

核種分離・消滅処理技術の現状

平成11年9月30日

はじめに

我が国における核種分離・消滅処理技術の研究開発は、昭和63年に原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会（当時）が取りまとめた「群分離・消滅処理技術研究開発長期計画」（通称、オメガ計画）に基づいて、日本原子力研究所（以下、原研）、核燃料サイクル開発機構（以下、サイクル機構）及び（財）電力中央研究所（以下、電中研）の3機関が主に進めてきた。そこで、今後の研究開発の進め方の検討に資するため、核種分離・消滅処理技術研究開発のこれまでの成果を整理し、実用化に至る過程の中で現在の技術的到達度及び解決すべき課題について検討した。

1. 3機関の核種分離・消滅処理システムの概要と特徴

1.1 処理対象元素

処理対象元素としては、マイナーアクチニドや核分裂生成物があり、次のような観点から選定されている。

- 寿命が長い（半減期が長い）もの、特に、
 - ・ α 線を放出するため放射能毒性が高く、もしも体内に取り込まれると比較的影響が大きいもの
 - ・ 地層処分した際に、地下水を介して地層中を移行しやすいもの
 - 稀少で有用なもの
 - 比較的生命が短く高レベル放射性廃棄物の発熱量の大部分を占める発熱性のもの
- その結果、具体的には、以下のような元素あるいは核種を処理対象としている。

(1) マイナーアクチニド(MA)

主として燃料であるウランやプルトニウムが、中性子を吸収することにより生成する。したがって、ウランやプルトニウムを燃料として用いる場合には、派生的に発生するものである。

いずれの機関も、ネプツニウム(Np)、アメリシウム(Am)、キュリウム(Cm)といったマイナーアクチニド(MA)を第一の分離・消滅の対象としている。これらは、長寿命核種あるいは長寿命核種の親核種であり、 α 線を放出するため放射能毒性が高く、もしも体内に取り込まれると比較的影響が大きいという特徴がある。

(2) 核分裂生成物 (FP)

核分裂生成物は、ウランやプルトニウムが、核分裂を起こした際に生成する物質の総称で、したがって、核分裂を利用する原子炉からは必然的に発生するものである。この中には放射能を持つものもあるが、稀少で有用な元素も含まれる。

① テクネチウム(Tc)・ヨウ素(I)

原研及びサイクル機構は、テクネチウム(Tc)を分離対象とし、再処理で分離されるヨウ素(I)とともに第二の消滅処理の対象としている。これらの同位体のうち、Tc-99及びI-129は長寿命核種であり、地層処分した場合には地下水を介して地層中を移行し

やすいという特徴がある。

②白金族元素・セレン (Se)・テルル (Te)

原研及びサイクル機構は、ルテニウム (Ru)、ロジウム (Rh)、パラジウム (Pd) といった白金族元素を分離の対象としている。サイクル機構は、さらにセレン (Se)・テルル (Te) を分離対象としている。これらは、稀少で有用な元素である。なお、これらの元素の同位体のうち、Pd-107及びSe-79は長寿命核種であり、地層処分した場合には地下水を介して地層中を移行しやすいという特徴がある。

③ストロンチウム (Sr)・セシウム (Cs)

原研は、ストロンチウム (Sr) 及びセシウム (Cs) を分離の対象としている。これらの元素の同位体のうち、Sr-90及びCs-137は、比較的短寿命の核種であり、初期の高レベル放射性廃棄物発熱量の大部分を占める発熱性核種である。なお、Csの同位体のうちCs-135は長寿命核種であり、地層処分した場合には地下水を介して地層中を移行しやすいという特徴がある。

1.2 プロセスの概要と特徴

核種分離・消滅処理システムは、

①従来の核燃料サイクルから発生する高レベル放射性廃液から分離対象元素を分離するための「分離プロセス」

②中性子などの放射線を照射して分離した消滅処理対象元素を核変換するための一連のプロセスから構成される「消滅処理サイクル」

から構成される。また、「消滅処理サイクル」は、さらに、

1) 分離した消滅処理対象元素を核変換するのに適した燃料等の形に加工する「燃料製造プロセス」

2) 燃料等に中性子などの放射線を照射して消滅処理対象元素を核変換する「消滅処理プロセス」

3) 照射済燃料等を処理して再度燃料として加工するものと廃棄物として処分するものを分離する「燃料処理プロセス」

から構成される。

(1) 分離プロセス

原研及びサイクル機構は、硝酸溶液や有機溶媒を溶媒とする湿式法を用いている。湿式法は、常温で連続操作が可能であり、制御、スケールアップ性に優れ、元素の高い分離度が得られる。また、両者は、それぞれの抽出剤に従来のPUREX法^{*1}再処理に用

*1 PUREX法：東海再処理工場や六ヶ所再処理工場で採用されている湿式再処理法。使用済燃料を硝酸に溶解し、有機溶媒と抽出剤（主としてTBP）を用いて、その中に含まれる元素をウラン、プルトニウム、その他（核分裂生成物及びマイナーアクチニド）の3つのグループに分離する。プルトニウム (Pu) を還元 (Reduction) して抽出 (Extraction) することから、この名がついた。

いるTBP^{*1}を混合して溶媒としており、これまで培ってきた工学技術や知見を利用することができ、早期に実用化の見通しを得やすいという特徴がある。しかし、従来法では工程で添加する試薬や溶媒管理法に由来する二次廃棄物の発生が不可避であり、放射線や硝酸による溶媒・試薬の劣化も考慮しなければならない。

電中研は、熔融塩や液体金属を溶媒とする乾式法を用いている。これは、500℃程度の高温で塩化物の融体を用いるという点で従来のPUREX法再処理と大きく異なる。しかし、乾式法は、溶媒・還元剤は耐放射線性等の耐久性に優れリサイクルが可能、不溶解残渣などの固体を含むものにも適用できる、装置をコンパクトにすることができる、といった特徴がある。

(2) 消滅処理サイクル

a) 消滅処理サイクルの基本的考え方

サイクル機構及び電中研は、高速増殖炉による消滅処理を考えており、将来的には従来の軽水炉サイクルから高速増殖炉サイクルへ移行し、高速増殖炉を中心とする一つの核燃料サイクルの中で発電とMA等の消滅を同時に行うことを目指す「発電用高速炉利用型」である。発電用高速炉利用型は、主たる消滅処理対象であるMAの蓄積量を低減することができるという特徴がある。

一方、原研は、加速器駆動未臨界炉あるいは専焼高速炉といったMA燃焼専用システムを消滅処理サイクルの中心に据え、商用発電サイクルと消滅処理サイクルの2つのサイクルがそれぞれに最適化を図り、独立に発展可能な「階層型」である。階層型は、商用発電サイクルの形態に依らず、そこからのMA発生量に見合った規模の消滅処理サイクルを用意することができるという特徴がある。

b) 各プロセスの概要

ア) 燃料形式及び燃料製造プロセス

燃料の代表的な形式としては、現在の軽水炉で用いられている酸化物燃料のほか、窒化物燃料、金属燃料などがある。一般に、燃料にとって重要な熱特性である融点は酸化物>窒化物>金属の順に高く、熱伝導度は金属>窒化物>酸化物の順に高い。

原研は、MAの窒化物燃料を選定している。窒化物燃料は、一つの燃料中にいろいろなMA元素を共存させることができ、MA燃焼専用システムに適した燃料である。窒素については、炭素14(C-14)の生成を避けるため、天然にはあまり存在しない同位体である窒素15(N-15)を使う必要があり、この同位体の濃縮と燃料処理工程における回収が必要になる。

サイクル機構は、MAを従来の混合酸化物(MOX)燃料に混合させたものを燃料形態としている。従来燃料の延長にあり、これまでのFBR研究の知見を生かすことができる。MAの燃料への混合率は、燃料の健全性を維持し炉心への影響を避けるとの観点から、5%程度に制限される。

電中研は、MAを添加したウラン(U)－プルトニウム(Pu)－ジルコニウム(Zr)系合金

*1 TBP：トリブチルリン酸。溶液中の金属を抽出するために使われる有機抽出剤の一種。

PUREX法では、硝酸溶液中からのウランやプルトニウムの抽出に使われる。

の金属燃料を考えている。乾式再処理に適しており、燃料製造プロセスも簡素化が可能である。

イ) 消滅処理プロセス

MAの消滅処理には、一般的にはエネルギーの高い（硬いスペクトルの）高速中性子による核分裂反応の利用が最も効率的であると考えられている。一方、原研及びサイクル機構で行われているTc-99及びI-129の消滅処理は、熱中性子による中性子捕獲反応の利用が考えられている。

原研は、MA燃焼専用システムとして加速器駆動未臨界炉とMA専焼高速炉を開発している。FBRを用いた消滅処理システムに比べてMA添加量を多くでき、燃料の主成分をMAとすることができる。特に、加速器駆動未臨界炉は、従来の原子炉と違い臨界に達していない系を用いるため設計の自由度が高く、多様な組成のMA燃料の燃焼に適した炉型である。実用化には、大強度の陽子加速器が必要である。

