

高レベル放射性廃棄物の 群分離・処分

高度情報科学技術研究機構

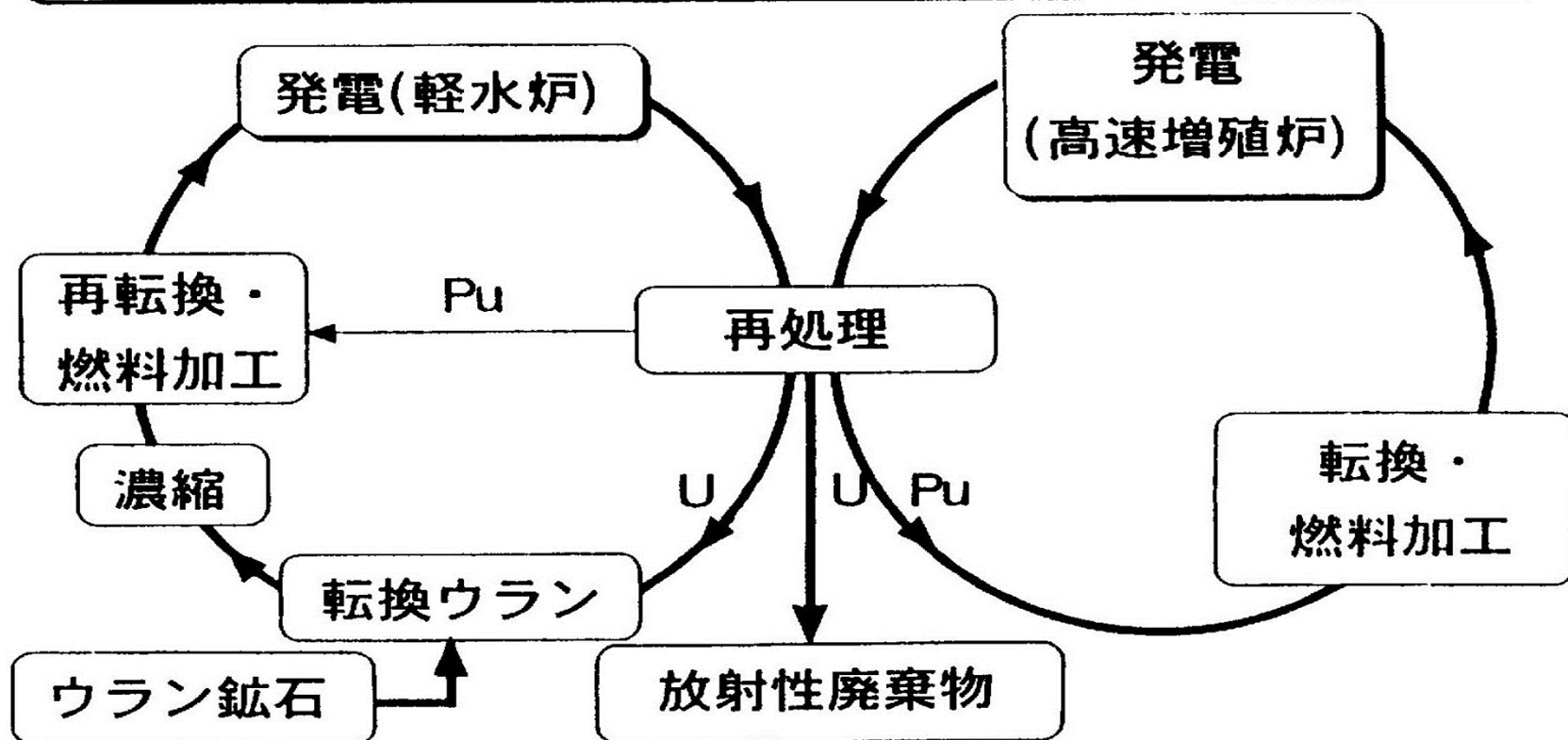
久保田 益充

群分離技術の開発： 使用済み燃料の再処理によって発生する高レベル放射性廃棄物に含まれる長半減期の核種や発熱の大きい核種などを分離し、それぞれを別に管理し処分することで高レベル放射性廃棄物の処分の安全性や経済性を高めようとする技術の開発である。

群分離研究の開始： 昭和48年(1973)発行「放射能クローズドシステムの構想」(日本原子力産業会議「核分裂生成物等総合対策懇談会」)の報告書が契機となって(旧)日本原子力研究所で昭和48年ごろから開始された。

国際的な提案： 平成元年(1989)には、我が国の提案でOECD(経済協力開発機構) /NEA(原子力機構)において群分離・消滅処理情報交換会議が発足して以来、現在では国際的な取り組みとなっている。

核燃料サイクルと放射性廃棄物の発生



使用済燃料（1トン当たり）の再処理における放射性廃棄物の発生量

電気出力百万キロワットの発電所当たり年間約30トンの使用済燃料が発生

使用済燃料

→ 再処理

プルトニウム 9 kg

ウラン 0.96t

ハル等固体廃棄物 0.6 m³

低レベル廃棄物 0.7 m³

アルファ廃棄物 0.8 m³

高レベル廃棄物 0.15 m³

濃縮前高レベル廃液 5 m³ → 濃縮後高レベル廃液 0.5 m³ →
→ 高レベル廃棄物（ガラス固化体） 0.15 m³

高レベル放射性廃棄物中の主な核種と放射エネルギー(使用済燃料1トン当り)

半減期による区分	核分裂生成物			超ウラン元素		
	主な核種	半減期(年)	放射エネルギー(Bq)	主な核種	半減期(年)	放射エネルギー(Bq)
2-100年	$^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$	29.1	6.41×10^{15}	^{238}Pu	87.8	3.39×10^{11}
	$^{125}\text{Sb}-^{125\text{m}}\text{Te}$	2.8	1.32×10^{14}	^{241}Pu	14.4	1.01×10^{13}
	^{134}Cs	2.1	1.74×10^{15}	^{243}Cm	28.5	8.95×10^{11}
	$^{137}\text{Cs}-^{137\text{m}}\text{Ba}$	30.0	9.32×10^{15}	^{244}Cm	18.1	1.67×10^{14}
	^{147}Pm	2.6	1.97×10^{15}			
	^{151}Sm	90.0	1.38×10^{13}			
	^{152}Eu	13.6	6.85×10^{10}			
	^{154}Eu	8.6	1.94×10^{14}			
	^{155}Eu	5.0	8.99×10^{13}			
100-1000年				^{241}Am	432	5.22×10^{13}
				$^{242\text{m}}\text{Am}$	152	2.86×10^{11}
1000-10000年				^{240}Pu	6540	4.51×10^{10}
				^{243}Am	7380	1.26×10^{12}
				^{245}Cm	8500	3.13×10^{10}
				^{246}Cm	4730	5.81×10^9
1万-1百万年	^{79}Se	6.50×10^4	1.59×10^{10}			
	^{99}Tc	2.13×10^5	6.59×10^{11}	^{239}Pu	2.41×10^4	2.78×10^{10}
	^{126}Sn	1.00×10^5	3.22×10^{10}	^{242}Pu	3.87×10^5	2.18×10^8
1百万年以上	^{93}Zr	1.53×10^6	8.95×10^{10}	^{237}Np	2.14×10^6	1.32×10^{10}
	^{107}Pd	6.50×10^6	5.96×10^9			
	^{129}I	1.57×10^7	3.16×10^7			
	^{135}Cs	2.30×10^6	2.22×10^{10}			
核分裂生成物(放射エネルギー) : $2.28 \times 10^{16}\text{Bq}$						
核分裂生成物(元素量) : 38.4kg						
超ウラン元素(元素量) : Np 506g, Pu 22.1g, Am 583g, Cm 61.2g						

