

平成26年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

マイナーアクチニド分離変換技術の有効性向上

のための柔軟な廃棄物管理法の研究開発

成果報告書

平成27年3月

国立大学法人 九州大学

本報告書は、文部科学省のエネルギー対策特別会計委託事業による委託業務として、国立大学法人 九州大学が実施した平成25-26年度「マイナーアクチニド分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の研究開発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	viii
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2. 1-1
2.1 全体計画	2. 1-1
3. 業務の実施内容及び成果	3. 1-1
3.1 柔軟な廃棄物管理システム開発	3. 1-1
3.1.1 廃棄物管理システム概念設計	3. 1-1
3.1.2 廃棄物顆粒体製造技術選定	3. 1-15
3.2 長期廃棄物顆粒体貯蔵の成立性評価	3. 2-1
3.2.1 材料化学的安定性評価	3. 2-1
3.2.2 貯蔵時事故安全性評価	3. 2-32
3.2.3 廃棄物顆粒体の熱伝導率解析モデルの設定（再委託先：福島高専）	3. 2-41
3.3 環境負荷低減効果の評価（再委託先：日立 GE）	3. 3-1
3.3.1 潜在的有害度評価	3. 3-1
3.3.2 処分場占有面積評価	3. 3-31
4. 研究推進結言	4-1
5. 結言	5-1

表一覧

表 2.1-1	2年間の全体計画	2.1-1
表 3.2-1	動燃再処理工場から発生する廃液組成 (ORIGEN コード使用)	3.2-7
表 3.2-2	使用済燃料 1 トンの再処理で発生する高レベル廃液の元素組成	3.2-8
表 3.2-3	二成分酸化物から決定されたポテンシャルパラメータ	3.2-15
表 3.2-4	$U^{2.4}-O^{-1.2}$ ポテンシャルパラメータ	3.2-15
表 3.2-5	模擬廃液の組成 (モル比)	3.2-23
表 3.2-6	模擬廃液の最終的な組成 (モル濃度および試薬重量)	3.2-24
表 3.2-7	模擬廃液 (Na 無) の組成 (モル比)	3.2-25
表 3.2-8	解析ケースの一覧	3.2-34
表 3.2-9	貯蔵設備の構造寸法仕様	3.2-34
表 3.2-10	使用した物性値	3.2-35
表 3.2-11	ガラス固化体貯蔵設備の解析評価条件	3.2-35
表 3.2-12	ガラス固化体貯蔵設備の解析評価結果	3.2-36
表 3.2-13	顆粒体貯蔵設備の解析評価条件 (通常時及び収納管曲り事象時)	3.2-36
表 3.2-14	顆粒体貯蔵設備の解析評価条件 (高充填率化事象時)	3.2-36
表 3.2-15	顆粒体貯蔵設備の解析評価結果	3.2-37
表 3.3-1	LWR 使用済燃料 1 トン当りの核種別重量 (g)	3.3-12
表 3.3-2	潜在的有害度のパラメータ評価ケース	3.3-23
表 3.3-3	処分坑道寸法仕様	3.3-33
表 3.3-4	廃棄体、人工バリア、岩盤の熱特性データ	3.3-34
表 3.3-5	基準解析条件及び結果のまとめ	3.3-42
表 3.3-6	廃棄物管理法の処分場面積削減効果評価ケース	3.3-49
表 3.3-7	処分場面積感度解析のパラメータ変動範囲	3.3-54