サイクル機構は、従来より研究を進めているMOX燃料FBRをベースとしてMAを数%添加したFBR炉心を開発している。Tc及びIについては、炉心外側のブランケット領域に減速材付きのペレットを装荷することにより、熱中性子による捕獲反応の実現を目指している。

電中研は、金属燃料FBRを開発している。本方式は、Pu増殖性、受動的安全性などの高いポテンシャルを持っている。

ロ) 燃料処理プロセス

消滅処理後の燃料の処理は、基本的には分離プロセスと同様である。燃料処理プロセスとして、原研及び電中研では乾式法を、サイクル機構では湿式法を考えている。特に、原研では、窒化物燃料にN-15を使用しているが、乾式法の場合、N-15の回収再利用が比較的容易にできるという特徴がある。

1.3 目標及び設定根拠

濃縮高レベル放射性廃液に含まれていたMAのうち、消滅処理サイクル内で処理するMAの割合について、原研は99.5%、サイクル機構は99.9%、電中研は99%を目標とした。これらの目標値の違いは、各分離法のプロセス性能やプラント設計思想の違いを前提としつつ、

○工学的実現可能性を考慮した値（原研）

※なお、設定した目標値であれば、高レベル放射性廃棄物の毒性指数が、燃料製造に用いた天然ウラン全量の毒性指数を下回るのに要する時間を、再処理後数百年とすることができる

○実験事実に基づいて工学レベルでの達成を見通せる最も高い値（サイクル機構）

○工学的に達成可能と考えられる最低限の目標値（電中研）

という目標値設定思想の違いを反映したものとなっている。

1.4 これまでの成果と現状の分析

(1) 分離プロセス

分離プロセスの研究開発段階は、例えば、原型プラント建設を一つのターゲットと

すると、大きく以下のような段階に分かれると考えられる。

①プロセス構築・成立性実証段階

単純系の溶液や模擬廃液を用いて、個々の操作を行う基礎試験を行い、様々な条件における分離対象元素の挙動に関する基礎データを取得する。これに基づき、分離プロセスの操作条件を設定し、プロセスを構築する。

また、実験室規模の装置によって、MA元素を添加した模擬廃液、実廃液を一連のプロセスにしたがって処理する基礎試験を行い、分離対象元素の挙動に関する基礎データを取得し、所定の分離性能が得られることを実証する。さらに、使用する化学物質などの物質移動に関するデータを取得し、プロセスにおけるマスフローを作成する。

②化学工学的試験段階

工学規模の装置によって、模擬廃液、実廃液を一連のプロセスに従って処理する工学試験を行い、分離性能を得るために管理すべき操作パラメータや具体的な操作方法を設定する。また、安全性の見通しを得ることも必要である。

③原型プラント建設段階

これらの試験段階は、主工程である分離工程だけでなく、溶媒等のリサイクルや発生する二次廃棄物の処理に係る工程も含めた、研究開発段階である。

a) 日本原子力研究所

原研では、濃縮高レベル放射性廃液に含まれる元素を、MA、Tc・白金族、Sr・Cs、その他の4群に分離する「4群群分離プロセス」を開発している。分離に係る工程については、模擬高レベル廃液等を用いた基礎試験を実施し、4群群分離プロセスを構築している。また、燃料サイクル安全工学研究施設（NUCEF）内に設置した実プラントのおよそ1/1000規模の基礎試験装置で模擬廃液や実廃液を用いたプロセス基礎試験を実施し、各元素群を分離できることを確認した。試験装置自体は最適化されたものではないため、MAの回収率は目標を満足できなかったものの、最適化された装置で模擬廃液を用いた試験では、Npの回収率として99.95%以上の実測値が得られた。このように、現在、本分離法については、プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる。

b) 核燃料サイクル開発機構

サイクル機構では、Npを分離するため従来の再処理を高度化した改良PUREX法、濃縮高レベル放射性廃液に含まれるMA元素（Am、Cm、Np）を分離する改良TRUEX[®]法、使用済燃料溶解液からTc・白金族元素等を電解により分離する電解採取法を開発している。改良PUREX法については、実照射済燃料を用いた抽出試験を実施し、フローシートを実証するなど、プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる。改良TRUEX法については、単純系の溶液、実高レベル放射性廃液及び実高レベル濃縮廃液

*3 TRUEX法：ウランとプルトニウムを分離した後の酸性溶液から、主として抽出剤にCMPO（有機抽出剤の一種）を用いて、超ウラン（TRU）元素を抽出（Extraction）する方法。

を用いた基礎試験を行い、主要核種の分配特性を確認した。また、実廃液を用いて小型装置による抽出試験を行い、基本的な抽出条件で α 核種について99.9%以上の回収率を実証した。これに基づき、分離プロセスを構築しており、プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる。電解採取法については、模擬廃液を用いた基礎試験を行い、各元素を分離できることを確認しており、プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる。

c) 電力中央研究所

電力中央研究所では、塩化物熔融塩及び液体金属を溶媒とした熔融塩抽出法を開発している。本法については、熔融塩や液体金属中での元素の挙動に関する基礎データを取得し、これに基づき、プロセスを構築している。また、数十ng規模の超ウラン(TRU)元素及び100g規模の熔融塩を用いた基礎試験を行い、TRU元素を99%以上回収できることを確認するなど、プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる。

(2) 消滅処理サイクル

7) 燃料設計・燃料製造プロセス

燃料設計・燃料製造プロセスの研究開発段階は、例えば、原型プラント建設を一つのターゲットとすると、大きく以下のような段階に分かれると考えられる。

① 燃料仕様・製造方法検討段階

元素単体あるいは化合物を用いて物性データを測定し、燃料設計に必要なデータを整備するとともに、燃料ピンを試作し、この照射試験や物性測定を実施して、燃料仕様を設定する。また、燃料ピンの製造方法を開発する。

② 燃料集合体製造・試験段階

プロトタイプ燃料集合体を試作し、照射試験や物性測定を実施して、燃料集合体仕様を設定する。また、燃料集合体の製造方法を開発する。

③ 原型プラントの建設段階

a) 日本原子力研究所

原研では、MA窒化物燃料を開発している。MA窒化物燃料の設計に必要なアクチノイド窒化物の熱物性データ、Te合金の熱物性データなどの基礎データを取得し、炭素熱還元法によってNp、Pu、Am及びCmの窒化物を調製できること、ゾルゲル法によってUの窒化物の微小球を製造できることを確認し、試作したUとPuの混合窒化物燃料の約5.5%燃焼度までの燃焼試験を行って燃料の健全性が保たれることを確認するなど、燃料仕様・製造方法検討段階にあると考えられる。

b) 核燃料サイクル開発機構

サイクル機構では、従来よりFBR用に開発していたMOX燃料にNpあるいはAmを添加した燃料を開発している。Np添加MOX燃料については、国際共同研究を通して振動充填法の開発を行うなど、燃料仕様・製造方法検討段階にあると考えられる。Am添加MOX燃料については、「常陽」で照射試験を行うとともに、大洗工学センターの照射燃料試験施設内に、Am添加MOX燃料のペレット製造設備、ピン加工検査設備等の遠隔燃料製造設備を設置、性能試験を実施するなど、燃料仕様・製造方法検討段階にあると考えられる。

c) 電力中央研究所

電中研では、MAを含有させたU-Pu-Zr系合金の金属燃料を開発している。本金属燃料については、燃料ピンを試作して物性値などの基礎データを取得し、MA濃度5%程度であれば燃料物性に影響を与えず、製造に当たりMAを均質に添加できる見通しが得られるなど、燃料仕様・製造方法検討段階にあると考えられる。

1) 消滅処理プロセス

消滅処理プロセスの研究開発段階は、例えば、原型プラント建設を一つのターゲットとすると、大きく以下のような段階に分かれると考えられる。

①設計・要素技術開発段階

炉心設計に必要な核データを測定し、解析コードを作成、システム概念を設計するとともに、システム概念の実現に必要な要素技術を開発する。

②実験炉による消滅実証試験段階

実験炉によって、システムとしての性能を実証する。

③原型プラントの建設段階

a) 日本原子力研究所

加速器駆動未臨界炉(ADS)及び専焼高速炉(ABR)の開発を進めている。MA核種の核データについては、国際協力によりデータを取得し、データベースを整備するとともに、高速炉臨界実験装置(FCA)における臨界実験や英国の原型高速炉(PFR)における照射済燃料分析を実施し、核データ等を検証した。また、ADSの設計に必要な各種計算コードを作成した。さらに、高エネルギー物理学研究所及び原研高崎研究所において、高エネルギー陽子ビームによる核破砕反応の実験を実施し、中性子の挙動に関するデータを取得するとともに、作成した計算コードの検証を行った。これらに基づき、消滅処理プロセスの概念検討を実施し、所定のMA消滅性能を有するプロセスを構築している。ADSについては、陽子加速器のインジェクター部及び超伝導リニアックの超伝導空洞を試作し、性能試験において世界でもトップレベルの性能を確認している。このように、原研については、設計・要素技術開発段階にあると考えられる。

