rho = 2.16 \text{ t/m}^3$ )
ガラス柱1ヶあたり	$3460 \text{ m}^3 = 7500 \text{ t}$
軽水炉燃料1tあたり	

65 ℥ ガラス / t SMの時	$180 \text{ m}^3 = 390 \text{ t}$
90 ℥ ガラセ / t SMの時	$250 \text{ m}^3 = 540 \text{ t}$
高速増殖炉燃料 1 tあたり	$220 \text{ m}^3 = 480 \text{ t}$
高温炉燃料 1 tあたり	$470 \text{ m}^3 = 1020 \text{ t}$

この考察では、岩塩ドームの内部深くにある大きな岩塩層の上に、固化した廃棄物を小さな単位にわけて溶けない形として分布させることとした。したがって(たとえば軽水炉の場合には約400tの)“うすめた”岩塩の相対性有害性インデックスは同量(400t)の0.2%Uのウラン鉱石のそれに近似している。この近似を使いとこの最終貯蔵所の高放射性廃棄物に對して、

- 軽水炉燃料では約2000年後に、
- プルトニウムリサイクルをする軽水炉では約20000年後に、
- 高速増殖炉では約5,000年後に、

その有害性曲線がFig.6.5に示すように天然ウラン鉱石の有害性の下になることになる。高温炉の場合には約1,000年後にこのような状態になるが、その後(>2,000年)また上昇する。(比較の便利のために、Fig.6.5には処理しない軽水炉燃料の有害性曲線も示しておいた。)

比較用地層として地表のどこにでもあり、そのリスクをうけいれられる地層をとった場合、上記の最終貯蔵所の全容積について長期的( $10^3$ 年以上)にみると、その放射性有害性インデックスは比較値の上にならないか、あるいはたとえ上になつたとしてもほんのわずかである。  
(H13)

上記の最終貯蔵所モデルでは、上記の諸条件の下に当初存在した核分裂生成物の発熱によって定まる濃度制限にもとづいて安全性が確保されているのである。岩塩中における濃度制限の境界条件は、固化ずみの高レベル放射性廃棄物およびその他の超ウラン廃棄物においても厳守されるという仮定が含まれているのである。この場合、(たとえばブロック貯蔵など)長期の一時保管、あるいは核分裂生成物含有量の低いことによって最終貯蔵の時点までには、より密につめても発熱は少ないとが条件になっている。

### 6.3 西ドイツにおける岩塩層中の放射性廃棄物最終貯蔵法

西ドイツでは放射性廃棄物の最終貯蔵の適否を判断するのにつきのことを考慮する。すなわち、西ドイツでは人口密度が高いこと、気候が比較的湿潤であること、ならびに地下水の水位が高いことである。諸外国で地表近くに貯蔵するのに用いられている多くの方法では、ほとんど密閉されておらず、放射性核種の一部は生物圈に逆戻りできる。比較的高い放射能をもったものを海中に沈めることも同様に避けなければならない。<sup>(K2 A2)</sup> このようなわけで、ここでは放射性廃棄物をきわめてよく安定した地層中に最終貯蔵することだけを取上げる。適當な貯蔵法の開発については、西ドイツにおけるその分野の研究(ならびに類似の核工学問題について研究を行っている諸外国との共同研究)に重点をおこう。

西ドイツでは、第6.2節に既述した理由に基づいて極めて早くから、放射性廃棄物を岩塩中

に貯蔵する方針をたてた。Wolfenbüttel近くの閉山した岩塩鉱山ASSeをこの目的に整備し、1967年以来、放射性廃棄物の最終貯蔵の試験用施設として稼動させている。<sup>(K2)</sup> 200ℓのドラム缶の中に瀝青もしくはセメントで埋めこんだ固体低レベル放射性廃棄物をルーティンワークとして貯蔵の目的で搬入している。<sup>(G5)</sup>

中レベル放射性廃棄物については、ドラム缶の外側の放射能がかなり高いので、取扱いには遮蔽が必要になるが、搬入貯蔵法の開発のために、岩塩鉱山中の貯蔵室中の実験的搬入貯蔵が進められている。<sup>(K2)</sup> この技術は1970年代の終りには空洞装置が設置され、簡単化されよう。この装置では、地表にある遮蔽つきのセルから出た廃棄物の入ったドラム缶は、ボーリング孔を通って遮蔽の必要もなく直接貯蔵用空洞中に送られる。<sup>(D4)</sup>

低レベル、中レベル放射性廃棄物の最終貯蔵には閉山した鉱山が利用できる。しかし大型商業用再処理施設の高レベル放射性廃棄物の最終貯蔵用には、この方式は適当でない。このような高レベル最終貯蔵所では発熱が大きく、対象としている空洞構造物が危険にさらされることが避けられないからである。<sup>(K9)</sup> それゆえ、高レベル放射性最終貯蔵所では、適当なたて坑施設を掘らねばならなくなる。これを図解するためにFig. 6.4には、この種の高レベル放射性廃棄物最終貯蔵所の模型的スケッチを示した。

年間1500トンの軽水炉燃料を処理する大型再処理施設からなるガラス化した高レベル廃棄物の年間生産量は、(液体4~5年一時貯蔵をするとして) つぎの表のようになる。(Tabelle 6.3も参照)。

#### ガラス固化した高レベル放射性廃棄物

	Ga 入り	
	[ 65 ℓ / t SM ]	[ 90 ℓ / t SM ]
年間生成物 [ m <sup>3</sup> ]	98	135
ガラス柱の数 ( 4.0 m 高, 0.2 m φ )	78	108
貯蔵場面積 [ m <sup>2</sup> / 年 ]	6800	9400
20年間稼動後	370 × 370 m	440 × 440 m

#### 6.4 代替概念による高レベル放射性廃棄物の最終貯蔵

岩塩中の最終貯蔵に代わる一連の代替廃棄物管理法の系統的研究は米国ハンフォードの Battelle Pacific Laboratory の大研究プログラムとして行われた。<sup>(S10)</sup> 核変換、宇宙への送り出しはさておき、つぎのような研究が行われた。

- (岩塩層以外の)他の地層中の最終貯蔵。
- 周囲の岩石の溶解を伴なわない、きわめて深いボーリング孔内の最終貯蔵。
- 深いボーリング孔中の搬入と周囲の岩石の溶解。
- 鉱山風に作られた空洞室中の貯蔵と廃棄物槽の空気・水による中間冷却。

- 液体高レベル放射性廃棄物の鉱山風に作った空洞または核爆発で作った空洞への搬入・乾燥・溶解による岩石への浸透。
  - 南極の氷中の最終貯蔵。
- さらに、大洋の底での貯蔵の概念について、つきのいろいろな特性が研究されている：
- 安定な深海底。
  - 深海溝。
  - 大陸だなの下を移動する海底帶。
  - 堆積の割合の大きい海底帶。

McGRATH<sup>(M8)</sup> の報告にもとづいて、これらの方法、その安全性、リスクについてそれぞれ西ドイツに適するかどうか研究された。これらの方法は西ドイツにおける高レベル放射性廃棄物の処分に適用するには、とても現実的ではなく、また長期的にみればリスクを低減しないものであるので、これらについて議論しない。（ただし核変換については例外である。第7章 参照のこと）

## 7. 高レベル放射性廃棄物処分用の代替概念

貯蔵もしくは最終貯蔵される放射性残留物の発熱あるいは長期の有害性を軽減する目的で、廃棄物の個々の成分の分離を考察する。発熱をさけることに主眼をおいた分離、すなわち、とくに核分裂生成物であるストロンチウムとセシウムの分離は、長寿命のアクチニドが残留廃棄物中に含まれている固化生成物の長期安定性を著しく改良することができる。

他方、核分裂生成物廃棄物はその比放射線有害性が天然産放射性鉱石に匹敵する大きさに低下するまでには、600～700年の間それを管理する必要がある。これに対して、アクチニドとその壊変生成物は何百万年もの期間にわたってその高い毒性をもちつづけるものである。核分裂生成物とアクチニドとでは特性がいちじるしく異なるので、これらの両グループを化学的に分離し、それぞれのグループに対して適切なストラタジーを開発するのが得策であるかどうかがいつも問題になる。<sup>(H1, R2, K3)</sup>

放射性廃棄物からのアクチニドの分離は、核分裂生成物廃棄物の長期貯蔵問題を軽減する。600～700年というクリティカルな貯蔵期間ならば、地中深くの選定された地層が地質学的变化などの天然の変化に対して高い安全性をもって外挿できるからである。

分離されたアクチニドは、化学的および核的性質、長い半減期ならびにわずかの発熱を考慮に入れた特別の方法で最終貯蔵するか、あるいは他のプロセスによって究極的に消滅させる。しかし、蓄積したアクチニドの量を消滅によって減らしたところで、百年問題が700年問題になるにすぎない。<sup>(K3)</sup>

放射壊変にくらべてずっと短い時間で長寿命放射性核種を消滅させる方法はつぎのものしか考えられない：

—核変換もしくは核分裂による方法。すなわち原子炉に戻すこと。

—宇宙へ送り出す方法。

放射性廃棄物最終貯蔵所内でアクチニドが蓄積されるのを低減するには化学分離が前提になる。これには2つの断面がある：

—一方では、高レベル放射性廃棄物からアクチニドを分離する。

—他方では、再処理および燃料加工から大容量の中レベル、低レベル放射性廃棄物中のアクチニドの量、とくにプルトニウム（およびネプツニウム）のロスを技術的に到達できる最少限にする。

### 7.1 高レベル放射性廃棄物からのアクチニドの化学分離

核変換によるものであろうと（第7.2節参照）、宇宙への送りだしであろうと（第7.3節）、アクチニドを別に取扱うことになると、超ウラン元素を高レベル廃棄物から化学的に分離することが前提となる。現在の燃料サイクルの概念によれば、増殖性物質および核分裂性物質（U-PuないしはTh-U）の98～99%は使用済み燃料要素から回収されており、新たに原子炉

に装入される。一方、増殖性物質・核分裂性物質のロスになる 0.5%，ネプツニウムの約 70 ~ 95% およびアメリシウム、キュリウム（ならびに壊変生成物）の全量は再処理の高レベル放射性廃棄物中に入る。

軽水炉燃料再処理の高レベル廃棄物（Fig.5.3 参照）の相対的有害性インデックスは約 3 · 10<sup>4</sup> 年まではアメリシウム、キュリウムおよびその壊変生成物によって定まるることははっきりしている。壊変時間が更に長くなるとネプツニウム-237 およびその壊変生成物が多くなってくる。したがって、燃料再処理の高レベル放射性廃棄物中では、更にもう一回アメリシウム、キュリウムおよびネプツニウムならびにプルトニウムおよびウランを廃棄物から除いた場合に限って、長期の相対的有害性インデックスの低下が達成可能になる。

トリウム-ウラン-燃料サイクルでも、この関係は同じようになる。この場合は上記に加えてプロタクチニウム-231 が意味をもってくる。しかしここで相対的有害性インデックスにとって重要なことは、まず第一に、再処理のときにプルトニウムを分離したか、あるいは高レベル放射性廃棄物の中にプルトニウムを入れたかである。さらに長期の有害性インデックスの低減にはトリウム、ウラン、ネプツニウム、プルトニウム、アメリシウムおよびキュリウムをさらに分離することが意味をもつ。

#### 7.1.1 アクチニドの分離度の調査

高レベル放射性廃棄物からアクチニドの分離を目的として、再処理のあとに挿入されるプロセスは、生ずる高レベル放射性残留物が約 1000 年後につきの相対的有害性インデックスになる程度まで分離が行われる場合にかぎって意味がある：

—一方では、長寿命の核分裂生成物 Tc-99, Cs-135 および Zr-92/Nb-93 の相対的有害性インデックスと同程度の相対的有害性インデックス。

—他方では、ウラン含有量の低い天然産放射性物質のそれと匹敵する相対的有害性インデックス。

以下の考察ではヨウ素の 99% は再処理の際に分離され、別の β-ray 廃棄物として取扱われると仮定されている点をここに強調しておかなくてはならない。（第 4.1.2 節ならびに Fig. 5.1 参照）

CLAI BORNE の計算<sup>(C4, B20)</sup>によれば、ピッチブレンドの有害性インデックスの 5% 以下に低減させるためには、軽水炉、高速増殖炉もしくは高温炉の燃料からなる廃棄物の 1000 年後の相対的有害性インデックスを（等容積にもとづいた場合）、Tabelle 7.1 に示したような全分離百分率が再処理時、再処理後に挿入された廃棄物処理時に必要となってくる。

一定の全有害性インデックスをうるには、壊変時間も考えに入れて個々のアクチニドの相対的寄与の変化に数多くの組合せが考えられる。したがって分離係数の計算は用いたプロセスの化学、将来採用されるかもしれない分離プロセスの化学とできるだけ広範囲に一致するように行われる。CLAI BORNE<sup>(C4)</sup> は、Purex プロセスの現在の技術を使えば、二、三の手直しをしたのちはウランで約 99.9%，ネプツニウムで 95 ~ 99% の回収が可能となるいうことから出発した。分離係数 99.5% 以上のプルトニウムの分離ならびに、アメリシウムおよびキュリウムの分離にはさらにプロセスサイクルを必要とする。これにはまず開発を行わなく

てはならない。高温炉燃料の処理には現在のところ Thorex-プロセスが適当といわれている。このプロセスでは 99.5% のトリウムを分離できるが、将来は Np, Pu, Am および Cm ならびにプロタクチニウムも分離できるようにならなくてはなるまい。

したがって、ウランの分離は良く、ネプツニウムの分離は 95% とごく低く、かつ、きわめて類似した化学的性質をもつアメリシウムとキュリウムは同じ百分率で分離されると仮定して、Tabelle 7.1 に示した値を計算した。Tabelle 7.1 の値にもとづいて、Fig. 7.1 ~ 7.4 の諸図には、固化高レベル放射性廃棄物 - 残留物中に残るアクチニドの量を示した。

数値は廃棄物の分別をともなう代替廃棄物管理の目標を示す。この目標を達成するためには、現在のアクチニド分離法で達成可能な分離係数の 10~100 倍も大きい分離係数がぜひ必要になる。プルトニウムサイクルを行う軽水炉燃料からアクチニドを分離する場合には事情が変わり、Purex-プロセスにおける 0.5% のウランおよびプルトニウムのロスから出発して、つきの分離係数がさらに必要になる： ウラン  $\geq 5$ ，ネプツニウム  $\geq 20$ ，プルトニウム  $\geq 50$ ，<sup>(B20)</sup> アメリシウム  $\geq 1000$ ，キュリウム  $\geq 1000$ 。このような目標を達成するためには、加工システム、分離システム全体を開発しなくてはならない：

— 燃料要素の再処理は改良法で行い核分裂性物質・増殖用物質のロスを低下させる。

— ネプツニウムは Purex-プロセスでも分離しなくてはなるまい。

— 高レベル放射性廃棄物からアメリシウムおよびキュリウムを分離するプロセスを新しく開発しなくてはなるまい。

— 分離-および精製-サイクルからでてくる他の  $\alpha$ -廃水溶液の流れをプロセスの中へリサイクルする方法をみつけねばなるまい。

$\alpha$  で汚染された廃棄物の流れをリサイクルさせたり、減少させたりすることは一般的に基本的な意義があると思われる。また、高レベル放射性廃棄物からアクチニドを分離する決め手をもたない現在の廃棄物管理システムに対しても重要である。 $\alpha$ -廃棄物は量が多く、プルトニウム（もしくは他の超ウラン元素）を含んでいるので、廃棄物取扱いシステムにおいても最終貯蔵システムにおいてもその長期の安全性が問題である。

参考文献 B 2 1 によれば、Tabelle 7.1 でアクチニドの分離に必要として示した数値は、高レベル、中レベルあるいは低レベル放射性の何れであろうとも、総べての廃棄物中のロスの和が Table 7.1 に示した限界値を超えてはならないということを意味する。固化された高レベル放射性残留物を 5% ピッチプレンドと比較した値が得られており、固化高レベル放射性廃棄物中の濃度限界が示されているので、固化高レベル放射性廃棄物に対する分離係数を廃棄物全体に対する限界値として転用することは適切でない。再処理もしくは再加工からでてくる超ウランで汚染された廃棄物に対しては相当する独特の基準を開発しなくてはならない。この基準もまた同じく固化廃棄物の濃度制限にもとづく。

高レベル廃棄物からのアクチニドの分離は意味が深いが、同時にまた、再処理および廃棄物区分によって生ずる他の廃棄物流れ中に入りゆくアクチニドのロスの制限を条件づけることも全く正しい。これは、このプロセスの  $\alpha\beta\gamma$ -および  $\alpha$ -廃棄物を相当するプロセス段階にリサイクルしなくてはならないという結論になる。その際、高レベル放射性廃棄物の容積も  $\beta\gamma$ -廃棄物の量もあまり増えてはならない。さもないとそれが原因となって最終貯蔵所問題も

でてくることになる。

これらの処理システム・分離システム全体の問題は、燃料要素あるいは特殊照射用要素の処理に関する技術の現状の面から捉えられているのが一般であるが、長期的な観点に立ってのみ解決可能である。

### 7.1.2 アクチニド分離の化学的問題

BARTLETT, BRAY, BURGER, BURNS および RYAN の諸氏<sup>(B18)</sup>による、超ウランの単離用のこれまで用いられてきた化学分離操作の概観ならびにその高レベル放射性廃棄物の処理への応用の批判的研究を記した Battelle Northwest Laboratories の報告や、BOND, CLAIBORNE, LEUZE at al.<sup>(B20, B21)</sup>によるオークリッジ国立研究所の報告によると、アクチニド分離には未解決の困難な大問題がたくさんあることがわかる：

- 高い分離係数をねらったこれまでのプロセスは現在の形式では廃棄物処理に応用されないであろうし、また応用できない。考慮できるプロセスの選択性はまだ実証されていない。
- 高レベル放射性廃棄物中に約 1 ~ 10 重量パーセント含まれている固体<sup>(B18)</sup>は作業遂行上その量を定めねばならない。また、固体がアクチニドを含む場合には、これを抽出しなくてはならない。燃料の溶解時の不溶性残留物のほか、とくにコロイドと沈殿が問題になる。これらは再処理プロセスおよびアクチニド分離プロセス中、とくに各種廃棄物流れをフィードバックする際に、アクチニドーおよび核分裂生成物 - 溶液の化学変化により生成する。
- これまでのところ、プルトニウムの徹底的分離はプルトニウムの抽出されない状態があるので制限されていた。この状態は恐らくプロセス中にコロイド、沈殿もしくは錯体（例えばリン酸イオンとの）を生成するものである。プルトニウムを適切な処理によってイオン状に移行させないかぎり、さらに抽出段数を増しても無益である。
- ジルコニウム、モリブデン、スズなどのある種の核分裂生成物は、加水分解もしくは TBP - 放射線分解生成物との反応によって、沈殿を生ずる。これは施設の運転を乱す原因になり易く、また（吸着による）アクチニドのロスを引き起こし易い。
- 技術的な観点から実施可能といえる核分裂生成物よりの Am/Cm の分離プロセスはまだできていない。これまでの分離プロセスでは、Am/Cm - 分離段階で酸性の低い溶液を必要としたが、この条件では加水分解し易く、沈殿を生じ易い。まず（加水分解しやすい核分裂生成物 Zr, Moなどを除去した）適当なフィード溶液の調製法を開発しなくてはならない。
- ネプツニウムの分離の成否は正確に原子価をそろえる方法の開発にかかっている。
- 分離サイクルおよび精製サイクルからでてくるすべての  $\alpha$ - 廃棄物の流れは、新たに  $\alpha$ - 廃棄物の流れを作ることなく、また核分裂生成物廃棄物の容積をいちじるしく増すことなしに、リサイクルさせなくてはならない。フィードバックに際しては、とくに、一定のプロセス段階を乱す作用のある不純物・放射線分解生成物の増加が問題である。

### 7.1.3 ネプツニウムの分離

ネプツニウムは酸化状態 +6 および +4 で TBP と抽出され易い錯体をつくる。<sup>(B9)</sup> 一方、酸

化状態 + 5 は水相にのこる。Np (IV) は硝酸濃度が高くなつてはじめてよく抽出されるようになる。したがつて、Purex-プロセスではネプツニウムは第 1 抽出サイクルでつきの何れかの挙動をする：

- ウラン、プルトニウムと共に抽出される。つきの精製サイクルではこれらから分離されなくてはならない。
- Np (IV) として高レベル放射性廃棄物の流れの中へ入りこむ。そこからはイオン交換もしくは溶媒抽出によって単離されなくてはならない。

G.KOCH<sup>(12)</sup> および R.D.BAYBARZ<sup>(B4)</sup> がネプツニウムのプロセス化学に関する総説を書いている。

酸化物燃料を溶解したのち、ネプツニウムは主として + 5 の状態になる。<sup>(B9)</sup> これは恐らく大量に存在する酸化窒素の作用による。何度も硝酸と煮沸するか、あるいは V (V) で酸化するかして、<sup>(K6)</sup> Np (IV) まで酸化する。このようにすればウランなどと共に抽出される割合は、(第 1 サイクルの HA - 抽出段階で) 90 % を超す。つづくウラン-プルトニウム一分離の段階では、還元条件、酸の濃度、流速条件などによって、ネプツニウムの大部分は、主としてウラン流れ中に、あるいはプルトニウム流れ中にともなわれる。これらは第 2 次ウランサイクルもしくは<sup>(K6)</sup> プルトニウムサイクル中で水溶液の Raffinat 流れから分離される。

酸化状態を + 5 にあわせることにより、すなわち、第 1 抽出器の最終段へ亜硝酸塩を添加することにより、<sup>(P1)</sup> ネプツニウムは水相に移行し、高レベル放射性 Raffinat 流れの中に流れこむ。Savannah River では、これを第 2 ウランサイクルの水溶性 Raffinat 流れと反応させ<sup>(P1)</sup> ネプツニウムを Np (IV) に還元し、アニオン交換により分離して濃縮している。

ネプツニウムを高燃焼の燃料の高レベル放射性廃棄物濃縮物から分離するには、アニオン交換法は適当かどうか疑わしい。これに対して、Purex-プロセスの抽出法によるネプツニウムの分離は、最適条件をさがせば、95 % を超す高度の分離が達成可能である。

#### 7.1.4 アメリシウム/キュリウムの分離

Purex-プロセスではアメリカンとキュリウムは直接には分離されない。これらの両元素は 3 値イオンとして第 1 抽出サイクルの水相にとどまり、そのため実際上定量的に高レベル放射性廃棄物流れの中に入る。したがつて核分裂生成物混合物から、そのために開発された方法と施設を使って分離しなくてはならない。

希土類元素とはなはだしく化学的に類似しているので、この分離は主としてつきの 3 段階で行われる：

- アメリシウム/キュリウムと核分裂生成物の希土類元素をまとめて、他の核分裂生成物から分離する。
  - アメリシウム/キュリウムを希土類元素から分離する。
  - 場合によっては、アメリカンとキュリウムを分離する。
- アメリカン/キュリウムの分離法については VAUGHEN<sup>(V3)</sup> の総説がある。
- たいていの分離操作は、とくに、特別の照射プログラムによってアメリカンおよびキュリウムを取得する目的で開発されたものである。<sup>(B4)</sup> TBP による抽出、<sup>(H8, W6)</sup> あるいは脂肪族アミ

ンもしくはアンモニウム塩による抽出<sup>(B10, M7, S12)</sup>の場合のように、しばしば高濃度の塩を塩析用に加えたり、あるいはまた、オークリッジ国立研究所の“TRAMEX-プロセス”<sup>(L4, B10, B4)</sup>の場合の濃い塩化物溶液のように、腐食性媒体内で行われたりしている。

工業的応用を考えると、最終的にはつきのようなプロセスだけが適当となる。すなわち、連続的に稼動できるもの。耐放射線性プロセス用化学薬品を使うもの。(塩化物のような) 塩析剤・腐食性塩を必要としないもの。大量の放射性廃棄物に応用できるもの。

ランタニドー核分裂生成物からアメリシウムおよびキュリウムを分離するための既知の諸方法の中では、つきの2法すなわちカチオン交換クロマトグラフィーと溶媒抽出法TALSPEAKにもとづく方法だけが、それぞれ開発するに値するものであると思われている。

カチオン交換プロセスは米国において数グラムというスケールで実施され、成功している。<sup>(K11)</sup> とくに超プルトニウム元素の単離を目的とした高圧イオン交換技術という新しい方法には興味<sup>(C3, L5, H12)</sup> がある。この分離はきわめて微細な粉末状(径20~50 μm)のカチオン交換体を用いて行われる。この交換体を耐圧不銹鋼製分離管に入れる。溶液は(25 ml·cm<sup>-2</sup>·min<sup>-1</sup>までの)高速で交換柱内におしこむ。この際の圧力は300 barにも達する。イオン交換体の粒度がきわめて小さいので、溶液と樹脂との間には速やかに交換平衡がなりたち、きわめてシャープな分離ができる。接触時間が短いので高い放射線量率によっても樹脂はそれ程早く損傷をうけない。さらに、高圧を使うので交換柱内に気泡を生ずることもさけられる。α-線によって放射分解して生じたガスが高圧の下で溶存するからである。

この分離法はカールスルーエ核研究センターのアクチニドプロジェクトの枠内でグラム量のアメリシウムとキュリウムの分離に、<sup>(G7)</sup> またサバンナリバーでは大量のキュリウムの分離<sup>(H9, H12)</sup> に採用された。分離は亜鉛をホールドバックイオンに、またジエチレントリアミンペント酢酸溶液あるいはニトリロトリ酢酸溶液を溶出剤に用いて置換クロマトグラフ法によって行われた。このイオン交換法の欠点をつぎに示す：

- フィード溶液に他の核分裂生成物もしくは塩類が高濃度にふくまれてはならない。
- 大量の亜鉛をリサイクルしなくてはならない。
- 汚染したイオン交換樹脂および造錯剤がかなりの量できる。

いわゆるTALSPEAK-プロセス<sup>(W4, W5)</sup> は開発される可能性がもっとも大きい。この方法はアメリシウム/キュリウムに対して希土類を、乳酸とポリアミノーポリ酢酸一溶液から、ビス-(2-エチルヘキシル)リン酸、HDEHP、のような酸性有機リン酸化合物によって、優先的に抽出することにもとづいている。

このプロセスの今後の開発においては、さしあたりアメリシウムおよびキュリウムを希土類核分裂生成物とともに、他の核分裂生成物から抽出分離することになろう。この際、抽出剤はHDEHPであり、水溶液は弱酸性クエン酸もしくは酒石酸を含有する溶液である。<sup>(H11, B12)</sup> つづいて、アメリシウム/キュリウムを乳酸/ジエチレントリアミンペント酢酸溶液中に選択的に逆抽出する。<sup>(K13, K6, W5)</sup>

KOCH, KOLARIKら<sup>(K7)</sup> のカールスルーエ学派によれば、このプロセスは高レベル放射性廃棄物濃縮物を(ジルコニウム、鉄などの沈殿を生ずる)弱酸性領域にまで硝酸をのぞくことに結びつけ、その後でHDEHP抽出用の造錯剤の添加をやめることにしている。

このプロセスをルーティンにした場合にえられる分離係数については、まだ経験がない。またこれに関して未解決の諸問題はつきのようなものである：

- 適当なフィード溶液の調製用の前処理段階。
- 溶媒の精製。
- 大量の中レベルおよび低レベル放射性廃棄物の発生。その一部は有機造錯剤含有量が高く、廃棄物の固化に際して妨害となる。

## 7.2 核変換による長寿命放射性核種の消滅

放射性廃棄物からの長寿命放射性核種は中性子で誘導する核変換によって消滅できる。これにはつきの2通りの方式がある：

- 中性子捕獲によって安定同位体または短寿命同位体に変換させる。
  - (重元素の場合)核分裂によって、短寿命ないしは長期的に有害性のより低い核分裂生成物に燃焼させる。
- 有効な核反応の基準はつきのようである<sup>(S10)</sup>：
- 核分裂によるエネルギー生産のバランス全体をいちじるしく悪くすることがあってはならない。
  - 新しく生成されるものに比べて消滅するものの方が長期的にみてより有毒性が大きくなくてはならない。
  - 天然の壊変の割合にくらべて特定の核変換の割合が数倍も大きくなくてはならない。
  - プロセス全体の変換の割合は十分に大きくて、長寿命の廃棄物核種のインベントリーの相当な部分を変換し消滅させるものでなくてはならない。

核反応プロセスの有利性は相対的有害性インデックスによって示され、比較される。

核反応プロセスの有利性は相対的有害性インデックスによって示され、比較される。  
中程度および長い半減期をもつ核分裂生成物<sup>(S9)</sup>を、既存もしくは将来できる  $3 \times 10^{13} \sim 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  の中性子束をもつ高速発電炉または熱中性子発電炉へフィードバックして中性子誘導核反応によって消滅させることは不可能である。<sup>(C1, S10, W3)</sup> 廃棄物のインベントリー

・ 変換の割合について上記の基準がみたされないからである。

これに対して、次節に示すように、計算によると、<sup>(C1, S10)</sup> 原子炉へ繰返し入れることによってアクチニドを消滅させうる可能性が原理的に明らかにされた。このような廃棄物管理システムの評価をするためには、技術的にきわめて難しいこと、開発に非常に時間がかかること、およびコストが高いことなどに対する考慮が欠けている。

- 進歩した核エネルギー経済における各種炉型およびその燃料サイクルを含めた場合のアクチニドの生成・消滅と廃棄物発生の最小化についても全システムのシステム解析的研究。
- 全廃棄物のバランスに対する特別な基準および個々の核変換ならびに全核変換の割合の特別な基準の開発。
- リスク解析。一方では稼動期におけるリサイクリングの附加的リスクを考慮し、他方ではアクチニド分離と1000年後のリサイクリングをした場合としない場合について最終貯蔵所における全廃棄物のリスクの比較をする。

### 7.2.1 軽水炉燃料における超ウランのリサイクリング

CLAI BONE<sup>(01)</sup>はその広範な研究の中で、ウランとプルトニウムはリサイクルさせないで、Fig.7.5のストラタジー1にしたがって、加圧型軽水炉の3.3%濃縮ウラン新燃料の中に超ウランをたえずフィードバックする場合について、廃棄物の相対的有害性(CLAI BONEは“Hazard Measure”と呼んでいる)を減らす可能性を研究している。この研究では再処理でウランとプルトニウムを取ったあと、さらにネプツニウム、アメリシウム、キュリウム、バーケリウムおよびカリホルニウムを高レベル放射性廃棄物から分離し、燃料にフィードバックすることを基礎においている。その研究の結果では、アクチニドをリサイクリングすると高レベル放射性残留物のアクチニドインベントリーは著しく減少することが示された。たいていのアクチニドのインベントリーは数サイクルの後に飽和値に達するまで増してゆく。この飽和点では生成する超ウランと燃焼する超ウランが等しくなる。この平衡状態は、ネプツニウムに対しては実際上3サイクル後に、プルトニウムおよびアメリシウムに対しては2サイクル後に現われる。これに対してキュリウム(したがってバーケリウムおよびカリフォルニウム)に対しては小さな捕獲断面積で重いキュリウム同位体が作られてゆくので、30サイクル以上たってからはじめて平衡状態になる。

アクチニドの分離の割合を99.5%および99.9%とした場合の長期有害性インデックスの減少を研究している。<sup>(01)</sup>その計算によると同インデックスの減少は全てのアクチニドの分離の程度に直接依存する。

アクチニドの分離とリサイクリングを行うと、一方では高レベル放射性廃棄物中のアクチニドインベントリーは著しく減少する。しかし他方では、総べてのアクチニドの99.5%あるいは99.9%を分離しストラタジー1(Fig.7.5)にしたがってリサイクルさせた場合には、Tabelle 7.2の数値が示すように、結果としてでてくる(有害性インデックスの)減少係数はまだほんのわずかである。このことは結果としてえられる相対的有害性インデックスが(上限としてピッチブレンドを使う)天然放射性鉱物の領域に入りはするものの、第7.1.1節の目標設定値(ピッチブレンドの5%)に比べると遠く及ばないということを意味する。

ストラタジー1においてプルトニウムも軽水炉燃料中にリサイクルされる場合には、上記の様相はさらに著しく悪くなろうというのが著者の見解である。プルトニウムのリサイクリングではアメリシウム、キュリウムの生成量が何倍にも増大するからである。(Fig.3.3および3.5を参照のこと)このことはまた参考文献S10のTable 9 C.8にみられるストラタジー2用の計算でも明らかにされている。

Fig.7.5のストラタジー2および3はBattelle Pacific Northwest Laboratories<sup>(S10)</sup>で研究されたものであるが、これらはアクチニドをリサイクルさせて燃料をつくるには厚い遮蔽を使って作業しなければならないこと、そのため少數の燃料要素を何倍もの製造コストをかけて作ることになることに基礎をおいている。

アクチニドを燃料棒の10%だけにリサイクルさせるというストラタジー2に対しては、自己遮蔽効果を考慮にいれた計算では、アクチニドインベントリーが大きくなることになる。そのため、ストラタジー1および2を同一回数のサイクルで比較すると、アクチニドのインベントリーはリサイクルさせる燃料棒の数が少ないほどはっきりと減少することになる。しかし、

その差異はある程度までは燃焼率測定値<sup>(M9)</sup>とORIGEN<sup>(B3)</sup>による計算値のあいだに見られるバラツキ<sup>(D6)</sup>と同じ桁のものである。上記の計算ではとくにキュリウムの値が高くなる。

ストラタジー3は、プルトニウムを他の超ウランとともに加圧水型炉の燃料要素の約4分の1にリサイクルさせるものである。プルトニウムもリサイクルさせるので、ストラタジー1および2に比べるとアクチニドインベントリーは何倍にもなる。平衡状態に達するに要するサイクルの回数も大きくなる。<sup>(S10)</sup> ネプツニウムもプルトニウムとともにリサイクルさせるため、アメリシウム、キュリウムおよびPu-238を生成し、そのインベントリーが高くなる。これらは軽水炉燃料要素用のPurex-施設では処理できないので、特別の再処理施設が必要となる。

### 7.2.2 超ウランを別の照射体として再照射し特別に処理すること

高レベル放射性廃棄物から分離されたアクチニドを、Fig.7.5のストラタジー4にしたがってさらに照射することについては、次の諸事項を仮定した。(Fig.7.7参照)

- アクチニドを軽水炉もしくは高温炉用につくった独特の照射体に濃縮して入れ、アクチニド<sup>(H1, R2, P4)</sup>の生成した同じ炉でさらに照射する。
- 比較的少量を用い、キュリウムー、カリホルニウムー同位体の自発核分裂に起因する中性子を遮蔽して、特別の施設内でアクチニドターゲットを化学的に処理・再加工する。
- アクチニドの再加工の技術は現在なお未開発である。これは高温炉用U-233-リサイクリングのためにいざれは開発しなければならない。たとえば西ドイツのアクチニドプロジェクト<sup>(G7)</sup>あるいは米国で開発された照射体の経験を生かして、このターゲット製作に応用できよう。

アクチニドを別に照射し、処理する理由はつきのようにまとめることができる：

- 何度もリサイクリングを繰返していると、キュリウムおよびカリホルニウムができるてくる。これは(自発核分裂および $\alpha$ ,  $n$ -反応によって)中性子線量率を増大させることになる。燃料と混合すると、<sup>(C1)</sup> 再処理に対してはほとんど附加的な問題をひきおこさないが、燃料要素を遠隔操作で製作しなければならない。プルトニウムのリサイクリング<sup>(B7)</sup>の場合のような比較的高度の遮蔽を考慮に入れなくてはならない。
- 照射すみアクチニドターゲットの場合はるかに少量を特別の処理プロセスにかけるのに比べると、核燃料再処理の全高レベル廃棄物流れからアクチニドを分離するに要求されている高い分離係数を達成するのは著しく困難になろう。
- アクチニドの独立したリサイクリングを何回もくり返さないうちに、比較的少量のPu-242および重いキュリウムー同位体の残留物が生成する。これはその後はさらに別に取扱い、とくに高速中性子束での核分裂(あるいは宇宙への発射)で処分される。

超ウランのリサイクリング、すなわち、さらに中性子照射を行う場合には、大部分の超ウランは分裂し易い核種、Pu-239, Pu-242, Am-242m, Cm-243, Cm-245およびCm-247になって分裂される。小部分はより重い核種に変ってゆく。この核種の生成についてついてには $> 3 \cdot 10^5$ 年の半減期をもち、中性子の反応断面積の小さい(Cm-247は例外)、長寿命同位体Pu-242, Pu-244, Cm-247およびCm-248になる。最終的には反応しない重い核種の残留物を生成する。<sup>(R2)</sup> その特性をTabelle 7.3にまとめておく。

Fig. 7.6 および Tabelle 7.2 からわかるように、ネプツニウム、アメリシウムおよびキュリウムの諸元素を高レベル放射性廃棄物からまず最初分離したのち（したがってリサイクリングの前）では長期の有害性インデックスの減少係数は、何回も連続して燃料にリサイクルしたときに比較すると、著しく高くなっている。また、燃料要素処理時に発生する高レベル放射性廃棄物の量は照射体の処理時に発生するその量の  $10^2 \sim 10^3$  倍にもなる。この点で超ウランを別個の照射用棒の形状にして軽水炉に、あるいは特殊燃料要素の形状にして高温炉に、フィードバックする利点がみられる。照射ずみのものを独立に処理する比較的小さなロットに対して、高い分離係数をもつ分離プロセスを開発することは可能であろう。

しかし、もっとも重要な利点は、2～3回のサイクルをしたのちには熱中性子束にさらす照射をもう止めにして、量的に著しく減少した“残留物”を増殖炉の速中性子束中で照射して処分する可能性がある点であろう。<sup>(W7)</sup> 速中性子束中では、重い核種の反応断面積は一般に小さくなるが、核分裂はしやすくなるのである。おそい中性子では分裂しない重い超ウラン核種も、速い中性子に対しては顕著な核分裂断面積をもつ。核分裂生成物の中性子毒としての作用も速中性子束に対しては役割を果たさない。この照射の観念の正確な計算はまだやられていない。この種の計算が難しいのは、相当重い核に対しては不正確なデータしかないのである。

一般的にいって、ここで、これまでに行われた計算を高温炉および高速炉のような他の炉型ならびにそのいろいろな燃料観念にまでおしひろげなければならないことが指摘される：—とくに、リサイクルされたアクチニドを熱中性子炉・高速中性子炉中で原子炉照射すること、両炉型中で組合せて照射することの詳細な研究・最適化が必要であると思われる。

### 7.3 宇宙への送り出し

放射性廃棄物を宇宙に送り出し永久に処分することについては、その可能性とコストの研究が<sup>(P3, P2, S10)</sup> 2, 3行われている。これらの研究の予備的にえられた結果によれば、この方法はコストが高いうえ（最低 2,000 ドル/kg 廃棄物<sup>(P3)</sup>）、しばしば発射すればリスクが大きくなり、次第によっては大気圏に再突入することもあるので、大きく譲歩したところで 0.1～1% より以上は核分裂生成物を含まない分離ずみの超ウランの送り出しに問題が限られる。