軽水炉(PWR)使用済燃料: 燃焼度: 45000MWd/t、冷却期間: 5年

再処理における高レベル廃棄物への移行率 U: 0.2%、Np: 80%、Pu: 0.2%

○主な超ウラン元素核種の崩壊

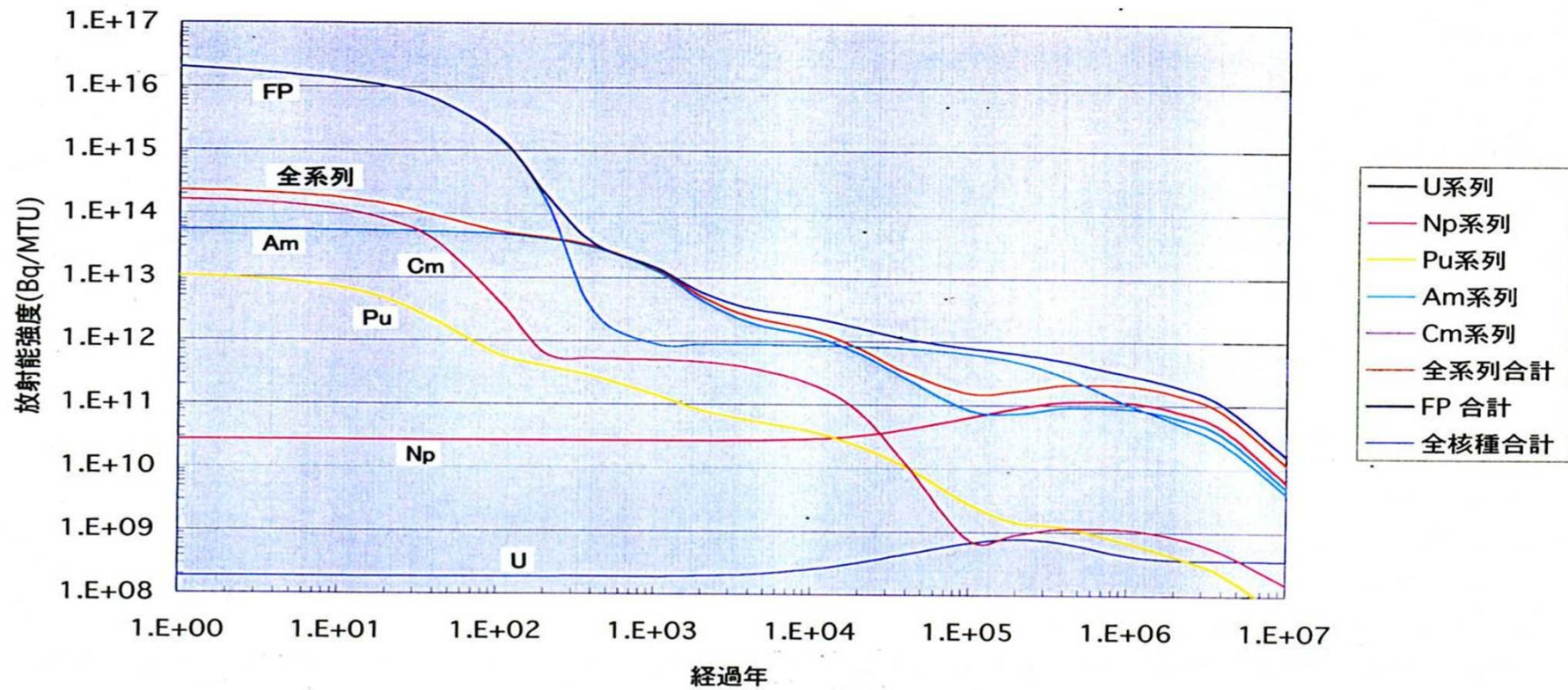
$^{241}\text{Pu}(14.4\text{年}) \rightarrow ^{241}\text{Am}(433\text{年}) \rightarrow ^{237}\text{Np}(2.14\text{E}+6\text{年})$

$^{244}\text{Cm}(18.1\text{年}) \rightarrow ^{240}\text{Pu}(6542\text{年}) \rightarrow ^{236}\text{U}(2.34\text{E}+07\text{年})$

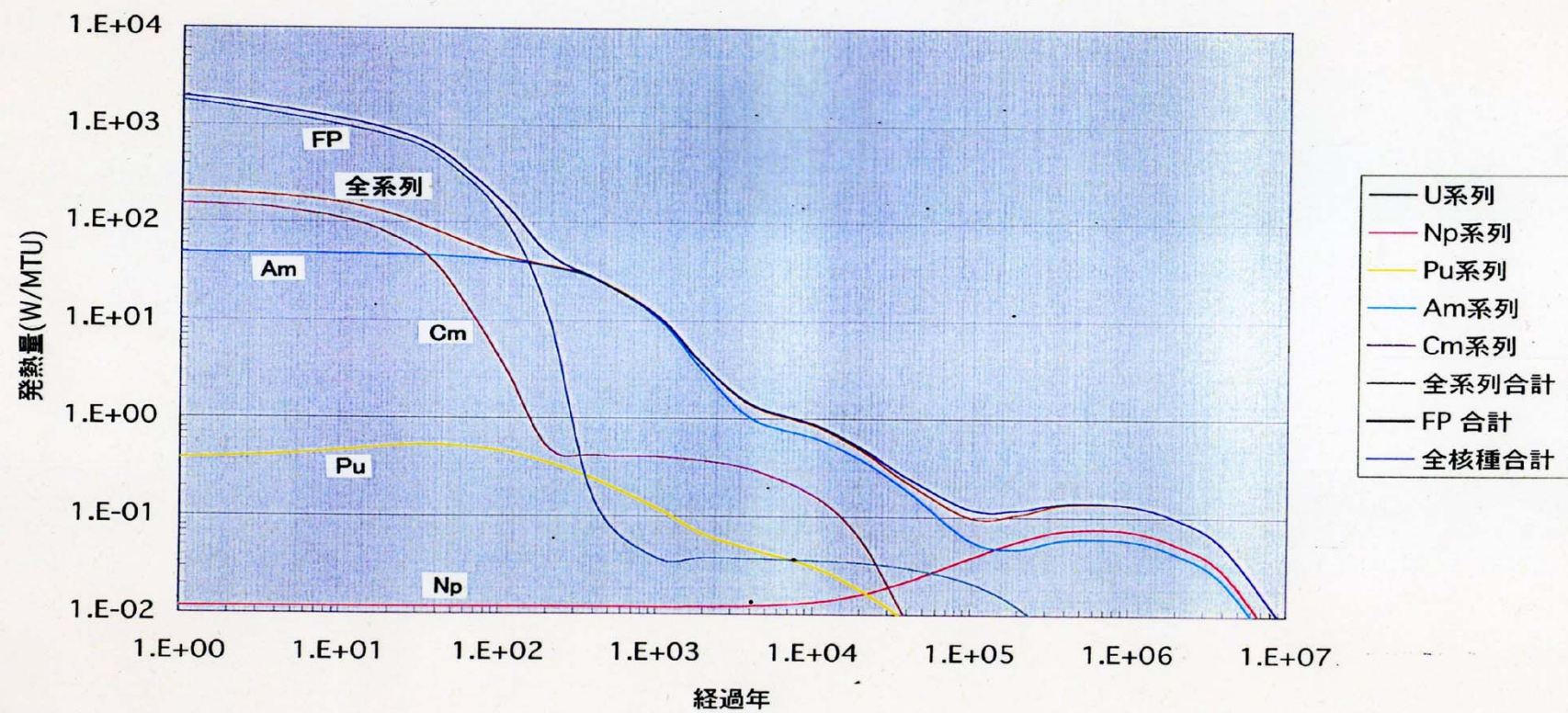
$^{243}\text{Cm}(28.5\text{年}) \rightarrow ^{239}\text{Pu}(2.41\text{E}+04\text{年}) \rightarrow ^{235}\text{U}$

$^{243}\text{Am}(7386\text{年}) \rightarrow ^{239}\text{Np}(56.5\text{時間}) \rightarrow ^{239}\text{Pu}$