設計に際しては、熱出力が現行軽水炉の1/4規模の消滅処理専用システム1基で、1年間に軽水炉10基分(250kg)以上のMAを処理することを目標としている。

b) 核燃料サイクル開発機構

MOX燃料高速増殖炉(FBR)の開発を進めている。MA核種の核データについては、原子炉、加速器等を用いて取得・評価を行った。また、MOX燃料FBRは、すでに原型炉「もんじゅ」があり、原型プラント建設が達成されているものの、MAが燃料に含まれることによって要素技術に開発項目が生じると考えられる。したがって、サイクル機構については、設計・要素技術開発段階にあると考えられる。

設計研究では、炉心燃料集合体全てにMAを一様に添加する場合、MA添加量が5%程度であれば、炉心特性に大きな影響を与えず、1年間に約11%の消滅率が達成できることを明らかにした。また、炉心特性の観点から、燃料中への希土類元素の混入は、含有率5~10%が上限であった。これによって、約6基の100万kW級軽水炉で生成され

るMAを、1基の100万kW級FBRで消滅することが可能と考えられる。Tc-99については、炉心外側のブランケット領域に、減速材付きペレット入りの集合体を装荷することにより、最大でFBR1基で軽水炉約1.5基分を消滅できる見通しが得られた。I-129については、最大でFBR1基で軽水炉約3.6基分を消滅できる見通しが得られた。

c) 電力中央研究所

金属燃料高速増殖炉(FBR)の開発を進めている。MA核種の核データについては、MA消滅解析コードを開発し、解析を行うなど、設計・要素技術開発段階にあると考えられる。

また、解析によると、MA添加濃度を5%に設定すると商用軽水炉5-6基から発生するMAを高速炉1基で消滅処理することが可能と考えられる。また、金属燃料は酸化物燃料より消滅率が30%大きいことを明らかにした。

ウ) 燃料処理プロセス

燃料処理プロセスは、基本的には分離プロセスと同様に、大きく以下のような段階に分かれると考えられる。

①プロセス構築・成立性実証段階

②化学工学的試験段階

③原型プラント建設段階

a) 日本原子力研究所

燃料処理プロセスとして、乾式再処理と同様の高温化学処理を開発している。U、Np及びPuの窒化物の熔融塩電解試験(1g規模)を行い、Np及びPu金属を回収できることを確認した。また、窒化物燃料には窒素同位体としては希少なN-15を使うため、燃料処理プロセスにおける回収とそのリサイクルが重要である。TRU元素の模擬元素としてDyを用いて、窒化物が熔融塩中に溶解したときの窒素(N₂)の放出挙動を調べ、N₂としてほぼ100%放出されることを確認した。このように、本処理法については、現在プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる。

b) 核燃料サイクル開発機構

分離プロセスと同じ方法を考えているので、プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる。

c) 電力中央研究所

分離プロセスと同様の、熔融塩電解、熔融塩抽出法を考えている。再処理の主工程にあたる電解精製技術については、国際共同研究を通してプロセスの成立性を確認しており、工学規模の試験段階にあると考えられる。酸化物の還元技術や塩廃棄物処理技術については、プロセス構築・成立性実証段階にある。

2. 今後の見通し及び課題

2.1 技術的課題

(1) 分離プロセス

3機関の共通課題としては、実廃液を用いたプロセス実証試験の実施がある。

原研及びサイクル機構で開発している湿式分離法の共通課題としては、MAと希土類元素の分離法の開発、二次廃棄物発生量の低減に向けた技術開発がある。

電中研で開発している乾式分離法については、塩化物溶融塩を取り扱うため、材料開発や移送技術の検討などが課題となっている。

a) 日本原子力研究所

実用化に向け、プラント成立性確認のために、群分離後の各元素群の精製及び処理に関する技術、抽出溶媒・試薬の再使用技術開発が必要である。また、当面の課題として、実プラントの1/1000規模での濃縮高レベル放射性廃液を用いた基礎試験によるプロセス成立性実証の最終確認、より効率的で廃液処理の容易なMAと希土類元素分離法の開発を重点的に進めることとしている。

b) 核燃料サイクル開発機構

実用化に向け、より効率のよいMAと希土類元素分離法の開発、遠心抽出器への適合等が課題である。当面の課題として、プロセス設計のためのシミュレーション技術の開発、MAと希土類元素分離に向けた現在の分離法の最適化及び新抽出剤の開発、実廃液を用いた遠心抽出器による抽出試験、有機二次廃棄物の分解・無機化技術の開発がある。

電解採取法については、電解採取条件の最適化、メカニズムの解明、実廃液を用いた試験の実施、工学装置の検討等が課題である。

c) 電力中央研究所

実用化に向け、TRUや実高レベル放射性廃液を用いて、分離プロセス全体を通したプロセス実証試験が必要である。これについては、平成14年度までにEU超ウラン元素研究所との共同研究などで、実施する予定となっている。工学規模の試験については、他機関との協力体制が必要である。当面の課題としては、塩化物や活性金属に対する高耐食性材料の開発、溶融塩などの高温融体の移送技術の検討、二次廃棄物発生量の評価などがある。

(2) 消滅処理サイクル

3機関の共通課題としては、燃料の照射試験に基づく挙動評価やデータ取得、燃料製造技術の開発がある。

原研で開発している加速器駆動未臨界炉(ADS)については、従来の原子炉と駆動方法が異なるため、大電流加速器の開発、システム制御方法開発、炉心設計、構造・材料設計などが課題となっている。

a) 日本原子力研究所

実用化に向け、燃料製造プロセスについては、MA窒化物燃料の照射データの蓄積、N-15の経済的濃縮法の開発等が必要である。当面の課題として、MA窒化物燃料の試作及び照射試験を進めることとしている。ADSによる消滅処理プロセスについては、

システムの安全性の実証、大電流加速器の開発が必要である。当面の課題として、炉心設計の最適化やシステム制御方法の開発、ビーム窓の開発、構造・材料の設計、核データやモデルの整備・検証を進めることとしている。燃料処理プロセスについては、電解精製試験、回収したMAの再窒化試験を進めることとしている。

b) 核燃料サイクル開発機構

MA及びFP核種の核データ及び物性データの充実・精度向上、MA燃料の照射挙動評価、MA燃料製造施設による製造技術開発等が課題である。

c) 電力中央研究所

炉心の設計技術及び過渡解析技術の開発が必要であり、実用化に向けた研究に当たっては、他機関との協力体制が必要である。当面の課題として、照射試験等に基づく燃料挙動解析のためのデータ整備が重要である。また、射出成型法による燃料製造技術の開発を進めることとしている。

3. その他の要素技術

サイクル機構では、前述のMOX燃料FBRサイクルによる消滅処理の他に、いくつかの核種分離・消滅処理に係る要素技術を開発してきた。ここでは、それらの技術について、概要、特徴及び課題等について整理した。

3.1 電子線加速器を用いた消滅処理プロセス

3.1.1 処理対象元素

①短寿命FP

Sr-90及びCs-137は、比較的短寿命の核種であり、初期の高レベル放射性廃棄物発熱量の大部分を占める発熱性核種である。

②長寿命FP

Cs-135、Tc-99、I-129、Zr-93、Pd-107、Sn-126、Se-79は、長寿命核種であり、地層処分した場合には地下水を介して地層中を移行しやすいという特徴がある。

③C-14

放射化生成物であるC-14は半減期が比較的長く（5,730年）、処理処分時における被曝管理上重要な核種である。

3.1.2 プロセスの特徴と概要

電子加速器からの電子線を利用して γ 線を発生させ、その照射で起こる (γ, n) 反応により、それぞれの核種を短寿命核種あるいは非放射性核種に変換する。 γ 線としては、エネルギーの高い電子線にレーザーのような光を照射したときに発生するエネルギーの高い γ 線（逆コンプトン散乱）を利用し、この原理に基づきシステムを検討している。

(γ, n) 反応では、中性子では変換しにくいFPの核変換が期待でき、中性子照射に比べて構造材等の放射化が起こりにくく、加速器としては比較的基盤整備が進んでいる電子加速器を使うことができる。その一方、 (γ, n) 反応が起こりにくいことから多量のエネルギーの投入が必要であり、したがって、大電流の加速器が必要、技術的に難しい同位体分離が必要といった課題がある。

3.1.3 目標及び設定根拠

電子加速器の性能としては、工学規模で100MeV-1A級のものが必要と考えられたため、当初の目標として、10MeV-20mA級の加速器の要素技術開発を目標とした。

