

JAERI-M  
94-067

群分離プロセスの評価研究（Ⅰ）

－ 群分離技術開発の現状 －

1994年3月

近藤 康雄・滝塚 貴和

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

JAERI-M  
94-067

群分離プロセスの評価研究（Ⅰ）

— 群分離技術開発の現状 —

1994年3月

近藤 康雄・滝塚 貴和

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, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1994

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 (株)原子力資料サービス

群分離プロセスの評価研究（I）  
－ 群分離技術開発の現状 －

日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部  
近藤 康雄・滝塚 貴和

(1994年3月7日受理)

群分離・消滅処理技術に関するシステム評価を実施する際の基礎資料を得ることを目的として、群分離技術開発の現状を調査した。群分離の技術開発は、軽水炉燃料を対象としたものと消滅処理用燃料を対象としたものに大別される。軽水炉燃料を取り扱うプロセスについては、Purexプロセスに適合する方法として、湿式群分離法に関する技術開発が米国、欧州、日本を中心に行われ、現在は、プラントとしての成立性を評価するための試験が原研を中心に行われている。消滅処理用の燃料を取り扱うプロセスについては、個々の消滅装置に適合した専用の群分離法を開発することが理想とされ、プロセスの簡素化、臨界安全性の向上、二次廃棄物の低減化等を考慮して高温化学プロセスが選択されることが多い。高温化学法による群分離技術に関するデータの蓄積は湿式法に比べて小さいが、米国、日本を中心に積極的に基礎データの蓄積が行われており、その技術的 possibility についても明るい見通しが得られている。

Technology Assessment of Partitioning Process (I)

- Status of the Partitioning Technology -

Yasuo KONDO and Takakazu TAKITSUKA

Department of Reactor Engineering  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 7, 1994)

In order to collect a good grounding in assessment of the partitioning process, present and future trends on the partitioning technologies were surveyed. The research activities on the partitioning process are devided broadly into two categolies; the process for LWR fuel and the process for transmutation system fuel. Some wet processes, which were attahced to the PUREX process through the high level liquid waste, were designed as the process for LWR fuel in the U.S., Europe and Japan. The engineering data, concerned about separation efficiency, amount of secondary waste, decomposed rate of solvent and so on, has been accumulated at the JAERI. It is to be desired that the partioning process for the transmutation system fuel should be designed as the process exclusive to the indivisual transmutation system. In this case, pyrochemical processes are often introduced because of their simplicity, criticality safety, minimization of secondary waste and so on. The technical data concerned about pyrochemical processing have been accumulated in the U.S. and Japan. These efforts will soon prove the technical feasibility of the pyrochemical processes.

Keywords: Partitioning, Nuclear Waste Management, Fuel Cycle,  
Transmutation, Technology Assessment, P-T Cycle

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 評価方法 .....	2
2.1 群分離技術の研究開発動向の調査 .....	2
2.2 群分離プロセスの評価方法 .....	2
3. 群分離技術の研究開発動向 .....	3
3.1 群分離・消滅処理技術研究開発の沿革 .....	3
3.2 4群群分離プロセスの概要 .....	3
3.3 国内外における群分離技術の研究開発動向 .....	13
4. 群分離プロセスの評価 .....	60
4.1 群分離プロセスに関する評価研究の歴史的経緯 .....	60
4.2 群分離プロセスの比較評価 .....	61
4.3 群分離プロセスの技術的可能性の評価 .....	69
4.4 技術開発課題 .....	73
5. まとめ .....	93
文 献 .....	94
付 錄 .....	97

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Procedure for Assessment .....	2
2.1 Survey of Present and Future Trends on the Partitioning Technology .....	2
2.2 Procedure for Assessment of Partitioning Process .....	2
3. Present and Future Trends on the Partitioning Technology .....	3
3.1 Historical Review on the Partitioning and Transmutation Technologies .....	3
3.2 Concept of Partitioning Process at JAERI .....	3
3.3 Present and Future Trends on the Partitioning Technology in the World .....	13
4. Assessment of Partitioning Process .....	60
4.1 Historical Review on System Study of Partitioning Process ...	60
4.2 Comparison of Partitioning Processes .....	61
4.3 Technical Feasibility of Partitioning Process .....	69
4.4 Technical Issues .....	73
5. Summary .....	93
References .....	94
Appendix .....	97

## 1. はじめに

群分離・消滅処理技術の研究開発は、広範に亘る研究分野を網羅し、かつ開発すべき技術の新規性が高いことが特徴であり、研究開発を効果的、効率的に進めるためには、研究開発の進展に応じて、適宜、現状の技術レベル、リスク、安全性、社会的受容性等を総合的に考慮したシステム評価を行い、開発フェーズに促した主要課題の摘出・解決を図ることが重要となる。

群分離・消滅処理技術のシステムとしての成立性の評価は、群分離・消滅処理の意義、すなわち、何のために群分離・消滅処理を行うのかによって大きく変わり得る。群分離・消滅処理の研究を実施している国々では、将来の研究開発の方向を見定めるために、予備的なストラテジー研究およびシステム研究を実施しているが、本格的なシステム評価研究を実施するまでには至っていない。わが国においても、群分離・消滅処理技術のシステム評価の重要性については幾度も指摘され、これまでの技術的可能性を見きわめるための技術的検討に加えて、システムとしての成立性を評価するためのシステム評価を実施することが大きな課題となっている。

原研における群分離・消滅処理技術に関するシステム評価研究は、まさに緒についたばかりであり、シナリオの有効性や経済性等を判断するための基準や個々のプロセスの技術評価方法等、システム評価に必要となる基本的枠組みを構築するところから始める必要がある。

本報告書は、群分離・消滅処理技術に関するシステム評価を将来実施する際に必要となる基礎資料を得ることを目的として、原研で提案した4群群分離プロセスを含め、これまでに各国で提案された群分離プロセスを網羅的に概査し、群分離の対象元素、元素の分離効率、消滅処理用燃料製造との関係、二次廃棄物の発生量等の定性的な比較評価を行った。また、群分離の意義を放射性廃棄物、特に高レベル廃棄物の処理・処分との関連から幾つか仮定し、技術的に見た場合のシナリオの成立性および技術開発課題についても定性的な検討を行った。なお、本報告書では、群分離・消滅処理技術のうち群分離技術についてのみ評価し、評価はすべて定性的なものとした。

## 2. 評 價 方 法

### 2.1 群分離技術の研究開発動向の調査

群分離技術開発の現状を把握するために、原研で提案した4群群分離プロセスを含めて、これまでに各国で提案されている主要な群分離プロセスを網羅的に抽出し、以下の項目を中心に各プロセスの概要を調査した。

- ①群分離の対象元素とその分離効率
- ②プロセスのフローシート
- ③技術開発の到達点

### 2.2 群分離プロセスの評価方法

#### 2.2.1 群分離プロセスの比較評価方法

群分離技術開発の状況は各国によって異なり、各プロセスの比較評価を定量的に行うにはデータが不足している部分も多い。このため、本報告書では、これまでに提案されている群分離プロセスをPurexプロセスとの関係から4つの概念に分類し、以下の項目について定性的な比較評価を行った。また、この比較評価の結果に基づいて、4群群分離プロセスの定性的評価を試みた。

- ①群分離対象元素
- ②元素(核種)の分離効率
- ③消滅処理用燃料製造との関係
- ④二次廃棄物の発生量

#### 2.2.2 群分離プロセスの技術的可能性の評価方法

群分離プロセスの技術的可能性の評価は、群分離の意義、すなわち何のために群分離を行うのかによって大きく変わり得るものである。本報告書では、群分離の意義を放射性廃棄物、特に高レベル廃棄物の処理・処分との関連から以下のものを仮定し、各場合の技術的可能性およびシナリオの成立性について定性的な検討を行った。

- ①ガラス固化体の減容化を目指す場合
- ②高レベル廃棄物の管理負担の軽減化を目指す場合
- ③将来的な使用済燃料の処理・処分方法に柔軟に対応できる高レベル廃棄物の処理・処分方法の確立を目指す場合
- ④高レベル廃棄物の無害化または弱害化を目指す場合

#### 2.2.3 技術開発課題の抽出

群分離プロセスの比較評価および技術的可能性の評価結果を基に、群分離技術に関する技術開発課題を抽出・整理した。

### 3. 群分離技術の研究開発動向

#### 3.1 群分離・消滅処理技術研究開発の沿革

群分離・消滅処理(P-T:Partitioning-Transmutation)の研究は、1950年代の終り頃に米国のオークリッジ国立研究所(ORNL)においてラジオアイソトープ生産の一環として大量の核分裂生成物の製造・利用計画が建てられたのが始まりといえる<sup>(23)</sup>。たまたま、この頃に米国西部のハンフォード地区で、軍用再処理で発生した高レベル廃液を貯蔵していたタンクが冷却操作の不手際から破損して廃液の一部が漏れ出す事故があり、これを契機に廃液中のCsとSrを取り出す工程の実用化研究が実施され、ハンフォードとオークリッジの双方にパイロットプラント規模の施設が建設された。同じ時期にCsとSrの放射能を核反応を利用して消滅させられないかという試算的な活動も行われている。この頃から1970年代前半にかけてこの研究課題は米国内の国立研究機関、大学に徐々に広がっていき、それぞれ別々の立場で多くの調査または試算的な活動が行われた。その後、1970年代にはいってすぐに、「超ウラン元素を核燃料サイクル廃棄物から群として分離し、これを短半減期核種に変換する方式の可能性を調査する」プロジェクトが米国政府直轄の計画として開始され、米国内の多数の研究機関が参加するとともに、ヨーロッパ諸国の関心をも惹き起こすこととなった。

ヨーロッパでは、フランスが独自の計画として「高レベル廃液から大量に分離したCsを放射線源として利用しよう」という計画(エラン計画)を推進しようとしていた<sup>(24)</sup>。また、ヨーロッパ共同体(EC)の共同研究機関であるイタリアのイスプラ研究所を中心となって、これに西ドイツが主たる協力国となる形で超ウラン元素の群分離とその消滅処理についての研究開発がEC諸国間の共同研究として実施され、1977年および1980年にEC主催の会議がイスプラ研究所で開催された。

日本では、日本原子力産業会議が木村健二郎東京大学名誉教授を座長とする「核分裂生成物等総合対策懇談会」を昭和48年(1973年)に発足させ、足掛け2年に亘る調査結果の報告の中で、「群分離・消滅処理」の必要性を指摘しており、同じ頃から原研で先ず群分離法の研究が開始され、次いで消滅処理法の研究も始められた。

このように、群分離・消滅処理研究は1970年代は世界的に活況を呈したが、1980年早々に米国のORNLが経済性およびトータルの安全性についての効果に疑問があるというチェック・アンド・レビュー結果を公表したのを皮切りに<sup>(25)</sup>、同様な見解が国際原子力機関(IAEA)<sup>(26)</sup>およびEC<sup>(27)</sup>から相次いで公表され、欧米諸国ではこの課題に関する研究活動は全面的否定はされないものの下火となっていました。しかし、基礎研究的な部分についての研究活動は現在でも続けられている(表11参照)。以下に、国内外で提案された主な群分離プロセスの概要について述べる。

#### 3.2 4群群分離プロセスの概要

##### 3.2.1 技術研究開発の目的と考え方

原研における群分離に関する研究開発は昭和48年(1973年)頃に開始され、当初は国際放射線防護委員会(ICRP)が定めた、最大許容水中濃度(MPC)を基準にした高レベル廃棄物の潜在的毒性指標に基づき、廃棄物の処理処分の安全性向上を目的として、図1に示す3群群分離プロセスに関する

る研究開発が実施された<sup>(5)</sup>。

3群群分離プロセスでは、高レベル廃液の長期にわたる潜在的毒性を低下する面から、使用済燃料再処理後の高レベル廃液中に含まれる元素を、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、およびその他の元素群の3群に分離する研究がおこなわれた。3群群分離プロセスについては、昭和54年(1979年)より模擬廃液によるコールド試験が行われ、引き続いて実廃液によるホット試験が実施された。その結果、Puについては98%以上、Am,Cmについては99.99%以上、Sr, Csについては99%以上の回収率で分離されることが明かとなり、有効性が確認された。また、昭和57年度(1982年)から59年度(1984年)にかけて、開発された3群群分離プロセスのシステム全体の評価が実施され、高レベル廃棄物固化体の発生量が全量をガラス固化体とする場合に比べて、表1に示すように約2分の1に低減できること、群分離プラントを再処理工場に併設すれば、その建設費や運転費は再処理工場の建設費や運転費の数%にすぎないこと、および超ウラン元素を除いた固化体の潜在的毒性は、1000年後においてウラン3%含有鉱石相当以下になることなどが明らかにされた。

その後、昭和53年(1978年)のICRP Publication 30において、従来のMPCに代わって、年摂取限度(ALI)が勧告され、ALIを基準とした高レベル廃棄物の潜在的毒性指標(それぞれの核種の放射能の、経口による年摂取限度に対する比)による評価および地層処分に伴う環境影響評価が昭和55年(1980年)に行われ、高レベル廃液からのNp-237およびTc-99の分離が、新しい課題であることが明らかにされた<sup>(6)</sup>。これは、昭和53年(1978年)に公表されたALIを決定する際のNp-237の毒性評価が、昭和34年(1959年)に公表されたMPC決定時の評価に比べ約250倍も厳しくなったこと、および高レベル廃棄物を地層処分した場合Tc-99が環境中へ移行しやすいことによるものである。

昭和59年度(1984年)には、以上の成果について国レベルでの中間評価を受け、昭和60年からは、Np-237、Tc-99の分離を重点とした4群群分離プロセス(超ウラン元素群、Tc-白金族元素群、Sr-Cs群、およびその他のFP元素群)の研究開発に着手した<sup>(7)</sup>。4群群分離プロセスでは、従来の高レベル廃棄物の処理処分における安全性の向上および廃棄物発生量の低減化だけを目的とするのではなく、高レベル廃液中に含まれる元素を貴重な資源として捕らえて有効利用を図るという目的も含まれている。

### 3.2.2 群分離対象元素

群分離の対象となる元素は、3群群分離法と4群群分離法で多少異なる点もあるが、ここでは4群群分離法における対象元素について記述する。前述の通り、原研で開発を進めている群分離プロセスは、高レベル廃液処理処分の安全性の向上を主目的として研究開発が進められてきたことから、群分離の対象元素およびそれらの分離目標値も高レベル廃棄物の処理処分における安全性の向上と管理の合理化の面から選ばれている場合が多い。

#### (1) 核種の半減期からの検討

使用済燃料の中には、核分裂生成物(FP)と超ウラン元素(TRU)が生成しているが、その中で半減期が1年以上のFP核種の一覧表を表2に示す。U-238の半減期(45億年)より長い半減期

の核種は安定核種であるとみなすと、半減期が10年から45億年未満のF P核種の生成量は、燃料1ton当たり約4kgであり、これはF P生成量の約12%に相当する。PWRおよびLMFBRにおいて生成されるマイナーアクチノイド(MA:超ウラン元素のうちPuを除いたNp,Am,Cm等をまとめてマイナーアクチノイドと呼ぶことがある)の組成と生成量を表3に示す。PWRでは、Np-237の生成量が多いが、再処理までの時間が長い場合にはAm-241の生成量が多くなる。FBRではAmの存在割合が非常に大きくなる。これらMAを廃棄物として見た時にはその半減期が長いことが問題となる<sup>(8)</sup>。

## (2) 高レベル廃棄物の潜在的毒性からの検討<sup>(9)</sup>

ICRPが定めた最大許容水中濃度(MPC)および年経口摂取限度(ALI)に基づく、使用済燃料(PWR燃料、3.3%濃縮ウラン、熱出力:30MW/MT、燃焼度:33.000MWD/MT)1ton当たりの高レベル廃棄物について求めた潜在的毒性指数(HI:Hazard Index)の経年変化を図2および図3に示す。ここで、潜在的毒性指数とは(1)式および(2)式で定義される値である。

$$\text{MPC基準のHI : H.I.}_{\text{MPC}} = \frac{\text{核種iの放射能量 (Bq)}}{\text{核種iの水中最大許容濃度 (Bq/m}^3)} \quad (1)$$

$$\text{ALI基準のHI : H.I.}_{\text{ALI}} = \frac{\text{核種iの放射能量 (Bq)}}{\text{核種iの吸入による年摂取限度 (Bq)}} \quad (2)$$

MPC基準の指標は、使用済燃料1ton当たり発生する放射性核種の放射能を最大許容限度まで希釈するために要する水の量を示し、核種の毒性の指標となるものである。ICRP2では、最大許容濃度は吸入物質の溶、不溶および器官別に値を与えており、ここではその中より最も厳しい値を選択し計算している。最大許容濃度は、この濃度の水を標準人が50年間摂取した場合、最大許容身体負荷量(MPBB)に達するとされるもので、影響の最も大きいと考えられる決定器官について評価されることになる。

一方、年摂取限度は預託線量当量の新しい概念を用い、より現実に近い代謝モデルで導かれたものである。預託線量当量は摂取された放射性物質が50年間に標準人の器官に与える線量当量を荷重係数で重みづけした後、全器官について総和したもので与えられる。ALIは50mSvの預託線量当量を与える各核種の年間摂取の限度量を示すものである。したがって、ALI基準の指標は燃料1ton当たりの放射能生成量による線量当量に比例するものと考えられ、また、相対的には潜在的リスクに対応づけられると考えてよい。なお、ALIは吸入粒子状物質の化学的分類、吸入後の吸収の割合等で单一核種について複数の値が与えられているが、H.I. ALIの算出にあたっては、これらのうち最も厳しい値を使用している。

図2に示したMPC基準の毒性指標では、～100年まではSr、Csおよびその娘核種の危険性がほとんどを占め、これらは～500年までに急激に減少する。その後はAm,Puが主要な核種となり、ゆ

るやかな減衰をたどるが～2万年以後はTh, Ra, Pbが主要となる。全核種の総危険指数でみると、～500年間で4桁、 $10^5$ 年で5桁程度減少する。一方、図3に示したALI基準の毒性指数では、数百年間はMPC基準の場合と同様にSr, Csが主要であるが、Cmがそれに続く高い毒性を示している。それ以後Am, Puが主要となり、～2万年以後にはMPC基準の場合と同様にTh, Pb, Raの危険性も高くなるが、Np-237(半減期214万年)の危険性は、ほぼ一定の危険性を持ち、～1万年後は最も危険性の高い核種となる。また、Tc-99(半減期21万年)やI-129(半減期1600万年)といったFP核種もほぼ一定の危険性を持ち、長期的な潜在的毒性を評価する上で無視できない。また、全体の傾向をMPC基準の場合と比較すると、危険指数の減少の度合いは緩やかとなり、～500年で1.5桁、 $10^5$ 年でも3桁程度である。

危険指数H.I.<sub>MPC</sub>はこれまで高レベル放射性廃棄物の核種の潜在的毒性を示す指標として、種々の論文でとりあげられてきているが、H.I.<sub>ALI</sub>はその後の歴史の蓄積によるALIの概念に基づくものであることから、4群群分離プロセスのシステム評価ではALI基準の指標が潜在的放射性毒性指標として用いられている。

### (3) 高レベル廃棄物の地層処分における環境影響評価からの検討

高レベル廃棄物を地層処分した場合の環境影響評価を行うために、高レベル廃棄物の地層処分における潜在的事象に対する確立論的解析および地層処分における地下水による核種移行の決定論的感度解析を実施している<sup>(10)</sup>。解析では米国EPAの評価例<sup>(11)</sup>における使用データを採用し、地下800mの岩塩層に発電量1GW-Y当たりの全量ガラス固化体を処分した場合について、火山活動、火山爆発、ダイアストリーム(火山ガスの爆発によって作られた火道)および隕石落下の急速過程、および活断層での地下水による緩慢な核種移行(緩慢過程)による環境影響の比較、各過程で重要な主要な核種について評価した。

累積集団線量に対する各事象および主要核種の寄与を表4に示す。急速過程の事象毎の集団線量の経年における傾向は、約6000年までは火山活動、火山爆発、ダイアストリームであり、それ以後活断層の地下水による核種の緩慢な地層移行での被曝が急激に増加する。累積集団線量は $10^6$ 年の評価期間では99.5%が活断層によるものになる。

急速過程での被曝線量の経年変化は緩やかな増加であり、 $10^6$ 年では $10^3$ 年の値の約5倍となる。急速過程の中では火山活動による被曝が最も大きく全体の8割以上を占め、次に火山爆発が続き、これより約1桁低くダイアストリーム、隕石落下の順である。火山活動による被曝線量が火山爆発の約6倍になっているのは、主に火山活動が核種を地表、地表水に直接放出し緩慢な環境崩壊により消失するのに対し、火山爆発による核種の大気中への放出では大気拡散により短期的に希釈され一部が地表に沈着するためである。また、火山活動の累積集団線量でみた場合に被曝で重要な核種は、評価期間が $10^3$ 年の場合Am-241によるものが全体の約66%を占め、Cs-137が12%、以下Am-243、Pu-240と続く。 $10^4$ 年まではAm-243、Pu-240、Pu-239、Am-241の順であるが、 $10^5$ 年以後はNp-237が最も高くなり $10^6$ 年ではNp-237だけで全体の63%に達する。

一方、活断層での地下水による緩慢な核種移行による累積集団線量については、評価期間 $10^6$ 年までに生物圏に現れ被曝に影響を及ぼすのはTc-99、Np-237であり、 $10^5$ 年まではTc-99によるものが100%、 $10^6$ 年までは70万年より表出するNp-237の影響によるものが95%になる。この過程で

は短寿命核種は生物圏に表出する前に地層中で崩壊し、また遅延係数の大きい他の長寿命核種は $10^6$ 年の評価期間ではまだ生物圏に到達していない。

以上を総合すると、高レベル廃棄物の地層処分における核種の地層移行による累積被曝線量よりみた場合、群分離での重要な分離対象核種としては、Np-237、次いでAm-241、Pu-239、Pu-240の分離が最重点になり、他に娘核種のU-233、Th-229およびTc-99等が重要であるといえる。

#### (4) 元素の有効利用からの検討

高レベル放射性廃棄物中に含まれる有用核種(元素)と主な利用法を表5に示す<sup>(12)</sup>。高レベル廃棄物中に含まれる核種・元素の主なものについては、それぞれについて利用の可能性がある。

このように種々の利用法が考えられる中で、現在有効利用が期待されている核種とその利用法について以下に示す。

##### ①エネルギー源(主として熱源)としての利用

放射性物質は放射線エネルギーの吸収によりその温度が上昇するため、これを利用して発電や暖房が可能となる。米国では高レベル廃液から大量に得られるSr-90を利用して原子力電池を実用化し、1960年代初めから北極圏の気象観測基地で使用を開始し、現在では電気出力500Wにも達するシステムが20年以上も無人のままで使用できる技術にまで成熟している<sup>(13)</sup>。また、このシステムは、海上石油ステーション、通信中継拠点、宇宙開発等への利用も可能である。この種の利用法は、原理的には放射性核種なら何でも利用可能であるが、存在量や特性の観点からSr-90とCs-137の利用実績が多い。

##### ②放射線源としての利用

放射線(放射性同位元素)の利用は、原子力平和利用の当初から開発が積極的に進められ、主な利用分野としては、37PBqオーダーの線源を利用する食品照射や汚泥照射、および370GBq以下の小線源を使用した品種改良、医療、蛍光X線分析、レベル測定、密度測定、厚さ測定等がある。大規模利用の線源としては、現在Co-60が一般的に使用されているが、Co-60はAECLがCo-59を重水炉で照射して独占的に生産しており供給が限られている。このため、米国の照射処理産業界は使用済燃料の再処理で副産物として得られるCs-137の利用に関心を持ち、Hanford Engineering Development Laboratory(HEDL)では軍用再処理廃液よりCs-137を分離し、回収したCsを1967年以来塩化物としてキャップセルに封入して保管している<sup>(14)</sup>。1985年時点で1481本のキャップセルに封入されたCs-137が Waste Encapsulation and Storage Facility(WESF)のプールに貯蔵されており、キャップセルに封入されたCs-137は\$0.1/37GBq(\$0.1/Ci)で購入できるとされている。また、米国では、Cs-137のWESFキャップセルの大量利用として下水汚泥の殺菌に応用し、都市区域の下水処理に広く利用する計画もあったが、1) Cs-137線源は水に溶けやすく、取扱いが難しい、2) Co-60線源に比べエネルギー出力が低いため線源が大きくなる、3) 現在の照射装置はCo-60線源の利用を前提としているため、Cs-137線源を利用するためには照射装置の改良を要する、等の理由から計画は当初の予定通りには進んでいないようである。

##### ③原材料資源としての利用

高レベル廃液中に含まれる元素の中には、その含有量が天然産(鉱石)からの生産量に対して無視できないものもあり、これらの元素については原材料資源としての利用も考えられる。使用

済燃料中には白金族元素のうち、Ru、Rh、Pdおよび近縁元素で自然界にはほとんど存在しないTcが含まれる。前3者の利用方法は工業的に十分確立済であるが、そのほとんどがロシアと南アフリカ共和国で産出されることから、これらを使用済燃料から回収する著しいインセンティブが発生することになる。ちなみに、米国ではこれらの白金族元素は戦略物質に指定されており、プルトニウムの国際拡散防止や天然ウラン資源の供給過剰の理由から原子力発電用燃料の商業用再処理を中止したにもかかわらず、別の観点から再処理の必要性が認められるという現象も生じている<sup>(15)</sup>。

周知の通り白金族元素は、古くから装飾品や義歯に使用されてきたが、現在ではエレクトロニクス機器、航空機エンジン等にも使用されるようになり、特に自動車の排気ガス浄化装置の触媒に使用されるようになってからは需要が飛躍的に増大している。これらの元素について、日本での年間輸入量と六ヶ所村に建設が進められている民間再処理工場(PWR燃料、800ton/年処理)での処理量を比較すると以下の通りとなり、白金族元素は使用済燃料からの回収により十分資源としての利用が可能であると考えられる。

	日本の年間輸入量(1984年)	六ヶ所村で1年間に処理される量
Ru	2.7トン	1.7トン
Rh	1.8トン	0.37トン
Pd	39.1トン	1.1トン

また、テクネチウムは天然にほとんど存在しないため従来の貴金属ではないが、使用済燃料1ton当たり約770グラム生成し、その防食機能や触媒作用から資源の乏しい白金族元素の工業的利用を肩替わりできる元素として期待されている。例えば、水に微量のTc-99を添加すると鋼材の腐食を長期間防止できることが確認されており、原子炉冷却水系統や耐酸性容器等への応用が考えられる。さらには、診断用ラジオアイソトープ、有機化学分野での触媒としても有効であることが知られている<sup>(16)</sup>。

#### ④その他

高レベル廃液に含まれるものではないが、再処理工場の燃料溶解工程の排ガス中には、希ガス元素であるクリプトンやキセノンが含まれる。燃料1ton当たりでみるとクリプトンは多くなく、用途としても放電管程度にすぎないが、キセノンは5kg近く存在し、ほとんどが非放射性である。キセノンは工業や医薬での利用でなじみが深いが、現状では供給を酸素製造工場の液体空気の分溜工程に依存していることもあって、価格が高いのが利用法の発展を妨げているきらいもあり、再処理工場での有効な回収方法の確立が期待されるところである。

### 3.2.3 群分離の目標値

3.2.2で示した検討より、群分離の対象となる元素は以下のようになるまとめられる。

#### (1)高レベル廃棄物のより合理的な処分システムの確立から見た場合

- ・高レベル廃棄物の潜在的毒性を低減化する … 超ウラン元素、Tc-99、I-129
- ・地層処分したときの環境影響を低減化する … Np-237、Am-241、Pu-239、

Tc-99、U-233、Th-229

## (2) 元素の有効利用から見た場合

- ・熱源・線源としての利用 … Cs-137、Sr-90
- ・貴重な資源としての利用 … Tc、白金族元素
- ・その他の有用元素 … Xe

これらの群分離対象核種の内、高レベル廃液から分離する際の回収率の目標値が設定されている元素(核種)およびその目標値を表6に示す。これらの分離目標値は、図5および図6に示した高レベル廃液中に含まれる元素(核種)の放射性毒性の経年変化に基づいており、これらの元素を除いた後の高レベル廃液をガラス固化体(使用済燃料1ton当たり142L、384kg)としたときの1000年後における潜在的毒性がウラン3%含有鉱石(密度をガラス固化体と同じにする)相当以下となるように設定した値である。なお、ウラン3%含有鉱石の $\alpha$ 放射能強度は、ウランの娘核種がすべて永続平衡にあるとすれば、鉱石1g当たり約80nCiである。

一方、資源として有効利用が考えられている元素、すなわち白金族元素やキセノン等についての分離回収の目標値は特に設定されておらず、むしろ現状の技術においてどの程度まで分離可能であるかを追求している段階であるといえる。

## 3.2.4 4群群分離プロセスのフローシート

これまでにも述べてきた通り、原研では、高レベル廃棄物の処理処分における安全性の向上および有用元素の有効利用の2つの観点から、群分離対象元素および分離回収目標値を設定し、高レベル廃液の群分離プロセスの開発を進めている。現在開発中の4群群分離プロセスの概略フローを図4に示す<sup>(5)</sup>。4群群分離プロセスとは、使用済燃料の再処理施設より発生する高レベル廃液(通常Purexプロセスから放出されるTBPラフィネートを濃縮・脱硝して得られる高レベル濃縮廃液をさす)を群分離の出発物質として、高レベル廃液中に含まれる元素を、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、数百年にわたって発熱の主体となり、ガラス固化体からの浸出率の高いストロンチウム-セシウム群、有用元素であるテクネチウム-白金族元素群およびその他のFP群の4群に分離しようというものである。これらの各群の分離技術について以下に示す幾つかの方法が原研において開発されている。

## (1) 超ウラン元素群の分離法

- ①溶媒抽出法 … ジイソデシルリン酸(DIDPA)を抽出剤とした溶媒抽出法<sup>(17)</sup>
- ②沈殿法 … 超ウラン元素のシュウ酸塩が難溶性であることを利用した沈殿法<sup>(18)</sup>

## (2) テクネチウム-白金族元素群の分離法

- ①脱硝沈殿法 … 高レベル廃液をギ酸を用いて脱硝することにより、テクネチウムおよび白金族元素を還元し、沈殿として回収する方法<sup>(19)</sup>
- ②活性炭吸着法 … 活性炭に高レベル廃液を通液し、テクネチウムおよび白金族元素を選択的に吸着させて分離する方法<sup>(20)</sup>

## (3) ストロンチウム-セシウム群の分離法

- イオン交換分離法 … チタン酸-ゼオライト混合無機イオン交換体に高レベル廃液を通液し、ストロンチウムおよびセシウムを選択的に分離する方法<sup>(21)</sup>

現在開発している4群群分離プロセスは、図4に示すようにこれら4群を一つのプロセスにおいて連続的に群分離していくというものであり、各群の分離法としてどの分離法を採用するかによって4つの分離プロセスが考えられる。ここでは現時点において最も適した4群群分離プロセスとして位置づけられているケースについて詳細に解説する。

### (1) 高レベル廃液

4群群分離法の出発物質である高レベル廃液については、使用済燃料の再処理施設から放出される4種類の高レベル廃液(高レベル濃縮廃液、不溶解残渣廃液、アルカリ濃縮廃液、アルカリ洗浄廃液)のうち、高レベル濃縮廃液のみを対象として考えている。これは、不溶性残渣廃液は、液性が不溶解残渣の懸濁液であることから本群分離プロセスに適さず、また、アルカリ濃縮廃液およびアルカリ洗浄廃液については、群分離の対象となる元素の濃度が極めて低いことから別プロセスによる処理が適していると考えているためである。想定している高レベル濃縮廃液の組成の一例を表7に示す。

### (2) 脱硝・沈殿ろ過工程(前処理工程)

4群群分離プロセスでは、その開発目的の関係から超ウラン元素群の分離回収目標値が最も高く設定されている。このため、各群を連続的に分離していく上で超ウラン元素を最初に分離し、回収率を高める努力がはらわれている。超ウラン元素群の分離技術として、本プロセスではDIDPAによる抽出分離を想定している。DIDPAにより超ウラン元素を分離する場合、処理時の高レベル廃液の硝酸濃度は0.5M程度が適していることから、超ウラン元素の抽出分離に先だって、高レベル廃液の硝酸濃度を2Mから約0.5Mに調整する必要がある。このための方法として本プロセスでは、廃棄物の発生量を増加させない、処理前後で溶液量が変化しないこと等を考慮して、ギ酸による脱硝法を考えている。なお、ギ酸脱硝法により酸濃度を調整した場合、高レベル廃液中に含まれる大部分のZr、Mo、Te、Puおよびその他のFP元素が若干沈殿することから、これらの沈殿物をろ過により分離する必要がある。また、沈殿中に移行したPuについては、超ウラン元素を工程内に分散させないという観点から何らかの方法で沈殿より回収し、超ウラン元素群の流れ(ストリーム)に戻してやる必要がある。

### (3) 超ウラン元素群分離工程

4群群分離プロセスでは、酸濃度を約0.5Mに調整した高レベル廃液に過酸化水素を添加しながらDIDPAを用いて超ウラン元素を抽出することにより、超ウラン元素の内で最も分離が困難とされるV価のNpをも含めてすべての原子価の超ウラン元素を一括抽出分離することを考えている。この方法によると、超ウラン元素の99.95%以上を抽出分離することが可能であるが、希土類元素の大部分も同時に抽出される。このため、分離した超ウラン元素を用いて、消滅処理用の燃料(ターゲット)を製造しようとする場合には、超ウラン元素と希土類元素を何らかの方法により分離する必要がある。超ウラン元素と希土類元素の分離工程を含めた分離プロセスのフローを図5に、バッチ実験の結果から推定した各希土類元素の除染係数の推定値を表8に示す。超ウラン元素と希土類元素の相互分離は、Talspeak法と同じ手法を用いており、水相に錯形成剤であるDTPA(diethylene triamine pentaacetic acid)を用いて逆抽出操作をおこなうと、Am、Cm等の超ウラン元素は希土類元素よりも優先的に逆抽出され水相に濃縮される。この方法により分離されるAm、Cmへの希土類元素の混入率は、Am、Cmを99.99%分離回収する条件で約10%に抑えられる。

## (4) テクネチウム-白金族元素群分離工程

テクネチウム-白金族元素の分離は、DIDPA抽出後の抽残液を前処理工程と同様にギ酸を用いて脱硝し、溶液のpHを2以上に調整することにより白金族元素であるRh、Ru、Pdのほぼ100%および大部分のTcを沈殿として回収することができる。この方法は、二次廃棄物の発生も少なく、運転制御および工程管理が比較的容易であるが、脱硝時に多少共沈する元素があるため、共沈元素の除染方法を考える必要がある。また、白金族元素およびTcは原材料資源として有効利用が考えられていることから、脱硝により生成した沈殿中よりこれらの元素を単離・精製する方法についても今後検討する必要がある。

## (5) ストロンチウム-セシウム群分離工程

テクネチウム-白金族元素を脱硝により沈殿させた溶液より沈殿を分離した後、ろ液の酸濃度をpH 3以上に調整し、この液をチタン酸とゼオライトを重量比4:1で混合させた無機イオン交換体カラムに通液することにより、チタン酸によりSrをゼオライトによりCsを選択的に99.9%以上の効率で吸着分離することができる。また、CsおよびSrを吸着させたイオン交換体を1000°C以上の温度で焼結すると処分に適した安定固化体となることから、本方法では二次廃棄物がほとんど発生しないというメリットがある。ただし、本方法によりこれらの元素を分離した場合、他の元素が同時に吸着する場合があり、技術的問題としては一緒に吸着した他の元素との相互分離法を確立する必要がある。本工程が、テクネチウム-白金族元素群の分離工程の後におかれているのも、処理する高レベル廃液中に白金族元素が含まれているとセシウムおよびストロンチウムの分離の際に白金族元素が同時に吸着分離されるためである。

## 3.2.5 4群群分離プロセスの物質収支

以上述べた各群の分離法を用いた4群群分離プロセスの概略フロー図6に、表6に示した分離回収率の目標値とこれまでの試験データより予想される各分離対象元素の回収率を比較したものを表9に示す。なお、表9に示した各元素の回収率は、Purex プロセスから放出された高レベル廃液中に含まれていた初期元素濃度を100%としたものである。

4群を一つのプロセスにおいて連続的に群分離するのではなく、各群のみを分離する試験においては、各群の分離工程における元素の回収率は、設定した群分離の目標値を満足している。一方、図6のフローにしたがって、4群を一つのプロセスで連続的に分離する場合には、最初の工程で分離される超ウラン元素群については群分離の目標値を満足した分離・回収率が得られるだろうが、二番目および三番目の工程で分離されるテクネチウム-白金族元素群およびストロンチウム群では実際の回収率は目標値に比べてやや低くなると予想される。これは、Tc、Ru、SrおよびCsについては、超ウラン元素群の抽出前に実施する脱硝時に一部が共沈すること、Rhについては一部がDIDPAに共抽出されることが大きな原因である。

各元素群を分離・回収したときに得られる各群の形態および分離によって発生する2次廃棄物を表10に示す。超ウラン元素群は、いずれも水溶液の形で分離回収され、AmおよびCmが4M硝酸溶液、PuおよびNpが0.8Mシュウ酸溶液の形で回収される。Tcおよび白金族元素については脱硝沈殿物として粉体の形で回収されるが、沈殿はこれらの元素が混合した状態であり、沈殿の組成も明らかになるまでには至っていない。SrおよびCsは群分離フローの項でも述べたように、

チタン酸およびゼオライトの混合無機イオン交換体に吸着した状態で回収される。 いずれの元素群においても 2 種類以上の元素(核種)が混合した状態で回収されるため、特定の元素(核種)のみを分離・回収したい場合には、本プロセスに単離・精製プロセスを付加する必要がある。 また、二次廃棄物については、超ウラン元素の分離工程で廃溶媒が発生するのが大きな点であり、その他の工程では二次廃棄物の発生量はわずかであるといえる。

なお、ここに示した各元素群の分離回収率は、昭和54年度(1979年)から実施された、3群群分離プロセスの実廃液によるホット試験、模擬廃液による試験、および昭和59年度(1984年)より実施している4群群分離プロセスについての模擬廃液による種々の試験結果を基に推定した値であり、これらの値の妥当性を検討するには、今後4群群分離プロセスの実廃液によるホット試験およびプラント規模での大量処理実験を進めていく必要がある。