超ウランをとくに安全に包装するために、その酸化物を何層にも包み、遮蔽し、発射ミスの際も放射性核種の放出を確実に防げるきわめて頑丈なキャップセル中のグラファイトマトリックスまたは金属マトリックスの中に入れる。

太陽系から逃れ出てしまう軌道の場合、発射ごとに約 190 kg の超ウラン一廃棄物を送り出<sup>(P3)</sup> せる。この量は 150～270 t の軽水炉燃料中の超ウラン量に匹敵する (Tabelle 4.1)。紀元 2000 年には、（中間的および最大予測にしたがえば）西ドイツだけでも 2.8～3.4 t のアメリシウム、キュリウムおよびネプツニウムを 15～18 回のロケット発射が必要になるであろう。これはどう考えても現実的ではないので、（重い Pu-および Cm- 同位体を含む）量的に少ない残留物を宇宙に送り出すという第 7.2.2 節で言及した可能性だけが残る。

ロケット発射の回数が少ない場合についても、つきのような未解決の問題がある：  
—国際的な同意と協定。

- 政治的要素の不確定性。
- しばしばロケットを発射することの安全性と発射ミスの安全性。
- 発射ミスの場合もしくは大気圏へ再突入の場合、廃棄物を閉じこめることの困難。

## 8. 参 考 文 献

### 8. Literaturverzeichnis

- /A 1/ 4. Atomprogramm der Bundesrepublik Deutschland für die Jahre 1973 - 1976  
Bundesministerium für Forschung und Technologie
- /A 2/ E. ALBRECHT, H. KODLITZ, K. KÜHN, H.E. TRABANDT,  
H. KRAUSE, W. KLUGER  
"Radioaktive Rückstände"  
Schriftenreihe des Deutschen Atomforums, Heft 16 (1969)
- /A 3/ W.C. ASTLEY, G.J. WALKE, J. LADESICH  
"Plutonium Recycle Developments"  
Nuclear News 14 (Aug. 1971) 29-32
- /A 4/ E.D. ARNOLD  
"Effect of Uranium Recycle on Transuranic Element Build-up"  
Nucl.Sci.Eng. 3 (1958) 707 - 25
- /A 5/ L.A. ABRAMS  
"Fuel Reprocessing-Commercial Experience"  
Reactor Fuel-Reproc. Techn. 12 (1969) 181-94.
- /B 1/ M.J. BELL, R.S. DILLON  
"The long-term hazard of radioactive wastes produced by the enriched uranium, Pu-<sup>238</sup>U, and <sup>233</sup>U-Th fuel cycles"  
Report ORNL-TM-3548 (Nov. 1971)
- /B 2/ F. BAUMGÄRTNER, H. PHILIPP  
"Die Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Kernbrennstoffen"  
Fortschritte Chem.Forsch. 12 (1969) 712-774

- /B 3/ M.J. BELL  
"ORIGEN, The ORNL Isotope Generation and Depletion Code"  
Report ORNL-4628 (1973)
- /B 4/ R.D. BAYBARZ  
"Recovery and Application of the Transuranium Elements  
 $^{237}_{\text{Np}}$ ,  $^{238}_{\text{Pu}}$ ,  $^{241}_{\text{Am}}$ ,  $^{242}_{\text{Cm}}$ ,  $^{244}_{\text{Cm}}$ , and  $^{252}_{\text{Cf}}$ "  
At.Ener.Rev. 8 (1970) 327-60
- /B 5/ K.H. BECKURTS , B. BERGMANN  
"Die Hochtemperaturreaktoren"  
atomwirtschaft 18 (1973) 191-8
- /B 6/ L.H. BROOKS, C.R. DAVIS, D.D. PETERMAN, M.E. SPAETH  
"Spent Fuel Shipping, Reprocessing, and Recycle  
Fabrication in the HTGR Fuel Cycle"  
Report GULF-GA-A 12272 (Dec. 1972)
- /B 7/ M.J. BELL, J.P. NICHOLS  
"Penetrating Radiation Dose Rates and Shield Requirements in Fabrication of Fuels Containing U-233 and High Exposure Plutonium"  
Proc.Symp. on Sol-Gel Processes and Reactor Fuel Cycles"  
Gatlinburg (May 1970) 74-84 /CONF-700502/
- /B 8/ J.O. BLOOMEKE, C.W. KEE, J.P. NICHOLS  
"Projections of Radioactive Wastes to be Generated by the U.S. Nuclear Power Industry"  
Report ORNL-TM-3965 (Feb. 1974)
- /B 9/ W. BÄHR  
"Extraktionsverhalten von Neptunium bei der Wiederaufarbeitung von bestrahlten Kernbrennstoffen nach dem PUREX-Prozeß"  
Report KFK-797 (1968)

- /B 10/ R.D. BAYBARZ, B.S. WEAVER, H.B. KINSER  
"Isolation of Transplutonium Elements by Tertiary  
Amine Extraction"  
Nucl.Sci.Eng. 17 (1963) 457
- /B 11/ J.O. BLOMEKE, J.P. NICHOLS, W.C. McCLAIN  
"Managing Radioactive Wastes"  
Physics Today 26, No. 8 (1973) 36-42
- /B 12/ R.E. BURNS, W.W. SCHULZ, L.A. BRAY  
"Recent Solvent Extraction Studies at Hanford Laboratories"  
Nucl.Sci.Eng. 17 (1963) 566-75
- /B 13/ R.G. BROGLI, R.C. DAHLBERG, G.H. GEORGE  
"Plutonium Utilization in the HTGR"  
Trans.Am.Nucl.Soc. 17 (1973) 298-9
- /B 14/ A.G. BLASEWITZ, G.L. RICHARDSON, J.L. McELROY,  
J.E. MENDEL, K.J. SCHNEIDER  
"The High-Level Waste Solidification Demonstration  
Program"  
Proc. NEA/IAEA Symp. "Management of Radioactive Wastes  
from Fuel Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 615-54
- /B 15/ R. BACHMANN  
"Stand und Entwicklung der Kernkraftwerke (KKW) sowie  
die Verteilung auf KKW-Typen"  
Systemstudie "Radioaktive Abfälle in der BRD",  
Zwischenbericht, SRA-1 (Aug. 1974)
- /B 16/ U. BRAATZ, C. COLHOUN  
"Der Markt für Kernbrennstoffe".  
Jahrbuch für Atomwirtschaft 1974, A31-A42  
(Handelsblatt Verlag, Düsseldorf)
- /B 17/ J. BLOMEKE, J.J. PERONA  
"Storage, Shipment, and Disposal of Spent Fuel Cladding"  
Report ORNL-TM-3650 (Jan. 1972)

- /B 18/ J.W. BARTLETT (ed.), L.A. BRAY, L.L. BURGER, R.E. BURNS,  
J.L. RYAN  
"Feasibility Evaluation and R+D-Program Plan for Trans-  
uranic Partitioning of High-Level Fuel Reprocessing  
Waste"  
Report BNWL-1776 (Nov. 1973)
- /B 19/ G. BAUMGÄRTEL, R. KRAEMER, R. KROEBEL  
"Plutonium Availability from LWR-Reprocessing in the  
FRG, EG, and USA"  
Panel on Plutonium Utilization in Thermal Power  
Reactors, IAEA, Karlsruhe, Nov. 25 - 29, 1974
- /B 20/ W.D. BOND, H.C. CLAIBORNE, R.E. LEUZE  
"Methods for Removal of Actinides from High-level Wastes"  
Nucl.Techn. 24 (1974) 362-370
- /B 21/ W.D. BOND, R.E. LEUZE  
"Feasibility Studies of the Partitioning of Commercial  
High-Level Wastes Generated in Spent Nuclear Fuel  
Reprocessing"  
Annual Progress Report for FY-1974, ORNL-5012 (Jan. 1975).
- /C 1/ H.C. CLAIBORNE  
"Neutron-induced transmutation of high-level radio-  
active waste"  
Report ORNL-TM-3964 (Dec. 1972)
- /C 2/ J.L. CRANDALL  
"Synthesis of the Transuranium Nuclides"  
Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie, 8. Aufl.  
Erg. Werk, Bd 7b, "Transurane" (Hrsg. G. KOCH)  
Teil A1, II, Kap. 4.1, 1-28 (Springer Verlag, 1974)
- /C 3/ D.O. CAMPBELL  
"Rapid Ion Exchange Separations. Chromatographic  
Separation of Transplutonium Elements Using High  
Pressure Ion Exchange"  
Ind.Eng.Chem.Process Des.Dev. 2 (1970) 95-99

/C 4/ H.C. CLAIBORNE  
"Effect of Actinide Removal on the Long-Term Hazard  
of High-Level Waste"  
Report ORNL-TM-4724 (Jan. 1975)

/C 5/ C.R. COOLEY, R.E. LERCH  
"The Acid Digestion Process for Treatment of Combustible  
Wastes"  
Proc. Seminar "Management of Plutonium-Contaminated  
Solid Wastes", Marcoule Oct 1974, OECD Paris (1975)  
172-85

/D 1/ D.E. DEONIGI, E.A. ESCHBACH  
"Production and Indifference Pricing of Transuranium  
Isotopes"  
Report BNWL-223 (March 1966)

/D 2/ R.C. DAHLBERG, L.J. COLBY, Jr.  
"HTGR Fuel Cycles and Economics"  
Symp. on Sol-Gel-Processes and Reactor Fuel Cycles"  
Gatlinburg (May 1970) 2 - 11 [CONF-700502]

/D 3/ E. DETILLEUX, E. LOPES-MENCHERO, L. GEHEM, F. MARCUS  
"Requirements and Problems of High-Active Waste Manage-  
ment at the Eurochemic Reprocessing Plant"  
Proc. Symp. "Solidification and Long-term Storage of  
Highly Radioactive Wastes"  
Richland, Wash. (Feb. 1966) 30-60 (CONF-660208)

/D 4/ W. DIEFENBACHER, H. HEIL, H. KRAUSE, M.C. SCHUCHARDT,  
H. BORCHERT, K. DÜRR, K. KLARR, K. KÜHN, G. STAUPENDAHL,  
E. ALBRECHT, H. KOLDITZ, K. THIELEMANN  
"Endlagerung radioaktiver Abfälle" - Jahresbericht 1970,  
Report KFK-1454, GSF-T34 (1971)

- /D 5/ R.C. DAHLBERG, K. ASMUSSEN, D. LEE, L. BROOKS, R.K. LANE  
"HTGR and Fuel Cycle"  
Nucl. Eng. Des. 26 (1974) 58 - 77
- /D 6/ G.J. DAU (comp.)  
"Nuclear Waste Management and Transportation Quarterly Progress Report. July-Sept. 1974"  
Report BNWL-1876 (Nov. 1974)
- /E 1/ M.M. EL-WAKIL  
"Nuclear Energy Conversion"  
Intext Educational Publishers, Scranton, USA (1971)
- /E 2/ H. ESCHRICH  
Mol, Belgien, (Mai 1974) unveröffentlicht
- /E 3/ E. Ewest  
Hahn-Meitner-Institut, Berlin, private Mitteilung  
(Dez. 1974)
- /F 1/ FORATOM  
"The Nuclear Power Industry in Europe"  
FORATOM-Report (May 1972)
- /F 2/ FICHTNER, Beratende Ingenieure  
"Wirtschaftliche Aussichten von mit nuklearer Prozeßwärme erzeugtem technischem Wasserstoff"  
Kurzstudie im Auftrag des Bundesministers für Bildung und Wissenschaft, NT 125 (Okt. 1971)
- /F 3/ P. FORTESCUE  
"A Reactor Strategy: FBR's and HTGR's"  
Nuclear News 15, No. 4 (1972) 36-9
- /F 4/ FORATOM Expert Group  
"The Future of Reprocessing in Europe"  
FORATOM Report (Feb. 1970)

- /G 1/ W.V. GOEDDEL  
"Coated Particle Fuels in High Temperature Reactors:  
A Summary of Current Applications"  
Nucl.Appl. 3 (1967) 599-614
- /G 2/ F. GERA, D.G. JACOBS  
"Considerations in the Long-Term Management of High-  
Level Radioactive Wastes"  
Report ORNL-4762 (Feb. 1972)
- /G 3/ S. GOLAN, R. SALMON  
"Nuclear Fuel Logistics"  
Nuclear News 16, No. 2 (1973) 47-53
- /G 4/ W. GUBER, W. DIEFENBACHER, W. HILD, H. KRAUSE, E. SCHNEIDER, G. SCHUBERT  
"Pilot Plant Experience on High-Level-Waste Solidification  
and Design of the Engineering Prototype VERA"  
Proc.Symp. "Management of Radioactive Wastes from Fuel  
Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 489-514
- /G 5/ Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung  
"Zur Sicherheit der Endlagerung radioaktiver Abfälle  
im Salzbergwerk ASSE"  
Broschüre (April 1973)
- /G 6/ F. GERA, D.G. JACOBS  
"Hazard Potential of Radioactive Waste"  
Proc.Int. Symposium in "Radioecology Applied to the  
Protection of Man and his Environment", Rome (Sept. 1971)
- /G 7/ Gesellschaft für Kernforschung  
Projekt Actiniden - Jahresbericht 1973  
Report KFK-1849 (April 1974)

- /H 1/ G. HÖHLEIN  
"Das Projekt PACT"  
KFK-Nachrichten 4, No. 1 (1972) 1 - 6
- /H 2/ J. HÖCHEL, G. MATZ, H. SCHWEICKERT, H. WEIDINGER  
"Der Brennstoffkreislauf"  
Schriftenreihe des Deutschen Atomforums, Heft 19 (1972)
- /H 3/ K.G. HACKSTEIN  
"Probleme und Stand des HTR-Brennstoffkreislaufes"  
atomwirtschaft 18 (1973) 294-7
- /H 4/ G.C. HANNA, C.H. WESTCOTT, H.D. LEMMEL, B.R. LEONARD,  
J.S. STORY, P.M. ATTREE  
"Revision of Values for the 2200 m/s Neutron Constants  
for Four Fissile Nuclides"  
At.Energy Rev. 7 (1969) Heft 4, 3-92
- /H 5/ F.J. HOMAN  
"Timing the use of Recycle Fuel in the HTGR"  
Trans.Am.Nucl.Soc. 17 (1973) 314-5
- /H 6/ H.O. HAUG  
"Calculations and Compilations of Composition,  
Radioactivity, Thermal Power, Gamma and Neutron Release  
Rates of Fission Products and Actinides of Spent Power  
Reactor Fuels and their Reprocessing Wastes"  
Report KFK-1945 (1974)
- /H 7/ C.C. HAWS, B.C. FINNEY, W.D. BOND  
"Engineering-Scale Demonstration of the Sol-Gel Process"  
Report ORNL-4544 (May 1971)

/H 8/ H.E. HENRY

"Isolation of Americium and Curium from  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3\text{-NaNO}_3\text{-HNO}_3$  Solutions by Batch Extraction with Tributyl Phosphate"

Report DP-972 (1965)

/H 9/ W.H. HALE, J.T. LOWE

"Rapid, Gram-Scale Separation of Curium from Americium and Lanthanides by Cation Exchange Chromatography"

Inorg.Nucl.Chem.Lett. 5 (1969) 363-8

/H 10/ P.A. HAAS, W.D. BOND, M.H. LLOYD, J.P. McBRIDE

"Sol-Gel Process Development and Microsphere Preparation"

Proc. 2nd Int. Thorium Fuel Cycle Symp., Gatlinburg, Tenn. (May 1966) 391-415

/H 11/ D.E. HORNER, D.J. CROUSE, K.B. BROWN, B. WEAVER

"Fission Product Recovery from Waste Solutions by Solvent Extraction"

Nucl.Sci.Eng. 17 (1963) 234-46

/H 12/ R.M. HARBOUR, W.H. HALE, G.A. BURNEY, J.T. LOWE

"Large-Scale Separation of Transplutonium Actinides by Pressurized Cation Exchange"

Atomic Energy Review 10 (1972) 379-99

/H 13/ J. HAMSTRA

"Radiotoxic Hazard Measure for Buried Solid Radioactive Wastes"

Nuclear Safety 16 (1975) 180 - 189

/H 14/ H. HEPP

"Behandlung und Lagerung von radioaktiven Abfällen"

VGB-Konferenz "Kraftwerk und Umwelt", Essen (Feb. 1973)

/H 15/ J. HAMSTRA

private Mitteilung (Okt. 1974)

- /I 1/ IAEA  
"Standardization of Radioactive Waste Categories"  
Report of a Panel held in Vienna, Nov. 1967  
Technical Report Series No. 101, IAEA, Wien (1970)
- /I 2/ International Commission on Radiological Protection  
"Recommendations of the International Commission on  
Radiological Protection"  
ICRP-Publication No. 2 (1959), No. 6 (1964)
- /J 1/ P. JANSEN  
Programm zur Berechnung von Reaktorstrategien (unver-  
öffentlicht)
- /J 2/ Jahrbuch der Atomwirtschaft 1974  
(Handelsblatt Verlag, Düsseldorf)
- /K 1/ K. KÜHN  
"Die radioaktiven Abfälle"  
Neue Technik 13 (1971) 61-68
- /K 2/ H. KRAUSE  
"Die Lagerung radioaktiver Abfälle"  
Naturwissenschaften 59 (1972) 412-7
- /K 3/ A.S. KUBO, D.J. ROSE  
"Disposal of Nuclear Waste"  
Science 182 (1973) 1205-11
- /K 4/ K. KÜHN, W. DIEFENBACHER, H. KRAUSE, H. SCHMIDT  
"Disposal of Solidified High-level Radioactive Wastes  
in the Asse Salt Mine"  
Proc. Symp. on "Management of Radioactive Wastes from  
Fuel Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 917 - 32
- /K 5/ L. KÜCHLER, L. SCHÄFER, B. WOJTECH  
"Der Thorex-Zweistufen-Prozeß zur Wiederaufarbeitung  
thoriumhaltiger Kernbrennstoffe mit hohem Abbrand"  
Kerntechnik 13 (1971) 319-22

/K 6/ G. KOCH  
"Recovery of By-Product Actinides from Power Reactor Fuels"  
Report KFK-976 (1969)

/K 7/ G. KOCH, Z. KOLARIK, H. HAUG, W. HILD, S. DROBNIK  
"Recovery of Transplutonium Elements from Fuel Reprocessing High-Level Waste Solutions"  
Proc. Symp. "Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 1081-1110

/K 8/ K.D. KUHN, G. MÜHLING, K. SCHEFFLER  
"Analytische Überwachung der Produktion von Kernbrennstoffen"  
Chemiker-Zeitung 95 (1971) 350-5

/K 9/ K. KÜHN  
Institut für Tieflagerung der GSF, Clausthal-Zellerfeld  
private Mitteilung (Okt. 1973)

/K 10/ L. KÜCHLER, L. SCHÄFER, B. WOJTECH  
"Labor- und Heißzellenversuche über die Anwendbarkeit des sauren Interim-23-Prozesses zur Wiederaufarbeitung hochabgebrannter thoriumhaltiger Kernbrennstoffe"  
Kerntechnik 13 (1971) 225-9

/K 11/ J.A. KELLEY  
"Ion Exchange Process for Separating Americium and Curium from Irradiated Plutonium"  
Report DP-1308 (1972)

/K 12/ G. KOCH  
"Gewinnung von Neptunium-237, Plutonium-238 und Plutonium-242"  
Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie, 8. Aufl.  
Erg. Werk, Bd. 7b, "Transurane" (Hrsg. G. KOCH)  
Teil A1, II, Kap. 5.5, 288-315 (Springer Verlag, 1974)

- /K 13/ G. KOCH  
"A Study on Americium/Curium Recovery from Fuel Reprocessing High-Level Waste Solutions" in A.S. KERTES, Y. MARCUS (eds.) "Solvent Extraction Research", Proc. 5<sup>th</sup> Int. Conf. Solvent Extr. Chem., Jerusalem, Sept. 1968 (Wiley-Interscience 1969)
- /K 14/ R. KAEMPFER, J.G. WILHELM (eds.)  
Jahresbericht des Labors für Filtertechnik  
Report KFK-2165 (1975) 9-21
- /L 1/ W. LINS, W. STOLL  
"Brennelemente und äußerer Brennstoffkreislauf"  
in Jahrbuch der Atomwirtschaft (1973) A59-A66
- /L 2/ J.R. LAMARSH  
"Nuclear Reactor Theory"  
Addison-Wesley Publ. Comp., New York (1966)
- /L 3/ H.W. LEVI, G. MALOW, E. SCHIEWER  
"Weiterentwicklung von Verfestigungsprodukten für Abfälle aus der Aufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe"  
Atomwirtschaft 18 (1973) 177-8
- /L 4/ R.D. LEUZE, R.D. BAYBARZ, B. WEAVER  
"Application of Amine and Phosphonate Extractants to Transplutonium Element Production"  
Nucl. Sci. Eng. 17 (1963) 252
- /L 5/ J.T. LOWE, W.H. HALE, D.F. HALLMAN  
"Development of a Pressurized Cation Exchange Chromatographic Process for Separation of Trans-plutonium Actinides"  
Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev. 10 (1971) 131-5
- /L 6/ Los Alamos Scientific Lab., H-Division Staff,  
Environmental Studies Group, Waste Management Studies  
"Transuranic Solid Waste Management Research Programs"  
Quarterly Report April-June 1974  
Report LA-5762-PR (1974)

- /M 1/ H. MANDEL  
"Strukturen der nuklearen Stromerzeugung in den  
70er und 80er Jahren"  
atomwirtschaft 18 (1973) 18-24
- /M 2/ P.E. McGRATH, R. SCHRÖDER, H. HAUG  
"Eine Prognose über die Entwicklung der Kernenergie-  
wirtschaft in der BRD bis zum Jahre 2010"  
unveröffentlicht (Kurzfassung in Anhang 1)
- /M 3/ D.L. MEADOWS  
"Die Grenzen des Wachstums"  
Deutsche Verlagsanstalt, Stuttgart (1972)
- /M 4/ E. MERZ, M. LASER, E. ZIMMER  
"Schließung des äußeren Brennstoffkreislaufes von  
Hochtemperaturreaktoren"  
Kerntechnik 15 (1973) 249-56
- /M 5/ F.R. MARCUS, F. SEYNAEVE  
"Demands for Reprocessing Services and the Planning  
of Industrial Reprocessing Facilities in Western  
Europe"  
Proc. Fourth Int. Conf. on Peaceful Uses of At. Energy,  
Geneva, 4 (1972) 281-92 [A/CONF 49/P/640]
- /M 6/ H. MÄRKL, W. STOLL  
"Rückführung von Plutonium in thermische Reaktoren"  
Atomwirtschaft 17 (1972) 306-12
- /M 7/ W. MÜLLER  
"The Extraction of Actinides by Alkyl-Substituted  
Ammonium Salts"  
Actinide Reviews 1 (1967) 71-119

/M 8/ P.E. McGRATH  
"Radioactive Waste Management Potentials and Hazards  
from a Risk Point of View"  
KfK-Report-1992 (1974)

/M 9/ R.P. MATSON  
"An Analysis of Yankee-Rowe Burn up Data"  
Report BNWL-1122 (July 1969)

/M 10/ J.L. McELROY (comp.)  
"Quarterly Progress Report. Research and Development  
Activities Waste Fixation Program. July-Sept. 1974"  
Report BNWL-1871 (Nov. 1974)

/N 1/ Nuklidkarte, 4. Auflage 1974  
W. SEELMANN-EGGEBERT, G. PFENNIG, H. MÜNZEL  
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

/O 1/ Staff of Oak Ridge National Laboratory  
"Siting of Fuel Reprocessing Plants and Waste  
Management Facilities"  
Report ORNL-4451 (July 1970)

/P 1/ W.L. POE, A.W. JOYCE, R.I. MARTENS  
"Np-237 and Pu-238 Separation at the Savannah River  
Plant"  
IEC Proc.Des.Dev. 3 (1964) 314-22

/P 2/ A.M. PLATT, R.W. RAMSEY  
"Long-Term Waste Management Methods"  
Proc.Symp. "Management of Radioactive Wastes from  
Fuel Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 409-429

/P 3/ F.K. PITTMAN  
"High-Level Radioactive Waste Management Alternatives"  
USAEC Report WASH-1297 (May 1974)

- /R 1/ G. RUDOLPH, J. SAIDL, S. DROBNIK, W. GUBER, W. HILD,  
H. KRAUSE, W. MÜLLER  
"Lab-Scale R+D Work on Fission Product Solidification  
by Vitrification and Thermite Processes"  
Proc. Symp. "Management of Radioactive Wastes from  
Fuel Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 655-81
- /R 2/ A.F. RUPP  
"A Radioisotope-Oriented View of Nuclear Waste Manage-  
ment"  
Report ORNL-4776 (May 1972)
- /R 3/ R.W. RAMSEY, G.H. DALY, A.G. BLASEWITZ, R.C. COOLEY,  
G.L. RICHARDSON  
"Overview of Management Programs for Plutonium  
Contaminated Solid Waste in the USA"  
Proc. Seminar "Management of Plutonium-Contaminated  
Solid Wastes", Marcoule Oct. 1974, OECD Paris (1975)  
62-77
- /S 1/ K.J. SCHNEIDER  
"Status of Technology in the United States for  
Solidification of Highly Radioactive Liquid Wastes"  
Report BNWL-820 (Oct. 1968)
- /S 2/ K.J. SCHNEIDER  
"Solidification and Disposal of High-Level Radio-  
active Wastes in the United States"  
Reactor Technology 13 (1970/71) 387-415
- /S 3/ 1. Strahlenschutzverordnung (SSVO)  
Bundesgesetzblatt Nr. 61 (Okt. 1965) 1653-84
- /S 4/ B.I. SPINRAD  
"The Role of Nuclear Power in Meeting World Energy  
Needs"  
Proc. Symp. on Environmental Aspects of Nuclear Power  
Stations, IAEA, 10-14 Aug. 1970, New York

- /S 5/ H.-L. SCHERFF  
"Protactinium"  
Euratom Review I (1968) 74-81
- /S 6/ H.B. STEWART, R.C. DAHLBERG, W.V. GOEDDEL, D.B. TRAUGER,  
P.R. KASTEN, A.L. LOTTS  
"Utilization of the Thorium Cycle in the HTGR"  
Proc. Fourth Int. Conf. on Peaceful Uses of At. En.,  
Geneva, 4 (1972) 433-46
- /S 7/ W. SCHIKORR  
"Reaktorstrategie zu einer autarken Primärenergie-  
versorgung"  
Reaktortagung, Berlin (April 1974)
- /S 8/ B.W. SOUTHWORTH, D.H. LEE, R.C. DAHLBERG  
"Use of Low Enrichment Uranium in the HTGR"  
Report GA-9715 (Sept 1970)
- /S 9/ M. STEINBERG, G. WOTZAK, B. MANOWITZ  
"Neutron Burning of Long-Lived Fission Products for  
Waste Disposal"  
Report BNL-8558 (1964)
- /S 10/ K.J. SCHNEIDER, A.M. PLATT (eds.)  
"Advanced Waste Management Studies: High-Level Radio-  
active Waste Disposal Alternatives"  
USAEC-Report BNWL-1900 (May 1974)
- /S 11/ K. SCHNEIDER (ed.)  
"Waste Solidification Program. Vol. 1. Process Technology:  
Pot, Spray, and Phosphate Glass Solidification Processes"  
Report BNWL-1073 (Aug. 1969)
- /S 12/ Savannah River Laboratory  
"Large Scale Production and Applications of Radio-  
isotopes"  
Report DP-1066, Vol. II (1966)

- /S 13/ Stanford Research Institute  
"Patterns of Energy Consumptions in the United States"  
Office of Science and Technology, Washington D.C.,  
PB 212-776/9 (Jan. 1972)
- /S 14/ S.H. SMILEY  
"Waste Management-Licensing and Criteria"  
Nucl.Technol. 24 (Dec. 1974) 294-299
- /S 15/ T.H. SMITH, W.K. WINEGARDNER, G. JANSEN, L.D. WILLIAMS,  
T.I. McSWEENEY  
"A Methodology for Risk Analysis of Nuclear Waste  
Management Systems"  
Report BNWL-SA-4899 (June 1974)
- /S 16/ H. SOULIER  
"Incinérateur de déchets riches en émetteurs alpha de  
Marcoule Fonctionnement"  
Proc. Seminar "Management of Plutonium-Contaminated  
Solid Wastes"  
Marcoule, Oct. 1974, OECD Paris (1975) 163-171
- /S 17/ W.-J. SCHMIDT-KÜSTER  
"Internationale Strukturen des nuklearen Brennstoff-  
kreislaufes"  
Atomwirtschaft 20 (1975) 282-8
- /T 1/ H.H. van TUYL, W.K. WINEGARDNER, R.K. HILLIARD, C.R.  
COOLEY  
"A Survey of Alpha Waste Generation and Disposal  
as Solids in the U.S. Nuclear Fuel Industry"  
Report BNWL-B-34 (Dec. 1970)
- /T 2/ U. TILLESSEN, H. JAUER, J. KAYSER  
"Studie zur Schließung des HTR-Brennstoffkreislaufes"  
Report NUKEM-119 (Aug. 1973)

- /U 1/ UNIPED Working Group  
"Prospects of Development of Fast Breeder Reactors in  
the European Community"  
Report (March 1973)
- /U 2/ USAEC  
"AEC Predicts Nuclear Power Growth to the Year 2000"  
Nuclear News 16, No. 4 (1973) 37-8
- /U 3/ USAEC  
"Nuclear Power 1973 - 2000"  
WASH-1139 (72) (Dec. 1, 1972)
- /U 4/ USAEC  
"Reprocessing of Dresden Reactor Fuel at Nuclear  
Fuel Services, Inc., West Valley Facility"  
Report SRO-123 (Oct. 1968)
- /U 5/ USAEC  
"Reprocessing of Yankee Reactor Fuel at Nuclear Fuel  
Services, Inc., West Valley Facility"  
Report SRO-124 (Oct. 1968)
- /U 6/ USAEC  
"Environmental Statement: Liquid Metal Fast Breeder  
Reactor Demonstration Plant"  
Report WASH-1509 (April 1972)
- /U 7/ USAEC  
Draft Environmental Statement: "Management of Commer-  
cial High Level and Transuranium Contaminated Radio-  
active Waste"  
Report WASH-1539 (Sept. 1974)
- /U 8/ USAEC Working Group  
"Compaction of Radioactive Solid Waste"  
Report WASH-1167 (1970)

- /V 1/ D.R. VONDY, J.A. LANE, A.T. GRESKY  
"Production of Np-237 and Pu-238 in Thermal Power  
Reactors"  
Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev. 3 (1964) 293-6
- /V 2/ B. VERKERK  
Reactor Centrum Nederland, Petten  
Private Mitteilung, Okt. 1974
- /V 3/ V.C.A. VAUGHEN  
"Recovery of Americium and Curium"  
Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie, 8. Aufl.  
Erg. Werk, Bd. 7b, "Transurane" (Hrsg. G. KOCH)  
Teil A1, II, Kap. 5.6, 315-326 (Springer Verlag, 1974)
- /W 1/ U. WENZEL  
Kernforschungsanlage Jülich, Institut für Chemische  
Technologie  
private Mitteilung (1973)
- /W 2/ P.J. WOOD, M.J. DRISCOLL  
"The Economics of Thorium Blankets for Fast Breeder  
Reactors"  
Trans. Am. Nucl. Soc. 17 (1973) 314
- /W 3/ W.C. WOLKENHAUER, B.R. LEONARD, B.F. GORE  
"Transmutation of High-level Radioactive Waste with a  
Controlled Thermonuclear Reactor"  
Report BNWL-1772 (Sept. 1973)
- /W 4/ B. WEAVER, F.A. KAPPELMANN  
"TALSPEAK: A New Method for Separating Americium and  
Curium from the Lanthanides by Extraction from an  
Aqueous Solution of an Aminopolyacetic Acid Complex  
with a Monoacidic Organophosphate or Phosphonate"  
Report ORNL-3559 (1964)

- /W 5/      B. WEAVER, F.A. KAPPELMANN  
"Preferential Extraction of Lanthanides over Trivalent Actinides by Monoacidic Organophosphates from Carboxylic Acids and from Mixtures of Carboxylic and Aminopolyacetic Acids"  
J.Inorg.Nucl.Chem. 30 (1968) 263
- /W 6/      E.J. WHEELWRIGHT, F.P. ROBERTS, L.A. BRAY, G.L. RITTER,  
A.L. BOLT  
"Simultaneous Recovery and Purification of Pm, Am, and Cm by the Use of Alternating DTPA and NTA Cation Exchange"  
Report BNWL-SA-1462 (1968)
- /W 7/      J.J. WENT  
"Energy for the Future"  
Europhysics News 4, No. 10 (1973) 1 - 4
- /W 8/      J.T. WEILS  
"Towards a quasi-steady-state energy supply"  
Nuclear News 16, No. 14 (1973) 89-94
- /W 9/      J.G. WILHELM, H. SCHÜTTELKOPF  
"An Inorganic Adsorber Material for Off-Gas Cleaning in Fuel Reprocessing Plants"  
Proc. 12<sup>th</sup> USAEC Air Cleaning Conf. (Aug. 1972) 540;  
/CONF-720823 (1972) 540/
- /Z 1/      P. ZÜHLCKE  
"Europäische Zusammenarbeit bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe"  
Atom und Strom 18 (1972) 128-31
- /Z 2/      D.L. ZIEGLER, A.J. JOHNSON, L.J. MEILE, A.J. JOHNSTON,  
E.L. SHAMHART  
"Pilot Plant Development of a Fluidized Bed Incineration Process"  
Report RFP-2271 (Oct. 1974)

## 附 錄 1

### 西ドイツおよび西ヨーロッパにおける原子力発電所の発展の予測

#### A.1 予測対象期間

予測の確からしさは対象とする期間を長くとってゆくと急速に下がってゆく。しかし、90年代になって初めて高温炉・高速増殖炉の設置がいちじるしくなると考えられるので、予測期間を2010年までを選択した。(2010年のデータを得るために、ある種の計算は2020年まで延長して行った)

対象期間(1970~2010年)に対する最大の予測によると、発電電力量も発電設備容量も10倍以上に増大することになる。結果として年間増設率と一人あたりの消費電力が高くなり、対象期間をさらに延長することは意義がないと思われた。他方、年間伸び率の低減すなわち発電電力量曲線のS字形化の原因となる因子についてはあまりわからない。そのために、ここに採用した予測もそのS字形エネルギー曲線の下部についてだけ、その領域の幅を把握できることになる。

#### A.2 1次エネルギー消費の伸び

1950年と1970年の間の1次エネルギー消費量の平均伸び率は、EC6カ国で5.3%，西ドイツで4.9%，米国で3.5%に達した。<sup>(M1)</sup>米国でも西ドイツにおけると同様に、1次エネルギー消費量中に電気エネルギーが占める割合は、現在、約25%に達している。<sup>(S13, M1)</sup>1次エネルギー消費量の残りの75%は電力以外のエネルギー形態で、家庭用・一般産業用・工業用・輸送用に用いられている。

西ドイツにおける1960~1970年の間の発電電力量の平均伸び率は年間7.9%であった。これにともづくと、全エネルギー消費量に対する電気エネルギーの占める割合は将来は25%という現在の値をはるかに超えて増大するものと思われる。電力は他の1次エネルギー形態に比べると、多面的に利用可能性があり、種々のエネルギーに容易に転換できることがその原因である。

MANDELが西ドイツを対象として行った予言<sup>(M1)</sup>によれば、1985年には電力は全エネルギー需要の約39%を占めようという。今世紀末には、西ドイツの1次エネルギー消費量は2倍以上となり、その中で電力消費が占める割合はおよそ50%になろうという。

#### A.3 電気エネルギー消費量の伸び

1970年の西ドイツにおける総発電電力量は242.6TWeh(うち、公共発電所167.2TWeh、工業付属発電所75.4TWeh)になった。これを前年度に比べると、7.3%の増加になっている。1960年と1970年の間では平均年間伸び率は7.9%であった。

今後 50 年間の電力生産量を推定する目的で、公用と工業用に分けて両分野を考察した。というのは両分野での伸びが同一因子に左右されるわけではないからである。ここにつきの仮定をした：

—上限値の推定においては：

- a) 公用では、1970～2020年の間、一定の伸び率、年間 7.15% を保つ。これは 10 年の倍増期間に相当し、現在のそれに近い。
- b) 工業用の分野では、上と同じ期間に対し、一定の伸び率、年間 4.0% を保つ。

—下限値の推定においては：

- a) 公用分野では、下記のように伸び率が低下するとする。

1970 ~ 1980	年間 7.15%
1980 ~ 1990	6.2 %
1990 ~ 2000	5.1 %
2000 ~ 2010	4.0 %
2010 ~ 2020	3.0 %

したがって飽和状態をもつ近似式で計算できる。

- b) 工業用分野では 1970～2020年の間年間 4% の一定伸び率とする。

これらの諸仮定を採入れて計算した結果の発電電力量を第 2 章の Fig.2.1 に図示した。

#### A.4 発電設備容量

発電設備容量は、発電電力量から稼動率の助けをかりて計算される。最大値の推定には、2020年にいたるまで発電所の効率は 1970 年に比べて改善されないという悲観的な仮定を用いた。この仮定を使うと、西ドイツに対する稼動率は 0.545 となる。

$$\frac{243 \text{ TWe h/a}}{51 \text{ GWe}} \cdot \frac{1}{8760 \text{ h/a}} = 0.545$$

最小値の推定にはつきの楽観的な仮定をした。すなわち、西ドイツで 2010 年には平均稼動率が 0.7 になるとすると。この大きさはイスラエル、東ドイツなどいくつかの国では現在達成している値 0.685 に近い。2010 年にいたるまでのそれぞれ 10 年に対して用いる稼動率は次のとおりである：

1970	0.545
1980	0.584
1990	0.622
2000	0.662
2010	0.700

第 2 章の Fig.2.2 に示した発電設備容量 (Engpass-leistung) の値はこの仮定に基づくものである。

### A.5 原子力発電の設備容量

電力生産における原子力の増大を推定する目的で、原子力の市場渗透率予測値の代表的な数値を引用した。これはMANDELの値<sup>(M1)</sup>もSPINARDの値<sup>(S4)</sup>も一致していた。

西ドイツを対象とした最大推定値にはつきのものがある：

—1980年：FORATOMの最大推定値<sup>(F1)</sup>すなわち、核エネルギーによる発電が約35%（稼動率0.8）となる。

—2000年：生産される電力の85%が原子力によるものとなる。

—2020年：全発電設備容量("Engpass leistung")の85%が原子力によるものとなる。すなわち、原子力発電所がピーク時需要の一部を受け持つことになる。

最小値の推定はつきの仮定に基づいて行われた：

—1980年：FORATOMの低い方の推定値から2GWeをひいた値とする。

—2000年以後：発電電力量の65%にあたるベース負荷だけが、稼動率0.8の原子力発電所によってカバーされる。

中間値は単純に内挿法によって求めた。えられた原子力発電設備容量の値は、全発電設備容量と比較して、第2章のFig.2.2に示した。

ここでえられた結果を他の予測と比べてみると興味がある。さらに、換算係数をつくった。これは世界の他の部分における発電量と西ドイツにおけるそれとの比較である。この近似はきわめて粗く、当該地域の発電所平均成長率および稼動率が同一であるという仮定も含んでいる。そのため、西ドイツの工業化と同程度に工業化の進んでいる諸国とだけ比較できることになる。換算係数は下記の地域に対する1968～1970年の期間の平均値をとって定めた。