図一覧

図 1-1 柔軟な廃棄物管理法の概念図.....	1-2
図 3.1-1 高レベル廃棄物をめぐる課題とニーズ.....	3.1-3
図 3.1-2 現行廃棄物管理法の課題.....	3.1-3
図 3.1-3 柔軟な廃棄物管理法の考え方.....	3.1-4
図 3.1-4 柔軟な廃棄物管理システム概念.....	3.1-4
図 3.1-5 将来燃料サイクルにおける廃棄物管理.....	3.1-5
図 3.1-6 将来燃料サイクルにおける柔軟な廃棄物管理法の意義.....	3.1-5
図 3.1-7 PUREX 再処理設備における柔軟な廃棄物管理システム例.....	3.1-8
図 3.1-8 廃棄物顆粒体冷却貯蔵概念図.....	3.1-8
図 3.1-9 再処理前冷却期間に対する顆粒体最高温度.....	3.1-9
図 3.1-10 ガラス固化体発熱量の時間変化.....	3.1-9
図 3.1-11 廃棄物顆粒体貯蔵設備基本仕様.....	3.1-10
図 3.1-12 廃棄物顆粒体貯蔵設備内部の温度変化.....	3.1-10
図 3.1-13 廃棄物顆粒体貯蔵形態例.....	3.1-13
図 3.1-14 廃棄物顆粒体の熔融固化プロセス案.....	3.1-13
図 3.1-15 廃棄物顆粒体の熔融固化時の粒子沈降速度.....	3.1-14
図 3.1-16 廃棄物貯蔵形態の処理プロセスと特徴.....	3.1-14
図 3.1-17 ラアークガラス固化施設におけるAVM法によるガラス固化プロセスの概要.....	3.1-19
図 3.1-18 ラアークガラス固化プラントのロータリーキルンの概略.....	3.1-19
図 3.1-19 ラアークガラス固化プラントのロータリーキルン回転筒内の温度分布.....	3.1-20
図 3.1-20 MH法による混合転換の工程.....	3.1-20
図 3.1-21 MH法の反応ステップ.....	3.1-21
図 3.2-1 AmおよびCm硝酸塩の熱分解反応曲線 (1: Am, 2: Cm).....	3.2-9
図 3.2-2 Rb硝酸塩の熱分解反応曲線.....	3.2-9
図 3.2-3 Cs、Sr、Ce、ZrO ₂ 硝酸塩およびRu酸化物の熱分解反応曲線.....	3.2-9
図 3.2-4 Ba硝酸塩の熱分解反応曲線.....	3.2-10
図 3.2-5 EuおよびGd硝酸塩の熱分解反応曲線.....	3.2-10
図 3.2-6 Ag硝酸塩の熱分解反応曲線.....	3.2-10
図 3.2-7 Cd硝酸塩の熱分解反応曲線.....	3.2-11
図 3.2-8 Ni硝酸塩の熱分解反応曲線.....	3.2-11
図 3.2-9 硝酸塩から酸化物への相変化温度.....	3.2-11
図 3.2-10 UO ₂ 熱膨張のMDと実験値との比較.....	3.2-16
図 3.2-11 UO ₂ 圧縮率のMDと実験値との比較.....	3.2-16
図 3.2-12 UO ₂ -ZrO ₂ 熱伝導率.....	3.2-17
図 3.2-13 ZrO ₂ -Nd ₂ O ₃ 熱伝導率.....	3.2-17
図 3.2-14 Fe ₂ O ₃ およびNa ₂ Oの熱伝導率.....	3.2-18
図 3.2-15 NaNO ₃ 熱伝導率.....	3.2-18

図 3.2-16 顆粒体の有効熱伝導率 (a) 硝酸ナトリウム、(b) 低熱伝導率酸化物と空気	3.2-19
図 3.2-17 模擬廃液作製のフローチャート	3.2-26
図 3.2-18 模擬廃液の脱水・脱硝のフローチャート	3.2-26
図 3.2-19 模擬廃液の脱水・脱硝の昇温プログラム	3.2-27
図 3.2-20 模擬廃液の脱水・脱硝により得られた析出固相	3.2-27
図 3.2-21 仮焼体 (Na 有、脱硝 600°C) の XRD 分析結果	3.2-28
図 3.2-22 仮焼体 (Na 有、脱硝 600°C) の DTA/TG 分析結果	3.2-28
図 3.2-23 仮焼体 (Na 有、脱硝 600°C) の SEM/EDX 分析結果	3.2-29
図 3.2-24 仮焼体 (Na 有/無、脱硝 600-800°C) の外観	3.2-29
図 3.2-25 仮焼体 (Na 有、脱硝 600°C, 700°C, 800°C) の XRD 分析結果	3.2-30
図 3.2-26 仮焼体 (Na 無、脱硝 600°C) の XRD 分析結果	3.2-30
図 3.2-27 仮焼体 (Na 無、脱硝 600°C, 700°C, 800°C) の XRD 分析結果	3.2-31
図 3.2-28 仮焼体 (Na 無、脱硝 600°C) の SEM/EDX 分析結果	3.2-31
図 3.2-29 形状モデルの概要	3.2-38
図 3.2-30 ガラス固化体貯蔵設備の解析モデル	3.2-38
図 3.2-31 顆粒体貯蔵設備の解析モデル	3.2-39
図 3.2-32a 顆粒体の熱伝導率	3.2-40
図 3.2-32b 空気粘性率の温度依存性 (1 気圧)	3.2-40
図 3.2-32c 空気定圧比熱の温度依存性 (1 気圧)	3.2-40
図 3.2-32d 空気熱伝導率の温度依存性 (1 気圧)	3.2-41
図 3.2-33 ガラス固化体貯蔵設備の解析結果	3.2-41
図 3.2-34 顆粒体貯蔵設備の解析結果 (1/2)	3.2-42
図 3.2-35 顆粒体貯蔵設備の解析結果 (2/2)	3.2-43
図 3.2-36 CPC 熱伝導率解析モデルの検証(1)	3.2-47
図 3.2-37 CPC 熱伝導率解析モデルの検証(2)	3.2-47
図 3.2-38 CPC 熱伝導率解析モデルの検証(3)	3.2-47
図 3.2-39 模擬顆粒体系熱伝導率試験結果	3.2-48
図 3.2-40 フッ化物模擬 FP 顆粒体系熱伝導率試験結果	3.2-48
図 3.2-41 NaNO_3 の熱伝導率データ	3.2-49
図 3.2-42 FP 及び NaNO_3 熱伝導率の関係	3.2-49
図 3.2-43 顆粒体粒径分布と実効粒径の説明	3.2-50
図 3.2-44 顆粒体径と熱伝導率の関係	3.2-50
図 3.3-1 分離変換技術の開発段階評価	3.3-5
図 3.3-2 分離変換技術の成熟度評価	3.3-5
図 3.3-3 BWR 及び PWR の高燃焼度燃料導入時期	3.3-6
図 3.3-4 軽水炉使用済燃料の再処理実績及び予定	3.3-6
図 3.3-5 廃棄物顆粒化開始時期と顆粒化割合	3.3-7
図 3.3-6 柔軟な廃棄物管理法の有効性評価条件	3.3-7
図 3.3-7 LWR 使用済燃料アクチニド核種重量	3.3-12