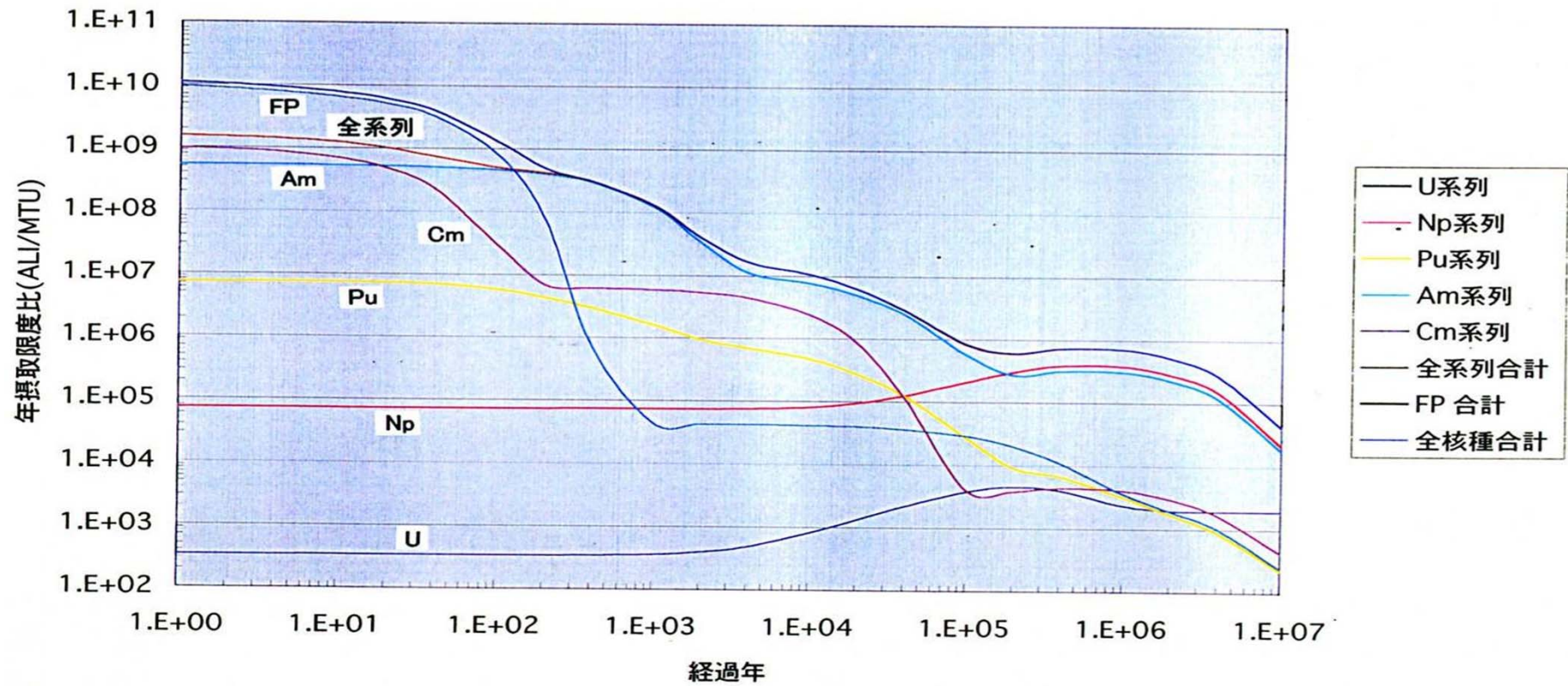
高レベル廃棄物の放射能強度経年変化



高レベル廃棄物の発熱量経年変化



高レベル廃棄物の年摂取限度比経年変化



群分離の目指すもの

群分離

長寿命核種の消滅処理

環境への負荷の低減化

長寿命核種の高密度化

処理・処分技術の多様化

発熱性核種の安定固化

高レベル廃棄物の減容化

元素や核種の有効利用

高レベル廃棄物の資源化

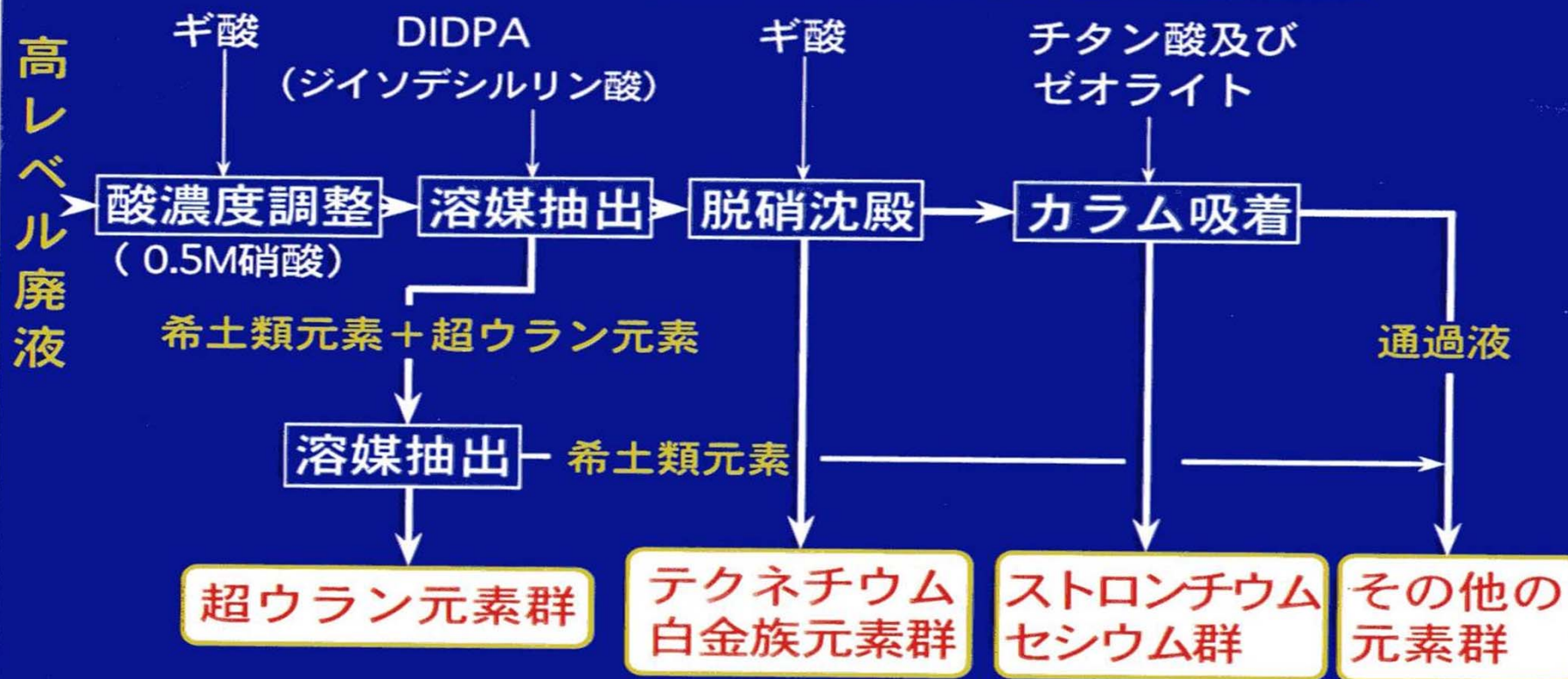


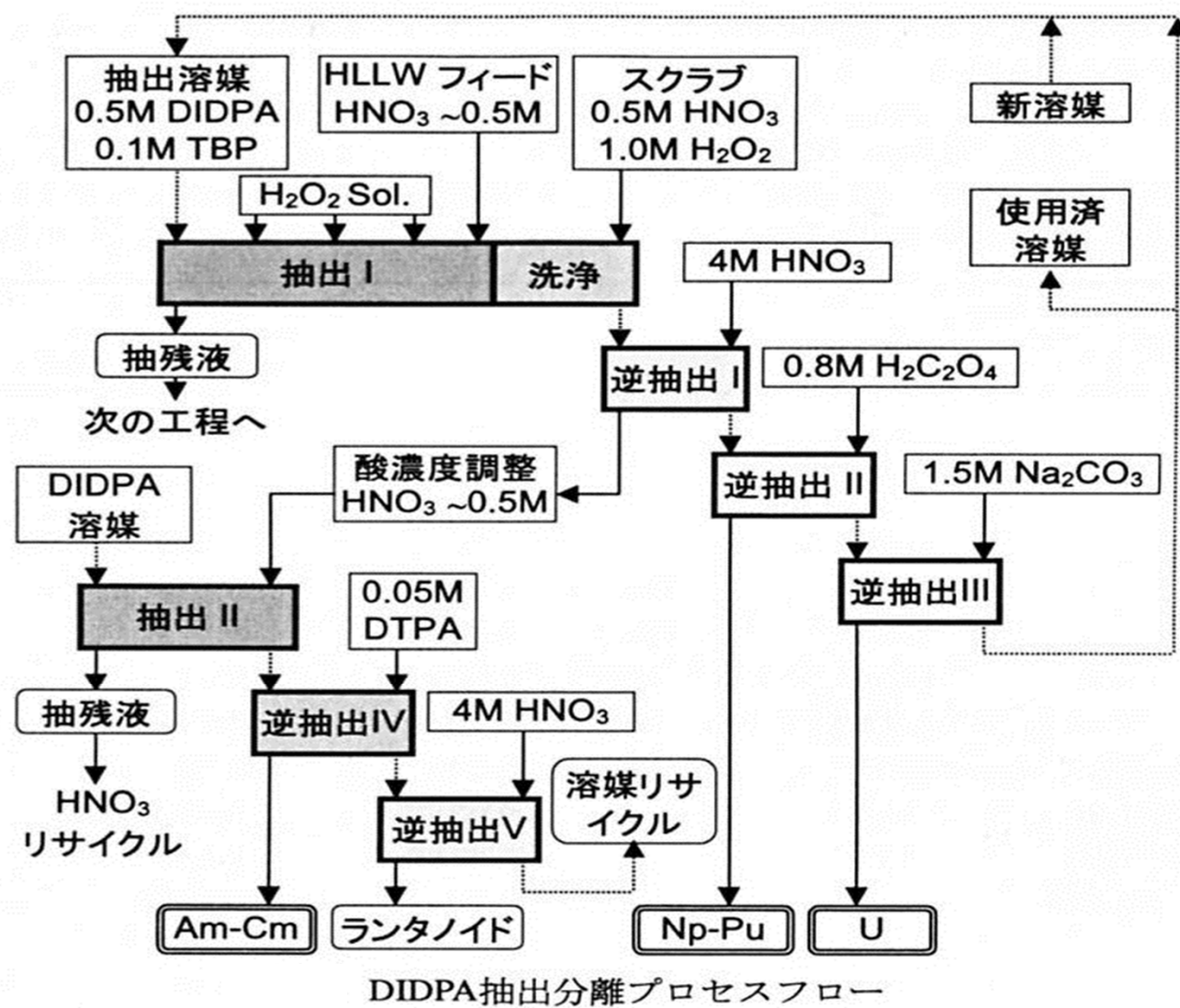
革新的廃棄物処理処分システムの構築

群分離プロセスの構築に当たって

- (1) 連続的高分離性・選択性
- (2) 経済性 (建設費、運転費)
- (3) 安全性 (火災、爆発)
- (4) 耐放射線性、迅速分離
- (5) 二次廃棄物発生量、廃棄物の種類
- (6) 再使用

原研で開発された4群群分離プロセス





群分離対象元素の分離回収目標値及び 模擬高レベル廃液により得られた実験値

対象元素	超ウラン元素				Tc	Sr, Cs
	Np	Pu	Am	Cm		
目標値	99.5%	99.9%	99.99%	99.9%	99%	99.9%
実験値	>99.95 %	>99.9 %	>99.99 %	>99.99 %	>99%	>99.9 %

分離回収目標値：超ウラン元素群分離後の高レベル廃液をガラス固化体にしたときの千年後における年摂取限度比がウラン3%含有鉱石相当（年摂取限度比が約 1×10^4 ）以下であること。