E E C(6)	2.4
E C (9)	3.5
西ヨーロッパ	4.7
米 国	7.0

第2章のFig.2.3のように表現すると、西ドイツ、西ヨーロッパ、米国における相対的な伸びがはっきりする。さらにこの図には、すでに設置されている発電所と増設予定のプログラムを根拠にして以前に公表された予測<sup>(S4, U2, U3, A1)</sup>ならびに新しい予想<sup>(B15)</sup>も図示されている。

### A.6 各種炉型の割合

個々の炉型の増設の調査についてのストラタジー用の計算には下記の仮定をした。

—1980年まではプルトニウムリサイクリングを行う軽水炉だけを考える。

—1980年から高速増殖炉の導入までは、高温炉ならびにプルトニウムリサイクリングを行う軽水炉を考える。

—1987年からは、軽水炉、高温炉および高速増殖炉(酸化物燃料)を考える。

高温炉の増設率は、10%から25%へと上ってゆくと仮定した。<sup>(M1, B5, U1)</sup>そしてそれは下記のように増加する。

## 原子力発電所増設率

— 1980～1985年	10%
— 1985～2000年	20%
— 2000～2020年	25%

全原子力発電設備容量に対するここで求められた高温炉の割合から、残りの市場占有率を出し、それを軽水炉に割り当てる。

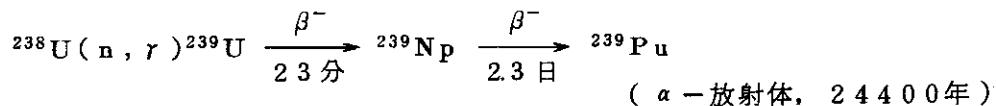
高速増殖炉の増設がはじまると、軽水炉でのプルトニウムのリサイクリングは終るとした。増殖炉の増設によって軽水炉でも高速増殖炉でも相当量のプルトニウムが生産されることとなる。不必要に複雑になるのを避けるために、ここで採用するストラタジーでは高速増殖炉用炭化物燃料の導入は考えないことにした。

上記にあげた限界条件および付け加えた 1000MW 標準原子炉の炉物理的性質 (Tabelle 3.1 をみよ) にしたがい、原子炉ストラタジー用計算プログラム<sup>(J1)</sup> の助けをかりて、軽水炉 (50% PWR と 50% BWR とした) および高速増殖炉の占有率を計算した。結果は Tabelle 2.1 および Fig. 2.4 (第 2 章) にまとめた。

## 付 錄 2

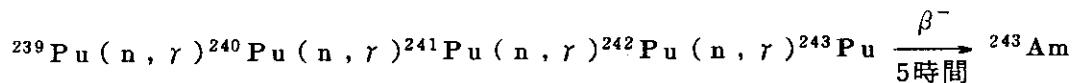
## ウラン-プルトニウム-燃料サイクルにおける超ウランの生成

核分裂性U-235のほかに熱中性子では核分裂をしないU-238を含む燃料棒をもつ原子炉では、どれでも、そのU-238による中性子の捕獲がおこる。ついで短寿命の中間生成核種をへてつぎのようにPu-239を生成する：



第一近似として軽水炉に対しては、核分裂で生ずる利用可能な中性子の60%は以後の核分裂連鎖反応の維持に必要になるが、残りの約40%は中性子捕獲反応によってより重い超ウラン元素同位体の生成をひきおこすといつてよい。このことはFig. 3.2に示す通りである。

生成したプルトニウムは、原子炉から燃料要素を引き抜かないで運転をつづけていると、一部は再び分裂をひきおこす。したがって燃焼の末期では熱エネルギーの30%くらいはプルトニウムが寄与するようになる。<sup>(H2)</sup> 生成されたプルトニウムの残りは、原子炉内に長くとどまっているあいだに中性子を捕獲し、結果として質量数242までのより重いプルトニウム同位体を生ずる：



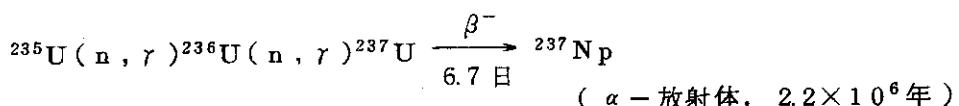
燃焼しなかったプルトニウムは再処理に際して分離され、貴重な核燃料物質となる。高燃焼率の軽水炉燃料では、プルトニウムの同位体組成<sup>(H2, M9)</sup>はTabelle A.2.1に示した値の範囲にある。

Tabelle A.2.1 軽水炉-プルトニウムの平均同位体組成

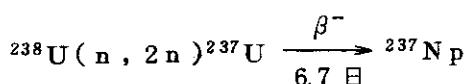
Nuklid	Ref. /H2/ extrapoliert auf ca. 34000 MWd/t (DWR und BWR)	YANKEE-ROWE gemessene Werte /M9/, auf 34000 MWd/t interpoliert	Rechnungen dieser Arbeit	
			DWR (34000 MWd/t)	
			3.3% U-235	Pu-Rezyklierung
Pu-238	0.4 - 1.3%	1.5%	2%	2%
Pu-239	48 - 57	59.4	58	49 - 51
Pu-240	24 - 33	20.9	24	24 - 25
Pu-241	12 - 15	13.9	12	14
Pu-242	5 - 9	4.3	4	9 - 11
spaltbares Pu	60 - 70	73	70	62 - 64

より重い同位体の形成はプルトニウムの場合だけに見られるのではなく、Fig. 3. 2 に示したように、アメリシウムおよびキュリウムの同位体でも見られる。使用済み核燃料中のそれらの量を Tabelle 3. 2 (第 3 章) に比較できるように示した。

U-235 の場合も熱中性子との反応は核分裂のほかにその 1.5 % におよぶ中性子捕獲がある。その結果、U-236 を生じ、さらに中性子捕獲を行って U-237 となる。これが最終的に  $\beta$ - 壊変をして超ウランの 1 種であるネプツニウム-237 になる。



他方 Np-237 は U-238 が高速中性子と (n, 2n) 反応をおこしても生成される。



濃縮ウラン ( $> 1\%$  U-235) を用い、高燃焼度まで利用する熱中性子炉では、Np-237 (B4, V1) の生成は主として中性子捕獲による。

エピサーマルの中性子領域における U-236 の捕獲断面積は共鳴によって上昇するので、“比較的かたい” 中性子スペクトルをもつ原子炉中での Np-237 の生成は増大する。(たとえば PWR では BWR よりも多くの Np-237 を生ずる。) さらに再処理でえたウラン中の U-236 がリサイクルされても、<sup>(D1)</sup> ネプツニウム生成量は増大する。ウラン濃縮では約 40 % の U-236 しか分離されないからである。

同様に、平均(熱)中性子エネルギーが増大すると、Pu-239, Pu-240, Pu-242 ならびに Am-241 および Am-243 の捕獲断面積は増大するので、結果としてより重い核種の生成が促進される。

## 付 錄 3

## 被覆粒子燃料を用いるトリウム－ウラン－燃料サイクルについてのノート

U-233はTabelle A.3.1にまとめられている核物理的性質<sup>(H4)</sup>をもっているので、熱中性子炉の核分裂性物質としてとくに適している。捕獲断面積と核分裂断面積の比、 $\alpha$ はきわめて小さい( $\alpha = 0.089$ )。吸収された中性子1コあたり有効に遊離される中性子の数\*は、全熱中性子領域で2.2～2.3個になり、U-235およびプルトニウムのそれよりも大きい。<sup>(L2)</sup>

(たとえば構造材などによる)吸収および炉心の外への漏洩による止むをえない中性子のロスを考慮に入れると、およそ0.8～0.9の転換率がえられる。すなわち、U-233を核分裂性物質とする炉心は、熱中性子領域で、消費した核分裂性物質の80%以上をトリウムからふたたび増殖できる。不足分は、たとえばトリウムプランケット(3.3.4参照)をもつ高速増殖炉のような他の原子炉で作ったU-233、あるいはU-235で補充しなくてはならない。

Tabelle A.3.1 0.025 eV の中性子に対する核分裂性核種の  
核物理学的定数

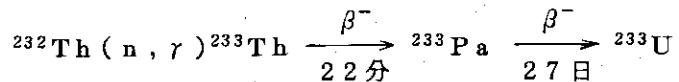
	<sup>233</sup> U	<sup>235</sup> U	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu
$\sigma_f$	531	580	742	1007
$\sigma_c$	47	98	271	368
$\alpha$	0.089	0.169	0.366	0.365
$\eta$	2.284	2.072	2.109	2.149
$\bar{\nu}_t$	2.487	2.423	2.880	2.934

$\alpha$ ：捕獲断面積 $\sigma_c$ と核分裂断面積 $\sigma_f$ との比。

$\eta$ ：吸収された中性子1ヶあたりの有効に放出された中性子の数。

$\bar{\nu}_t$ ：1核分裂あたり放出される平均中性子数。

ウラン-233は次の反応式にしたがってえられる。



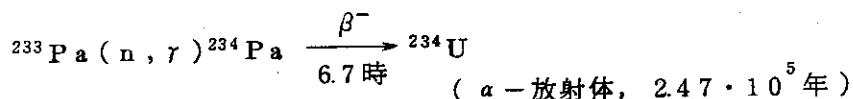
Th-233/U-233-増殖反応の反応式において、中間生成物プロタクチニウム-233<sup>(S5)</sup>は重要な役割りをはたす。これは27日の半減期をもち、U-238/Pu-239反応鎖の

Np-239の半減期の10倍も長い。したがって、次のような結果になる：

—原子炉中で燃料要素を照射していると、トリウムマトリックス中のPa-233の濃度が高

\* [訳註] 再生率  $\eta$

くなる(0.2~2%)。Pa-233自身中性子を捕獲してつぎのように反応する。



この中性子は中性子の全収支から失われてしまう。増殖材中に1%のPa-233が存在すると、上記のような吸収によって10%くらいの中性子が失われる。これによって転換係数は0.1ほど低下する。<sup>(85)</sup>

—Pa-233の半減期が比較的長いので、燃料要素を原子炉から引き抜いたのち、総べてのPa-233をU-233に壊変させてしまうには、化学的再処理をする前に相当長期の貯蔵(270日~1年)が必要になる。

#### 燃料サイクルの説明。

ウラン-プルトニウム-燃料サイクルとトリウム-ウラン-燃料サイクルとでは、Fig.3.1に示されているように、主要操作段階に似ている点が多い。下記にはトリウム-ウラン-サイクルの特殊性を示そう。

#### 高温炉の燃料概念。

トリウム燃料サイクルについての開発努力は主につぎの点に集中されている。

- 閉ざされていない燃料サイクルにおけるU-235とトリウムの利用。
- 閉ざされた燃料サイクルにおいてU-235で核分裂物質の不足分を補完しながら増殖されたU-233をリサイクルさせての利用。

高温炉およびトリウム-ウラン-燃料サイクルの現在の開発状況では、技術的にいってまだ閉ざされた燃料サイクルについて議論できない。主要コンポーネント類も適当な再処理法もあるいは再加工法も今なお開発中である。<sup>(H3, M4)</sup> したがって、80年代後半までは開かれたU-233/T<sub>h</sub>サイクルが標準となろう。その頃までには、高温炉の発電容量もふえ、その再処理も経済的に興味あるものとなろう。<sup>(H5, T2)</sup>

#### 燃料要素。

ガス冷却高温炉の燃料要素は、グラファイトマトリックス中に埋めこまれた多数の燃料粒子からできている。燃料粒子は直径0.2~0.8mmの酸化-(もしくは炭化-)ウランおよびトリウムの小球である。これをまず第一に、きわめて有効な核分裂生成物のとじこめ用にバイロリチックに遊離された炭素(または炭化ケイ素)の層で被覆する(コーテッドパーティクルという)。<sup>(G1)</sup> 両元素の固溶体粒子を用いることもあるが、ウラン粒子とトリウム増殖材粒子とを同時に別々に用いることもある(フィードブリードシステム)。

固溶体粒子ならびにトリウム増殖材粒子は、多孔質のバイロカーボン層、ついでその上を緻密な等方性のバイロカーボン層でおおわれている。フィードブリードシステムのU-235燃焼粒子は原子炉運転中にきわめて高い温度に達するので、核分裂生成物のとじこめをより高める目的で、さらに炭化ケイ素層およびバイロカーボン層でおおう。

核分裂性物質と増殖材を別々の粒子にわけるには、つぎのような種々の根拠がある。<sup>(86)</sup>

- 臨界の制限なしにトリウムを大量に簡便かつ安価に取扱える。

—中性子吸収材であるU-236の生成は主として炭化ケイ素で被覆したU-235粒子だけでおこる。これは再処理の初期工程で分離して取扱うことができる。

いろいろなウラン同位体の相対的生成率は上記の2種の燃料粒子で非常に異なる。U-235燃焼用粒子では原子炉中に4年も入れておいた場合、93%のU-235の濃度は23%くらいに低下する。中性子捕獲により生じたU-236の割合が高いにもかかわらず、もう1回4年間燃料として使える。<sup>(D2)</sup>その後には4~5%U-235および約72%U-236を含む高レベル固体廃棄物として分離される。

増殖材粒子中のウランは主として、生成したU-235(ならびにそれから生じたU-234)からなる。増殖されたU-233を繰返しリサイクルしていると、さらに他のウラン同位体も生成する。平衡サイクルにおいては54%U-233, 29%U-234, 10%U-235および7%U-236に到達する。<sup>(S6)</sup>

#### 再処理。

再処理施設のはじめの工程(ヘッドーエンド)ではつきのことが問題になる。すなわち、1000MWe・年あたり約85トンものグラファイトを重金属から分離しなくてはならないのである。<sup>(H3)</sup>グラファイトを分離する有望な方法は燃焼である。グラファイトマトリックスを燃やすと個々に分れた粒子のパイロカーボン層も同時に燃える。ただしウラン燃焼核の炭化ケイ素層は燃えない。炭化ケイ素層をもった粒子ともたない粒子とではこのように性質が異なるので、機械的に分離する可能性もあれば、裸になった増殖材を選択的に溶解し、まだ炭化ケイ素でおわれている燃焼核を不要残渣として分離する可能性もある。核分裂生成物、トリウムおよびウランをそれぞれのプロセス流れへ分離するには、リン酸トリプチル(TBP)を溶媒として用いる多段抽出プロセスによって行われる(第4.2節参照)。

炭化ケイ素被覆をすりつぶしてしまったのちは、燃焼核も溶解することができ、別々に処理できる。

ウランだけを完全に分離しトリウム部分<sup>\*</sup>はそのまま放射壊変をつづけさせるといいう、いわゆる中間的プロセスがある。<sup>(K10)</sup>“この方法は長期的視野にたつと経済的にみても原則的にみても”成りたたないので、ここでは単に言及するにとどめる。<sup>(M4)</sup>放射性廃棄物の取扱いや貯蔵コストはいちじるしく高くなろう。ただし長期的観点にたって原料確保策を考えるならば、トリウムの再使用はあきらめるべきではない。

#### 加工。

100~1000ppmのウラン-232を含むとすると、U-233の加工はとくに難しいものになる。U-232は半減期71.7年の $\alpha$ -放射体であり、壊変生成物はTh-228(半減期1.9年)である。以下の強放射性壊変生成物の壊変系列、



では、きわめてエネルギーが高く透過力の強い $\gamma$ -量子を放射する核種が出てくる。その上

---

\* [訳註]  $^{233}\text{Pa}$ ,  $^{233}\text{U}$ を含む。

IC, 軽い元素との( $\alpha$ , n)反応により中性子も放射されよう。<sup>(B7)</sup>

したがって、従業員の保護のために、ウランの再加工もトリウムの再加工も、厚い遮蔽をつけ(ホットセル内で)遠隔操作しなくてはならない。Th-288の半減期の10倍、すなわち<sup>(M4)</sup>約20年たつと、トリウムの強い放射能は $10^{-3}$ 倍になり、“取扱い可能範囲”に低下する。これとは対照的に、新たに分離されたU-233の放射能は10年もたつと強くなる。親核種U-232が半減期71.7年でゆっくりと壊変し、娘核種Th-228の濃度が上ってくるからである。

したがって、核分裂物質U-233の加工は再処理直後に遮蔽つきセル内でやってしまうのがよいと思われる(第3章のFig.3.1も参照)。ゾルーゲループロセスによる遠隔操作に適した粒子製造法はオーフリッジ国立研究所<sup>(P1, H7, H10)</sup>およびユーリッヒ核研究センター<sup>(M4)</sup>で開発中である。

Tabelle 2.1 Strategie mit LWR, HTR und SBR (Oxid). Installierte Leistung in GW<sub>e</sub>.

Jahr	Minimale Schätzung				Mittlere Schätzung				Maximale Schätzung			
	Gesamt	HTR	LWR	SBR(Ox)	Gesamt	HTR	LWR	SBR(Ox)	Gesamt	HTR	LWR	SBR(Ox)
1970	1		1		1		1		1		1	
1975	8		8		9		9		10		10	
1980	18	1	17		20	1	19		22	1	21	
1985	32	2	30		36	3	33		40	3	37	
1990	55	7	46	2	63	8	52	3	72	9	60	3
1995	85	13	62	10	105	16	77	12	125	20	91	14
2000	116	19	74	23	155	26	102	27	193	34	127	32
2005	144	26	77	41	222	43	129	50	300	61	179	60
2010	172	33	76	63	316	66	167	83	460	101	257	102

Tabelle 3.1: Auslegungsdaten der 1000 MW<sub>e</sub> Referenzreaktoren bei Lastfaktor 0.8

KFK-2022 (1975)

	DWR <sup>a)</sup>	SWR <sup>a)</sup>	DWR Pu- Rezykl.	SBR <sup>b)</sup> LWR-Pu *	HTR <sup>c)</sup> U-235	HTR <sup>c)</sup> U-233 Rezykl.
<b>ERSTKERN</b>						
Schwermetall (Th+U+Pu)	[t]	78.2	96.5	78.2	17.4/26.1	33.8
Th	[t]					32.3
U	[t]	78.2	96.5	78.2	14.5/26.1	1.5
spaltbares Pu	[t]				2.0/-	
<b>NACHLADUNGEN (Gleichgewicht)</b>						
Schwermetall (Th+U+Pu)	[t]	26.0	32.2	26.0	10.9/14.4	7.6
Th	[t]					7.0
U	[t]	26.0	32.2	25.8	9.1/14.4	0.62
Anreicherung	%	3.3	2.8	2.7	0.25/0.25	93
U-233	[t]					(93)
spaltbares Pu	[t]			0.16	1.3/-	0.17
<b>ABBRAND/STANDZEIT</b>						
Abbrand Core	[Mwd/tSM]	34000	28000	34000	70000	95000
Core + Blanket	[Mwd/tSM]				34000	
Standzeit	[a]	3	3	3	1.6	4
<b>ENTLADUNGEN (Gleichgewicht)</b>						
Th	[t]					6.44
U gesamt	[t]	24.8	30.9	24.8	22.7	0.37
U-235	[t]	0.21	0.28	0.18		0.041
U-233	[t]					0.171
Pu gesamt	[t]	0.25	0.26	0.28	2.0	0.010
Pu spaltbar	[t]	0.17	0.18	0.18	1.5	0.002
						0.003

a) Referenzreaktoren nach Angaben der KWF (1973)

b) basierend auf 2GW<sub>e</sub> Referenzreaktor von INTERATOM-Projekt Schneller Brüter (1973)c) basierend auf 1160 MW<sub>e</sub> Referenzreaktor von GENERAL ATOMIC /D5/

TABELLE 3.2 ELEMENT-KONZENTRATIONEN (G/T SM) VON SPALTPRODUKTEN  
UND ACTINIDEN IN ABGEBRANNTEN BRENNSTOFFEN  
(KUEHLZEIT LWR 150 D, SBR 150 D, HTR 270 D)

KFK-2022(1975)

\*\*\*\*\*

	LWR	LWR	LWR	SBR (OXID) CORE+BLANKET	HTR	HTR
ELEMENT	34 GWD/T 3.3%U-235	45 GWD/T 4.5%U-235	34 GWD/T PU-REZYK	34 GWD/T LWR-PU	95 GWD/T U-235	95 GWD/T U-233 REZYK

	LWR	LWR	LWR	SBR (OXID) CORE+BLANKET	HTR	HTR
ELEMENT	34 GWD/T 3.3%U-235	45 GWD/T 4.5%U-235	34 GWD/T PU-REZYK	34 GWD/T LWR-PU	95 GWD/T U-235	95 GWD/T U-233 REZYK
H-3	0.074	0.095	0.08	0.097	0.13	0.13
HE	0.37	0.54	1.69	1.2	0.29	0.43
KR	382	526	345	287	1820	1990
XE	5590	7450	5610	4170	15200	15000
RE	341	472	305	248	1690	1870
CS	2800	3690	2840	3780	7090	7070
SR	914	1250	818	548	3620	3730
FA	1440	1950	1450	1380	4260	4300
Y	480	653	426	306	1940	2000
LA	1300	1740	1290	1160	3710	3690
CE	2790	3720	2730	2590	9170	8950
PR	1230	1650	1190	974	3800	3870
ND	3990	5400	3890	3460	12000	11700
PM	104	115	106	331	162	169
SM	834	1100	848	970	1850	1790
EU	191	258	205	141	347	331
GD	113	172	128	105	553	499
TB	1.9	2.2	2.4	8.5	0.8	0.8
DY	1.1	1.4	1.5	3.7	0.5	0.5
ZR	3760	5110	3540	3010	12500	12600
NB	12.9	15.2	12.8	20.7	9.7	9.7
MO	3540	4730	3520	3029	9480	9230
TC	863	1140	865	899	2060	1990
RU	2340	3050	2490	3050	4240	3870
RH	391	450	424	909	420	419
PD	1350	1730	1660	2140	1350	1240
AG	62.3	70.9	78.2	212	12.5	14.1
CD	88.4	115	117	127	61.6	64.2
IN	1.2	1.3	1.4	13.5	1.4	1.5
SN	53.5	67.1	62.3	136	96.5	111
SB	17.7	21.9	20.4	51.3	36.2	41.3
SE	53.3	72.4	50.8	58.5	247	278
TE	582	763	619	572	1660	1790
PR	15.7	21.0	15.4	22	81.9	96.8
J	277	357	300	289	835	951
TH					849000	840000
PA					20.3	19.6
U	954000	942000	952000	860000	49000	57600
NP	500	769	376	263	1760	2310
PU	9080	9510	10600	103000	1320	1770
AM	153	208	544	955	38.2	46.1
CM	42.9	72.5	317	21.9	20.7	22.7
SUMME FP	35900	47900	35900	35300	100000	99700
SUMME TU	9776	10560	11837	104244	3139	4149

\*\*\*\*\*

Tabelle 3.3: Klassifikation schwach-, mittel- und hochaktiver flüssiger Abfälle gemäß IAEA-Vorschlag /I1/

Bezeichnung	Kate- gorie <sup>x)</sup>	Aktivität [Ci/m <sup>3</sup> ]	Abschirmung	Bemerkung
-	1	<10 <sup>-6</sup>	-	
schwachaktiv	2	10 <sup>-6</sup> bis 10 <sup>-3</sup>	-	
mittelaktiv	[3	10 <sup>-3</sup> bis 10 <sup>-1</sup>	(+)	
	[4	10 <sup>-1</sup> bis 10 <sup>4</sup>	+	
hochaktiv	5	>10 <sup>4</sup>	++	Kühlung notwendig

<sup>x)</sup> Einteilung der flüssigen Abfälle erfolgt nach der Aktivität

Tabelle 3.4: Klassifikation von festen Abfällen (IAEA-Kategorien /I1/ und eigene Ergänzung)

Bezeichnung	Kate- gorie <sup>x)</sup>	Dosisleistung [R/h]	Abschirmung	Bemerkung
schwachaktiv	1	<0.2	-	
mittelaktiv ( $\beta\gamma$ -Abfälle)	[2	0.2 bis 2	+	keine bedeuten- de $\alpha$ -Aktivität
	[3	>2	+	
$\alpha$ -aktiv	4	$\alpha$ -aktiv	(+)	$\alpha$ -Aktivität [Ci/m <sup>3</sup> ]
mittelaktiv ( $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle)	-	[>0.2 $\alpha$ -aktiv]	++	BE-Hüllmaterial
hochaktiv	-	>20	++	Abbrandpartikel von HTR-Brennstoff

<sup>x)</sup> Einteilung der festen Abfälle erfolgt zur meßtechnischen Vereinfachung nach der Dosisleistung an der Oberfläche der Abfallbehälter (Fässer).

Tabelle 3.5: Geschätzte Plutoniumverluste in den wichtigsten Abfallströmen der Wiederaufarbeitung (Zielvorstellung für  $\geq 1990$ )

Abfallart	% vom Plutoniumdurchsatz	
	Bereich	wahrscheinl. Mittelwert
hochaktiver Abfall	0.2 - 1.0	0.5
Hüll- und Strukturmaterial einschl. Klärrückstände	0.02 - 0.2	0.1
salzarme $\beta\gamma$ -Abfälle	0.03 - 0.3	0.1
salzhaltige $\beta\gamma$ -Abfälle	0.01 - 0.3	0.2
allgemeine feste $\alpha$ -Abfälle	0.001 - 0.3	0.1
Apparate und Teile		0.01
schwachaktiver Abfall	Spuren	Spuren

**Tabelle 3.6:** Mengen fester radioaktiver Abfälle im Brennstoffkreislauf von 1000 MW<sub>e</sub> Reaktoren (nach Literaturangaben)

KFK-2022 (1975)

	LWR	SBR	HTR	ref.
<b>REAKTOR</b>				
1. mittel- und schwachaktive [m <sup>3</sup> /a] βγ-Abfälle [Fässer/a] [m <sup>3</sup> /a]	56 - 112 270 - 540 112	28 - 56 135 - 270 56		{ /U6/ /B8/
<b>WIEDERAUFGARBEITUNG</b>				
2. verfestigte hochaktive [m <sup>3</sup> /a] Abfälle [m <sup>3</sup> Glas/a]	2,5 1,7 - 2,4	2,0 2,0	1,3	/U6/ /d.A./
3. Hüll- und Struktur- material [m <sup>3</sup> /a] [t/a] [m <sup>3</sup> /a] [t/a] [t/a]	1,7 <sup>a)</sup> 7,6 5,7 7,4 10,8	5,5 <sup>a)</sup> 30 64 - 72 23 - 26 16,2		{ /U6/ /B17/ /d.A./
4. Sonstige αβγ-Abfälle [m <sup>3</sup> /a]	123 <sup>b)</sup>	410 - 540	61 <sup>b)</sup>	/B8/
5. α-Abfälle [m <sup>3</sup> /a]	50 <sup>b)</sup>	190	25 <sup>b)</sup>	/B8/
6. βγ-Abfälle [m <sup>3</sup> /a]	200	700	100	/B8/
Typen 4 + 5 + 6 zusammen [m <sup>3</sup> /a] [Fässer/a]	17 - 112 <sup>b)</sup> 30 - 540	56 - 336 270 - 1600		{ /U6/
<b>BRENNELEMENT-REFABRIKATION</b>				
7. α-Abfälle [m <sup>3</sup> /a] [Fässer/a] [m <sup>3</sup> /a]	336 <sup>b)</sup> 1500 370 <sup>b)</sup>	224 1000 1400	184 <sup>b)</sup>	{ /U6/ /B8/
8. βγ-Abfälle [m <sup>3</sup> /a]	(?) 1480 <sup>c)</sup>	(?) 4700 - 5580 <sup>c)</sup>	(?) 743 <sup>c)</sup>	/B8/

a) kompaktiert (auf 70 % theoretische Dichte)

b) Pu bzw. U-233 Rezyklierung angenommen

c) ohne Kompaktierung und ohne Veraschung des brennbaren Anteils

/d.A./ = diese Arbeit

Tabelle 4.1 Zusammensetzung hochaktiver Abfallkonzentrate  
(1250 l/t SM) von LWR- und SBR-Brennstoff  
/S1, P3, B8/ (Spaltprodukte und Actiniden nach  
eigenen Rechnungen)

KFK-2022 (1975)

	Konzentration [ g/t SM ]		SBR <sup>a)</sup>			
	LWR					
<b>Frozeßchemikalien</b>						
<b>Korrosionsprodukte</b>						
Eisen	800	-	1100	2620	-	26200
Nickel	100	-	180	240	-	2400
Chrom	100	-	240	690	-	6900
	1000	-	1520	3550	-	35500
Salpetersäure	78750	-	236250	78750	-	236250
Nitrat	40000	-	50000	163500	-	165250
Phosphat	110	-	900			
	118900	-	287200	242300	-	401500
<b>Lösliche Neutronengifte</b>						
Gadolinium	13000	-	19000			
Borat				98000		
Spaltprodukte	29640			30530		
<b>Transurane</b>						
Neptunium	500	-	376	263		
Americium	153	-	544	960		
Curium	43	-	317	22		
	696	-	1237	1245		
<b>Verluste (0.5 %)</b>						
Uran	4800			4300		
Plutonium	50			510		
	4850			4810		
Metallionen gesamt	49200	-	56250	40140	-	72100
Metalloxide	58950	-	67200	49280	-	94800

a) SBR linke Spalte: 1 % Hüllmaterial gelöst  
SBR rechte Spalte: 10 % Hüllmaterial gelöst

b) LWR linke Spalte: 3,3 % U-235 Gleichgewichtszyklus, 34000 MWd/t  
LWR rechte Spalte: Pu-Rezyklierung; 34000 MWd/t

**Tabelle 4.2:** Volumen des hochaktiven Abfallkonzentrats (HAWC)  
von LWR-Brennstoff bei einer maximalen Wärmeleistung von 16,0 W/l.

	Zeit nach Reaktorentladung				
	150 d	270 d	1 a	2 a	3 a
<b>Abbrand 34 000 MWd/t SM</b>					
Aktivität [MCi/t SM]	4,4	2,8	2,3	1,2	0,81
Wärmeleistung [kW/t SM]	20,8	13,8	11,0	5,8	3,7
HAWC-Volumen [l/t SM]	1300	860	690	360	(230)
<b>Abbrand 45 000 MWd/t SM</b>					
Aktivität [MCi/t SM]	5,4	3,5	2,8	1,6	1,06
Wärmeleistung [kW/t SM]	25,9	17,4	13,9	7,4	5,0
HAWC-Volumen [l/t SM]	1620	1080	870	460	(310)

**Tabelle 4.3:** Mengen und mittlere Zusammensetzung mittelaktiver flüssiger  $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff (unter Berücksichtigung von /B8/)

		flüssige Abfallkonzentrate			
		nicht rezyklierte Verdampfer- konzentrate	Lösungsmittel- wäschen	Dekolösungen	
Salzgehalt	Anfallende Menge /1/t SMJ/ Konzentrationen /g/t SMJ	niedrig 100 - 200	500 - 1000	hoch 500 - 2000	hoch
Natrium		75700	40000 - 80000		
Korrosionsprodukte (Fe,Ni,Cr)	28				
Spaltprodukte		Spuren	Spuren		
Uran	960		1440	480	
Plutonium	10		15	5	
Transurane		Spuren	Spuren		
Salpetersäure	7560				
Nitrat		186000	110000 - 215000		
Carbonat		8700			
Phosphat		Spuren (?)			

**Tabelle 4.4 Mengen und Zusammensetzung der radioaktiven Abfälle bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennstoff, U-233 Rezyklierung /B8/  
Spaltprodukte und Actiniden nach eigenen Rechnungen  
(Abbrand 95.000 MWd/t SM; 270 d Kühlzeit)**

KPK-2022 (1975)

	Feste Abfälle [g/t SM]		Flüssige Abfallkonzentrate [g/t SM]		
	rezyklierte U-235 Partikel	vereinigte Klär-Rückstände	vereinigte Thorex+TBP Spaltprodukte 3785 l/t	vereinigte Thorex+TBP α-Abfälle 95 l/t	Lösungsmittelwäsche 95 l/t
Salzgehalt			niedrig	hoch	hoch
Prozeßchemikalien + Korrosionsprodukte					
Eisen			1510		
Nickel			410		
Chrom			260		
Lithium			150		
Bor			980		
Aluminium			6360		
Natrium			9670	5590	11720
Salpetersäure			240000		
Nitrat			120000	2930	28820
Schwefelsäure			1060	23380	
Fluorid			1850		
Carbonat					1430
Phosphat				2260	
Silikat			510		
Spaltprodukte	3300	6000	72930	Spuren	Spuren
Actiniden					
Thorium		500	(0,5%) 4200	830	1800
Protactinium			20		
Uran	6400	40	(0,5%) 250	220	80
Neptunium	830		1480		
Plutonium	720	2	950	100	2
Americium	22	Spuren	24	Spuren	Spuren
Curium	11	542	12	1150	1882
Hüllmaterial					
Kohlenstoff	15000	2300			
Siliciumcarbid	18000	27300			
Metallionen gesamt	11290	6540	89540	6740	13600
Metalloxide	13380	7950	114000		

**Tabelle 6.1: Zusammensetzung und Menge der Abfalloxide im HLW von LWR- und HTR-Brennstoff**

	LWR [kg/t SM]	HTR [kg/t SM]
nichtflüchtige Spaltprodukte	29,7	82,3
Actiniden Th		(1 %) 8,5
U (0,5 %)	4,8	(1 %) 0,52
Np	0,50	1,76
Pu (0,5 %)	0,05	(100 %) 1,28
Am, Cm	0,20	0,07
Korrosionsprodukte (Fe,Ni,Cr)	1,52	2,18
Metalle insgesamt ca.	36,8	96,6
umgerechnet in Oxide ca.	45,0	117,6
lösliches Neutronengift Gd	16,0	
gesamte Oxide ca.	63,5	

**Tabelle 6.2: Actinidenkonzentrationen in den verfestigten hochaktiven Abfällen (5 Jahre nach der Aufarbeitung)**

	LWR		HTR	
	[g/kg HLW]	[Ci/kg HLW]	[g/kg HLW]	[Ci/kg HLW]
Th			(1 %) 17,9	0,005
Pa			0,04	0,004
U (0,5 %)	26,7	$10^{-4}$	(1 %) 1,10	0,011
Np	2,77	0,11	3,70	0,016
Pu (0,5 %)	0,28	3,0	(100 %) 2,67	42,5
Am	0,85	1,2	0,12	0,18
Cm	0,24	12,9	0,04	2,65

Tabelle 6.3: Jährlicher hochaktiver Wasteanfall einer  
1500 jato Wiederaufarbeitungsanlage (LWR-  
Brennstoff, 34000 MWD/t SM, /H6/ ohne und  
mit Gadolinium als Neutronengift).

		Flüssige Zwischenlagerung [Jahre]			
		1	3	5	10
Aktivität	[MCi/a]	2550	1070	700	490
thermische Leistung	[MW/a]	12.3	4.7	2.9	1.7
Abfallmenge					
Oxide ohne Gd	[t/a]	67.5	67.5	67.5	67.5
Glas	[m³/a]	308	118	98	98
Oxide mit Gd	[t/a]	95.3	95.3	95.3	95.3
Glas	[m³/a]	308	135	135	135

Tabelle 7.1: Erforderliche gesamte Actinidenabtrennung in  
Prozent zur Reduzierung des hazard index von  
HLW<sup>a)</sup> nach 1000 Jahren auf 5 % von Pechblende<sup>b)</sup>  
(C4, B2O).