3.1.4 これまでの成果と現状の分析

核変換に必要なエネルギーは核反応断面積に大きく依存するため、この詳細な測定に必要な測定器を開発し、O-18及びC-13の (γ, n) 反応の断面積を測定することができた。しかし、処理対象核種の断面積は測定されていない。

加速器については、主要要素の試作評価に基づき、大電流電子加速器を設計、製作し、基本性能を確認している。現在までに、6MeV-0.2mAを達成した。

本システムについては、設計・要素技術開発段階にあると考えられる。

3.1.5 今後の見通し及び課題

現在のシステムでは、対象核種の核変換に非常に多くのエネルギーが必要であり、本法による核変換に意義を見出すことは難しい。しかし、 (γ, n) 反応の断面積が詳

細に測定され、仮に断面積が大きくなるエネルギー領域が存在した場合には、必要とするエネルギーを低減することが可能になり、本法による核変換が有効となることもありうる。

したがって、当面は、処理対象核種の (γ, n) 反応断面積の詳細な測定が必要であり、その結果を踏まえて、本法の今後の展開を検討することが適当と考えられる。

3.2 超高温分離処理

3.2.1 処理対象元素

①セシウム (Cs)

Cs-137は、比較的短寿命の核種であり、Sr-90とともに、初期の高レベル放射性廃棄物発熱量の大部分を占める発熱性核種の一つである。分離したCsは、放射線源として利用する。なお、Sr-90は、分離対象元素にはなっていない。

②白金族元素

ルテニウム (Ru)、ロジウム (Rh)、パラジウム (Pd) といった白金族元素を分離の対象としている。これらは、稀少で有用な元素である。なお、これらの元素の同位体のうち、Pd-107は長寿命核種であり、地層処分した場合には地下水を介して地層中を移行しやすいという特徴がある。

3.2.2 プロセスの特徴と概要

高レベル放射性廃液を加熱し、成分を酸化物にするとともに、Csを気化させて分離する。残留物に窒化チタンを添加し、白金族元素を還元する。この全体を溶融すると、還元された白金族元素は合金の塊となって下層に、他の元素の酸化物は上層に分離する。

この方法では、添加物は窒化チタン (FPの40%相当量が必要) のみで、溶媒を使用しないことから、新規な二次廃棄物を発生させず、装置も比較的小規模で済む。また、残った高レベル放射性廃棄物は、ガラスのようなマトリックスを含んでおらず、最小の体積にすることができる。

一方、溶融・分離は1600℃という高温が必要であり、そのための装置としてはコールドクルーシブルの利用が考えられるが、利用実績が少ない。

3.2.3 目標及び設定根拠

Csについては、除去率90%を目標とする。これにより、Cs-137に起因する高レベル放射性廃棄物の発熱量の40%を除去することができる。

白金族元素についても除去率90%を目標とする。これ以上除去率を向上させても技術的・経済的なメリットは向上しないと考えている。

3.2.4 これまでの成果と現状の分析

模擬高レベル放射性廃液を用いてCsの気化試験を行い、廃液の仮焼体を1000℃で加熱することにより、1時間で目標である90%以上のCsが気化することを確認したが、Csの捕集率は確認されていない。また、kg規模で、白金族元素の還元・分離試験を行い、目標である90%以上の白金族元素を分離・回収できることを確認した。

このように、主反応については、模擬廃液を用いて分離対象元素の挙動を確認し、所定の分離性能が得られることを確認しており、プロセス構築・成立性実証段階にあ

ると考えられる。

3.2.5 今後の見通し及び課題

技術的課題としては、Csの捕集、工学的に可能な熔融炉の開発、分離したCs及び白金族元素を有効利用するための精製方法の検討等がある。

本法は、高レベル放射性廃棄物の管理における経済性向上を狙ったものであり、最終的な廃棄体を地層処分した場合の安全性について、廃棄体からの核種の浸出挙動等の評価が十分なされていない。したがって、分離したCs及び白金族元素の利用可能性も含めて本法の経済的効果とともに、廃棄体の地層処分時の安全性についてより詳細に評価し、その結果を踏まえた上で本法の今後の展開を検討することが適当と考えられる。

3.3 不溶解残渣からの有用金属回収技術

3.3.1 処理対象元素

①白金族元素

ルテニウム(Ru)、ロジウム(Rh)、パラジウム(Pd)といった白金族元素を分離の対象としている。これらは、稀少で有用な元素である。なお、これらの元素の同位体のうち、Pd-107は長寿命核種であり、地層処分した場合には地下水を介して地層中を移行しやすいという特徴がある。

②テクネチウム(Tc)

Tc-99は長寿命核種であり、地層処分した場合には地下水を介して地層中を移行しやすいという特徴がある。

3.3.2 プロセスの特徴と概要

乾式分離法（鉛抽出法・灰吹法・オゾン酸化処理法）と湿式分離法（溶媒抽出法・沈殿法）を組み合わせ、不溶解残渣から白金族元素を単離回収する。さらに、放射性同位体を分離するため、レーザー同位体分離を行う。

鉛抽出法は単純な方法で、セル内での操作も容易である。しかし、単離精製には湿式法が必要であり、ここでの二次廃棄物の発生を考慮する必要がある。

3.3.3 目標及び設定根拠

不溶解残渣から、白金族元素を合理的なコストで単離回収できるプロセスを構築することを目標とした。

3.3.4 これまでの成果と現状の分析

抽出媒金属及び不溶解残渣回収法の比較検討を行い、方式を選定した。実不溶解残渣を用いた鉛抽出基礎試験を行い、Ru、Rh、Pdの鉛相への回収及びTcがRuと同様の挙動を示すことを明らかにするとともに、灰吹法のコールド及びホット試験を行い、その有効性を明らかにした。また、貴金属塊からの各元素の分離のうち、Ruについては、オゾン酸化処理法により99%が回収できることを確認したが、Pd及びRhの分離については溶媒抽出法で用いる抽出溶媒の分離性能評価を行っている。このように、分離法については、プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる。

一方、レーザー同位体分離法については、天然のパラジウムを対象として同位体分離試験を行い、Pd-105を22%から73%に濃縮できることを確認した。本法についても、

プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる。

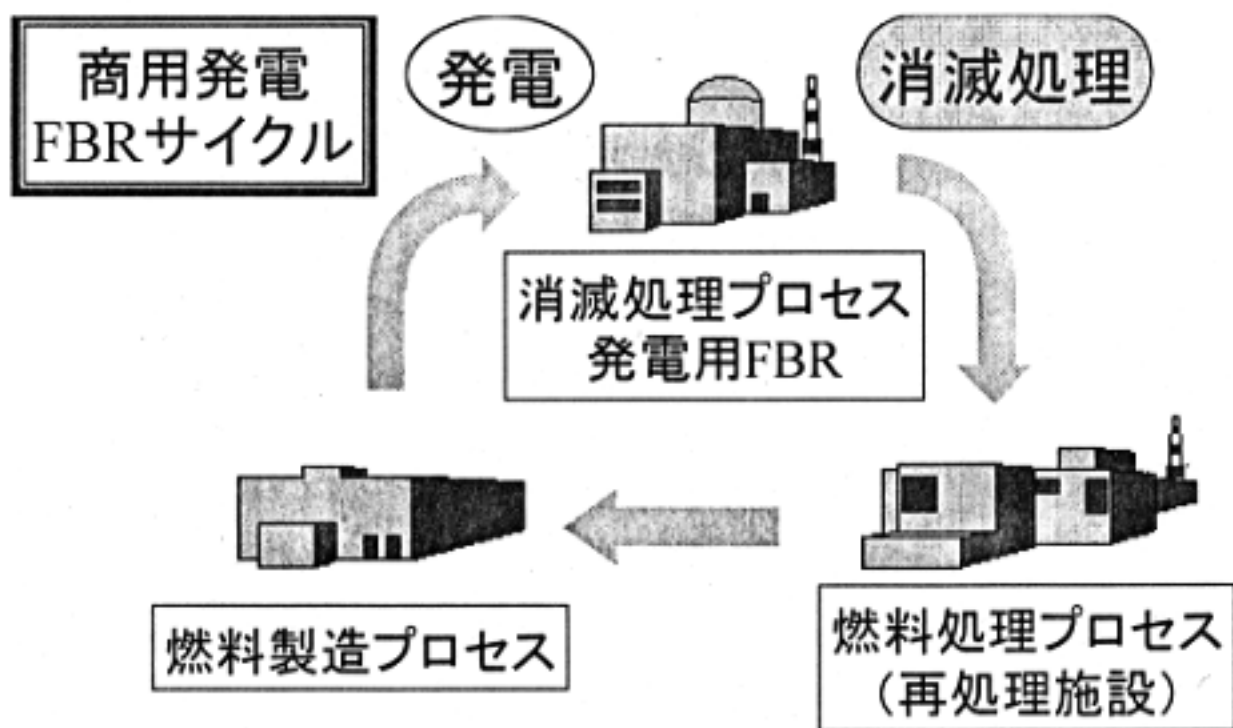
3.3.5 今後の見通し及び課題

技術的課題としては、スケールアップ、同位体分離技術のさらなる技術開発と、実用化に向けた有効利用技術の開発がある。

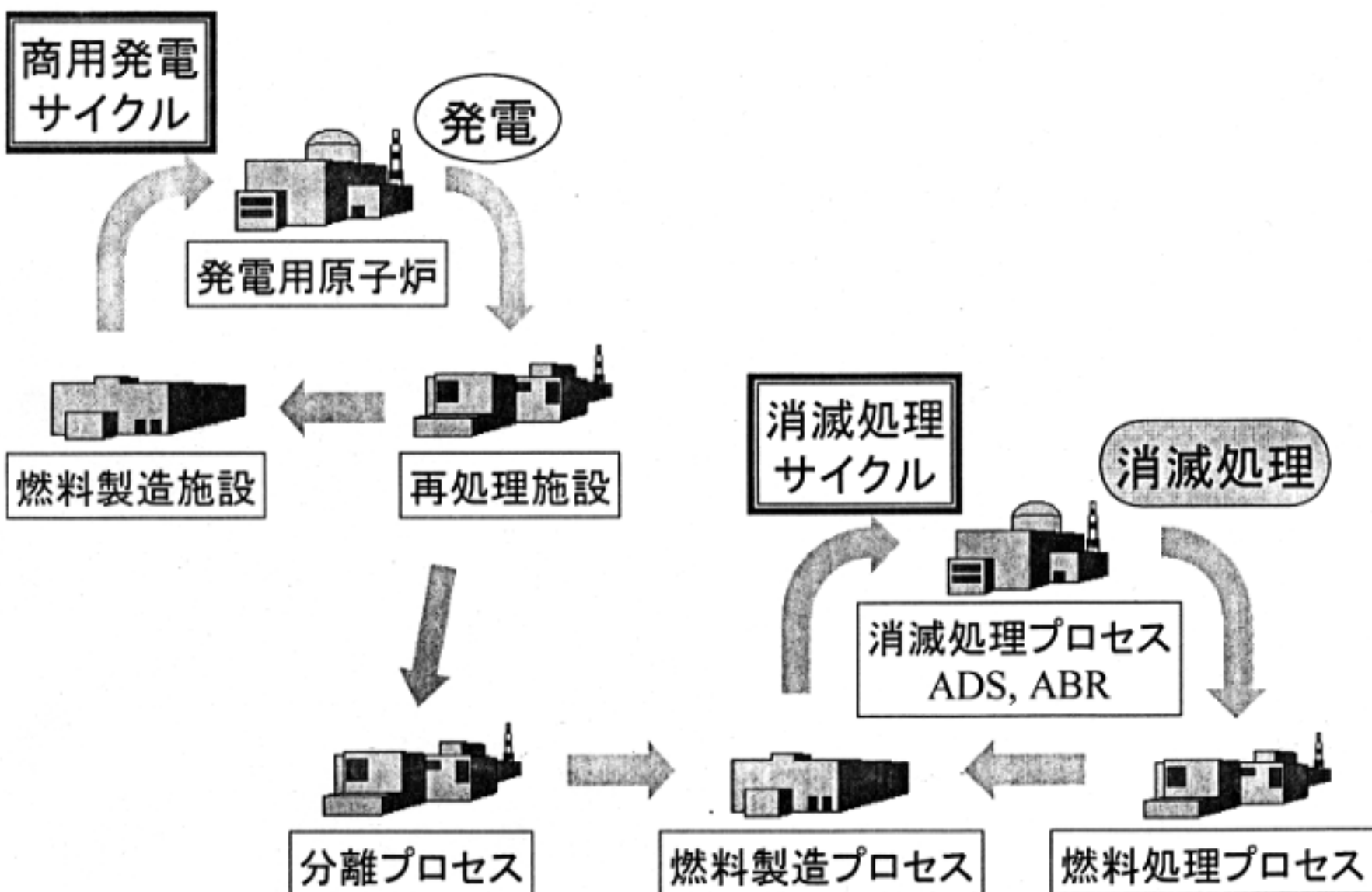
本法は、有用金属の回収による再処理の経済性向上を狙ったものであり、不溶解残渣の回収が比較的容易であることから、再処理や高レベル放射性廃棄物処理処分にはあまり影響を及ぼさないと考えられる。すなわち、本技術の研究開発の意義は、回収された有用金属の利用により得られる利益と、回収に要するコストの比較によって決まると言えるため、この点を詳細に評価する必要がある。

表1 三機関で進められている核種分離・消滅処理技術

	原研	サイクル機構	電中研
1.1 処理対象元素 分離対象元素	MA (Np, Am, Cm) Tc 白金族 (Ru, Rh, Pd) Sr, Cs	MA (Np, Am, Cm), Pu Tc 白金族 (Ru, Rh, Pd) Se, Te	MA (Np, Am, Cm), Pu
消滅処理対象元素	MA (Np, Am, Cm) Tc, I	MA (Np, Am, Cm), Pu Tc, I	MA (Np, Am, Cm), Pu
1.2 プロセスの概要 (1) 分離プロセス	湿式法 「4 群群分離法」 溶媒抽出 (DIDPA) 脱硝沈殿 無機イオン交換体 カラム吸着	湿式法 「改良PUREX法・改 良TRUEX法」 溶媒抽出 (TBP・CMPO) 電解採取 —	乾式法 溶融塩抽出 (KCl-LiCl, Bi, Cd) — —
(2) 消滅処理サイクル a) 消滅処理サイクル の基本的考え方	階層型 商用発電サイクル に消滅処理専用サイ クルを付置する	発電用高速炉利用型 高速増殖炉を中心とする一つの核燃料サ イクルの中で発電と消滅処理を同時に行う	
b) 各プロセスの概要 1) 燃料形式	MA窒化物燃料	MA-U-Pu混合酸化 物燃料	MA-U-Pu混合金属 燃料
燃料製造プロセス	群分離回収塩のゾ ル・ゲル法窒化物 製造 燃料処理プロセス からの回収金属の 液体金属中窒化	焼結法	射出成型法
4) 消滅処理プロセス	加速器駆動未臨界 炉、専焼高速炉	高速増殖炉	高速増殖炉
冷却材	Pb-Bi, Pb, Na, He	Na	
5) 燃料処理プロセス	乾式法 (溶融塩電解)	湿式法	乾式法 (溶融塩電解、溶 融塩抽出)