無機イオン交換体高温処理体からの ストロンチウム及びセシウムの浸出率

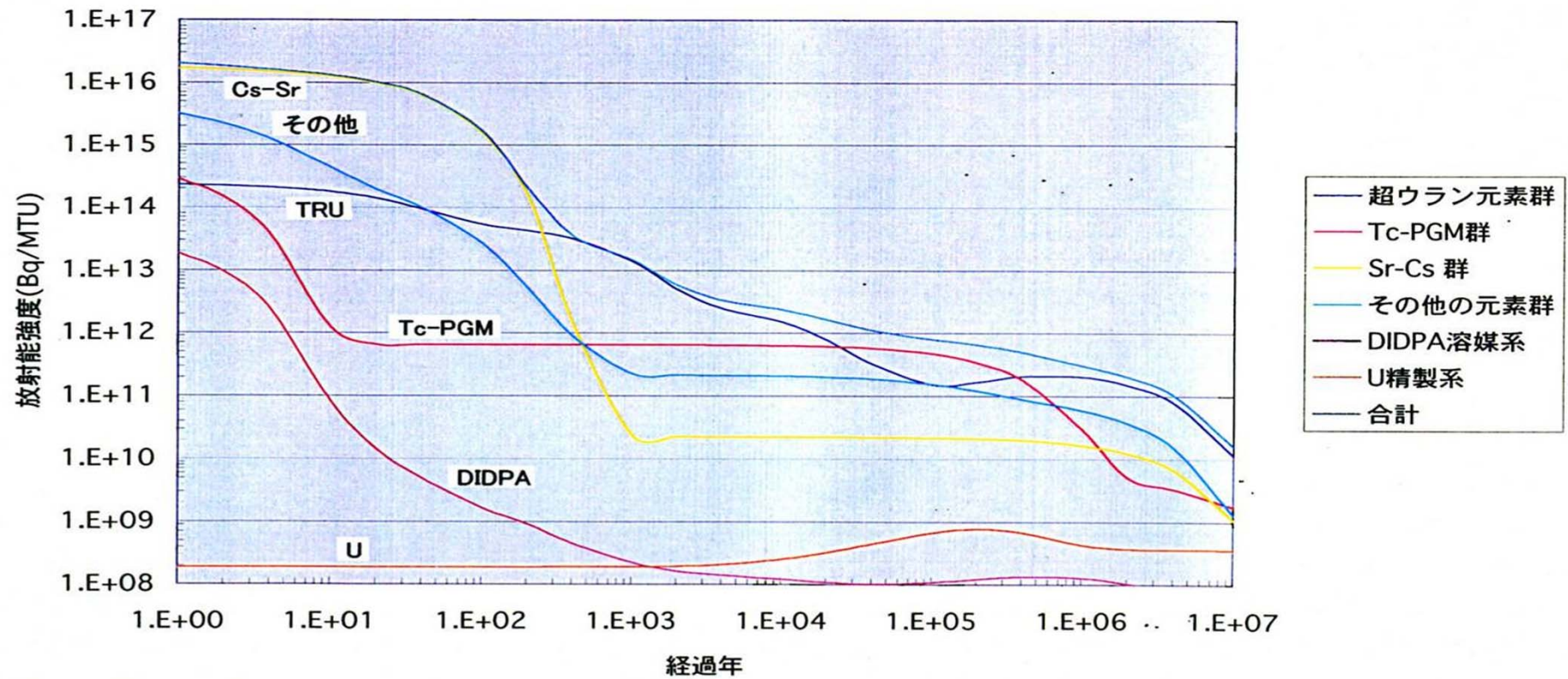
	10日後	50日後
チタン酸高温処理体（1000℃）からのSrの浸出率	$3 \times 10^{-9} \text{g/cm}^2 \cdot \text{日}$	$1 \times 10^{-9} \text{g/cm}^2 \cdot \text{日}$
ゼオライト高温処理体（1000℃）からのCsの浸出率	$6 \times 10^{-9} \text{g/cm}^2 \cdot \text{日}$	$1 \times 10^{-9} \text{g/cm}^2 \cdot \text{日}$
ガラス固化体からのSr及びCsの浸出率	$2 \times 10^{-5} \text{g/cm}^2 \cdot \text{日}$	$2 \times 10^{-5} \text{g/cm}^2 \cdot \text{日}$

* 室温での浸出性試験

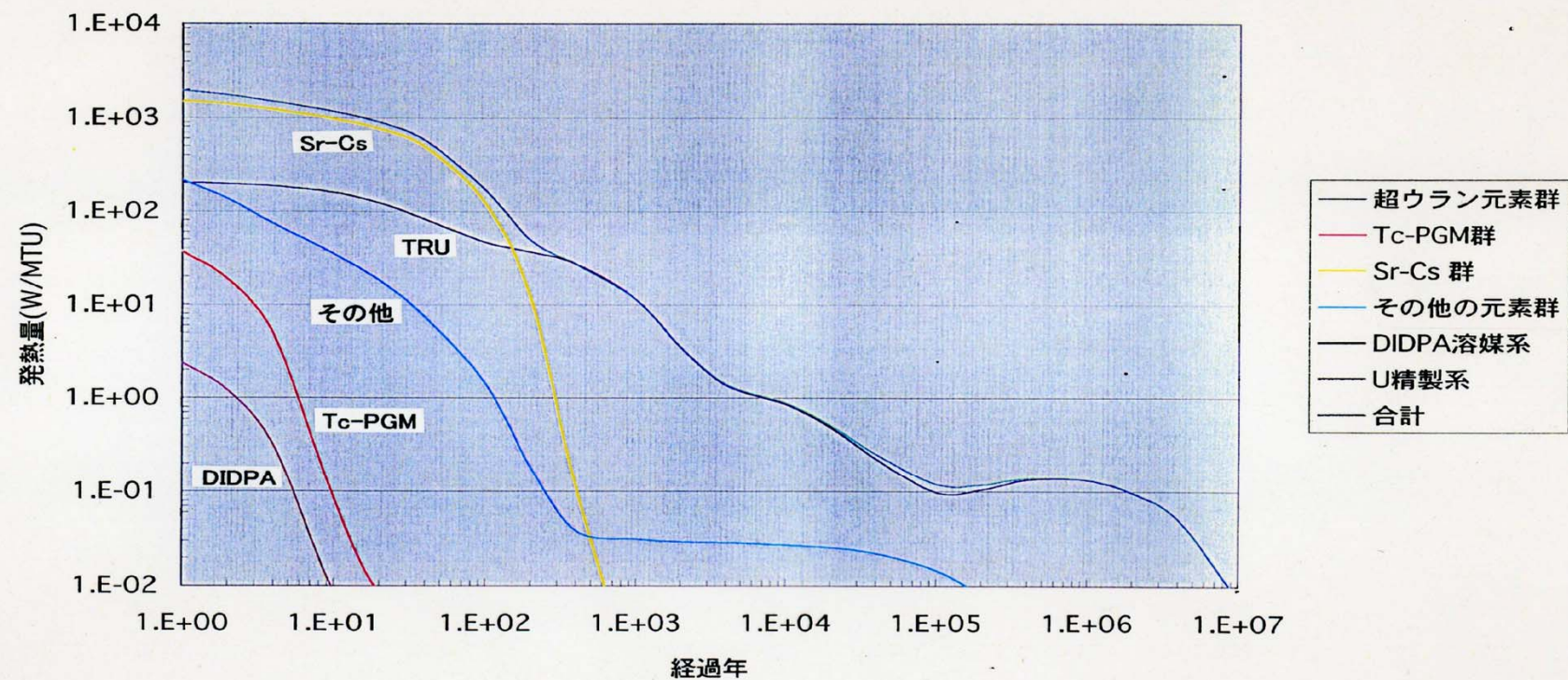
4 群群分離プロセスの主な特徴

- (1) 超ウラン元素のみの分離にも適用が可能
- (2) 超ウラン元素の分離には原研独自の抽出剤を開発
高い回収率が期待出来る。
- (3) テクネチウム・白金族元素群の分離には沈殿分離法を開発
余分な廃棄物を発生させない。
- (4) ストロンチウム・セシウム群の分離には、無機イオン
交換体による吸着分離法を開発
安定な固化体への変換が可能
余分な廃棄物を発生させない。