図 3.3-8	LWR 使用済燃料核分裂生成核種重量	3.3-13
図 3.3-9	LWR 使用済燃料直接処分の潜在的有害度	3.3-13
図 3.3-10	LWR 使用済燃料の潜在的有害度の内訳	3.3-14
図 3.3-11	核分裂生成核種の潜在的有害度	3.3-14
図 3.3-12	アクチニド核種の潜在的有害度	3.3-15
図 3.3-13	ガラス固化体潜在的有害度	3.3-15
図 3.3-14	Pu-241 及び Am-241 重量の再処理前冷却期間依存性	3.3-16
図 3.3-15	MA 潜在的有害度の再処理前冷却期間依存性	3.3-16
図 3.3-16	MA 核種別の潜在的有害度 (CT4 年)	3.3-17
図 3.3-17	MA 核種別の潜在的有害度 (CT30 年)	3.3-17
図 3.3-18	MA 分離による潜在的有害度 (CT30 年)	3.3-18
図 3.3-19	潜在的有害度の MA 分離回収率依存性 (CT30 年)	3.3-18
図 3.3-20	廃棄物管理法の潜在的有害度比較	3.3-22
図 3.3-21	潜在的有害度比較 (処分後 1,000 年時点)	3.3-22
図 3.3-22	代表ケースの潜在的有害度	3.3-23
図 3.3-23	BWR 使用済燃料廃棄物の潜在的有害度	3.3-24
図 3.3-24	アクチニド核種重量の炉型依存性	3.3-24
図 3.3-25	核分裂生成核種重量の炉型依存性	3.3-25
図 3.3-26	燃焼度 33Gwd/t の場合の潜在的有害度	3.3-25
図 3.3-27	アクチニド核種重量の燃焼度依存性	3.3-26
図 3.3-28	核分裂生成核種重量の燃焼度依存性	3.3-26
図 3.3-29	潜在的有害度の再処理前冷却期間依存性	3.3-27
図 3.3-30	アクチニド核種重量の再処理前冷却期間依存性	3.3-27
図 3.3-31	核分裂生成核種重量の再処理前冷却期間依存性	3.3-28
図 3.3-32	潜在的有害度の再処理前冷却期間依存性	3.3-28
図 3.3-33	Am 処分量の再処理前冷却期間依存性	3.3-29
図 3.3-34	MA 分離変換技術開発期間 10 年前倒し実用化	3.3-29
図 3.3-35	柔軟な廃棄物管理法の導入前倒し時の潜在的有害度	3.3-30
図 3.3-36	柔軟な廃棄物管理法の導入遅延時の潜在的有害度	3.3-30
図 3.3-37	処分場熱伝導解析体系 (横置き方式の場合)	3.3-33
図 3.3-38	ガラス固化体発熱量内訳 (PWR, CT4 年)	3.3-35
図 3.3-39	処分場熱温度解析発熱量入力値 (PWR, CT4 年)	3.3-35
図 3.3-40	処分場熱温度解析入力値 (PWR, CT30 年)	3.3-36
図 3.3-41	核分裂生成核種の発熱量寄与 (PWR, 45Gwd/t, CT30 年)	3.3-36
図 3.3-42	処分場熱温度ベンチマーク解析結果	3.3-37
図 3.3-43	発熱量入力値ベンチマーク解析結果	3.3-37
図 3.3-44	地層処分場熱伝導温度解析体系図 (横置き)	3.3-41
図 3.3-45	廃棄体定置詳細寸歩仕様 (横置き方式)	3.3-41
図 3.3-46	処分体の横置き配置法	3.3-42