	DWR-U <sup>c)</sup>	DWR-Pu <sup>c)</sup>	SBR <sup>d)</sup>	HTR <sup>e)</sup>
Th				99,5
Pa				95
U	99,9	99,9	99,9	99,99
Np	95	95	70	95
Pu	99,95	99,99	99,99	99,9
Am und Cm	99	99,9	99,9	95
Reduktion des hazard index	110	400	240	270

a) Basis: 99,9 % Spaltprodukt-Jod abgetrennt

b) Pechblende mit 60 % Urangehalt

c) Abbrand 33000 MWD/t SM; HLW-Volumen 56 l

d) Abbrand 41200 MWD/t SM; HLW-Volumen 84 l

e) Abbrand 94300 MWD/t SM; HLW-Volumen 168 l

Tabelle 7.2: Reduktionsfaktoren des Toxizitätsindex bei fortgesetzter Rezyklierung der Transurane nach Claiborne /C1/

	Zerfallszeit [Jahre]					
	$10^2$	$10^3$	$10^4$	$5 \cdot 10^4$	$10^5$	$10^6$
<b>Abtrennung der Actiniden (U,Np,Pu,Am,Cm,Bk,Cf) je 99,5 %</b>						
o. Rezyklierung	12	15	19	23	28	52
5.	"	6,8	6,6	7,5	14	17
10.	"	5,8	4,7	5,8	14	17
20.	"	5,1	3,8	4,9	14	17
<b>Abtrennung der Actiniden (U,Np,Pu,Am,Cm,Bk,Cf) je 99,9 %</b>						
O. Rezyklierung	57	73	89	110	137	256
5.	"	32	31	36	67	83
10.	"	27	22	27	67	83
20.	"	-	18	22	66	82

Tabelle 7.3 Eigenschaften langlebiger Plutonium- und Curiumisotope /C2, N1/

Nuklid	Halbwertszeit [Jahre]	Neutronenwirkungsquerschnitte	
		Einfang $\sigma_c$ /barns/	Spaltung $\sigma_f$ /barns/
$^{242}\text{Pu}$	$3,87 \times 10^5$	18,5	< 0,2
$^{244}\text{Pu}$	$8,26 \times 10^7$	1,7	0
$^{246}\text{Cm}$	4820	1,3	0,17
$^{247}\text{Cm}$	$1,56 \times 10^7$	60	90
$^{248}\text{Cm}$	$3,61 \times 10^5$	4	0,34

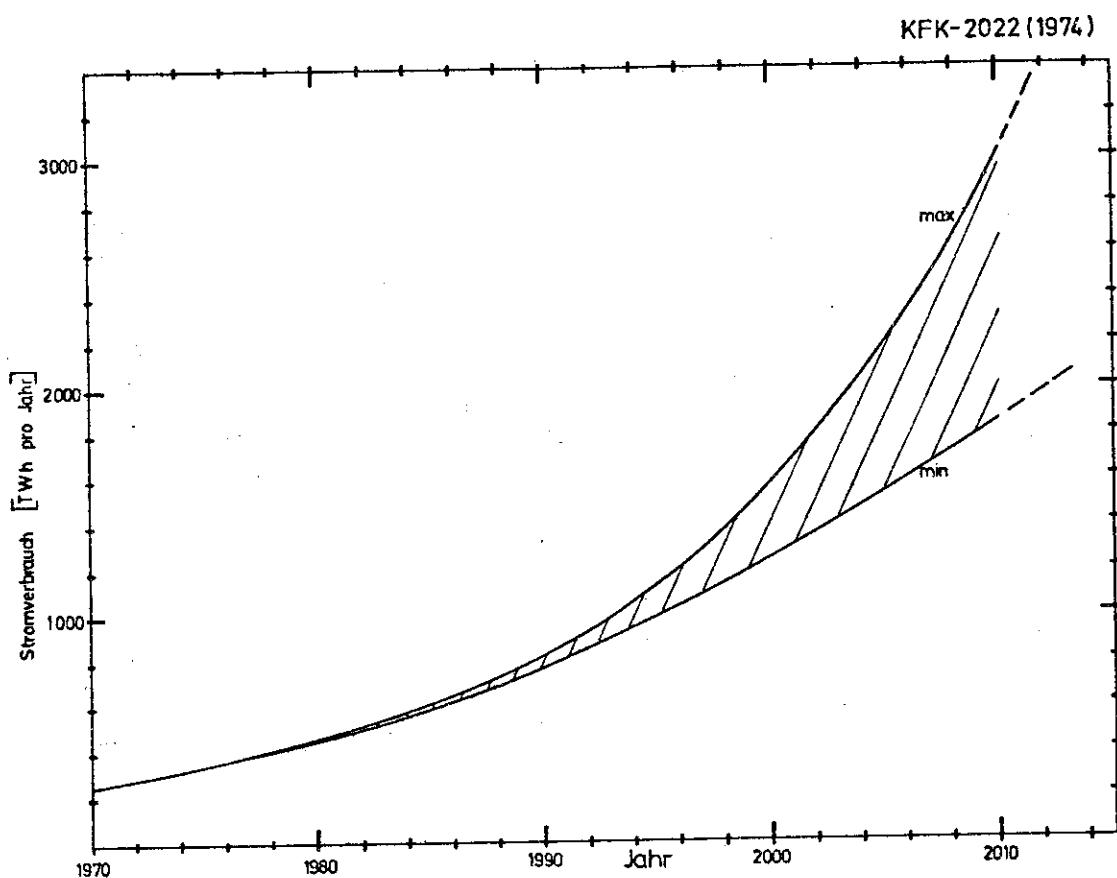


Fig. 2.1 Stromerzeugung in der BRD

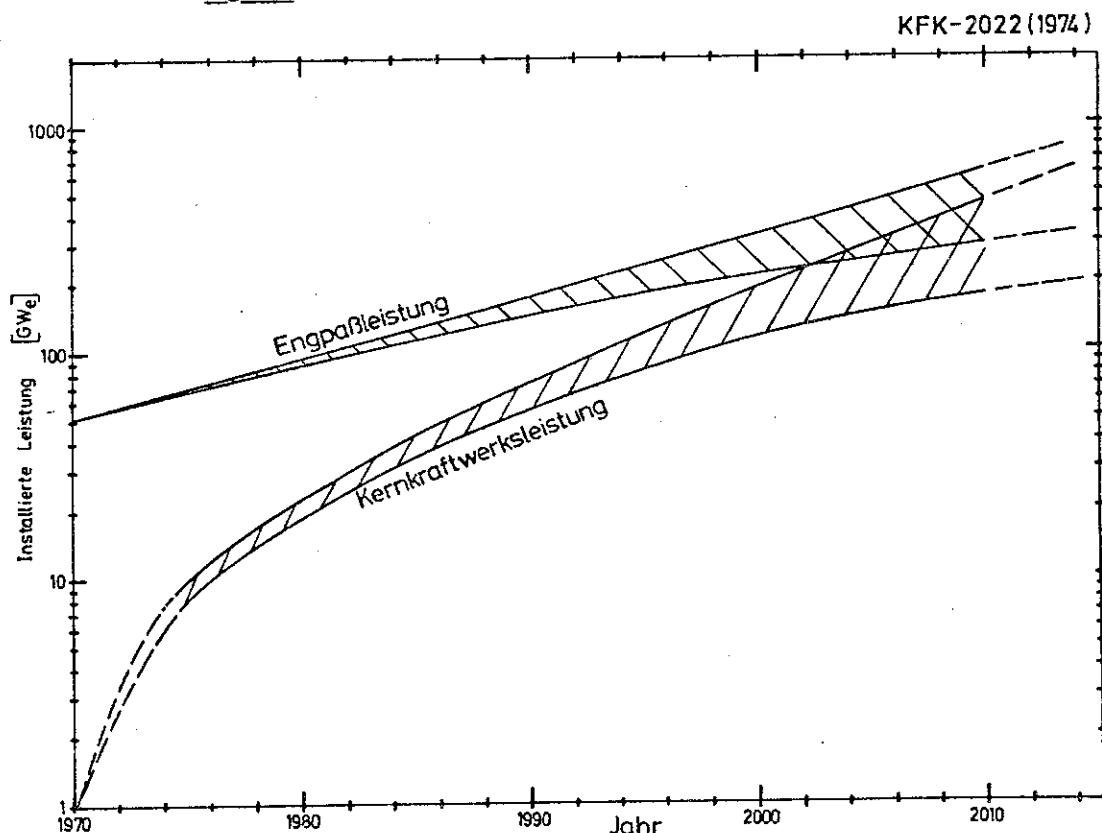


Fig. 2.2 Instalierte Engpaßleistung und Kernkraftwerksleistung in der BRD

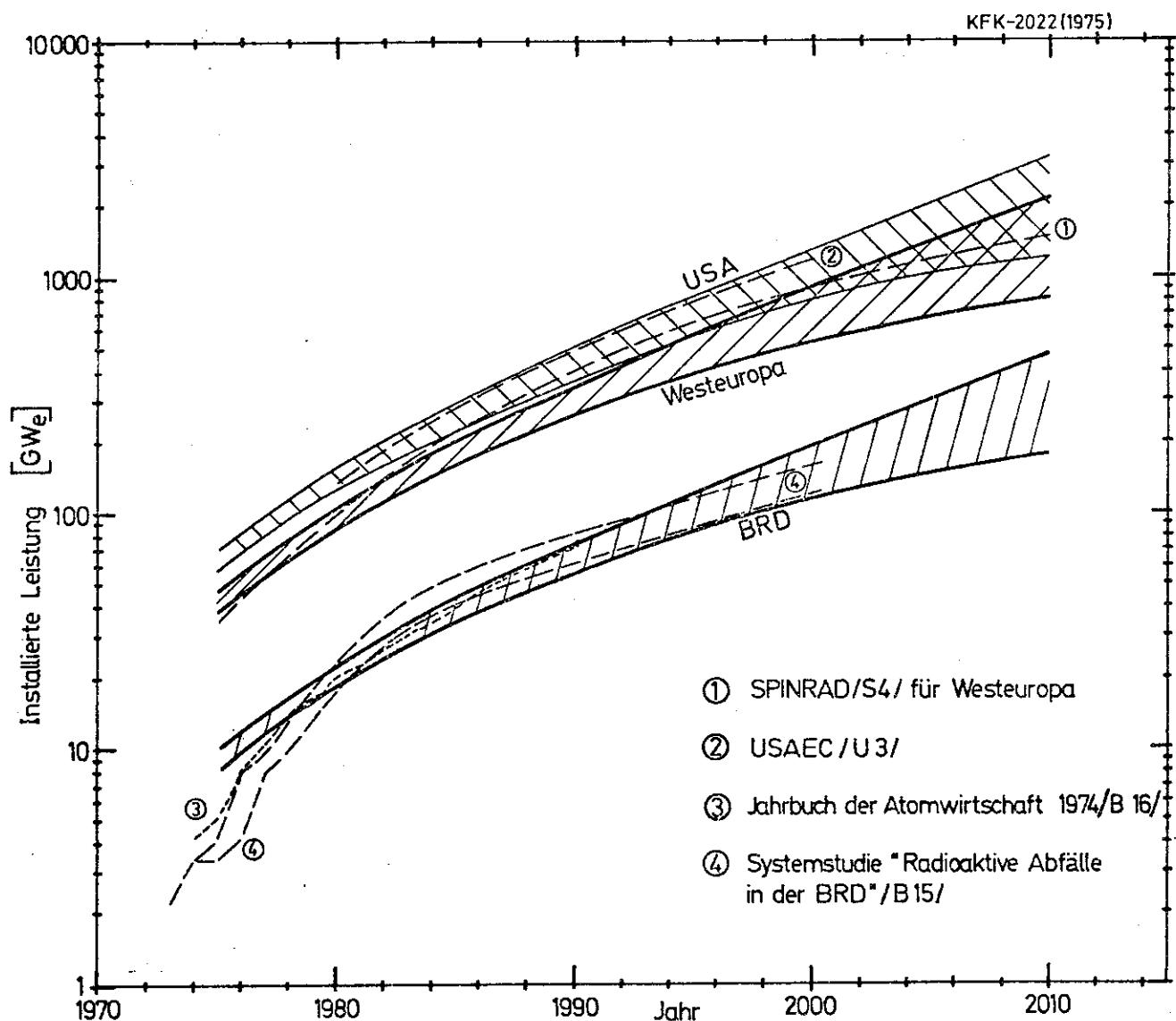


Fig. 2.3 Instalierte Kernkraftwerksleistung in der BRD, in WEST-EUROPA und in den USA

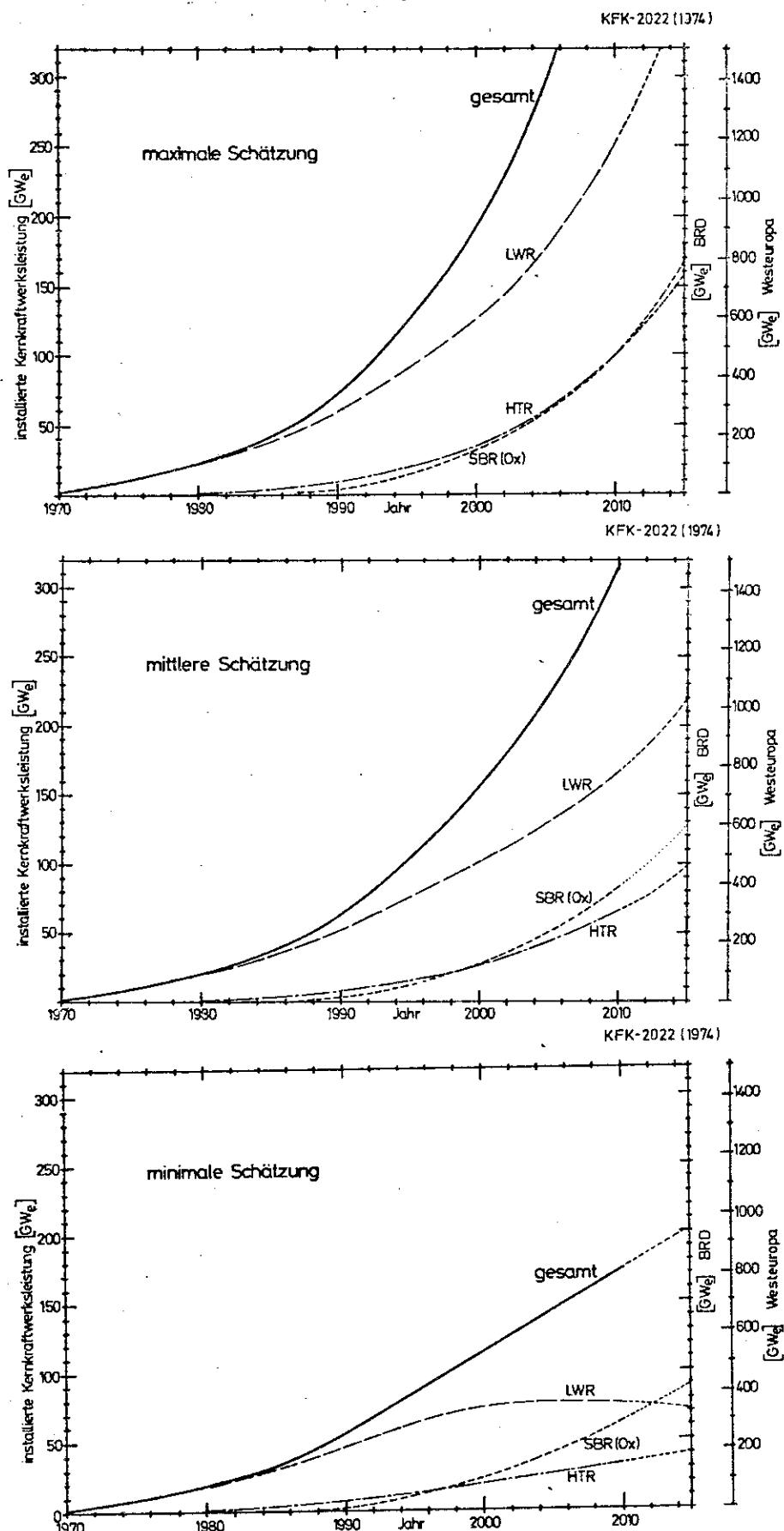


Fig. 2.4 Installierte elektrische Kernkraftwerksleistung und Anteil einzelner Reaktortypen

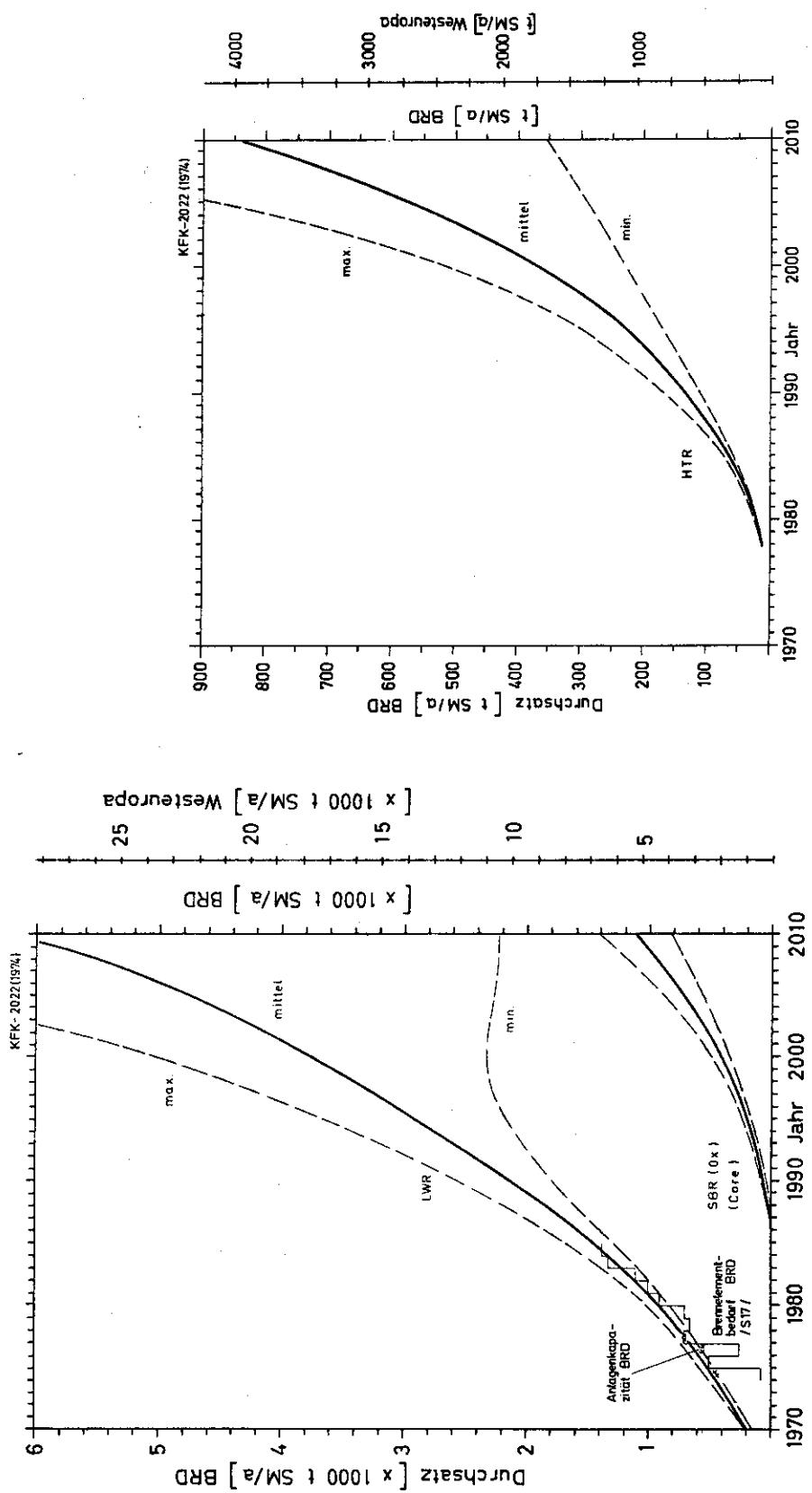


Fig. 2.5 Jährlich erforderliche Brennstofffabrikation im Uran - Plutonium - Zyklus für minimale, mittlere und maximale Schätzung für die BRD und Westeuropa

Fig. 2.6 Jährlich erforderliche Brennstofffabrikation im Thorium - Uran - Zyklus für minimale, mittlere und maximale Schätzung für die BRD und Westeuropa

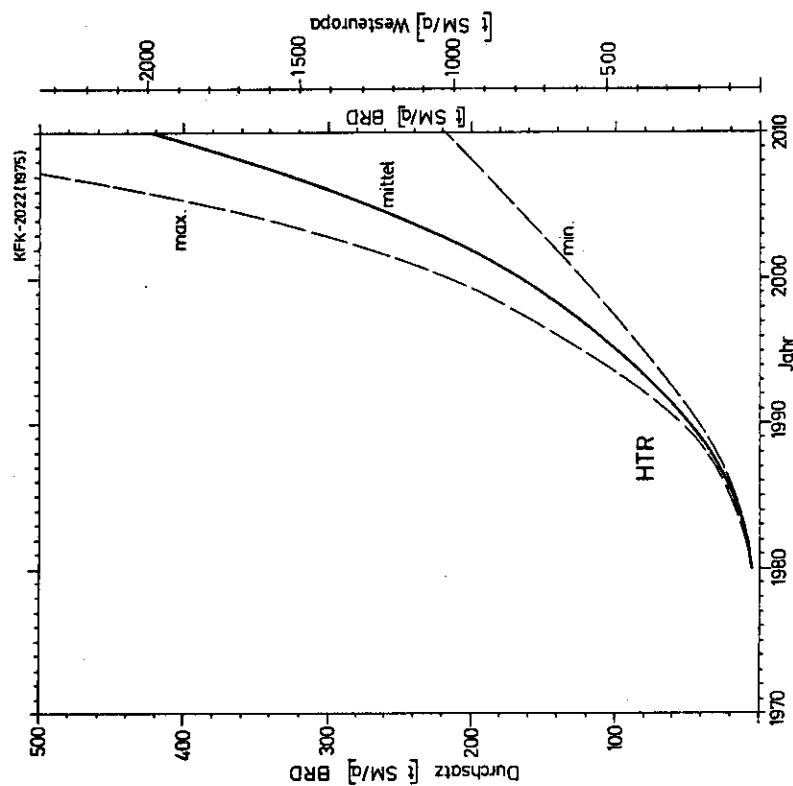


Fig. 2.8 Jährlicher Bedarf an Wiederaufarbeitungskapazität im Thorium-Uran-Zyklus bei minimaler, mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

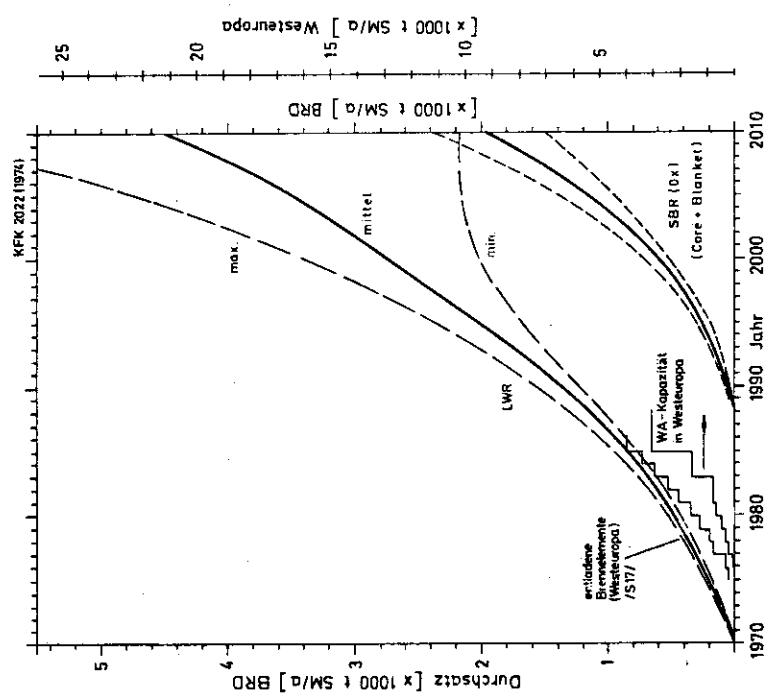


Fig. 2.7 Jährlicher Bedarf an Wiederaufarbeitungskapazität im Uran - Plutonium - Zyklus für minimale, mittlere und maximale Schätzung für die BRD und Westeuropa

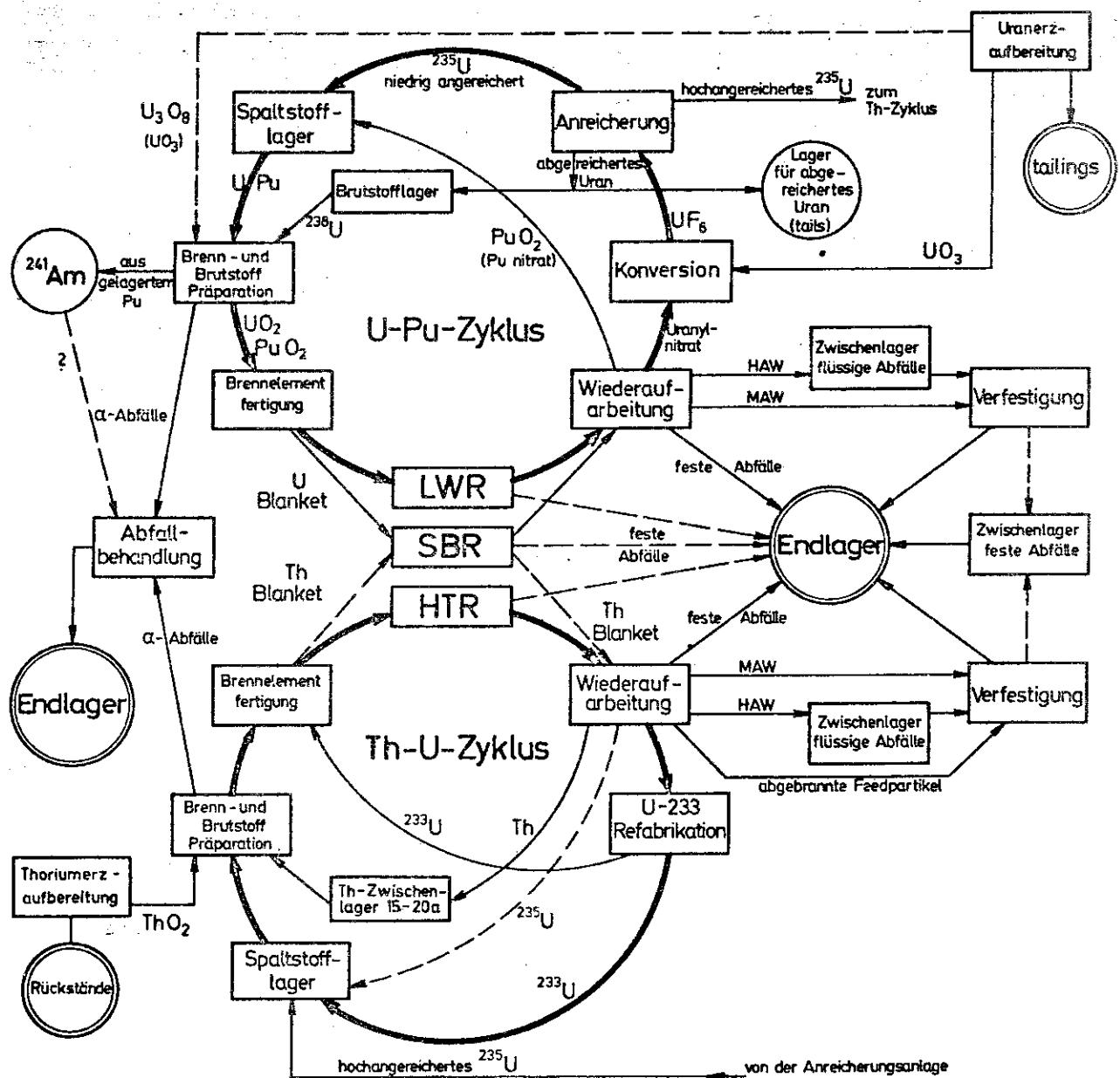


Fig. 3.1 Die Kernbrennstoffkreisläufe

KFK-2022 (1974)

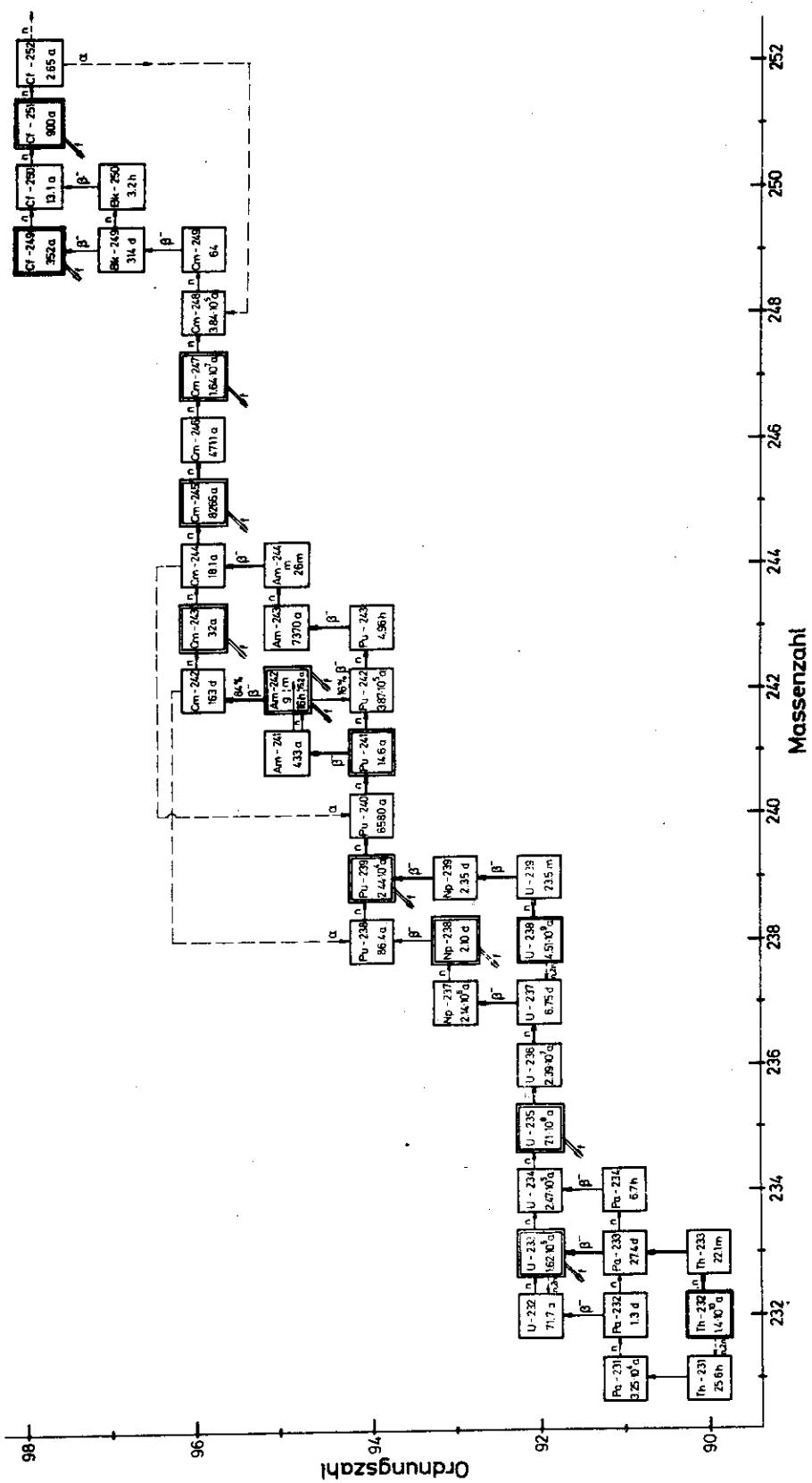


Fig. 3.2 Aufbau von Isotopen der Actiniden  
durch Reaktorneutronen

KFK-2022 (1974)

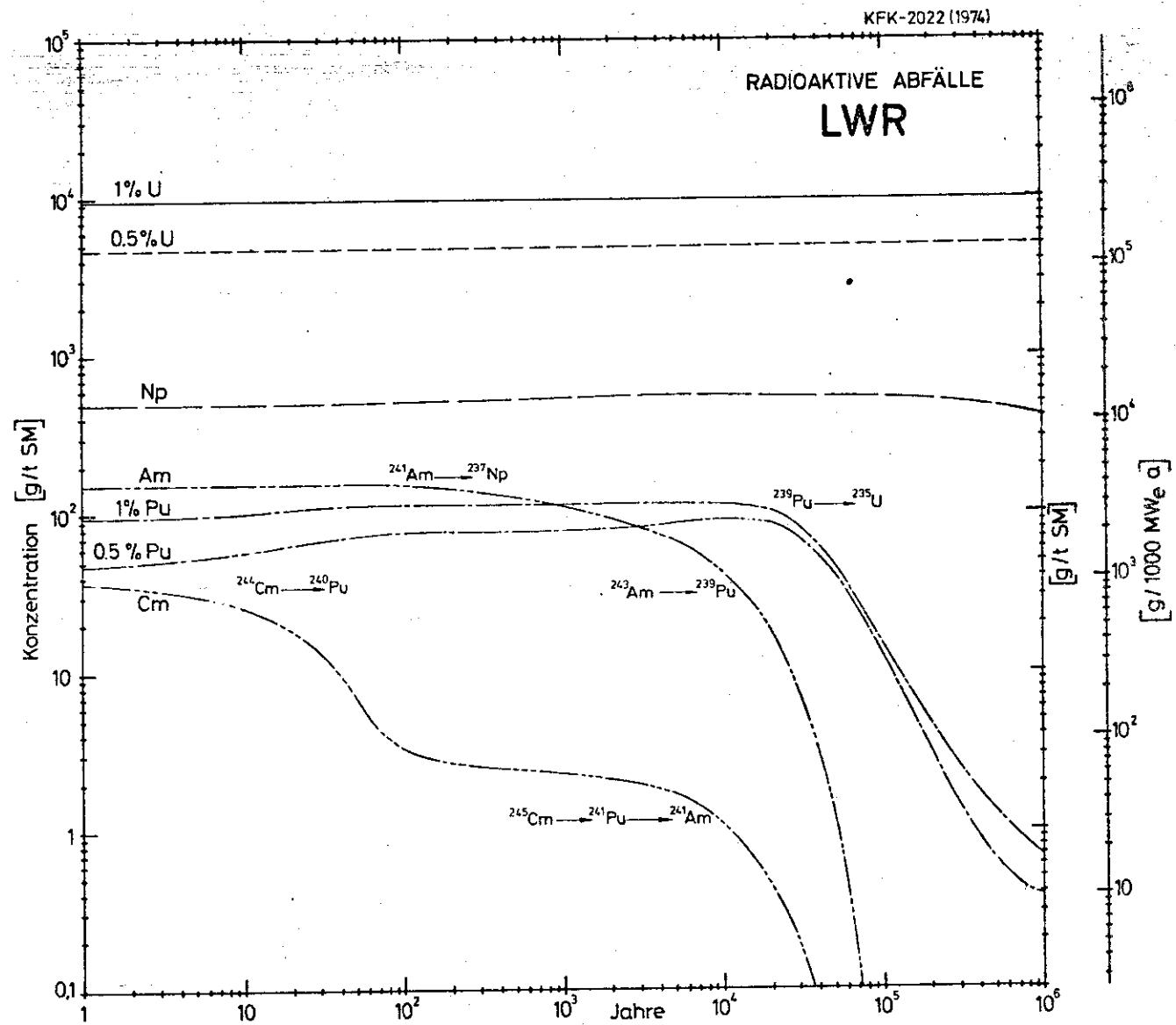


Fig. 3.3 Konzentration von Actiniden im radioaktiven Abfall von LWR-Brennstoff  
3.3 % U-235 Gleichgewichtszyklus, Abbrand 34 000 MWd/t SM;  
Wiederaufbereitung nach 150 Tagen Kühlzeit;  
Verluste 1% U und 1% Pu bzw. 0.5 % U und 0.5 % Pu

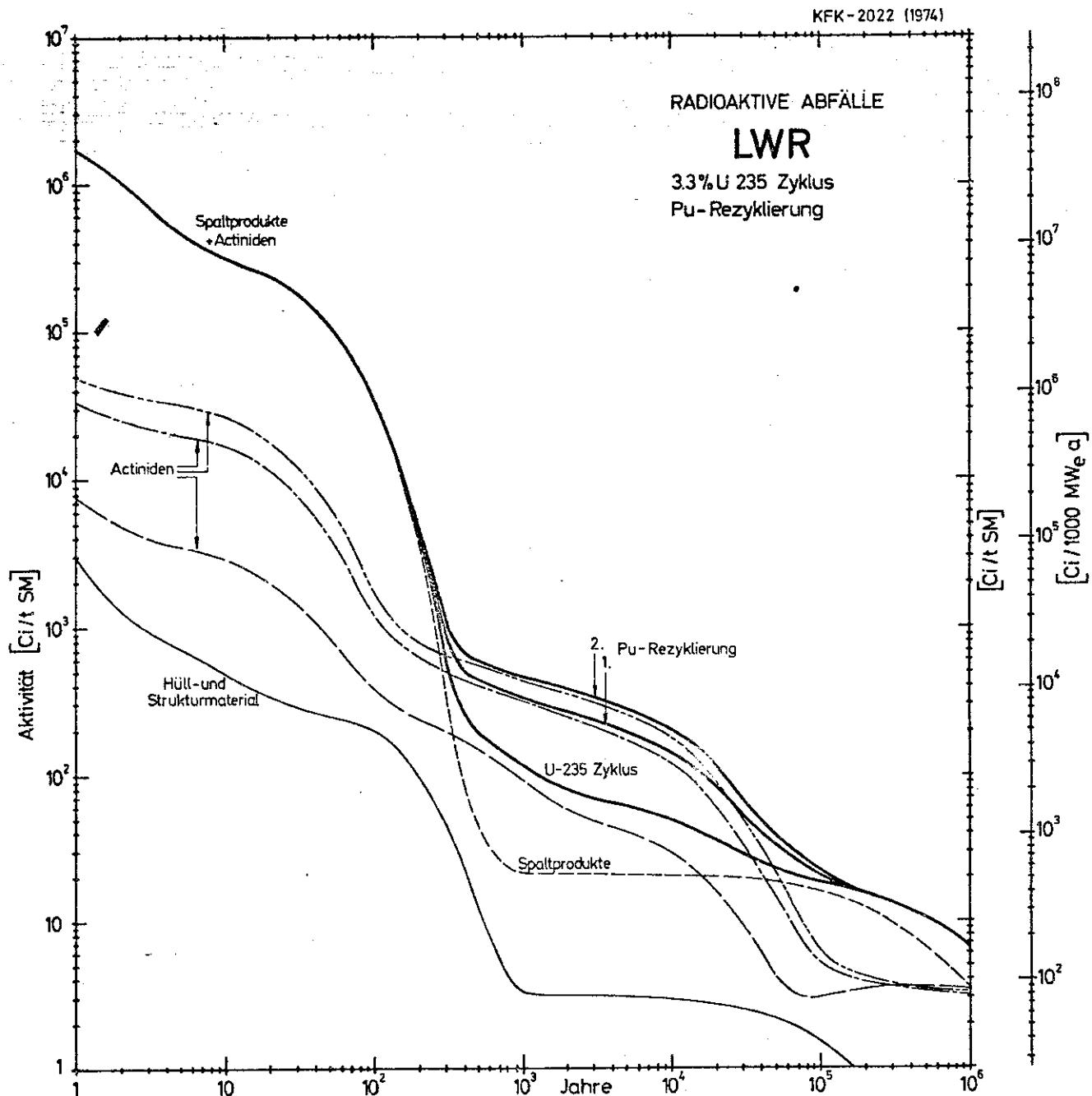


Fig.3.4 Aktivität von Spaltprodukten, Actiniden und Hüll- und Strukturmaterial im radioaktiven Abfall von LWR-Brennelementen (U-235; 1.u. 2. Pu-Rezyklierung, Abbrand je 34000 MWd/t SM), Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit. Verlust: 1% Pu und 1% U

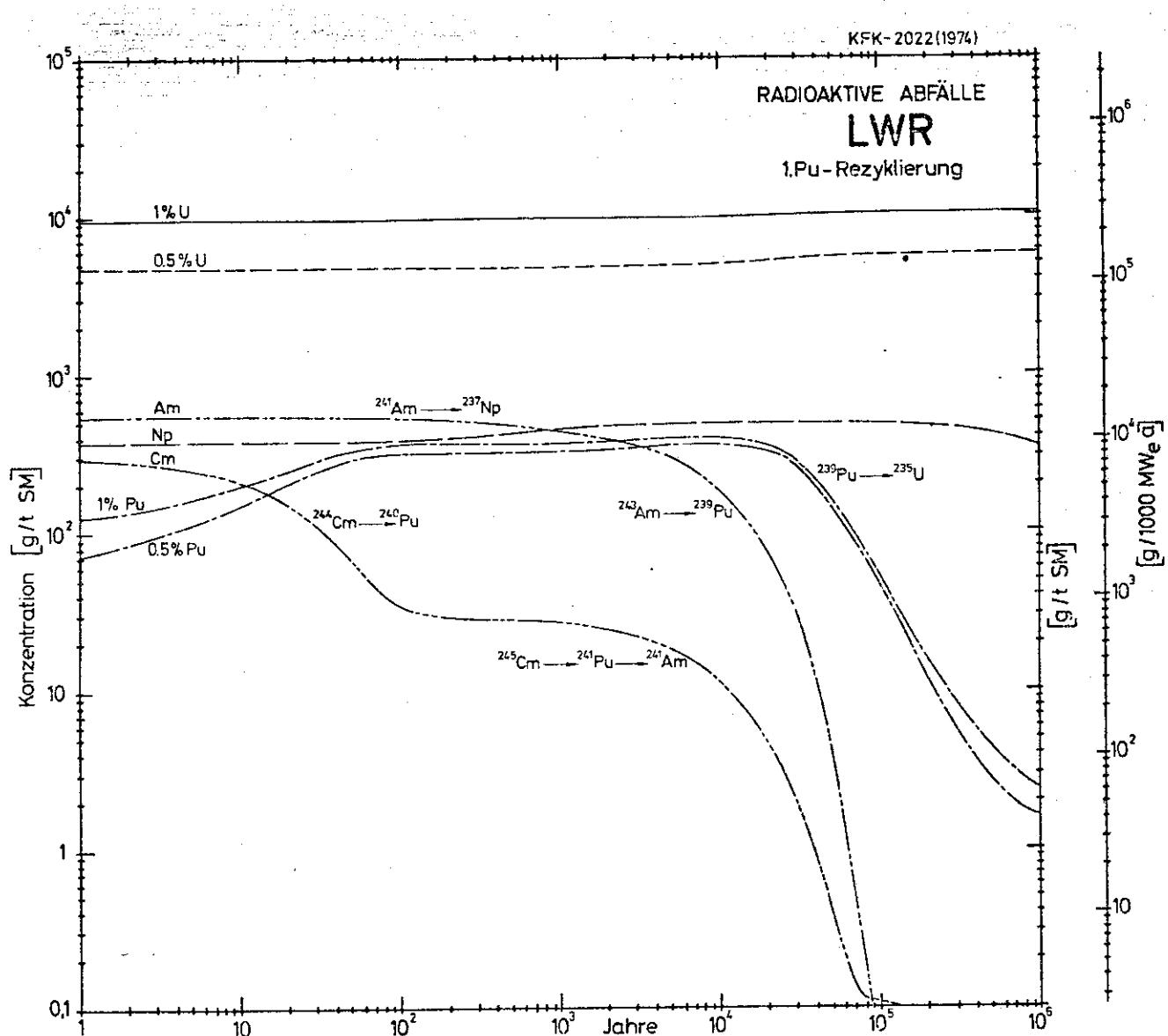


Fig.3.5 Konzentration von Actiniden im radioaktiven Abfall von LWR-Brennstoff bei  
1. Plutonium-Rezyklierung, Abbrand 34000 MWd/t SM,  
Wiederaufbereitung nach 150 Tagen Kühlzeit, Verluste: 1% U und 1% Pu bzw. 0.5% U u. 0.5% Pu