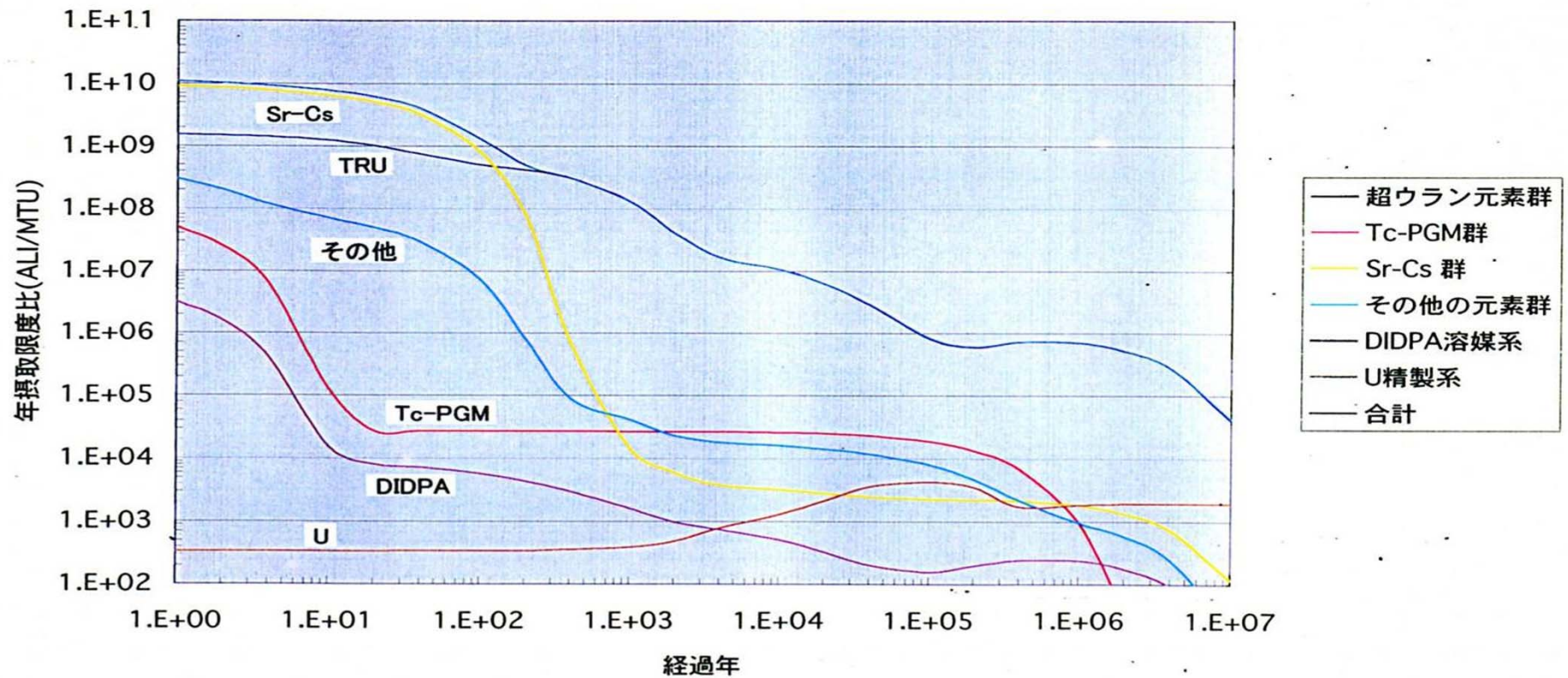
群分離後各フラクションの放射能強度経年変化



群分離後各フラクションの発熱量経年変化



群分離後各フラクションの年摂取限度比経年変化



高レベル廃棄物

群分離

超ウラン元素群

3%

テクネチウム・
白金族元素群

11%

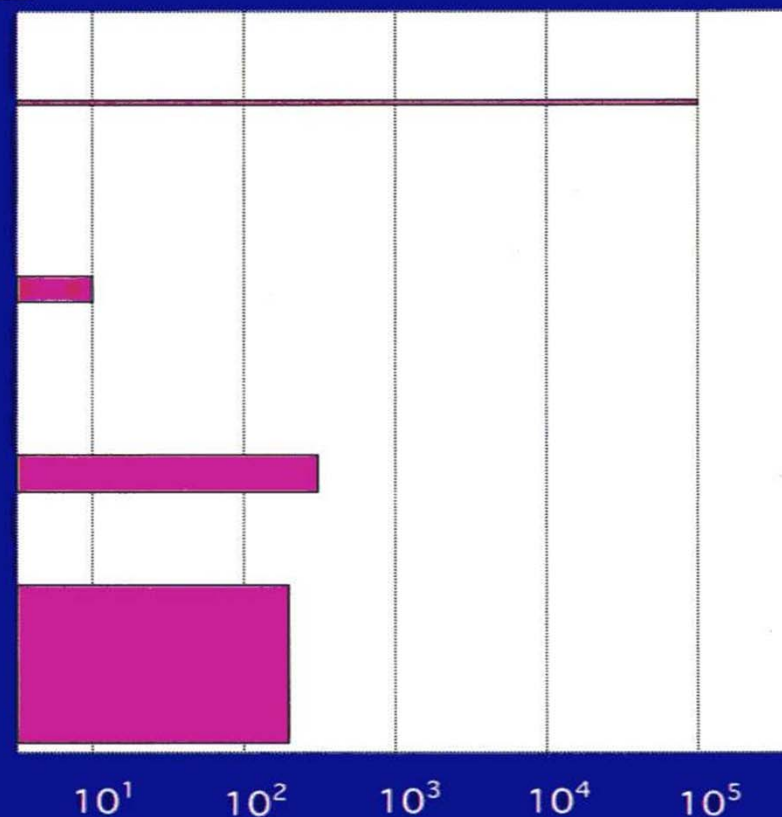
ストロンチウム・
セシウム群

17%

その他の元素群

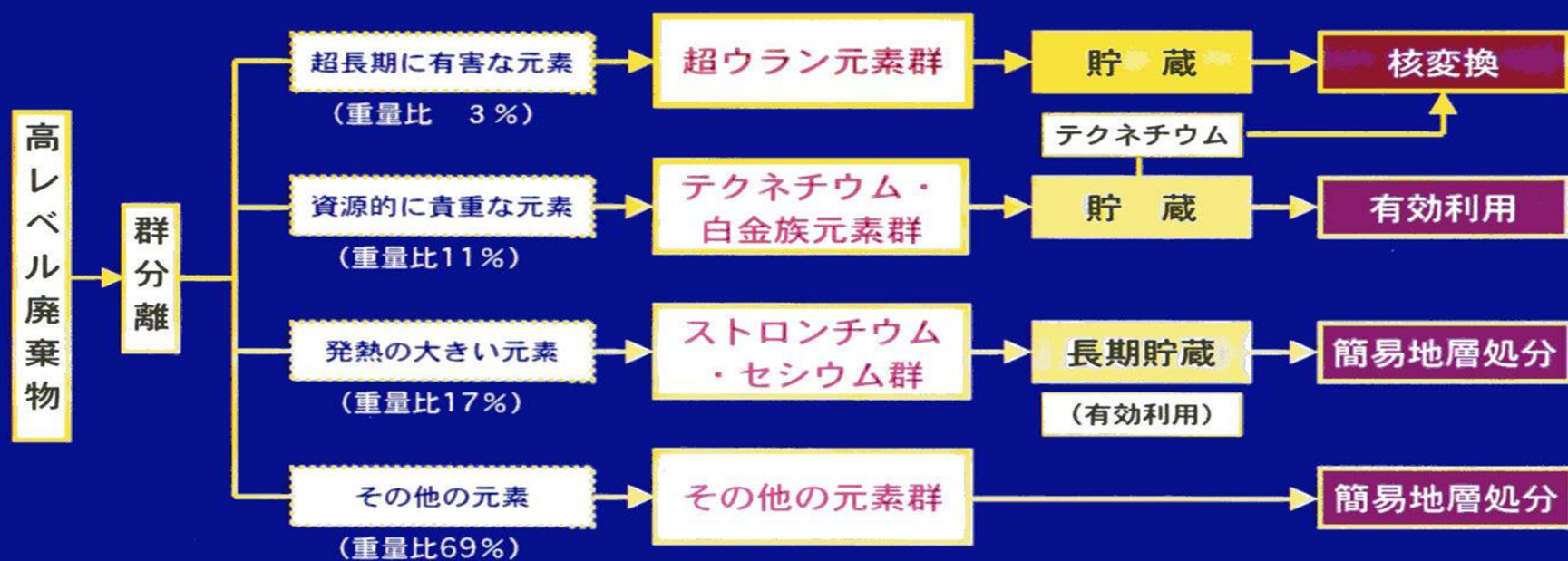
69%

元素重量比

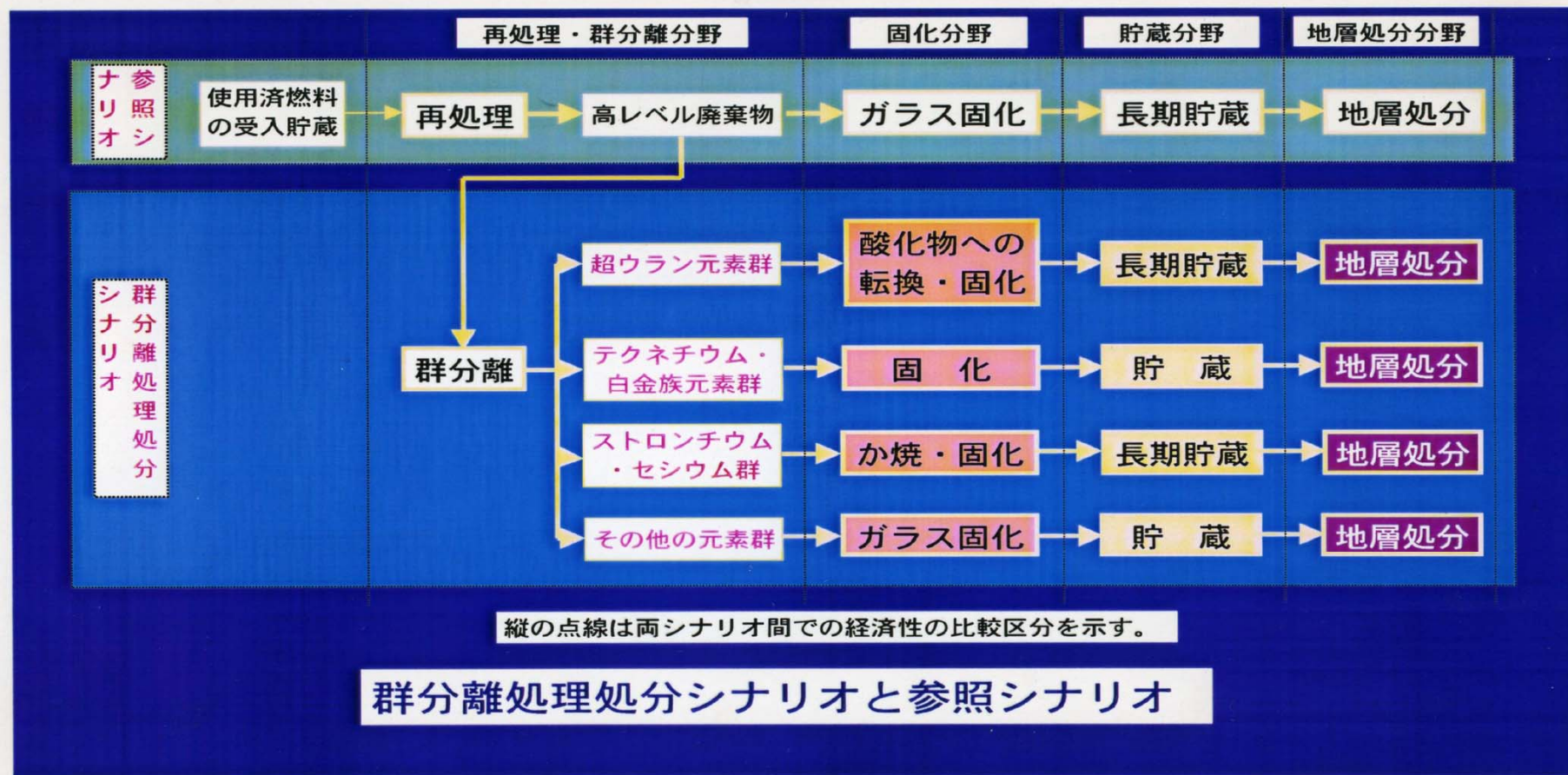


使用済燃料1トン当たりの各群の年摂取限度比がウラン1トンの値以上の期間 (年)

高レベル廃棄物の4群群分離後各群の潜在的毒性



高レベル廃棄物の4群群分離による処理処分シナリオ



群分離後各群の固化費用

	固化形態	固化体体積 (ℓ)	体積比	難易度係数	費用比率
超ウラン元素群	酸化物	0.120	0.000736	10	0.0074
テクネチウム・ 白金族元素群	金属・酸化物	0.610	0.00374	1.0	0.0037
ストロンチウム・ セシウム群	無機イオン交 換体か焼体	18.0	0.110	1.0	0.11
その他の元素群	ガラス固化体	44.0	0.270	0.7	0.19
4 群全体		62.7	0.385		0.31
全量ガラス固化体	ガラス固化体	163	1.00	1	1

使用済燃料の燃焼度：45,000MWD/MTU、再処理・群分離までの冷却期間：5年

固化体体積は使用済燃料1トン当たり

ガラス固化体のFP元素酸化物の含有率をその他の元素群で40%、全量ガラス固化体で12%

難易度係数は固化体の発熱密度、固化時における元素の蒸発、操作性などを考慮

群分離後各群の貯蔵

	固化体サイズ			1固化体貯蔵 期間（年）	貯蔵方式	最大容量での貯蔵 所運転期間（年）
	直径（cm）	高さ（cm）	体積（ℓ）			
超ウラン元素群	4	12	0.151 1.26T	20	水冷	20
テクネチウム・ 白金族元素群	20	60	18.8 30.8T	4	自然空冷	20
ストロンチウム・ セシウム群	15	45	7.95 0.44T	50	自然空冷	50
その他の元素群	50	150	294 6.68T	10	自然空冷	20
全量ガラス固化体	40	120	151 0.93T	40	自然空冷	40

固化体サイズは直径の3倍の高さの円柱とし、自然空冷時における表面温度を約500℃以下

超ウラン元素群については20年後における地層処分を考慮した固化体サイズで水冷

ガラス固化体のサイズは最大で直径50cmとし、自然空冷時における表面温度は300℃以下

水及び空気の温度は20℃

再処理・群分離の期間：20年間

年当たりの固化体発生量と地層処分の時の処分量は同じと仮定

群分離後各群の固化体貯蔵費用

	固化体サイズ 体積比	貯蔵固化体 本数比	難易度係数	貯蔵所運転期間 補正係数比率	費用比率
超ウラン元素群	0.00100	0.736	0.67	0.67	0.0003
テクネチウム・ 白金族元素群	0.125	0.0142	0.96	0.67	0.0011
ストロンチウム・ セシウム群	0.0527	2.09	0.99	1.17	0.13
その他の元素群	1.95	0.0691	1.1	0.67	0.095
4 群全体					0.22
全量ガラス固化体	1	1	1	1	1

難易度係数は鉄遮蔽体の必要厚に比例するとし、水冷貯蔵の費用は空冷の2倍

貯蔵所運転期間補正係数比率は $(1+0.05 \times t_1)/(1+0.05 \times t_2)$

t1：各群固化体の貯蔵所運転期間（年） t2：全量ガラス固化体の貯蔵所運転期間（年）
固化体の年当たりの発生量と地層処分の時の処分量は同じものと仮定

群分離後固化体の地層処分費用

	固化体体積 (ℓ)	体積比	処分固化体 本数比	難易度係数	費用比率
超ウラン元素群	0.151	0.0010	0.736	0.037	0.000027
テクネチウム・ 白金族元素群	18.8	0.125	0.0299	0.094	0.00035
ストロンチウ ム・セシウム群	7.95	0.0527	2.09	0.10	0.011
その他の元素群	294	1.95	0.138	0.12	0.033
群全体			3.00		0.045
全量ガラス固化 体	151	1	1	1	1