### 3.2.6 核燃料サイクルと群分離プロセスの関係

4群群分離プロセスは使用済燃料の再処理と切り離して考えることはできず、何らかの方法により群分離プロセスと再処理プロセスとを結合する必要がある。 2つのプロセスを結合する方法として、(1) 使用済燃料の再処理をおこない、ウランとプルトニウムを回収した後で高レベル廃液から目的とする元素や核種を回収する、再処理-群分離分割型プロセスと、(2) 使用済燃料からウランやプルトニウムを取り出す、いわゆる再処理工程の中に目的とする元素や核種を取り出す工程を組み込んだ、高度化再処理プロセス概念とが存在する。

再処理-群分離分割型プロセスの一例を図7に示す。 この場合には再処理プロセスは現行のままでよく、再処理工程から放出される高レベル廃液を群分離することになる。 超ウラン元素のうち、プルトニウムおよびネプツニウムの分離は、現行の再処理プロセス(Purex プロセス)の微修正で抽出分離可能であるが、AmおよびCmの抽出にはその化学的特性よりTBP以外の抽出溶媒が必要であるうえに、共抽出される希土類元素との分離のために逆抽出工程も必要となる。

4群群分離プロセスでは、Am、Cmも重要な群分離対象元素として捉えていることから、再処理プロセスはそのままにして、高レベル廃液から目的元素・核種を分離する、再処理-群分離分割型により現行再処理プロセス(Purex プロセス)と結合することを基本としている。

また、群分離により得られた各群のうち、テクネチウム-白金族元素群およびストロンチウム-セシウム群については分離後固化・安定化し有効利用を、他のFP元素群についてはガラス固化後処分されることになるが、超ウラン元素群については、いわゆる群分離・消滅処理サイクル(P-Tサイクル)に組み入れ、超長半減期の核種を短半減期または非放射性の安定核種に核種変換(消滅処理)した後に最終処分されることになる。 どんな消滅処理方式でも一回の処理で対象核種を100%消滅させてしまうことは不可能であり、一定期間システム内で照射を受けた燃料やターゲットを取り出し、未処理分を分離・回収・成形後再度炉内ヘリサイクルする工程を繰り返す必要がある。

P-Tサイクルを組み込んだ高レベル廃棄物の処理処分サイクルの概念図を図8に示す。 原研における群分離研究は、消滅処理とは切り放した形で行われ、目的元素群をいかに効率よく分離するかということに重点が置かれてきたことから、群分離プロセスの研究開発者側からはP-Tサイクルの概念についての提案はおこなわれていない。 わずかに消滅処理プロセスの研究開

発者側より、図9に示す専焼炉を組み込んだ階層核燃料サイクルの概念が提案されているにすぎない<sup>(22)</sup>。このサイクルの第1階層サイクルは通常の燃料サイクルであり、熱出力3,000MWの軽水炉13~14基において年間生成されるMA約300kgを第2階層サイクル(P-Tサイクル)の専焼炉で核分裂させると同時に約350MWの発電をおこなうことができるとしている。ただし、消滅処理の研究開発者側では、この専焼炉燃料サイクルでは、MA燃料は高い $\alpha$ 崩壊熱と中性子放出率とを有するので、燃料サイクル施設は専焼炉と一体化し得るコンパクトなものとなることが望ましく、高温化学再処理法を採用するのが望ましいとしている。

### 3.3 国内外における群分離技術の研究開発動向

#### 3.3.1 湿式群分離プロセス

##### 3.3.1.1 Npのみの分離プロセス

Npは使用済燃料溶解液中では、主にV価の原子価状態にあって、このままの状態ではTBP溶媒に抽出することはできない。実際のPurexプロセスでは、硝酸の放射線分解によって生成する亜硝酸などが触媒となって、Npの一部が硝酸によって酸化され、VI価のNpとなってTBPに抽出される。同様にCe(IV)などの酸化剤を加えた場合にもNpを抽出することができる。

酸化剤として0.05M-V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を用いたNpの分離プロセスのフローを図10に示す<sup>(28)</sup>。この方法では、VI価に酸化されたNpは、UおよびPuと共にTBPに抽出され、Puの分離工程でUのフラクションに定量的に流入する。このU-Npフラクションを0.5M硝酸と接触させるとNpは硝酸溶液に逆抽出される。こうして得られたNpは直接Npターゲットの製造に利用可能であるとされている。

しかし、酸化されたVI価のNpは容易にV価の状態に戻りやすく、強力な酸化剤を常に共存させない限り、98%以上のNpを回収することは難しい。また、たとえ全てのNpを再処理段階で分離できたとしても、Np-237の親核種であるAm-241やCm-245などを同時に回収しなければ、Np分離の意義は半減する。特に、使用済燃料中のAm-241の量は、Np-237の量の約50%以上であり、この核種がやがてNp-237に転換してゆくことを考えるならば、Amなどとの同時回収は避けられない課題となる。

##### 3.3.1.2 超ウラン元素の分離プロセス

Purexプロセスで使用するTBP溶媒を使用してAmやCmを分離することは不可能に近い。このため、TBP以外の新しい溶媒を使用する新型再処理法を開発するか、またはPurexプロセスで発生する高レベル放射性廃液から超ウラン元素を分離する必要がある。現在のPurexプロセスを主体とした再処理プラントに大きな影響を及ぼすことなく、超ウラン元素を分離するためには、後者の方が適当であり、そのための研究開発が各国で進められてきた。以下に提案されている主なプロセスを紹介する。

##### (1) ヨーロッパ共同体(EC)で開発されたプロセス

ヨーロッパ共同体では、原子力関係の研究開発センターとして、Joint Research Centerを設置している。この中心研究機関であるイスプラ研究所において、高レベル廃液から超ウラン元素を分離する方法として、TBP抽出法、HDEHPプロセスおよびシュウ酸塩沈殿(OXAL)法

の3つのプロセスに関する研究がほぼ並行して実施されてきた。

### ① TBP抽出法<sup>(29)</sup>

プロセスの基本フローを図11に示す。高レベル廃液中の硝酸濃度をギ酸を用いた脱硝により約1Mに調整し、TBPによりU・Pu・Npを選択的に抽出する。次に、高レベル廃液の酸濃度を0.2Mに調整し、同時に0.54MのAl(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>および1MのNaNO<sub>3</sub>を塩析剤として添加する。するとAmおよびCmがⅢ価の希土類元素とともに30% TBPードデカン中に共抽出され、これをpH3に調整した0.5M-DTPA(ジエチレントリアミン4酢酸)+1Mグリセリン溶液と接触させることによりAmおよびCmが選択的に逆抽出される。

本プロセスでは、脱硝工程において約25%のPu、0.3%のAmおよびCmが沈殿する。逆抽出により回収されるAmおよびCmの回収率は約99%であるが、Am-Cmフラクションには約70%のCe-144、約85%のEu-154が混入する。また、Am-CmフラクションにはRu-106およびCs-137のγ線放出核種が含まれる。

Am-Cmと希土類元素の相互分離は、0.3M-HDEHP(ジ(2-エチルヘキシル)リン酸)-0.2M-TBPを用いてTALSPEAKプロセスにより行い、希土類元素のみをHDEHPにより抽出し、Am-Cmは水相に残すことになる。ただし、得られるAm-Cmの純度はこのままではP-Tプロセスには適用できないとされている。加えて、本方法では塩析剤としてAl(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>およびNaNO<sub>3</sub>を高レベル廃液に添加する必要があるが、抽出後のガラス固化を考えた場合、これらの塩がガラス固化に対して悪影響を及ぼすことが考えられる。

### ② HDEHPプロセス<sup>(30)</sup>

プロセスの基本フローを図12に示す。高レベル廃液中の硝酸をギ酸による脱硝により分解し、pHを2に調整する。脱硝により生成した沈殿をろ過した後、0.3M-HDEHP-0.2M-TBP-ドデカンにより、超ウラン元素と希土類元素を抽出分離する。その後有機相より、pH3の状態で、1M-グリセリンの0.05M-DTPA溶液によりAmおよびCmを逆抽出する。次に、5M-硝酸で希土類元素を、0.8M-シュウ酸でPuを逆抽出し、抽出溶媒を1M-炭酸ナトリウムで洗浄することにより、残りのU、NpおよびRuが炭酸ナトリウム溶液に抽出分離される。本プロセスは、CEN-FARにおいて典型的な組成を有する実高レベル廃液を用いて、ホット試験が行われている。脱硝工程において、約7%のPuが沈殿するが、AmおよびCmの99%は硝酸溶液中に残留する。HDEHPプロセスでの抽出操作が非常にうまくいった場合、高レベル廃液から99.4%のAmおよびCmを回収することが可能である。AmおよびCmのDTPA溶液への逆抽出もほぼ定量的に行えることが確認されている。また、Am-CmフラクションへのFPの混入割合も比較的少ないとされている。

しかし、HDEHPプロセスにおけるPuの抽出効率は、溶液のpH依存性が非常に高く微妙なpH制御が必要であるうえ、γ線およびα線照射による溶媒劣化も問題となり、10<sup>8</sup>radの被曝で約5%の溶媒が劣化するとされている。また、本プロセスでは全工程においてPuの付着が生じ二次α廃棄物を発生すると共に、高レベル廃液の酸濃度をpH領域まで下げなければならないことから、溶液中で大量の沈殿が生成することも大きな問題となる。このため、本プロセスは分析化学的にしか興味がもたれていないのが現状である。

### ③ シュウ酸塩沈殿(OXAL)法<sup>(31)</sup>

本プロセスはJRCで開発され、イスラム研究所においてホット試験が行われている。プロセス

の基本フローを図13に示す。高レベル廃液にギ酸と同時にシュウ酸を加えて脱硝することにより、AmおよびCmを沈殿として回収するのがメインプロセスである。沈殿物は8M硝酸で溶解した後、TBPによりPuおよびNpを抽出し、抽残液はギ酸脱硝により酸濃度を~2Mに調整し、HDE HPプロセスと同様の方法により希土類元素と超ウラン元素を抽出分離する。また、脱硝時に沈殿しないで溶液中に残ったPu、AmおよびCmについては、陽イオン交換樹脂カラム法により回収する。

脱硝後の高レベル廃液中の硝酸濃度が0.7~0.8Mの場合、AmおよびCmは定量的(99.9%)に沈殿し、脱硝後の硝酸濃度がこれより高い場合には一部のAmおよびCmが沈殿するだけである。また、約96%のPuおよび10%の他のFPが共沈する。

シュウ酸塩沈殿法は単純なプロセスであり、他の方法に比べて二次廃棄物の発生量が少ないという利点を持つが、沈殿する元素に選択性がなく、ギ酸-シュウ酸の混合液によるステンレス鋼の腐食が無視できないという欠点もある。このため、本方法は、抽出分離時の溶媒劣化を低減するために、前処理プロセスとして利用することが検討されている。

## (2) 米国で開発された群分離法<sup>(25)</sup>

### ① オークリッジ国立研究所における群分離フロー

米国では、オークリッジ国立研究所が幹事機関となり、諸機関の協力のもと、再処理廃棄物、燃料製造施設廃棄物を対象に超ウラン元素の群分離、長半減期FP(I-129, Tc-99)の分離、および消滅処理に関する評価を実施し、1980年にその結果をエネルギー省(DOE)に報告している。

オークリッジ国立研究所で研究が進められた群分離プロセスの基本フローを図14に示す。再処理プロセスから放出される高レベル廃液からは、二座配位子抽出剤であるCMP(ジ・ヘキシル-N,N-ジエチルカルビルメチレンリン酸)によりⅢ価の超ウラン元素と希土類元素を抽出し、その後陽イオン交換カラム法により両者を相互分離している。

再処理で発生する他の廃棄物からの超ウラン元素の分離として、被覆管材のハルや燃料溶解時に発生する不溶解性残渣については、硝酸-フッ化水素溶液で洗浄することにより、HEPAフィルターや消却灰については硝酸-Ce(IV)で洗浄することにより溶出分離している。また、再処理プロセスの有機溶媒洗浄工程で発生する炭酸ナトリウム等の塩溶液中にも超ウラン元素が含まれており、これについては2-エチルヘキサンオール(2-EHOH)により塩溶液より有機物質を抽出した後、TBPによりU・Pu・Npを、CMPにより残りの超ウラン元素と希土類元素を抽出するフローを提案している。

TBPによる抽出、硝酸-フッ化水素での溶出、陽イオン交換樹脂による分離は原子力の分野では十分実証されているものとして、CMPによる抽出プロセスについて再処理実廃液を用いた小規模試験が、また2-EHOHによる抽出および硝酸-Ce(IV)への溶出についてトレーサーレベルの試験が実施された。その結果、高レベル廃液からはCMPによりⅣ価の超ウラン元素が99.99%以上、Ⅲ価の希土類元素が99.9%以上抽出できること、HEPAフィルターおよび消却灰からは硝酸-Ce(IV)処理により超ウラン元素がそれぞれ99.99%および95%回収できること等が明らかにされた。

また、本プロセスの問題点としては、陽イオン交換樹脂の放射線による劣化等があげられている。

## ②TRUEXプロセス<sup>(32)</sup>

CMPと同様の二座配位子抽出剤であるCMPO(Octyl-phenyl-N,N-di-isobutyl-carbamoyl-methyl-phosphine oxide)を用いたTRUEXプロセスがアルゴンヌ国立研究所で開発されている。CMPOはこれまで述べた抽出剤と比較して、高硝酸濃度の高レベル廃液から効率的に超ウラン元素を抽出できることが大きな特徴である。このため、通常のプロセスでは超ウラン元素の抽出分離に先だって酸濃度を調整する必要があるが、CMPO系の抽出剤の場合、多くの種類の廃液に対して酸濃度調整無しに適用できるという大きな利点が生じる。また、CMPO-TBP-パラフィン系の抽出剤を用いることにより、高レベル廃液中のⅢ、Ⅳ、Ⅵ価の超ウラン元素を一括分離できることから、この系の抽出剤を用いた改良型Purex法はTRUEXプロセスと呼ばれている。図15に0.2M-CMPO-1.4M-TBP-C<sub>12</sub>-C<sub>14</sub>パラフィンを抽出剤とした典型的なTRUEXプロセスのフローシートを示す。本プロセスでは、高レベル廃液にシュウ酸を添加しZrおよびMoの共抽出を抑制しているが、希土類元素およびTcがAm-Cmフラクションにある程度混入することは避けられない。このため、これらの元素をAm-Cmと相互分離するために、イオン交換プロセスが必要となる。

CMPO-TBP溶媒中に共抽出されFPおよび不活性な不純物は、0.25~1M硝酸により洗浄でき、Am-Cmフラクションは、希土類元素とともに0.05M硝酸により回収できる。ちなみに、抽出段8段、スクラブ段4段の条件でのAmの除染係数は10<sup>4</sup>以上であり、提案されているフローシートに従えば、高レベル廃液中のAmの濃度を40nCi/gまで原理的には下げることが可能である。しかし、本プロセスでは、Am-CmフラクションとPu-Npフラクションを分離するために、非常に腐食性の強い硝酸-フッ化水素溶液を用いなければならず、装置を設計する際に特殊な材料を用いなければならず、この点が弱点として指摘されている。

なお、動力炉・核燃料開発事業団では、昭和62年(1987年)頃よりTRUEX法のTBPラフィネートへの適用性について検討を進めており、これまでに、使用済燃料の再処理で発生したTBPラフィネートを用いた試験により、CMPOがAm、PuおよびCmの抽出に優れた溶媒であり、それらの99.9%以上を分離できることを明らかにしている<sup>(33)</sup>。また今後の課題として、Am-Cmと希土類元素の相互分離、CMPOからのPuの逆抽出、Npの抽出率の向上、抽出時の第3相生成の原因解明等をあげている。

## (3)その他の方法

これまで述べた方法のほかに、高レベル廃液から超ウラン元素を分離するためのいくつかのプロセスが提案されている。図16はスウェーデンのChalmers工科大学で開発されたCTHプロセスのフローを示したものである<sup>(34)</sup>。本プロセスは、抽出剤に1M-HDEHP in keroseneを用いたプロセスであり、高レベル廃液の酸濃度調整時に沈殿が生成することを避けるために、TBPにより硝酸を抽出し酸濃度を調整する点が大きな特徴である。高レベル廃液の酸濃度を6Mに調整した後、1M-HDEHPによりPa、U、Np、PuおよびFe、Zr、Nb、Mo、In、Y、Snを共抽出する。

その後、抽残液より50%TBP-keroseneにより硝酸、Tc、Ru、Pdを抽出し、硝酸濃度を0.1M以下に調整し、最後に再び1M-HDEHPによりAm、Cmおよび希土類元素を抽出する。Am-Cmフラクションと希土類元素の相互分離は、DTPAを用いたreversed TALSPEAK法により実現している。

本プロセスについては、2Ci/L規模のホット試験が実施されており、各元素の回収率は以下の通り

りであったと報告されている。

U:99.99%, Np:98.9%, Pu:99.99%, Tc:67%, Ru:74%Pd:98%, Am:99.8%, Cm:99.9%

仏国のフォンテネオローズ原子力研究所では、再処理プロセスにおける主要な抽出剤であるTBPに置き替わる抽出剤として、アミドおよびジアミド系の抽出剤について研究し、これらの抽出剤によるウラン、プルトニウムおよび超ウラン元素の分離プロセスを提案している<sup>(35)</sup>。このプロセスの特徴は、CMPOやHDEHPと異なり、廃棄物処理上厄介なP原子を抽出剤中に含まないことがある。

また、在来の溶媒抽出法を改良することを目的として、より高酸濃度でも超ウラン元素の抽出が可能な溶媒の開発も行われており、日本原子力研究所において開発されているDIDPAによるプロセス<sup>(17)</sup>等がこの例に該当する。

### 3.3.1.3 重要FP核種の分離プロセス

高レベル廃棄物の長期潜在的毒性の低減化の観点から問題となる核種に、Tc-99(半減期:2.13×10<sup>5</sup>年)およびI-129(半減期:1.57×10<sup>7</sup>年)があり、半減期は約30年とそれほど長くはないが、高レベル廃棄物の発熱源の低減化の観点から問題となる核種にSr-90およびCs-137がある。また、資源としての利用が検討されている元素として、白金族元素が考えられている。これらの核種の高レベル廃棄物からの分離に関する研究開発は以前から続けられてはいるものの、プロセスとして提案されているものはSrだけで、残りの核種(元素)については、実験室規模の段階でとどまっているのが現状である。以下にSrの分離プロセスのフローおよびその他の核種(元素)の分離に関する現状を紹介する。

#### (1) Sr-90およびCs-137の分離方法<sup>(36)</sup>

米国のハンフォード地区で建設・操業されているSrの回収プロセスのフローを図17に示す。本プロセスは、pH 3以上の場合、HDEHPによりSr(II)が効率的に抽出されることを利用したプロセスである。全体のフローが単純であることから、建設・操業コストは比較的安くかかる。得られるSr-90は基本的にはNaフリーの状態であるが、HDEHPの抽出特性から若干のCa(II)が共抽出される。最終的には、Sr-カーボネートの固体に調製され、Sr-90の純度は約97%だとされている。

このプロセスは、ハンフォード地区においてパイロットスケールの設備が建設され、何年もの間操業された。このことより、プロセスの有効性および可能性は実証されたものといえる。同様の原理を用いたプロセスがオークリッジ国立研究所においても開発され、Sr-90の濃度がプロセス通過後約300倍にもなるように設計されている。しかし、ハンフォード地区およびオークリッジ国立研究所の両プロセスとも、高レベル廃液を酒石酸塩やクエン酸塩等の有機物で強く汚染させてしまうという共通の欠点を有している。

この他、具体的なプロセスとしての提案はなされていないが、SrおよびCsの分離・回収法として提案されているものを以下に示す。

##### ①イオン交換・吸着法

酸性放射性廃液からのSrおよびCsの分離・回収のために、AMP(ammonium molybdate phosphate)、ゼオライト、チタン酸等を用いたイオン交換法が研究されている。AMPを用いる方法は、濃硝酸

溶液から弱アルカリ性溶液(pH9)までの溶液中のCsまたはSrを99%以上回収可能であり、AMPに吸着したCsおよびSrは、それぞれ3M-NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>、7.9M-NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>で溶離可能である。しかし、AMPは微細な結晶であるため、単純なカラム操作に向きである上に、CsおよびSrとの交換容量がおおきいためホットスポットを形成しやすいという欠点を有し、大規模操作には向きである<sup>(37)</sup>。

高レベル廃液をギ酸で脱硝した後の溶液から、ゼオライトを用いてCsおよびSrを回収する研究が東北大学で行われている<sup>(38)</sup>。模擬高レベル廃液を脱硝した後のろ液を、合成モルデナイト(20-32メッシュ)および混合比1対1のA型/Y型混合ゼオライト(20-32メッシュ)を充填したカラムに通液することにより、合成ゼオライトでCsを97%以上、A型/Y型混合ゼオライトでSrを99%以上溶液から分離できることが確かめられている。また、原研で開発中の4群群分離プロセスでは、天然モルデナイトによりCsを、チタン酸によりSrを吸着分離させる方法について開発が進められている<sup>(21)</sup>。

米国サバンナリバー地区には、現在7500万リットル以上のアルカリ性高レベル廃液が地下の大型タンクに貯蔵されており、この廃液からCs-137を分離・回収するための方法が研究されている<sup>(39)</sup>。

Duolite ARC-359を用いたイオン交換法による模擬廃液からのCsの分離実験では、除染係数10,000という値が報告されている。また、レセシノール-ホルムアルデヒドの縮合高分子であるCSR F(Cesium Selective Resorcinol-Formaldehyde)ポリマーであるイオン交換樹脂が、アルカリ性高レベル廃液からCs-137を回収する目的で開発され、現在知られている他のイオン交換樹脂と比較して最も優れた吸着特性を示すと報告されている。CSR Fに吸着したCsは、1Mのギ酸で洗浄することにより99%以上溶離可能とされている。

## ②溶媒抽出法

サウスカロライナ大学では、高レベル廃液からのCsおよびSrの回収を目的として、5vol%-NNS(dinonylnaphthalene sulfonic acid)-27vol%-TBP-68vol%-keroseneにクラウン化合物を添加した溶媒について研究し、Srの抽出には、0.02M-bis4,4'(5')(1-hydroxyheptyl)cyclohexo 18-crown-6 in NNS-TBP-keroseneが最適(分配係数1.98)であり、Csの抽出には0.05M-bis4,4'(5')(1-hydroxy2-ethylhexyl)benzo18-crown-6) in NNS-TBP-keroseneが最適(分配係数1.59)であると報告している<sup>(40)</sup>。ただし、これらの溶媒は、分配係数がγ線照射により低下し、Zrが同時に抽出されるという欠点がある。

また、Saarlandes大学では、dibenzo-21-crown-7とheteropoly化合物またはhexachloroantimony(V)酸塩を併用した溶媒抽出法について検討を行い、これらの抽出剤を用いることにより放射性廃液中のCsを連続的に抽出可能であることを確かめている。吸着したCsは2M硝酸溶液により溶離可能であると報告されている<sup>(41)</sup>。

## (2)白金族元素およびTc-99の分離方法

### ①溶媒抽出法

米国オークリッジ国立研究所では、TBPによる硝酸酸性水溶液からのTcの抽出挙動について研究し、TBPによりTcを抽出するためには、硝酸ナトリウム等の塩析剤を用いるか、高濃度のTBPを使用する必要があると結論している<sup>(42)</sup>。また、サウスカロライナ大学では、0.3M-Alamine336(tri-caprylamine)をTBP/kerosene(0.677/1)中に混合させた溶媒による、模擬廃液か

らの白金族元素の抽出実験をおこない、RhおよびRu等と他の元素との分離はきわめてよく、Pdの分配係数は1.95であったと報告している<sup>(43)</sup>。

その他、10%-TOA (tri-n-octylamine) in  $\text{CCl}_4$ 等のアミン系の抽出剤による研究が行われているが、いずれも実験室規模の実験にとどまっている<sup>(44)</sup>。

## ②溶融金属抽出法

鉛抽出法は、極微量(0.001%)の白金族元素を鉱物から分離するための唯一の実用的方法であり、この方法を応用して、再処理後の高レベル廃液および再処理・溶解工程における不溶解性残渣から白金族元素およびTcを回収するための研究が行われている。

米国PNLでは、高レベル廃液をガラス固化する際に鉛抽出法を適用することを考え、高レベル廃液とガラス素材をガラス溶融炉に供給する際、酸化鉛と還元剤のチャコールを同時に加えることにより、鉛中への白金族元素およびTcの回収を試みた。実際の廃液を用いた実験では、PdおよびRhについては60~80%の回収率を得たが、Ruの回収率は10~20%、Tcの回収率も低かったと報告している<sup>(45)</sup>。名古屋大学においても、模擬廃液により同様の実験が行われ、80%以上のRuおよびPdが溶融鉛中に回収され、回収後に鉛を硝酸で洗浄することにより、PdとRhの相互分離ができると報告している<sup>(46)</sup>。

米国オークリッジ国立研究所では、溶融Mg中への溶解度の差を利用してRuとPdを分離する方法を考え、放射性廃棄物を溶融Mgで処理した後、溶融Mgを溶融U-Cr共晶合金と接触させることにより、RuはU-Cr相へ、PdはMg相へ移行させ、RuとPdの相互分離を実現している。分離係数は、Mg中に0.1%以上のRuおよびPdが含まれている場合には、10<sup>6</sup>以上であったと報告している<sup>(47)</sup>。

## ③沈殿分離法

原研では、模擬高レベル廃液の脱硝の際に、硝酸に対してモル比1.8以上のギ酸を加えて脱硝することにより、98%以上のTcを沈殿として回収できることを確かめている<sup>(48)</sup>。また、沈殿を過酸化水素水で洗浄することにより90%以上のTcを水相に戻すことが可能であると報告している。

東北大学では、硝酸酸性の放射性廃液から水酸化鉄による共沈分離によってTcを回収する方法を提案している。廃液のpHを1に調製し、溶液中の $\text{TcO}_4^-$ を $\text{Fe}^{2+}$ または鉄粉でTcに還元し、生成したTcイオンを中和することにより、水酸化鉄と共に共沈分離することができる<sup>(49)</sup>。

サバンナリバー地区では、イオン交換などにより放射性廃液からTcを $\text{TcO}_4$ の形で分離した溶液からのTcの回収法について研究を行い、溶液が中性の場合には硫化ナトリウムにより90%以上のTcを、溶液がアルカリ性の場合にはAl金属または亜鉛アマルガムによって45~70%を沈殿として回収可能であると報告している<sup>(50)</sup>。また、沈殿物を水素還元することにより、金属Tcを取り出すことが可能であるとしている。

## ④活性炭吸着法

原研では、硝酸溶液からの活性炭による $\text{TcO}_4^-$ の回収実験を行い、Tcの分布係数は0.5M硝酸までの溶液中では、硝酸イオンの増加に反比例し、活性炭へのTcの吸着量はFreundlich式で示されると報告している<sup>(20)</sup>。米国のPNLでは、活性炭中にPd回収用としてphenylthiourea(PTU)を含浸させ、模擬廃液からの白金族元素の回収実験を行っている。商業用の再処理廃液を模擬した実験では、Pd、RhおよびRuについて、最大43%、11%および19%の回収率を得たと報告して

いる。

活性炭ではなく、イオン交換樹脂による白金族元素およびTcの回収方法についても種々の検討がなされているが、これらのほとんどは、分析方法の一つとして研究がなされており、高レベル廃液からの分離を目的としたものは非常に少ない<sup>(51)</sup>。

### 3.3.2 乾式群分離プロセス

乾式群分離技術に関する研究は、再処理技術開発の一環として、1960年代に米国を中心として開発された液体金属による抽出技術、溶融塩による抽出技術等の高温冶金法や、塩輸送技術等による高温化学法に基づいていたものであり、現在、高レベル廃棄物からのU、超ウラン元素の回収や、軽水炉の使用済燃料からU、Puと同時にMA(Np, Am, Cm)の一括回収に、これらの方法が適用され技術開発が開始されている。一方、Puを対象として、ロッキーフラット、ロスアラモス、ローレンスリバモア等の米国政府直轄のサイトや国立研究所においても乾式による分離回収技術が検討され、実操業への適用が試みられた。これらの再処理技術は湿式技術に移行した1970年代以後も、Pu原料の分離精製やPuからのAmの除去技術として改良・実施されている。

#### 3.3.2.1 乾式群分離技術の特徴と超ウラン元素分離への適用

乾式分離法と湿式分離法に予想される特徴を表12に示す<sup>(52)</sup>。乾式分離法では、プロセスの取扱い量が大きく低減できることから、プロセスのコンパクト化や建設コストの低減化が図れる、放射線や硝酸により劣化した有機抽出剤やイオン交換樹脂等の廃棄物が恒常に発生しないことから、二次廃棄物の発生量が少なくなる等の特徴がある。また、湿式分離法における超ウラン元素の回収形態が酸化物であるのに対し、乾式法では金属として回収され、これは超ウラン元素を消滅処理することを考えた場合、金属燃料FBRの燃料に適合し易いという特徴も有している。更に、乾式法の場合、中性子の減速剤が不用のため取り扱える核物質の量を多くできるという利点もあるが、回収される超ウラン元素の純度が低いことや、比較的高温でプロセスが操業されるため、それに伴う材料開発等が今後の課題となる。以下に、高レベル廃液からの超ウラン元素の乾式分離プロセスおよび軽水炉の使用済燃料から乾式処理で直接Puと超ウラン元素を分離回収するプロセスについて述べる。

#### 3.3.2.2 高レベル廃液からの超ウラン元素の乾式分離技術

電力中央研究所では、図18に示した高レベル廃液からの超ウラン元素の分離・金属燃料FBRでの超ウラン元素の核変換と同サイクル内での超ウラン元素のリサイクルという基本構想に従って、図19に示す超ウラン元素の乾式分離プロセスの開発を進めている<sup>(53)</sup>。本プロセスは、高レベル廃液の脱硝・固化・塩素化からなる前処理工程と、還元・抽出ならびに電解精製からなる高温冶金分離工程からなっている。

脱硝・固化工程は硝酸酸性水溶液である高レベル廃液を加熱・濃縮により脱水した後、硝酸塩を分解して粉末状の酸化物に転換する工程であり、塩素化工程は脱硝・固化工程で生成した酸化物を塩化物に転換する工程である。塩素化剤としては分離後の廃塩化物から塩素ガスを回収して再利用することを考慮して塩素ガス-炭素を用いている。ここで炭素は還元剤として用いる。

高温冶金分離工程は、基本的には表13に示す塩化物の標準生成自由エネルギーの差を利用して分離する方法である。第1工程である還元・抽出工程は高レベル廃液中の元素を主体とする塩化物の溶融塩から還元剤としてリチウムを用いて、超ウラン元素を化学的に類似した一部の希土類元素とともに溶融カドミウム金属中に還元する工程である。第2工程である電解精製工程では第1工程で超ウラン元素に付随してきた希土類元素を分離して、できるだけ純粋に超ウラン元素を回収する工程である。

図20に、電解精製工程で期待できる超ウラン元素の回収率と付隨する不純物元素の関係を熱力学的データを基に算出した例を示す。ここでは、U、Np、Puは不純物の付隨なしに99.9%以上の回収率が期待できるが、Amまでを99.9%以上回収するには、回収物中にGdやY等の不純物が8%程度混入することを示唆している。ただし、本結果は、電解精製時の電流効率等の分離条件を理想的に仮定しているため、これらの回収率の実証には超ウラン元素を用いた試験が必要であるとされている。

### 3.3.2.3 直接乾式再処理・群分離技術

軽水炉の使用済燃料から、乾式再処理で直接Puと超ウラン元素を分離し、IFR (Integral Fast Reactor)のような金属燃料高速炉で消滅させる技術(UはPuや超ウラン元素とは別に分離して貯蔵)であり、米国のアルゴンヌ国立研究所は1991年米国会計年度より技術開発に着手している<sup>(54)</sup>。この技術は、アルゴンヌ国立研究所が1960年代にEBR-IIの金属燃料やMOX燃料を再処理するために開発した塩輸送法を基本にしている。図21にその技術の概要を示す。軽水炉の使用済酸化物燃料は脱被覆、粉体化した後、800°C程度でCaCl<sub>2</sub>-CaF<sub>2</sub>の溶融塩に溶解させ、金属Caを還元剤として添加して、溶融Cu-Mg中に金属成分を還元する。このCu-Mg合金をドナーとして、これとMgCl<sub>2</sub>を含む溶融塩と接触させると、超ウラン元素や希土類元素は酸化されて溶融塩中に移行する。Cu-Mg合金の特徴は、NpやPuに対しては数%の溶解度を持つが、Uに対してはその溶解度が極めて低く、不溶解性の沈殿物として下部に沈殿する。これによりUが分離される。次にMgCl<sub>2</sub>塩とMg-Cd合金を接触させ、両者の抽出平衡の差を利用して超ウラン元素を合金側に還元する。本プロセスにおいても、塩化物の生成自由エネルギーが類似している希土類元素は超ウラン元素とともに、合金中に抽出される。

本プロセスは、現在実験室規模での研究がなされている段階であり、分配係数などの基礎データが蓄積されつつあるが、今後それらを基にしたフローシートの確立および800°C程度と高温プロセスであるため、耐腐食性の材料の開発が重要な課題となる。

### 3.3.3 ロシア連邦における群分離研究の現状

群分離研究は歴史的には欧米および日本において実施してきたが、近年ロシア連邦においても原子力・産業省所管の研究所において群分離・消滅処理の可能性について検討が行われている<sup>(63)</sup>。旧ソ連邦は、米国と対等な核軍備を保有していたことから、核分裂生成物を製造・分離・精製する設備を古くから有していた。チェリアビンスク、クラスノヤスク、トムスクにおいて再処理設備が稼働しており、軍用および動力炉用の再処理工場から発生する高レベル廃液の累積貯蔵量は25,000m<sup>3</sup>に達するとされ<sup>(64)</sup>、将来この累積量が増加することが予測される。この

ため、高レベル放射性廃液の問題は、原子力開発に際しての重要な課題の一つと考えられ、その処分について以下のような構想が提案されている。

#### (1) 地層処分

高レベル廃液をガラス固化し数十年地上で保管した後、数百～1,000m地下の地層に処分するもので、現在欧米諸国で考えられている構想とほぼ同じものである。

#### (2) 深地層処分

高レベル放射性廃棄物の発熱と密度の高い充填剤により、廃棄物を深層地層へ自然沈降させる処理処分法である。この方法により $10^3$ ～ $10^4$ 年の間、安全性が確保されるため地層処分より信頼性が高いとされている。

#### (3) 宇宙処分

ロシア連邦の宇宙工学の技術を高レベル廃棄物の処分に応用することの可能性を検討し、以下の宇宙処分方法を提案している。

- ① 地球軌道に近接する太陽系への処分
- ② 木星への処分
- ③ 太陽への処分
- ④ 太陽系以外への処分

宇宙処分は技術分野だけでなく、規制面および社会の合意が必要であるため、国際協力が必要なことを力説している。

#### (4) U-235高濃縮燃料の使用

使用済燃料中に含まれる長半減期核種生成の源は、U-238に中性子が吸収されて  $\text{Np-239} \rightarrow \text{Pu-239} \rightarrow \text{Pu-241} \rightarrow \text{Am-241} \rightarrow \text{Np-237}$  のプロセスを経て超ウラン元素が生成することに基づいている。そこで、U-238の含有量を少なくしU-235の燃料を使用すれば超ウラン元素の生成を抑制できることから、U-235高濃縮燃料の使用が考えられている。しかし、U-235の濃縮度を上げれば、濃縮費が高くなることと、高濃縮度のU-235を保有することは核不拡散政策上好ましくないため、高レベル廃棄物処分の一般的解決法にはならないとされている。

#### (5) Th溶融塩炉の開発

Th-232はPu, Am, Cm等の超ウラン元素が生成し難く、その生成量はU燃料を用いた場合の4～5分の1になるうえ、キセノン毒の問題も無いため燃料の寿命が長くなる。トリウムサイクルの場合は、数サイクル繰り返しても超ウラン元素の生成が無視できるため、トリウム炉は、現在ウラン炉によって生成蓄積した長寿命核種の消滅専焼炉としても適しているとされている。ただし、ロシア連邦におけるこの分野の研究開発の実績は十分でなく、原子炉材料、核種の分離などの点で未解決の部分が多い。

#### (6) 群分離・消滅技術

以上述べた高レベル廃棄物対策の一つとして、群分離・消滅の研究開発が位置づけられ、ロシア連邦では1990年頃からこの問題が話題になってきた。ロシア連邦は最近のOECD/NEAの群分離・消滅処理に関する国際共同研究には参加していないが、主として原子力・産業省所管の研究所において群分離・消滅処理の研究が実施され、モスクワにある理論実験物理研究所の所長Chuvilo博士がロシア連邦全体の群分離・消滅研究の総括議長を務めている。

高レベル廃液からの核種分離については、チェリアビンスクのMAYAK再処理工場において、VVER-440型の原子力発電所からの使用済燃料(燃焼度32,400MWD/MT, 4年冷却)の再処理抽出塔の共除染廃液より Cobalt Carbollyde(ChCoDc)を用いて、パイロットプラント規模でのCs, Srの抽出分離試験、Sm-241、Cm-244、希土類元素の分離試験等が行われ、CsおよびSrについてはそれぞれ $2 \times 10^4$ および $2 \times 10^3$ の除染係数が得られたとしている。しかし、大規模の工業化に際しては多くの課題があり、特に腐食を起こさせず、放射線や熱に強い抽出剤の開発が必要であるとしている。また、同じくMAYAKで、第1抽出塔の共除染廃液から、Crown-Ether(Dicyclohexane-18-Crown-6, Dibenzo-20-21-Crown-7)を用いてSr-90を抽出した後、Cs-137を吸着分離する小規模実験が実施され、共除染廃液の放射能レベルは分離前の2分の1から3分の1に低減したとされている。その他、二座配位子抽出剤を用いた高レベル廃液からの超ウラン元素の抽出分離、再処理プロセスのTBP抽出第1サイクルでのNpの抽出およびPu精製工程でのNpおよびTcの逆抽出試験等が行われており、NpについてはPu精製工程で99%回収できるという報告もある。