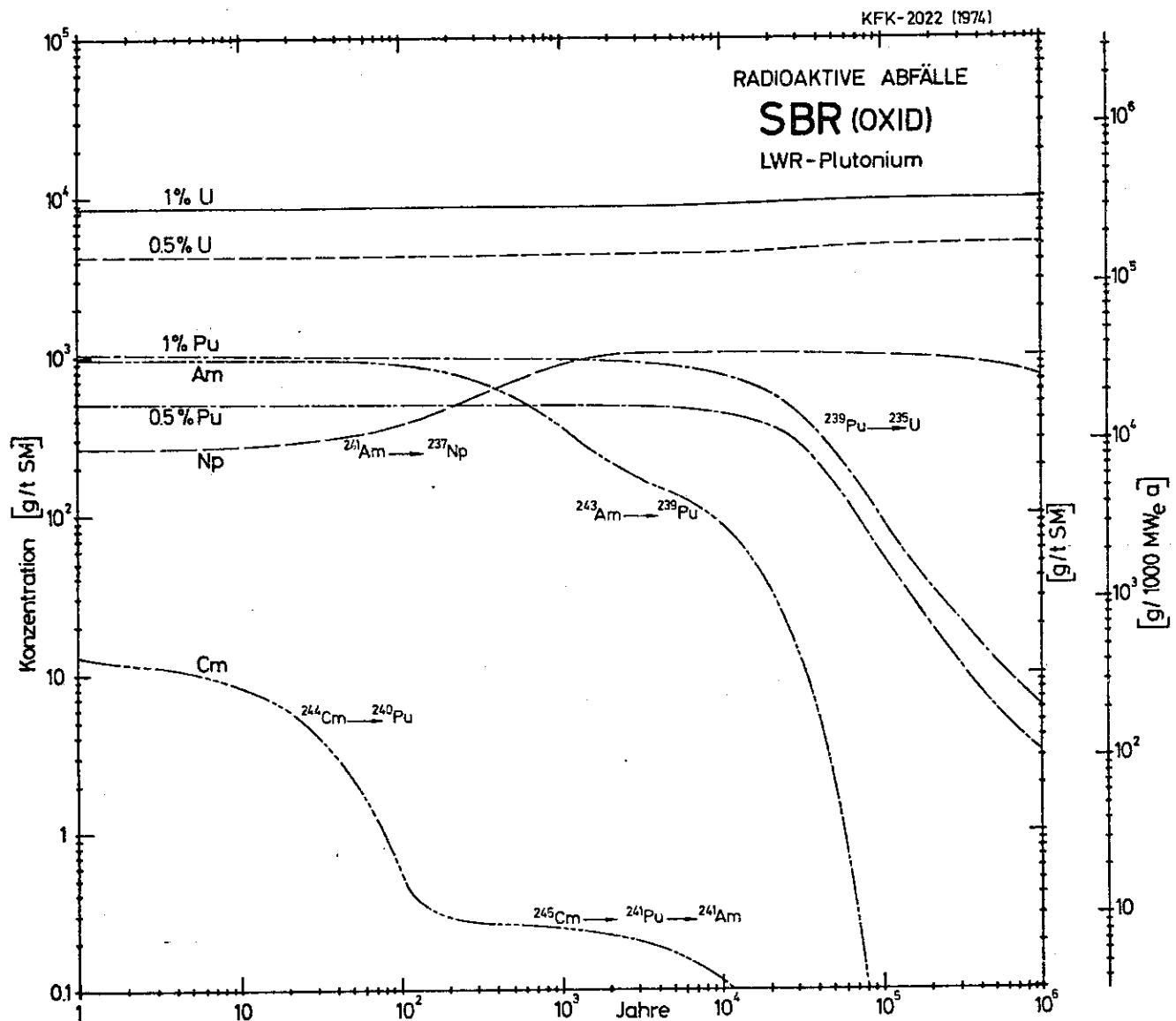
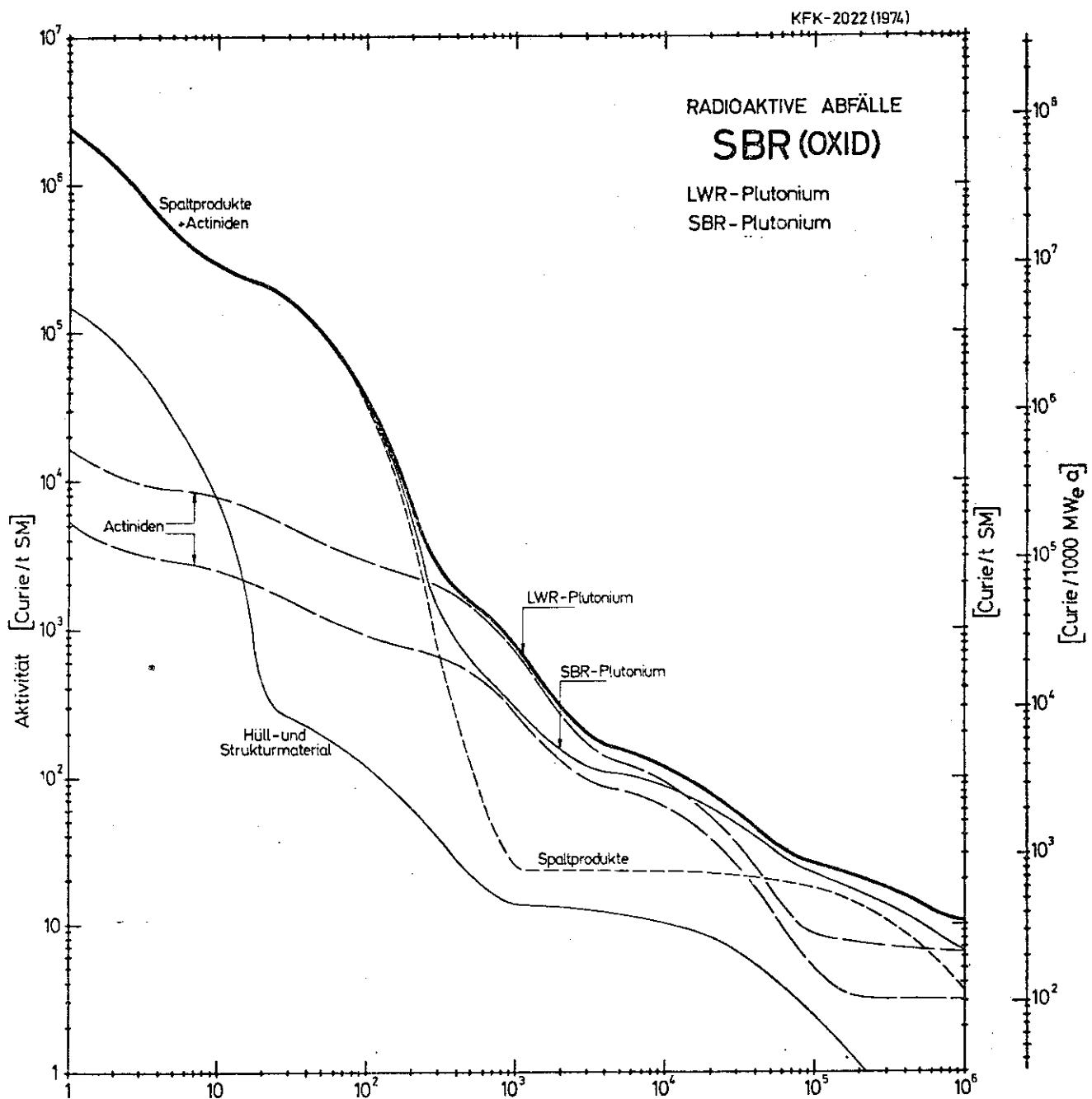


Fig. 3.6 Konzentration von Actiniden im radioaktiven Abfall von SBR-Brennstoff mit LWR-Plutonium, Abbrand von Core + Blanket 34000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit; Verluste: 1% U und 1% Pu bzw. 0.5% U und 0.5% Pu



**Fig. 3.7 Aktivität von Spaltprodukten, Actiniden und Hüll- und Strukturmaterial im radioaktiven Abfall von SBR-Brennelementen (LWR-/SBR-Plutonium)**  
**Abbrand von Core+Blanket 34000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit.**  
**Verlust: 1% Pu und 1% U**

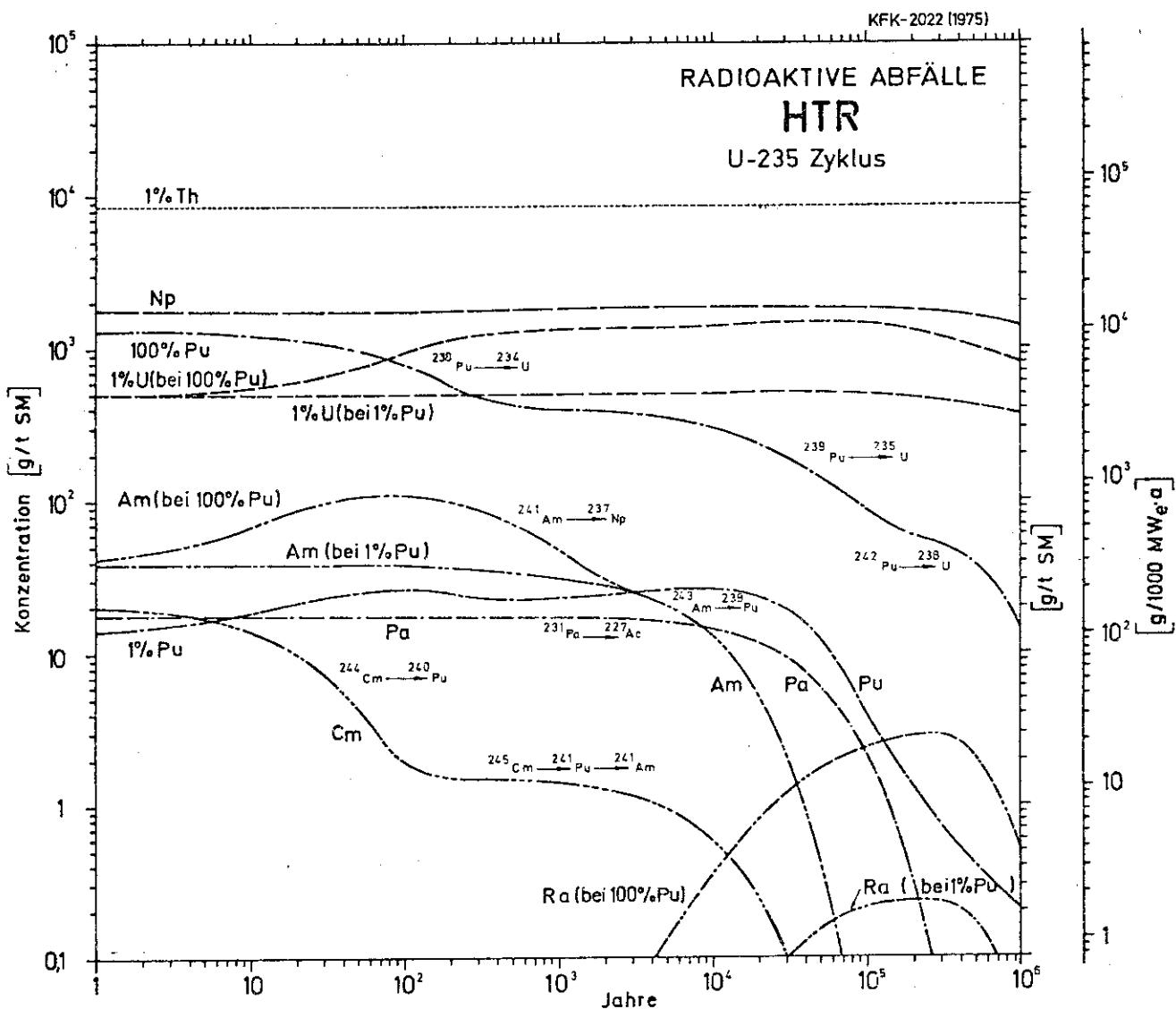


Fig. 3.8 Konzentration von Actiniden im hochaktiven Abfall von HTR-Brennstoff (93% U-235); Abbrand 95000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit; Verluste : 1% Th, 1% U, 1% Pu oder 100% Pu.

KFK - 2022 (1975)

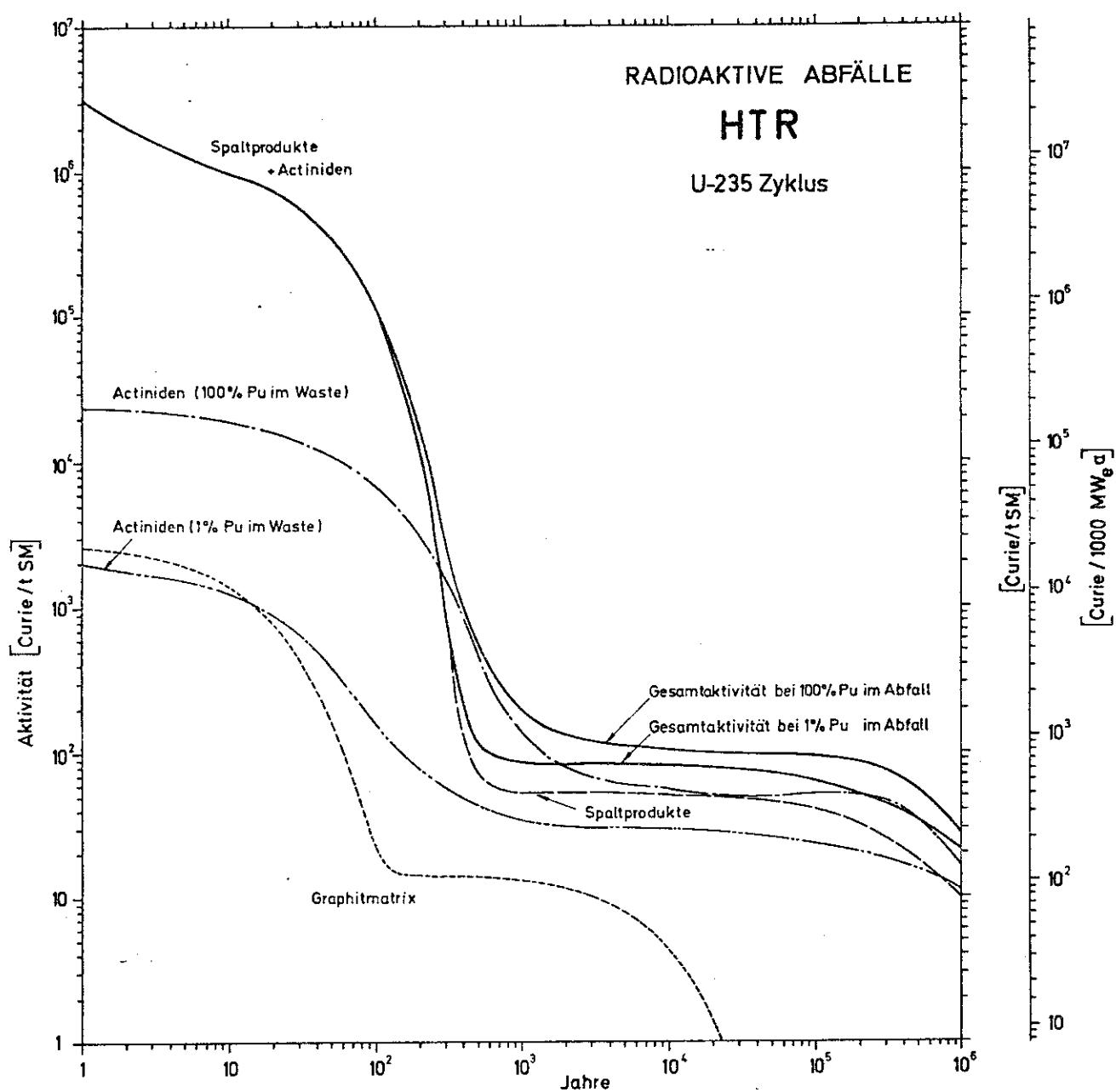


Fig. 3.9 Aktivität von Spaltprodukten, Actiniden und Graphitmatrix im radioaktiven Abfall von HTR-Brennstoff (93% U-235).  
 Abbrand 95000 MWd/t SM  
 Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit  
 Verluste 1% Th, 1% U, 100% Pu (oder 1% Pu) im hochaktiven Abfall.

KFK 2022 (1975)

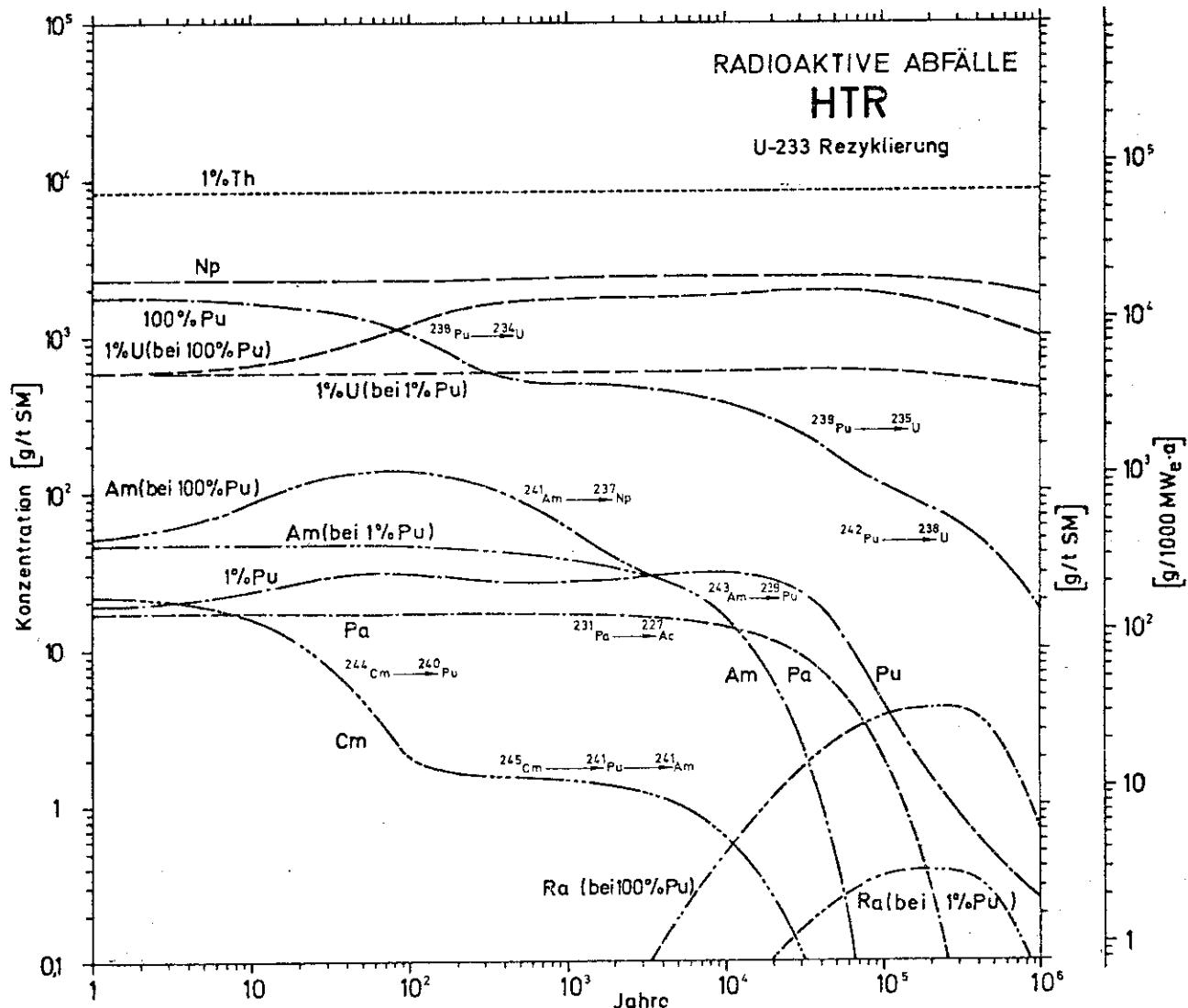


Fig. 3.10 Konzentration von Actiniden im hochaktiven Abfall von HTR-Brennstoff mit U-233 Rezyklierung; Abbrand 95000 MW d/t SM; Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit; Verluste: 1% Th, 1% U, 1% Pu oder 100% Pu.

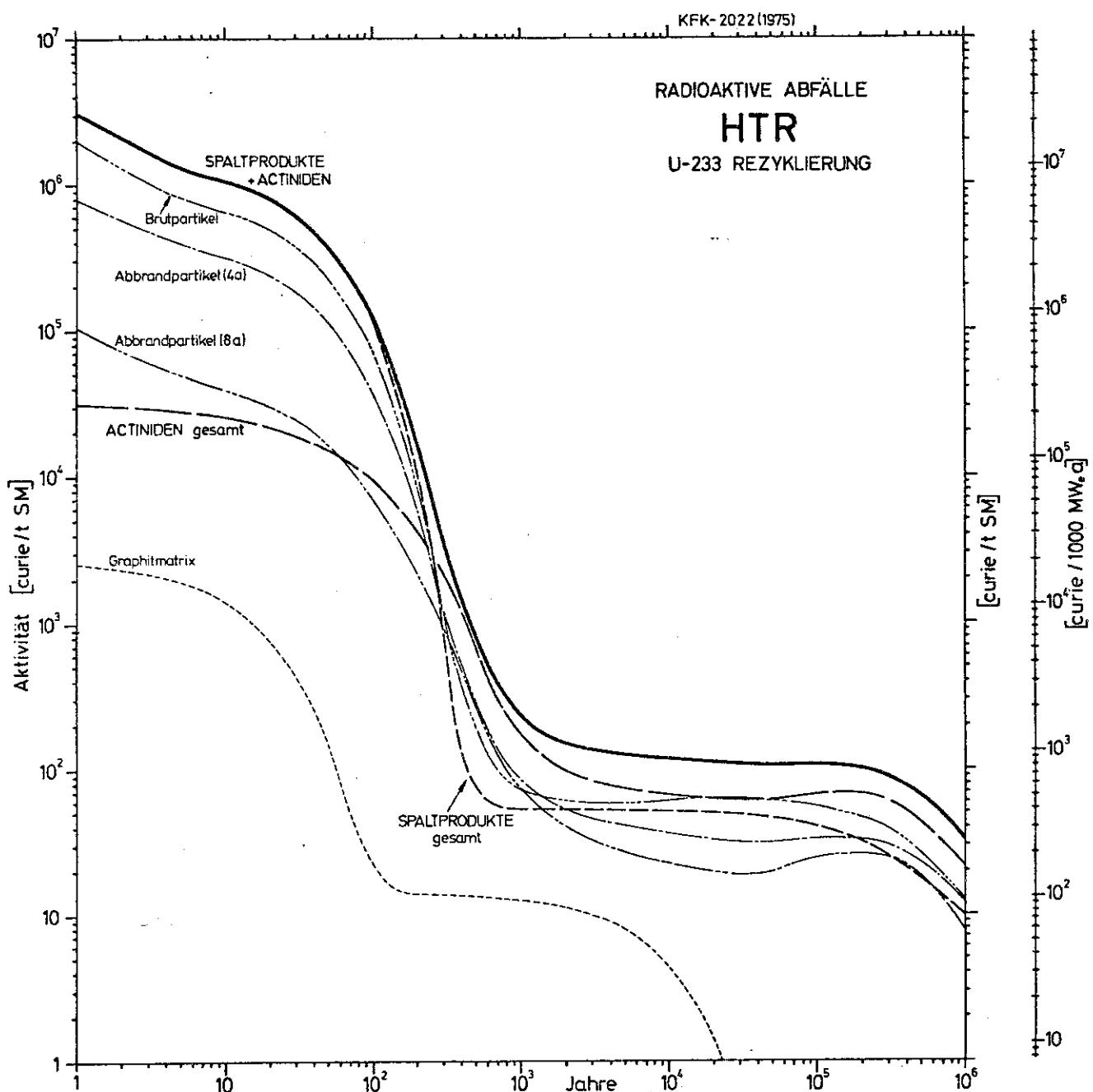


Fig. 3.11 Aktivität von Spaltprodukten, Actiniden und Graphitmatrix im radioaktiven Abfall von HTR-Brennstoff mit U-233 Rezyklierung. Abbrand 95000 MWd/t SM  
Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit  
Verluste : 1% Th, 1% U; 100% Pu im hochaktiven Abfall

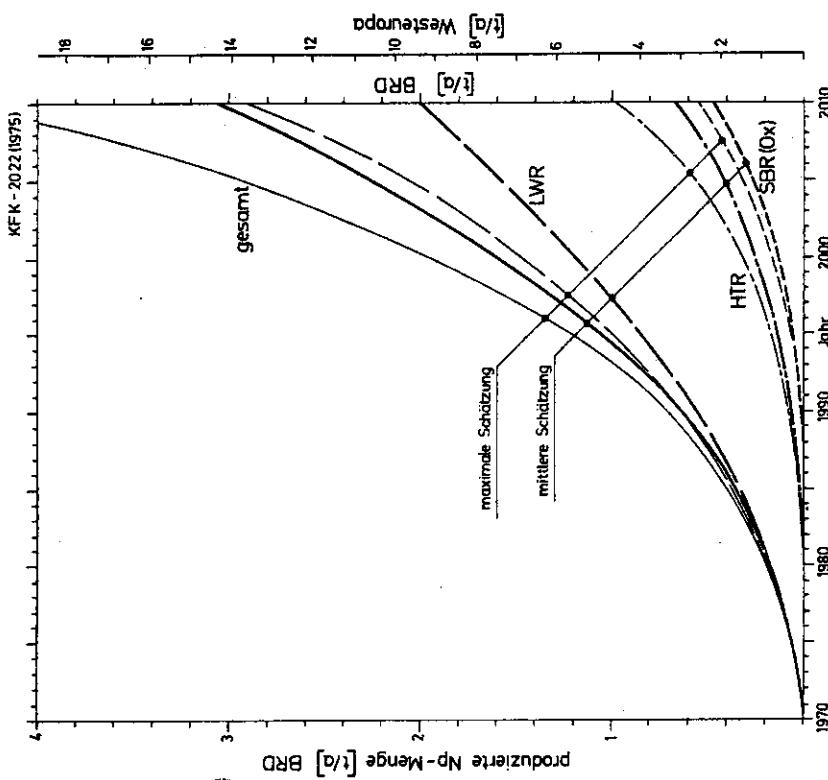


Fig. 3.13 Neptuniumproduktion pro Jahr bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

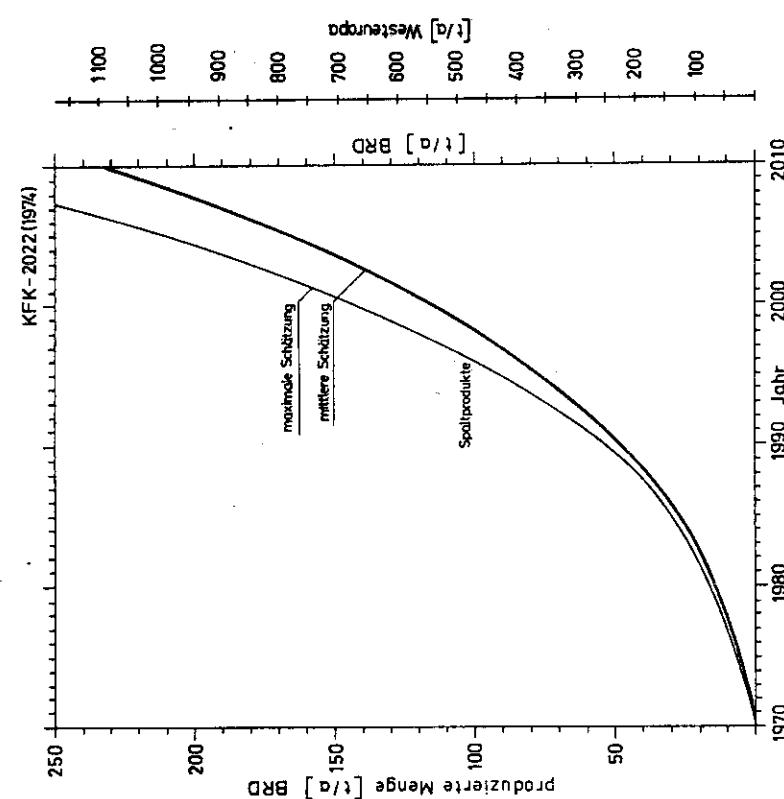
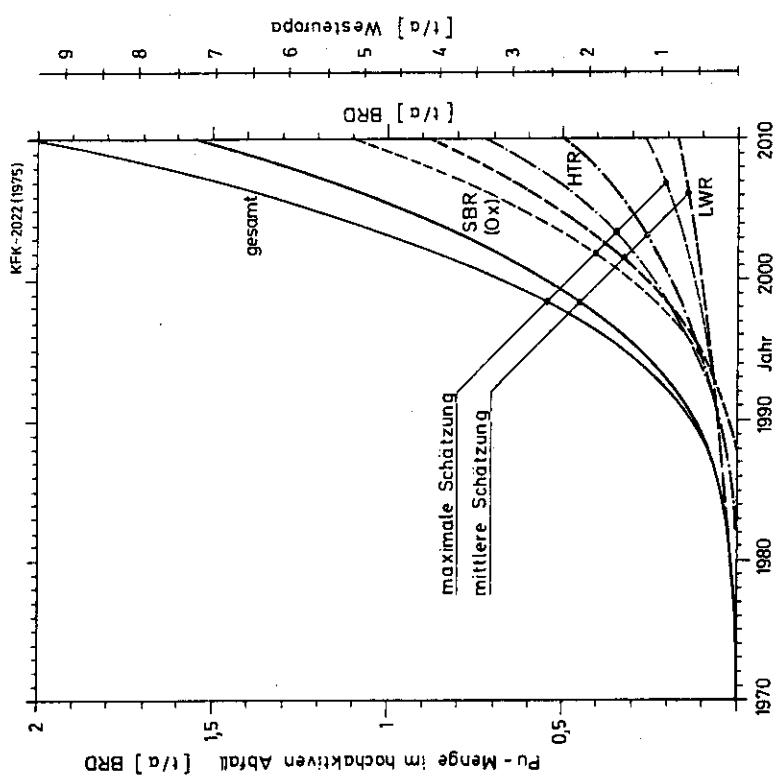
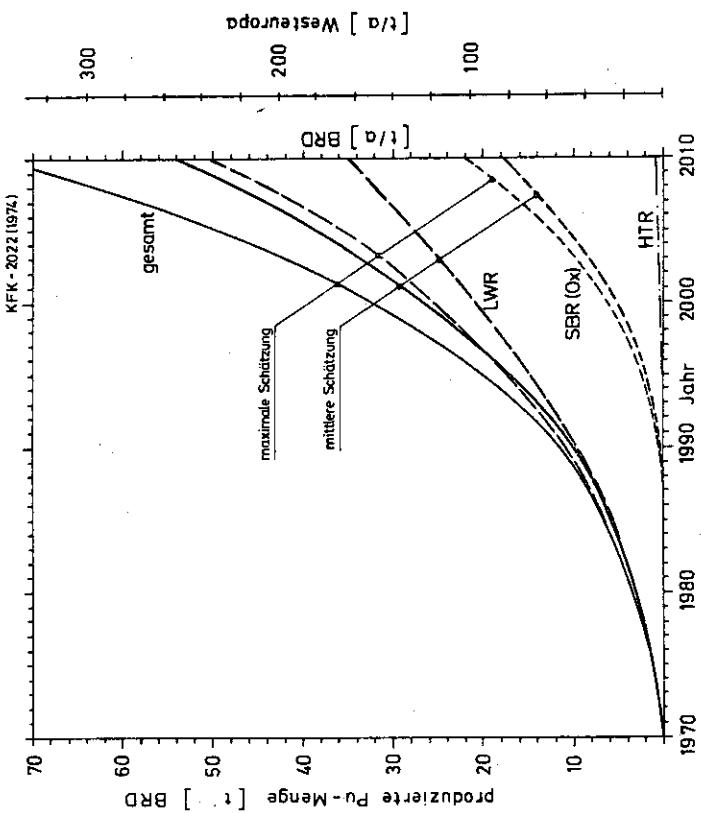


Fig. 3.12 Jährliche Produktion an nicht-gasförmigen Spaltprodukten bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa



**Fig. 3.15** Jährliche Menge Plutonium im hochaktiven Abfall bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa  
Im Uran-Plutonium-Zyklus 0,5% Pu Verlust, im Thorium-Uran-Zyklus 100% Pu im Waste



**Fig. 3.14** Jährliche Plutoniumproduktion bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

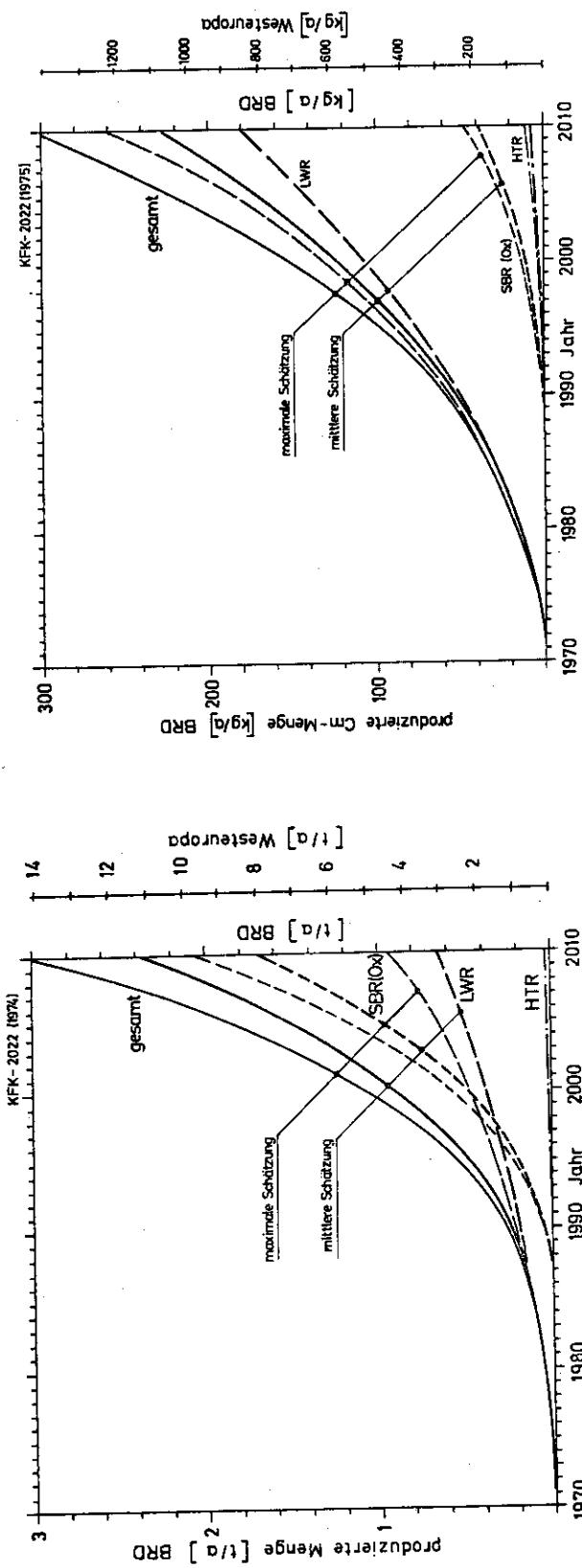


Fig. 3.16 Jährliche Produktion an Americium bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa  
Fig. 3.17 Jährliche Produktion an Curium bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

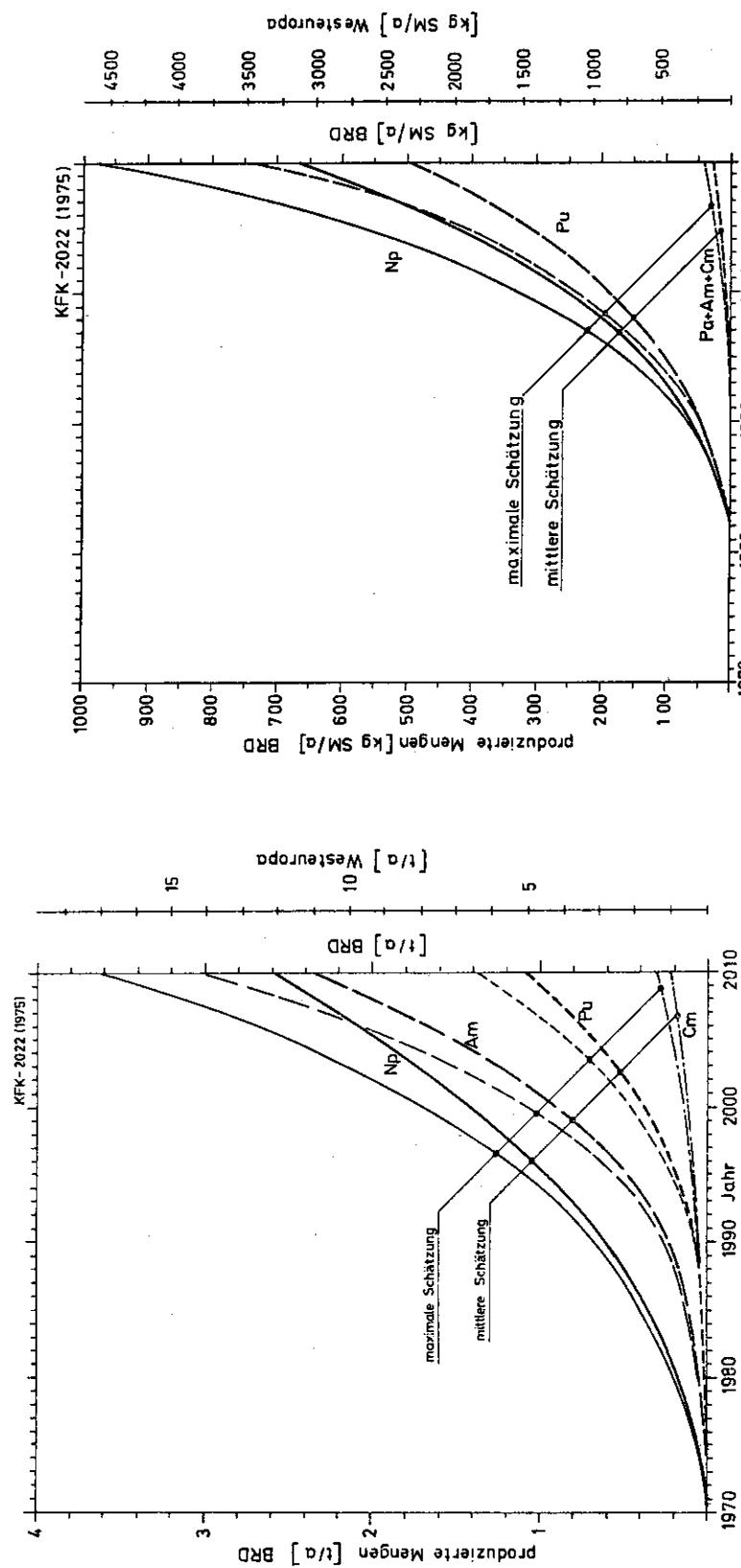


Fig. 3.18 Jährliche Mengen an Neptunium, Plutonium, Americium und Curium im hochaktiven Abfall des Uran-Plutonium-Zyklus bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