全量ガラス固化体は地層処分ケース1で、

群分離後の各群は地層処分ケース2で処分

難易度係数は処分時の遮蔽体の必要厚に比例し、処分面積に反比例

地層処分ケース1は列間隔15m、行間隔6.66mで地下1000mの温度45℃の地層に処分

地層処分ケース2は列間隔5m、行間隔2mで地下1000mの温度45℃の地層に処分

地層処分における鉄オーバーパック(O.P.)の厚さ30cm,緩衝材ベントナイトの厚さ90cm

鉄遮蔽体の必要厚は表面で2mSv/hrあるいは1m離れた地点で0.1mSv/hr以下となる厚さ

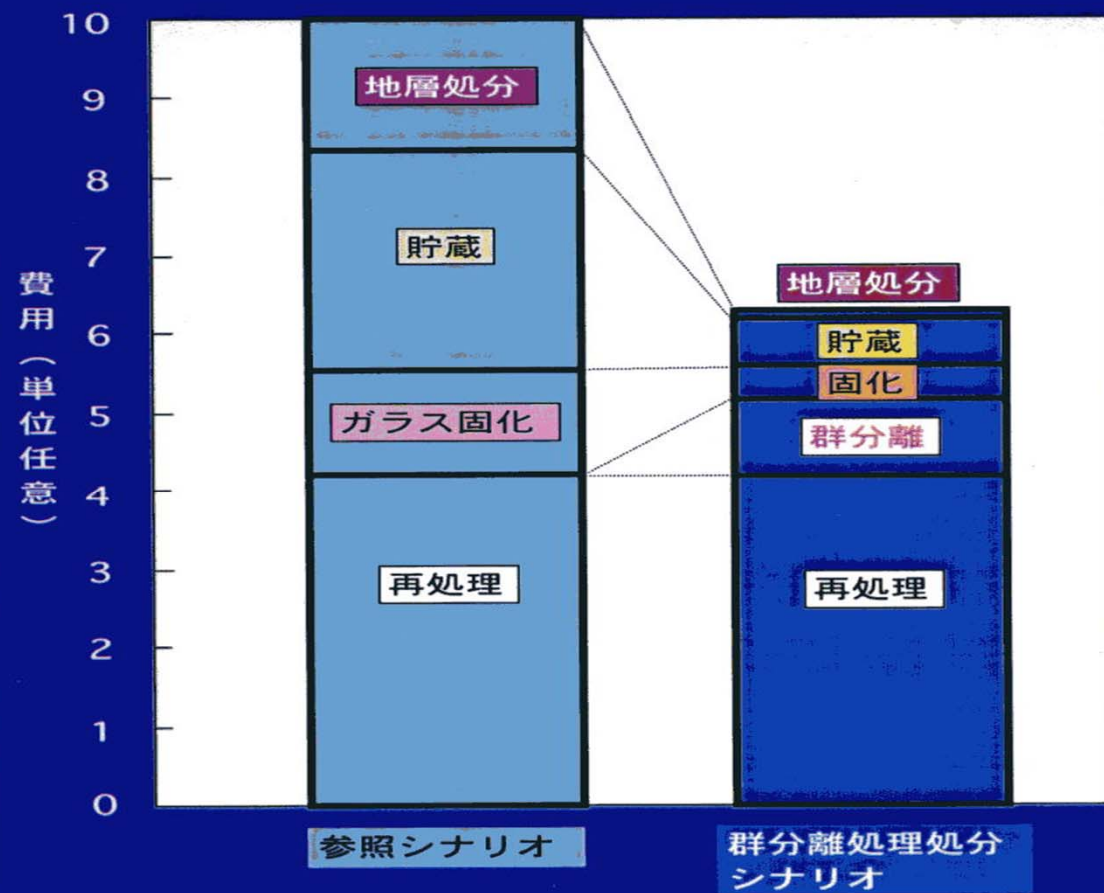
群分離処理・処分の参照シナリオに対する費用比率

	再処理・ 群分離分野	固化	貯蔵	地層処分
参照シナリオ	1	1	1	1
群分離処理・処分	1.25	0.31	0.22	0.045

再処理・群分離の期間は20年間を想定

参照シナリオと群分離処理・処分の費用比較

	再処理	群分離	固化	貯蔵	地層処分	合計
参照シナリオ	42		14	27	17	100
群分離処理・処分	42	10	4	6	1	63



全量ガラス固化処分と群分離処理処分の費用比較

ま と め

群分離処理処分の効果

1. 全量ガラス固化処分に比べて大幅な経済性向上が期待できる。

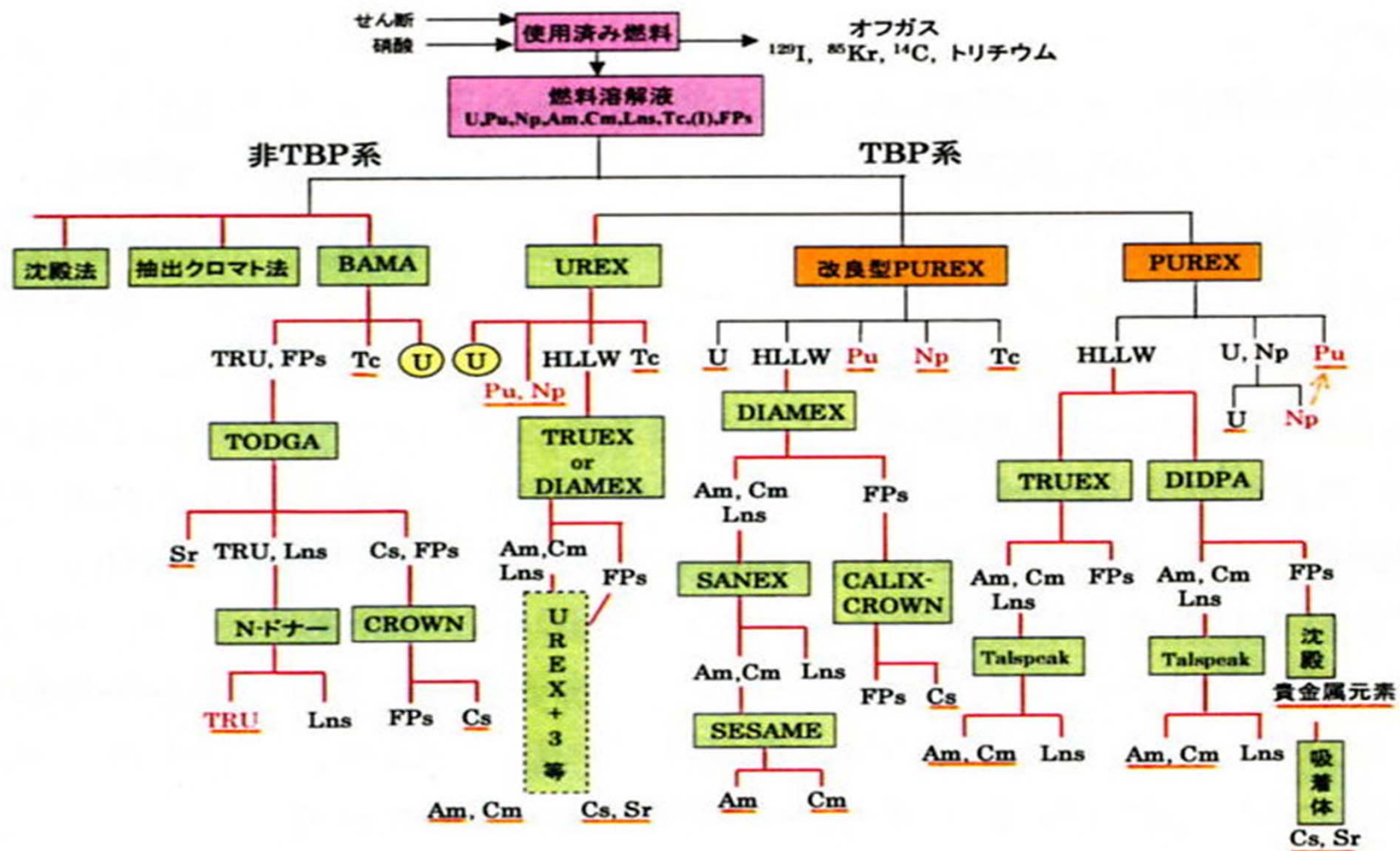
(全量ガラス固化処分費用の約40%減)

- ・ 廃棄物固化体の減容化 (約60%)
- ・ 貯蔵施設の規模縮小化・貯蔵期間の短縮
- ・ 地層処分面積の大幅な縮小化 (約70%減)

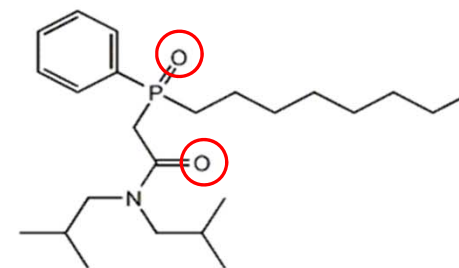
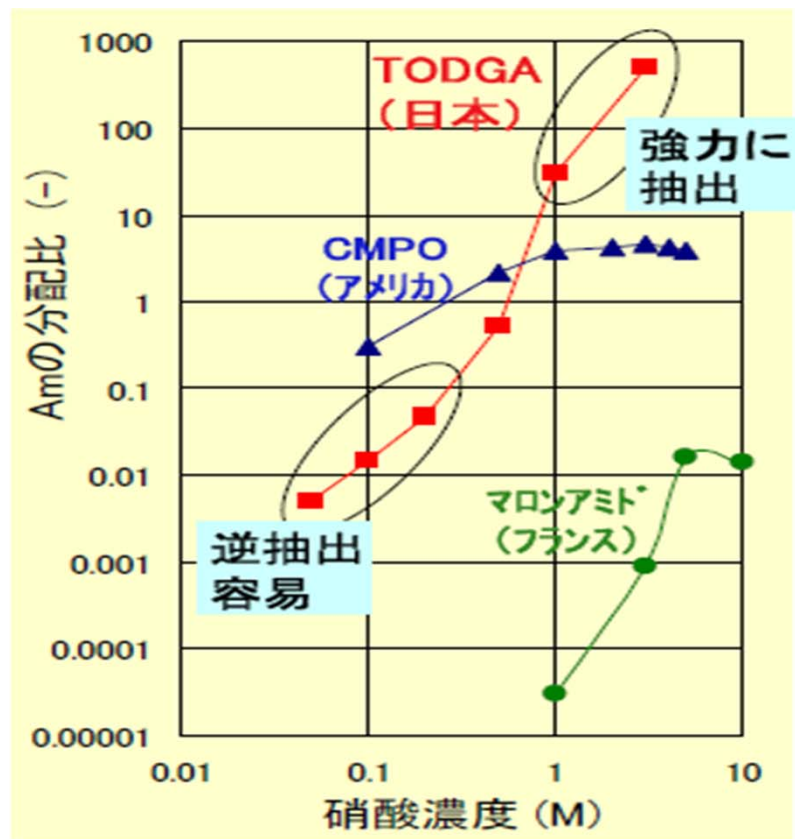
2. 全量ガラス固化処分に比べてより簡易な地層処分が期待できる。

- ・ 各々の群に適した安定化固化
- ・ 超ウラン元素群を除く残り97%の廃棄物の潜在的毒性の低減

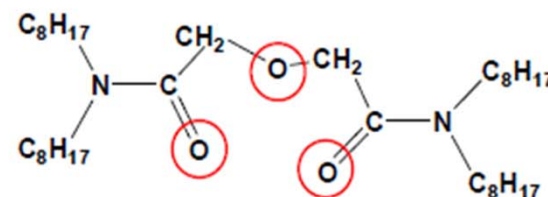
3. 超長寿命核種の核変換への途を開くことができる。



湿式法による再処理及び核種分離の流れ系統比較

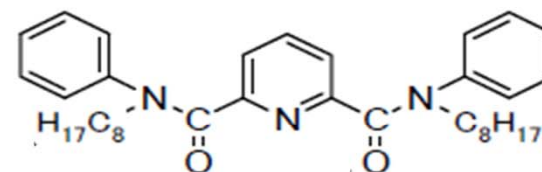
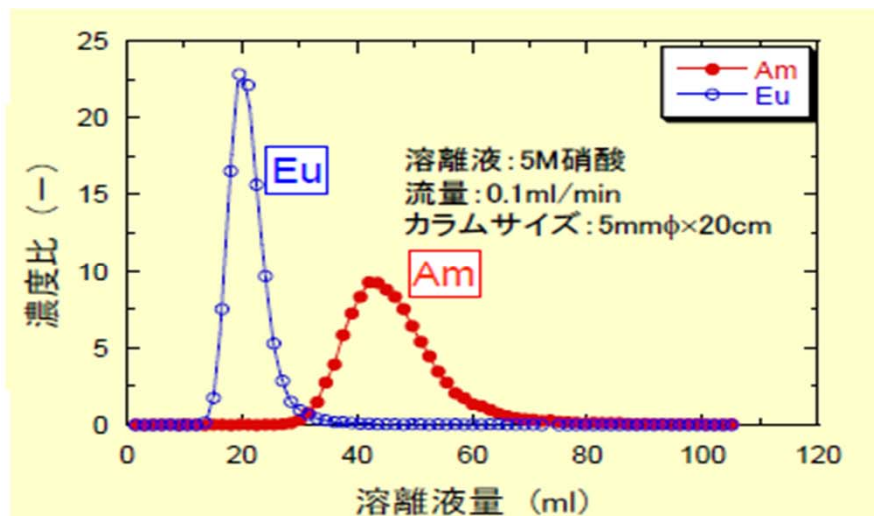