消滅処理については、黒鉛減速金属燃料炉、液体金属冷却高速炉、鉛冷却炉、重水炉等による消滅を提案しているが、詳細については文献を参照されたい<sup>(64)</sup>。

表1 3群群分離後の固化体発生量  
 (使用済核燃料 燃焼度33000MWD/MTU, 燃焼速度30MW/MTUの1トン当たり)

群 分 離	超ウラン元素群	Pu, U 極化物	5.8 kg	0.5 ℓ
		Am, Cm, Np 極化物	0.7 kg	0.07 ℓ
Sr-Cs群	無機イオン交換体焼成体 (Sr, Cs 酸化物約3%含有)	1123 kg		28 ℓ
その他核分裂 生成物群	ガラス固化体 (FP極化物25%含有)	1110 kg	40 ℓ	
合	計	240 kg	69 ℓ	
全量ガラス固化体(FP極化物12%含有)		384 kg	142 ℓ	

表2 使用済燃料中に含まれる半減期1年以上の核分裂生成物の燃料1ton当たりの生成量

(新燃料1t当たり)

半減期区分	組成比 (%)	核種名	
1年未満	4.8	省略	
1年～10年	1.3	Ru106 Cs134 Eu154	Sb125 Pm147 Eu155
10年～30年	5.3	Kr 85 (11年) Cs137 (30年)	Sr 90 (29年)
30年～100年	0.03	Sm151	
100年～ $10^4$ 年	0.0	該当無し	
$10^4$ 年 ～ $5 \times 10^9$ 年	6.6	Se 79 Tc 99 ( $2.1 \times 10^5$ 年) Sn126 Cs135 ( $2.3 \times 10^6$ 年)	Zr 93 Pd107 I129 ( $1.6 \times 10^7$ 年)
$5 \times 10^9$ 年以上	7.6	Rb 87 Ce142 Sm147 Sm149	In115 Nd144 Sm148
安定核種	78.1	省略	
合計	100.0	(全FP生成量 34.3Kg)	

計算 : 核データ JENDL-2, 計算コード SRAC-FPGS

燃焼度 : 33,000MWD/MT

冷却期間 : 150日

表3 軽水炉および高速炉における超ウラン元素の組成および生成量

Nuclide	Half life (year)	Cooling time (year)		
		3410MWt-PWR	10	2500MWt-FBR
<sup>237</sup> Np	$2.14 \times 10^6$	57.9%	41.3%	9.45%
<sup>241</sup> Am	$4.32 \times 10^2$	27.4	48.8	54.9
<sup>242m</sup> Am	$1.52 \times 10^2$	—	—	1.38
<sup>243</sup> Am	$7.37 \times 10^3$	11.9	8.33	25.4
<sup>243</sup> Cm	$2.85 \times 10$	0.03	0.02	0.29
<sup>244</sup> Cm	$1.81 \times 10$	2.67	1.44	7.73
<sup>245</sup> Cm	$8.50 \times 10^3$	0.15	0.10	0.89
Total		100.	100.	100.
Total Weight		23.8kg	33.9kg	24.0kg

Calculation

: data JENDL-2

code SRAC-FPGS

Burnup of Fuel : 33,000MWD/MT(PWR) 150,000MWD/MT(FBR)

Interval between Reprocessing

and Partitioning : 5years

Recovery of U and Pu : 100 %

Total Weight

( kg/year・基 )

表4 高レベル廃棄物を地層処分した場合の累積集団線量

## 累積集団線量に対する各事象の寄与

評価期間		$10^3$ 年	$10^4$ 年	$10^5$ 年	$10^6$ 年
全事象	(man-rem)	1.04 - 2	2.13 - 1	5.36 + 1	1.48 + 4
寄与 (%)	火山活動	84.4	62.4	4.6	0.4
	火山爆発	13.8	9.8	0.7	0.1
	ダイアトリーム	1.1	0.8	—	—
	損石落下	1.1	0.8	—	—
	断層	—	25.9	94.6	99.5

## 累積集団線量に対する主要核種の寄与（火山活動）

評価期間	$10^3$ 年		$10^4$ 年		$10^5$ 年		$10^6$ 年	
全核種	man-rem 8.78 - 3		1.33 - 1		2.44 + 0		5.65 + 1	
順位 1.	Am-241	65.6%	Am-243	30.8	Np-237	44.3	Np-237	62.8
2.	Cs-137	12.0	Pu-240	22.7	Pu-239	32.5	Th-229	28.7
3.	Am-243	8.3	Pu-239	17.1	Am-243	8.0	Ra-225	3.2
4.	Pu-240	6.1	Am-241	13.2	Th-229	5.1	Pu-239	2.2
5.	Sr-90	2.5	Np-237	12.9	Pu-240	4.9	Tc-99	1.2
6.	Np-237	2.1	Tc-99	0.9	Tc-99	2.6	Ra-226	0.6
7.	Pu-239	1.4	Cs-137	0.8	Am-241	1.0	Am-243	0.3
残り核種		4.1		1.6		1.6		1.0

## 累積集団線量に対する主要核種の寄与（活断層）

評価期間	$10^3$ 年	$10^4$ 年		$10^5$ 年		$10^6$ 年	
全核種	—	man-rem 5.52 - 2		5.07 + 1		1.47 + 4	
順位 1.	—	Tc-99	100%	Tc-99	100	Np-237	95.1
2.	—	—	—	—	—	Tc-99	4.9

表5 高レベル廃棄物に含まれる有用核種(元素)と主な利用法

核種	半減期	放射線	生成量†			比放射能 比発熱量	主な利用法
			(g)	(Ci)	(W)		
<b>核燃料物質</b>							
$^{235}\text{U}$	$7.1 \times 10^8 \text{ yr}$	$\alpha, \gamma$ 0.185(54%)					
$^{238}\text{U}$	$4.5 \times 10^9 \text{ yr}$	$\alpha$					
$^{239}\text{Pu}$	$2.4 \times 10^4 \text{ yr}$	$\alpha, \gamma$					
$^{241}\text{Pu}$	14.4 yr	$\beta$					
<b>超ウラン元素</b>							
$^{237}\text{Np}$	$2.1 \times 10^6 \text{ yr}$	$\alpha, \gamma$ 0.086(14%)	444	0.31	0.01	0.7 mCi/g	中性子照射により $^{238}\text{Pu}$ に転換しエネルギー源
$^{241}\text{Am}$	432 yr	$\alpha, \gamma$ 0.060(36%)	289	993	33.0		
Am			371	1.0 k	33.5	0.09 W/g	煙感知器, $(\alpha, n)$ による中性子源
$^{242}\text{Cm}$	162.8 d	$\alpha, \gamma$	0.0073	24.1	0.03		
$^{244}\text{Cm}$	18.1 yr	$\alpha, \gamma$	18.1	1.5 k	51.4		比発熱量が $^{238}\text{Pu}$ よりも高いエネルギー源,
Cm			19.3	1.5 k	52.0	2.69 W/g	$^{252}\text{Cf}$ 製造用ターゲット, 小型原子炉
<b>核分裂生成物</b>							
$^{90}\text{Sr}$	28.8 yr	$\beta$ 0.546 max	477	65.1 k	436		熱エネルギー源
Sr			830	65.1 k	436	0.53 W/g	
$^{137}\text{Cs}$	30.2 yr	$\beta, \gamma$ 0.662(85%)	1.1 k	92.2 k	445		$\gamma$ 線照射用線源
Cs			2.6 k	120 k	722	47 Ci/g	
$^{99}\text{Tc}$	$2.1 \times 10^3 \text{ yr}$	$\beta$ 0.292 max, $\gamma$ なし	771	13.1	0.01	17 mCi/g	耐食性鋼材, 触媒, 超電導素材
安定 Ru			2.17 k				触媒, 貴金属, 電極材
$^{106}\text{Ru}$	367 d	$\beta, \gamma$ 0.512(19%)	4.86	16.3 k	157		
全 Ru	約35 yr 後に	0.002 $\mu\text{Ci/g}$ Ru				7.46 Ci/g	
安定 Rh			461				触媒, ガラスファイバ
Rh	$(n, 2n)^{102, 102m}\text{Rh}$ のため 約50 yr 後に 0.002 $\mu\text{Ci/g}$ Rh						
安定 Pd			1.1 k				触媒
$^{107}\text{Pd}$	$6.5 \times 10^6 \text{ yr}$ , $\beta$ 0.04, $\gamma$ なし		212	0.11	7 $\mu$		
全 Pd						82 $\mu\text{Ci/g}$	

† 使用済燃料 1 t 当り (ORIGEN 2 使用, PWR 燃料, 3.3% 濃縮 U, 燃焼度 33,000 MWd/t at 30 MW/t 5yr 冷却)

表6 群分離対象元素の分離回収目標値

対象元素		分離回収目標値	
		MPC基準の場合	ALI基準の場合
超ウラン元素	Np	90 %	99.95 %
	Pu	99	99.9
	Am	99.9	99.99
	Cm	99.9	99.9
Tc, I		99 %	
Sr, Cs		99.9 %	
白金族元素 Xe		特になし	

表7 高レベル濃縮廃液の組成の一例

Component	Reagent	Concentration (M)	
		Estimated HLLW	Simulated HLLW
H <sup>+</sup>		2.0	2.0
F e	Fe(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O	0.038	0.038
C r	Cr(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O	0.0091	0.0091
N i	Ni(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	0.0060	0.0060
A l		0.00076	—
N a	NaNO <sub>3</sub>	0.076	0.076
U		0.0076	—
P u		0.00095	—
N O <sub>3</sub> <sup>-</sup>		3.0	3.0
P O <sub>4</sub> <sup>3-</sup>		0.0023	—
S i O <sub>3</sub> <sup>2-</sup>		0.0076	—
M o	(NH <sub>4</sub> ) <sub>6</sub> Mo <sub>7</sub> O <sub>24</sub> ·4H <sub>2</sub> O	0.069	0.069
T c		0.015	—
S r	Sr(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	0.0165	0.0165
B a	Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	0.0207	0.0207
C s	CsNO <sub>3</sub>	0.0371	0.0371
R b	RbNO <sub>3</sub>	0.0074	0.0074
Z r	ZrO(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O	0.069	0.069
R u	Ru(NO) <sub>2</sub> (NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	0.034	0.034
R h	Rh(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	0.0080	0.0080
P d	Pd(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	0.018	0.018
A g		0.00085	—
C d		0.00085	—
T e	H <sub>2</sub> TeO <sub>4</sub> ·2H <sub>2</sub> O	0.0068	0.0068
Y		0.0084	0.127
L a		0.0147	
C e		0.033	
P r		0.0137	
N d	Nd(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	0.0434	
P m		0.0012	
S m		0.0086	
E u		0.0019	
G d		0.0010	
A m		0.0012	
C m		0.00025	

表8 Am, Cm と希土類元素の相互分離工程における除染係数の推定値と  
分離後の Am, Cm フラクションに混入する希土類元素の濃度の比

元素	高レベル廃液 <sup>*1</sup> 中の濃度 [mM]	濃度比 <sup>*2</sup>	相 互 分 離 後 の	
			除染係数	分離後の濃度比
Am	3.07	1.00	—	1.00
Cm	0.16			
Y	10.36	3.21	>106	<10 <sup>-5</sup>
La	17.53	5.43	>106	<10 <sup>-5</sup>
Ce	33.80	10.46	23000	0.0005
Pr	15.86	4.91	2700	0.0018
Nd	55.62	17.22	300	0.0574
Pm	0.52	0.16	120	0.0013
Sm	11.17	3.46	90	0.0384
Eu	1.83	0.57	120	0.0048
Gd	1.23	0.40	260	0.0015
Tb~Er	0.05			
希土類合計	148.0	45.82	(430)	0.106

\*1 燃焼度33000MWD/MTの使用済燃料を5年間冷却後再処理を行い、1ton  
当たり0.5m<sup>3</sup>の高レベル廃液が発生したときの値

\*2 Am, Cmの濃度の和を1としたときの希土類元素の濃度比

表9 群分離対象元素の分離回収目標値と実際の回収率予測値の比較

対象元素	分離回収目標値		予想回収率*
	MPC基準	ALI基準	
超ウラン 元素群	Np	90 %	99.95 %
	Pu	99 %	99.9 %
	Am	99.9 %	99.99 %
	Cm	99.9 %	99.99 %
テクネチウム 白金族 元素群	Tc	99 %	>99 %
	Rh	特になし	>99 %
	Ru		>99 %
	Pd		>99 %
ストロンチウム セシウム群	Sr	99.9 %	>99.9 %
	Cs	99.9	>99.9 %

\* : 回収率は、Purex プロセスから放出された高レベル廃液  
中に含まれる初期元素濃度を100%として表示している

表10 群分離後の各群の形態および分離により発生する二次廃棄物

元 素 名	分 離 後 の 各 群 の 形 態	分離により発生する二次廃棄物
超 ウ ラ ン 元 素 群	A m, C m	4 M 硝 酸 溶 液  廃溶媒(D I D P A)が発生
	N p, P u	0.8 M シュウ酸溶液  運転制御、工程管理上は特に問題ないが、除染工程が必要なため工程が多少複雑になる
テクネチウム-白金族元素群	脱硝沈殿物として回収されるが、化合物の組成等を特定するまでには至っていない	固液分離の際に使用するろ材等が二次廃棄物となるが、その発生量は僅かである
ストロンチウム-セシウム群	チタン酸-ゼオライトの混合無機イオン交換体に吸着した状態	イオン交換体を1000°C以上の温度で焼結すると、処分に適した安定固化体となり、二次廃棄物はほとんど発生しない

表11-1 軽水炉使用済燃料の再処理、群分離、消滅処理法の一覧

	原 研	勵 燃	電 中 研	DOE (ANL)
再処理	ピューレックス法 (湿式法)			U, Pu, TRU の一括分離 (乾式法: 塩槽輸送法)
分 離	4 元素群の 分離 (湿式法)	白金族群 の分離 (乾式法: 鉛抽出法)	TRUの分離 (乾式法: 高温冶金法)	
消 滅	専焼炉 (金属燃料又 は粒子燃料)	大型MOX高速炉 (TRUを消滅) FP消滅炉 (FPを消滅)	FBR 利用 (金属燃料)	
	陽子加速器 (TRUを消滅)	各種加速器 (FPを消滅)		

表11-2 海外における核種分離・消滅処理技術の研究開発状況（米国）

オークリッジ 国立研究所	アルゴンヌ国立研究所	ブルックヘイブン 国立研究所	バッテル・ノース ウェスト研究所	ロスアラモス国立研究所 ロックフィラット工場
湿式分離法 LWR,FBRによる消滅	湿式分離法 IFRによる消滅	乾式分離法 IFRによる消滅	加速器による消滅	湿式分離法
実績	[核種分離] ・実験による小規模試験 「消滅処理」 ・消滅解析計算による 解釈 [技術的に可能と結論]	[核種分離] ・廃棄物からのドアクチナイド元素の分離 (TRUEX法) ・ドアクチナイド元素を用いた基礎試験	[消滅処理] ・直接処理による軽水炉からの清燃料からのTRUの分離 ・分離したTRUのIFRによる消滅	[核種分離] ・HLWからの貴金属の分離 ・軍事用焼却物からのNp,Puの分離 [核種分離・消滅処理] ・核種分離と消滅処理を組み合わせたAPEXプロセスの提案
現状	中断 (理由) ・商業燃料の再処理を行わず、FBR開発をスローダウン(ガーナー方針) ・経済的に見合わない	基礎技術の確立	研究計画の作成 ・基礎試験に着手	・工場規模で実際に適用 ・新電解槽の開発 ・ロッキーフラット施設の閉鎖を決定
今後の研究計画等	・再評価を実施	・バッテル研究所等と共にバイオルトスケールでの分離技術の開発	・1991年 米国会計年度より本格着手	・ウエスタンダハウ ス社とともにバイオルトスケールで TRUEXプロセスを実証

注) ウエスタンダハウス社では、TRUを含んだ原子燃料サイクルCUREプロセスを提案している

表11-3 海外における核種分離・消滅処理技術の研究開発状況（欧州）

	ヨーロッパ共同体 イスラ研究所（イタリア）	カールスルーエ原子力 研究センター（西独）	フランデネオロース原子 子力セシナ（フランス）
湿式分離法	原子炉による消滅 〔消滅処理〕 ・核種分離工程 ・核種分離工程 のフローーシ ト作成 (オキサルプロセス 等) ・実験室規模の 基礎試験を終 了	FBRによる消滅 〔消滅処理〕 ・核種分離 ・湿式分離法 FBRによる消滅 〔消滅処理〕 ・核種分離 ・HLWよりの Am,Cmの分 離 ・TRU含有燃料 の照射 (MOX燃料) ・実験室規模 の試験	FBRによる消滅 〔核種分離〕 ・TRUの核データ の整備 ・湿式分離法 ・HLWよりの Am,Cmの分 離 ・新抽出剤の 開発 ・予備実験、実廢液 を用いた基礎試験 の実施
実績	〔消滅処理〕 ・核物理的検討 を終了 ・TRU含有燃料 の抽出 ・実験室規模 の試験	〔消滅処理〕 ・核種分離 ・HLWよりの Am,Cmの分 離 ・TRU含有燃料 の照射 (MOX燃料)	〔核種分離〕 ・Np,Am,Cm分離の ための新抽出剤 の開発 ・予備実験、実廢液 を用いた基礎試験 の実施
現状	〔核種分離に主 点〕 ・実廃液の使用が可能な施設 (PETLA計画)による実証 -コールド試験 -ホット試験	〔FBRによる消滅処理に主 点〕 ・KNKII Phenix炉によるTRU 含有燃料の照射試験 ・TRU含有燃料の製造 (SUPERFACT 計画)	〔照射によるTRU の核データの取得〕 ・現在中断 〔カールスルーエー 原子力セシナ 超ウラン元素 研究開発 の協同作業〕 ・バタイン報告の 勧告にしたがつ た高度再処理工 程の開発 〔本格的に群分離、 消滅処理の研究開 発に着手(1991年 より) (SPIN 計画) ・消滅処理は超ウ ラン元素研究所 と共同研究
今後の 研究計画等	・PETLA施設によるホット 実証試験 ・あらゆる廃棄物からの TRUの除去	・照射後試験による消滅 技術の実証	他、ソ連、スウェーデン、中国でも研究開発を実施

表12 湿式群分離法と乾式群分離法の比較

項 目	乾 式 群 分 離	湿 式 群 分 離
プロセスの取扱い量 (使用済み燃料 1t 当り)	塩化物換算で約 50 ℥ (溶媒洗浄からの Na を含む)	硫酸溶液として約 400 ℥ (溶媒洗浄溶液を含まない)
プロセスの規模	取扱い量が少ない為、コンパクト	最後まで水溶液として取扱う為比較的大規模
プロセスの温度	プロセスにより異なるが、500～1000 °C 程度と湿式に比べて高温	殆どのプロセスが 100 °C 以下であるが、より高温のプロセスも存在する
建設コスト	プロセス規模に比例してセルや建屋の大きさも小型化する為安価になると予想される	セルの大型化に伴いコスト高が予想される
回収 TRU の形態	金属	酸化物
回収 TRU の純度	比較的低い	高い
主な二次廃棄物	LiCl, CO <sub>2</sub> ガス、ルツボ 他	劣化溶媒、劣化イオン交換樹脂 他
二次廃棄物発生量	プロセスで川いる試薬の劣化は本質的に起こらす危険性は少ないが、今後の研究開発により Li の回収が可能となれば更に少なくなる	複雑な有機抽出剤やイオン交換樹脂は放射線や硝酸により劣化する為、かなりの量の此の放射性有機廃棄物が発生する
臨界管理	水を用いため比較的容易	水溶液でかつ純度が高い為、適切な管理が必要
貴金属等の有用金属の回収	比較的容易	回収率を上げるための研究開発が必要

表13 塩化物の標準生成自由エネルギー (1000 K)

	$-\Delta G_f^\circ$ (kcal/g·equiv. Cl)	$-\Delta G_f^\circ$ (kcal/g·equiv. Cl)	
RbCl	81.2	SnCl <sub>2</sub>	51.3
SrCl <sub>2</sub>	81.0	ZrCl <sub>2</sub>	49.2
CsCl	80.0	AlCl <sub>3</sub>	46.0
SmCl <sub>2</sub>	80.0	ZnCl <sub>2</sub>	35.0
LiCl	78.8	CrCl <sub>2</sub>	31.9
CaCl <sub>2</sub>	77.9	CdCl <sub>2</sub>	30.4
NaCl	75.7	FeCl <sub>2</sub>	26.6
LaCl <sub>3</sub>	67.0	NbCl <sub>5</sub>	24.6
PrCl <sub>3</sub>	66.3	NiCl <sub>2</sub>	20.0
CeCl <sub>3</sub>	66.3	MoCl <sub>2</sub>	8.0
NdCl <sub>3</sub>	64.2	TcCl <sub>3</sub>	7.0
YCl <sub>3</sub>	61.2	RhCl	5.8
AmCl <sub>3</sub>	60.4	PdCl <sub>2</sub>	3.8
PuCl <sub>3</sub>	58.5	RuCl <sub>3</sub>	1.4
MgCl <sub>2</sub>	57.7		
NpCl <sub>3</sub>	54.1		
UCl <sub>3</sub>	51.8		