Fig. 3.19 Jährlich produzierte Abfallmengen an Neptunium, Plutonium, Americium, Curium und Protactinium im Thorium-Uran-Zyklus bei mittlerer und maximaler Schätzung

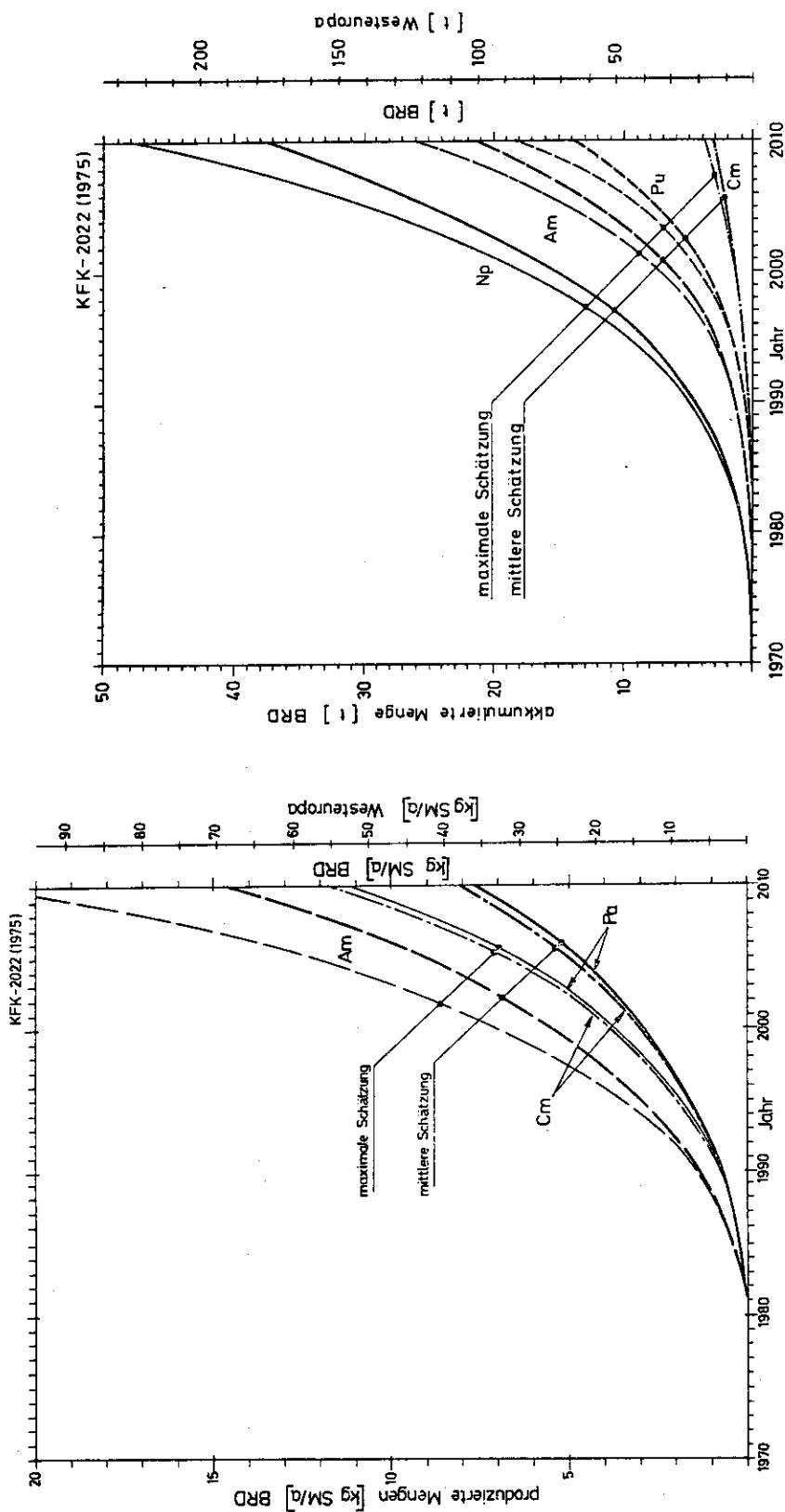
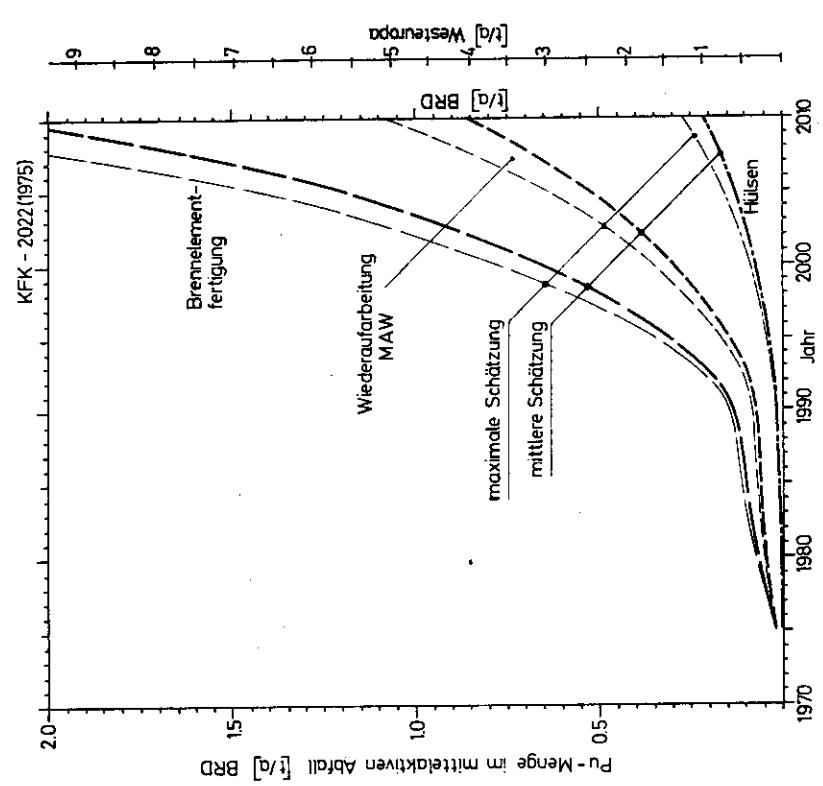


Fig. 3.20 Jährliche Produktion an Protactinium, Americium und Curium im Thorium-Uran-Zyklus bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

Fig. 3.21 Akkumulierte Mengen Neptunium, Plutonium, Americium und Curium im hochaktiven Abfall bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa



**Fig. 3.22** Jährliche Menge Plutonium im mitteldaktiven Abfall bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa.  
 Brennelement - Refinierung MAW 10 % Pu-Verlust  $\geq$  1990 (3 % 1970)  
 Wiederaufarbeitung MAW 0.4 % Pu-Verlust  $\geq$  1990 (2% 1970)  
 Hülsenabschritte 0.1 % Pu-Verlust

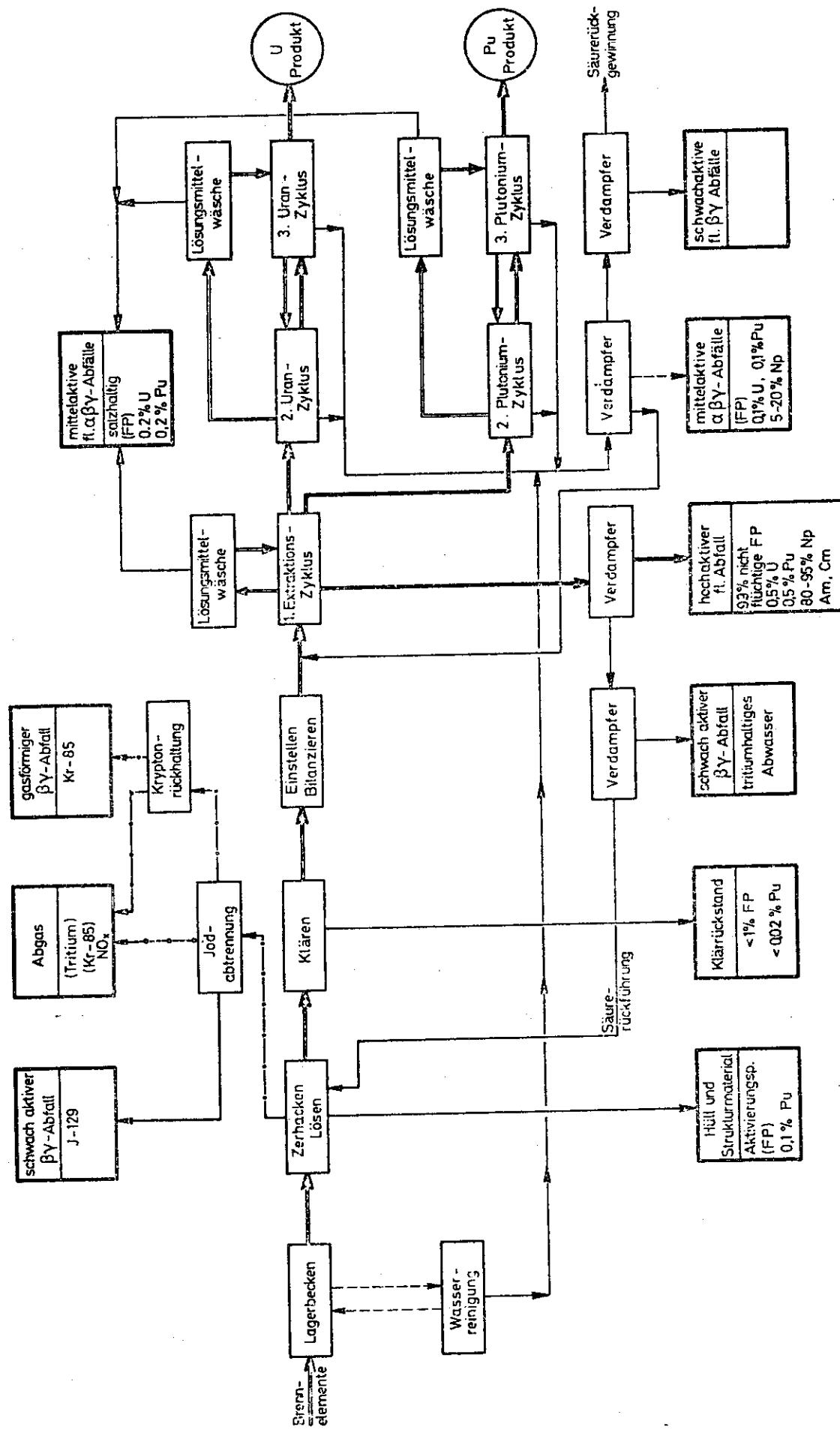


Fig. 4.1 Schematisches Fließbild des PUREX-Prozesses für LWR-Brennstoff-Aufarbeitung  
KFK-2022 (1974)

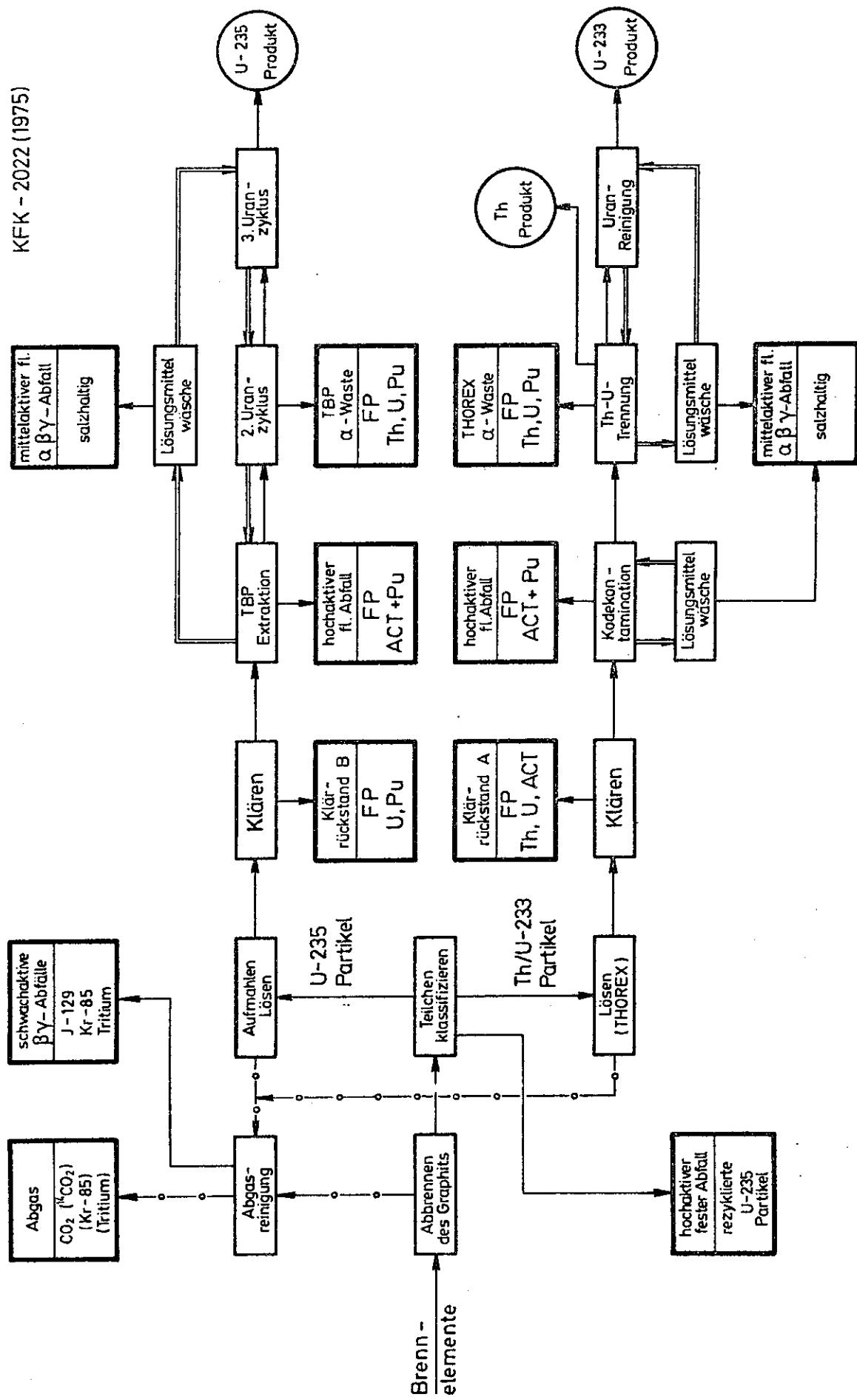


Fig. 4.2 Schematisches Fließbild der Wiederaufarbeitung von HTTR - Brennstoff

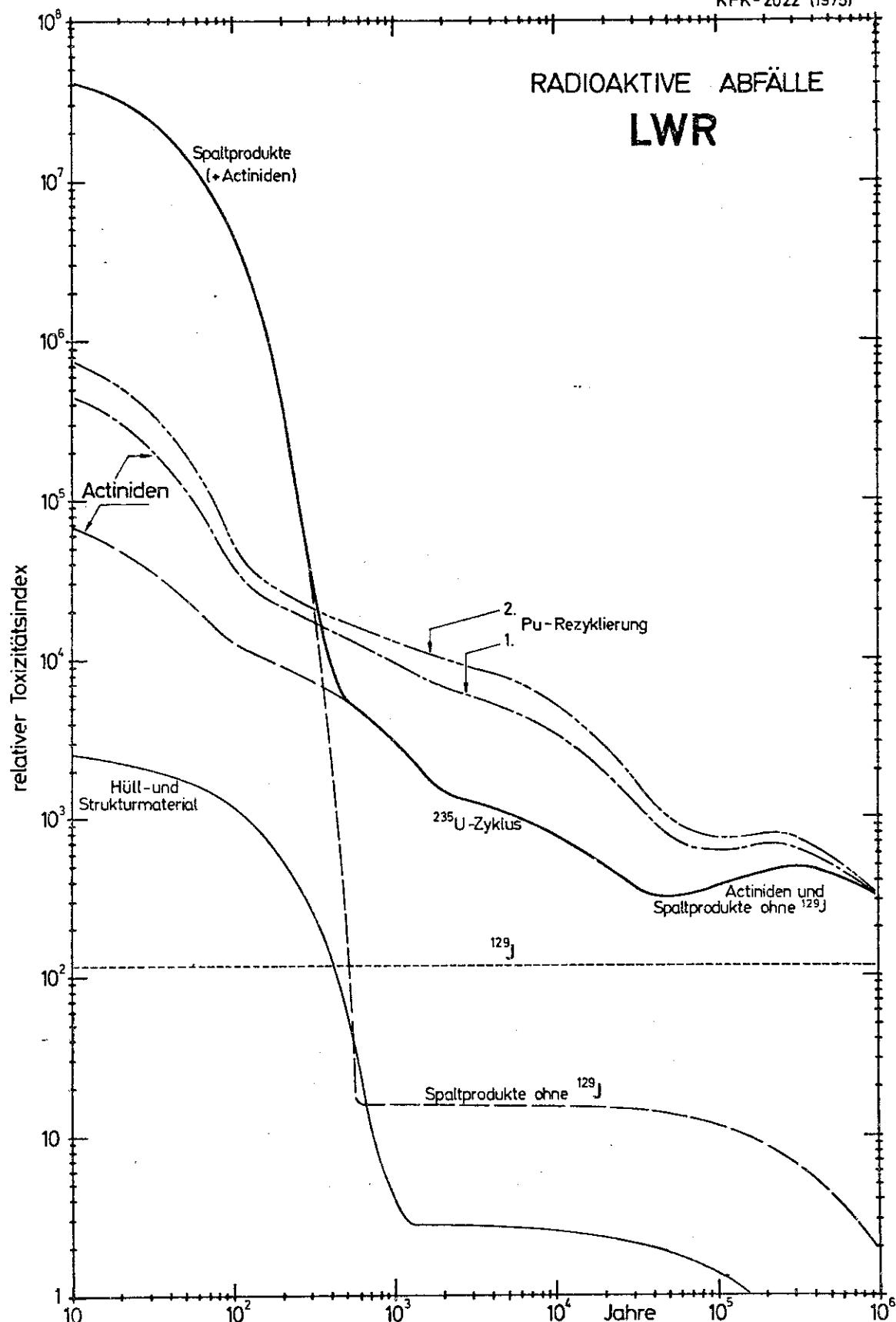


Fig. 5.1 Relativer Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von LWR-Brennstoff  
( $\text{U}-235$  Zyklus und Pu-Rezyklierung), Abbrand 34 000 MWd/t SM,  
Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit; Verluste 0.5% U und 0.5% Pu.

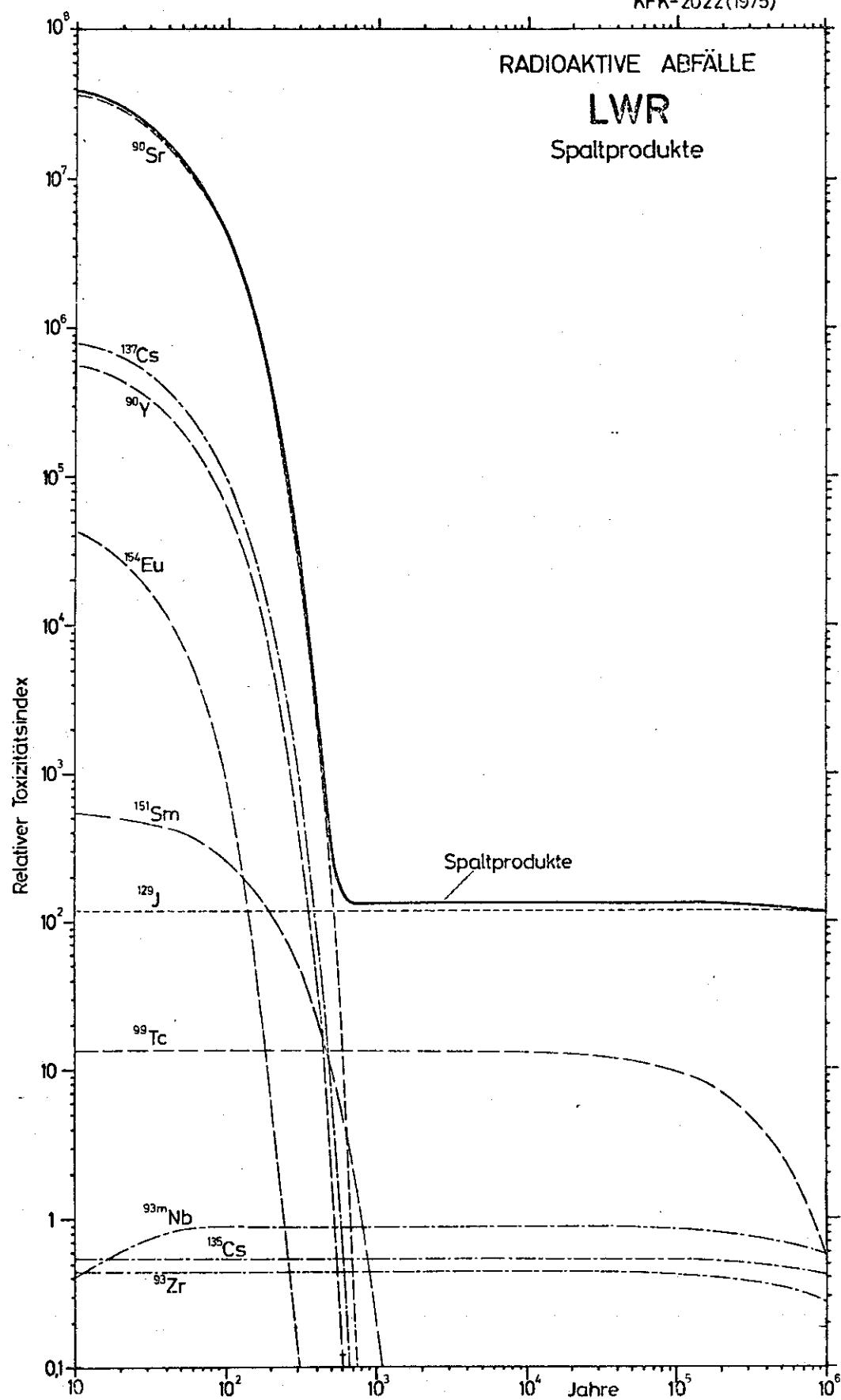


Fig. 5.2 Relativer Toxicitätsindex einzelner Spaltprodukte im radioaktiven Abfall von LWR-Brennstoff; Abbrand 34 000 MWd/t SM,  
Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit.

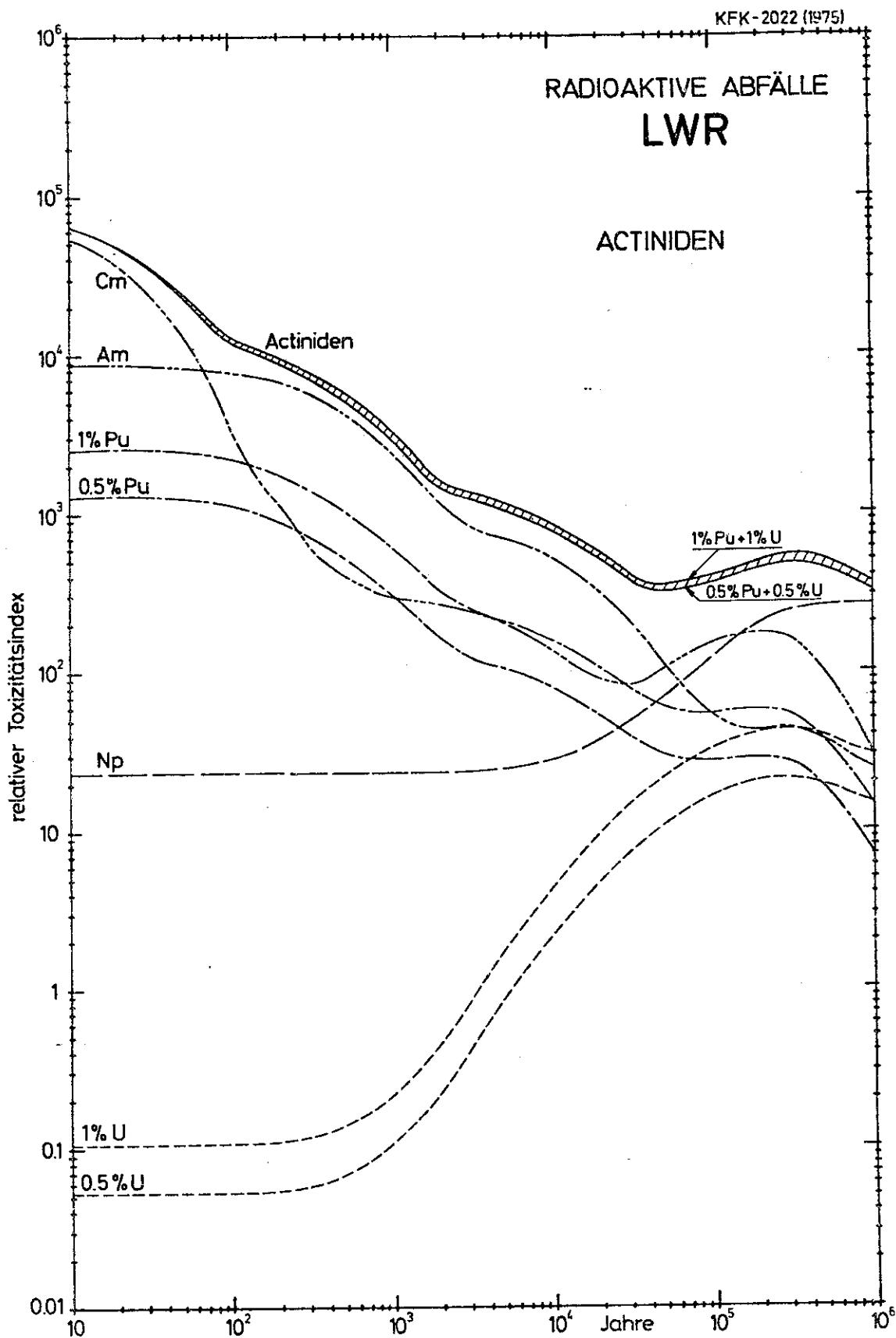


Fig. 5.3 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actiniden im hochaktiven Abfall von LWR-Brennstoff (U-235 Zyklus), Abbrand 34 000 MWd/t SM;  
Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit;  
Verluste 1% U und 1% Pu bzw. 0.5% U und 0.5% Pu

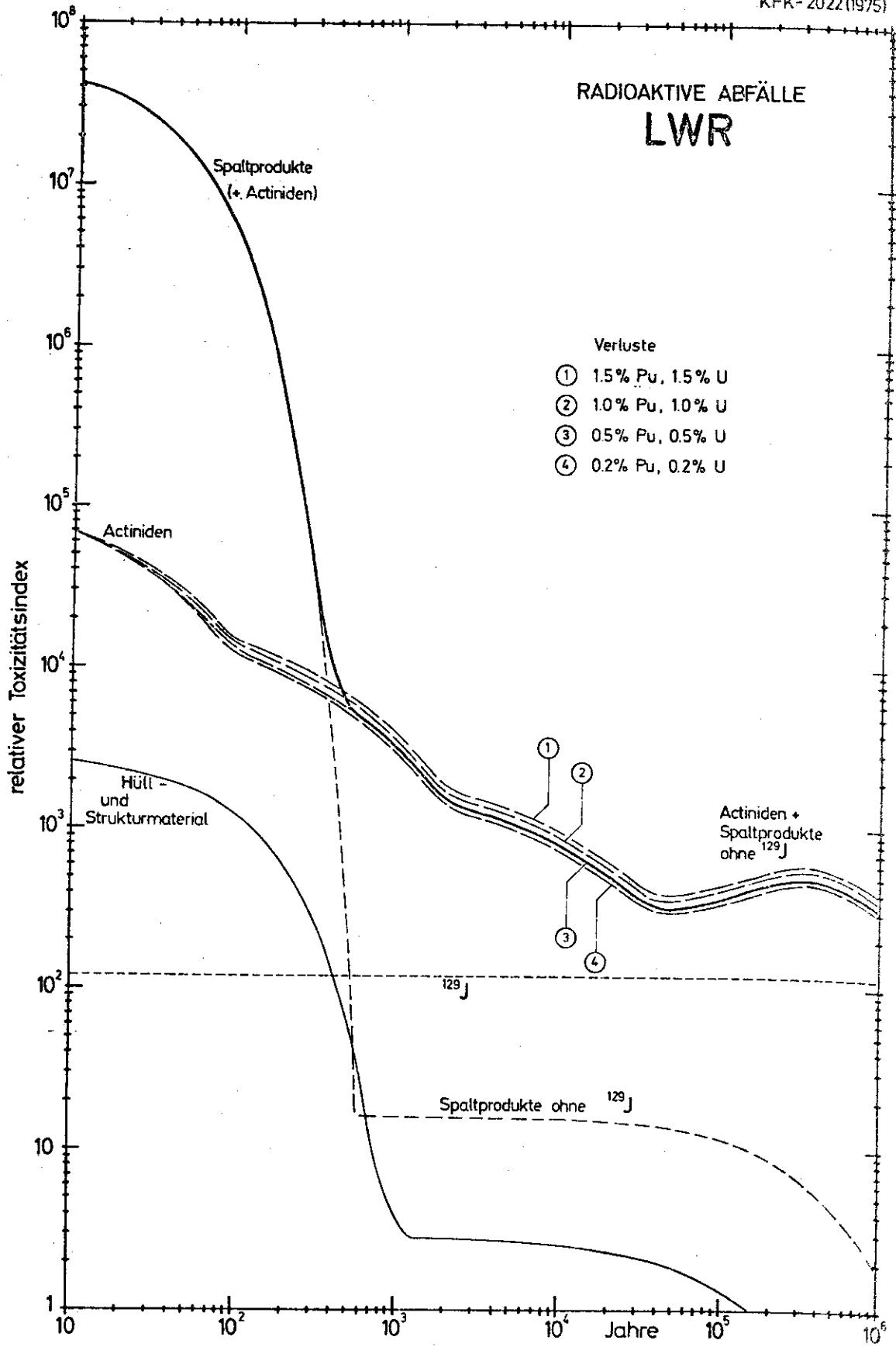


Fig. 5.4 Relativer Toxizitätsindex bei hochaktiven Abfällen von LWR-Brennstoff bei verschiedenen Uran- und Plutoniumverlusten. Abbrand 34 000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit.

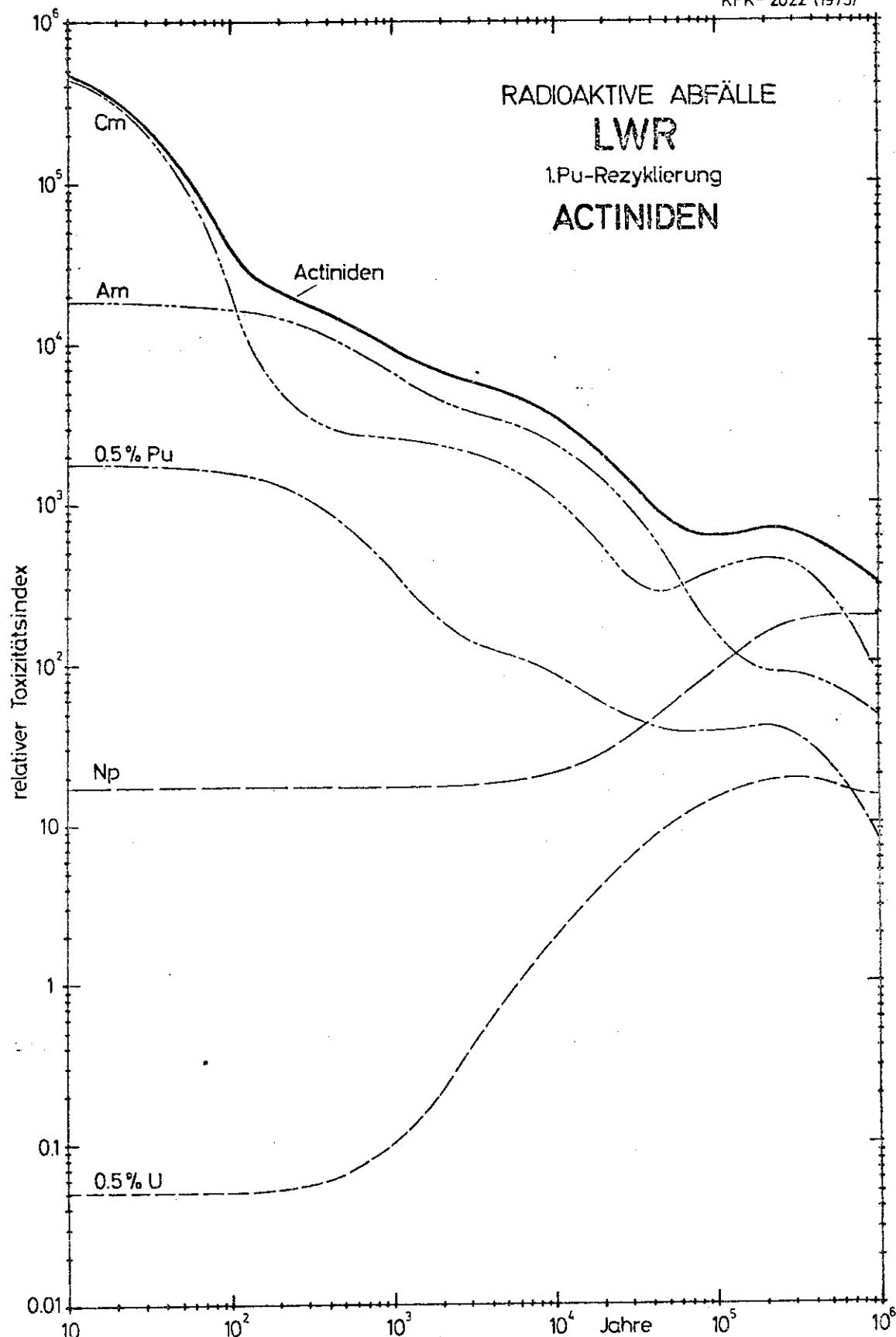


Fig. 5.5 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actinide im hochaktiven Abfall von LWR-Brennstoff bei 1.Pu-Rezyklierung, Abbrand 34 000 MWd/t SM; Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit; Verluste: 0.5% U und 0.5% Pu

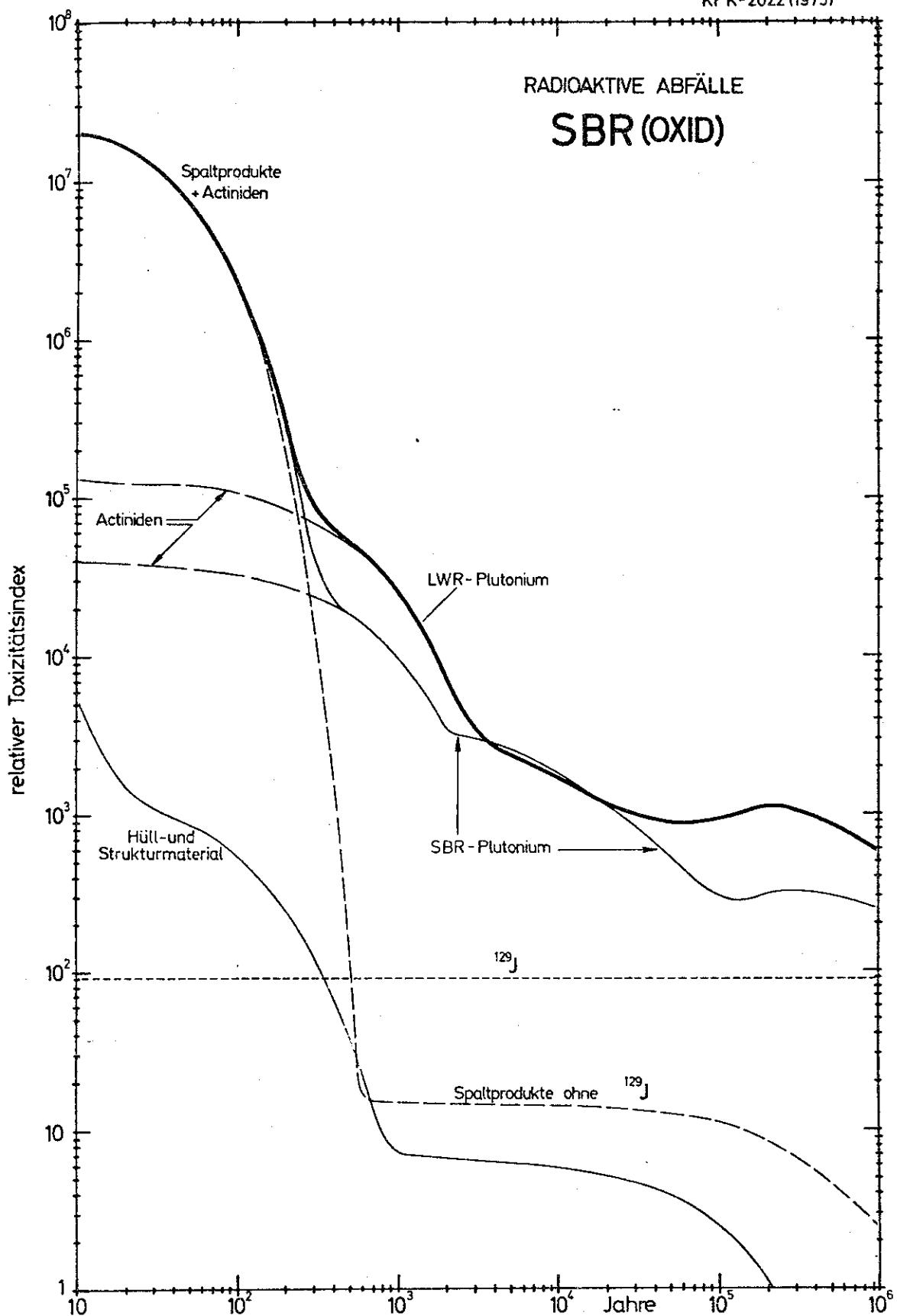


Fig. 5.6 Relativer Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von SBR-Brennstoff mit LWR-und SBR-Plutonium. Abbrand Core+Blanket 34 000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit. Verluste 1% U und 1% Pu

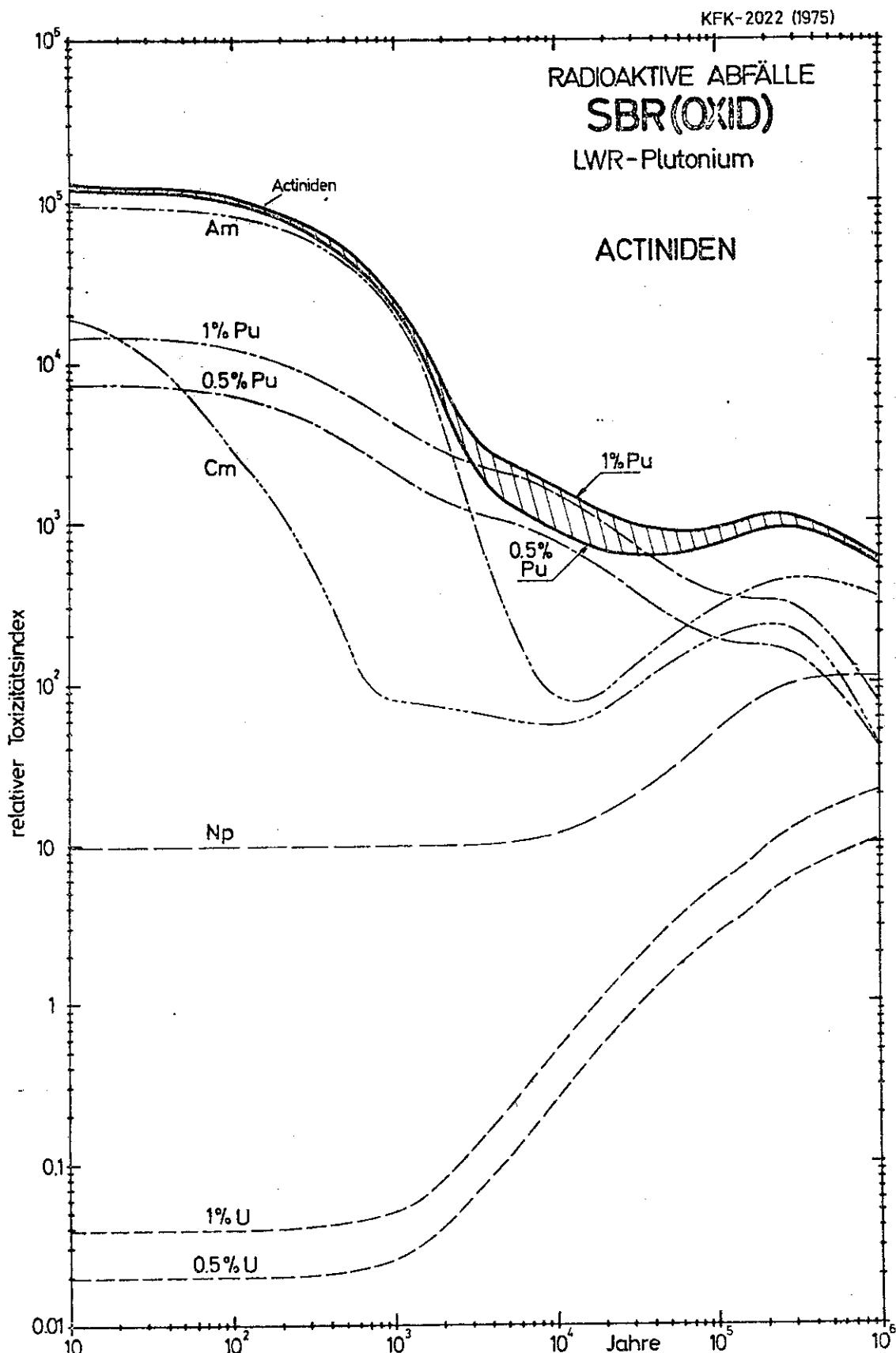


Fig. 5.7 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actiniden im hochaktiven Abfall von SBR-Brennstoff mit LWR-Plutonium. Abbrand Core+Blanket 34 000 MWd/t SM; Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit; Verluste: 1% U und 1% Pu bzw. 0.5% U und 0.5% Pu.