CMPO オクチル(フェニル)(ジイソブチルカルバモイルメチル)ホスフィンオキシド



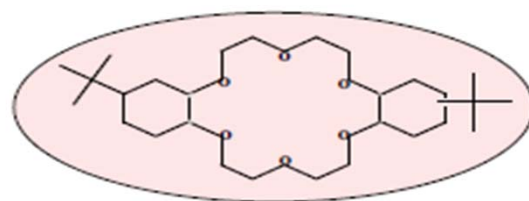
TODGA: テトラオクチルジグリコールアミド

Am,Cm+RE 分離用抽出剤の比較

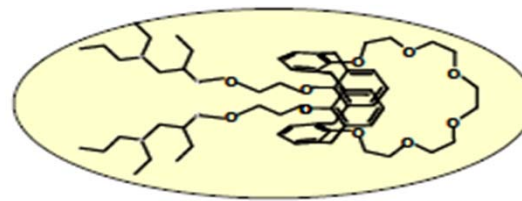


Oct.PDA: N,N'-dioctyl-N,N'-diphenyl-pyridine-2,6-dicarboxamide

REからのAm,Cm分離用抽出剤の開発



DtBuCH18C6 (Sr吸着剤用)



Calix-crown R14 (Cs吸着剤用)

srおよびcs分離用吸着剤の開発

非破壊検査装置およびおもな装備機器の使用許可・届出台数(機器の種類別, 核種別)
 Number of γ -Ray Radiography Apparatus and Major Isotope Gauges in Use in Industrial Firms by Nuclide
 (as of March 31, 2010)

機器 Apparatus 核種 Nuclides	総数 Total 構成比 (Ratio%)	非破壊 検査装置 Radio- graphy	厚さ計 Thickness Gauges	レベル計 Level Gauges	密度計 Density Gauges	水分計 Moisture Gauges	蛍光X線 分析装置 X-ray Fluorescence Spectrometer	スラブ位置 検出器 Slab Position Detector	ガス クロマトグラフ Gas Chromato- graph	硫黄 分析計 Sulfur Meters	たばこ量目 制御装置 Cigarette Weight controller	静電除去 装置 Electric Static Eliminator	ガス 検知器 Gas Detector	その他 Others
総数 Total	16,009 100%	958	2,436	1,183	2,419	70	53	30	481	126	78	18	54	8,103
^3H	5,726 35.8	-	-	-	-	-	-	-	2	-	-	-	-	5,724
^{55}Fe	43 0.3	-	6	-	-	-	33	-	-	-	-	-	-	4
^{60}Co	534 3.3	137	-	324	-	-	-	19	-	-	-	-	-	54
^{63}Ni	549 3.4	-	-	-	-	-	-	-	479	-	-	-	54	16
^{85}Kr	2,392 14.9	-	1,352	-	8	-	-	-	-	-	-	-	-	1,032
^{90}Sr	244 1.5	-	161	-	5	-	-	-	-	-	78	-	-	-
^{137}Cs	1,205 7.5	19	75	859	141	-	-	11	-	-	-	-	-	100
^{147}Pm	246 1.5	-	222	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	24
^{192}Ir	706 4.4	706	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
^{204}Tl	1 0.0	-	1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
^{210}Po	18 0.1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	14	-	4
^{226}Ra	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
^{241}Am	3,840 24.0	5	612	-	2,265	1	1	-	-	126	-	-	-	830
$^{241}\text{Am/Be}$	62 0.4	-	-	-	-	62	-	-	-	-	-	-	-	-
^{252}Cf	4 0.0	-	-	-	-	4	-	-	-	-	-	-	-	-
Other	439 2.7	91	7	-	-	3	19	-	-	-	-	4	-	315

おもな密封アイソトープの供給量の推移(核種別、年度別)
Amounts of Major Sealed Radioisotopes Distributed in Fiscal 2005-2009

[MBq]

核種 Nuclides	年度 Year	2005	2006	2007	2008	2009
³ H Target*		-	40,700	49,600,000	-	-
²² Na		6,290	3,700	5,021	1,197	1,532
⁵⁵ Fe		6,845	-	17,760	9,990	37
⁵⁷ Co		26,455	21,090	18,787	38,938	19,420
⁶⁰ Co		158,280,600,085	141,091,767,039	96,625,311,816	114,253,124,294	101,422,972,075
⁶³ Ni		268,220	393,495	458,800	453,805	673,030
⁶⁸ Ge		62,913	56,611	56,517	57,639	53,054
⁸⁵ Kr		996,780	1,400,820	1,485,920	1,245,420	1,218,040
⁹⁰ Sr		11,100	10,434	5,275	7,411	2,718
¹⁰⁹ Cd		888	-	-	-	-
^{119m} Sn		1,295	1,665	1,665	925	1,480
¹²⁵ I		1,783,136	2,192,451	2,745,944	2,705,943	3,162,292
¹³⁷ Cs		4,647,757	3,403,504	21,601,346	162,450,723	3,791,014
¹⁴⁷ Pm		712,250	746,955	836,385	512,635	656,750
¹⁵³ Gd		74,000	18,500	37,000	-	37,000
¹⁶⁹ Yb		1,480,000	1,480,000	1,850,000	1,850,000	1,850,000
¹⁹² Ir		647,654,640	682,144,024	661,107,860	704,622,450	644,151,500
¹⁹⁸ Au		385,540	377,215	275,650	333,925	294,520
²⁴¹ Am		1,124,820	832,870	609,927	538,104	1,093,770
²⁴¹ Am+Be		185,000	999	-	166,500	3,700
²⁵² Cf		16,300	72,280	20,791	10,466	63,547
その他 Other		7,530	5,652	5,677	5,551	174,102
合計 Total		158,940,051,844	141,784,970,004	97,366,052,141	115,128,135,916	102,080,219,581

*非密封アイソトープではあるが、密封線源のように使用されるため統計上は密封に含めた。

* Although ³H Target is an unsealed radioisotope, the data are included in this category as it is treated similarly to sealed sources.

注 100MBq以下の核種については省略した。

Note: The radionuclides below 100MBq are omitted.

高レベル廃棄物に含まれる核種や元素の有効利用

利用の主目的		主な核種半減期	主な利用分野と利用の可能性分野
放射線源	ガンマ線	^{137}Cs (30.0年)	照射線源、厚さ測定、液面測定、密度測定、ガンマ線透過診断、バルブ開閉機器、機器校正用線源
		^{241}Am (432年)	厚さ測定、密度測定、ガンマ線透過診断、絶縁ガス密度測定、蛍光X線分析、硫黄濃度測定
	ベータ線	^{90}Sr (29.1年)	厚さ測定、膜厚測定、静電気除去、たばこ量目計
		^{147}Pm (2.62年)	グローランプ、夜光時計、メタルハイドランプ、ネオンランプ、高電圧防護装置、粒状浮遊物測定、厚さ計
	アルファ線	^{241}Am (432年)	煙感知器、微風速計、湿度計、集電式電位測定器、エアロゾル中和器、レーダ受信部、有害ガス検知器
	中性子線	$^{241}\text{Am-Be}$	中性子ラジオグラフィ、水分測定、石油資源探査
熱源	ベータ線	^{90}Sr (29.1年)	寒冷地熱源、原子力電池
照射ターゲット		^{237}Np (2.14×10^6 年) → ^{238}Pu (87.7年)	熱源、原子力電池(宇宙用電源)
		$^{241}\text{Am} \rightarrow ^{238}\text{Pu}$	
		^{244}Cm (18.1年) → ^{252}Cf (2.65年)	水分計、石油探査機器、放射化分析装置、中性子ラジオグラフィ、がん治療用線源
		^{99}Tc (2.13×10^5 年) → ^{100}Ru (安定)	安定な白金族元素としての利用
		Ru	原子力施設内での利用、或いは、30-50年冷却後に安定な白金族元素として利用
		Rh	
希少元素		Pd (^{107}Pd (6.50×10^6 年))	原子力施設内での利用、核融合分野での利用
人工元素		^{99}Tc (2.13×10^5 年)	天然には得られない人工の元素としての利用
安定濃縮同位体		$^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Zr}$ (安定)	崩壊生成物で、濃縮度の極めて高い安定同位体としての利用
		$^{137}\text{Cs} \rightarrow ^{137}\text{Ba}$ (安定)	

「それぞれの国における地理的、地質的条件あるいは、人口密度、経済規模などの諸条件が核分裂生成物対策としての**利用開発あるいは処理処分方法の選択**をかなりの程度左右することは否めないにしても、**地球環境を保全するという基本理念**の下で作成された本懇談会の報告は、今後の放射性廃棄物問題の検討に**新たなビジョンを提供**するものと確信している。」(昭和48年5月核分裂生成物等総合対策懇談会)