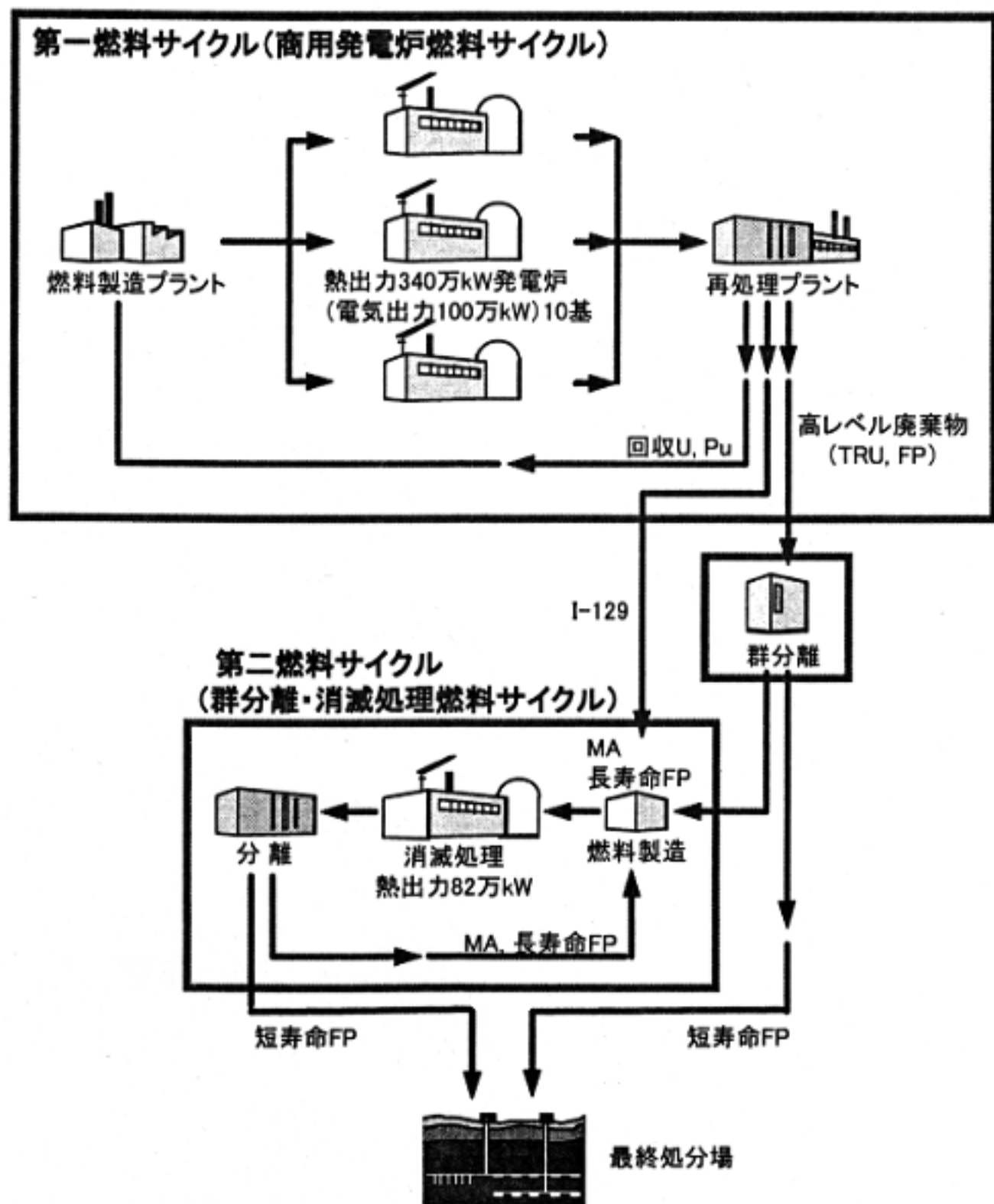


発電用高速炉利用型



階層型

図1 消滅処理サイクルの基本的考え方



- ・発電炉燃料サイクルに群分離・消滅処理サイクルを付設
- ・発電炉燃料サイクルの再処理廃液からMAや長寿命核種を回収
- ・消滅処理専用システム(加速器駆動未臨界炉や専焼炉)を用いた消滅処理
- ・原研が提案

フランス(スーパーフェニックス放棄決定後)がこの方式へ

図2 核種分離・消滅処理技術を組み込んだ核燃料サイクル(日本原子力研究所)

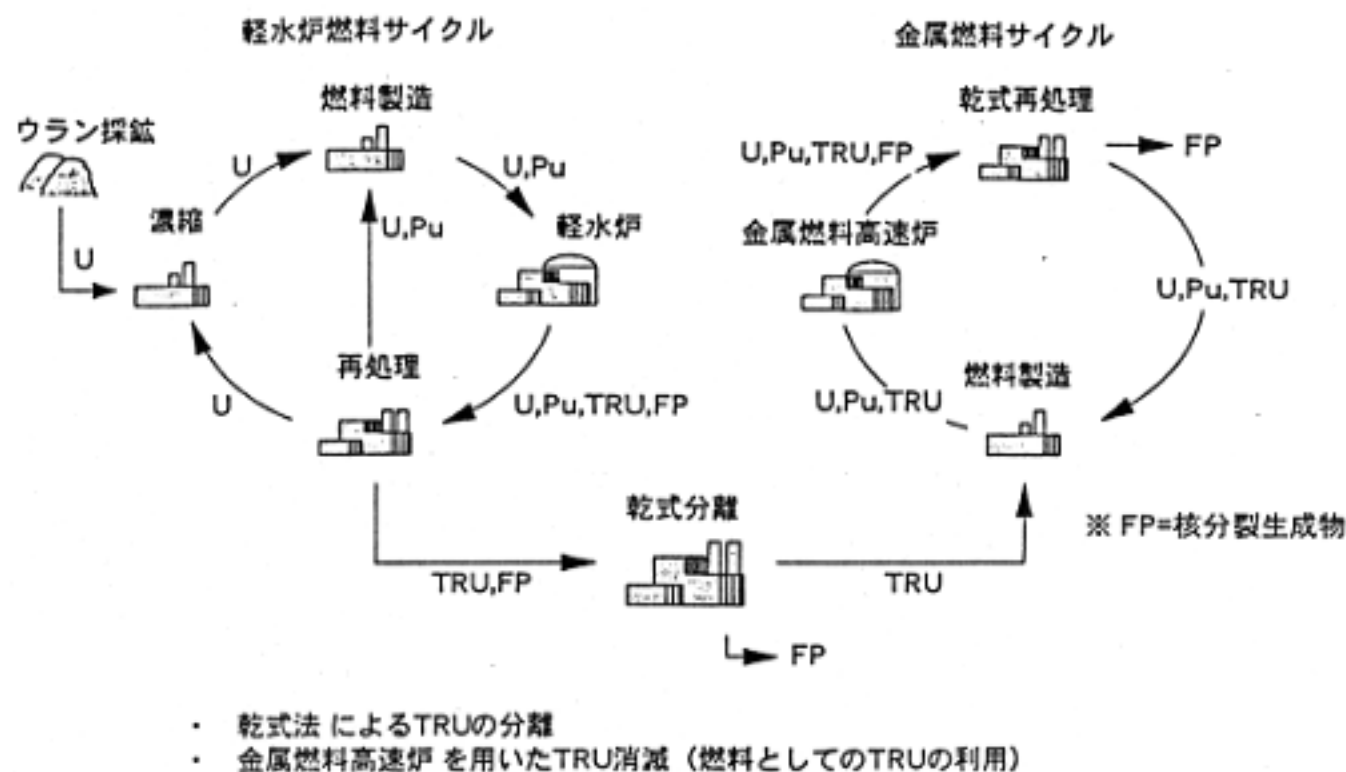


図4 核種分離・消滅処理技術を組み込んだ核燃料サイクル（電力中央研究所）

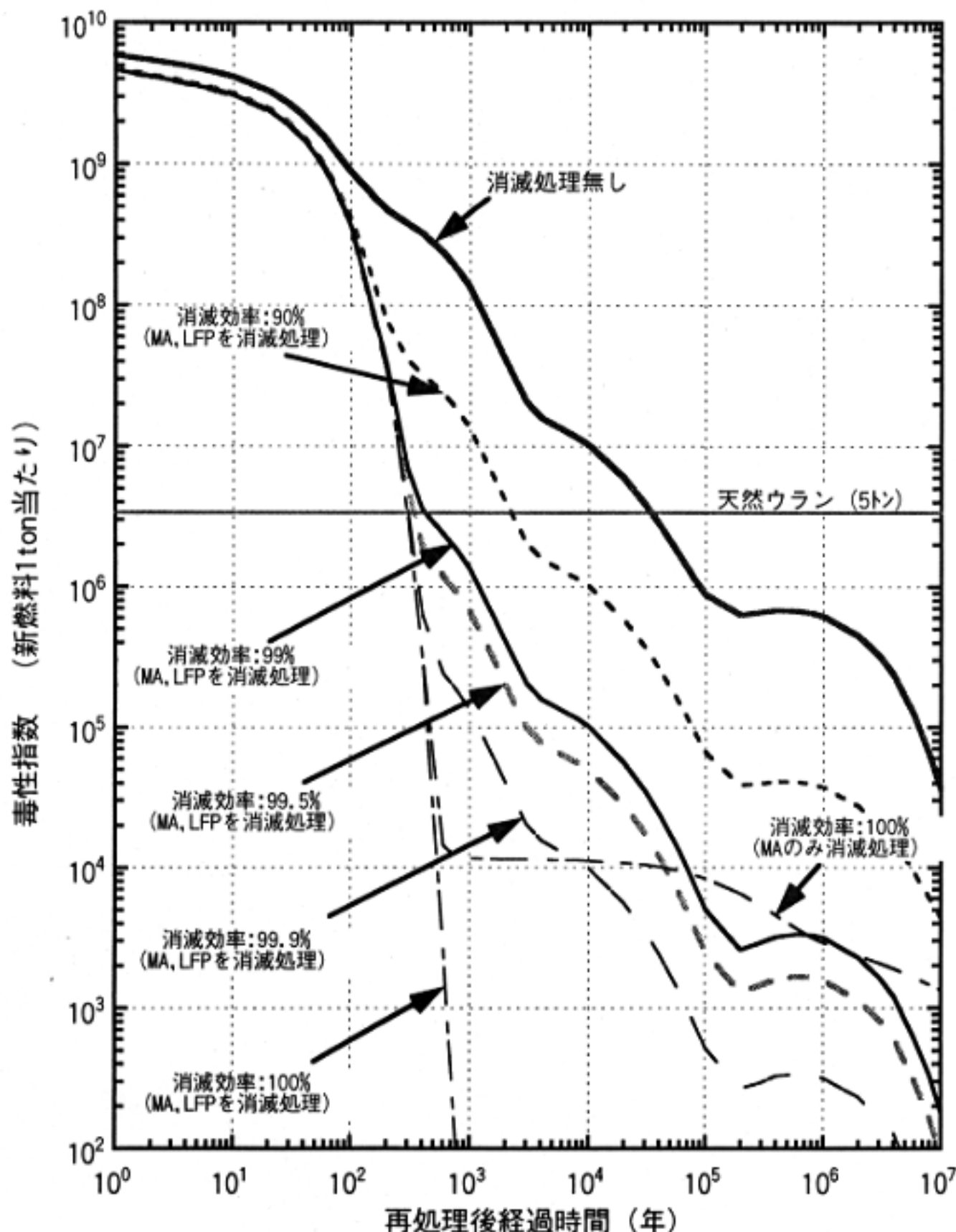


図5 消滅処理による高レベル廃棄物の毒性の減少
(LFP:半減期が30年以上の核分裂生成物)

使用済燃料: 燃焼度33GWD/MT、3年冷却
再処理効率: 99.9%U, Pu回収

表2 三機関で進められている核種分離・消滅処理技術の現状

	原研	サイクル機構	電中研
1.3 目標 消滅処理サイクル内 で処理するMA	99.5%	99.9%	99%
1.4 これまでの成果と 現状の分析 (1)分離プロセス	プロセス構築・成立 性実証段階	プロセス構築・成立 性実証段階	プロセス構築・成立 性実証段階
得られた回収率 MA分離	Np回収率： 99.95%以上	α 核種回収率： 99.9%以上	TRU元素回収率： 99%以上
(2)消滅処理サイクル			
ア)燃料設計・燃料製 造プロセス	燃料仕様・製造方法 検討段階	燃料仕様・製造方法 検討段階	燃料仕様・製造方法 検討段階
イ)消滅処理プロセス	設計・要素技術開発 段階	設計・要素技術開発 段階	設計・要素技術開発 段階
消滅処理効率 消滅処理できる 核種の量 ↓ 想定した消滅処 理システム	100万kW級軽水炉 10基で生成するMA ↓ 現行軽水炉の1/4規 模の消滅処理システ ム1基で消滅可能	100万kW級軽水炉 6基で生成するMA 1.5基で生成するTc-99 3.6基で生成するI-129 ↓ 100万kW級FBR1基で 消滅可能	100万kW級軽水炉 5-6基で生成するMA ↓ 100万kW級FBR1基で 消滅可能
ウ)燃料処理プロセス	プロセス構築・成立 性実証段階	プロセス構築・成立 性実証段階	プロセス構築・成立 性実証段階

群分離プロセスの開発段階

消滅処理システム・燃料サイクル技術の開発段階

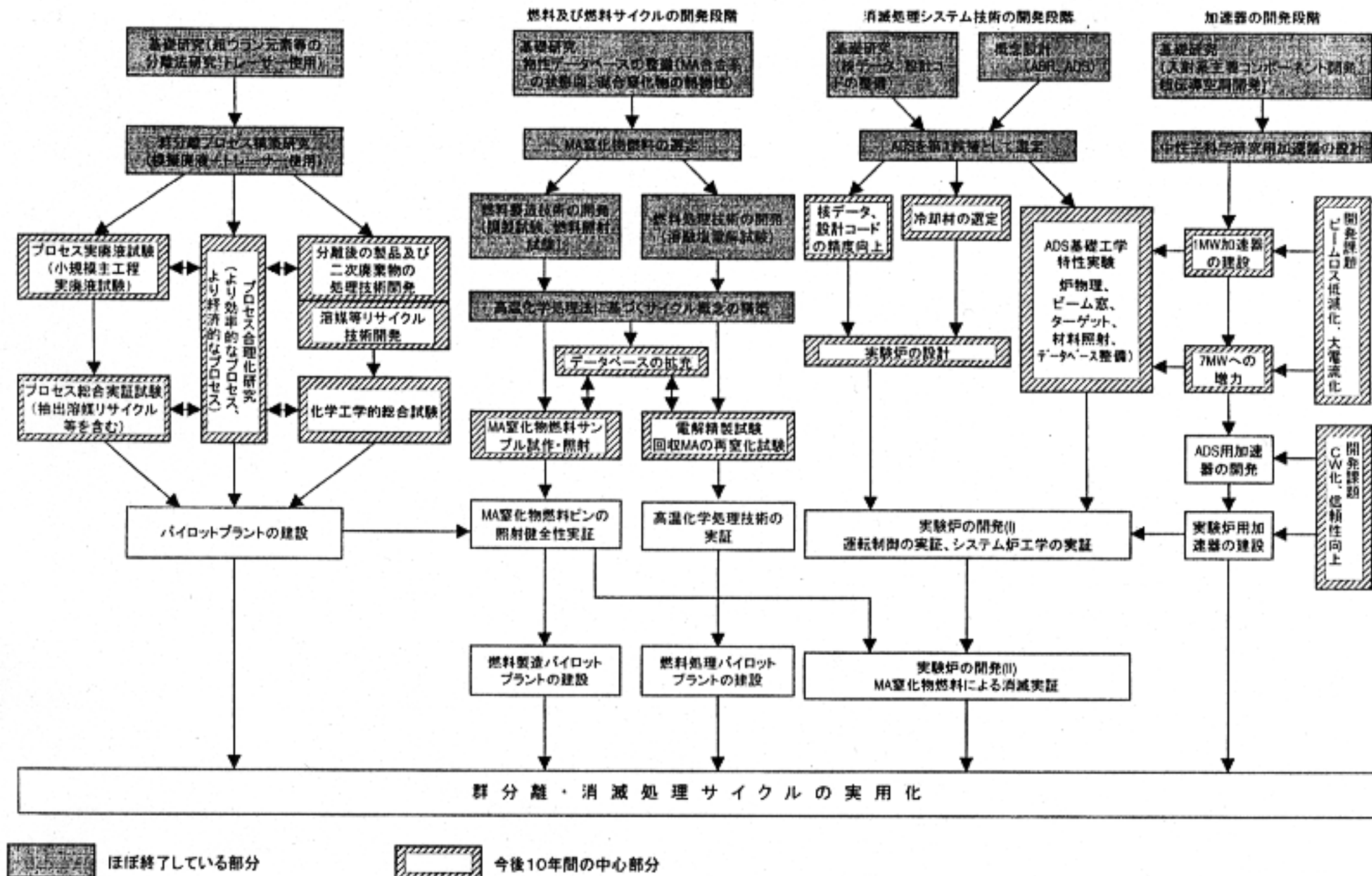
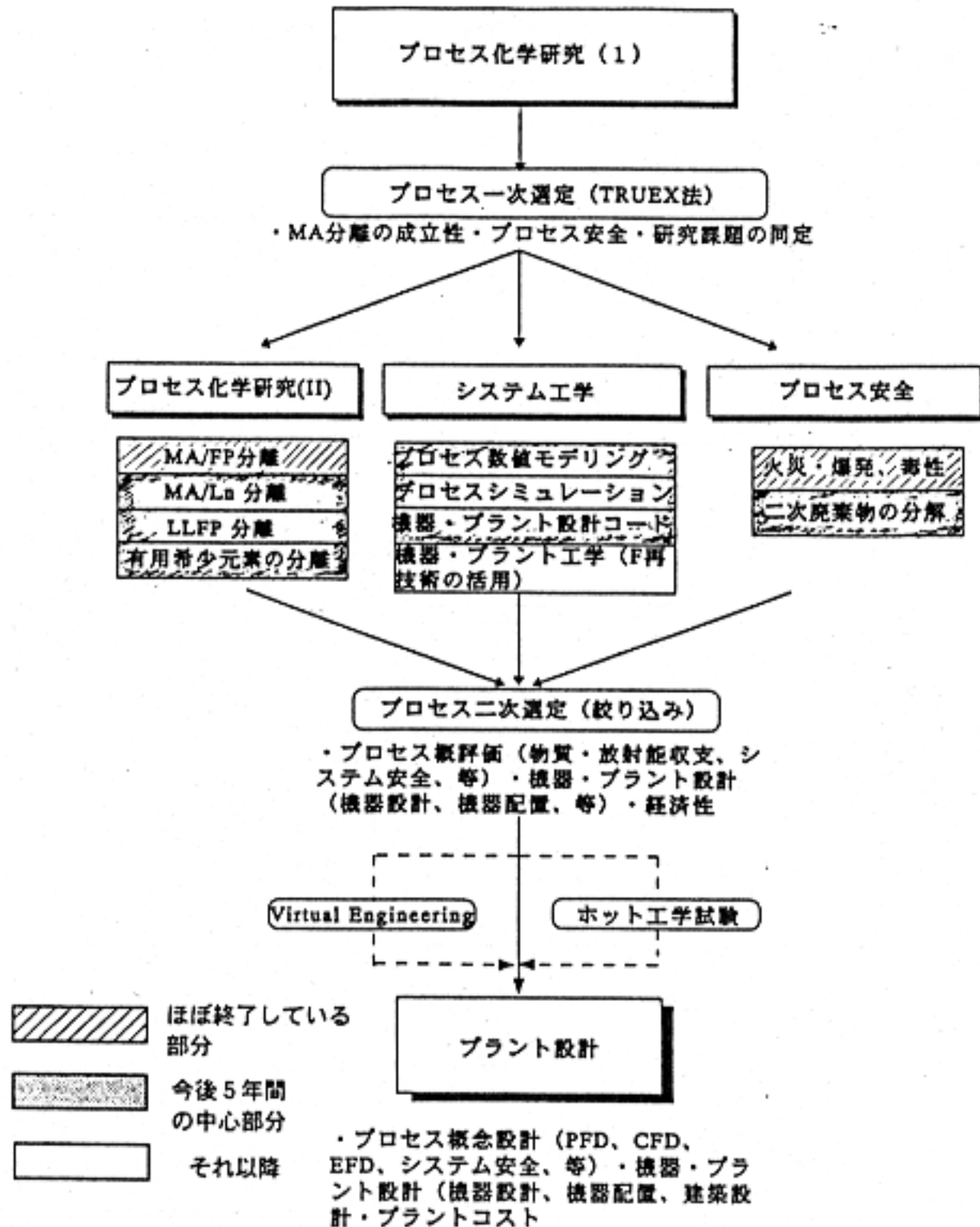
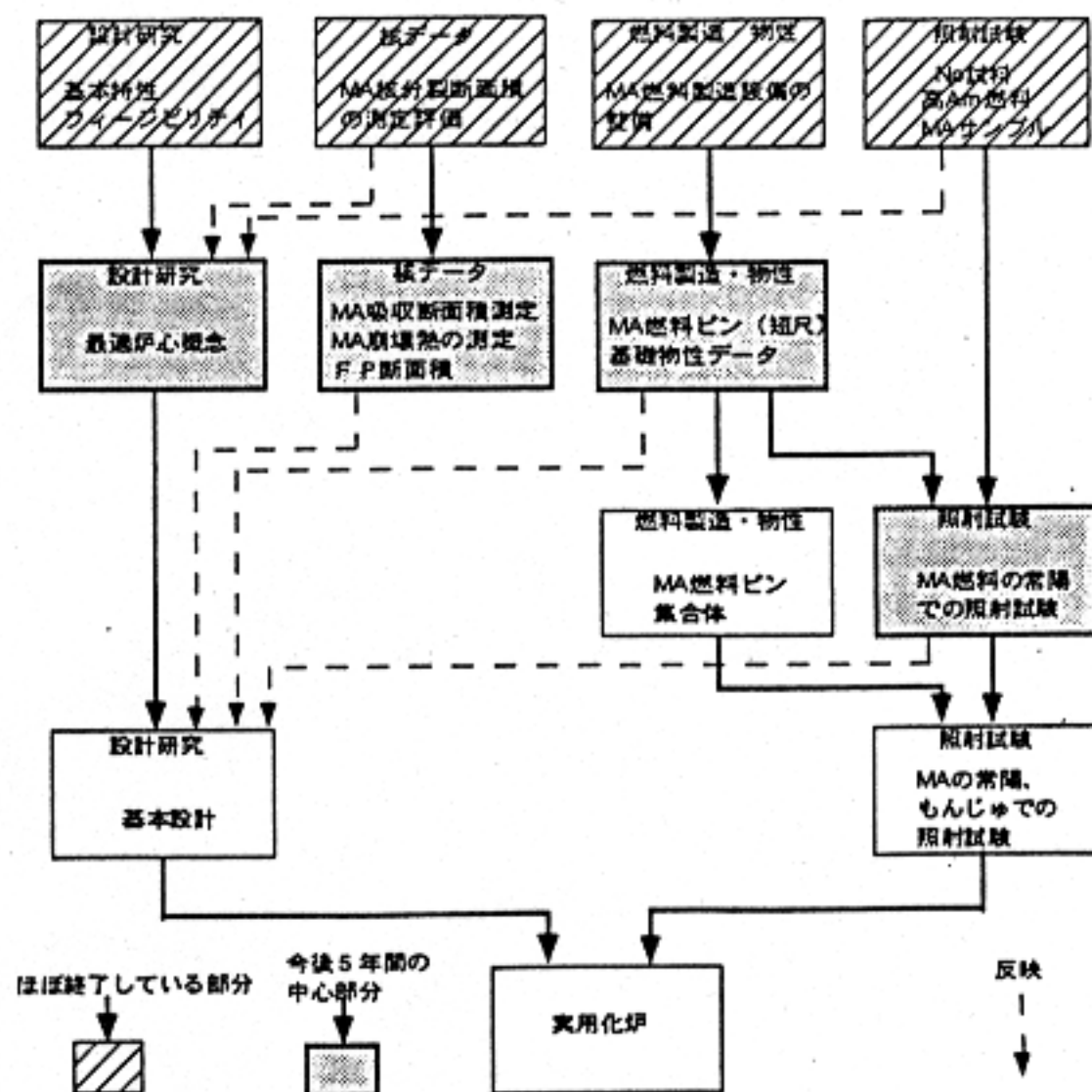


図6 核種分離・消滅処理サイクル実現へのロードマップ(日本原子力研究所)



(分離プロセス)



(消滅処理サイクル)

図7 核種分離・消滅処理サイクル実現へのロードマップ (核燃料サイクル開発機構)



終了

今後5年間程度
で実施予定実用化を前提として
他機関と共同で実施

分離技術

消滅処理

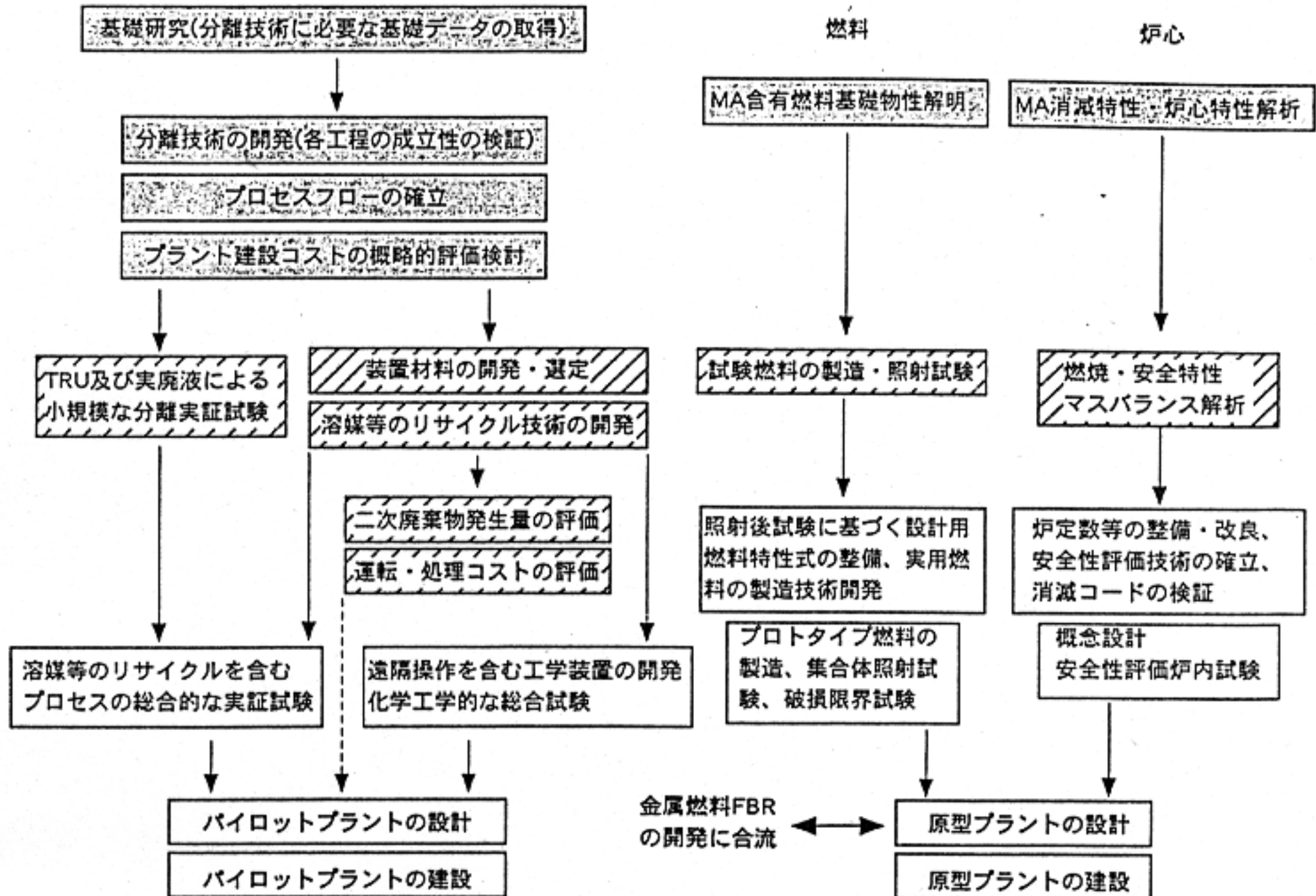


図8 核種分離・消滅処理サイクル実現へのロードマップ(電力中央研究所)