図 3.3-47	地層処分時の処分体温度変化（横置）	3.3-43
図 3.3-48	緩衝材内温度分布の時間変化（横置）	3.3-43
図 3.3-49	ガラス固化体占有面積に対する緩衝材最高温度（横置）	3.3-44
図 3.3-50	MA 分離の有無による緩衝材最高温度の違い	3.3-44
図 3.3-51	廃棄物管理法と処分場面積評価	3.3-45
図 3.3-52	発熱量低下の処分場面積削減反映方法	3.3-45
図 3.3-53	FP/MA 含有率と緩衝材最高温度の関係	3.3-46
図 3.3-54	廃棄物管理法による処分場面積の比較（横置）	3.3-46
図 3.3-55	処分場内熱温度解析体系（縦置方式）	3.3-47
図 3.3-56	廃棄体定置詳細寸歩仕様（縦置方式）	3.3-47
図 3.3-57	処分体の縦置き配置法	3.3-48
図 3.3-58	地層処分時の処分体温度変化（縦置）	3.3-48
図 3.3-59	緩衝材内温度分布の時間変化（縦置）	3.3-49
図 3.3-60	ガラス固化体占有面積に対する緩衝材最高温度（縦置）	3.3-50
図 3.3-61	廃棄物管理法による処分場面積の比較（縦置）	3.3-50
図 3.3-62	高含有ガラス固化体の効果（縦置）	3.3-51
図 3.3-63	炉型の違いによるガラス固化体発熱量の影響	3.3-54
図 3.3-64	燃焼度の違いによるガラス固化体発熱量の影響	3.3-55
図 3.3-65	再処理前冷却期間の処分場面積低減効果	3.3-55
図 3.3-66	MA 分離変換技術開発期間の処分場面積低減効果	3.3-56
図 3.3-67	柔軟な廃棄物管理法開発期間の処分場面積低減効果	3.3-56

略語一覧

MA : マイナーアクチニド (Minor Actinide)
FP : 核分裂生成物 (Fission Product)
CPC : 複合粒子回路 (Compound Particle Circuit)
FBR : 高速増殖炉 (Fast Breeder Reactor)
FR : 高速炉 (Fast Reactor)
LWR : 軽水炉 (Light Water Reactor)
PWR : 加圧水型原子炉 (Pressurized Water Reactor)
BWR : 沸騰水方軽水炉 (Boiling Water Reactor)
ADS : 加速器駆動システム (Accelerator-driven System)
MOX : 混合酸化物 (Mixed Oxide)
Pu : プルトニウム (Plutonium)
Am : アメリシウム (Americium)
U : ウラン (Uranium)
SF : 使用済燃料 (Spent Fuel)
ICRP : 国際放射線防護委員会 (International Commission on Radiological Protection)
TRU : 超ウラン元素 (Trans Uranium)
CT : 再処理前冷却期間 (Cooling Time before reprocessing)
TRL : 技術成熟度 (Technology Readiness Levels)

概略

国の「エネルギー基本計画」によれば、放射性廃棄物の環境負荷低減は重要な課題であり、廃棄物減容・有害度低減のために、高速炉や加速器を用いた核種変換などによるマイナーアクチニド（以下 MA と記する）等の長期残留放射エネルギーの低減や放射性廃棄物の処理・処分の安全性を高める技術開発を推進するとしている。MA 分離変換技術については国内外各機関で鋭意研究開発されており、我国は“もんじゅ”を廃棄物減容・有害度低減等の向上のための国際的な研究拠点と位置付けている。