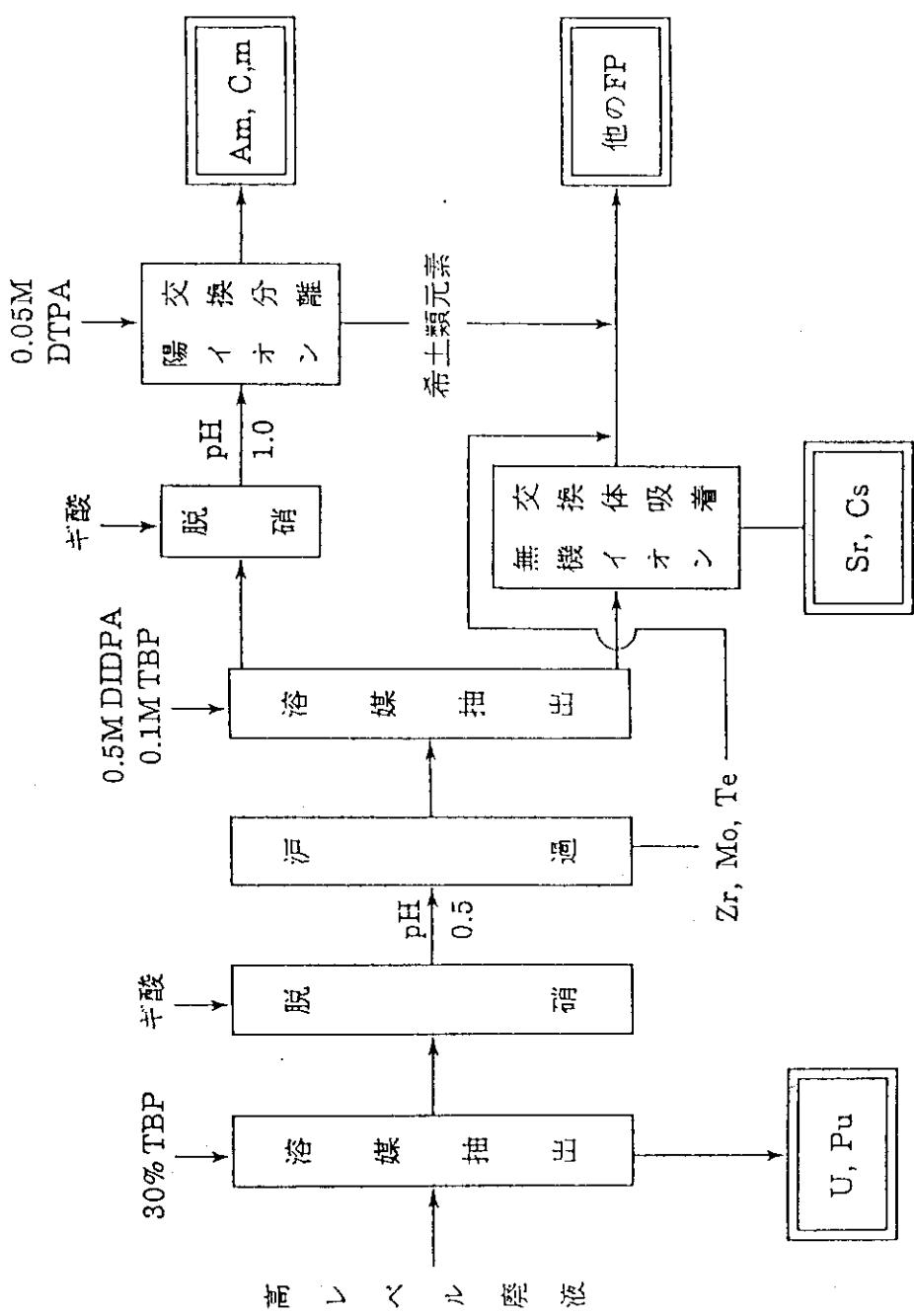


図1 実廃液試験を実施した3群群分離プロセスの概略フロー

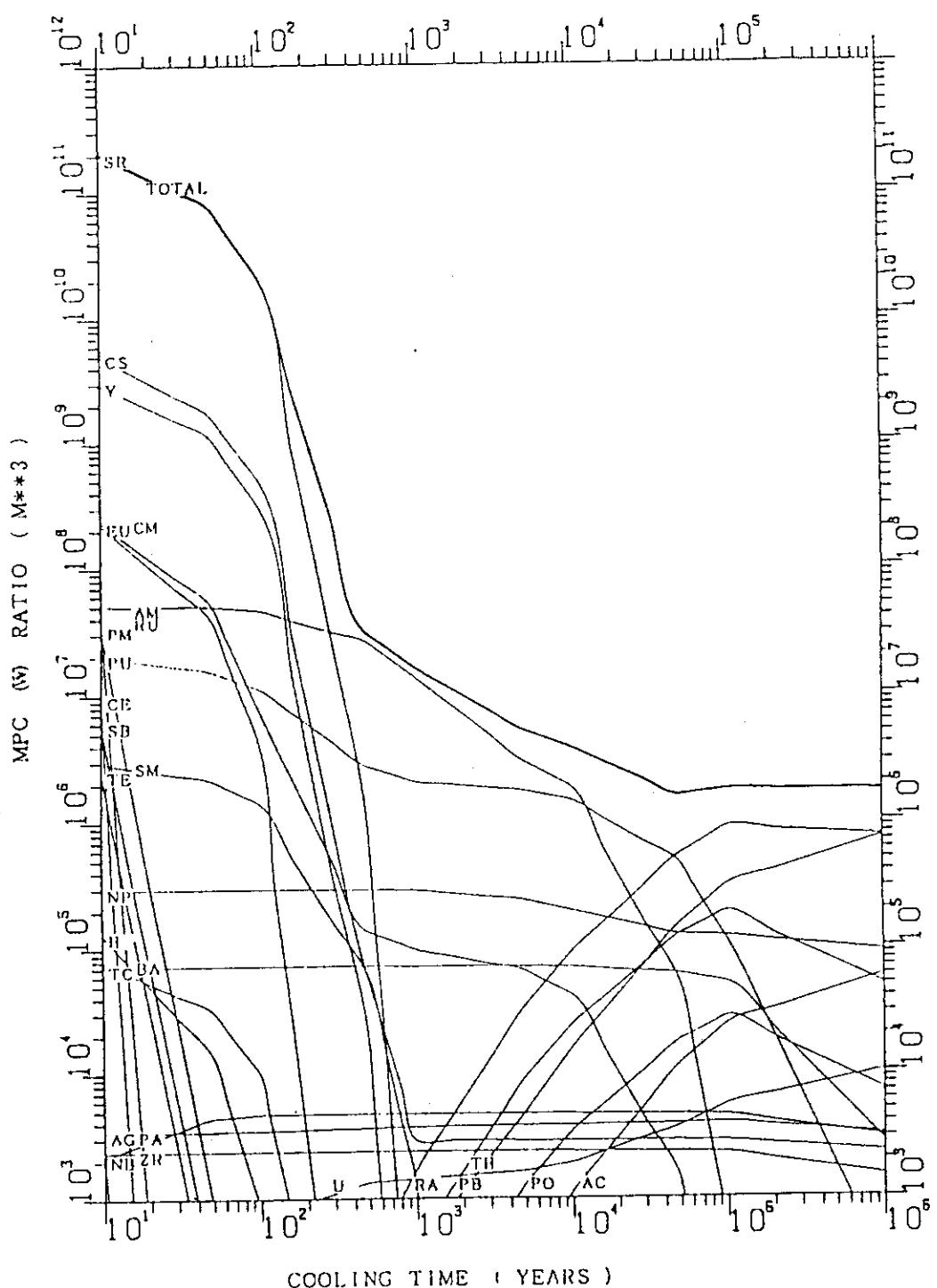


図2 MPCを基準にした高レベル廃液の潜在的毒性指標の経年変化

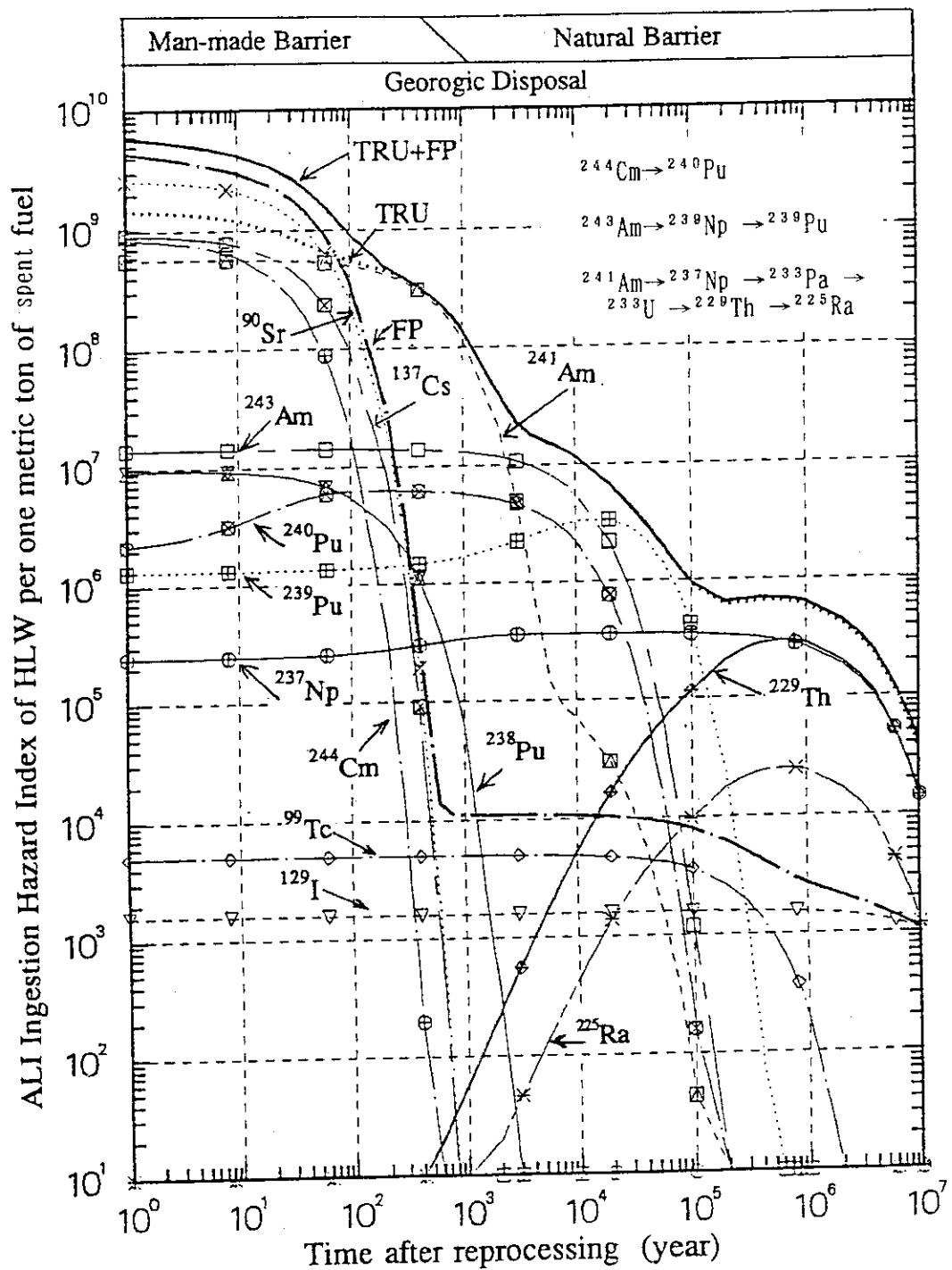


図3 ALIを基準とした高レベル廃液の潜在的毒性指標の経年変化

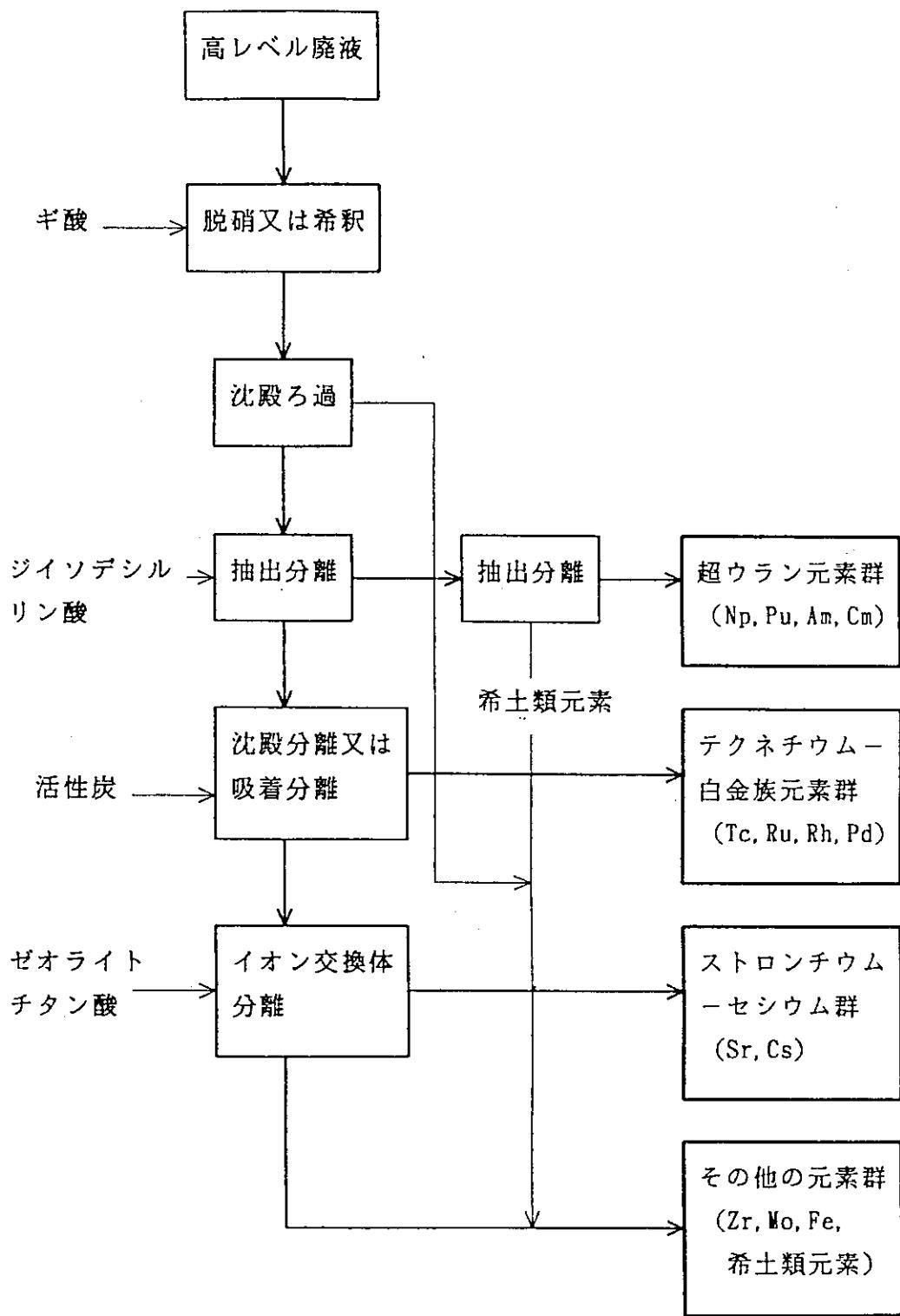


図4 4群群分離プロセスの概略フロー

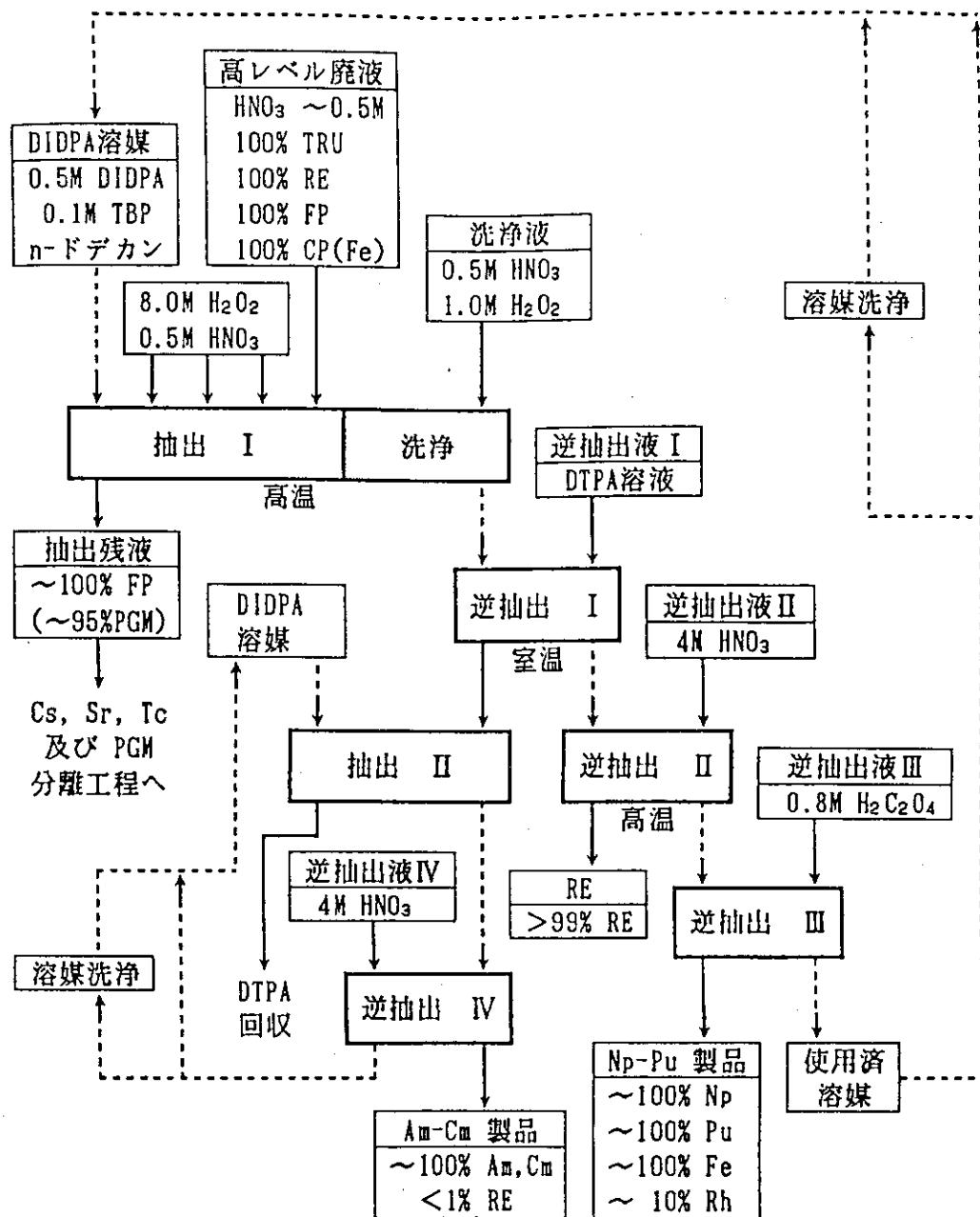


図5 高レベル廃液からの超ウラン元素群の抽出分離プロセス

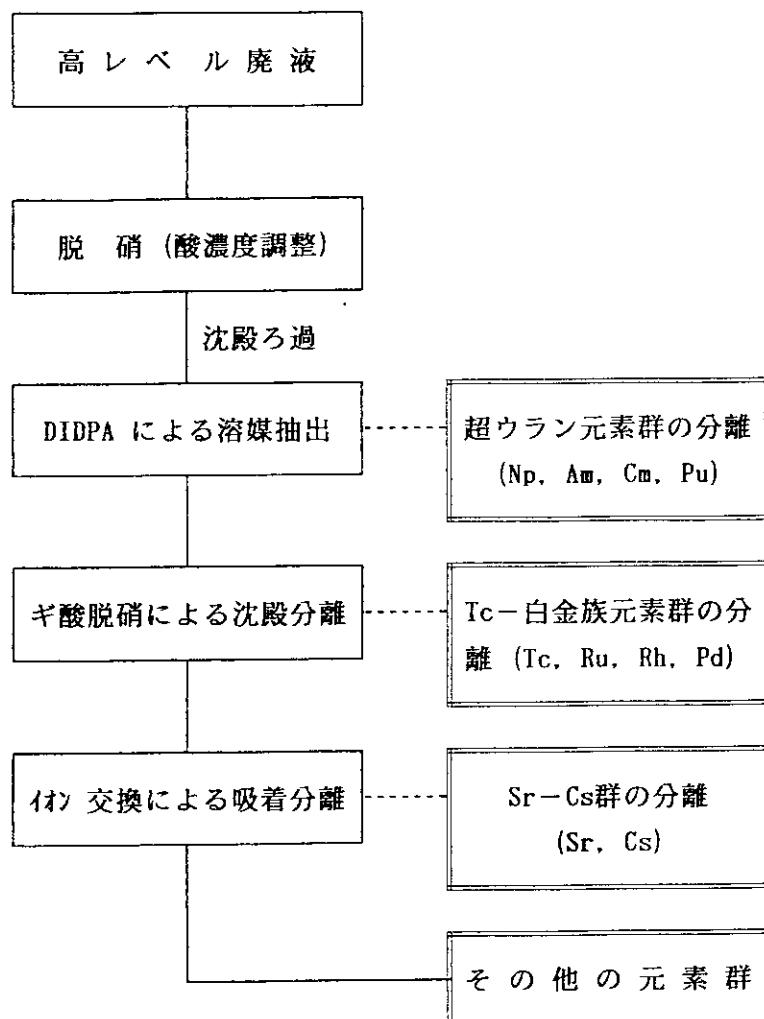


図6 4群群分離プロセスの組み合せの例

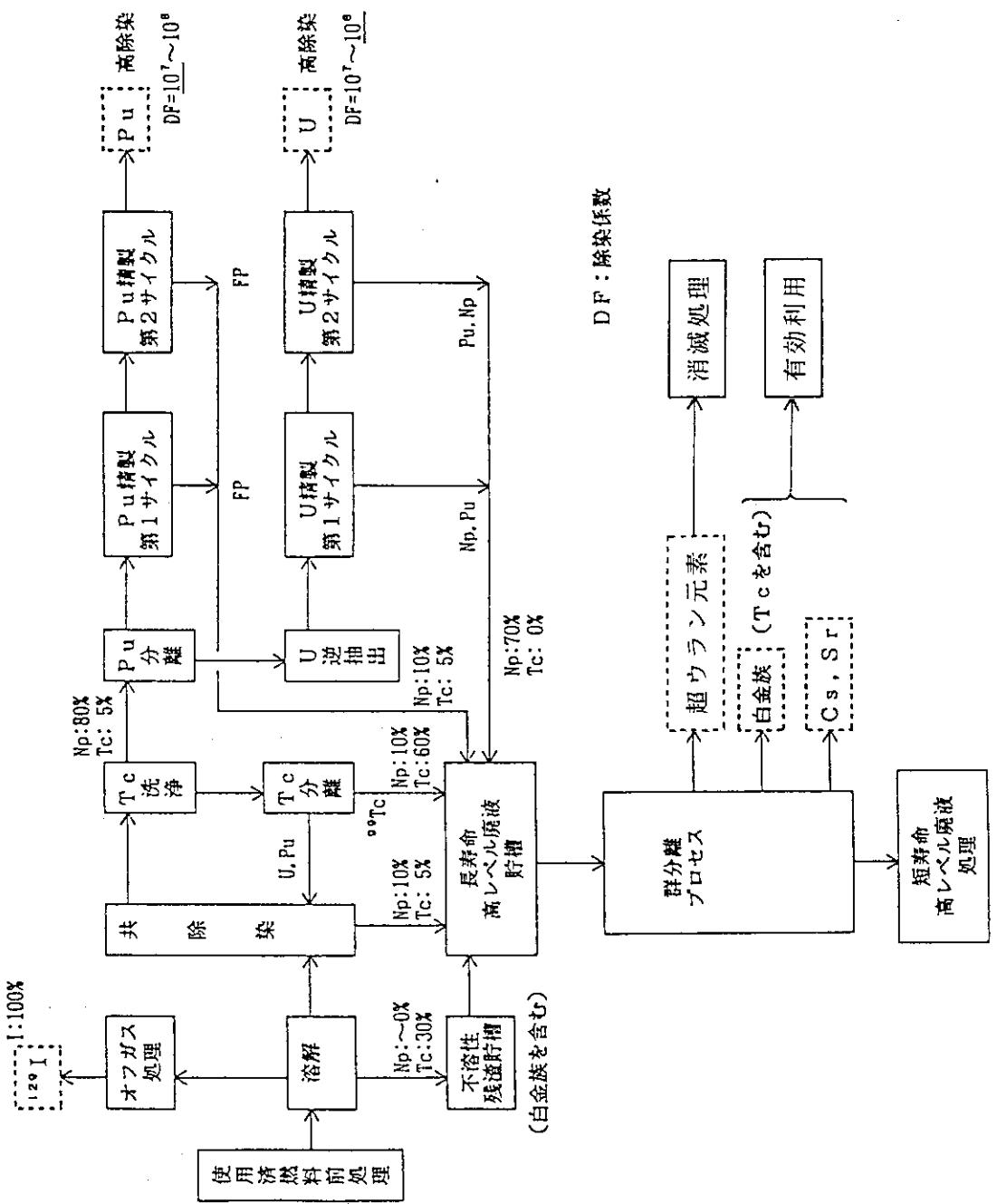
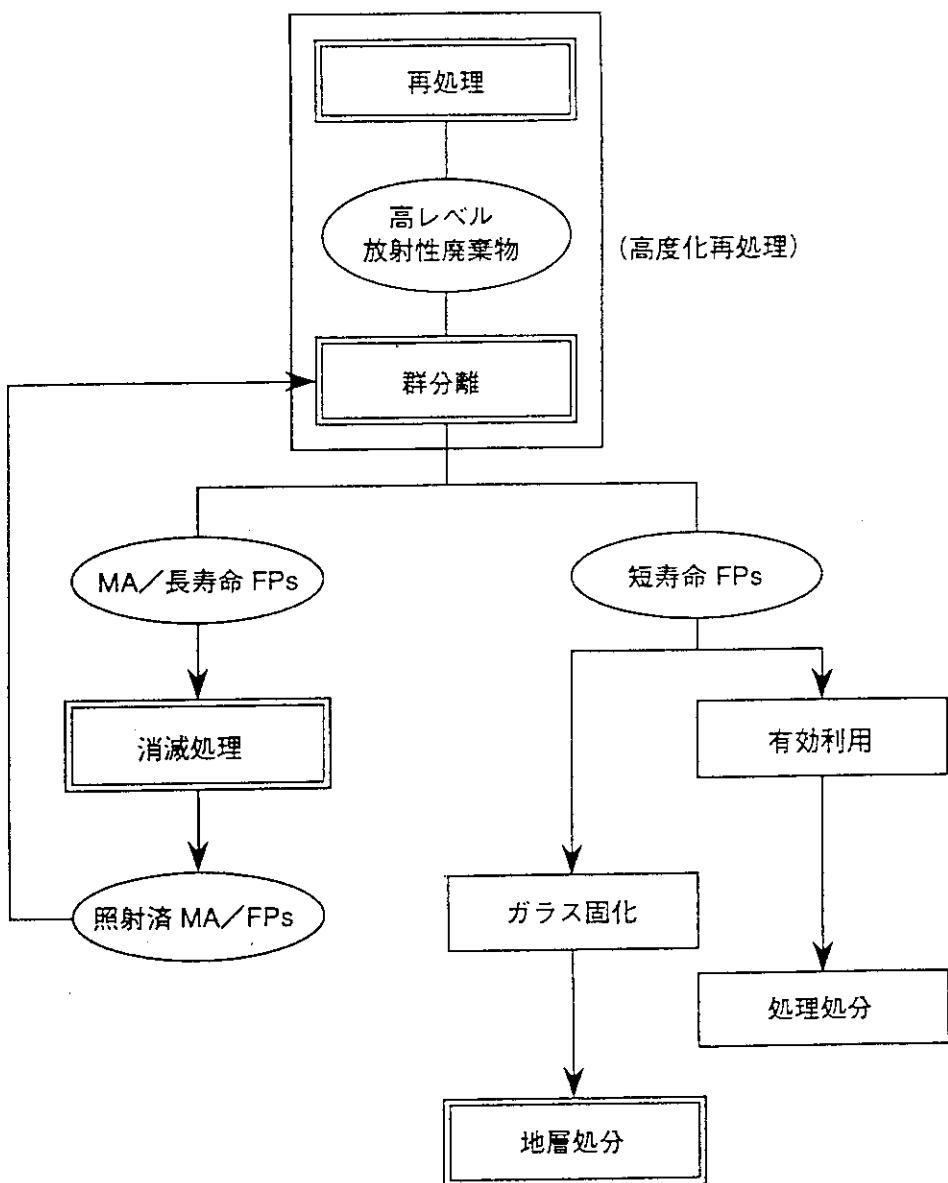


図7 現行再処理プロセス(Purex法)と群分離プロセスとの結合例



MA ; Minor Actinoid

図8 高レベル放射性廃棄物処理処分の将来図  
群分離－消滅処理－地層処分

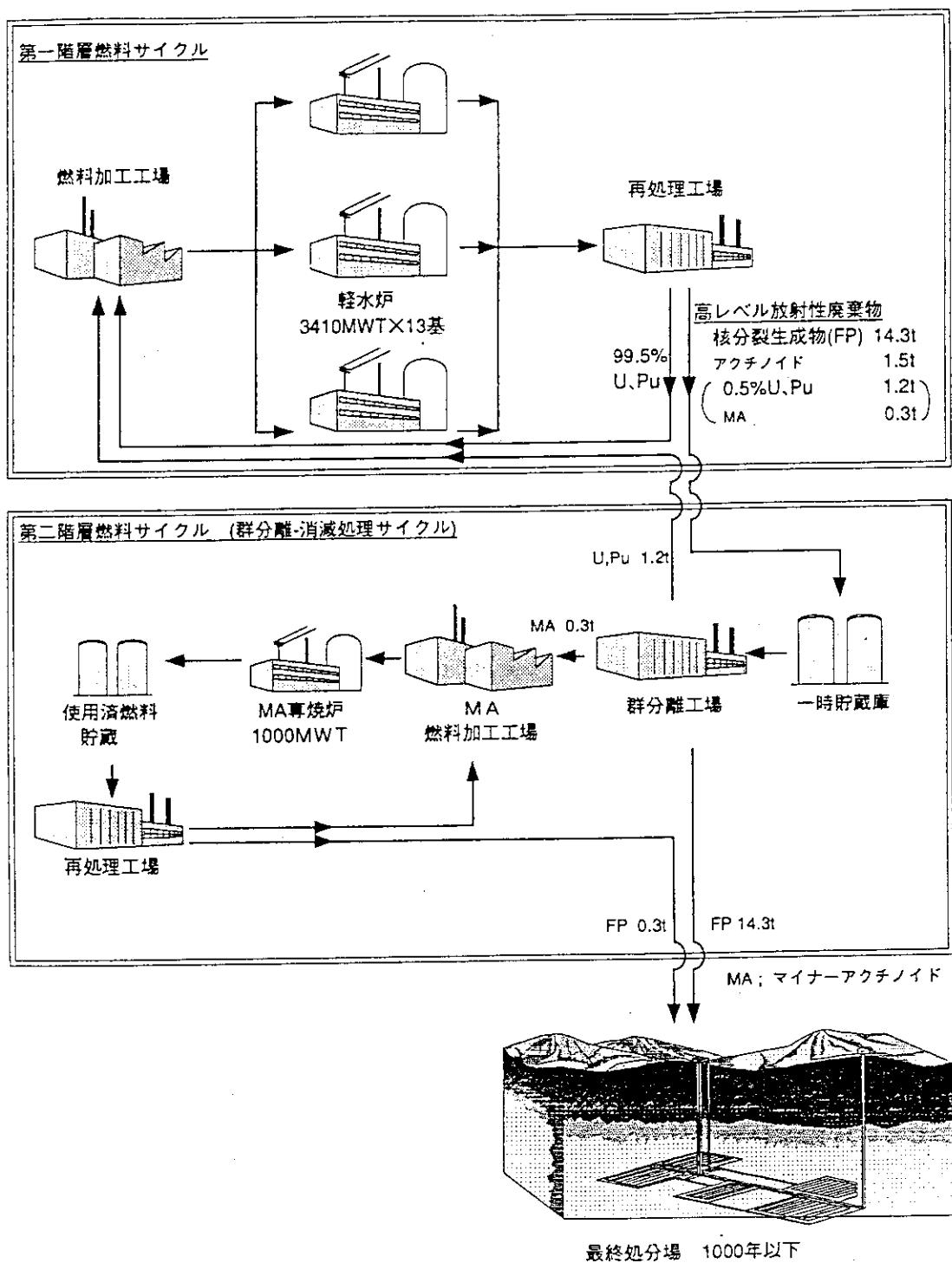
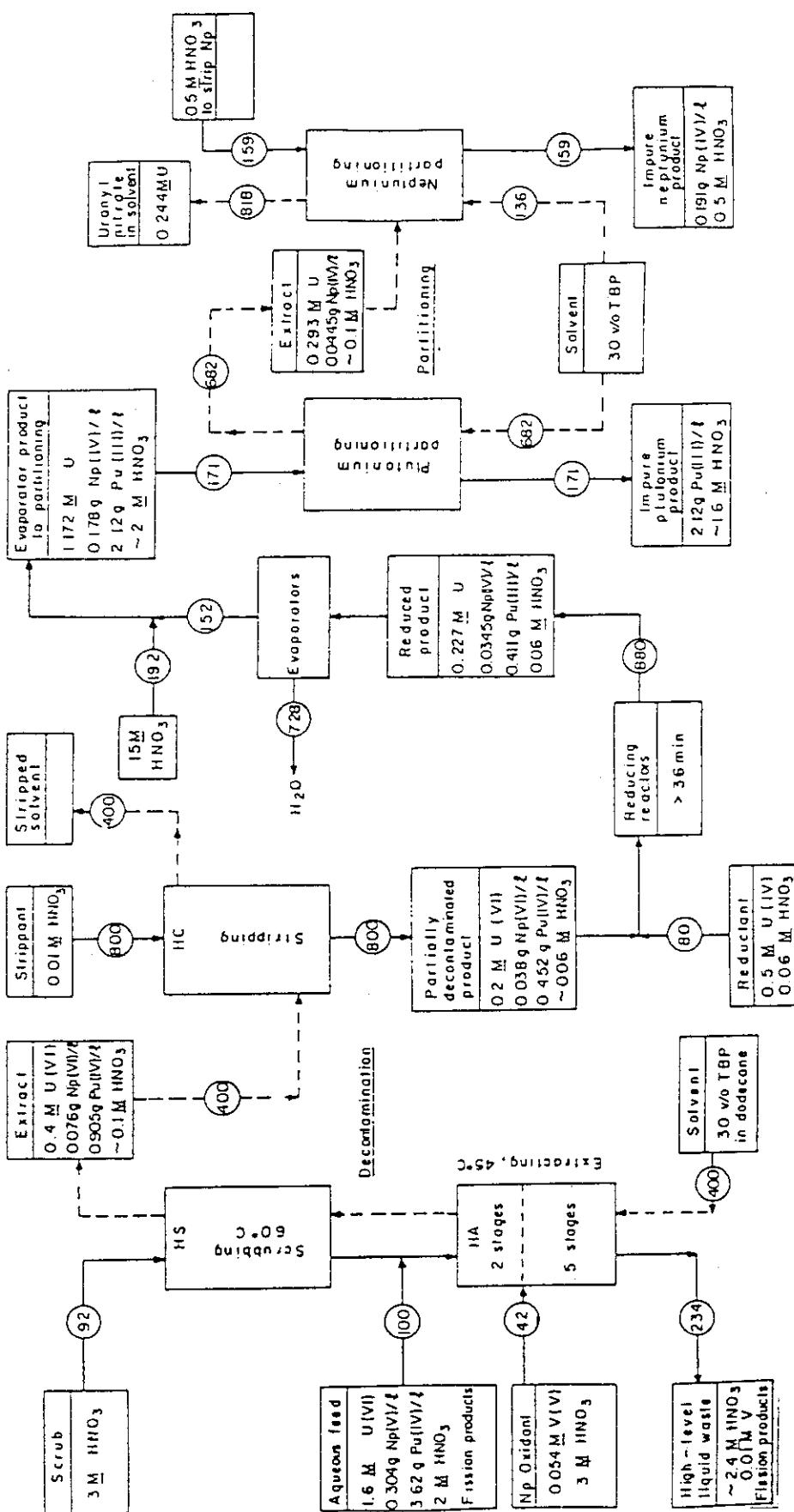


図9 階層核燃料サイクル（群分離・消滅処理導入）



Principal steps in Purex process modified for neptunium recovery. Circles indicate relative volume flow rate; — aqueous; or  $\frac{v}{v}$  —

図10 Purexプロセスを改良したNpの分離プロセスの一例

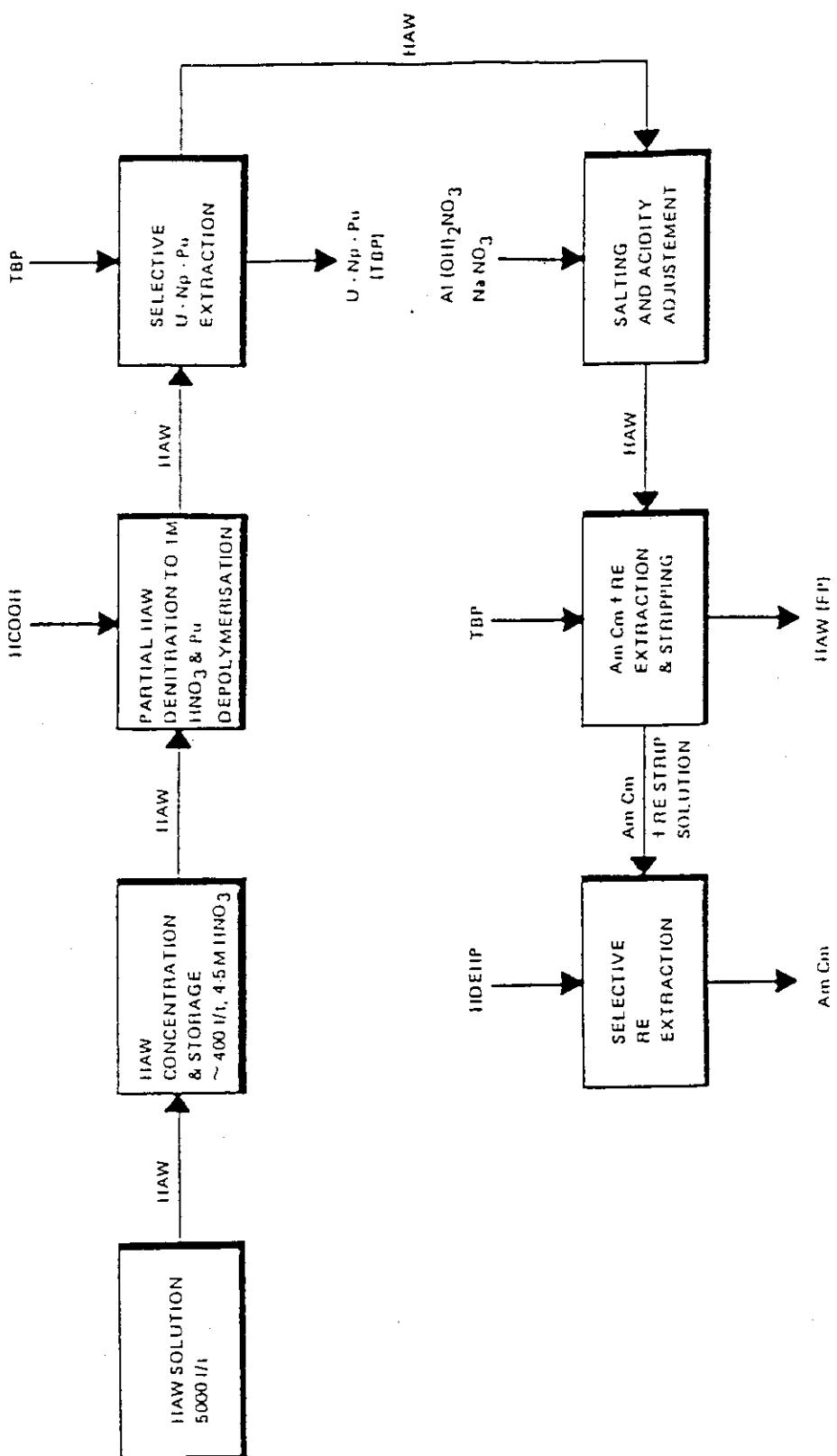


図11 TBP抽出法の概略フロー

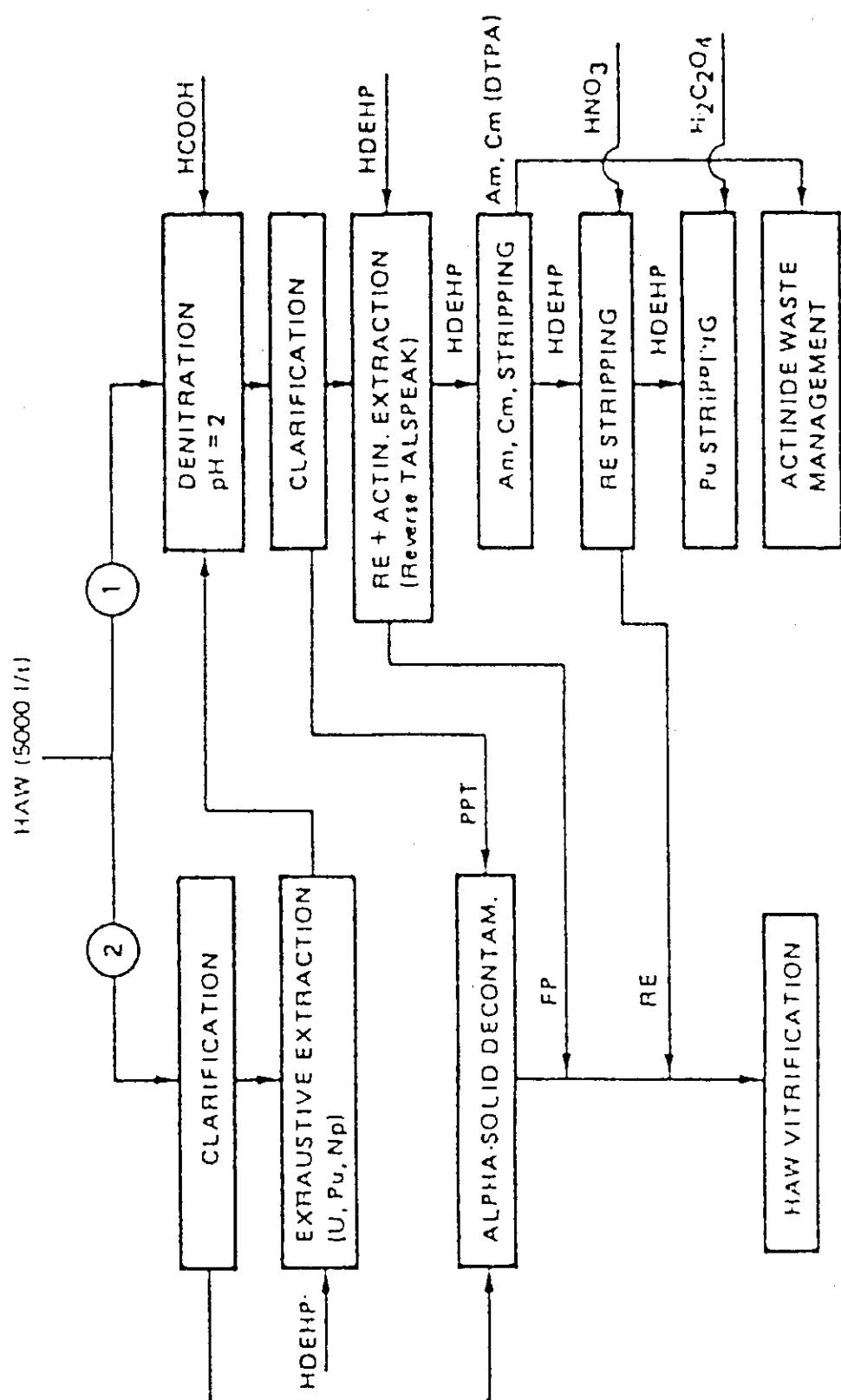


図12 HDEHPプロセスの概略フロー

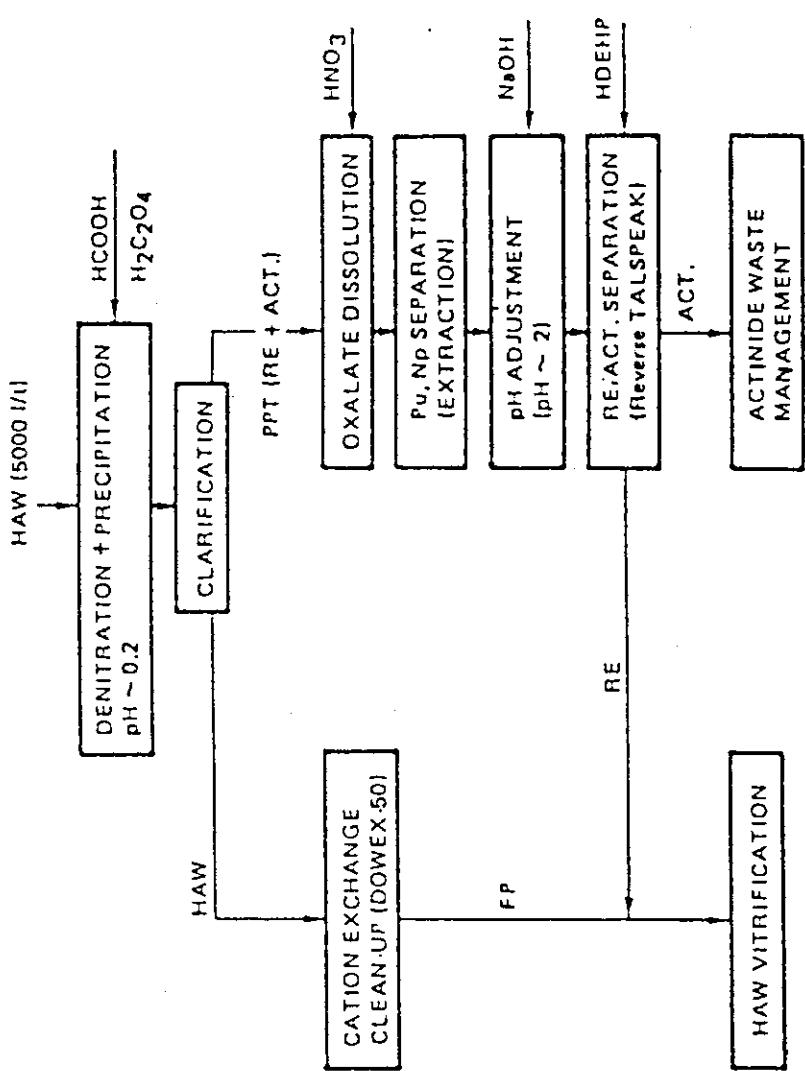


図13 OXALプロセスの概略フロー

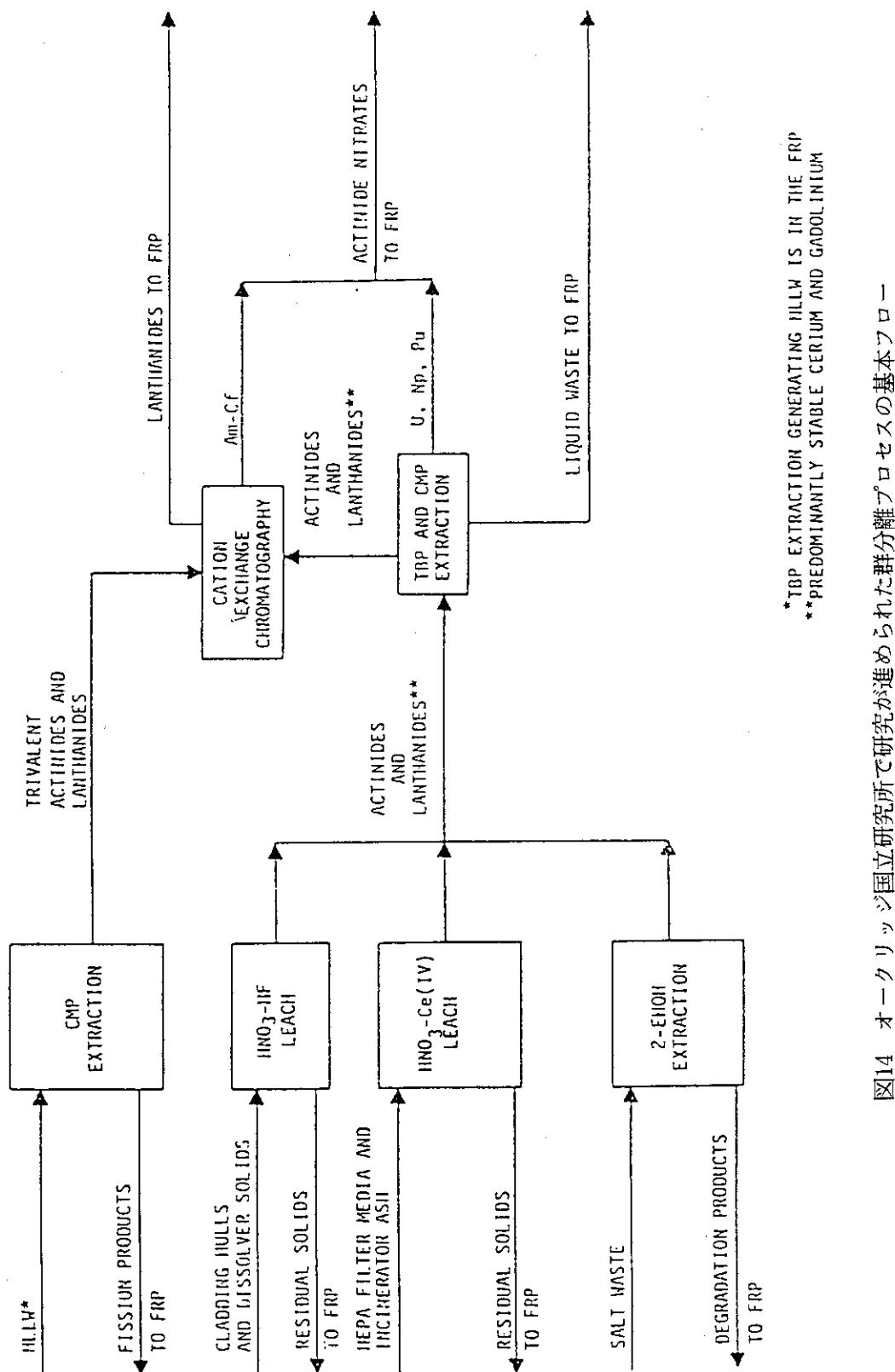


図14 オークリッジ国立研究所で研究が進められた群分離プロセスの基本フロー

## Generic TRUEX Process Flowsheet

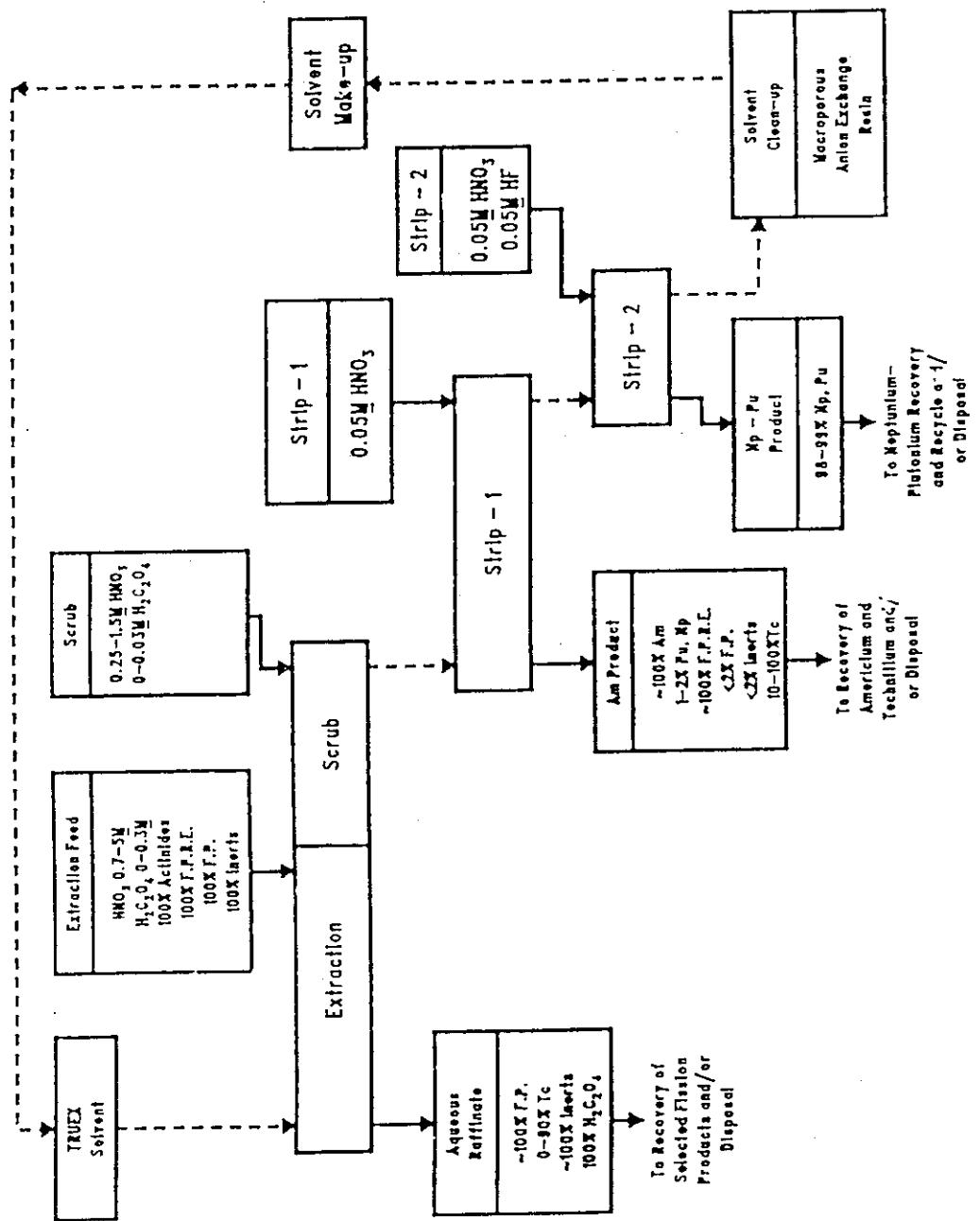


図15 TRUEXプロセスの概略フロー

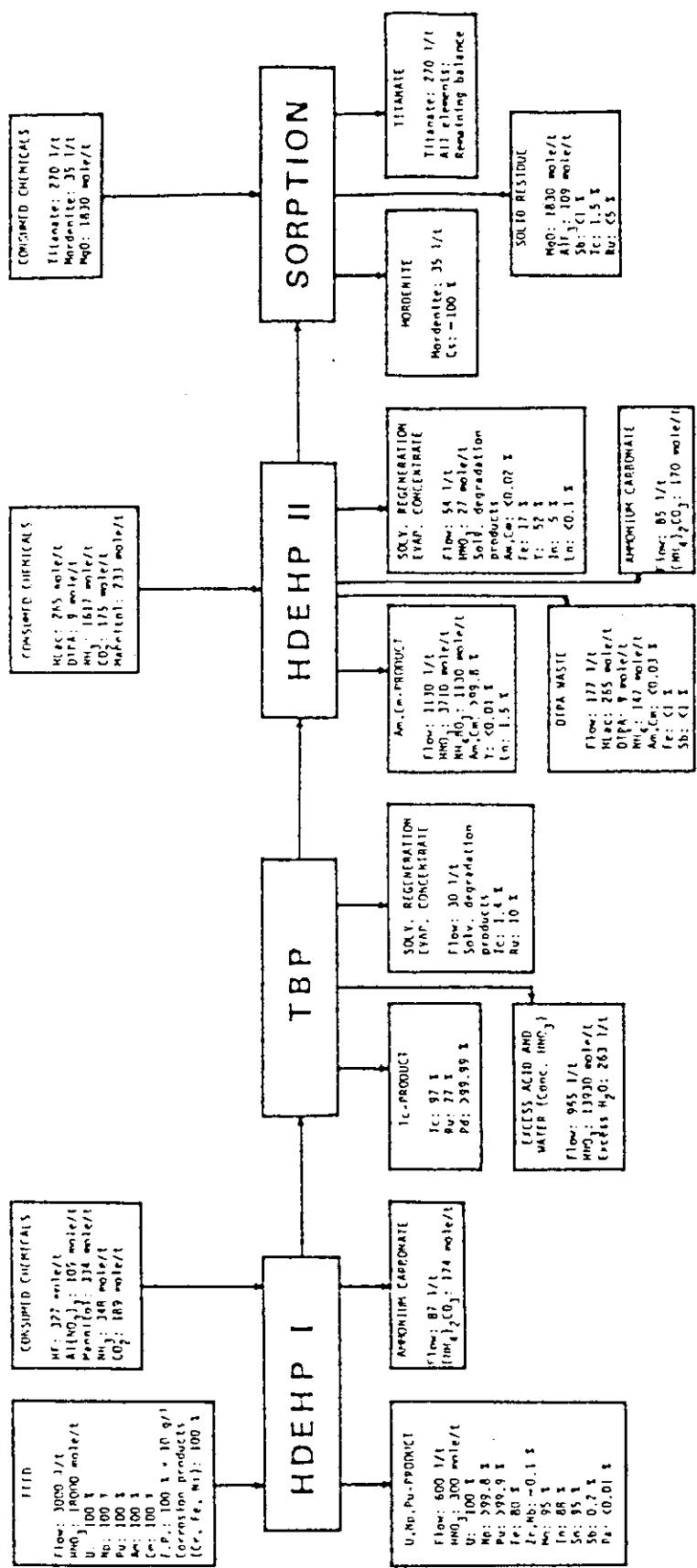


図16 CTHプロセスの概略フロー

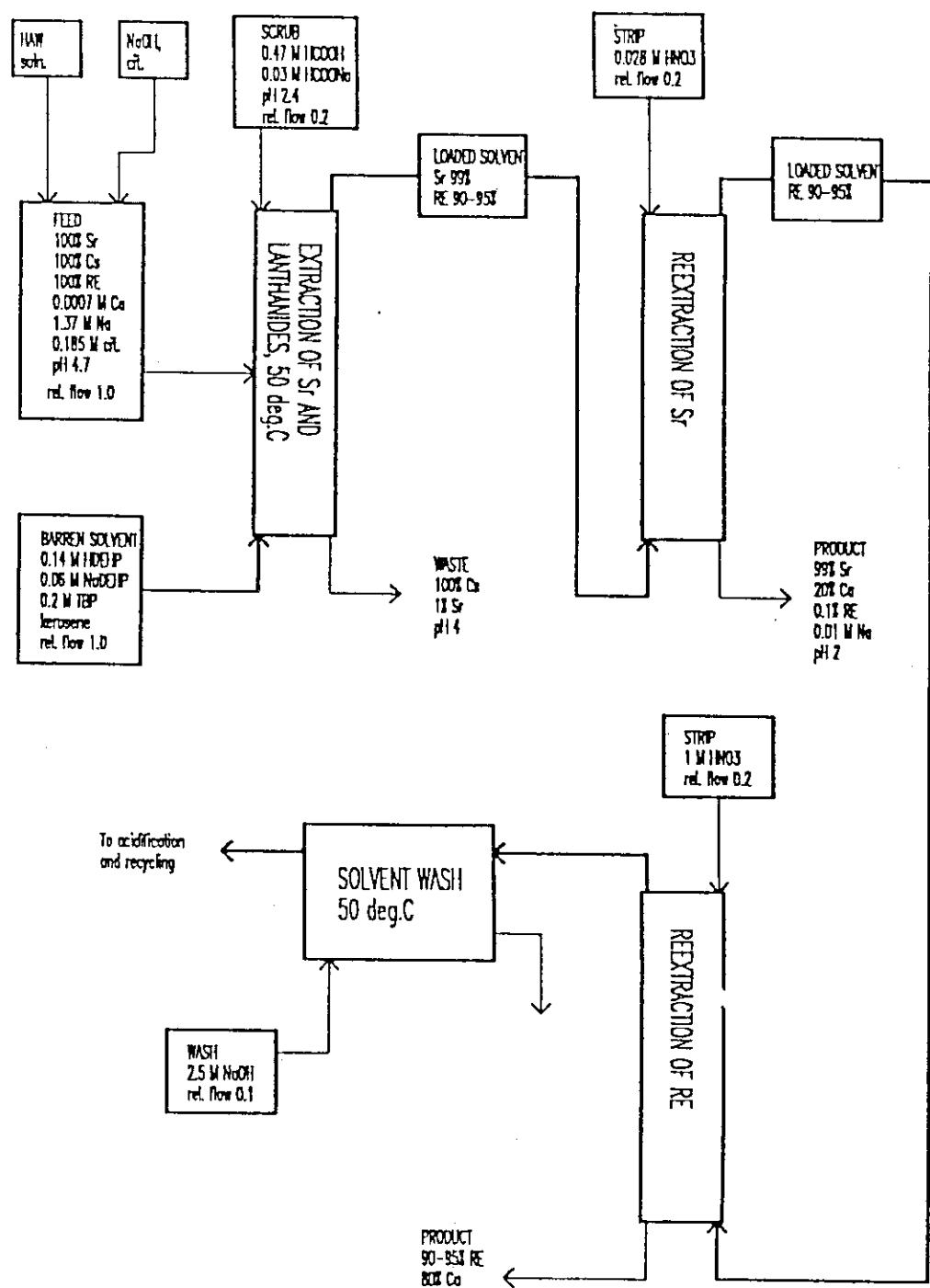


図17 ハンフォード地区に建設された Sr-90 回収プロセスの概略フロー

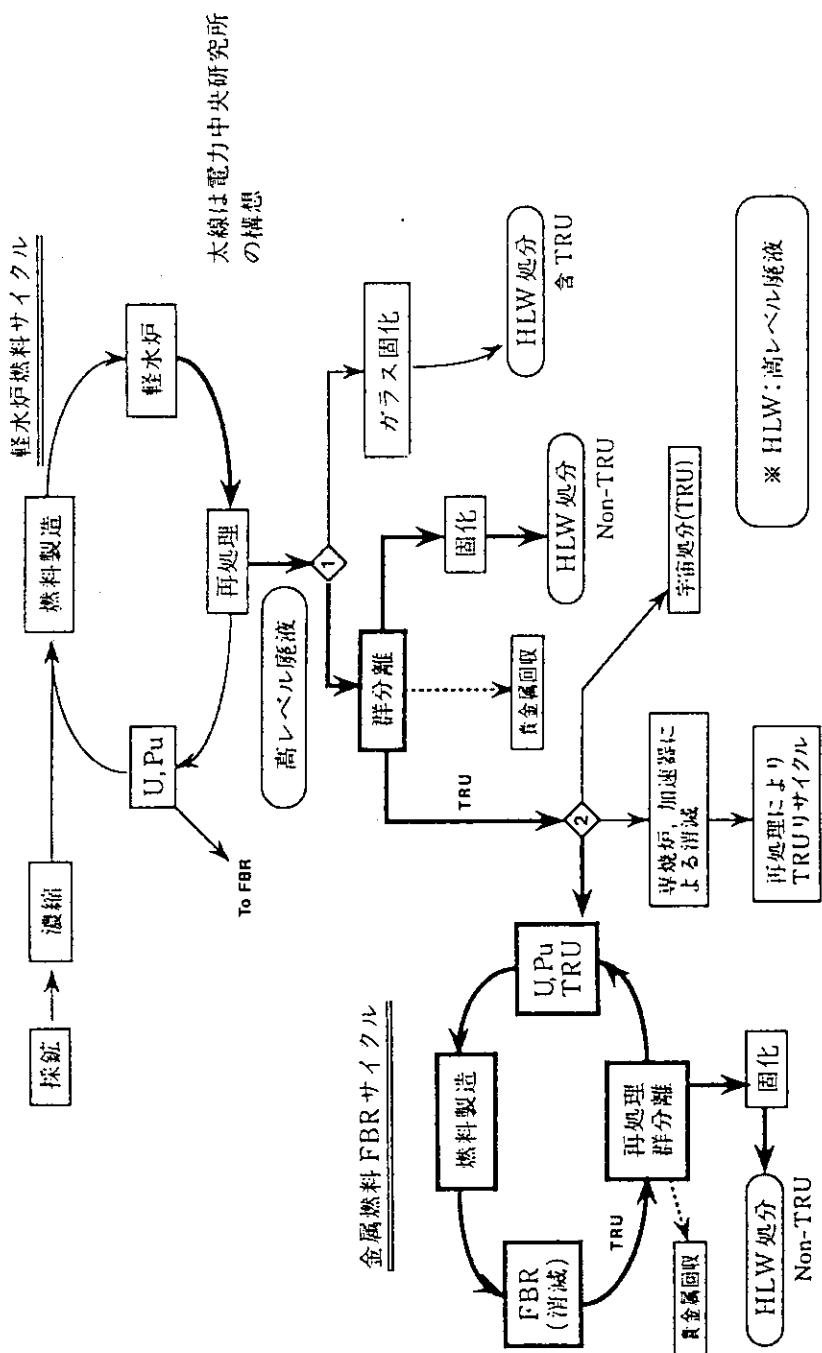


図18 電力中央研究所における群分離・消滅処理の基本構想

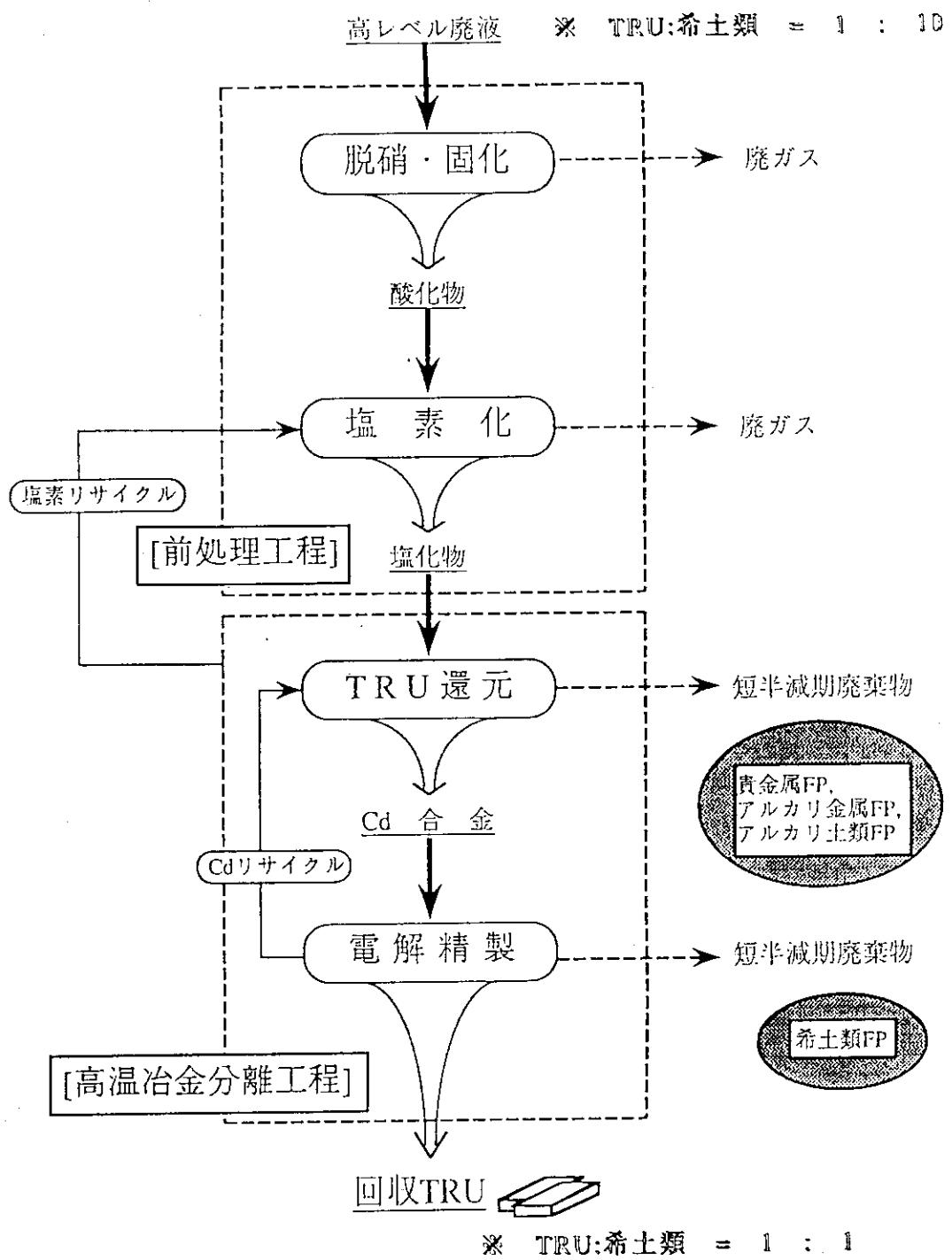


図19 超ウラン元素の乾式分離プロセスの概略フロー

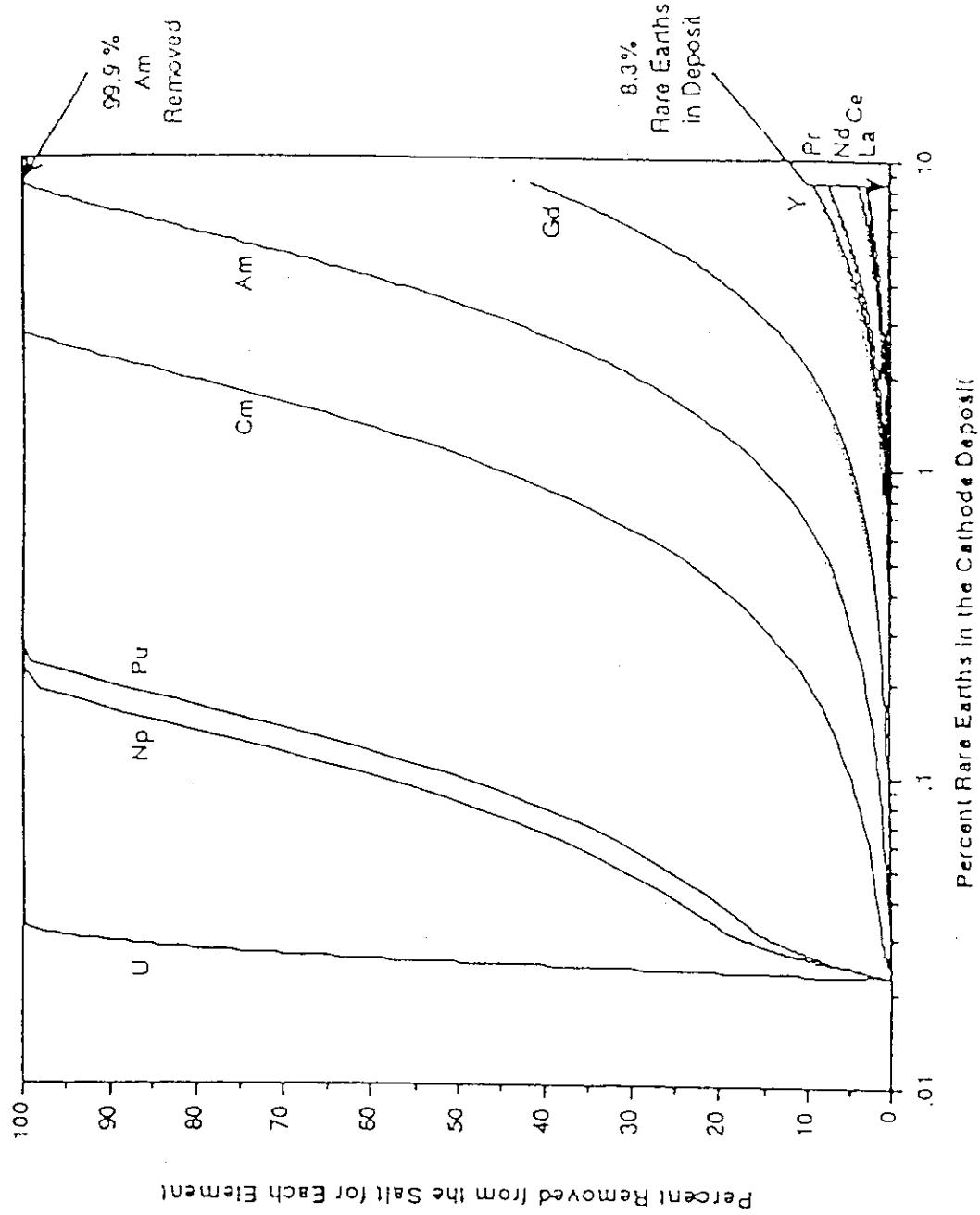


図20 電解精製工程における超ウラン元素の回収率と混入する不純物（希土類元素）の比率の予測例（電流効率等の電解条件は理想条件を仮定）

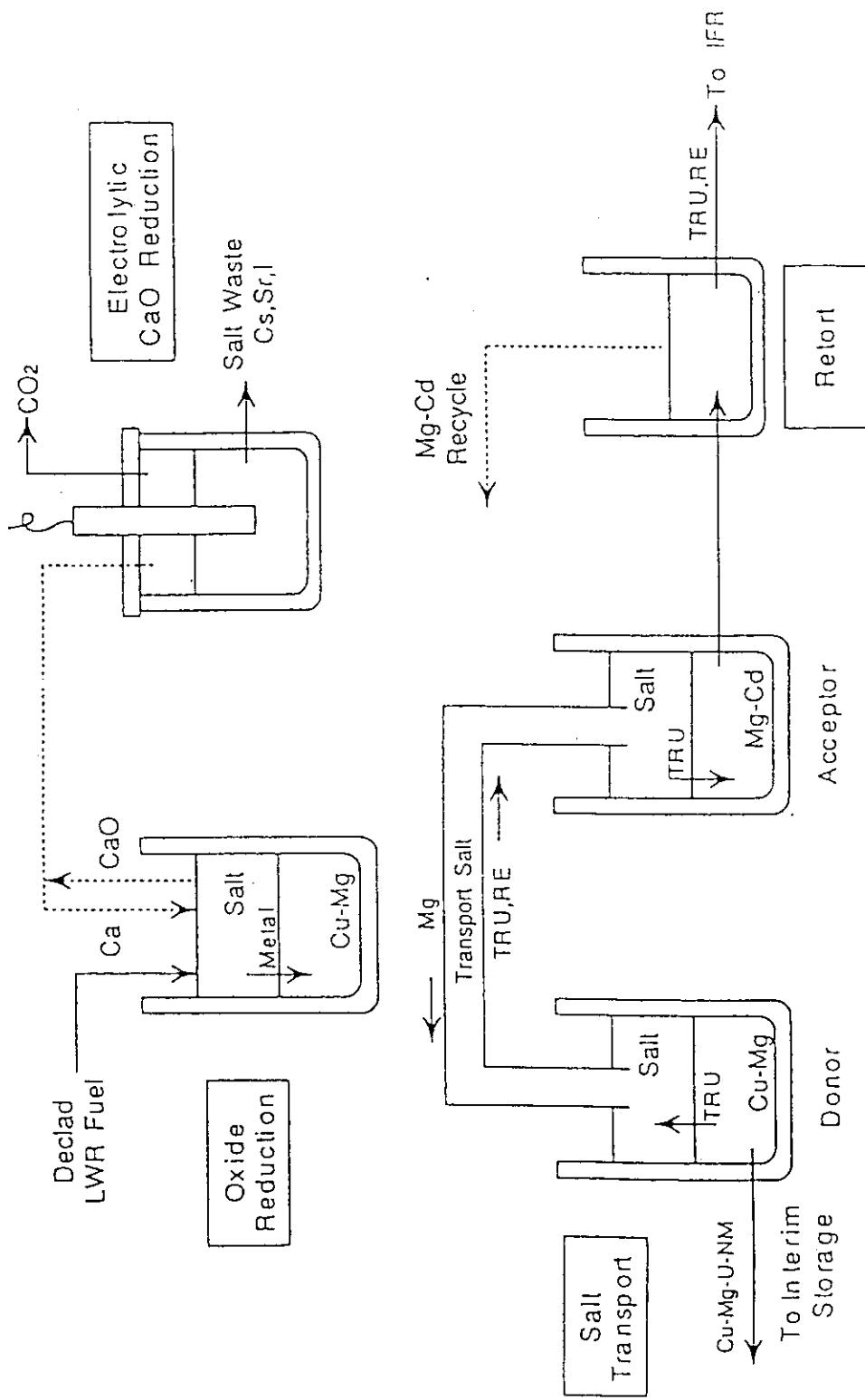


図21 塩輸送法による使用済燃料の再処理・群分離の概念図

## 4. 群分離プロセスの評価

### 4.1 群分離プロセスに関する評価研究の歴史的経緯

群分離プロセスの評価研究は、1980年初期までに米国および欧州において精力的に行われ、群分離・消滅処理サイクルの概念の確立およびその有効性評価が行われた。米国では、1976年から3年間、オークリッジ国立研究所を中心に、米国内11の研究機関が参加して群分離・消滅処理に関する総合的な評価研究を行い、1980年にその結果を報告書にまとめている<sup>(25)</sup>。欧州においてはEC共同体のイスプラ研究所が中心となって、群分離・消滅処理の実験も含めた研究を行い、1983年には同研究所が群分離・消滅処理研究の総合報告書を発表している<sup>(26)</sup>。また、IAEAは1976年より4年間にわたり、米国、ドイツ、イタリア、英国、スウェーデンおよびEC研究所の参加を得て群分離・消滅処理研究の総合報告書を発表している<sup>(27)</sup>。日本においては、1970年代の終わり頃より原研において群分離および消滅処理に関する研究が開始され、現在の4群群分離法の前身である3群群分離法に関する評価結果が報告されている<sup>(5)</sup>。これらの評価結果の概要を付録に示す。原研での評価を除き、米国や欧州の評価では、核不拡散のプルトニウム政策、高レベル廃棄物地層処分政策の確定、当時の技術レベル等を反映して、技術的には可能であるが経済性およびリスクの観点での費用対効果がはっきりしないという結論が出され、研究開発の中止またはスローダウンを余儀なくされてきた。

現在進行中の「オメガ計画」はこれまでのものとは異なり、国際的な協力の下に本格的な取り組みがなされるもので、その成果が期待されている。また、IAEAにおいても1991年(平成3年10月)「群分離・消滅処理」諮問グループ会議が開催され14ヶ国2国際機関から23名が出席し、次のような討議結果がまとめられている<sup>(55)</sup>。

#### [1] R & Dの現状分析

P-Tに関する取り組み方から各国を以下の4つのグループに分ける。

- ①国の計画として行っている国 : 日本、フランス、ロシア
- ②活発な研究活動のある国 : 米国
- ③研究活動がそれほど活発でない国 : 英国を除く他の国
- ④研究活動のない国 : 英国

#### [2] 結論と勧告

##### A. 群分離

P-Tの戦略的および安全性の側面、全体構想の最適化を再考慮する必要がある。群分離のR&Dは放射線被曝量に重要な寄与をする核種に集中すべきである。実験室規模では種々の群分離法が可能であるが、今後はこれらを簡単な安価なものにし、選択性と効率の向上、2次廃棄物の減少を図る研究開発を目的にしなければならない。

##### B. 消滅処理のための燃料

消滅処理燃料については、消滅処理効率、燃料照射挙動、照射後溶解、リサイクルについて照射による実証が必要である。

##### C. 消滅処理

粒子束、エネルギーバランス、燃料サイクル、安全性等の量的な比較のための判断基準の決定、国際的に受け入れられた基準に従った消滅処理システムの比較等が重要な研究課題である。

#### 4.2 群分離プロセスの比較評価

##### 4.2.1 群分離プロセスの分類

現在提案されている種々の群分離法を長半減期核種の処理処分方法に着目して分類したときの一例を図22に示す。この場合群分離法は4つに大別され、再処理(Purexプロセス)との関連から、再処理-群分離分割型、再処理-群分離統合型、高度化再処理型およびFP分離型に分類できる。各分類は表14に示すように湿式法と乾式法に大別され、元素の分離方式により更に細かく分類できるが、分離の対象元素や技術開発上の課題、消滅処理との関連等については図22の分類で十分整理可能である。以下に、各型式の群分離法の特徴を概説する。なお、図22に示した型式のうち、高度化再処理型およびFP分離型については群分離プロセスとみなさないのが一般的解釈であるが、ここでは問題点をクリアにするため、これらの型式も含めて議論を行う。

##### (1) 使用済燃料貯蔵処分（ワヌス・スルー方式）

原子炉から取り出された使用済燃料は数十年間貯蔵した後、収納容器に密封し地層処分する。本概念は燃料の取扱いが非常に簡単であるが、すべての長半減期核種およびウラン、プルトニウムを処分するため、長期にわたるリスクは最大となり、また天然資源の有効利用が図れないというデメリットがある。

##### (2) 現行再処理（Purexプロセス）

使用済燃料は原子燃料物質であるウランおよびプルトニウムを回収するため再処理し、この際FPおよび超ウラン元素は高レベル廃液中に濃縮される。高レベル廃液はガラス固化され、一時貯蔵後処分される。本概念は使用済燃料の処理処分方法の我が国の基本方針であるが、廃棄物中に長半減期核種のほとんどのものを含有するため、処分にあたっては百万年といった超長期にわたり安全性を確保する必要がある。

##### (3) 再処理-群分離分割型

本概念は、使用済燃料より原子燃料物質であるウラン、プルトニウムについては現行のPurexプロセスにより分離後FBR等にリサイクルし、Purexプロセスから放出される高レベル廃液中に濃縮された超ウラン元素をPurexプロセスとは別のプロセスである群分離プロセスにより分離し、残りのFP元素については、有用元素等を分離・回収後、安定化処理し最終処分する概念である。

再処理-群分離分割型のプロセスは、後述する再処理-群分離統合型のプロセスと比較して、再処理施設と群分離施設が別々になっていることから、プロセスが複雑になり易いが、表14からも明らかのように現在提案されている群分離プロセスの大半は再処理-群分離分割型である。これは、1970年代から1980年代にかけて各国で実施された群分離・消滅処理研究が、主として核燃料サイクルにおいて発生する放射性廃棄物中の長半減期核種を群分離・消滅処理することを目

的としていたことに起因するものである。また、実際の分離操作を考えた場合にも、使用済燃料中に含まれるウランおよびプルトニウムの量は他の超ウラン元素に比べて桁違いに多く、これらの元素をMAに先だって分離しておけば、その後の分離操作が簡素化されることになる。特にAmやCmを分離することを考えた場合、これらの元素は発熱量や中性子源強度が高いため、分離プロセスはできるだけコンパクトであることが望まれ、大量に存在するウランやプルトニウムを予め分離しておくことは非常に有効な考え方であるといえる。

#### (4) 再処理－群分離統合型 (Purex プロセス脱却型)

本概念は、使用済燃料中に含まれるウラン、プルトニウムとともに超ウラン元素をも一つのプロセスで分離し、残りのFP元素については有用元素等を分離・回収後、安定化処理し最終処分する概念である。本概念は、いわば現行のPurexプロセスを脱却して新しい概念の再処理－群分離プロセスを構築しようというものであり、Purexプロセスにおいて使用されているTBPに替わる抽出剤を開発する方法と、高温化学法により使用済燃料を直接再処理－群分離するプロセスを開発する方法とが現在試みられている。

仏国のフォンテネオローズ研究所では、従来Purexプロセスにおいてウランおよびプルトニウムの抽出剤として使用されているTBPは処分上厄介である放射化したP<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を生成することから、TBPに替わる抽出剤としてN,N-dialkylamidesを使用することを検討し、この系の抽出剤によりUおよびPuを抽出分離した後、ジアミド系の抽出剤によりMAを抽出する群分離概念を提案している。また、高温化学法によるプロセスの開発例としては、米国アルゴンヌ国立研究所の金属燃料FBRによるP-Tサイクルを構築することを目指したIFR概念における再処理－群分離プロセスがあげられる。

再処理－群分離統合型プロセスは、再処理－群分離分割型プロセスに比べ、プロセスの簡素化が期待されるが、新しい概念として技術的可能性を見きわめるための基礎データの蓄積が行われている段階のものが多く、プロセスとしての成立性が評価されるのはもう少し先になるであろう。

#### (5) 高度化再処理型

使用済燃料中に含まれる超寿命核種のうち、Np-237およびTc-99はTBPに抽出され易いことから、再処理プロセスに群分離機能を持たせ、再処理の段階でUおよびPuに加えて、これらの元素も抽出分離し、残りについてはガラス固化または群分離プロセスに送り最終処分しようという概念である。現行のPurexプロセスでは、Np-237は約90%がTBPに抽出され、Tc-99は約30%が不溶解性残渣へ移行するものの約65%はTBPに抽出される。回収製品にこれらが混入すると燃料サイクル施設において被曝管理、放射性物質の閉じこめへの影響が大きいことから、ウラン、プルトニウムの精製工程においてこれらの核種を除去し、高レベル廃液中に濃縮している<sup>(56)</sup>。

再処理－群分離分割型プロセスでは、この高レベル廃液より再びNp-237およびTc-99を他の超ウラン元素とともに分離除去していることから、これらの核種の分離・回収に二重の手間をかけていることになる。そこで、現行の再処理技術を高度化し、Purexプロセスにおいて分離できる元素は再処理工程で分離し、残りのMAを群分離プロセスで分離しようという概念が出現することになる。

本型式の分離法は、現行のPurex プロセスに多少手を加えるだけで成立するため、技術開発の観点からは比較的容易に達成可能なプロセスであるが、再処理段階で全てのNpを分離できたとしても、Np-237の親核種であるAm-241やCm-245等を同時回収しなければNp分離の意義は半減することから、本プロセスの後に残りのMAを分離するための群分離プロセスが必要となり、その意味では高度化再処理型は再処理－群分離分割型の変形と理解する方がわかり易いかも知れない。

#### (6) FP 分離型

FP 分離型プロセスは、発熱性元素であるSr-90やCs-137、有効利用が期待される白金族元素等を選択的に使用済燃料中から分離・回収しようとするものであり、目的とするFP元素のみを分離する概念と、超ウラン元素等を分離・回収した後の高レベル廃液や不溶性残渣より目的元素を分離・回収する概念がある。いずれの概念においても、目的元素の分離・回収によるコスト－ペネフィットを考慮して分離対象元素およびプロセスの選択を行う必要があるが、特に超ウラン元素に加えて有用なFPを分離する場合、群分離の全工程が非常に長く・複雑となるため、各元素の分離工程には、操作の単純性が非常に強く要求されることになる。

#### 4.2.2 群分離対象元素

群分離の型式と分離対象元素の関係を表15に、分離対象元素とプロセス開発上の課題および消滅処理との関係を表16に示す。いずれの型式の群分離においてもウランおよびプルトニウムの分離は行われ、これらの元素に加えて、高度化再処理型ではNp(場合によってはTc)を、再処理－群分離分割型および再処理－群分離統合型ではNp、AmおよびCmを分離・回収することが基本となっている。更に、再処理－群分離分割型および再処理－群分離統合型ではSr、Cs、白金族元素等の有用FP元素の分離・回収が行われる場合がある。

高度化再処理型プロセスでは、Purex プロセスで使用しているTBPによりAmおよびCmを抽出分離することは不可能に近いため、MAのうちNpのみが分離対象元素となっている。本概念は、現行のPurex法において、燃料溶解液中にCe(IV)等の酸化剤を添加し、通常V価のNpをVI価に酸化させることにより、U・Puに加えてNpをTBPにより抽出分離しようとするものであり、プロセスの実用化の観点からは非常に可能性の高いものであるといえる。しかし、酸化されたVI価のNpは強力な酸化剤を共存させない限り、98%以上のNpを回収できないという技術的問題点もある。また、消滅処理との関連では、再処理段階で全てのNpを分離できたとしても、使用済燃料中に含まれるNp-237の親核種であるAm-241やCm-245を同時回収しなければ、Np分離の意義は半減することが指摘されている。

再処理－群分離分割型および再処理－群分離統合型プロセスでは、Npに加えてAmおよびCmも分離回収するため、高度化再処理型のような問題は生じないが、分離したAm-Cmフラクションに希土類元素が混入すること、およびPurex法の手直しではプロセスが成立しないために、TBPに替わる新型抽出剤や各分離法に適した装置の開発等が大きな課題となる。消滅処理との関連から考えた場合、分離したAm-Cmフラクションに希土類元素が混入することは重要な問題である。消滅処理用の燃料中に希土類元素が含まれると、希土類元素は中性子毒物として働くため燃料中に混入する量は極力小さくしたい。しかし、Am、Cmと希土類元素はその化学的性質が非常によく

似ているため、希土類元素をともなわない $\text{Am}$ および $\text{Cm}$ を分離することは容易でなく、その上使用済燃料中の希土類元素の量はMAの量の50倍以上も存在するため、 $\text{Am}-\text{Cm}$ フラクションへの希土類元素の混入量は無視できるものではない。このため、燃料製造の観点からは $\text{Am}-\text{Cm}$ フラクションと希土類元素との相互分離を行う必要があり、このための方法としてイオン交換法等が提案されているが、現在のところ画期的なプロセスが開発されるまでには至っていない。原研で開発中の4群群分離プロセスでは、DIDPAに抽出された希土類元素と $\text{Am}-\text{Cm}$ を、DTPAによる逆抽出段階で相互分離する方法を考えており、この方法では $\text{Am}$ および $\text{Cm}$ を99.99%分離回収する条件で希土類元素の混入量を約10%以下に低減できることが確かめられている。

同様の理由から $\text{Am}$ と $\text{Cm}$ の相互分離も非常に困難である。表17は、消滅処理用の燃料組成と発熱量および中性子源強度の関係を示したものであるが、燃料中に $\text{Cm}$ が含まれると、発熱量および中性子源強度が非常に大きくなり、その取扱いが大変困難となる<sup>(57)</sup>。また、 $\text{Cm}$ の半減期は28.5年( $\text{Cm-243}$ )から8500年( $\text{Cm-245}$ )と他の超ウラン元素に比べて短いことから、 $\text{Cm}$ の消滅処理を行う意義は小さいとされている。したがって、消滅処理の立場からは $\text{Np}$ および $\text{Am}$ を選択的に分離し、消滅処理を行うというシナリオも提案されているが、このシナリオに応え得るために $\text{Am}$ と $\text{Cm}$ の相互分離方法を確立する必要がある。

また、長寿命FP元素のうち、 $\text{Tc-99}$ は再処理工程において、 $\text{Tc-99}$ は高レベル廃液からの回収または再処理工程における回収が検討されているが、その他の長寿命FPである、 $\text{Cs-135}$ 、 $\text{Zr-93}$ 、 $\text{Se-79}$ および $\text{C-14}$ については分離回収法が検討されていない場合が多く、これらの核種の分離回収法についても検討を行う必要がある。

#### 4.2.3 元素(核種)の分離効率

高レベル廃液中に含まれる元素(核種)の分離回収の目標値は、これらの元素(核種)の放射性毒性の経年変化に基づいて設定され、多くの場合、これらの元素を除いた後の高レベル廃液をガラス固化体としたときの1000年後における潜在的毒性がウラン3%含有鉱石相当以下となるように設定されている。この基準を用いた場合の各元素の分離回収目標値は表6に示すように非常に厳しい値が要求される。第3章に示したように、現在提案されている群分離プロセスの中には、この厳しい分離回収目標値を上回る値で元素(核種)を分離・回収した実績を有するものも存在するが、使用済燃料の溶解から始まって、消滅処理用の燃料製造までの工程をトータルに考えると、表6に示した分離・回収目標値をクリアするプロセスを構築することは容易ではない。

表18は、現行のPurexプロセスの各工程における超ウラン元素の分散の程度を示したものである<sup>(58)</sup>。使用済燃料中に含まれる $\text{Pu}$ およびMAは、機械的前処理工程、溶解・清澄工程および高放射性廃液濃縮工程において、本来のストリームからはずれて分散する傾向にある。

使用済燃料のハルの壁面または表面近くの内面には、燃料照射中にハルと反応したMAが全MAに対して約0.05%付着または浸透している。ハルと反応したMAを分離回収するためには、一旦ハルを溶解した後、リーチングによりMAを分離回収する必要があるが、通常の溶解工程では、ハル中のMAを完全に硝酸溶液に溶解させることは不可能である。このため、機械的前処理工程においてハルを分別回収し、これを高温で処理することによりMAを回収することを考えなければならない。また、 $\text{Pu}$ およびMAは、燃料溶解液中に沈殿が生成すると、その一部が沈

殿に移行する。燃料溶解液中での沈殿生成は、主として燃料溶解時および溶解液の濃縮・脱硝工程において生じる。燃料溶解時に生成する不溶解性残渣中へは、主としてUおよびPuが移行しMAは無視できる程度しか移行しないとされているが、P-Tサイクルではしばしば用いられるMOX燃料を溶解する場合には、Puの不溶解性残渣中への移行割合が1~30%に増加する上にAmも0.4%程度移行するという報告がある<sup>(59)</sup>。Purexプロセスから放出される高レベル廃液を濃縮・脱硝する際に生成する沈殿中へのこれらの元素の移行はもっと深刻であり、濃縮・脱硝条件により移行割合は異なるが、通常0.1~50%のPuおよび0.0005~1.5%のAmが沈殿中へ移行するとされている<sup>(59)</sup>。

群分離プロセスの内、高度化再処理型および再処理-群分離分割型については、現行のPurexプロセスによる処理を工程内に包含していることから、上述の超ウラン元素の分散は無条件に起こるものと考えられる。再処理-群分離統合型の場合にも、湿式法を前提とするならば燃料の溶解操作および溶液の体積や酸濃度の調整は避けられないものと考えられ、やはり同様の超ウラン元素の分散が起こるものと考えられる。このような分散が生じない可能性のある群分離方式はIFR概念中の再処理-群分離プロセスに代表される乾式プロセスであるが、この概念については基礎からの研究が進められている段階であり、超ウラン元素の分散については未知数であるというのが現状である。

このように、現在提案されている群分離プロセスでは、工程内で超ウラン元素の分散が生じる可能性が高く、表6に示すような厳しい条件で元素(核種)を分離・回収することは容易でないと予想される。また、現在提案されている消滅処理プロセスにおいて、超ウラン元素を消滅させるためには、超ウラン元素を消滅装置と群分離プロセスとの間を何度もリサイクルする必要があり、リサイクルのための群分離を行う度に一定量の超ウラン元素がP-Tサイクルからはずれることになる。従って、表6に示すような分離・回収目標値は現在の群分離技術開発の現状から考えればやや非現実的な値であるとも考えられ、分離・回収目標値を現実的な値に修正する作業が将来必要となることも考えられる。

#### 4.2.4 消滅処理用燃料

超ウラン元素の消滅処理に用いる燃料仕様は、用いる炉型に対応して表19のように大別できる。専焼炉を用いる場合には、超ウラン元素を主体とした特殊な燃料を想定しており、現在のところ棒状の金属燃料と粒子状の窒化物燃料および特殊な燃料として溶融塩燃料が考えられている。超ウラン元素を軽水炉または高速炉で燃焼させる場合には、既に実績のある酸化物燃料、金属燃料および窒化物燃料に超ウラン元素を添加して用いることが想定されている<sup>(60)</sup>。

群分離の型式と製造可能な燃料形式との関係を図23および図24に示す。乾式、湿式いずれの形式の群分離プロセスにおいてもすべての形式の燃料製造が原理的には可能であるが、プロセスの経済性や効率化から考えた場合、乾式群分離プロセスでは、金属燃料または溶融塩燃料の製造が合理的であり、湿式群分離法では、MOX燃料、窒化物燃料およびTRU酸化物燃料の製造が合理的となる。

いずれの燃料型式においても、燃料組成として、UおよびPuにNpのみ添加、Np+Amを添加、Np+Am+Cmを添加およびMA主体という4つの場合が考えられるが、表17に示すようにAmやCmを燃料に

添加すると、比放射能や発熱量が増大するため、従来グローブボックス内で行っていた燃料製造をセル方式に変更する必要がある。また、TRU燃料は比放射能および発熱量が高いため、燃料保管時、燃料輸送時等に遮蔽対策および除熱対策をとる必要がある。特に燃料中にCmが含まれると通常のMOX燃料に比べて発熱量は20倍以上となる上、中性子源強度は通常の使用済燃料を上回るという評価が行われており、燃料取扱い上はCm含有の有無は非常に重要となる<sup>(61)</sup>。

燃料製造技術の面から見ると、専焼炉用の燃料はMA主体の特殊な燃料であることから、比放射能や発熱量が非常に大きいことに加え、燃料開発自体が大きな課題であるといえる。金属燃料FBRの場合は、もともとセル内での燃料製造を想定しているため、MA添加による比放射能の増加に対しては、セルの遮蔽能力を増強することにより対応可能であると考えられるが、所定量のMAを燃料中にいかに均一に分散させるかが最大の技術課題といえる。一方、LWRやМОХ燃料FBRの場合は、従来グローブボックス内で燃料製造を行っている関係から、MA添加による比放射能の増加に伴いセル方式を検討する必要が生じる。しかし、世界的な規模で見た場合、FBR用MOX燃料にMAを添加した燃料製造は小規模ではあるが既に行われており、被曝低減化の課題を除いて、一応技術的には可能な段階にあるといえる。

燃料製造の実績や技術的可能性の観点から考えた場合、MAを添加したMOX燃料、TRU金属燃料、専焼炉用の特殊燃料の順で開発の可能性は高いといえるが、いずれの群分離法を用いても燃料に使用するMA中には希土類元素が混入し、かつAmとCmを分離することも困難であるという分離プロセス上の制約も考慮すると、MA中への希土類元素の混入割合と消滅処理用燃料の成立性の関係を今後明らかにしていく必要がある。

#### 4.2.5 二次廃棄物

超ウラン元素の分離に伴い発生する主な二次廃棄物には、設備の運転保守に伴う廃棄物および分離試薬等がある。分離プロセスの構築にあたっては、二次廃棄物の発生量を極力少なくするよう設計する必要がある。二次廃棄物の発生量は、乾式群分離か湿式群分離かによってかなり異なる。乾式群分離法では、表12および表20に示すように、廃液1ton当たりのプロセスの取扱い量が湿式法の約8分の1と大きく低減できることから、プロセス規模が小さくなり二次廃棄物の発生量は相対的に小さくなる。また、乾式法では、放射線や硝酸により劣化した有機抽出剤やイオン交換樹脂などの廃棄物が恒常的に発生しないため、使用済塩、ルツボ等を除くプロセス廃棄物としての二次廃棄物の発生も大きく低減できるとされている。

一方、湿式群分離法では、シュウ酸塩沈殿法のような特殊な方法を除いては、有機抽出剤の放射線分解や熱分解による劣化は防ぐことができず、恒常に有機廃棄物が発生する。特に、再処理一群分離分割型方式による群分離プロセスの場合、MAを抽出するための溶媒として通常TBP以外の溶媒が使用されるため、Purexプロセスと合わせて2種類の有機廃溶媒が発生することになる。従って、溶媒抽出による群分離プロセスにおいては、抽出特性に加えて、耐薬品性や耐放射線性に優れ、精製・リサイクルおよび廃棄物処理が容易な溶媒を選定する必要となる。また、超ウラン元素の分離プロセスで発生する廃棄物量は、①再処理プラントでは、使用済燃料1ton当たり約970kgのUを抽出するのに対し、MAの分離プロセスでは約11kgのMAおよび希土類元素を抽出するにすぎない、②MAの分離のために開発されている抽出剤の耐放射線性はTBP

に比べて遜色なく、溶媒のリサイクルに伴う廃棄物量および廃溶媒による廃棄物発生量は、等量のTBPを取り扱う場合と同様に評価できる、等の理由から、再処理プラントで発生する廃棄物量の1%から多くても10%の範囲内になるものと考えられている<sup>(62)</sup>。

ただし、乾式、湿式どちらの方式の群分離プロセスも、現状では実験室規模での開発が行われているにすぎず、今後の課題は、分離プロセスの実廃液試験および溶媒(湿式法の場合)や使用済塩(乾式法の場合)のリサイクル技術を含めた化学工学的試験の実施であり、二次廃棄物発生量の定量的評価に資する技術の開発と具体的なデータの蓄積が待たれるところである。

#### 4.2.6 経済性についての考え方

超ウラン元素の多くや一部のFP(Tc-99やI-129)は数百万年以上の半減期を持つため、その影響についての考察は数百万年にもおよばざるを得ない。これは人類が経験したことのない長大な時間であり、いかなる放射性廃棄物処理処分技術も、現時点では有効性を保証することはできない。長半減期核種を分離し消滅処理すると、放射性廃棄物処理処分の有効性確認期間は数千年程度に減少する。このような見通しを持つ群分離・消滅処理技術の経済性評価の基本となる考え方は以下の通りである。

##### (1) コストーベネフィット

まず初めに、群分離・消滅処理技術の開発に係わる費用と、それを採用した場合の費用(施設の建設費と運転維持費)を評価し、この費用を代替システムの費用と比較する必要がある。代替システムとしては、現行の再処理にてウランとプルトニウムを回収し、高レベル廃液を固化した後処分する再処理リサイクルシステムと、使用済燃料を貯蔵処分するワанс・スルーシステムとが考えられる。

比較的技術開発の進んでいる再処理リサイクルおよびワанс・スルーについてさえ、費用の評価に大きな不確実性が存在する現時点において群分離・消滅処理システムについて信頼性のある費用評価を行うことは極めて困難であると予想される。

群分離・消滅処理が実現した場合に予測されるシステムとの比較による便益の評価はより一層困難である。群分離・消滅処理によりもたらされる便益の中には、廃棄物からの白金族元素や有用な放射性同位元素の回収のような比較的評価し易い項目もあるが、数百万年間にわたる放射性廃棄物の管理から逃れることに対する経済的評価を行うための手法を見いだすことは非常に困難である。放射性廃棄物の処理処分の不確実性を減少させることの評価を行うためには、経済活動や個人の主観的判断の外にある自然生態系といった広い立場からの評価が要求される。

##### (2) 外部経済についての考察

通常の経済活動の中では費用や便益として計上されないが、社会全体や生態環境という広い立場から見ると価値が付与されるものがある。この時に問題になるのが、放射性物質による健康上のリスクの変化である。群分離・消滅処理を行えば、長半減期核種がなくなるので超長期的には健康上のリスクは減少するが、短期的には燃料の輸送や処理により高放射能のものを取り扱うことになるので逆にリスクは増大する。このように健康上のリスクの評価には多くの条件が関与するため不確実性がおおきいが、米国オークリッジ国立研究所では、健康上のリスクを標準的な再処理施設の場合と比較することにより、短期的には群分離・消滅処理を行うと百万kWの原

子力発電1年間当たり、16人レム被曝が増大するが、長期的には2850人レム減少するという評価をおこなっている。ただし、報告書では、健康上のリスクの軽減に比べて費用の増大が大きすぎるため群分離・消滅処理はメリットがないとしている<sup>(25)</sup>。

#### 4.2.7 4群群分離プロセスの相対評価

原研が開発を進めている4群群分離プロセスを、提案されている他の群分離プロセスと比較した場合の相対評価結果を表21に示す。4群群分離プロセスは、再処理一群分離分割型の群分離プロセスであり、各元素(核種)の分離操作は湿式法により行われる。このため、4群群分離プロセスの相対評価は、表14に示した再処理一群分離分割型、湿式プロセスの場合と類似のものとなる。

##### (1) 群分離対象元素

Purexプロセスから放出される高レベル廃液より、Np, AmおよびCmを群分離することが中心となり、超ウラン元素の抽残液より、白金族元素、Tc、SrおよびCsを分離する。消滅処理との関連から考えると、Am-Cmフラクションと希土類元素、およびAmとCmの相互分離が問題となり、有効利用との関連では、目的元素の回収による、コストーベネッフィトを十分検討する必要がある。

##### (2) 元素(核種)の分離効率

表9に示すように、4群を一つのプロセスにおいて連続的に群分離するのではなく、各群のみを単独で分離する場合には、表6に示す非常に厳しい分離・回収目標値をクリアする分離能力を有する。しかし、湿式法による群分離である以上、Purexプロセスの各工程および燃料溶解液の液性調整の段階等で超ウラン元素をはじめとする群分離対象元素のロスが生じるため、トータルのプロセスとして、各元素(核種)の分離・回収目標値をクリアする保証はない。

##### (3) 消滅処理用燃料

現在のところ、群分離後の超ウラン元素を用いた消滅処理用の燃料製造については全く検討が行われていない状態であり、この点については今後の課題として残されている。しかし、一般論としては、湿式群分離法であることから、MOX燃料、窒化物燃料、TRU酸化物燃料の製造が可能であると考えられる。また、4群群分離プロセスでは、Tc, SrおよびCsの分離・回収も行われることから、これらの元素の消滅処理用のターゲットを製造することも原理的には可能である。

##### (4) 二次廃棄物

超ウラン元素の抽出工程において、有機抽出剤の放射線分解や熱分解により恒常に有機廃棄物が発生するのが大きな点である。Tc-白金族元素群およびSr-Cs群の分離工程での二次廃棄物の発生量は、これらの元素の分離法により大きく異なるが、脱硝沈殿法によりTc-白金族元素群を、チタン酸-ゼオライト混合無機イオン交換体によりSrおよびCsを回収するプロセスでは二次廃棄物はほとんど発生しないと予想されている。しかし、4群群分離プロセスは、他の提案されている群分離プロセスに比較して分離対象元素が多く、プロセスの工程も長いことから、二次廃棄物の発生量は相対的には大きいものと考えられる。

#### 4.3 群分離プロセスの技術的 possibility の評価

群分離プロセスの技術的 possibility の評価は、群分離の意義、すなわち何のために群分離を行うのかによって大きく変わり得るものであろう。群分離の意義についてはこれまでにも多くの議論が行われているが、未だ統一した見解がもたれるまでには至っておらず、このことが群分離プロセスに対して多種多様な評価をもたらす原因になっていると言っても過言ではなかろう。

群分離の意義を放射性廃棄物、特に高レベル廃棄物の処理・処分との関連で見た場合、表22に示す整理が一例として考えられる。また、各群分離の意義を考えた場合の、群分離技術の開発の現状およびシナリオの成立性に関する定性的な検討を表23に示す。

##### (1) ガラス固化体の減容化を目指す場合

高レベル廃液のガラス固化を行う際に、イエローフェイズ析出の主たる原因となるMoや発熱の主原因となるSrやCsを予め分離除去した後ガラス固化を行うことには、高レベル廃液の一括ガラス固化に比べて固化体の体積を減少させることができるとなる。本シナリオを実現させるためには、高レベル廃液から効率よくMoやSr、Csを分離除去し、これらの元素を最終処分に適した形態に加工するための処理法を開発する必要がある。

SrおよびCsの高レベル廃液からの分離方法については、HDEHPによる溶媒抽出法、AMP、ゼオライト、チタン酸等を用いた無機イオン交換法、クラウン化合物による溶媒抽出法等種々の方法が検討され、いずれの方法においても分離回収率は99%以上とされている。また、分離後の元素の固定化についても、原研において研究が行われ、SrおよびCsを吸着させたチタン酸-ゼオライト混合無機イオン交換体を1000°C以上の温度で焼結することにより処分に適した安定な固化体となることが実証されている。

一方、Moについては、Moの分離のみを目的とした研究報告は見あたらないが、高レベル廃液の酸濃度を脱硝により調整する際自然に沈殿としてMoが分離する、種々の有機溶媒により定量的に抽出される等の知見が多く報告されており、Moを高レベル廃液から分離することも技術的には十分可能であると判断される。

以上の技術開発の現状から判断して、本シナリオは現状の技術レベルにおいて十分達成可能なシナリオであり、分離によるコスト増加、二次廃棄物の発生と固化体体積の減容効果とがコスト的に見合うかがシナリオ成立の鍵となる。

##### (2) 高レベル廃棄物の管理負担の軽減化を目指す場合

本シナリオは、現行の高レベル廃液の一括ガラス固化に対して、高レベル廃液を、潜在的毒性が高く長半減期の核種を含む廃棄物とこれらの核種を含まない短半減期核種のみを含む廃棄物に分けてガラス固化を行おうというものである。本方法によれば、深地層処分を必要とするガラス固化体の体積を、一括ガラス固化に比べて大幅に低減化することも可能となり、人間が何十万年以上にわたって監視し続けなければならない廃棄物の量が減るとともに、深地層処分に必要なスペースを大幅に縮小できる可能性がある。

本シナリオにおいては、高レベル廃液(廃棄物)中に含まれる潜在的毒性の高い長半減期核種をいかに高効率で分離除去するかが問題となり、分離された製品の純度(不純物の混合割合)はそれ

ほど厳しく問われることになる。これまでに報告されている群分離プロセスでは、超ウラン元素については高レベル廃液より99.9%以上の回収率で分離可能であるとされており、特に湿式法では~100%の分離回収率を達成しているプロセスもいくつか存在する。また、Tc-99やI-129等についても、本シナリオが十分成立する回収率で分離可能であり、シナリオを実現するための技術的基盤は十分確立されているものと判断される。また、核種の分離を湿式法により実施する場合には、分離後の核種は硝酸溶液の形で回収されることが多いことから、分離した核種のガラス固化には従来の固化法がそのまま適用可能であり、新たな技術開発をほとんど必要としないといえる。

本シナリオの有効性を評価するためには、高レベル廃液(廃棄物)から潜在的毒性の高い長半減期核種をどのレベルまで分離除去すれば、残りの核種を含むガラス固化体は深地層処分が不用になるかという、いわゆる“すそ切り値”を明確にする必要がある。従来この値としては、対象元素を取り除いた後の高レベル廃液をガラス固化体(使用済燃料1トン当たり142L、384kg)とした時の1000年後における潜在的毒性がウラン3%含有鉱石(密度をガラス固化体と同じにする)相当以下となるように除染係数を定めている場合が多く、この基準では全超ウラン元素に対して  $8.7 \times 10^4$  という非常に厳しい値を要求されることになる。また、この厳しい値をクリアして超ウラン元素の分離を行っても、高レベル廃液中には、Zr-93、Cs-135、Pd-107等従来群分離の対象元素として扱ってこなかった超長半減期の核種も存在し、これらの取扱いについても検討を行う必要がある。

更に、本シナリオを徹底するためには、高レベル廃液のみならず、燃料溶解時の不溶解性残渣やハル・エンドピース等といった、従来群分離の対象としてあまり考慮してこなかったTRU廃棄物からの対象核種の分離回収をも考える必要があり、すそ切り値の設定いかんによっては、技術的には成立し得るシナリオであっても、経済的には成立しないという評価が下される可能性もある。

### (3) 将来的な使用済燃料の処理・処分方法に柔軟に対応できる高レベル廃棄物の処理・処分方法の確立を目指す場合

現在の日本の原子力政策では、使用済燃料の再処理によりUとPuを取りだした後に発生する高レベル廃液は、一括してガラスに溶かし込んで安定な形態にガラス固化した後、深地層処分することを基本方針としている。この方針により高レベル廃液の処理・処分を行うと、将来消滅処理や元素の有効利用が処理・処分の基本方針となつた場合に対応することが非常に困難となる。そこで、高レベル廃液を一括ガラス固化により処理・処分しないで、廃棄物中に含まれる有用元素、超ウラン元素、発熱性核種等の将来的には有効利用や消滅処理等の対象となり得る元素(核種)等を性質別に分離・回収した後に、残りの廃棄物をガラス固化することを考えれば、将来的には実用化も考えられる、元素の有効利用や超ウラン元素の消滅処理等に対して柔軟な対応が可能となる高レベル廃液の処理・処分方法が確立されることになる。

本シナリオでは、分離後の核種(元素)の取扱いに関する方針が現段階において定められていないことから、個々の核種(元素)を将来多種多様な形態に加工することが可能な形で分離・回収するための分離方法を開発することがメインテーマとなるであろう。高レベル廃液から超ウラン

元素、白金族元素、発熱性元素等を高レベル廃液より分離する方法については、実廃液試験を含めて多くの技術開発が進められており、超高純度での分離を要求されない限り、現段階においてもこれらの元素を分離回収することは技術的には可能であると判断される。また、原研では、高レベル廃液を対象として、廃液中に含まれる元素を超ウラン元素群、Tc-白金族元素群、Sr-Cs群およびその他の元素群の4群に一つのプロセスで連続的に分離するプロセスの成立性についての検討が進められており、本シナリオを達成するための技術的基盤は着実に整備されつつある。しかし、分離後の各核種(元素)をその取扱い方針が決定するまでの間、安全に保管する方法についての詳細な検討は現段階では行われておらず、この点については今後の課題として残されている。

本シナリオの成立の可能性は、分離を必要とする核種(元素)をどのように設定するかによって大きく異なる。ガラス固化体の減容化や高レベル廃棄物の管理負担を軽減化するシナリオを設定した場合には、上述したように経済性や安全性の問題を別とすれば技術的には十分達成可能なシナリオであるといえる。しかし、将来的には分離の必要性が生じる核種(元素)をすべて分離回収し安全に保管するシナリオを設定する場合には、多くの事項について検討を行う必要がある。中でも、分離対象元素(核種)およびそれらの回収目標値をどのように設定するかは非常に重要な問題である。将来的な高レベル廃棄物の取扱いが不明確な現段階においては、分離対象元素やそれらの回収目標率はどのようにも設定することは可能であるが、これらの設定が誤っていると将来の使用済燃料の処理・処分方法に対して対応不可能な状態での分離を行うことにもなるし、分離条件があまりにも厳しすぎると、技術的にも経済的にも成立させることが困難な群分離プロセスを構築しなければならなくなる可能性もある。再処理-群分離技術の現状、放射性廃棄物の処理処分上の安全性、プロセスの経済性等を総合的に考慮した、学際的な立場からの検討が必要であると考えられる。また本シナリオでは、高レベル廃棄物の処理・処分の方式が正式に決定されるまで、分離した核種(元素)を安全に保管する必要があり、分離操作により発生するリスクに加え、分離後の核種の保管によるリスクが発生することになり、短期的なリスクは現行の一括ガラス固化方式に比べ増大するものと考えられ、この点に関する安全性評価も必要となる。

#### (4) 高レベル廃棄物の無害化または弱害化を目指す場合

高レベル廃棄物中に含まれる長寿命核種を分離し、短寿命または安定な核種に変換することができれば、高レベル廃棄物の弱害化、ひいては無害化を実現することが可能となり、遠い未来にわたる潜在的毒性からくる懸念を除き、放射性廃棄物の地層処分を容易にすることが可能になる。本シナリオでは、群分離プロセスは消滅処理プロセスと直結したプロセスとして考えることが必要であり、使用(照射)済燃料を再処理-群分離した後、PuやMAについてはリサイクル燃料に加工し、残りのものについては処理・処分に適した安定な形態に加工するための、トータルなプロセスとしての群分離プロセスを構築する必要がある。従って、消滅処理に直結した群分離プロセスを考える場合には、群分離プロセスに対する技術的な要求は上述した他のシナリオの場合に比べ格段に厳しいものとなる。

消滅処理と直結した群分離プロセスの概念は、消滅処理の方式によって大きく異なる。超ウラン元素等の消滅処理の方式としては、商用の原子炉や専焼炉による方式、加速器を利用する方式等様々な概念が存在するが、専焼炉等の特別な消滅装置や高速炉を用いた消滅方式が検討され

ている場合が多い。このため、消滅装置の燃料は通常の軽水炉燃料とは異なった形式をとる場合が多くなり、群分離(再処理)施設も図25に示すように、通常の軽水炉燃料サイクルから放出される使用済燃料を処理するプロセスと、消滅装置から放出される照射済燃料を処理するプロセスの2つのプロセスが必要となる。各プロセスの特徴は以下の通りである。

#### 【軽水炉燃料を取り扱う群分離プロセス】

- ・基本的にはワанс・スルー型のプロセス
- ・再処理プロセス(Purex プロセス)より放出される高レベル廃液中に濃縮された超ウラン元素を分離することが基本のプロセス
- ・消滅処理用の照射済燃料を処理する場合には適当な前処理プロセスが必要

#### 【消滅処理用燃料を取り扱う群分離プロセス】

- ・照射済燃料の処理からリサイクル燃料の製造までをカバーするプロセス
- ・燃料は群分離プロセスと消滅処理装置を多数回通過する
- ・MAを含む燃料は中性子強度や熱発生量が大きいことから設備のコンパクト化が要求される

軽水炉燃料を取り扱う群分離プロセスについては、Purex プロセスによる再処理方法に適合したプロセスとして、高レベル放射性廃液より超ウラン元素、発熱性元素、白金族元素等を湿式法により分離するプロセスの開発が米国、欧州、日本を中心に進められ、技術的には可能であることが確かめられている。現在はプラントとしての成立性が評価されている段階であり、近いうちにその評価結果が公表されることになるであろう。

消滅処理用の燃料を取り扱う群分離プロセスについては、処理する燃料の形式によって事情が大きく異なる。消滅処理用の燃料として酸化物燃料や窒化物燃料を用いる場合には、適当な前処理プロセスを設けることによって、従来のPurex プロセスにより燃料の再処理を行うことが可能であるため、軽水炉燃料を取り扱う群分離プロセスを利用することも原理的には可能である。この場合には、群分離プロセスに関する技術的基盤は一応整っているものと考えてよいが、窒化物燃料の場合には金属間化合物的な側面も有することから、溶融塩電解等の高温化学プロセスによる処理も検討されている。また、消滅処理用の燃料として金属燃料や溶融塩燃料を用いる場合には、個々の消滅装置に適合した専用の再処理－群分離法を開発し、まさに消滅装置と再処理－群分離装置を一体化して開発を進めるのが理想とされており、この場合の群分離(再処理)プロセスは、プロセスの簡素化、臨界安全性の向上、二次廃棄物の低減化等を考慮して高温化学プロセスが選択される場合が多い。米国で進められている金属燃料FBRによる消滅処理を考えたIFR概念や原研における溶融塩燃料を用いた加速器消滅処理概念等がこの例にあたる。

高温化学法による再処理や群分離に関する技術的データの蓄積は湿式法に比較して小さく、高温化学法による再処理－群分離プロセスの確立のためには、高温化学法の基本となる溶融塩中または溶融金属中での元素の溶解度、化学的活量(活量係数)、他溶融塩・溶融金属との分配係数等の物性データや溶融塩または溶融金属中での超ウラン元素やFP核種の酸化還元電位、酸化還元速度等の電気化学的データを蓄積することが必要となる。現在米国、日本を中心としてこれらの諸データの蓄積が行われている段階であり、近い将来高温化学法による再処理－群分離の技術

的可能性に対する評価が下されるであろう。

本シナリオが実現すれば、遠い未来にわたる放射性廃棄物の潜在的毒性からくる懸念を取り除き、放射性廃棄物の地層処分を容易にすることが可能となることから、社会的なインパクトは非常に大きなものになることは間違いない。しかし、本シナリオは最近になって出現したものではなく、古い歴史を持っていることからもわかるように、実現までには相当の努力を必要とするものと思われる。現状では、超ウラン元素をはじめとする消滅処理の対象核種(元素)を核燃料サイクルに閉じこめ、問題になるレベル以上にはサイクル外へ放出させないで核種変換または消滅処理が可能かどうかを技術的に追求している段階であり、現段階においてシナリオの成立性に言及することは不適当であると判断される。むしろ、放射性廃棄物の潜在的毒性からくる懸念を自然界から取り除くために、本シナリオが一日も早く実現するように研究開発を進めていくべきであるといえる。

#### 4.4 技術開発課題

##### 4.4.1 プロセス開発に関する課題

群分離プロセスに関する技術開発課題は、軽水炉を中心とした商用炉用燃料の群分離プロセスに関するものと、いわゆる群分離－消滅処理サイクル(P-Tサイクル)における群分離プロセスに関するものとに大別できる。

商用炉燃料の群分離法については、Purex プロセスによる再処理方法に適合したプロセスとして、高レベル放射性廃液より超ウラン元素、発熱性元素、白金族元素等を湿式法により分離するプロセスの開発が米国、欧州、日本を中心に進められ、技術的には可能であることが確かめられている。現在は、これらのプロセスのプラントとしての成立性を評価している段階にあり、以下に示すような課題に対する技術的な検討が行われている。

- ・プラント規模での元素の分離特性、溶媒の劣化の程度、二次廃棄物の発生量等の把握
- ・プロセスを簡素化し経済性を向上させるための検討
- ・プラントを設計する上で必要となる基礎データ(材料、装置形状等)の取得

一方、P-Tサイクルにおける群分離プロセスは、消滅処理に用いる燃料の形式によって大きく異なる。消滅処理用の燃料として酸化物や窒化物燃料を用いる場合には、従来商用炉の燃料の再処理－群分離に用いてきたプロセスで対応が可能であることから、技術開発課題としては、

- ・照射燃料を軽水炉燃料の再処理－群分離プロセスで処理可能な形態に変換する前処理プロセスの開発

が重要となる。

また、窒化物燃料を従来法以外の方法により処理する場合や、金属燃料や溶融塩燃料を再処理－群分離する場合には、これらの燃料を専用に処理するプロセスを開発することが理想的であり、この場合、プロセスの簡素化、臨界安全性の向上、二次廃棄物の低減化を考慮して、高温化学プロ

ロセスによる再処理－群分離プロセスが選択される。高温化学プロセスについては、

- ・溶融塩中または溶融金属中の元素の溶解度、化学的活量、他溶融塩・溶融金属との分配係数等の物性データの蓄積
- ・溶融塩または溶融金属中の超ウラン元素やFP核種の酸化還元電位、酸化還元速度等の電気化学的データの蓄積

が、現在米国および日本を中心に行われており、その技術的可能性が追求されている。

#### 4.4.2 プロセスのシステム評価に関する課題

群分離技術の実用化を目指すためには、研究開発の進展に応じて適宜システムとしての技術の整合性、リスク、経済性、社会的受容性等を総合的に評価するシステム評価に基づき、開発フェーズに促した主要課題を抽出し、段階的に解決を図る手順が必要となる。現在の群分離研究は技術的検討が主であるが、今後は以下の点を中心としたシステム評価研究も同時に進めていく必要がある。

##### ①群分離と廃棄物処分のシナリオ構築に関する研究

群分離(・消滅処理)の存在意義を明確化することを目指して、群分離(・消滅処理)とその結果残存する廃棄物の処分を含めた高レベル廃棄物の処分シナリオを構築していく必要がある。群分離および消滅処理を柱とする高レベル廃棄物の処分シナリオは、技術の成熟度によって大きく異なるが基本的には以下のシナリオが候補にあがるといえる。

###### (1)深地層処分の支援技術としての群分離(・消滅処理)技術

群分離(・消滅処理)により、廃棄物の減容化、冷却期間の低減化等が図られ、深地層処分の効率化を可能にするものと考えられるが、その効果および処分シナリオ改善の可能性について検討を行う。

###### (2)深地層処分の相補的技術としての群分離(・消滅処理)技術

群分離(・消滅処理)により高レベル廃棄物の潜在的毒性を大幅に低減し、高レベル廃棄物の生態系からの隔離期間を人工バリアの健全性が保証される期間内に短縮できれば、天然バリアの負担を大幅に軽減化できる可能性がある。この場合の群分離(・消滅処理)の効果および高レベル廃棄物処分シナリオ改善の可能性について検討を行う。

###### (3)深地層処分を代替する放射性廃棄物の処理・処分法としての群分離(・消滅処理)技術

群分離・消滅処理により、高レベル廃棄物を無害化することが可能となれば、現在の深地層処分シナリオでの基本的な人工バリア、天然バリア等の考え方を代替できる、新たな高レベル廃棄物の処理・処分シナリオを構築することが可能となる。この場合の群分離(・消滅処理)の効果および高レベル廃棄物処分シナリオ改善の可能性について検討を行う。

##### ②群分離(・消滅処理)のコストーベネフィットの解析評価

群分離(・消滅処理)技術の開発フェーズに促して、上記の処分シナリオを考慮しつつ、全体シ

システムを総合的に評価するために、以下の点を中心にコストーベネフィット解析評価を行う必要がある。

#### (1) 技術的整合性に関する総合評価

将来の技術開発の進展予測も考慮して群分離(・消滅処理)の技術的可能性、全体システムの最適化等の評価を行い、システムとしての成立性を検討する。

#### (2) 確率論的リスク評価

現時点では、群分離(・消滅処理)技術のリスク評価には放射性毒性のソーススターの指標である潜在的放射性毒性指標を用いている。今後は、群分離(・消滅処理)とその後に発生する廃棄物の処理・処分シナリオに対するリスク評価が必要となり、地層処分研究開発の成果を活用して、生態系ドーズを用いた確率論的リスク評価法を開発整備し、長寿命核種による長期的リスク、短寿命核種および非放射性核種による短期的リスクを解析評価する必要がある。

#### (3) 経済性、社会的受容性および核不拡散性に関する検討評価

群分離(・消滅処理)システムの経済性、社会的受容性および核不拡散性について、将来的には定量的な、当面は定性的または半定量的な評価手法の開発を進める必要がある。

### 4.4.3 群分離プロセス開発と基礎・基盤研究

軽水炉を中心とした商業用発電炉の使用済燃料の再処理によって発生する高レベル廃液を出発物質とした群分離法の技術開発については、1970～80年代にかけて米国、欧州、日本において精力的に行われ、実験室規模で模擬廃液を使用した実験をもとにしたデータが多いものの、高い分離・回収率でもって超ウラン元素、Tc、I、Sr、Cs等の放射性毒性の高い元素を分離できるレベルにまで達している。原研においては、世界に先駆けて独自の群分離法を実用化するために、従来の成果を基に実廃液試験も含めて4群群分離法のプロセス工学的研究開発を進めている段階にある。その意味では、群分離技術に関する研究開発は基礎・基盤研究の段階を脱してプロセス研究の段階にあるといつても過言ではなかろうが、群分離技術を革新性の高い技術にまで成熟させるためには、今後も以下に示すような基礎・基盤的研究を進め成果の蓄積を図るべきである。

#### (1) 高レベル廃液の性状の把握

高レベル廃液は、多くの群分離プロセスにおいて出発物質として位置づけられているが、その組成や加熱・脱硝等の処理に対する安定性等高レベル廃液の諸性質については必ずしも十分なデータが取得されているわけではない。高レベル廃液の組成、性質に関する国際共同研究を実施することは、群分離プロセスの開発を行う上で非常に意義深いものと考えられる。

#### (2) 群分離プロセスの各工程における対象元素の挙動の把握

群分離の各工程において対象元素の分散が生じると、元素の分離回収率が悪くなるばかりでなく、プロセスの安全性や経済性に対して大きな影響を及ぼすことも考えられる。その意味で、群分離プロセスの各工程における対象元素の挙動を把握することは非常に重要となる。特に、湿式法の場合、燃料溶解液中には沈殿が生成し易く、この沈殿中へはPuや一部のMAが移行し易いとされているが、溶液の処理方法、酸濃度、組成等と元素の沈殿への移行割合等に関するデータはほとんど無いというのが現状である。

### (3) 抽出溶媒に関する基礎・基盤研究

使用済燃料からAm、Cmを含めたすべての超ウラン元素を一括して抽出分離することができれば Purex プロセスを必要としない湿式群分離プロセスが成立し、プロセスの簡素化が期待できる。また、既存のものよりも元素の選択性が良く耐放射線性に優れた抽出溶媒が開発されれば、プロセスの経済性の向上も図れることになる。更に、既存の湿式群分離プロセスでは、Am-Cmフラクションと希土類元素の相互分離に問題がある場合が多く、Am、Cmの回収率の最大化と、希土類元素除染の最大化という相反する課題を満たすような抽出溶媒（場合によっては抽出溶媒と逆抽出溶媒の組合せ）を探索することも重要な課題であるといえる。

### (4) 高温化学法に関する基礎データの取得

高温化学法による再処理技術または群分離技術に関する技術的データの蓄積は、湿式法と比較して小さく、乾式法による再処理－群分離プロセスの確立のためには、高温化学法の基本となる溶融塩中または溶融金属中での元素の溶解度、化学的活量(活量係数)、Cd等との分配係数等の物性データや溶融塩または溶融金属浴中での超ウラン元素やFP核種の酸化還元電位、酸化還元速度等の電気化学的データを蓄積する必要がある。

表14 分離方式による群分離プロセスの分類例

群分離の型式	湿式・乾式	分離の方式		分離対象元素	代表的なプロセス
		分離方法	抽出剤等		
再処理一群 分離分割型	湿式	シュウ酸塩沈殿法		Pu, Np, Am, Cm	O X A L <sup>®</sup> プロセス (図13参照)
		C M P	III価のT R U		図14参照
		C M P O	III、IV、VI価 のT R U		TRUEX <sup>®</sup> プロセス (図15参照)
		DIDPA	U, Pu Np, Am, Cm + Tc, 白金族	原研 4群群 分離プロセス (図4参照)	
		ギ酸脱硝	+ イオン交換		
		HDEHP	Sr, Cs		
		T B P	U, Pu, Np Am, Cm	T B P 抽出法 (図11参照)	
		T B P + HDEHP	Pa, U, Pu, Np Tc, Ru, Pd Am, Cm	C T H <sup>®</sup> プロセス (図16参照)	
再処理一群 分離統合型 〔 Purex 脱却型 〕	乾式	高温冶金法		U, Np, Pu Am, Cm	電力中央研究所 (図19参照)
	湿式	溶媒抽出法	アミド系	U, Pu	フォンネオローズ 研 究所のプロセス
	乾式		ジアミド	Np, Am, Cm	
高度化再 処理型	湿式	塩輸送法		U, Pu Np, Am, Cm	I F R 概念 (図21参照)
	湿式	溶媒抽出法	T B P	U, Pu, Np, (Tc)	図10参照
使用済燃料 以外からの T R U回収	湿式	不溶解性残渣からの回収 …硝酸-フッ化水素溶液 HEPAフィルター・消却灰 …硝酸-Ce(IV)で洗浄		すべてのT R U	図14参照

表15 群分離の型式と群分離対象元素

○：分離回収の対象としている ×：分離回収の対象としていない

	Purexプロセス	再処理 - 群分離分割型	再処理 - 群分離統合型	高度化再処理型
U・Pu	○	○	○	○
Np	×	○	○	○
Am・Cm	×	○	○	×
Tc	×	○	○	×
Sr・Cs	×	○	○	×
白金族	×	○	○	×

表16 群分離の型式と特徴

群分離型式	高度化再処理型	再処理-群分離分割型、再処理-群分離統合型	
分離対象元素	U-Pu + Np	U-Pu + Np + Am-Cm	U-Pu + Np + Am-Cm + 長寿命FP
プロセス開発	燃料溶解液中にCe(IV)等の酸化剤を添加することにより、通常V価のNpがVI価となりTBPに容易に抽出できる ↓ Purexプロセスに多少手を加えるだけでよい	AmおよびCmをTBPにより抽出することは困難 ↓ TBPに替わる抽出剤の開発またはPurexプロセスより放出される高レベル廃液からの抽出プロセスの開発が必要である。高温化学法による乾式プロセスも有効である。	Am、Cmに加えて、Sr-90 Cs-137、Tc-99等の長寿命FPを分離するプロセスが必要となる ↓ 分離の選択性、操作の単純性等を考慮したプロセス開発が望まれる
分離操作上の問題点	酸化されたVI価のNpは容易にV価に戻り易く、強力な酸化剤を共存させない限り98%以上のNpを回収できない		<ul style="list-style-type: none"> <li>• 化学的性質が類似していることから、Am-Cmフランクションには希土類元素が必ず混入し、両者を相互分離するのは容易でない</li> <li>• 同様にAmとCmの相互分離も容易でない</li> <li>• 溶媒抽出法により群分離する場合、燃料溶解液の酸性度を変化させると沈殿を生成し易い</li> </ul>
消滅処理との関連	再処理段階でNpをすべて分離したとしてもNp-237の親核種であるAm-241、Cm-245が残るため、これらの核種も同時回収しなければNp分離の意義が半減する		<ul style="list-style-type: none"> <li>• AmおよびCmは比放射能や発熱量が大きいためこれらの取扱い（燃料製造等）は放射線被曝の観点から困難</li> <li>• Cmは半減期が比較的短いため消滅処理をおこなう意義は小さい</li> <li>• Am、Cmは核種の地下水移行の観点からは殆ど問題にならない</li> </ul> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Sr-90やCs-137の熱中性子捕獲断面積は非常に小さいため消滅効率が悪い</li> <li>• Cs-137の消滅処理をおこなうためには同位体分離が必要</li> </ul>

表17 燃料組成と製造・取扱い上の課題

燃料組成	U・Pu + Np	U・Pu + Np・Am	U・Pu + Np・Am・Cm	T R U主体
発熱量	通常燃料と同等	通常燃料の約2倍 (TRU5%添加のFBR用MOX燃料の場合)	通常燃料の約20倍	非常に大
中性子源強度	通常のMOX燃料と同等	使用済燃料 の約5倍		非常に大
燃料製造用セルの遮蔽	遮蔽能力増強の必要性 小←→大			
核種分離操作上の問題		AmとCmは化学的性質がよく似ているため両者の相互分離は容易ではない		大量のT R Uが得られるかが鍵
希土類元素の混入		Am-Cmフラクションへの希土類元素の混入は避けることはできず、混入する希土類元素の量は超ウラン元素の量と比較して無視できない		

表18 再処理工程での超ウラン元素の分散

再処理工程	分散する超ウラン元素	分散した元素の回収方法
機械的前処理工程	高レベル廃液中に含まれるMAの約0.05%がハルの壁面に付着または内面に浸透する*	高温でハルを溶解し、MA元素をスラグ内に濃縮後、リーチングにより分離回収する
溶解・清澄工程	溶解工程で発生する不溶解性残渣中には無視できない量のU、PuおよびMAが含まれている ↓ 33GWe/tまで照射したLWR燃料1THM当たり3kgの不溶解性残渣が生成し、残渣中に全Uの約1%、全Puの約0.1%が移行する MOX燃料を溶解した場合には、Puの不溶解残渣中への移行割合は、1~30%とされ、Amも0.4%程度移行するとされている	沈殿を酸で洗浄または溶解した後洗浄液または溶解液より分離回収する
高放射性廃液濃縮工程	TBPラフィネットは貯蔵するだけで沈殿を生成し、濃縮・脱硝をおこなうことにより沈殿生成は加速する ↓ 沈殿中には、ラフィネット中に含まれる0.1~50%のPu、0.0005~1.5%のAmが含まれるとされている	沈殿を酸で洗浄または溶解した後洗浄液または溶解液より分離回収する

\* : ハル中への超ウラン元素の移行割合

(高レベル廃液中濃度を1とした場合)

U:0.041, Pu:0.0016, Np:0.0002, Am-241:0.0005

Am-243:0.0004, Cm-242:0.0007, Cm-244:0.0004

表19 燃料型式と使用可能な消滅処理炉の関係

化学形態 形状	ペレット	棒	粒子	その他
酸化物燃料	MOX燃料LWR (MA:0.2%添加)			
	MOX燃料FBR (MA:5%添加)			
窒化物燃料	窒化物燃料FBR		He冷却粒子 燃料専焼炉	
金属燃料		Na冷却金属 燃料FBR Na冷却金属 燃料専焼炉 金属燃料加速器 消滅処理装置		
溶融塩燃料				溶融塩燃料加速 器消滅処理装置

表20 群分離の型式と二次廃棄物の発生量

		$\gamma$ 収入の取扱い量 (廃液1ton当たり)	主な二次廃棄物	二次廃棄物の発生量
乾式群分離		塩化物換算で 約50リットル	LiCl等の塩 $\text{CO}_2$ ガス ルツボ	ノ <small>小</small> ↑ $\gamma$ 収入内で試薬の劣化が起こらない
湿式群分離	シュウ酸 塩沈殿法	硝酸溶液として 約400リットル	$\text{NO}_x$ ガス ろ材	有機抽出剤の劣化により恒常に有機廃棄物が発生する ↓ 大
	高度化再処理型			
	再処理-群分離統合型		劣化溶媒	
	再処理-群分離分割型			

表21 4群群分離プロセスの相対評価

評価項目	評価結果
群分離の型式	再処理一群分離分割型、湿式プロセス
分離対象元素	U・Pu + Np・Am・Cm + Tc・白金族元素 + Sr・Cs
元素の分離効率	実験室規模での実験データでは、 Np:>99.95%, Pu:>99.9%, Am:>99.99%, Cm:>99.99% Tc, Pd, Rh, Ru:>99%, Sr, Cs:>99.9% の分離回収率を得ることは可能である。このレベルで超ウラン元素の分離回収が可能となれば、超ウラン元素を除いた後の高レベル廃液をガラス固化体とした時の、1000年後における潜在的毒性がウラン3%含有鉱石以下とすることができ、高レベル廃棄物の地層処分の効率化が図れる。
消滅処理用燃料	原理的には、すべての形式の消滅処理用燃料を製造することは可能であるが、湿式法の群分離プロセスであることから、超ウラン元素は主として水溶液の形で回収されるため、MOX燃料、窒化物燃料またはTRU酸化物燃料を製造することが合理的である。また、4群群分離プロセスでは、SrおよびCsも分離回収されるため、これらの消滅処理用ターゲットの製造も原理的には可能である。 金属燃料や溶融塩燃料を群分離(再処理)するためには、これらの照射済燃料がPurexプロセスに適合するように前処理を行う必要がある。
二次廃棄物	超ウラン元素の分離工程で恒常に発生することが予想される有機廃棄物が主な二次廃棄物であり、Tc-白金族元素群、Sr-Cs群の分離工程では二次廃棄物は殆ど発生しない。有機廃棄物の発生量は、Purexプロセスで発生する有機廃棄物の量の1%から多くても10%であると見積もられている。
経済性	現状において信頼性のある経済性評価を行うことは困難であるが、4群群分離プロセスの前身である3群群分離プロセスについての評価では、使用済燃料の処理量4トン/日の再処理工場内に群分離施設を設置し、高レベル廃液からの核種の分離のみを行うと仮定した場合、群分離施設の建設費および運転費は、再処理プロセスの約1.1%および約2.5%であると試算されている。
技術開発課題	群分離プロセスのプラントとしての成立性を評価するために、プラント規模での元素(核種)の分離特性、劣化溶媒の発生量、二次廃棄物の発生量等に関するデータを蓄積するとともに、安全性、社会的受容性等をも考慮したシステム評価を実施する必要がある。

表22 高レベル廃棄物の処理・処分との関連で見た場合の群分離の意義の整理例

高レベル廃棄物の処理・処分との 関連で見た場合の群分離の意義	群 分 離 の 目 標
ガラス固化体の減容化	ガラス固化体中の廃棄物(高レベル廃液)含有量を増加させることによりガラス固化体の容積を減少させる場合、ウロツキイの析出や発熱量が主な制約条件となる。これらの原因となるMoや発熱元素のSr、Cs等を高レベル廃液から分離し処理・処分に適した形に固化・安定化が可能となればガラス固化体中の廃棄物含有量の増加が可能となり、全体として固化体の発生容量を減少できる。
高レベル廃棄物の管理負担の軽減化	高レベル廃棄物中に含まれる毒性の高い元素や長半減期の元素の存在量は体積的には小さい。これらの元素を短半減期(安定)核種と分離して処理・処分すれば、数十万年以上にわたり人間が管理(監視)しなければならない廃棄物の体積を大幅に軽減することができ、深地層処分に必要なスペースを小さくすることが可能となる。
将来的な使用済燃料の処理・処分方法に柔軟に対応できる高レベル廃棄物の処理・処分方法の確立	高レベル廃棄物を一括ガラス固化により処理・処分しないで、廃棄物中に含まれる有用元素や毒性の高い元素等をその性質別に分離・回収した後に、短寿命核種をガラス固化することが可能となれば、将来的には実用化も考えられる元素の有効利用や超ウラン元素の消滅処理等に対し柔軟な対応が可能となる高レベル廃棄物の処理・処分方法が確立される。同時に、高レベル廃棄物の減容化や管理負担の軽減化も可能となる。
高レベル廃棄物の無害化または弱害化	高レベル放射性廃棄物中に含まれている長寿命核種を分離し、短寿命または安定な核種に変換することができれば、高レベル廃棄物の弱害化ひいては無害化を実現することができるとなり、遠い未来にわたる潜在的毒性からくる懸念を除き、放射性廃棄物の地層処分を容易にすることが可能となる。

表23 群分離の意義と技術開発の現状に関するまとめ（1／3）

群 分 離 の 意 義	必 要 と な る 群 分 離 技 術	技 術 開 発 の 現 状	成 立 性 の 評 価
ガラス固化体の減容化	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Mo等<sup>100</sup>Tcハイドロキサイト析出の原因となる元素の分離技術</li> <li>• Sr、Cs等の発熱性元素の分離技術</li> <li>• 分離後の元素を処理する方法</li> <li>• 処分に適した形態に加工する方法</li> </ul>	<p>SrやCs等の発熱の主体となる元素の高レベル焼液からの分離技術については古くから多くの研究が行われており、高レベル焼液中のSrおよびCsは99%以上の回収率で回収できることが複数の研究機関で実証されている。従って、発熱性元素の分離・回収は技術的には十分可能である。</p> <p>一方、Mo等の<sup>100</sup>Tcハイドロキサイト析出の原因となる元素のみを目的とした分離法に関する報告は見当らないが、これらの元素は、高レベル焼液の酸濃度により調整する際に自動的に沈殿として分離する、種々の有機溶媒によつて定量的に抽出分離できる等の知見は多くの研究機関において確かめられており、これららの元素の分離も技術的には可能であると判断される。</p> <p>分離後の各元素(核種)の固化・安定化法についても、SrおよびCsを中心多くの研究がなされており、この点についても十分技術的に可能であると判断される。</p>	<p>分離および固化後の固化物からの分離が行われており、高レベル焼液からの分離が確立されており、分離物の発生とガラス固化体の減容効果がコスト的に見合えば実行可能なシナリオである。</p> <p>この場合、各元素の分離回収率の目標値は、目的元素を分離した後の温度解析および<sup>100</sup>Tcハイドロキサイト析出する条件(Mo等の限界含有濃度)により決まるところとなる。</p>
高レベル廃棄物の管理負担の軽減化	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 潜在的毒性の高い核種および長半減期核種の分離技術</li> <li>• 分離後の核種を処理する方法</li> <li>• 処分に適した形態に加工する方法</li> </ul>	<p>本シナリオにおいては、従来の高レベル廃棄物を毒性が高く長半減期の核種を含む廃棄物とこれらの核種を含まない短半減期核種のみで構成される廃棄物とに分離することが中心課題となる。従って、分離対象元素の分離回収率には非常に厳しい値が要求されるが、分離回収した製品の純度については余り問われない。</p> <p>これまでに報告されている群分離プロセスでは、超ウラン元素についている群分離プロセスでは、超ウラン元素回収率は99.9%以上の回収率で分離回収可能であるとされており、特に湿式法では~100%の分離回収率を達成しているプロセスもいくつか存在する。</p> <p>また、Tc-99の分離回収についても多くの実験結果が報告されており、目標を達成するための技術は十分確立されているといえる。</p> <p>分離後の核種の固化・安定化法については、湿式法により、核種の分離方法を新たに開発する必要がある上に、核種の分離工程が長く、複雑となることが予想され、経済的に見合うプロセスとなるか否かを十分検討する必要がある。</p>	<p>本シナリオを有効に成立させたためには、核種の持つ潜在的毒性の大きさにかかるらず、長半減期核種をすべて分離できることが望ましい。超ウラン元素、Tc-99、<sup>1-129</sup>等の従来から問題とされている核種の分離・回収法については湿式法を中心多くのがあげられているが、Zr-93、Cs-135、Pd-107等の長寿命FP核種の分離方法についてはほとんど検討されていないのが実状である。これらの核種が廃棄物中に含まれていても生態系に及ぼす影響は無視できるものであるならば、本シナリオは現状の技術レベルにおいて十分成立可能であると判断される。しかし、長半減期FP核種の分離方法も行う必要がある場合には、これらの核種の分離方法を新たに開発する必要がある上に、核種の分離工程が長く、複雑となることが予想され、経済的に見合うプロセスとなるか否かを十分検討する必要がある。</p>

表23 群分離の意義と技術開発の現状に関するまとめ（2／3）

群 分 離 の 意 義	必要となる群分離技術	技 術 開 発 の 現 状	成 立 性 の 評 価
		<p>核種を分離した場合には、多くの場合硝酸溶液として回収されるため、従来のガラス固化法がそのまま適用可能であり、新たな技術開発をほとんど必要としないといえる。</p> <p>本シナリオを更に徹底するためには、燃料溶解時に発生する不溶解性残渣やハル・エンドビース中に存在する超ウラン元素等の分離・回収も行う必要があるが、この点については米国での実施例が報告されている程度で、今後の課題といえる。</p>	<p>本シナリオは、将来分離が必要となる核種(元素)をどのように設定するかによって、シナリオ成立の可能性が大きく異なる。ガラス固化体の減容化や高レベル廃棄物の管理負担を軽減するシナリオを設定した場合には、経済性の問題を除いては技術的には十分達成可能なレベルにあるといえるが、将来的には分離の必要性が生じる可能性のある核種(元素)をすべて分離し保管する場合には多くの検討項目がある。中でも、分離対象(核種)元素およびそれらの回収目標値をどのように設定するかは重要な問題であり、これらの設定が誤っていると、将来の使用済燃料の処理・処分方法に対応できなくなることとも予想される。また、分離条件があまりに厳しくすると、技術的にも経済的にも分離する方法についても原研で開発が進められ、基礎的試験に疑いでプラントとしての成立性を評価するための化学工学的な試験が行われており、その技術的可能性が近いうちに評価されることになるであろう。</p> <p>本シナリオでは、高レベル廃棄物の処理・処分の方式が正式に決定されるまで、分離した核種(元素)を安全に保管する必要があり、分離操作により発生するリスクと合わせて短期間なりリスクは現行の一括ガラス固化方式に比べて増大するものと考えられる、この点に関する安全性評価が必要となる。</p>
		<ul style="list-style-type: none"> <li>• 潜在的毒性の高い核種長半減期核種の分離技術</li> <li>• Sr、Cs等の発熱性元素の分離技術</li> <li>• 戰略的物質(白金族元素等)の分離技術</li> <li>• 分離後の核種(元素)の保管方法の確立</li> </ul>	<p>分離後の核種(元素)の取り扱いに図段階において定められた定められないことから、本シナリオにおいては個々の核種(元素)を将来多種多様な形に加工できる状態で分離する技術を開発することが主題となる。</p> <p>超ウラン元素、発熱性元素、白金族元素等、本シナリオにおいて分離の対象となる元素(核種)の個々の分離法については実際試験も含めて多くの技術開発が行われており、超高純度での分離を要求されない限り、技術的には可能であることが実証されている。</p> <p>高レベル廃液を対象として、廃液中に含まれる元素を超ウラン元素群、Tc-白金族元素群、Sr-Cs群およびその他の元素群(短寿命FP等)の4群に一つのプロセスで連続的に分離する方法についても原研で開発が進められ、基礎的試験に疑いでプラントとしての成立性を評価するための化学工学的な試験が行われており、その技術的可能性が近いうちに評価されることになるであろう。</p> <p>分離後の元素(核種)を安全に保管するための方法についてはほとんど検討されていないのが実状であり、この点については今後の課題であるといえる。</p>

表23 群分離の意義と技術開発の現状に関するまとめ（3／3）

群 分 離 の 意 義	必 要 と な る 群 分 離 技 術	技 術 開 発 の 現 状	成 立 性 の 評 價
高 レ ベ ル 廃 物 の 無 害 化 ま た は 弱 化	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 軽水炉を中心とした商用炉用の群分離技術</li> <li>• 商用炉用の使用済燃料から超ウラン元素等の消滅処理の対象となる元素(核種)を分離する方法</li> <li>• 消滅処理炉(装置)の照射済燃料の再処理－群分離法について</li> <li>• 消滅処理炉(装置)の照射済燃料の再処理－群分離法およびサイクル燃料の製造方法</li> </ul>	<p>商用炉の使用済燃料の群分離技術については、1970年代～80年代にかけて米国、欧州、日本で実施された一連の研究により技術的に可能であることは実証されており、現在アラントとしての成立性を評価している段階にあるといえる。</p> <p>消滅処理炉(装置)の照射済燃料の再処理－群分離法については、消滅装置と再処理－群分離装置を一体化した概念を構築することが大切であるとされている。消滅処理用の燃料として酸化物燃料や窒化物燃料を用いる場合には、通常前処理プロセスを設けることにより、従来軽水炉の使用済燃料の処理法として開発されてきた両処理－群分離法をそのまま適用することが可能であるため、一応の技術的基盤は整っている状態にあるといえる。</p> <p>ただし、二つの課題には共通点も多く、消滅処理の方式によつてはほとんど同じ課題となる場合もある</p>	<p>本シナリオが実現すれば、遠い未来にわたる放射性廃棄物の潜在的毒性からくる懸念を取り除き、放射性廃棄物の地層処分を容易にすることが可能となることから、社会的なインパクトは非常に大きなものとなる。しかし、本シナリオは最近になって出現したものではなく、古い歴史を持っていることからもわかるように、実現までには相当の努力を必要とするであろう。現状では、超ウラン元素をはじめとする消滅処理の対象核種(元素)を核燃料サイクルに閉じこめ、問題になるレベル以上にはサイクル外へ放出させないで核種変換または消滅処理が可能なかどうかを技術的に追求している段階であり、その成立性の検討は将来的な課題であるといえる。</p> <p>一方、消滅処理用の燃料として金属燃料や溶融塩燃料等の使用を考える場合には、個々の消滅装置に適合した専用の再処理－群分離法の開発を行う必要があり、まさに消滅装置と再処理－群分離装置とを一体化して開発を進めめる必要がある。この場合の開発例としては、米国で進められている金属燃料FBRによる消滅処理を考えたIFR概念や、原研における溶融塩燃料を用いた加速器消滅処理概念等があげられるが、いずれの概念においても現在種々の要素技術について実験が行われている段階であり、近い将来に技術的可能性に対する評価が下されることになるであろう。</p>

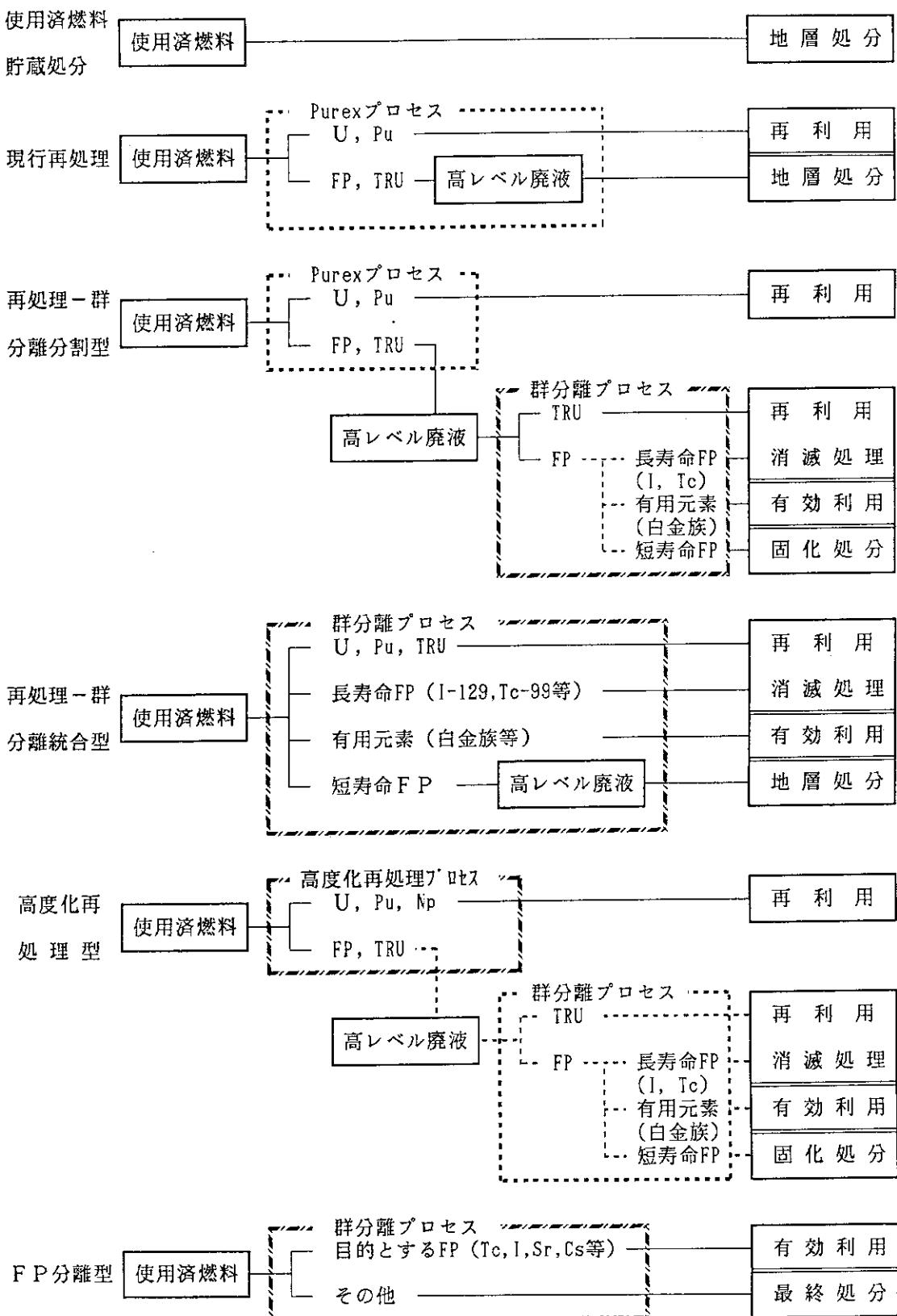


図22 Purex プロセスとの関係から見た場合の群分離プロセスの分類の例

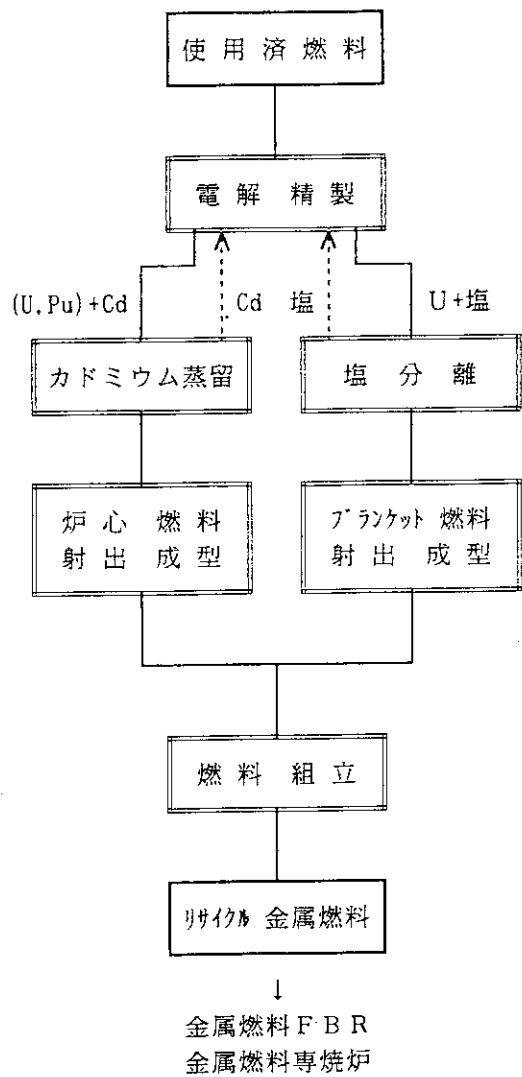


図23 TRU燃料製造の基本フローの一例（乾式群分離の場合）

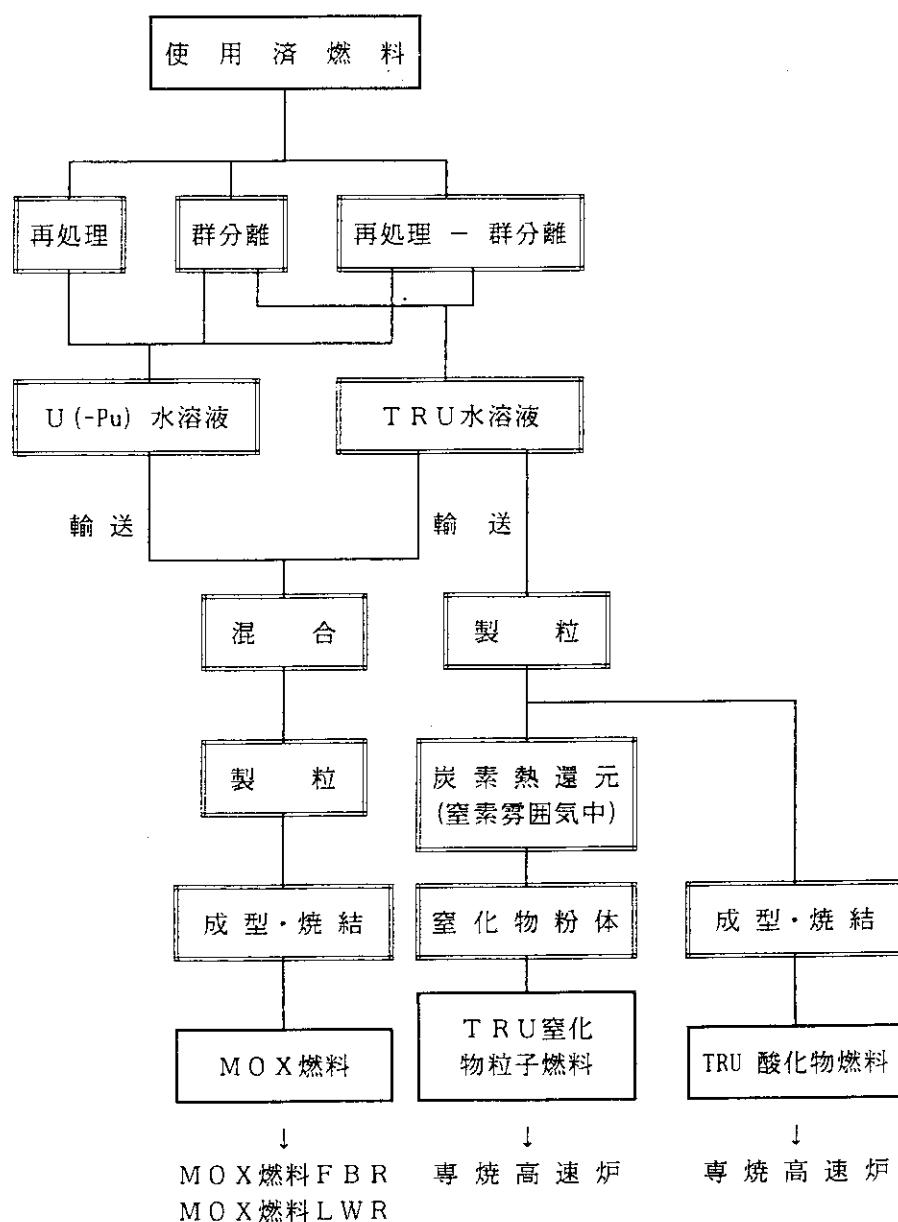


図24 TRU燃料製造の基本フローの一例（湿式群分離法の場合）

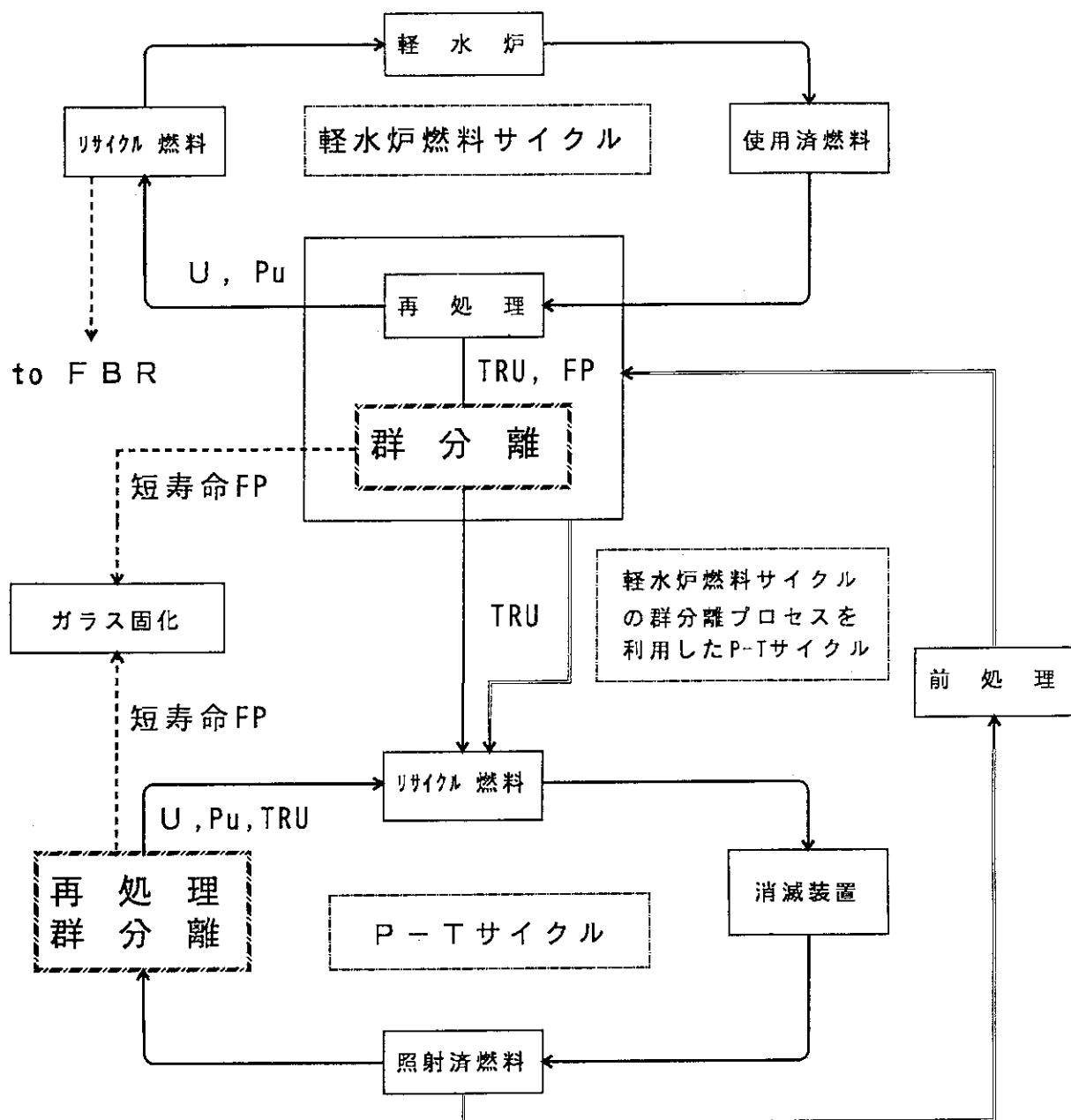


図25 軽水炉燃料サイクルとP-Tサイクルとの結合例

## 5. ま　と　め

群分離プロセスのシステム評価を行う際に必要となる基礎資料を得ることを目的として、原研が提案している4群群分離プロセスを含め、これまでに提案された種々の群分離プロセスを概括し、群分離技術開発の現状、システムとしての成立性、技術的課題についての定性的な検討をおこなった。

群分離プロセスの技術的可能性の評価は、群分離の意義、すなわち何のために群分離を行うのかによって大きく異なるものとなる。ガラス固化体の減容化や高レベル廃棄物の管理負担を軽減化するために、高レベル廃棄物を潜在的毒性が高く長半減期の核種を含むものとこれらの核種を含まない短半減期核種のみで構成されるものに分別するために群分離を行うシナリオであれば、その技術的基盤は十分整っている環境にあるといえ、安全性、経済性、社会的受容性等の問題をクリアすればシナリオは成立するものと判断される。

高レベル廃棄物の弱害化または無害化を目指して、消滅処理に直結した概念として群分離を考える場合には問題は複雑となる。この場合、消滅処理用の燃料形式が通常の軽水炉燃料の形式と異なる場合が多いことから、一般には、軽水炉燃料を取り扱う群分離プロセスと消滅処理用燃料を取り扱う群分離プロセスの二つのプロセスを考える必要がある。

軽水炉燃料を取り扱う群分離プロセスについては、1970～80年代にかけて米国、欧州、日本を中心に、Purexプロセスによる再処理方法に適合するプロセスとして湿式群分離法に関する技術開発が積極的に実施され、いずれの国においても技術的には可能であるという判断が下されている。現在は、原研等において実廃液試験や化学工学的な試験によりプロセスのプラントとしての成立性が評価されている段階であり、近い将来評価結果が公表されることになるであろう。また、今後は技術的な側面だけでなく、安全性、経済性、社会的受容性等に関する検討をも含めたシステム評価研究を実施していく必要がある。

消滅処理用の燃料を取り扱う群分離プロセスについては、個々の消滅装置に適合した専用の群分離(再処理)法を開発し、消滅装置と再処理－群分離装置を一体化して開発していくことが理想とされ、プロセスの簡素化、臨界安全性の向上、二次廃棄物の低減化等を考慮して高温化学プロセスが選択される場合が多い。米国で進められている金属燃料FBRによる消滅処理を考えたIFR概念や原研で提案されている溶融塩燃料による加速器消滅処理概念等がこの例にあたる。高温化学法による再処理や群分離技術に関するデータの蓄積は湿式法に比べて小さいが、米国、日本を中心に溶融塩または溶融金属中における超ウラン元素やFP核種の溶解度、活量係数等の物性データ、酸化還元電位や酸化還元速度等の電気化学的なデータが蓄積されつつあり、その技術的可行性についても明るい見通しが持たれている。

おわりに、本報告書をまとめるにあたり、ご指導・ご助言を頂いた、吉田弘幸原子炉工学部次長、勝田博司材料工学部次長、久保田益充群分離研究室長、館盛勝一プロセス化学研究室長および消滅処理システム工学研究室、群分離研究室の室員の方々に御礼申し上げます。

## 文 献

- (1) 原子力委員会：原子力開発利用長期計画、(昭和62年6月)
- (2) 原子力委員会：群分離・消滅処理技術開発長期計画、(昭和63年10月)
- (3) 高橋哲夫、山下明男：原子力工業、vol.35, p.25, (1989).
- (4) 久保田益充：原子力工業、vol.31, p.51, (1985).
- (5) 久保田益充、中村治人：JAERI-M 85-066, 22P, (1985).
- (6) 久保田益充：日本原子力学会誌、vol.29, p.775, (1987).
- (7) 朝岡卓見：原子力工業、vol.35, p.31, (1989).
- (8) J.O.Liljezin, J.Rydberg and G.Skarnemark : Separation Science and Technology, vol.15, p.799, (1980).
- (9) 中野国孝、久保田益充、中村治人：非公開資料
- (10) 中野国孝、久保田益充、中村治人：JAERI-M 84-123, 49p, (1984).
- (11) S.E.Logan and M.C.Berbaro : EPA 520/6-78-005, vol. I ~ IV (1978).
- (12) 近藤康雄、久保田益充、阿部 忠、長渡甲太郎：JAERI-M 91-147, 191p, (1991).
- (13) P.J.Dick and J.W.McGrew : Trans. Am. Nucl. Soc., vol.43, p.91, (1982).
- (14) N.J.Ferrell and D.P.Sloan : Radioat. Phys. Chem., vol.25, p.251, (1985).
- (15) Office of Defense Waste and Byproducts Management, US Dep.Energy : US DOE Rep., No.DOE-DP-13, vol.1, 21p, (1983).
- (16) G.H.Cartledge : Corrosion, vol.29, p.361, (1973).
- (17) Y.Morita, S.Tani and M.Kubota : Proc. International Symposium Advanced Nuclear Energy research -Near-Future Chemistry in nuclear Energy Field-, p.234, (1989).
- (18) K.Shirahashi and M.Kubota : J. of Nuclear Science and Technology, vol.29, p.559, (1992).
- (19) Y.Kondo and M.Kubota : J. of Nuclear Science and Technology, vol.29, P.140, (1992).
- (20) I.Yamagishi and M.Kubota : J. of Nuclear Science and Technology, vol.26, p.1038, (1989).
- (21) 森 良平、山口五十夫、久保田益充：JAERI-M 86-013, 20p, (1986).
- (22) 黒井秀雄：JAERI-M 6710, (1976).
- (23) 天野 恕：核燃料サイクルの新しい展開に向けて、日本原子力学会編、p.163, (1991).
- (24) A.Raggenbas, J.M.Courouble, J.Lefevre, J.Fradin and C.Perebashine : DP-1066-II-33, (1966).
- (25) A.G.Croff, J.O.Bromeke, B.C.Finney and D.W.Tedder, ORNL-5566, 135p., (1980).
- (26) IAEA : Tech. Reports Series No.214, 125p, (1982).
- (27) E.Schmidt, E.Zanmoranti, W.Hage and S.Guardini : CEC-JRC-ISPRA, SA/1, 05, 03, 38, 13, (1983).
- (28) S.Tajik : Thesis MIT 1979 in 'Nuclear Engineering' ed by M.Benedict, T.H.Pigford and H.W.Levi, Mc Graw-Hill, p.537, (1981).

- (29) L.Cecille, F.Mannone and f.Mousty : IAEA-SM-246/22, (1981).
- (30) F.Mannone and H.Dworschak : CEC - JRC report SA/-1-07-03-84-02, (1984).
- (31) H.Dworschak : IAEA-SM-246/68, (1981).
- (32) E.P.Horwitz and W.W.Schulz : Proc. Int. Meeting on Solvent Extraction and Ion Exchange AERE. Harwell, CONF. 85-09-47-2, DE-85, 009647, 137p., (1985).
- (33) 長崎晋也 : 炉物理夏期セミナーテキスト、日本原子力学会、p.81, (1991).
- (34) J.O.Lilijenzin, I.Hagstrom, G.Persson and I.Svantesson, Int. Solvent Extr. Conf., vol.3, p.1, (1980).
- (35) C.Musikas : Proc. Int. Meeting on Solvent Extraction Conference, Part A, p.297, (1990).
- (36) G.L.Richardson : Report HW-79762 Pt.2, (1964).
- (37) M.Suess and G.Pfrepper : Radiochimica Acta, vol.29, p.33, (1981).
- (38) 三村 均、稻野昌利、秋葉健一、菅野卓治 : 東北大学選鉱製練研究所報、vol.39, p.85, (1983).
- (39) P.K.Baumgarten, R.M.Wallace, D.A.Whitehurst and J.M.Steed : Sci. Basis Nuci. Waste Manage., vol.1, p.875, (1980).
- (40) C.B.Bowers : DOE/SR/10714-T1, 102p, (1982).
- (41) E.Brasius and K.H.Nilles : Radiochimica Acta, vol.35, p.173, (1984).
- (42) D.J.Pruett : Radiochimica Acta, vol.28, p.153, (1981).
- (43) M.W.Davis and V.Van Brust : DOE/SR/10714-1, Sep.14, 117p., (1984).
- (44) F.Macasek, V.Mkulaj, R.Kopunec, M.Korenovska, P.Rajec and P.Tarapcik : Int. Solvent Extr. Conf., vol.3, p.1, (1980).
- (45) G.A.Jensen, A.M.Platt, G.B.Mellinger and W.J.Bjorklund : Nuclear technology, vol.65, p.305, (1984).
- (46) K.Naitoh, T.Matsui and Y.Tanaka : J. of Nuclear Science and Technology, vol.23, p.540, (1986).
- (47) F.J.Smith and H.F.McDuffie : Separation Science and Technology, vol.16, p.1071, (1981).
- (48) 山口五十夫、久保田益充 : JAERI-M 87-034, 30p., (1987).
- (49) 伊藤勝雄、菅野卓治 : 日本原子力学会誌、vol.24, p.150, (1982).
- (50) J.P.Bibler and R.M.Wallace : US DOE Report, No.DPST-84-707, 11p., (1984).
- (51) H.U.Foersterling and K.H.Hallmeier : Carbon, vol.28, p.497, (1990).
- (52) 井上 正、田中 博 : 金属、p.36, (1990).
- (53) 井上 正 : 炉物理夏期セミナーテキスト、日本原子力学会、p.90, (1991).
- (54) J.E.Battles, W.E.Miller and E.C.Gay : Am. Nucl.Soc. Meeting 1991, p.342, (1991).
- (55) 向山武彦 : 日本原子力学会誌、vol.34, p.60, (1991).
- (56) 藤根幸雄 : 新型炉燃料サイクル、日本原子力学会、p.17, (1992).
- (57) H.C.Claiborne : ORNL-TM-4724, (1975).

- (58) J.L.Jenkins : EUR 7671, (1982).
- (59) H.Kleykamp : RECOD 87 Soc. Franc. Energie Nucleaire, vol. II, p.583, (1987).
- (60) 向山武彦 : 炉物理夏期セミナーテキスト、日本原子力学会、p.3, (1991).
- (61) C.Prunier : Int. Conf. on Fast Reactors and Related Fuel Cycles, (1991).
- (62) 久保田益充 : 放射性廃棄物処理に関する研究開発、産業技術出版、p.380, (1983).
- (63) N.N.Egorov, M.A.Zakharov, L.N.Lazarev, R.I.Lyubtsev, A.S.Nikiforov, M.V.Strakhov and E.A.Filippov : RECOD' 91 Proceedings, vol. I, p.354, (1991).
- (64) 神山弘章 : 原子力工業、vol.38, p.65, (1992).

## 付 錄

A1. 日本における群分離・消滅処理の  
基本的考え方

## A1.1 OMEGA計画の概要

現在、日本では、36基の商業用原子力発電所が稼働しており、そこで3年から4年程度燃やされた核燃料は使用済燃料として再処理工場へと運ばれる。この使用済燃料から、ウランとプルトニウムを取り出した後に残る廃液は非常に強い放射能を持ち「高レベル放射性廃液」と呼ばれている。現在の日本の原子力政策においては、この高レベル放射性廃棄物は、ガラスに溶かし込んで安定な形態にガラス固化した後、30～50年間程度冷却のため貯蔵管理され、最終的には地下数百メートルより深い地層中に処分（地層処分）することにより、非常に長い期間、人間の生活圏から隔離することを基本方針としている<sup>(1)</sup>。

一方、高レベル放射性廃棄物中に含まれている放射性核種あるいは安定核種を分離して、長寿命放射性核種を短寿命または安定な核種に変換すること、あるいはそれぞれ適当な用途に利用すること等が実現すれば、高レベル放射性廃棄物の最終処分の負担の軽減化、資源の有効利用等を図ることができ、現行の再処理プロセスおよび放射性廃棄物の処理・貯蔵・処分システムを高度化し、積極的な安全性の向上にも資することにもなる。また、この研究成果は、創造的・革新的要素を多く含んでおり、他の技術分野への波及効果も大きいものと考えられる。

このような観点から、科学技術庁は昭和62年度(1987年)から、高レベル放射性廃棄物の消滅処理や有効利用のための研究開発等を、廃棄物を有用物質に蘇らせるとの意味をこめて「フェニックスプロジェクト」と名付け、日本原子力研究所および動力炉・核燃料開発事業団等を中核組織として研究の推進を図った。また、昭和62年6月に原子力委員会で決定された「原子力開発利用長期計画」においては、次の三つの観点から原子力の研究開発を計画的に推進すべきであるとされ、

- ① 安全性のいっそうの向上
- ② 原子力の創造的・革新的領域における研究開発の推進
- ③ 放射性廃棄物処理

原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会(主査：生田豊朗(財)日本エネルギー経済研究所理事長)は、「原子力開発利用長期計画」に示されたこれらの指摘をフォローアップするものとして、「核種分離・消滅処理技術検討小委員会」(主査：天野 恕名古屋大学教授)を設置し、昭和63年(1988年)5月から、核種分離・消滅処理技術の研究開発の進め方の調査・審議を行い、昭和63年(1988年)10月に開催された同専門部会において「群分離・消滅処理技術開発長期計画」がとりまとめられ、原子力委員会に報告され承認された(図A1参照)<sup>(2)</sup>。

本報告書によると、群分離・消滅処理技術の開発は、放射性廃棄物の最終処分の負担の軽減化および有用資源の資源化を図るうえで重要であるばかりでなく、本研究の成果は、レーザ技術、加速器技術の向上等の創造的・革新的要素を多く含んでおり、他の技術分野への波及効果も大きいと位置付けられている。ただし、その実用化のためには、高レベル放射性廃液の処理に伴う二次廃棄物の発生量の抑制、再利用の経済性の達成等解決すべき課題も多く、科学技術庁はこの

長期計画に基づいて具体的な実施方策や関係研究機関の役割分担、国際協力のあり方等について検討を進めるため、原子力局長の諮問機関として「核種分離・消滅処理技術研究開発推進委員会」(主査：山本 寛東京大学名誉教授)を適宜開催することとし、昭和63年(1988年)10月に第1回の委員会が開催され、具体化されたのが「オメガ・プロジェクト」である。

核種分離・消滅処理技術の研究開発は、原子力開発を進めている国の共通の課題であり、国際協力により効率的に進めていくことはきわめて有益である。このため、日本はOECD/NEAの枠組みの下に核種分離・消滅処理技術の研究開発に関する国際協力計画を検討し、平成元年(1989年)1月、OECD/NEA FCC(核燃料サイクル委員会)において、関連核種の物理的・化学的特性に関する基礎研究も含めた核種分離・消滅処理技術に関する国際協力計画(オメガ計画)を提案した。提案内容は以下の通りである。

#### (1) 提案名

核燃料サイクルにおいて創成されるアクチニドおよび核分裂生成物から付加的利益を得る方策に関するOECD/NEAの国際協力の下における科学技術情報交換

英文名は “A Proposal to Exchange Scientific and Technological Information Concerning Options Making Extra Gains of Actinides and Fission Products Generated in Nuclear Fuel Cycle under OECD/NEA's International Cooperation” であり、オメガ(OMEGA)は下線部の略称である。

#### (2) 提案内容

##### ① 目的

核燃料サイクルにおいて創成されるアクチニドおよび核分裂生成物の核種分離・消滅処理技術およびこの技術の基礎となる関連核種の物理的・化学的特性把握に関する研究開発を効率的に進めるため、関連する科学技術情報の交換を行う。

##### ② 情報交換の項目

- 1) 核燃料サイクルにおいて創成される核種の物理的・化学的特性
- 2) 核種分離技術
- 3) 消滅処理技術

##### ③ 計画の枠組み

- 1) OECD/NEAの下で、関心を有する関係研究機関等が本研究の全体または部分に参加する
- 2) 本国際協力計画は機関を3年から5年とし、期間の延長、内容の拡大については計画の適当な時期に打ち合わせる

##### 3) 協力の方法

- ・ 情報交換
- ・ 専門家の交換
- ・ ワークショップ等の開催

以上の日本の提案に対して議論が行われ、核種分離・消滅処理技術は、すでに確立あるいは計画されている廃棄物政策の短期的な代替技術ではなく、将来の世代に利益をもたらす可能性のある長期的な基礎研究開発課題として位置づけられ、「アクチノイド及び核分裂生成物の群分離・消滅処理に関する国際情報交換プログラム」(5ヶ年計画)が発足すこととなった。

### A1.2 群分離・消滅処理研究に対する日本のシナリオ

再処理工場から分離される高レベル放射性廃液から長半減期の超ウラン元素を分離・回収し、原子炉等を用いて核変換を起こさせて半減期の短い核種に変換して処分すれば、数万年以上の超ウラン元素による影響を考慮することが不要となり、隔離期間を数百年以内へと著しく短縮することができる。したがって、放射性廃棄物の処理・処分に係わる方策を抜本的に改善することができ、ひいては原子力発電に対する社会的な信頼性を大きく向上することができると考えられる。また、超ウラン元素の核壊変を促進させることができれば、高レベル放射性廃棄物の管理に新しい対処の余地を与えるだけでなく、限りあるウラン資源を一層有効に活用することにもなる。従来日本は、ウラン燃料を一回限りで使い捨てにするワанс・スルー型燃料サイクルではなく、使用済燃料を再処理して回収したプルトニウムをリサイクル利用する道を選択してきたが、この考えを更に進めて、超ウラン元素のリサイクル利用も可能な燃料サイクルを追求しようというものが群分離・消滅処理研究の目標であり、今後の原子力の研究開発発展の基礎を築くことにもなる。この目標を達成するために、日本ではOMEGA計画の発足と共に、プロジェクト的性格を持つ基礎・基盤的研究として群分離・消滅処理技術を位置づけ、日本原子力研究所、動力炉・核燃料開発事業団および(財)電力中央研究所を中心組織として各研究開発機関独自の群分離・消滅処理概念に基づく研究開発(図A2参照)を平行して進めている<sup>(3)</sup>。しかしながら、群分離・消滅処理の開発戦略を考えるうえで非常に重要となる、超ウラン元素を閉サイクル内に閉じこめるためのシナリオ、すなわちどのような方法で超ウラン元素を分離し、どのような形で燃料やターゲットを製造し、それを消滅処理した後、その燃料やターゲットをどのように再処理し残りの超ウラン元素をリサイクルさせるかという、超ウラン元素のリサイクルシナリオについては未だ不確定な部分が多く、今後の大きな検討課題として残されている。

## A2. 1980年頃に実施された群分離プロセスのシステム評価結果の概要

### A2.1 米国における評価結果(1980年)<sup>(25)</sup>

#### ①研究目的

廃棄物中の長半減期核種を消滅処理した後地下貯蔵するというP-Tの実施の可能性とインセンティブについて評価するために以下の研究を実施した。

- 1) 図14に示す群分離フローシートの解析および実験
- 2) アクチノイド、Tc-99、I-129の消滅処理に関する計算および文献調査
- 3) P-Tを含まない通常サイクルとP-T燃料リサイクルの比較
- 4) P-Tの他の分野へのインパクトの検討
- 5) P-Tの可能性の分析
- 6) P-T導入のリスクおよびコストベネフィットの解析
- 7) 研究・開発・実証に要する期間およびコストの見積り

#### ②評価結果

##### 1) 群分離の可能性

- ・少なくとも実験室で実証できた処理技術を用いれば群分離は可能である。
- ・TBP抽出やCMP抽出といった群分離処理の一部は、工場規模で実証できた。
- ・I-129の群分離は種々の技術によって可能である。
- ・Tc-99の群分離は特に研究していないが、不可能であるとは考えられない。

##### 2) 原子炉による消滅処理の可能性(計算による結果)

- ・アクチノイド消滅処理率は、LWRで年間5~7%、FBRで5~11%である。
- ・FBRの方がLWRより消滅処理率は大きい。
- ・リサイクルされるアクチノイドの中性子放出率は、LWRにリサイクルしたものの方がFBRにリサイクルしたものより10~100倍大きい。
- ・Tc-99の消滅処理率はPWRにおいて年間11%である。
- ・I-129の消滅処理率は3%と小さい。また、被覆材に対する腐食、揮発性、ゼノンガスの発生等の問題がある。

##### 3) P-Tの核燃料サイクルの影響

- ・新燃料および使用済燃料用キャスクには、充分な中性子遮蔽性能が必要である。
- ・P-Tが導入されるまでは、P-Tの目的を阻害するような廃棄物管理の位置付けが不明確なものになる。
- ・再処理とPuのリサイクルが必要となるので、1979年現在の米国の原子力政策と矛盾する

##### 4) P-Tのコストおよびリスクベネフィット

- ・P-Tの実施コストは、GWe/年当たり9.2百万ドル(1979年現在)である。
- ・長期リスクに対して非常に保守的な解析をすると、P-Tによる長期的なベネフィットは、0.06health-effect/GWe·yearである。
- ・短期リスクの増加は、放射性リスク0.003health-effect/GWe·year、非放射性リスク0.57healt

h-effect/GWe·yearである。 非放射性リスクは群分離工場の熱源としての石油燃焼によるものである。

ただし、自然バックグランドによるリスクは、1.0health-effect/GWe·yearである。

### 5)まとめ

- ・コスト的にも安全上からも廃棄物管理のためにアクチノイドを群分離・消滅処理するインセンティブはない。
- ・R & Dに対する充分な支援があり許認可の遅れが無ければ、20年後に最初の商業規模群分離施設が運転開始される。
- ・P-T全体のR & Dコストは9億ドル(1979年現在)である。このうちのほとんどは群分離パイロットプラントの建設に必要なコストである。

## A2.2 IAEAによる評価結果<sup>(26)</sup>

### ①研究目的

IAEAが幹事機関となり各国主要研究者を集め、1976年より4年間にわたり「核廃棄物からのアクチノイドの分離とそれに引続く消滅処理または個別処分に関する環境評価と毒性評価」を実施し、P-T議論に関する適切な回答を得ようとした。本評価では、評価対象となる具体的プロセスは設定せず、図A3に示したP-Tサイクル概念について、その技術的可能性、毒性とコストおよびP-T導入の問題点について議論された。

### ②評価結果

#### 1)技術的可能性

- ・消滅処理の核物理学という観点からは可能である。
- ・原子炉でのwaste-アクチノイドの均質系リサイクルには、既存の技術以外の限界的なステップがかなり存在する。燃料要素の挙動についてより一層研究する必要がある。また、非均質系リサイクルは現状では不可能である。
- ・いくつかの高レベル廃液の群分離プロセスについて、実験室規模での試験が実施されている。分離操作の最終段階で行う、Ⅲ価のアクチノイドとランタノイドの分離操作は一般には困難であるが、CXC法でのプラント経験を利用することにより、実現可能なプロセスが考案可能であろう。
- ・高レベル廃液以外の廃棄物からのアクチノイドの回収方法は現在活発に開発が進められており、技術が確立されるのは確実である。ただし、最終的なアクチノイドとランタノイドの分離工程の工業規模での操作性には疑問が残る。

#### 2)毒性とコスト

- ・P-T導入により全燃料サイクルコストは約5%増加するが、これはそれほど大幅なものではない。
- ・P-Tの実施によって短期放射性リスクが増加する。ただし、一般大衆への影響よりも工場作業者に対する影響の方が大きい。
- ・高レベル廃棄物の潜在的毒性の減少がP-Tのインセンティブであるが、この減少量は小さい。長期的毒性の重要度は、廃棄物の処理方法および状態によって異なり、P-Tを行わなくても

充分安全に処理することは可能である。

- ・高レベル廃棄物の長期的毒性は、群分離を行わなくても人間に対する被曝量は非常に小さく、P-T導入によって長期的毒性を更に減少させるインセンティブはほとんど無い。従って、P-Tのベネフィットと比較した場合、導入によるコスト増は高いものになる。

### 3) P-T導入の問題点

P-Tの導入には多大な努力が必要であり、かなりの時間を要するため、実現する頃の主力となる原子炉はFBRであろう。FBRはP-Tに適しているため、P-TはFBRで行われるであろう。

P-Tは均質系リサイクルで行われるとすると、燃料中のwaste-アクチノイドの比率を小さくする必要があるため、一国家すべてのFBRを用いなければwaste-アクチノイドを処理しきれない。このため国家の原子力計画の大きな部分をP-Tに裂く必要がある。しかし、これが支持されるためにはFBRによるP-Tおよび再処理施設、燃料製造施設などの通常施設の安全性および信頼性、さらには電力の安定供給に与える影響まで明らかにするためのテストおよびデモンストレーションが必要である。これにより、P-Tの導入時期は更に遅れることになるだろう。

P-Tの実施が遅れる場合、その間に発生する廃棄物の取扱いについても考慮する必要がある。

P-T実施までは固化せずに廃棄物を管理するならば、たとえP-Tが長期の毒性を大幅に減少させるものであっても、全体的な毒性は初期(P-Tを導入するまでの期間)の毒性に支配されることになる。

以上まとめると、P-Tの導入は国家の原子力計画の大きな比重を占める大事業となるであろうが、これによって得られるのは潜在的長期放射性毒性のごく僅かな減少だけである。

#### ※用語の定義

Waste-アクチノイド：Pa、Np、Am、Cm等再処理プラントの流れの中に出現するアクチノイド核種（Th、U、Pu等の直接核燃料として使用できる核種は、Fuel-アクチノイドとして区別されている）

均質系リサイクル：Waste-アクチノイドとFuel-アクチノイドが均一に混合してある燃料を用いたリサイクルプロセス

非均質系リサイクル：Waste-アクチノイドとFuel-アクチノイドを分離して取り扱うリサイクルプロセス

CXCプロセス：アクチノイドとランタノイドを相互分離するためのプロセスの一種。アクチノイドおよびランタノイドを陽イオン交換樹脂である(H<sup>+</sup>型)Dowex-50に吸着させ、その後DTPAによりアクチノイドを選択的に溶離する。溶離液をZn<sup>2+</sup>を詰めたカラムを通過させることにより、Znにランタノイドを吸着させ、更にアクチノイドの純度をあげる。

#### A2.3 I S P R Aによる評価結果<sup>(27)</sup>

##### ①研究目的

この報告書では、ORNLやIAEAの報告などと異なり、本当の意味でのリスクおよびベネ

フィットの考察は行われておらず、P-Tのシナリオをいくつか定義し、それらを評価・比較することにより、ベネフィットおよび消滅処理実施の包括的な青写真作成への足がかりを得ることを目的としている。

次の2つのシナリオを考え、派生アクチノイド(Pa, Np, Am, Cm, Bk, Cf)のリサイクルによるリスクおよびコスト-ベネフィットについて検討している。

### 1) シナリオA

エネルギーは、LWR、FBRおよびHTRにより供給される。(図A4参照) P-Tは2020年に開始され、PuはLWRに徐々にリサイクルされる。2040年には、U-235燃料のHTRとU-燃料のLWRは廃止する。

### 2) シナリオB

エネルギーは、U-燃料のLWR、FBRおよびHTRにより供給される。シナリオAで想定したPu-燃料のLWRによるエネルギー生成量は、HTRの生成容量を増加させることにより補う。

#### ②評価結果

- 1) FBR、LWRにおいてPuのリサイクルを行い、Puの燃料サイクル中のロスファクターをそれぞれ $5 \times 10^{-4}$ ,  $5 \times 10^{-5}$ にすれば群分離は実行可能である。
- 2) LWRは、派生アクチノイドの消滅処理には向きである。PuをリサイクルするとAmとCmの蓄積はLWRではFBRのそれぞれ2.5, 25倍となり放射線や崩壊熱が大きな問題となる。
- 3) FBRでの非均質リサイクルで派生アクチノイドは炉心滞在期間当たり35~37%消滅できる。この値は均質リサイクルの場合より25%大きい。
- 4) ベブルベット型HTRでは非均質リサイクルが実現できる。
- 5) ターゲット燃料ピンの製作には遠隔操作が必要となる。しかし、この問題は将来発電炉においてPuを繰返しリサイクルする場合にはダーティPu(Pu-238)のためいずれ必要になるものである。
- 6) 消滅処理により長期的毒性は1/10になり、相対的被曝量は1/50になる。しかし、これらの値からP-Tが正当化できるものではない。この理由はリスク評価および短期リスクと長期リスクの比較が現状では不正確なためである。

以上をまとめると以下の通りである。

- ・派生アクチノイドの消滅処理は技術的には可能である。
- ・長期的リスクの減少があるとしても、燃料サイクル技術開発の必要および二次廃棄物の増加を考慮すると、P-T技術を正当化すべきか否かはっきりしない。

#### A2.4 原研による評価結果<sup>(5)</sup>

##### ①研究目的

原研では、昭和48年(1973年)頃より高レベル廃液中の超ウラン元素のみならず、発熱性核種であるSr-90およびCs-137の分離をも含めた3群群分離法(図4参照)に関する研究開発が開始され、昭和59年度(1984年度)内には、東海研究所廃棄物処理処分委員会、高レベル廃棄物専門部会およびα廃棄物専門部会において、更には、原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会において、群分

離技術開発の内容および成果について中間評価が行われている。本評価では、欧米における評価とは異なり、P-Tサイクル全体を評価するのではなく、群分離プロセスだけを独立に評価しているのが特徴的であり、群分離による元素(核種)の分離・回収率、安全性および経済性について評価している。

## ②評価結果

### 1) 群分離の有効性

- ・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、群分離後に各群を固化した時の固化体総量は約1/2となる。また、10万年以上の長期にわたり安全性を考慮して処分しなければならないAm、Cm、Np酸化物の固化体の量は、全量固化体の約1/2000となる。
- ・SrおよびCsを吸着させたチタン酸-ゼオライト混合無機イオン交換体を1000°C以上の温度で焼結することにより、SrおよびCsの浸出率はガラス固化体の約1/1000となる。
- ・Sr-90およびCs-137を分離後の固化体表面温度は、群分離後5年においても地層処分が十分可能な程度に低い。
- ・群分離後の固化体は減容されているため、それぞれを遮蔽するために必要な鉛遮蔽体の重量は、全量ガラス固化体の場合に比べて1/2ですむ。

### 2) 群分離の経済性

使用済燃料の処理量4 ton/日の再処理工場内に群分離施設を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処理および二次廃棄物の処理処分は別途施設で行うと仮定した場合、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2.5%にすぎない。

### 3) 技術的可能性

各群の分離工程を一つのシステムとしてまとめ、高レベル廃液により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。

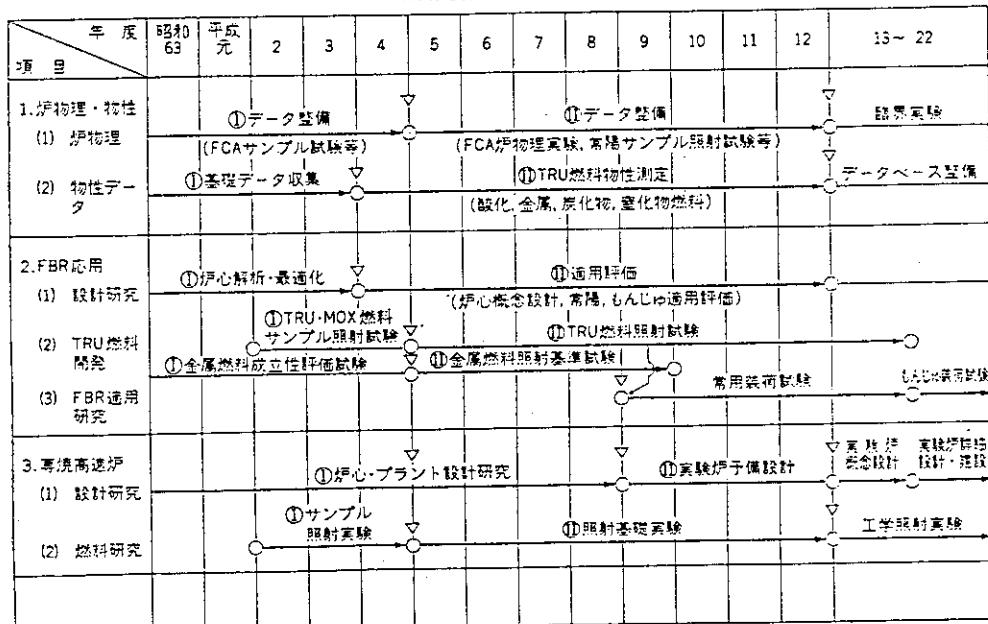
### 4)まとめ

- ・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る。
- ・3群群分離法で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ため、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。
- ・高レベル廃液を群分離することにより、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となり、また、処分が決定するまでの貯蔵の合理化にも役立つ。

① 第Ⅰ期 ② 第Ⅱ期  
▽：チェック＆レビュー



群分離技術研究のスケジュール



原子炉による消滅処理技術研究開発のスケジュール



加速器による消滅処理技術研究開発のスケジュール

図 A 1 群分離・消滅処理技術開発の長期計画

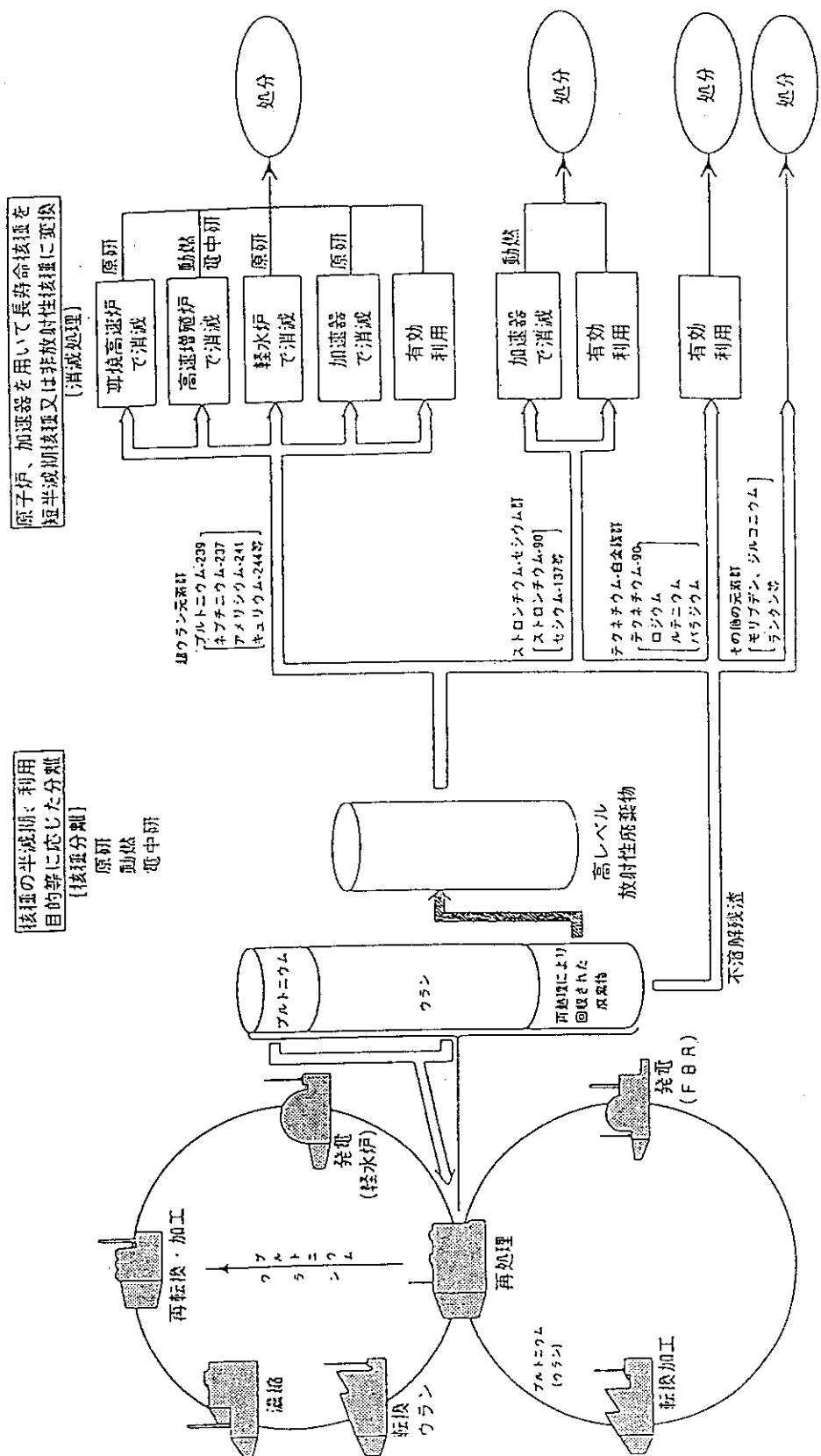
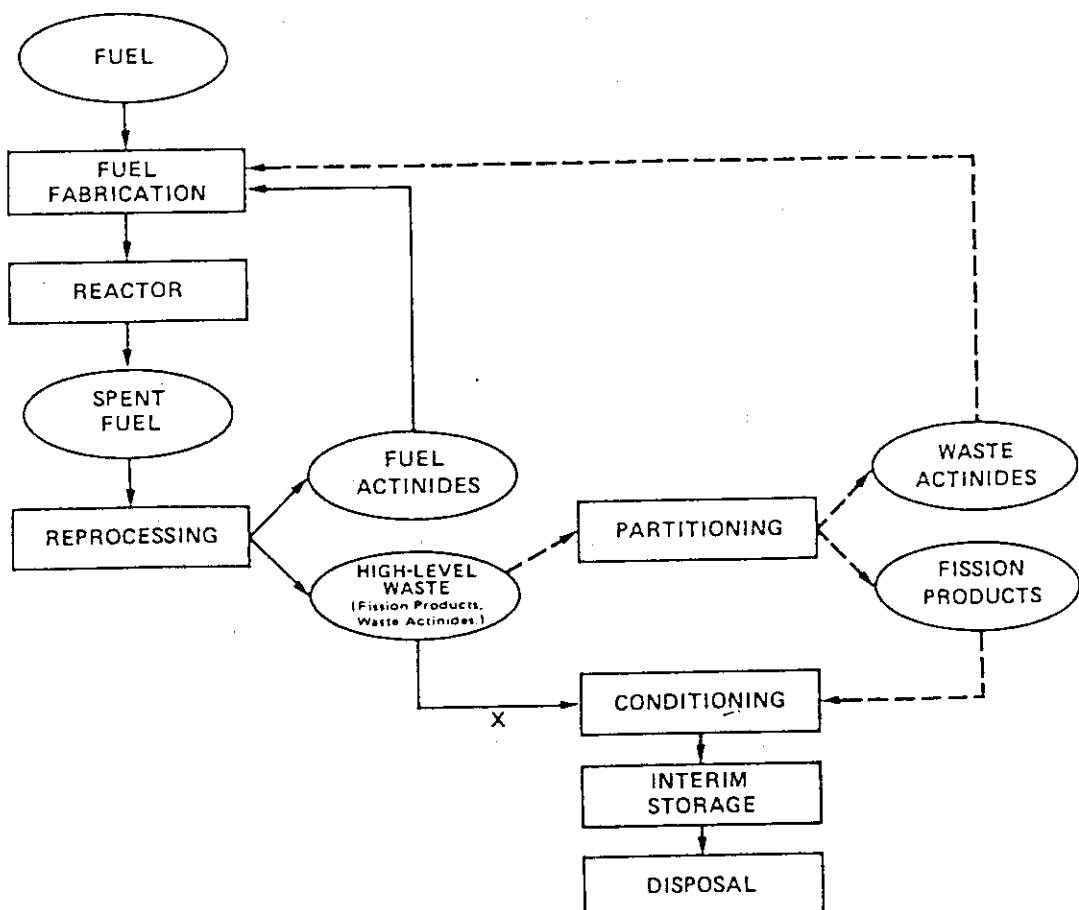
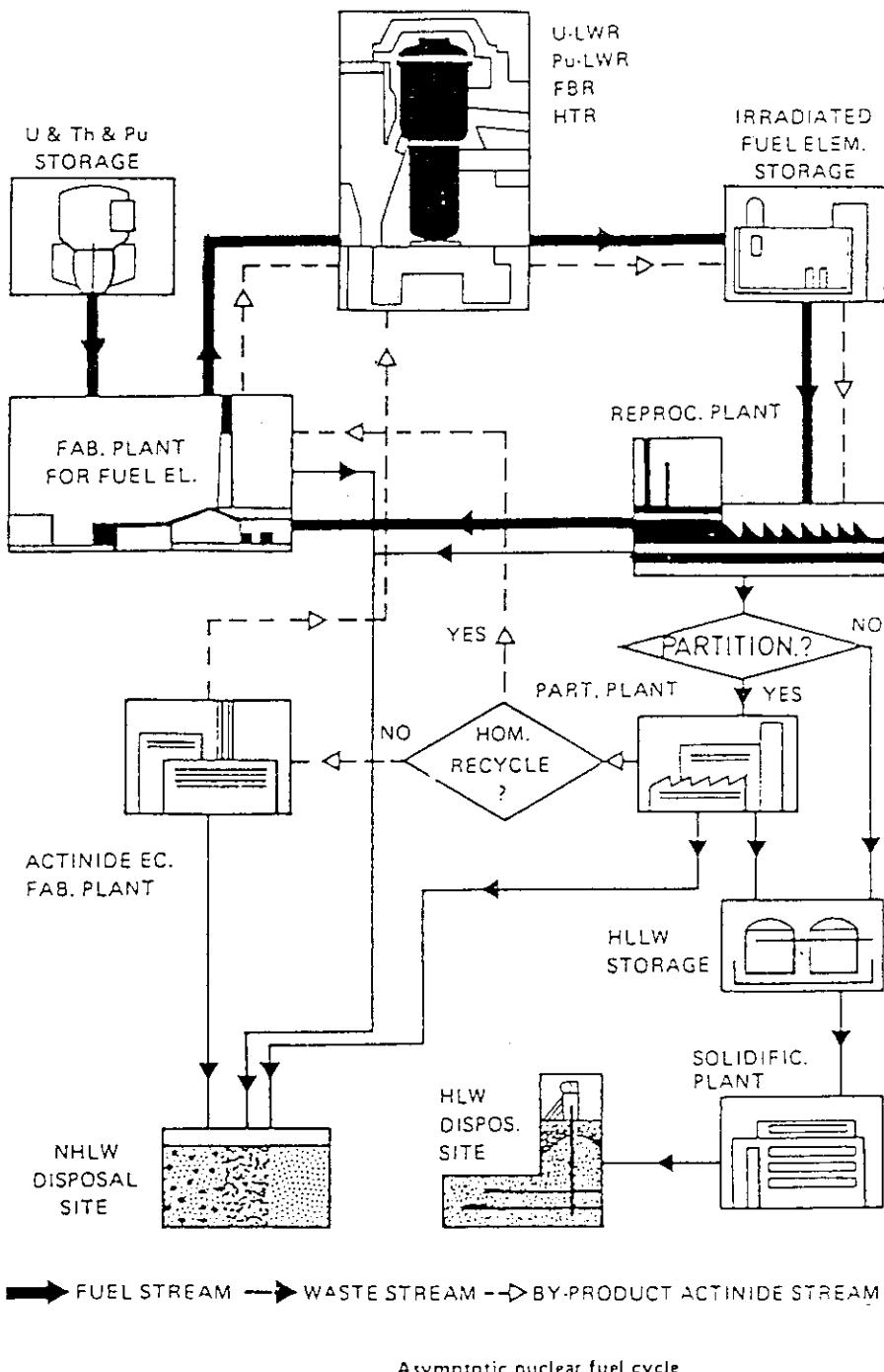


図 A 2 OMEGA 計画の概要



*Main features of normal and P-T fuel cycles: —— normal fuel cycle; --- additional steps required in the P-T fuel cycle. Step X is omitted in the P-T cycle. In both the normal and P-T fuel cycles there are numerous further waste streams, not shown in the diagram, from fuel fabrication, reprocessing etc. In total actinide recycling fuel and waste actinides must be recovered from these and re-introduced at appropriate points in the cycle.*

図A3 IAEAにおいて評価の対象としたP-Tサイクルの概念図



図A 4 ISPRAにおいて評価の対象としたP-Tサイクルの概念図