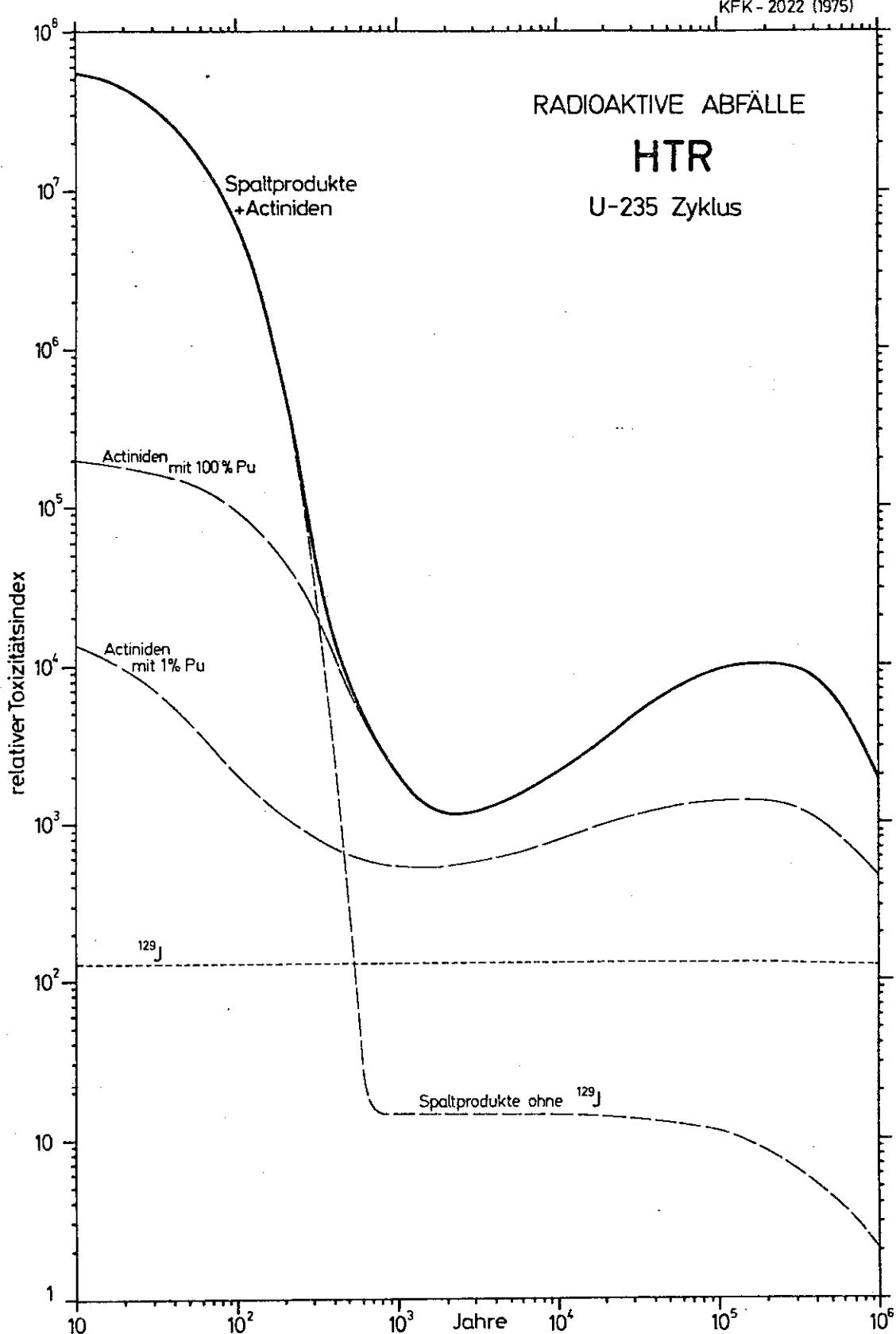


Fig. 5.8 Relativer Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von HTR - Brennstoff  
(93% U-235), Abbrand 95000 MWd/t SM,  
Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit,  
Verluste: 1% Th und 1% U, 1% Pu oder 100% Pu im Abfall.

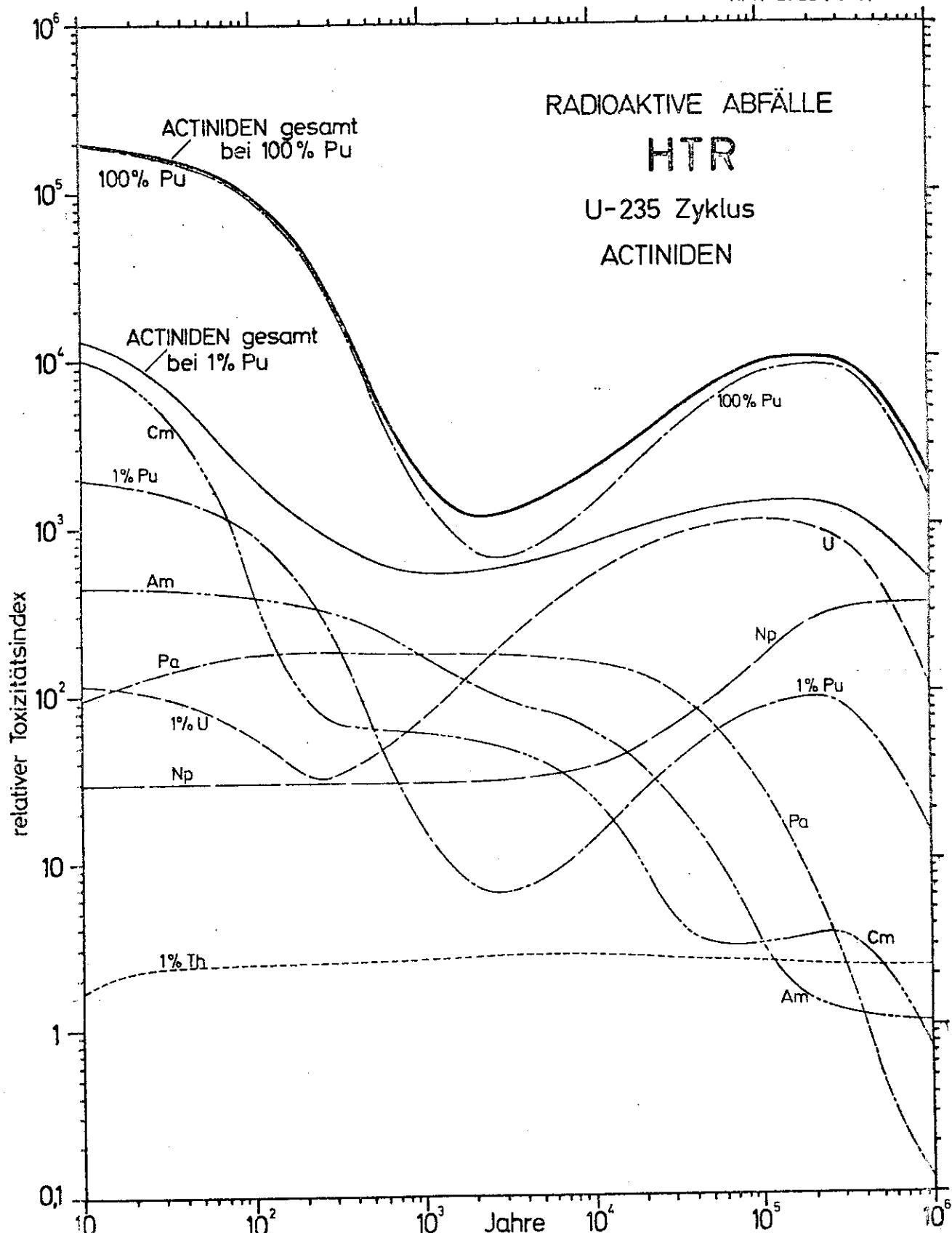


Fig: 5.9 Beitrag einzelner Actiniden zum relativen Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von HTR-Brennstoff (93 % U-235). Abbrand 95 000 MWd/t SM; Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit; Verluste: 1% Th und 1% U; 1% Pu oder 100% Pu im Abfall.

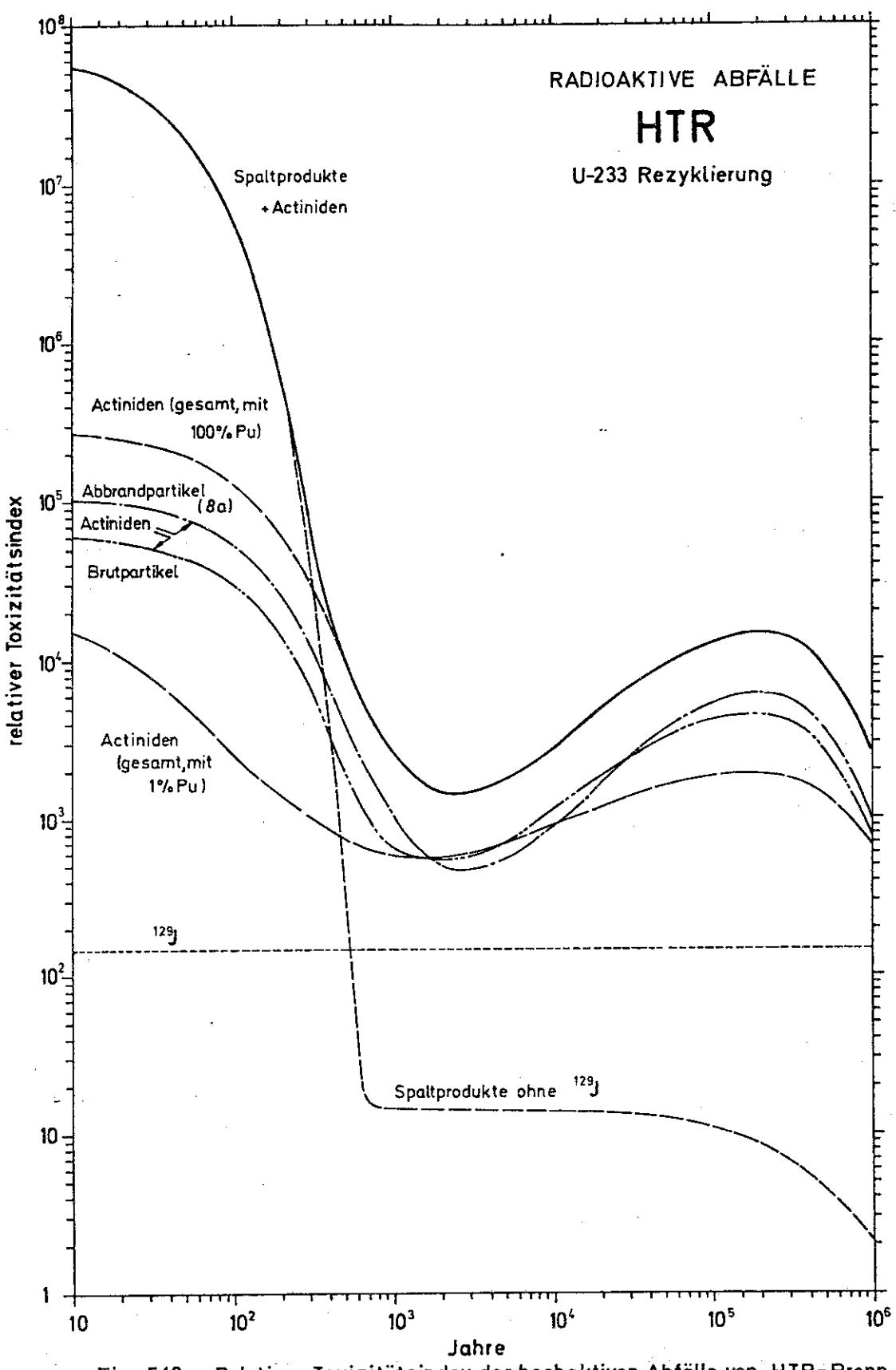


Fig.: 5.10 Relativer Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von HTR-Brennstoff mit U-233 Rezyklierung.  
Abbrand 95000 MW d/t SM.  
Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit  
Verluste 1% Th und 1% U; 100% Pu (oder 1% Pu) im Abfall.

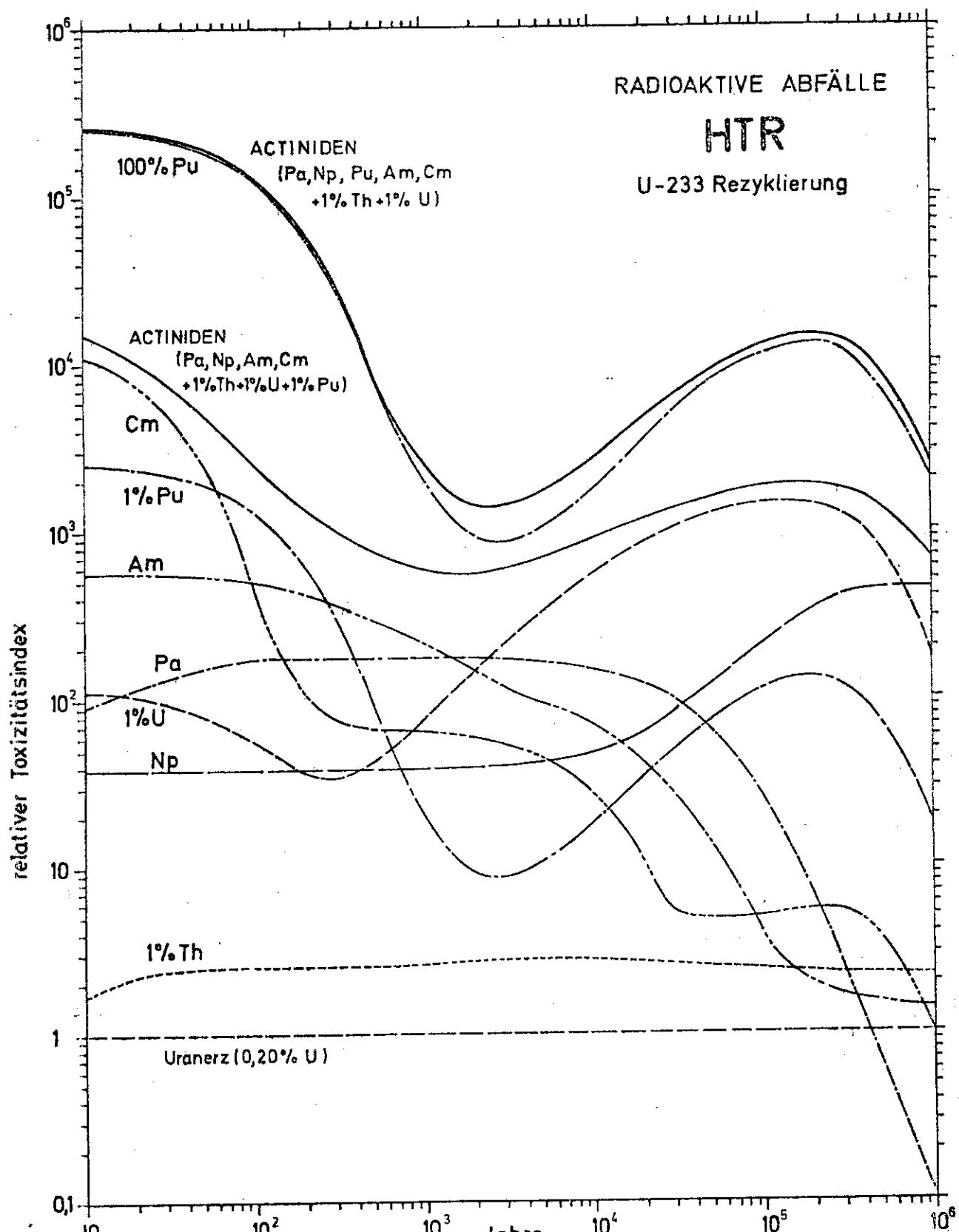


Fig.: 5.11 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actiniden im hochaktiven Abfall von HTR-Brennstoff mit U-233 Rezyklierung.  
Abbrand 95000 MW d/t SM.  
Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit  
Verluste 1% Th und 1% U; 100% Pu (oder 1% Pu) im Abfall.

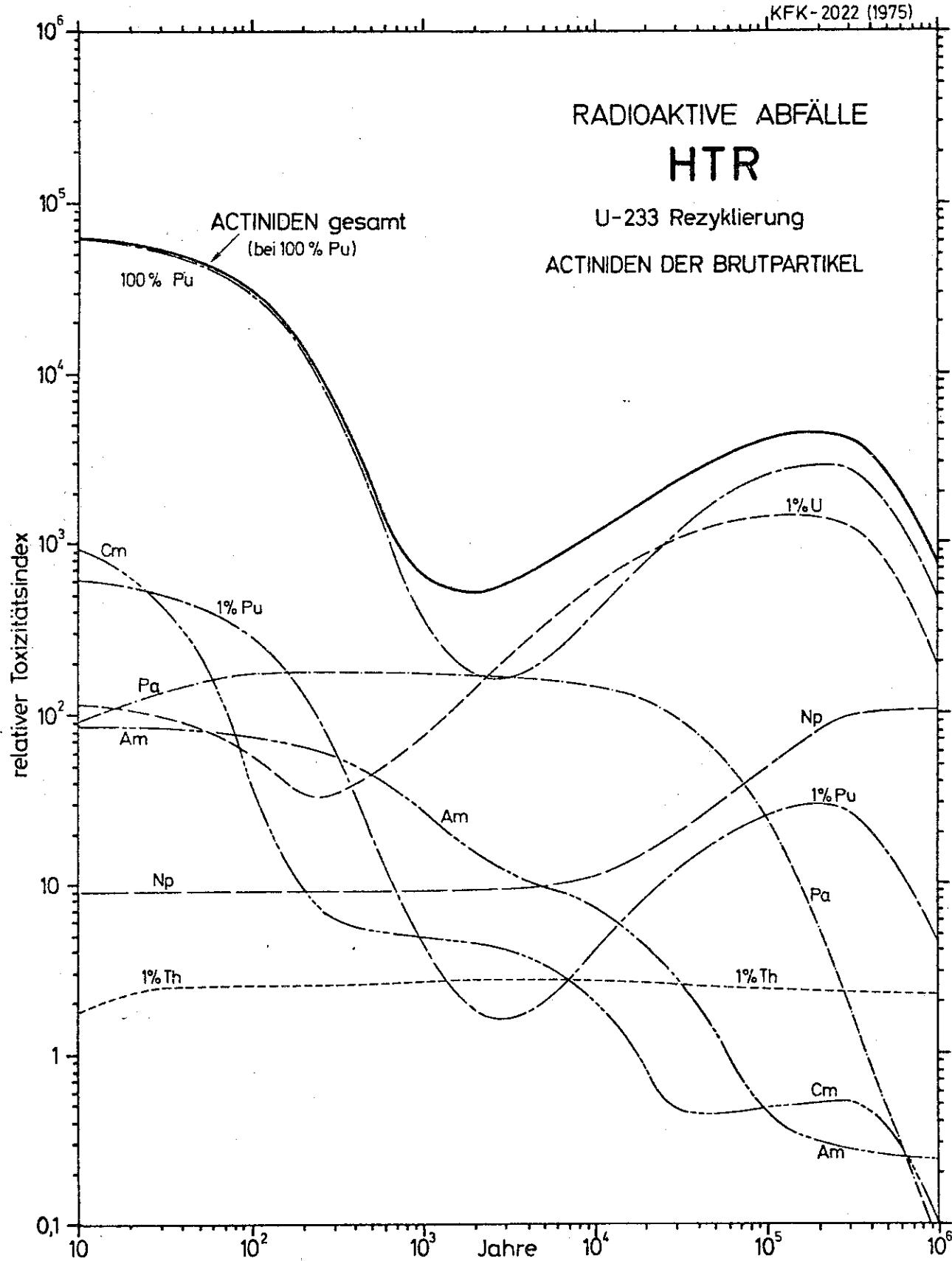


Fig. 5.12 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actiniden in den Brupartikeln von HTR-Brennstoff mit U-233 Rezyklierung. Abbrand 95 000 MWd/t SM; Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit; Verluste: 1% Th und 1% U; 1% Pu oder 100% Pu im Abfall.

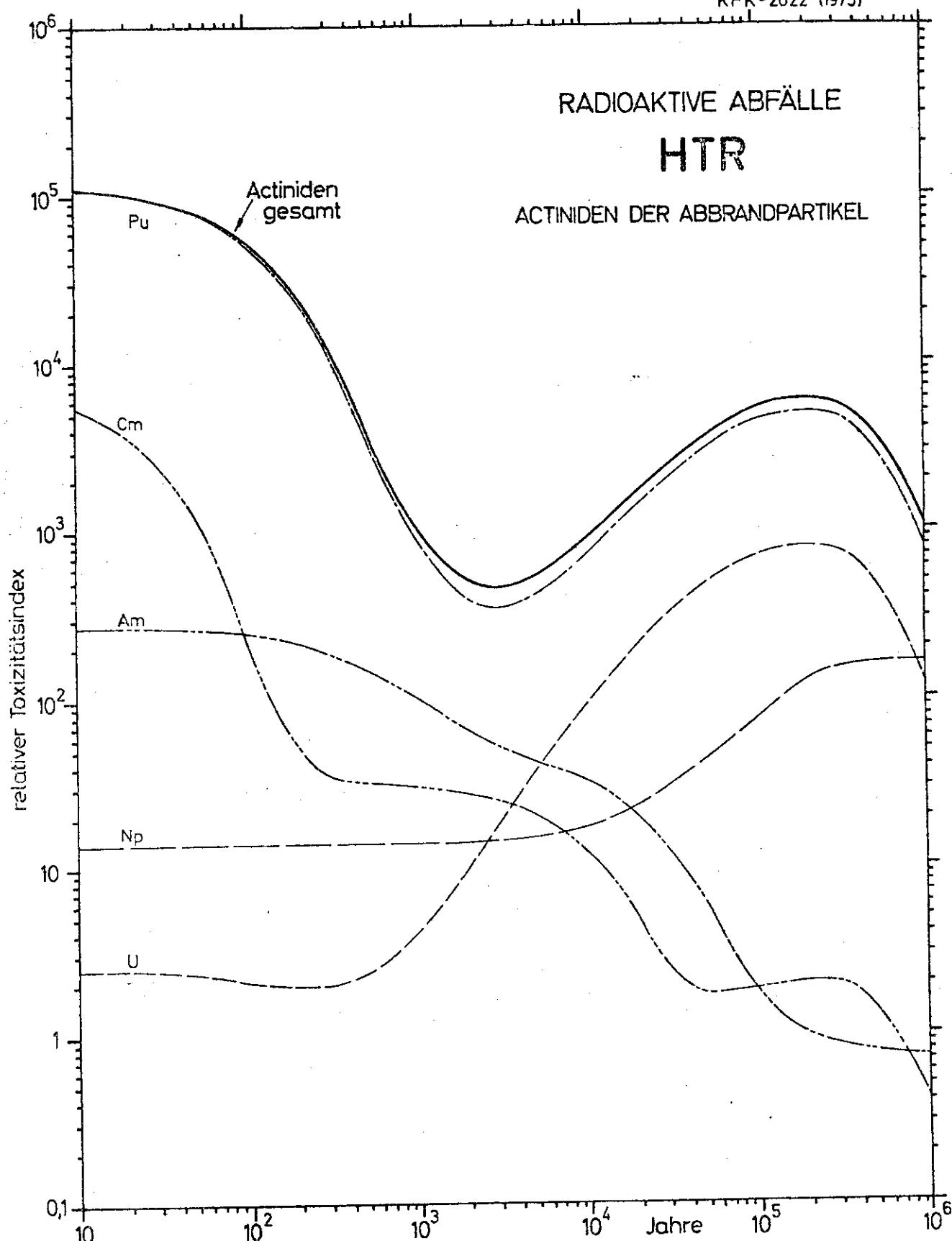


Fig. 5.13 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actinide in den Abbrandpartikeln von HTR-Brennstoff (U-233 Rezyklierung) nach 8-jähriger Bestrahlung.  
Keine Wiederaufarbeitung.

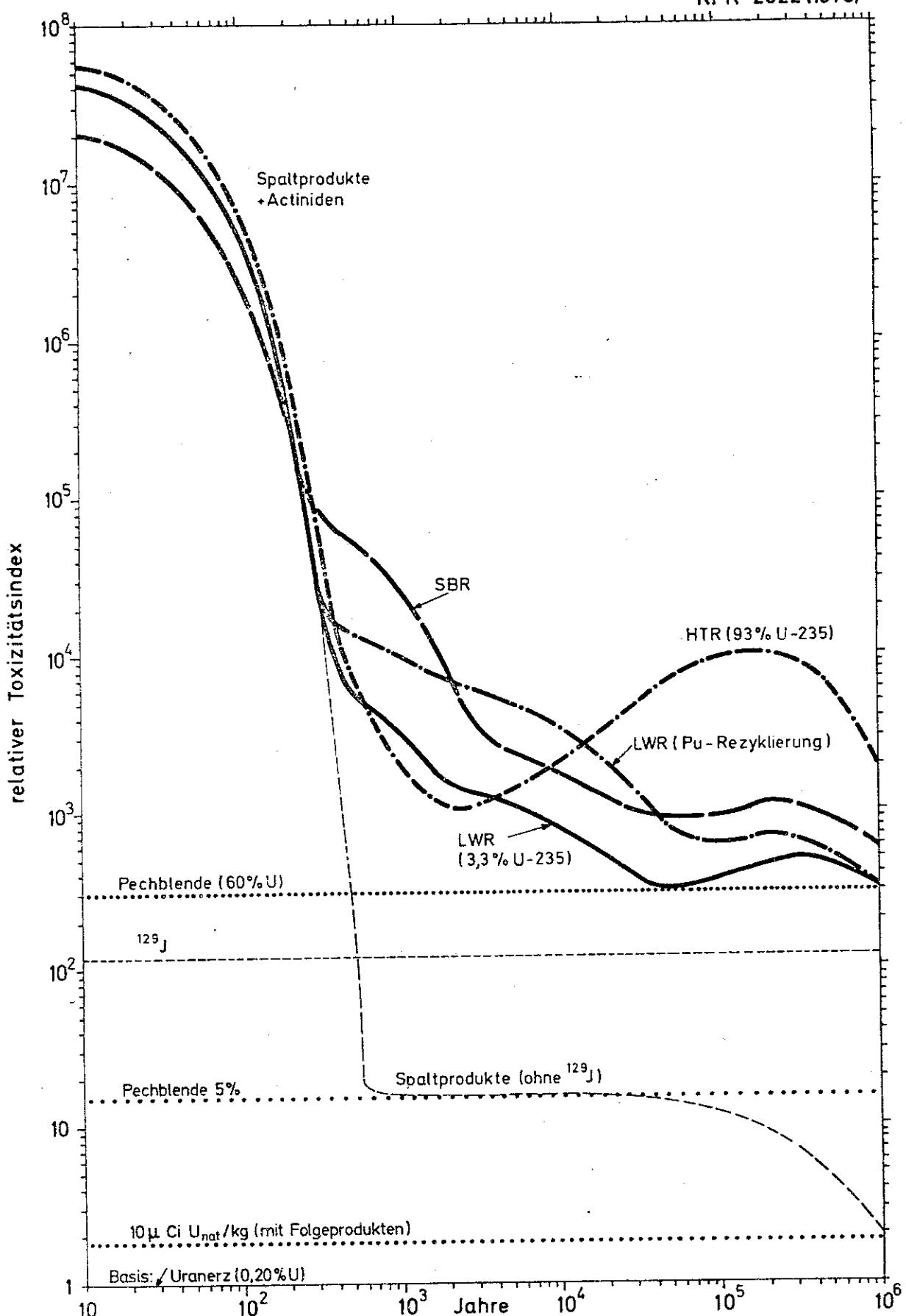


Fig. 5.14 Relativer Toxizitätsindex der verfestigten hochaktiven Abfälle von LWR, SBR und HTR Brennstoff

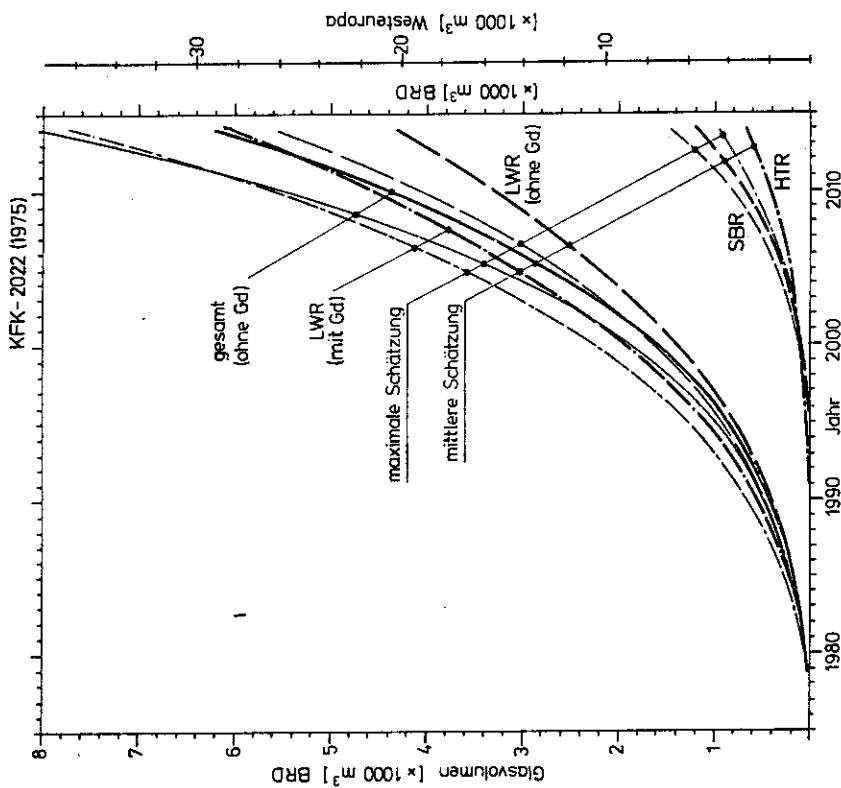


Fig. 6.2 Integrale Produktion von verglastem hochaktivem Abfall bei mittlerer und maximaler Schätzung (Verglasung nach 4a)

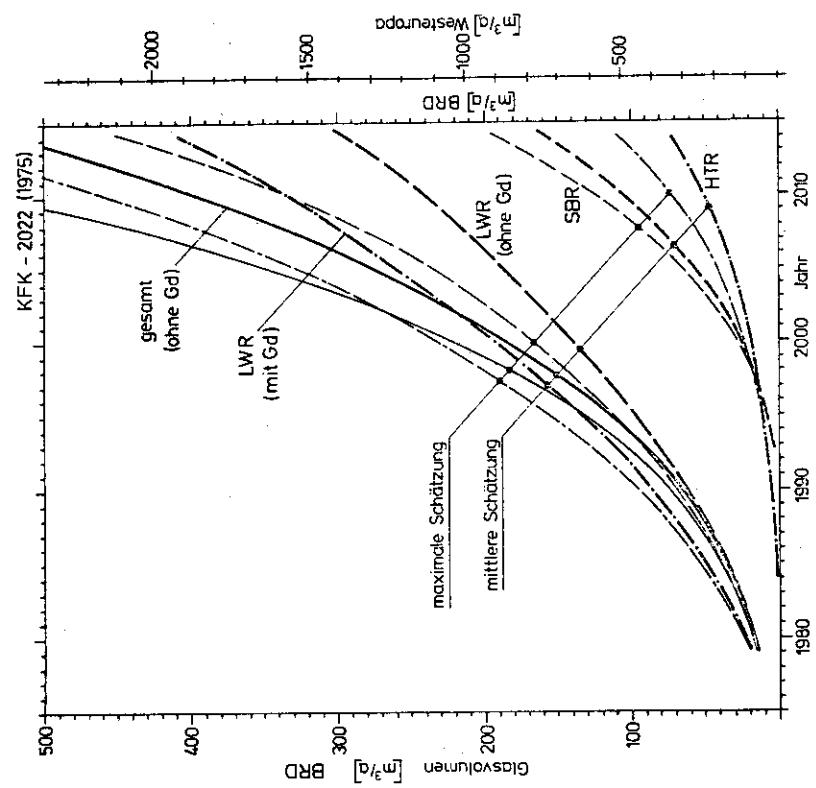


Fig. 6.1 Jährliche Produktion von verglastem hochaktivem Abfall bei mittlerer und maximaler Schätzung.  
(Verglasung nach 4 Jahren flüssiger Zwischenlagierung)

KFK-2022 (1975)