一方、MA 分離変換技術の実用化には今後、相当期間の研究開発が必要であり、当面、MA は高レベル廃棄物としてガラス固化され、冷却後に地層処分される。ガラス固化体は廃棄物閉じ込めに優れるが、他方、一度固化されると再生困難のためその後に開発される MA 分離変換技術の適用は困難であり、分離変換技術を有効に活用するための柔軟性に欠ける。従って、今後開発される MA 分離変換技術を最大限に活用し、一層の環境負荷低減を実現するためには開発技術のバックフィットを可能とする柔軟性のある廃棄物管理法が必要である。

本研究開発はこのような状況を背景に、新たに、高レベル廃棄物を安定かつ再生可能な形態（顆粒体）で冷却貯蔵することにより、処分直前において MA 分離変換技術のバックフィット適用を可能とし、核分裂生成核種（以下 FP と記する）のみをガラス固化して地層処分する「柔軟な廃棄物管理法」を提案し、そのフィージビリティ・スタデーを行うものである。

具体的には、柔軟な廃棄物管理システムの開発のため、廃棄物管理システムのプロトタイプ設計を行い、廃棄物顆粒体製造技術を選定する。選定した廃棄物顆粒体製造技術の原理試験により模擬廃液から顆粒体を試作して基礎特性試験を実施し、顆粒体の長期貯蔵時の材料化学的安定性や安全性を評価して柔軟な廃棄物管理法の成立見通しを明らかにする。更に、廃棄物管理法の潜在的有害度や処分場面積を解析評価して柔軟な廃棄物管理法の環境負荷低減に対する有効性を定量的に明らかにする。

本研究開発事業は上記課題、目的に対し以下の成果が得られた。

(1) 柔軟な廃棄物管理システム開発

① 廃棄物管理システム概念設計

技術開発要素が少なく、早期導入を可能とすることを条件に、高レベル放射性廃液を顆粒化処理し、廃棄物顆粒体を金属製キャニスターに充填して貯蔵するシステム概念を構築した。廃棄物顆粒体の貯蔵設備は再処理施設に付随する自然循環空気冷却方式のガラス固化体貯蔵設備を共用し、熱伝導率の低い顆粒体の最高温度を抑えるため通風管に細径キャニスターを7本配置する設計とした。なお、顆粒体の高密度化による貯蔵設備の減容が今後の課題である。

② 廃棄物顆粒体製造技術選定

高レベル放射性廃液の乾燥・脱硝・顆粒化には、フランスのガラス固化プロセスで用いられるロータリーキルンによる仮焼プロセスを選定した。処理温度として200℃（乾燥）～600℃（脱硝）が想定されるが、揮発性核種の飛散や貯蔵後の廃液再生化の容易性から脱硝温度の低減を目指した開発試験が必要である。また、顆粒体は熱伝導率の観点から均一性が保たれる範囲でできるだけ大粒径が望ましく、ロータリーキルン内の粉碎棒の仕様・条件が重要である。

(2) 長期廃棄物顆粒体貯蔵の成立性評価

①材料化学的安定性評価

模擬高レベル廃液を作製し、顆粒体化までの脱水・脱硝過程を確認する基礎試験を実施した。脱水温度は 200℃、脱硝温度は 600℃とした。SEM 観察の結果、粒内に分離相を確認した。また XRD 分析により、主要元素の内、Zr, Ce, Fe は酸化物であるのに対し Na, Cs, Nd は硝酸塩の状態であることが確認された。模擬廃棄物顆粒体の TG/DTA 熱分析の結果、加熱温度 275℃近辺に吸熱ピークを示すことが観測され、NaNO₃ の相転移または熔融に伴うものと判断された。本結果を踏まえ、廃棄物顆粒体の長期貯蔵時の材料化学的安定性確保のため、廃棄物顆粒体の貯蔵時最高温度は異常事故時を含め 275℃以下とするものとした。

②貯蔵時事故安全性評価

廃棄物顆粒体キャニスター7本配置の貯蔵設備について、3次元熱流動詳細温度過渡解析を実施した結果、通常時の顆粒体最高温度として185℃を得た。次に、顆粒体貯蔵時の異常事故事象として、収納管の曲がりや高充填率化による温度上昇を解析した結果、最高温度は約 221℃と評価された。これらにより、廃棄物顆粒体貯蔵時の最高温度はNaNO₃の相転移温度および熔融温度（275-305℃）を十分下回り、安全性は確保されることが確認された。

③廃棄物顆粒体熱伝導率の設定

廃棄物顆粒体の熱伝導率解析モデルとして既存の熱伝導率解析モデルの調査・検討から複合粒子回路（CPC）モデルを選定し、模擬リサイクル原料（U, