

JAERI - M
85-066

**高レベル廃液群分離技術の研究開発の成果
と将来計画**

1985年6月

久保田益充・中村 治人

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

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター
(〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内) で複写による実費頒布をおこなって
おります。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-
mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1985

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 高野高速印刷

高レベル廃液群分離技術の研究開発の成果と将来計画

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

久保田益充・中村 治人

(1985年5月7日受理)

使用済核燃料の再処理に伴って発生する高レベル廃液を管理する一つの方法は、同廃液から、長寿命の超ウラン元素及び発熱量の大きい Sr-90 と Cs-137 を分離することである。

現在までに、高レベル廃液からこれらの元素を回収するために溶媒抽出法とイオン交換法を主体とした群分離プロセスを開発してきた。また、このプロセスについて、動燃事業団の再処理工場から発生した高レベル実廃液による試験を行い、その有効性を確認してきた。

本報告書では、群分離技術の研究開発の成果と 1984 年に実施した群分離についての中間評価及び従来の対象元素に付け加えて Np-237 と Tc-99 の回収を重点とした将来計画について述べる。

Results of Research Development in the Partitioning
Technology for Highly Radioactive Liquid Waste and
the Future Plan

Masumitsu KUBOTA and Haruto NAKAMURA

Department of Environmental Safety Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received May 7, 1985)

One of the methods to manage the highly radioactive liquid waste (HLW) generated from nuclear fuel reprocessing is to partition long-lived transuranium elements and heat generating ^{90}Sr and ^{137}Cs from HLW.

Up to now a partitioning process mainly consisting of solvent extraction and ion exchange has been developed for the recovery of these elements from HLW, and the effectiveness of the process has been confirmed with the actual HLW generated at reprocessing pilot plant in PNC.

The present paper describes the results of research development in the partitioning technology, the preliminary assessment carried out in 1984 on the partitioning of HLW, and the future plan forced the recovery of ^{237}Np and ^{99}Tc in addition to the elements so far concerned.

Keywords: Partitioning, Radioactive Waste Management, Highly Radioactive Waste, Transuranium Elements, ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{137}Cs , ^{237}Np .

目 次

1. はじめに	1
1.1 群分離技術研究開発の背景	1
1.2 本報告書の目的と作成に至る経過	1
1.3 本報告書の要約	1
2. 群分離技術研究開発の目的と考え方	3
2.1 群分離技術研究開発の主な目的	3
2.2 群分離技術研究開発の考え方	3
3. 群分離技術研究開発の内容	4
3.1 群分離技術研究開発の経緯	4
3.2 群分離技術研究開発の成果	4
3.2.1 前処理技術の研究開発	4
3.2.2 超ウラン元素群分離技術の研究開発	4
3.2.3 Am, Cmと希土類元素との相互分離技術の研究開発	5
3.2.4 Sr - Cs 群分離技術の研究開発	5
3.2.5 高レベル廃液による群分離実証試験	5
3.2.6 群分離二次廃棄物処理技術の研究開発	5
3.2.7 群分離後各群の安定化固化技術の研究開発	6
3.2.8 群分離後各群の固化体に対する考察	6
(1) 固化体発生量	6
(2) 固化体の熱特性	6
(3) 放射線しゃへい	6
(4) 固化体についての潜在的毒性	7
3.2.9 群分離システムに関する安全性解析	7
(1) 高レベル廃液の潜在的毒性解析	7
(2) 地層処分に伴う環境影響解析	7
3.2.10 群分離プロセスの経済性解析	7
4. 中間評価における主なコメント	9
5. 群分離技術研究開発の将来計画	9
6. おわりに	10
7. 主な発表論文、特許等	11

Contents

1. Introduction	1
2. Objects and concepts of research development in the partitioning technology	3
3. Contents of research development in the partitioning technology	4
4. Chief comments in the preliminary assessment on the partitioning technology	7
5. Future plan for research development in the partitio- ning technology	9
6. Conclusion	10
7. Main publications, patents, etc.	11

1. はじめに

1.1 群分離技術研究開発の背景

群分離技術の研究開発については、米国や西欧において、高レベル廃液中の超ウラン元素の分離を目的として、昭和48年頃に開始され、55年前後にその評価が行われた^(注1, 2)。この結果、得られる成果に対するコストの問題から研究は中断の方向に向い、その後における群分離技術の研究開発に大きな進展はない。しかし、最近では、カスタン報告にみられるように群分離の有効性を見直そうとする動きがある^(注3)。

我が国では、原研において、超ウラン元素のみならず、発熱性核種である Sr-90, Cs-137 の分離をも含めた3群への分離を目的として、昭和48年頃に開始され、現在までに群分離フローの開発、高レベル廃液実証試験及び群分離システムの有効性解析などが行われてきた。なお、昭和49年頃から動燃事業団においても、超ウラン元素の分離について検討された時期があったが、53年頃には中止している。

1.2 本報告書の目的と作成に至る経過

我が国における群分離技術の研究開発については、昭和55年12月の放射性廃棄物対策専門部会報告書によれば、当面58年度まで高レベル廃液による実証試験を行い、分離回収率、安全性及び経済性等を検討することとなっていた。本報告書はこれらを受け、群分離研究室で実施してきた群分離技術開発の内容、成果及び中間評価についてまとめ、今後の研究開発の方向について述べたものである。

なお、中間評価に当っては、東海研究所廃棄物処理研究委員会において、また、原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会において群分離技術研究開発の内容、成果及び将来計画の概要を報告し、検討頂いたものである。

1.3 本報告書の要約

群分離技術について、國の方針に従い研究開発を進め、得られた成果を次のとおり報告し、これに対する検討評価を受けた。

(注1) A. G. Croof, J. O. Blomeke, B. C. Finney : "Actinide Partitioning -Transmutation Program Final Report. 1, Overall Assessment ", ORNL-5566 (1980)

(注2) L. Cecille, F. Mammone, F. Mousty : "The Partitioning of High-Acitivity Waste (HAW) Raffinates ", IAEA-SM-246/22 (1981)

(注3) カスタン報告（フランスの使用済核燃料の管理について 1982年1月11日に原子力安全高等審議会に提出された報告書）（1982）

群分離技術の研究開発における基本的な考え方として、高レベル廃液に含まれる核種を3群、すなわち長半減期の超ウラン元素群、崩壊熱のいちじるしいSr-Cs群、及びその他の核分裂生成物群に分離し、それぞれの性状に応じ安定化したのち、処分することを提案した。

各工程に関する研究開発として、超ウラン元素群の分離については、新しい抽出溶媒の採用によって、従来の溶媒における分別の困難さを解決して効率的分離法を開発し、一方、核分裂生成物からのSr-Cs群の分離については、無機イオン交換体を採用することによって、効率的吸着分離法を開発し、さらに、Sr-Cs群吸着交換体を直接処分のための安定固化体に焼成する技術を開発した。