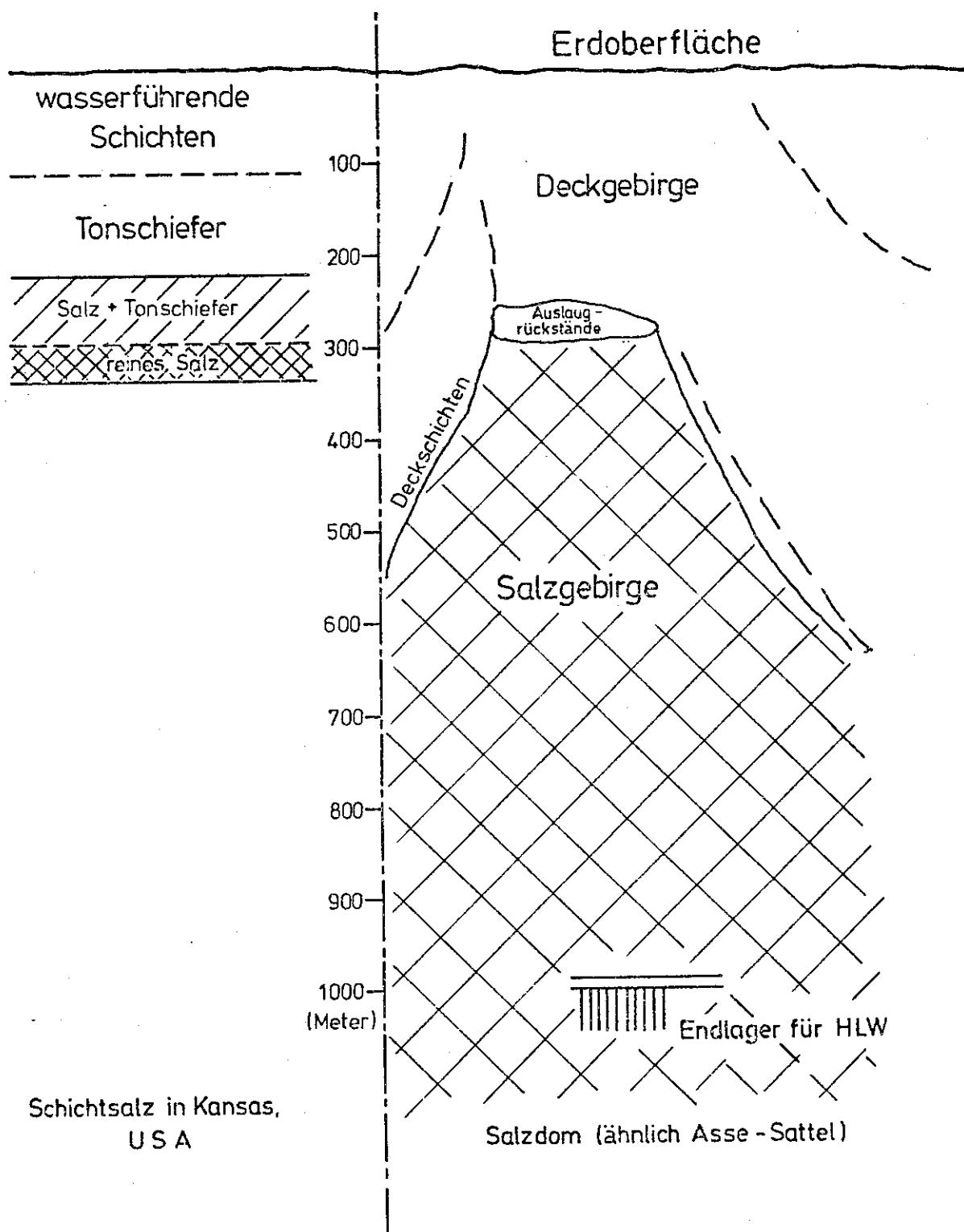
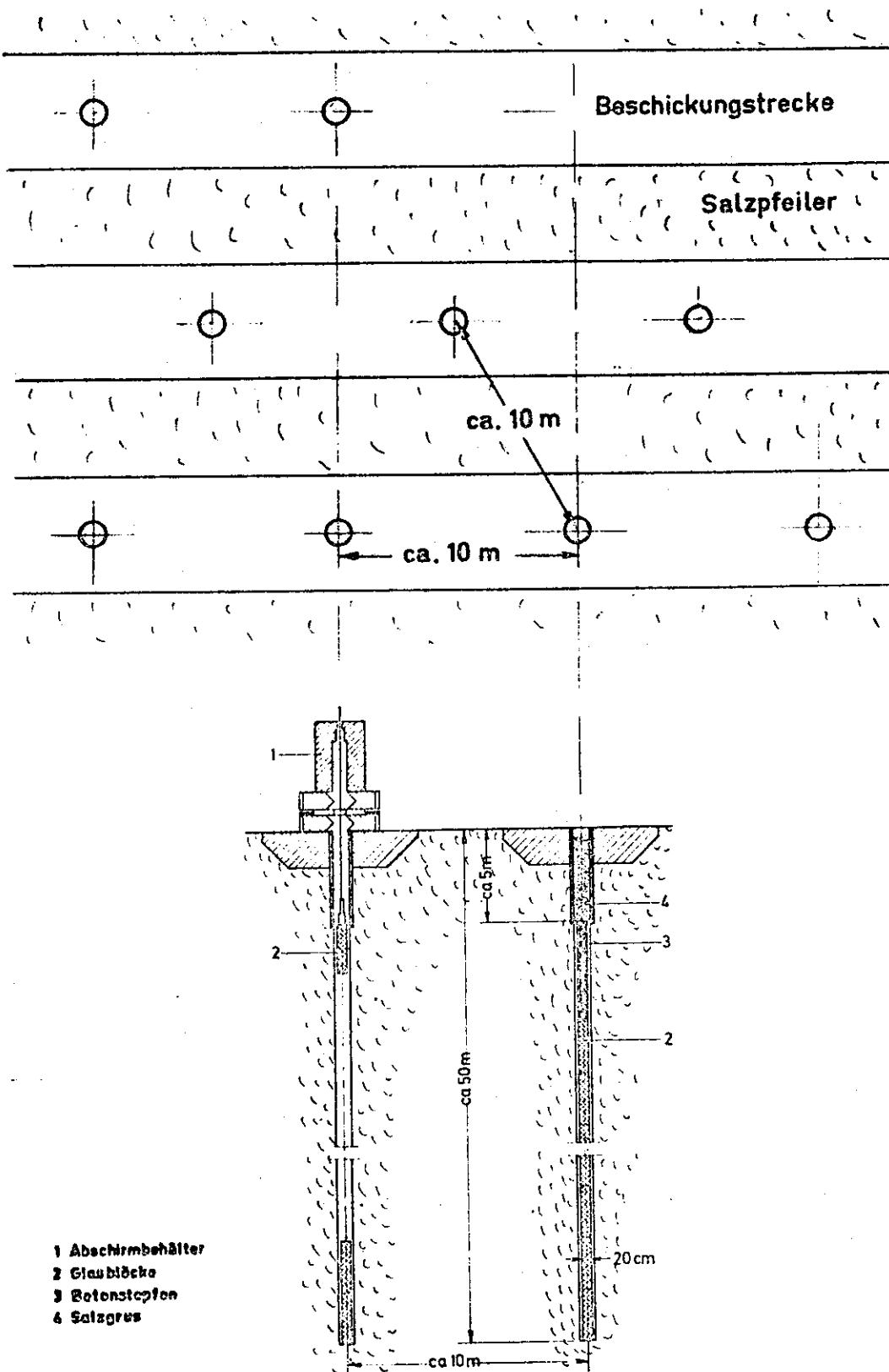


Fig. 6.3 Skizze zum Vergleich zwischen Schichtsalz und einem Salzdom für mögliche HLW-Endlagerstätten (nach HAMSTRA/H 15/).



**Fig. 6.4 Schema derendlagerung hochaktiver Glasblöcke  
(unterer Bildteil nach KRAUSE /K2/)**

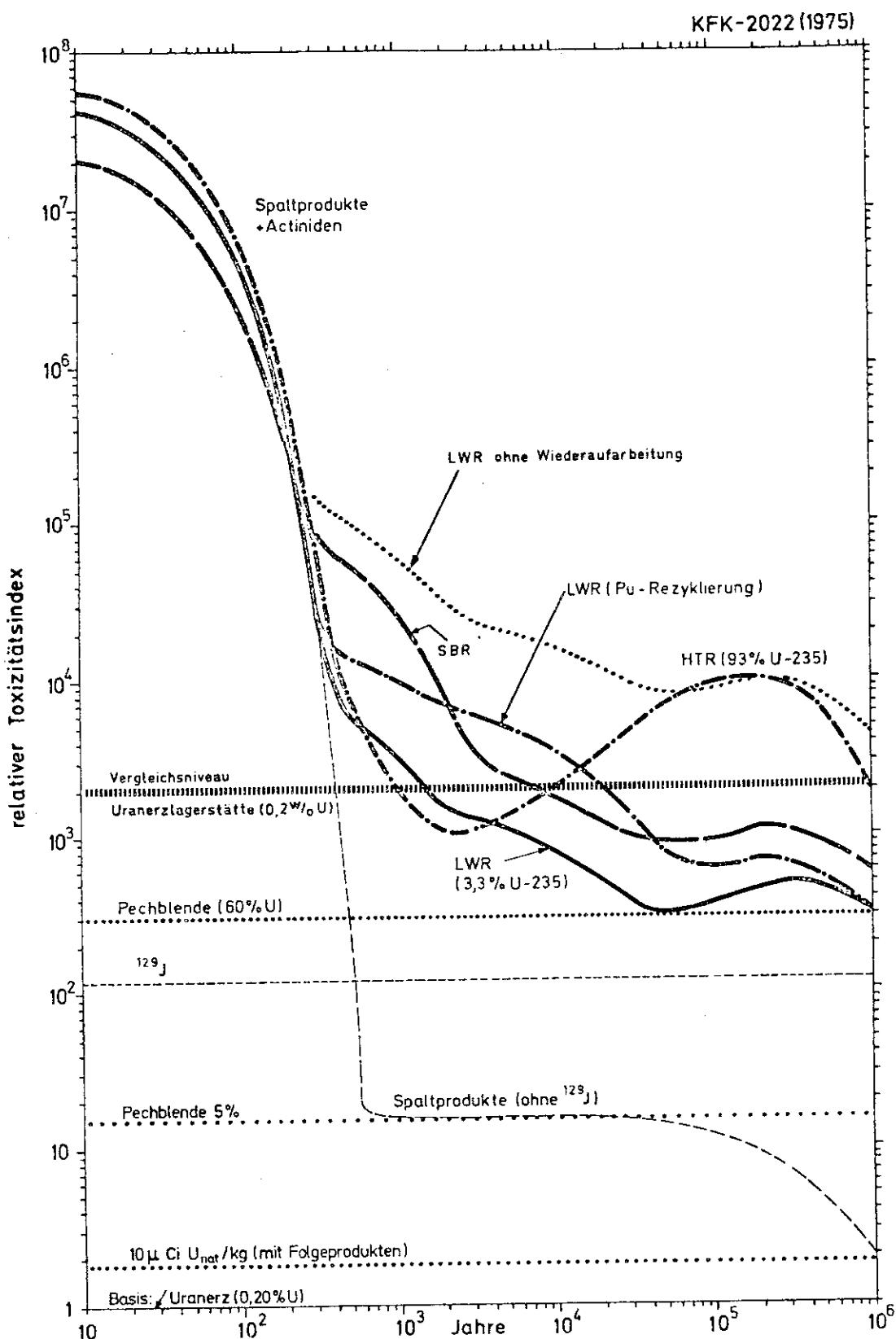


Fig. 6.5 Relative Toxizität des HLW von LWR, SBR und HTR-Brennstoff und Vergleich des HLW-Lagerfeldes (Abfallzylinder in 10 m Abstand plus umgebendes Salzgestein) mit einer gleichgroßen Uranerzlagerstätte (mit 0,2 % Urangehalt)

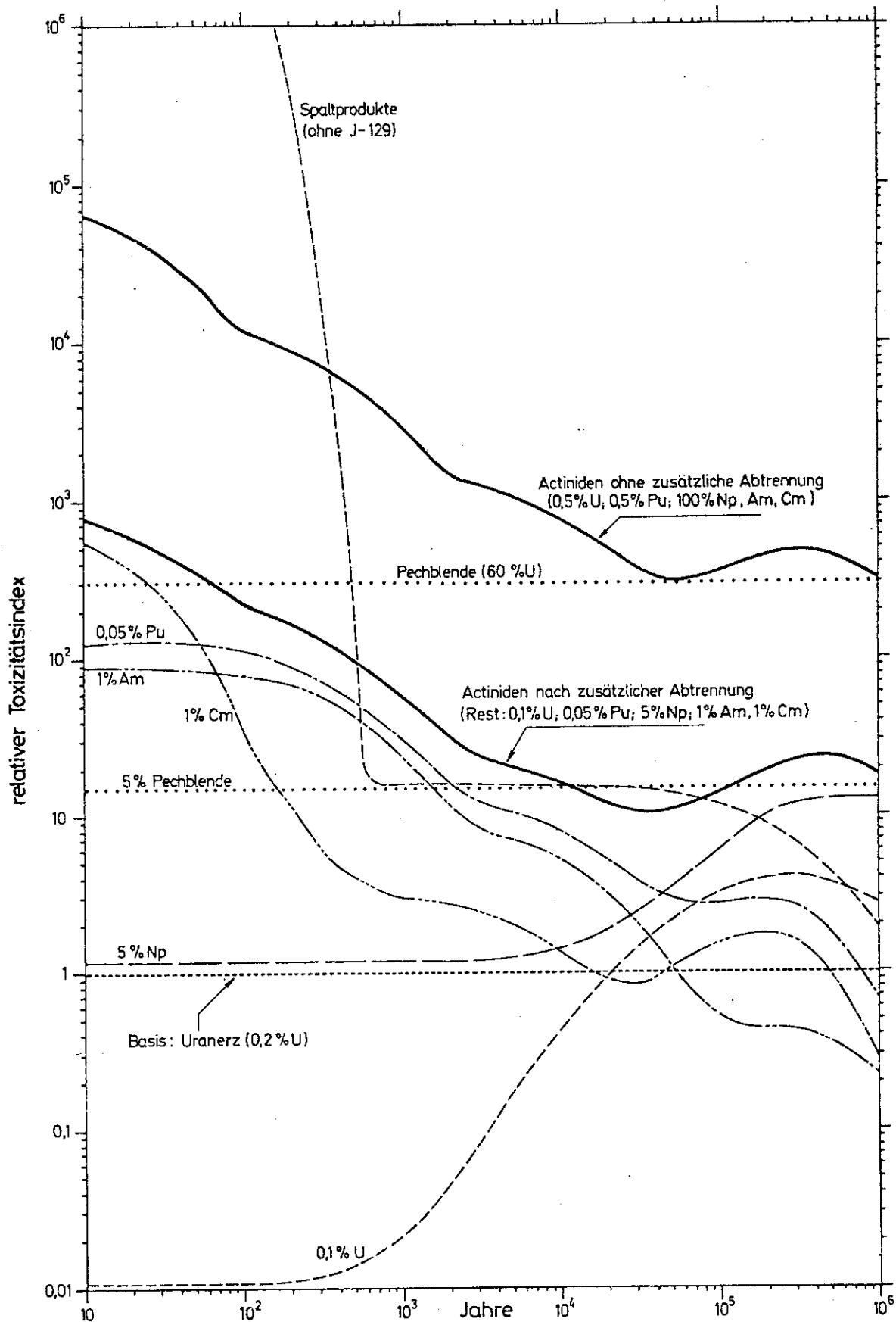
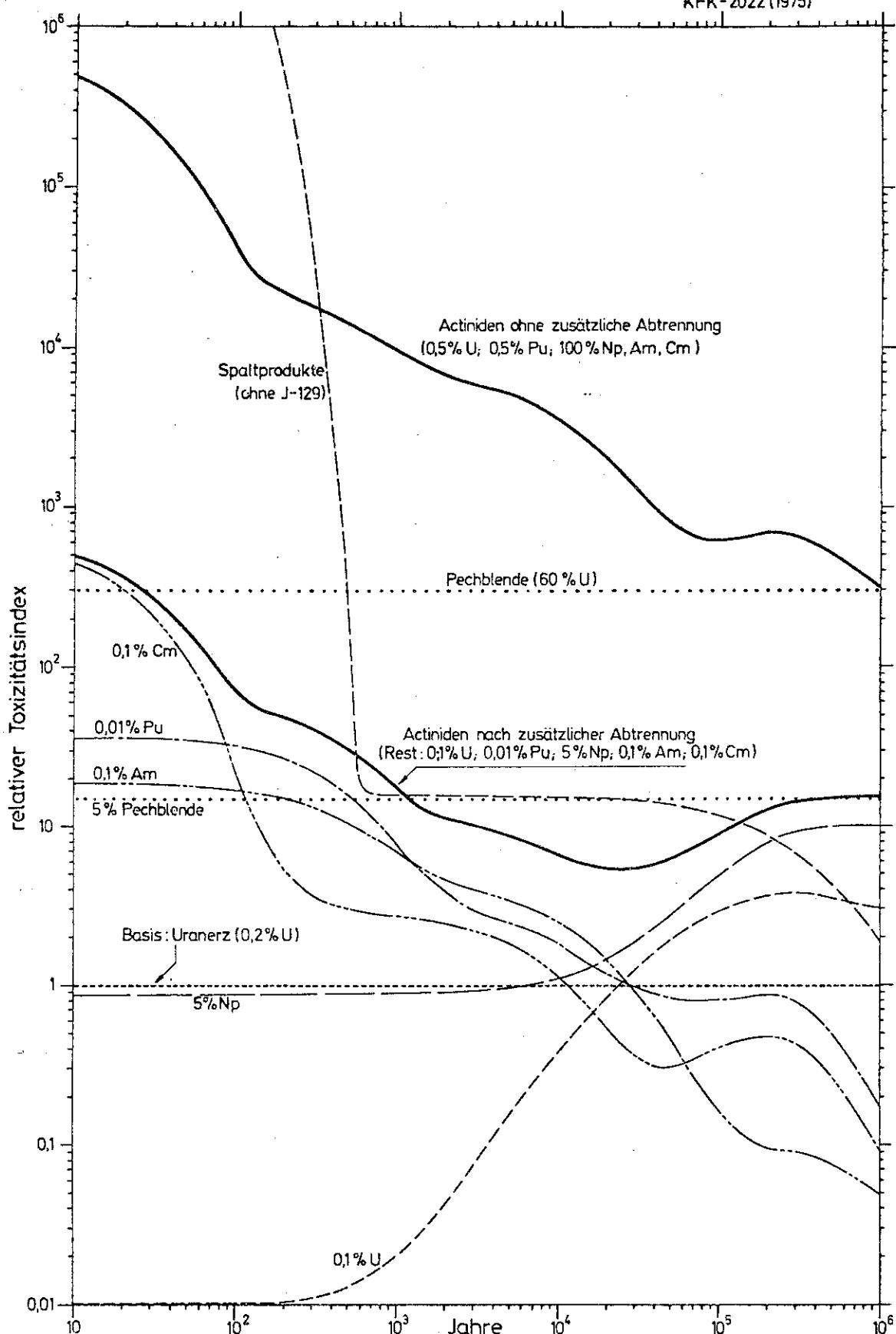


Fig. 7.1 Relativer Toxizitätsindex des HLW von LWR-Brennstoff (3,3% U-235) nach Actinidenabtrennung auf 5% Pechblende (Actinidenverluste nach/C4/ ).



**Fig. 7.2** Relativer Toxizitätsindex des HLW von LWR-Brennstoff  
(Pu-Rezyklierung) nach Actinidenabtrennung auf ca. 5% Pechblende  
(Actinidenverluste nach/C4/)

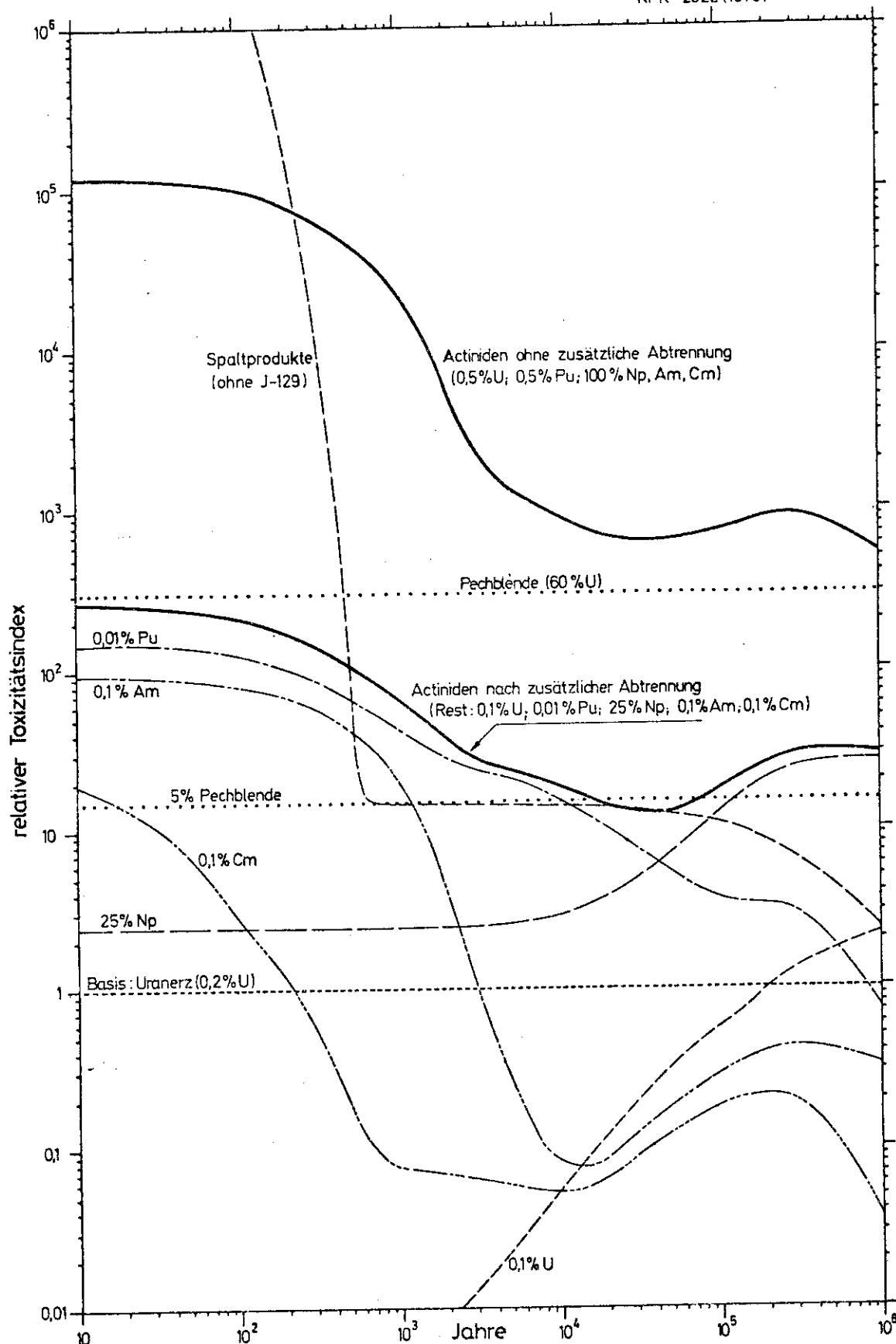


Fig. 7.3 Relativer Toxizitätsindex des HLW von SBR-Brennstoff (Core+Blanket, 34000 MWd/t SM) nach Actinidenabtrennung auf ca. 5% Pechblende (Actinidenverluste nach/C 4/)

KFK-2022 (1975)

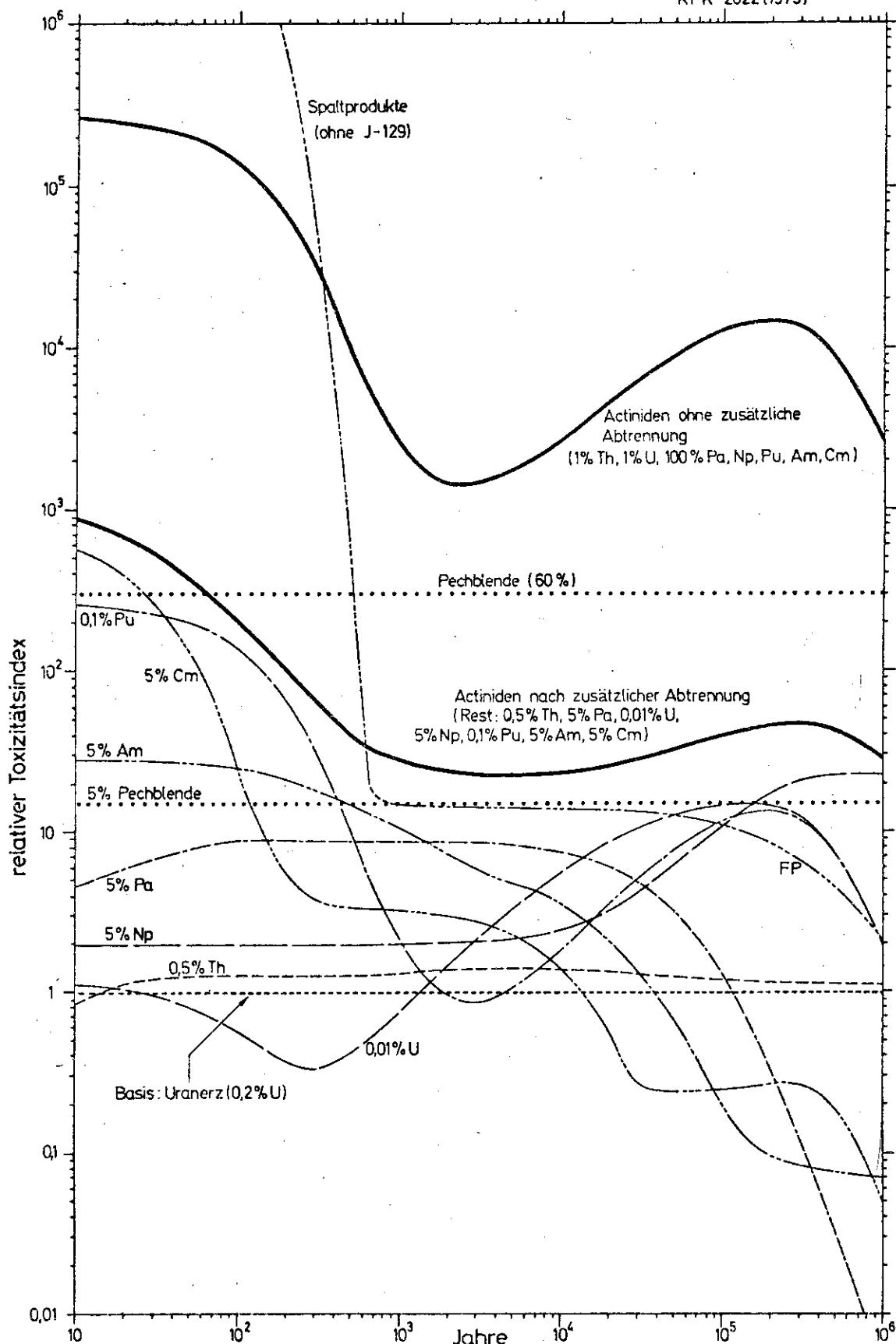
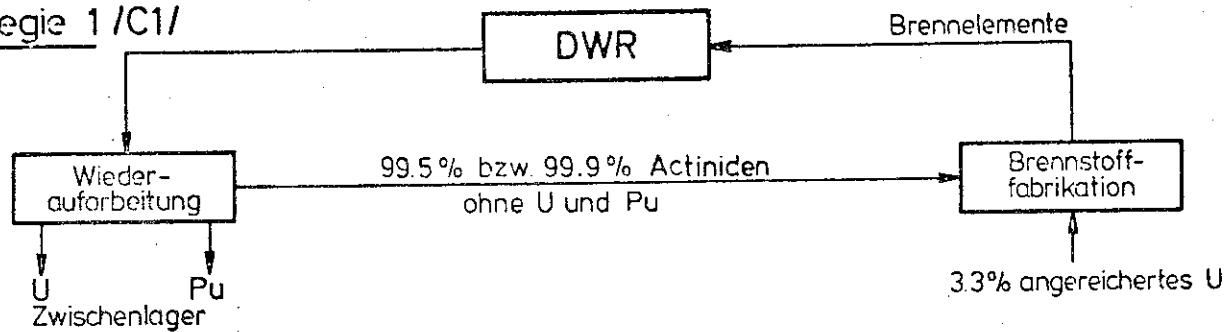


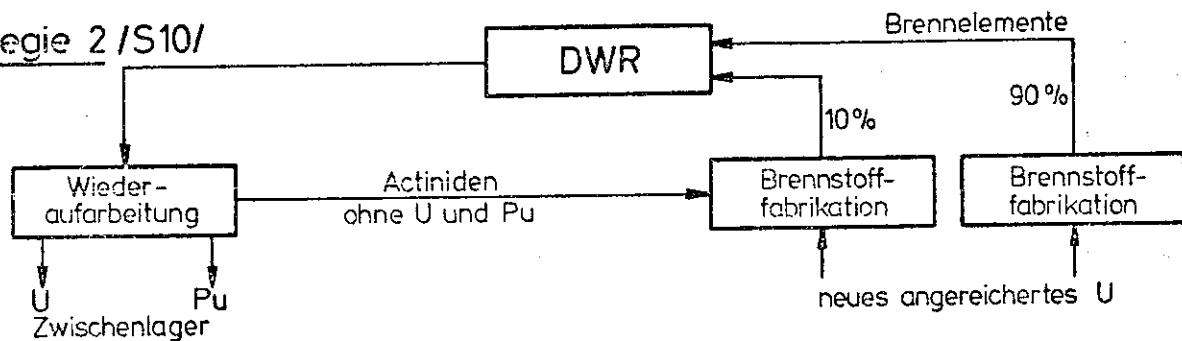
Fig. 7.4 Relativer Toxizitätsindex des HLW von HTR-Brennstoff (U-233 Rezyklierung) nach Actinidenabtrennung auf ca. 5% Pechblende.  
(Actinidenverluste nach /C4/)

KFK- 2022 (1975)

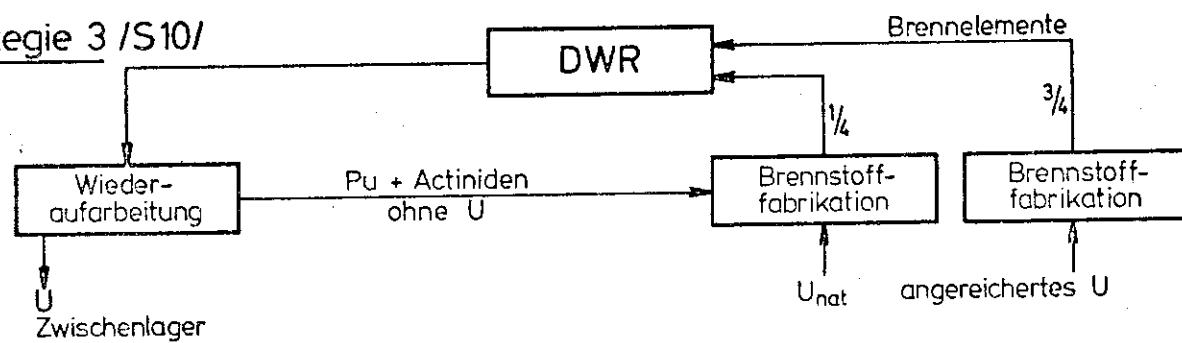
## Strategie 1/C1/



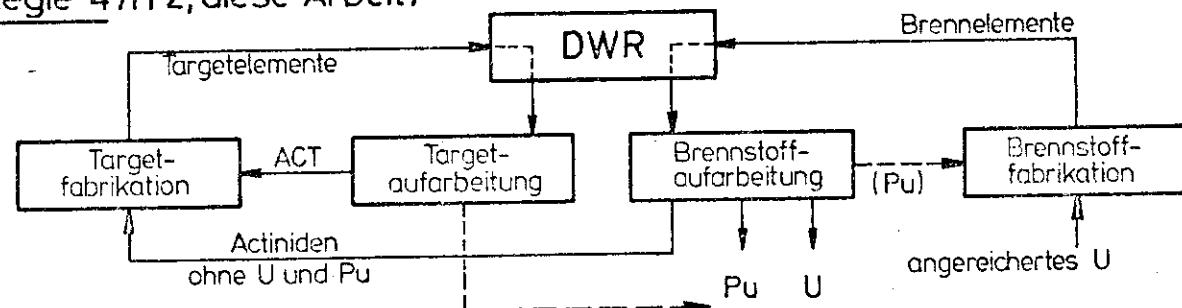
## Strategie 2 /S10/



### Strategie 3 /S10/



## Strategie 4/H 2, diese Arbeit/



**Fig. 7.5** Strategien der Actinidenrezyklierung in einen Druckwasserreaktor

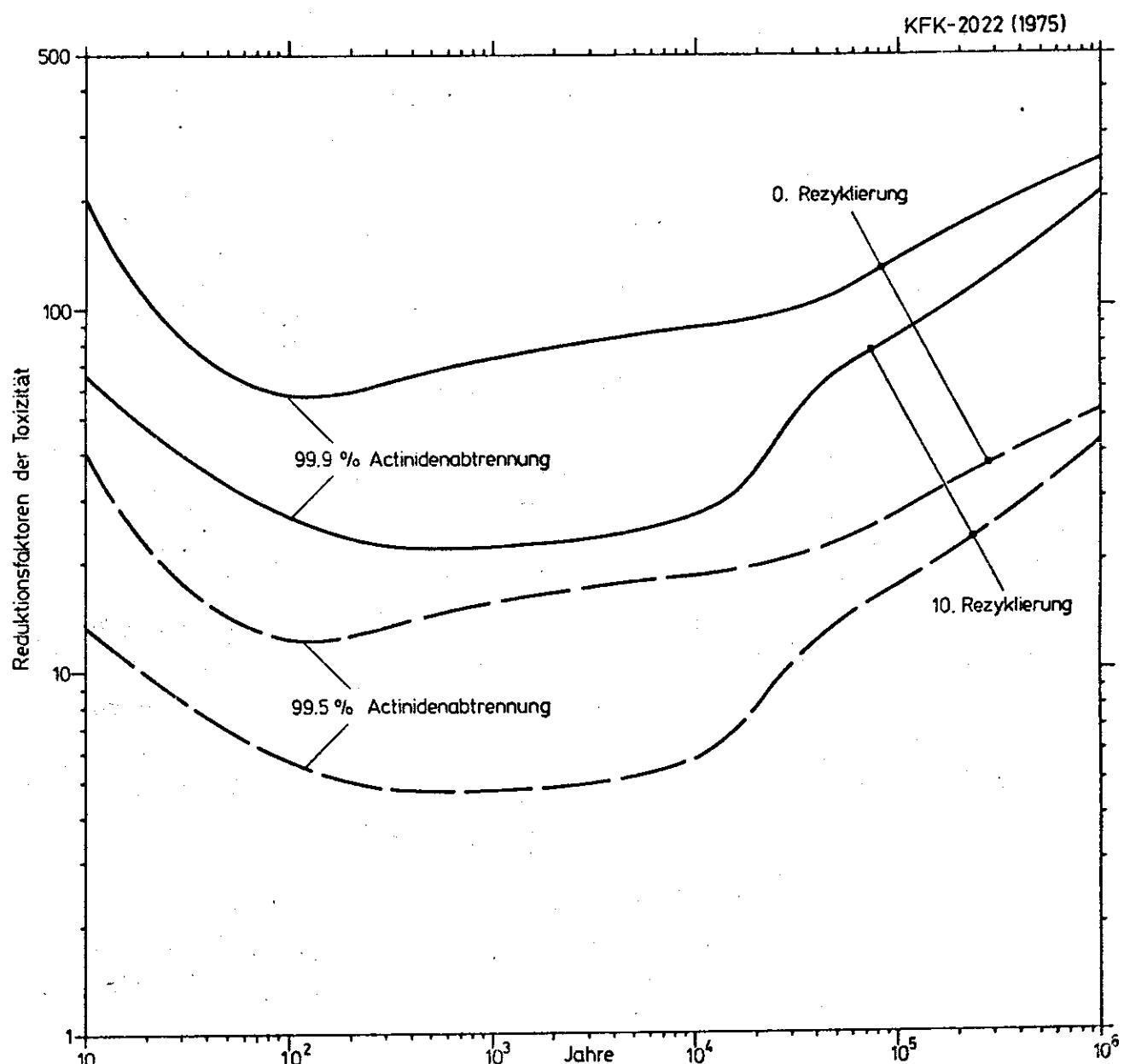


Fig. 7.6 Reduktionsfaktoren des Toxizitätsindex bei fortgesetzter Rezyklierung der Actiniden (außer U und Pu) in einen DWR nach CLAIBORNE /C1/.

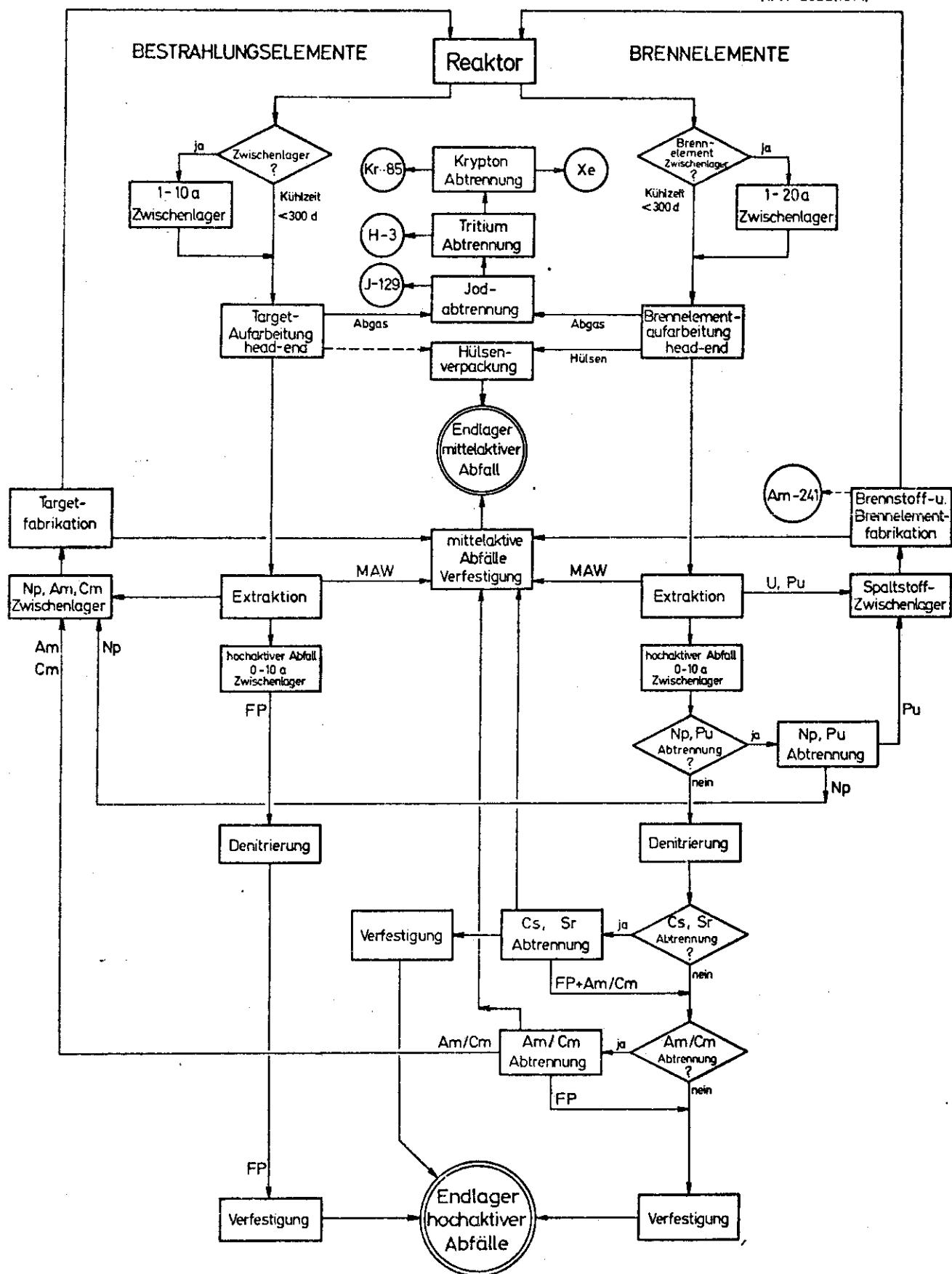


Fig. 7.7 Rückführung von Actiniden in Kernreaktoren; Brennstoff-u.Targetkreisläufe