分離の各工程を一つのシステムとしてまとめ、高レベル廃液による実証試験を実施した結果、各群は、いずれも所期の目標値以上の分離度で分離されることを確認した。

並行して実施した群分離システムの安全性解析では、群分離後固化体の潜在的毒性について、ICRP Pub. 2 (1959) の最大許容水中濃度を基準に解析した結果、超ウラン元素群を除く、Sr-Cs群及びその他の核分裂生成物群固化体の毒性は、1000年後においてウラン3%含有鉱石相当以下になることを明らかにした。一方、ICRP Pub. 30 (1980) の年摂取限度に準拠して、我が国における代表的な処分条件を想定した高レベル廃棄物の地層処分における環境影響について、既存コードを改良し、解析した結果、高レベル廃液からのNp-237及びTc-99の分離が新しい課題となることなどを明らかにした。群分離プロセスの経済性解析では、再処理工場内に群分離施設を設ける場合の建設費及び運転費の増加割合を求め、これらの値がそれぞれ数%以内であることなどを明らかにした。

群分離技術研究開発の中間評価として、廃棄物処理処分研究委員会等において、群分離技術研究開発の内容、成果及び将来計画について報告し、有意義なコメントを頂いた後、承認されている。

今後における研究開発計画では、環境影響についての解析結果をふまえたNp-237及びTc-99の分離を考慮した群分離技術の向上を図る。並行して、群分離した核種について、消滅処理や地層処分等を考慮した安定な固化体とする処理法の研究開発と有効利用の為の研究開発を進める。

2. 群分離技術研究開発の目的と考え方

2.1 群分離技術研究開発の主な目的

高レベル廃液中の元素を分離・安定化し、高レベル廃液処理処分の安全性の向上、資源の有効利用等に資する。

2.2 群分離技術研究開発の考え方（図1、図2参照）

国の方針に基づき、以下の考え方で研究開発を進めた。

(a) 高レベル廃液に含まれる元素について、長半減期で人体に取り込まれた際に少量でも影響の大きい超ウラン元素群、発熱の主体となり、しかもガラス固化体からの浸出率が高い Sr-Cs 群、及びその他の核分裂生成物群の3群に分離する（図1参照）。この場合の超ウラン元素についての分離の目標値は、国際的安全評価基準 ICRP Pub. 2 (1959) の最大許容水中濃度 (MPC) をもとに決定する（表1参照）。

(b) 分離した超ウラン元素群については、安定化後処分するか、あるいは消滅処理等により核燃料として利用しつつ処分する。また Sr-Cs 群については、健全性安全性の高い固化体として処分するか、あるいは線源、熱源として有効に利用する。

他の核分裂生成物群に含まれるロジウム、パラジウムなどの貴金属元素については、新たな資源としてとらえ、有効に利用する。

なお、3群への分離技術の研究開発においては、まず、研究としての立場から、各群について分離効率の向上を計り、ついで、その経済性評価を行い今後の研究課題の抽出に努めることとする。

3. 群分離技術研究開発の内容

3.1 群分離技術研究開発の経緯

昭和48年頃から群分離技術の研究開発に着手し、群分離フローの骨格を組立てるための基礎研究を行うとともに、ホット試験を目的とする群分離試験施設の整備を進めた。54年度からは同施設において模擬再処理廃液による群分離法のコールド試験を開始し、引き続いてAm-241及び原研再処理廃液などを模擬再処理廃液に加えたホット試験を実施した。

並行して、高レベル廃液を運搬するための輸送容器の整備とその安全審査作業を進め、56年度には動燃事業団から約30リットル(～300Ci)の高レベル廃液を群分離試験施設に搬入した。57年度からは同廃液によりこれまで開発してきた群分離法の実証試験を進めた。

群分離試験施設の運転と並行して、群分離後各群の安定化固化技術の開発、群分離二次廃棄物の発生量低減化技術の開発、及び群分離処理処分システムの有効性を評価するための安全性及び経済性に関する解析を進めた。

この他、53年頃には高レベル廃液中のロジウム、パラジウムなどの貴金属元素を回収する技術についても研究開発を行った。

3.2 群分離技術研究開発の成果

3.2.1 前処理技術の研究開発

高レベル廃液の前処理技術の研究開発では、模擬再処理廃液を使用し、沈殿物の生成現象並びにギ酸による脱硝反応について研究し、超ウラン元素群の抽出に妨害となるZr、Mo、Teの除去法、並びに亜硝酸塩の添加による脱硝反応の制御法を見出した。

このうち、亜硝酸塩添加法は動燃事業団における高レベル廃液のガラス固化プラントでも採用されようとしている。

3.2.2 超ウラン元素群分離技術の研究開発

高レベル廃液中に残存するU及びPuの分離では、高レベル廃液の脱硝と濃縮調整の段階を経ることにより、効率よくリン酸トリブチル(TBP)で抽出回収できることを見出した。

Am、Cmの分離では、従来の抽出溶媒における沈殿物の生成、逆抽出困難などの問題を解決する抽出法を探査した結果、新しい抽出溶媒としてジイソデシルリン酸(DIDPA)を見出した。脱硝によりpH 0.5にして、高レベル廃液からZr、Moを除去した後、DIDPAによりAm、Cmを効率よく分離できるようになった(図3、図4参照)。

DIDPAの耐放射線性について、Co-60γ線による照射試験により評価したところ、吸収線量にして約 7×10^7 rad(約200Wh/ℓ)までは抽出能力の低下が10%程度に止まることを明らかにした。超ウラン元素群の抽出分離においてDIDPAの受ける吸収線量は、原子炉使用停止後1年間冷却した使用済核燃料の再処理によって発生する高レベル廃液を処理する場合に、1回の使用で

約 7×10^5 rad (約 2 Wh / ℓ) になることを計算によって求め、DIDPA が長期の繰返し使用に耐えることを明らかにした。

3.2.3 Am, Cm と希土類元素との相互分離技術の研究開発

Am, Cm と同時に抽出される希土類元素との分離では、陽イオン交換法を採用し、分離機構を検討した結果、巨大網目構造型樹脂を用いることにより、従来の亜鉛型のイオン交換樹脂の場合よりも、二次廃棄物発生量が少なくなる効率のよい分離法を開発した。

陽イオン交換樹脂の耐放射線性は、Co-60 γ 線による照射試験から、吸収線量にして約 2×10^8 rad (約 600 Wh / ℓ) であることを明らかにした。Am, Cm と希土類元素の分離において、イオン交換樹脂の受ける吸収線量は、1回の使用で約 1×10^7 rad (約 30 Wh / ℓ) であるので、約20回の使用が可能であることを明らかにした。

3.2.4 Sr - Cs 群分離技術の研究開発

Sr - Cs 群の分離では、耐放射線性に優れ、分離に使用した材料が直接処分に適した Sr - Cs の安定な固化体に転換できることなどから、Sr をチタン酸で、Cs をゼオライトでそれぞれ吸着する無機イオン交換体カラム法を開発した。

これにより、二次廃棄物発生量の少ない効率の良い Sr - Cs 群の分離が可能となった。

3.2.5 高レベル廃液による群分離実証試験

溶媒抽出法とイオン交換法を主体とした群分離の各工程をシステムとしてまとめ（図 3 参照），模擬再処理廃液によるコールド試験に引続いて、原研再処理廃液及び動燃再処理廃液によるホット試験を実施した。その結果、Pu については 98 % 以上、Am, Cm については 99.9 % 以上、Sr, Cs については 99 % 以上の回収率でそれぞれ分離されることが明らかとなり、3 群すなわち超ウラン元素群、Sr - Cs 群、その他の核分裂生成物群への分離は、所期の目標どおり達成されることを確認した（表 2 参照）。

今後、抽出溶媒のリサイクル技術、沈殿ろ過技術、イオン交換カラム運転技術などの向上が望まれる。

3.2.6 群分離二次廃棄物処理技術の研究開発

群分離によって発生する二次廃棄物について、分解処理技術を開発した。放射線により劣化した陽イオン交換樹脂は、鉄イオンを触媒として過酸化水素により分解する方法を、また、超ウラン元素群の分離に使用したシュウ酸の廃液は、マンガンイオンを触媒として硝酸により分解する方法を開発した。これによって、それぞれを効率よく分解できるようになった。

この他、低レベル廃液の処理技術の研究開発では、チタン酸及びゼオライトを混合した無機イオン交換体カラムによる処理法を考案し、群分離二次廃液の組成に類似するものとして、原研再処理廃液を用いた試験を実施した。この結果、Sr-90, Cs-137, Pu-239 を含めた大部分の放射性核種が除去できることを確認でき、この方法の有効性を明らかにした。すなわち、群分離二次廃液は、ゼオライト及びチタン酸を混合した無機イオン交換体カラムで処理することによって、超ウラン元素の濃度を 5×10^{-7} $\mu\text{Ci}/\text{m}^3$ (MPC の約 100 分の 1) 以下にすることができ、廃液を蒸発濃縮

した後にセメント固化した時の固化体中の α 放射能濃度は、 10 nCi/g 以下（米国 NRC の簡易処分に相当するケース）にすることができる。

DIDPA 廃溶媒の処理法については、今後の研究開発が必要であるが、TBP の処理法を適用することが可能であると考えている。

3.2.7 群分離後各群の安定化固化技術の研究開発

群分離後の固化体としては、超ウラン元素について酸化物を、Sr-Cs 群について無機イオン交換体焼成体を、その他の核分裂生成物群についてガラス固化体を想定している。これまで特に検討してきた Sr-Cs 群についての固化技術の研究開発では、分離に用いた無機イオン交換体を直接 1000°C 以上で焼成することにより、Sr 及び Cs の浸出率がガラス固化体とする場合の 1000 分の 1 以下となり、安定な固化体が得られることを明らかにした（表 3 参照）。

今後は、Sr-Cs 群を焼成しキャニスターに封入するまでの工学的な技術、超ウラン元素群を酸化物に転換する技術、その他の核分裂生成物をガラス固化体とする技術などの研究開発を進める。

3.2.8 群分離後各群の固化体に対する考察

(1) 固化体発生量

群分離後の各群について、表 4 で想定した固化体とする場合の固化体総量について解析した結果、一般に考えられる高レベル廃液の全量をガラス固化体とする場合に比べて体積は 2 分の 1 以下となり、大きな減容率が得られることを明らかにした。また、10 万年よりも長期にわたる安全性を考慮した処分をしなければならない Am, Cm, Np 酸化物固化体の量は、全量ガラス固化体の約 2000 分の 1 の体積となることを明らかにした（表 4 参照）。

なお、群分離において最終的に発生する低レベル廃液は蒸発缶濃縮をへて、セメント固化するものと仮定すると、セメント固化体を含めた群分離後の固化体総量は、高レベル廃液の全量をガラス固化体とする時の値と同等程度であると試算している。

(2) 固化体の熱特性

超ウラン元素群及び Sr-Cs 群について表 4 に示す固化体を、その他の核分裂生成物群について熱的により過酷な条件である酸化物重量として 50% 含有させたガラス固化体をそれぞれ想定し、種々のサイズの固化体を自然空冷、強制空冷及び地層処分した場合の固化体の表面温度や中心温度を解析した。

固化体の表面温度をステンレス鋼材の鋭敏化が始まる温度である 375°C 以下に設定した時の、自然空冷状態での固化体サイズと表面温度を表 5 に示す。その他の核分裂生成物群固化体は、発熱量の大きい Sr-90 や Cs-137 が除かれていることから、群分離後 5 年においても表面温度が低く、地層処分が十分可能であると考えられる。他の固化体については、長期間の貯蔵が必要であるが、その間、熱源あるいは線源としての有効利用が可能である。

(3) 放射線しゃへい

群分離後の固化体について、輸送や貯蔵を想定した時の γ 線しゃへいを解析した結果、群分離後の固化体が減容されているため、それをしゃへいするのに必要な鉛しゃへい体の重量は、全量ガラス固化体の場合の約 2 分の 1 ですむことを明らかにした（表 6 参照）。

今後は、超ウラン元素群固化体からの中性子による影響等について解析する。また、線源として有

効利用する立場から固化体からの放射線の特性を明らかにして行く。

(4) 固化体についての潜在的毒性

群分離の結果、所期の目標どおり（表1参照）、Sr-Cs群及びその他の核分裂生成物群の1000年後における潜在的毒性指標は、ウラン3%含有鉱石相当以下になる。

3.2.9 群分離システムに関する安全性解析

(1) 高レベル廃液の潜在的毒性解析

高レベル廃液の潜在的毒性指標について、最大許容水中濃度（MPC）を基準とする解析を行ってきた。1980年にICRP Pub. 30により新基準が示され、年摂取限度（ALI）を基準とした解析を行った結果、Np-237に関する毒性がALIによる基準では、従来のMPC基準の場合約240倍に増加し、これまでの分離回収率の目標値では、不十分であることが判った（図5参照）。

(2) 地層処分に伴う環境影響解析

ALIによる基準を取り入れた高レベル廃棄物の地層処分による累積集団線量及び費用対便益について、米国の群分離－消滅処理システムに関する評価（注1）で使用されたAMRAW（Assessment Method for Radioactive Waste）計算コード（注2）を一部改良し、米国の評価と同一ケースで解析した結果（図6参照）、評価期間100万年において、 1.48×10^4 man-rem及び\$622／man-remという値が得られた。後者の値は、原子力プラントの費用体便益効果の問題について、米国10CFR50（注3）の\$1000／man-remのコストですむなら付加施設の建設は正当化されるとする考え方を満足する。

並行して、我が国における処分条件を考慮し、地下水による核種移行を想定し、解析を行った結果、環境に影響を及ぼす可能性のある核種は、超ウラン元素の中でもNp-237が最も重要で、続いて娘核種のU-233、Th-229、またTc-99が主要な核種となることを明らかにした（図7参照）。

これにより、群分離においてはNp-237及び親核種のAm-241、他にTc-99を分離することが重要であることを明らかにした。

3.2.10 群分離プロセスの経済性解析

これまで開発してきた群分離法を、再処理施設より発生する高レベル廃液の処理に適用する場合の、群分離施設の建設費、運転費等のおよその値を求め、今後の群分離技術の研究開発に役立てることを目的として、経済性解析を実施した。

群分離施設は使用済核燃料の処理量4トン／日（800トン／年）の再処理工場内に設置することを想定し、同施設では、高レベル廃液を処理して放射性核種の分離だけを行い、分離した核種の固化

(注1) A. G. Croff, J.O. Blomeke, B. C. Finney : "Actinide Partitioning-Transmutation Program Final Report. 1, Overall Assessment", ORNL-5566 (1980)

(注2) S. E. Logan, M. C. Berbaro : "Development and Application of a Risk Assessment Method for Radioactive Waste Management", EPA 520/6-78-005, Vol. I-N (1978)

(注3) Code of Federal Regulations, Title 10, Part 50, Appendix 1 (1978)

処理及び二次廃棄物の処理処分は、別途施設で行うとして解析した結果、群分離施設の建設費は再処理工場建設費の約 1.1 %、運転費は再処理工場運転費の約 2.9 %にすぎないことを明らかにした（表 7 参照）。

今回の経済性評価においては、群分離のプロセスだけを独立に評価したが、今後はシステム全体としての解析を行うことが望ましい。並行して、簡易化した群分離プロセスの開発もまた重要である。

4. 中間評価における主なコメント

群分離技術研究開発の中間評価に当っては、59年度内に、東海研究所廃棄物処理処分研究委員会、さらにその下部機関である高レベル廃棄物専門部会及び α 廃棄物専門部会において、また、所外的には原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会において、群分離技術開発の成果の概要及び将来計画について報告し、検討頂いた。

これらの部会において述べられた主なコメントを整理すると以下の通りである。

- 1) 群分離技術の研究開発は、高レベル廃液の全量ガラス固化処分を否定するものではなく、将来における代替処理処分技術研究開発の一つとして重要であろう。
- 2) 今回開発された群分離技術では、核燃料として貴重なウラン及びプルトニウムを高レベル廃液から分離回収することができるのでそれ自体でも大きな意義があろう。
- 3) 高レベル廃液を群分離することによって、高レベル廃棄物の処理処分に消滅処理、有効利用等の多様化した対応が可能であること、及び処分が決定するまでの貯蔵の合理化に役立つことをもっと強調する必要があろう。
- 4) 経済性評価では、群分離後の固化体の工学貯蔵や処分を含めた経済性、熱源や線源として利用できることの意義、資源としての貴金属元素を回収できることの意義などを含めた総合的な評価が将来必要であろう。
- 5) 今回開発された群分離技術は、それぞれの工程そのものが汎用性の高いものであると考えられるので、再処理工場や燃料加工工場からの α 廃棄物の処理に応用して行くことが望ましい。

なお、これらの部会において、次章に示す群分離技術研究開発の将来計画が了承された。

5. 群分離技術研究開発の将来計画

今後における群分離技術研究開発の重点項目は次のとおり。

- (a) Np-237 及び Tc-99 の分離を考慮した改良群分離法の研究開発
- (b) 経済性向上を目指した改良群分離法の研究開発
- (c) 群分離後の各成分の性状に応じた安定化処理法の研究開発
- (d) 群分離後の各成分の有効利用の為の研究開発

表8に群分離技術研究開発計画のタイムスケジュールを示す。

4. 中間評価における主なコメント

群分離技術研究開発の中間評価に当っては、59年度内に、東海研究所廃棄物処理処分研究委員会、さらにその下部機関である高レベル廃棄物専門部会及び α 廃棄物専門部会において、また、所外的には原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会において、群分離技術開発の成果の概要及び将来計画について報告し、検討頂いた。

これらの部会において述べられた主なコメントを整理すると以下の通りである。

- 1) 群分離技術の研究開発は、高レベル廃液の全量ガラス固化処分を否定するものではなく、将来における代替処理処分技術研究開発の一つとして重要であろう。
- 2) 今回開発された群分離技術では、核燃料として貴重なウラン及びプルトニウムを高レベル廃液から分離回収することができるのでそれ自体でも大きな意義があろう。
- 3) 高レベル廃液を群分離することによって、高レベル廃棄物の処理処分に消滅処理、有効利用等の多様化した対応が可能であること、及び処分が決定するまでの貯蔵の合理化に役立つことをもっと強調する必要があろう。
- 4) 経済性評価では、群分離後の固化体の工学貯蔵や処分を含めた経済性、熱源や線源として利用できることの意義、資源としての貴金属元素を回収できることの意義などを含めた総合的な評価が将来必要であろう。
- 5) 今回開発された群分離技術は、それぞれの工程そのものが汎用性の高いものであると考えられるので、再処理工場や燃料加工工場からの α 廃棄物の処理に応用していくことが望ましい。

なお、これらの部会において、次章に示す群分離技術研究開発の将来計画が了承された。

5. 群分離技術研究開発の将来計画

今後における群分離技術研究開発の重点項目は次のとおり。

- (a) Np-237 及び Tc-99 の分離を考慮した改良群分離法の研究開発
 - (b) 経済性向上を目指した改良群分離法の研究開発
 - (c) 群分離後の各成分の性状に応じた安定化処理法の研究開発
 - (d) 群分離後の各成分の有効利用の為の研究開発
- 表8に群分離技術研究開発計画のタイムスケジュールを示す。

6. おわりに

昭和59年8月に国の放射性廃棄物対策専門部会のまとめた放射性廃棄物処分方策についてと題する中間報告によれば、長半減期の核種を分離する群分離技術は、高レベル放射性廃棄物の管理の合理化、発生量の低減、資源の有効利用等に資する将来技術であり、当面、原研等において基礎研究を行うものとしている。

今後における群分離の評価では、米国で行われたような消滅処理に直結した評価ばかりではなく、群分離によって長半減期の核種を分離し、将来の安全評価及び技術的発展に対応できる形として貯蔵できることの意義、より小さい体積として、より健全性の高い容器に入れて貯蔵ないし、より安定な固化体として処分できることの意義、貯蔵中の固化体を熱源や線源として利用できる意義などを総合的に評価することが必要であろう。

今後とも、高レベル廃液の処理処分の安全性向上を目指して努力することが必要である。

最後に、本研究開発は群分離研究室 山口五十夫主査、森田泰治研究員、森良平研究員、臨界安全研究室 館盛勝一副主任研究員、製造課 佐藤彰氏、低レベル廃棄物処理処分研究室 青山三郎主査及び外来研究員であった三井金属鉱業（株）佐藤淳和主任研究員、日本電子計算（株）中野国孝課長、出向職員であった三井金属鉱業（株）岡田賢造研究員等によって実施してきたものであり、これらの方々に感謝する。

また、本研究開発の創成期から終始御指導を賜った名古屋大学 天野恕教授、施設の使用に便宜を計って頂いたアイソトープ部 阿部俊彦部長を始めとする RI 製造棟の方々に深く感謝する。

また、本報告書をまとめるに当って御指導を頂いた環境安全研究部 今井和彦部長、及び荒木邦夫次長に感謝する。

7. 主な発表論文、特許等

総説（2件）

- 1) 中村：“再処理高レベル廃液の群分離”，日本原子力学会誌，21，No.4（1979）
- 2) 久保田：“高レベル放射性廃棄物の群分離技術開発の現状”，原子力工業，32，No.4（1985）

外部投稿論文（21件）

- 1) M. Kubota, H. Nakamura, et al. : "Removal of Transuranium Elements from High-level Waste", IAEA-SM-246/24 (1981)
 - 2) M. Kubota, I. Yamaguchi, et al. : "Partitioning of High-level Waste as Pretreatment in Waste Management", Mat. Res. Soc. Symp. Pro., 26, 551 (1984)
 - 3) H. Nakamura, I. Yamaguchi, et al. : "Effects of Platinum Group Elements on Denitration of High-level Liquid", J. Nucl. Sci. Tech., 15, 760 (1978)
 - 4) M. Kubota, I. Yamaguchi, et al. : "Effects of Nitrite on Denitration of Nuclear Fuel Reprocessing Waste with Organic Reductants", J. Nucl. Sci. Tech., 16, 426 (1979)
 - 5) M. Kubota, T. Fukase : "Formation of Precipitation in High-level Liquid Waste from Nuclear Fuel Reprocessing", J. Nucl. Sci. Tech., 17, 729 (1980)
 - 6) S. Tachimori, H. Nakamura, et al. : "Effects of Radiolysis Products of Di(2-ethylhexyl) Phosphoric Acid upon the Extraction of Lanthanides", J. Radioanal. Chem., 43, 53 (1978)
 - 7) S. Tachimori, H. Nakamura : "Application of Synergistic MEMPA-DEHPA Mixed Solvent to the Extraction of Lanthanides", J. Radioanal. Chem., 44, 37 (1978)
 - 8) S. Tachimori, A. Satou, et al. : "Extraction of Lanthanides with Di-isodecyl Phosphoric Acid from Nitric Acid Solution", J. Nucl. Sci. Tech., 15, 421 (1978)
 - 9) H. Nakamura, S. Tachimori, et al. : "Calculation of Distribution Ratios of Rare Earth Elements in Multistage Counter Current Extraction with HDEHP", J. Nucl. Sci. Tech., 15, 829 (1978)
- 他に溶媒抽出関係論文7件、イオン交換分離関係論文2件、二次廃棄物処理関係論文3件

JAERI-M, memo (41件)

- 1) 久保田, 山口, 他：“群分離法の開発：群分離試験装置によるコールド及びセミホット試験”,
JAERI-M 9627 (1981)
- 2) 久保田, 山口, 他：“群分離法の開発：動燃再処理廃液による群分離試験－その1”，
JAERI-M 83-011 (1983)
- 3) 山口, 久保田, 他：“群分離法の開発：動燃再処理廃液による群分離試験－その2”，
JAERI-M 84-070 (1984)
- 4) 中野, 久保田, 他：“群分離法の有効性評価(II)－高レベル廃棄物の地層処分における環境
影響”，JAERI-M 84-132 (1984)

他に JAERI-M 11件, JAERI-memo 26件

特許 (10件)

- 1) 山口, 久保田：“硝酸及び／または硝酸イオンの分解法”，特許出願52-034924
(1977)
- 2) 久保田, 山口：“シュウ酸及び／または硝酸の分解法”，特許出願55-30910
(1980)

他に特許出願8件

表1 超ウラン元素群分離回収率の目標値*

元素	軽水炉燃料	高速増殖炉燃料
U	80 %	80 %
Np	95 %	70 %
Pu	90 %	98 %
Am, Cm	99.0%	99.9%

*超ウラン元素群除去後の高レベル廃棄物固化体
の最大許容水中濃度を基準にした潜在的毒性
指標が1000年後においてウラン3%含有鉱石
相当とする。

表2 群分離各工程での主な元素の挙動

元素	分布割合 (%)				
	TBP 抽出液	沈殿	DIDPA 抽出液	無機イオ ン交換体	交換体 通過液
Pu	98.3	0.02	>1.6	<0.003	<0.00002
Am, Cm	<0.005	<0.01	>99.99	<0.004	<4×10 ⁻⁸
Cs	0.0004	0.3	0.0001	99.7	<0.0001
Sr		0.4		>99.6	<0.001

表3 固化体からのSr及びCsの浸出率

		浸出率 (g/cm ² ・日) 36日後	
元素	1000°C 焼成チタン酸	1000°C 焼成ゼオライト	ガラス固化体
Sr	1.5×10^{-9}		2×10^{-6}
Cs		1.5×10^{-9}	2×10^{-6}

表4 固化体発生量 (使用済核燃料1トン当たり)

群 分 離	超ウラン元素群	Pu, U 酸化物	5.8 kg	0.5 ℥
		Am, Cm, Nd 酸化物	0.7 kg	0.07 ℥
Sr - Cs 群	無機イオン交換体焼成体 (Sr, Cs酸化物約3%含有)	123 kg	28 ℥	
その他の核分裂 生成物群	ガラス固化体 (FP酸化物25%含有)	110 kg	40 ℥	
合 計		240 kg	69 ℥	
全量ガラス固化体 (FP酸化物12%含有)			384 kg	142 ℥

表5 固化体熱解析（群分離後5年経過）

群 *	発熱量 (W) **	固化体サイズ	固化体 表面温度 (°C)
超ウラン元素群	423	直径 : 10 cm 高さ : 40 cm	321
Sr-Cs群	1300	直径 : 20 cm 高さ : 80 cm	307
他の核分裂生成物群	659	直径 : 30 cm 高さ : 120 cm	112

* 固化体の組成は超ウラン元素群及びSr-Cs群について表4と同じ、
他の核分裂生成物群についてFP酸化物50%含有ガラス固化体とする。
**発熱量は33000 MWD/HTU 使用済軽水炉燃料の5.5年冷却時に相当する。

表6 鉛しゃへい体の厚さ、重量

固化体種類 *	形状 cm	しゃへい体厚**cm		しゃへい体 重量 ton	使用済燃料 1 ton 当り重量 ton
		半径方向	鉛直方向		
超ウラン元素群固化体	10φ × 40	17.0	15.4	0.72	0.16
Sr-Cs群固化体	20φ × 80	22.2	20.7	4.20	4.70
他のFP群固化体	30φ × 120	21.9	20.8	6.67	1.60
総計					6.46
全量ガラス固化体	30φ × 120	20.6	19.5	6.03	12.12

固化体の放射線量は33000 MWD/HTU 使用済軽水炉燃料の5.5年冷却時に相当

* 固化体の組成は表5と同じ

** BM型輸送容器に対する線量制限、即ち容器表面で200mrem/h以下、
表面より1mの地点で10mrem/h以下とするのに必要なしゃへい体の厚さ

表7 群分離の経済性解析結果
(再処理工場と群分離施設の比較)

建設費概算 (再処理工場を100とする)	運転費概算(年当り) (再処理工場を100とする)
建屋 0.18	ユーティリティ費 0.38
換気空調設備 0.05	薬品費 1.1
電気設備 0.05	人件費 1.1
計測制御設備 0.18	保守消耗品費 0.27
機器設備 0.18	
機械設備 0.25	
配管設備 0.18	
合計 1.1	合計 2.9

解析の前提条件

- (1) 群分離プロセス対象廃液： 再処理施設より発生する高レベル廃液を対象とする。再処理施設の運転条件は次のとおりとする。
- 1) 処理量： 4 MTU／日 (800MTU／年)
 - 2) 処理燃料： 28000MWD／MTU, 30MW／MTU,
5年冷却
 - 3) 高レベル廃液発生量： 2m³／日
- (2) 群分離施設： 再処理施設の付属設備とする。高レベル廃液を処理して放射性核種の分離だけを行い、各核種の処理処分及び二次廃棄物の処理処分は別途施設とする。
- (3) 施設設計方針： 本施設は再処理施設の付属設備としての性質上、コンパクトなものという前提で、以下の設計方針とする。
- 1) 運転時間： 原則として24時間連続運転とする。
 - 2) 予備機： 廃液供給側に余裕があるものとし、各プロセスについては予備は設けないこととする。但し、各プロセスに必要な機器でメンテナンスの必要性の高いもの（ポンプ等）については予備機を設ける。
 - 3) 機器の容量： 各機器の容量は1日分を原則とし、運転方法を考慮して適切な容量とする。
 - 4) 運転の自動化： 各プロセスのうち運転操作がバッチでなく、連続的なものは極力自動化を図ることとする。

表 8 群分離技術研究開発計画のタイムスケジュール

研究開発項目	年度
	60 61 62 63 64 65 66 67 68 69
(a) Np-237及びTc-99の分離を考慮した改良群分離法の研究開発	基礎試験 モックアップ試験 コールド試験 ホット試験
(b) 経済性向上を目指した改良群分離法の研究開発	基礎試験 モックアップ試験 コールド試験 ホット試験
(c) 群分離後の各成分の性状に応じた安定化処理法の研究開発	基礎研究 トレーサー試験
(d) 群分離後の各成分の有効利用の研究開発	基礎研究 トレーサー試験

細線： RI 製造棟で実施する。

太線： TRU 工学研究棟で実施する。ただし、これを補強するための研究については RI 製造棟で実施する。

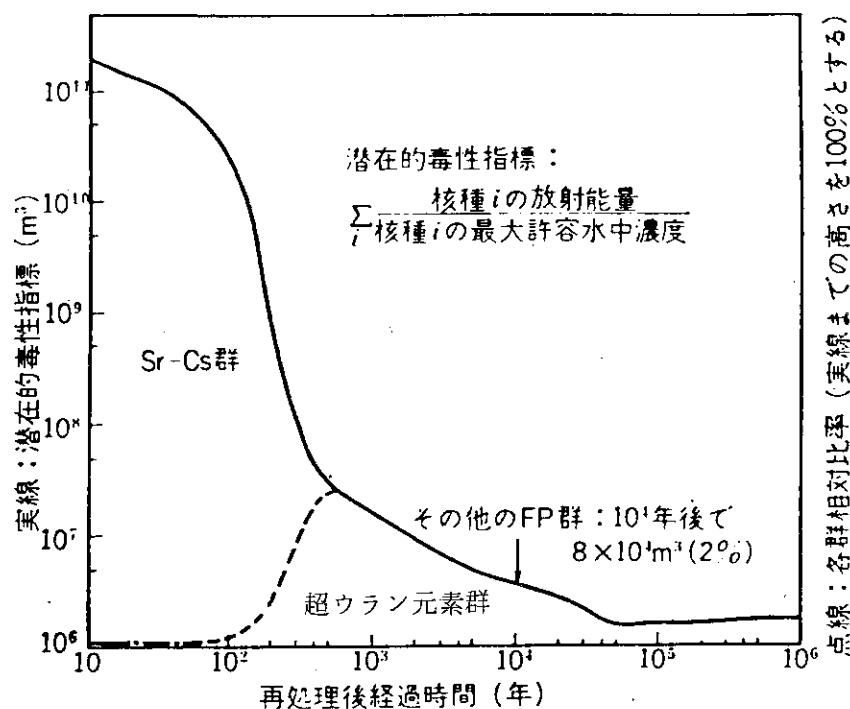


図1 高レベル廃液の潜在的毒性指標変化

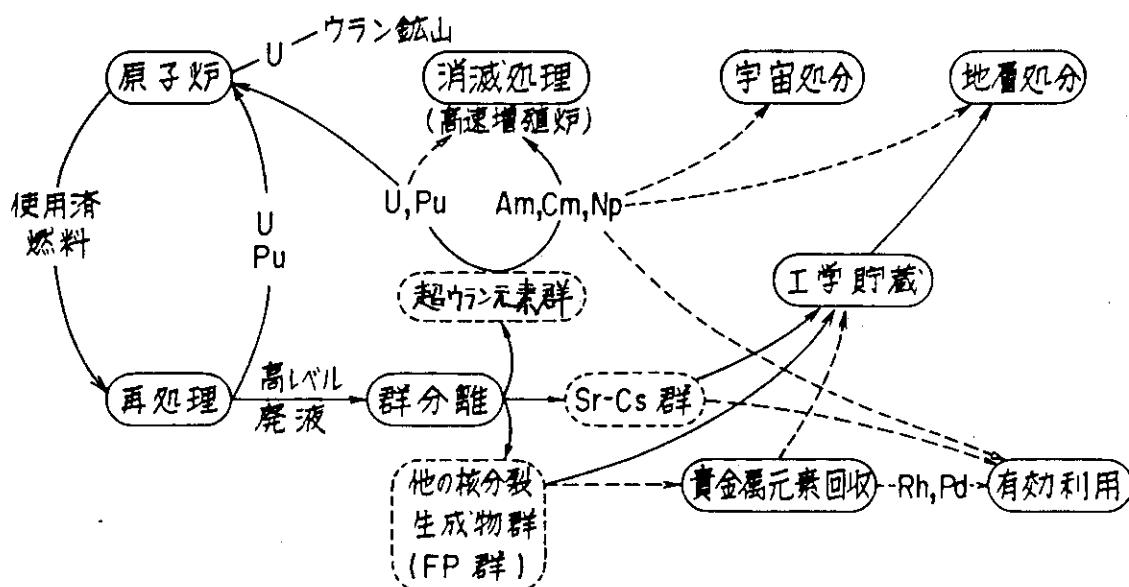


図2 群分離法による高レベル廃液処理処分の概念

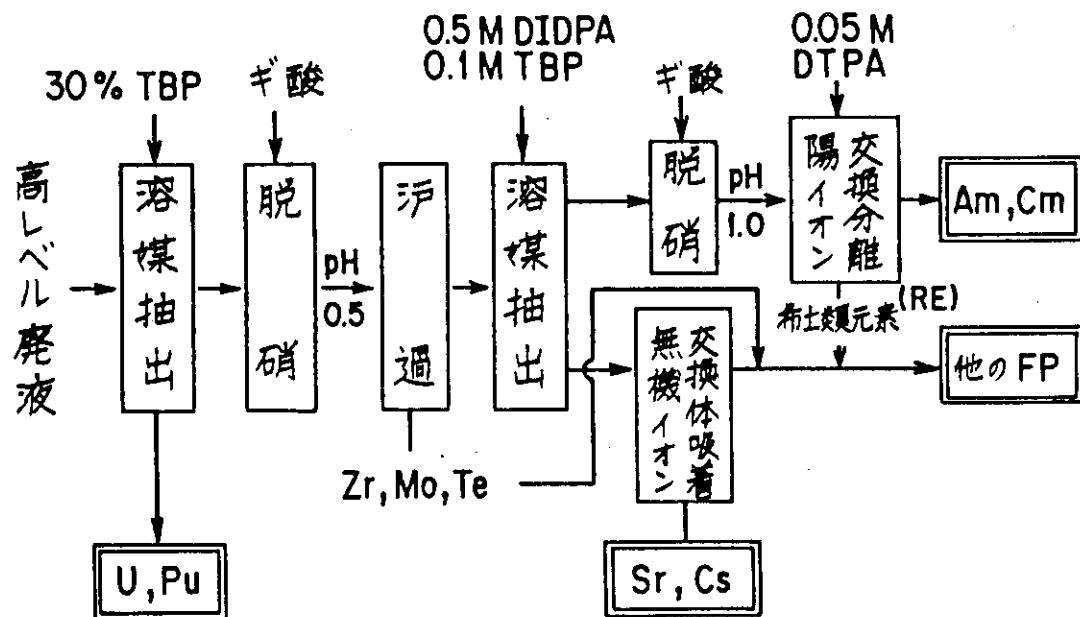
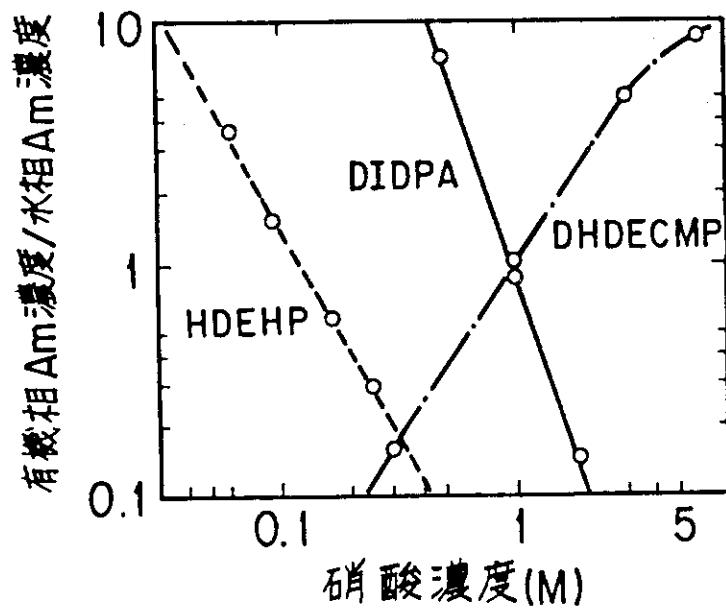


図3 群分離フロー

図4 Am, Cm分離用抽出剤の開発
(Amの抽出特性)

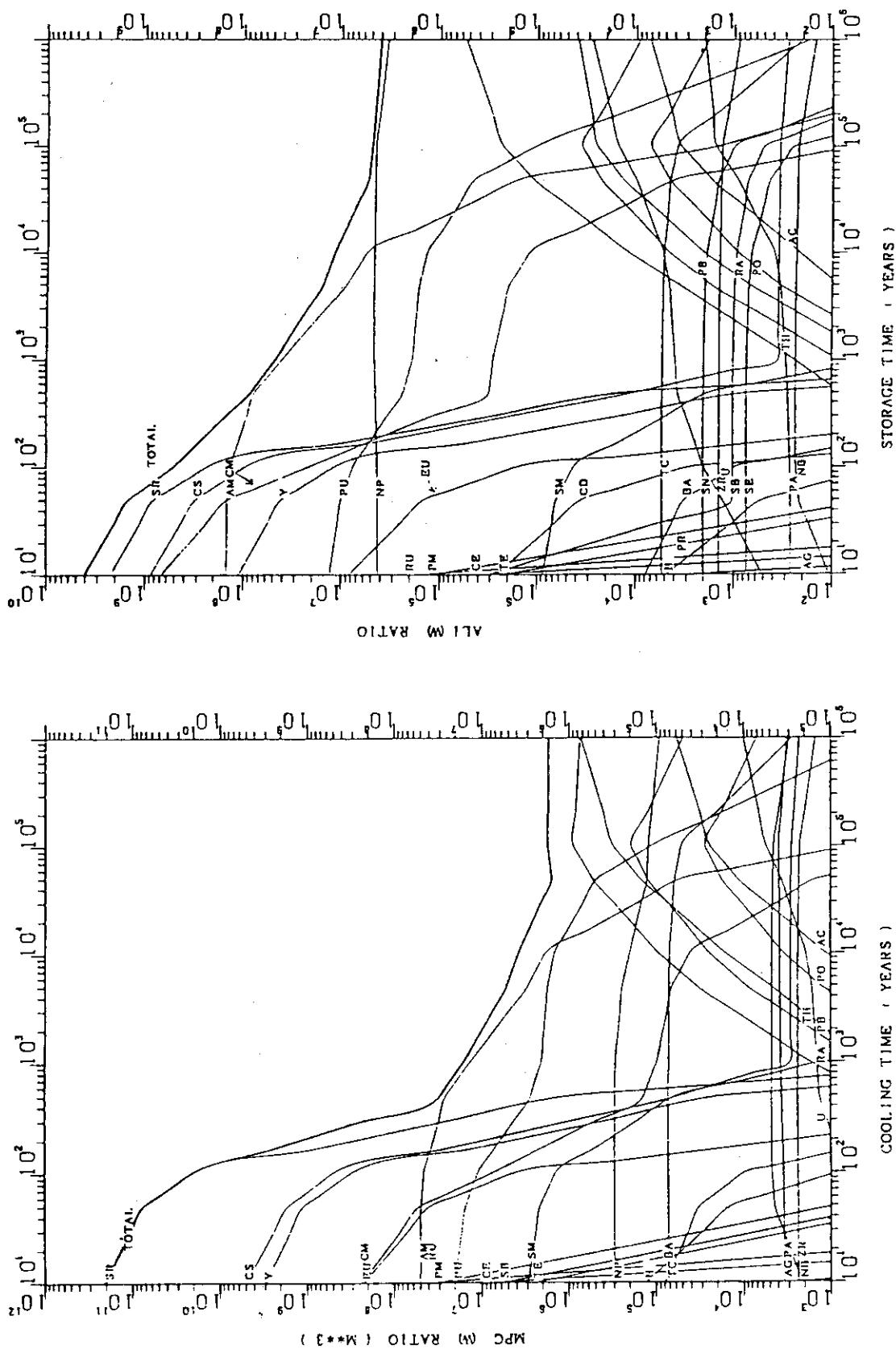


図 5 MPC 又は ALI を基準にした高レベル廃液の潜在的毒性指標の経年変化

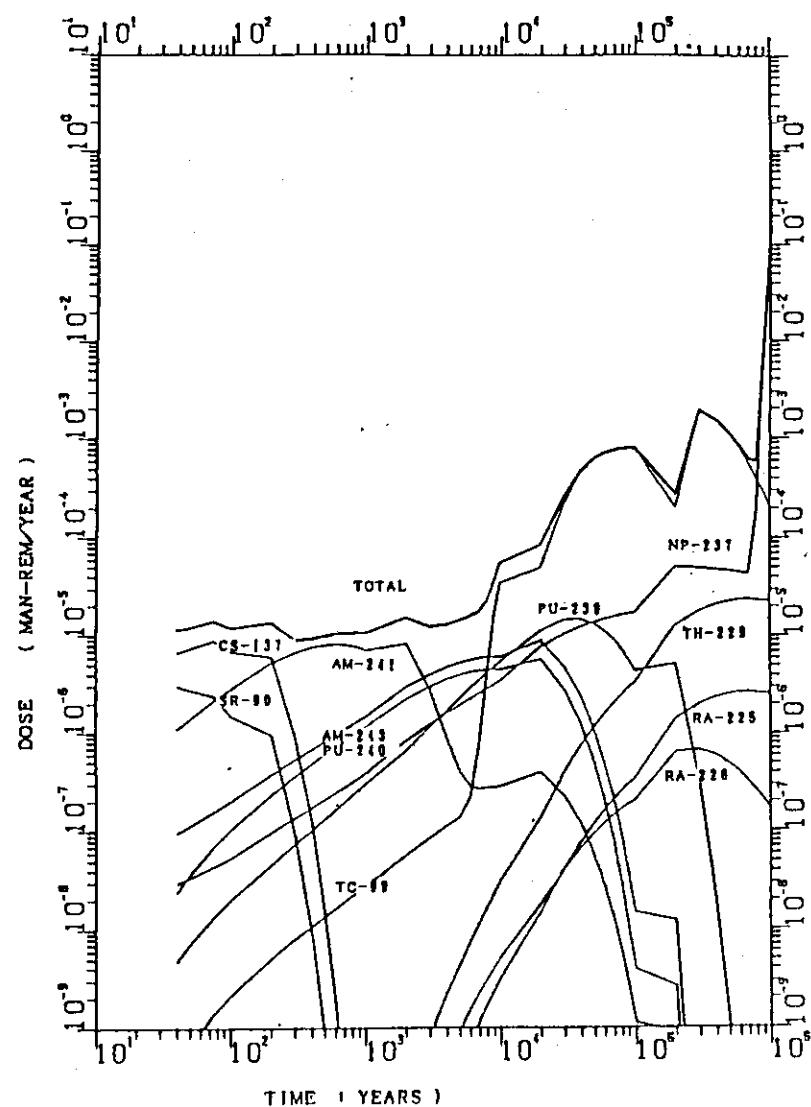


図6 岩塩層処分による累積集団線量に対する主要核種の寄与

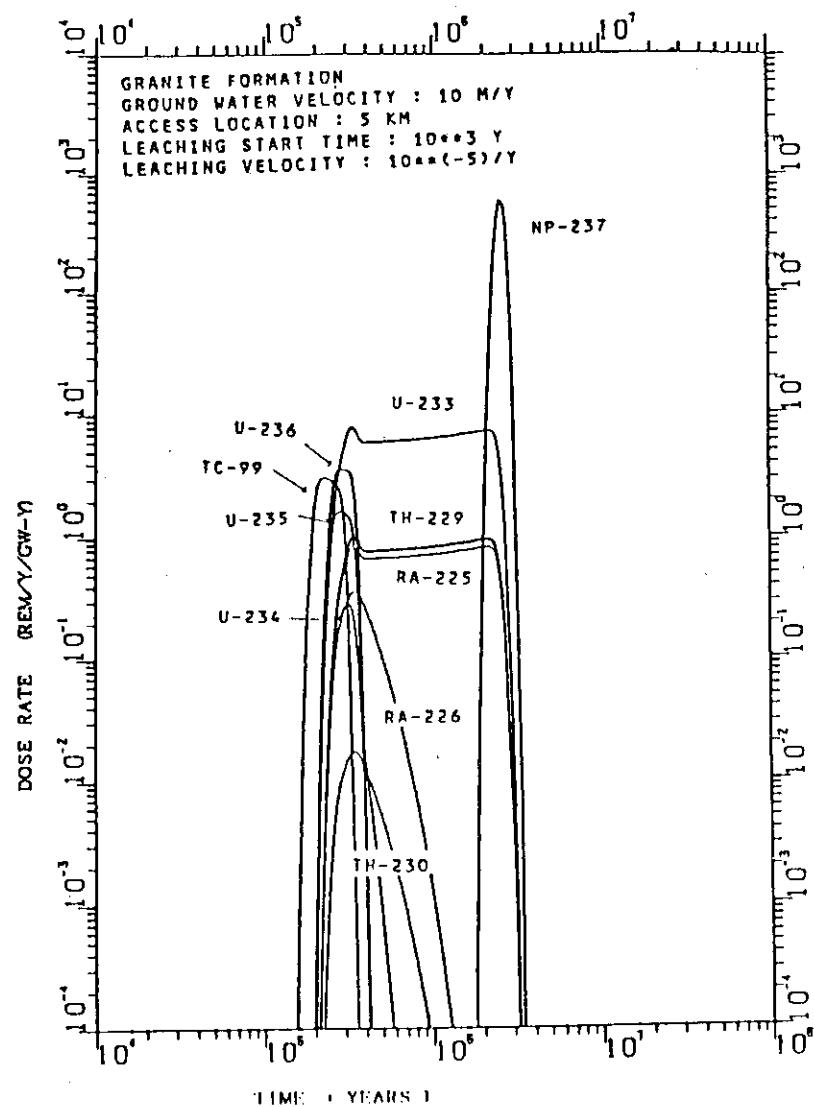


図7 地表表出核種を全て摂取する時の被曝線量の経年変化
(花こう岩層, 表出地点 5 km, 地下水流速 10 m/年, 浸出
浸出開始時期 10^3 年, 浸出速度 10^{-5} /年)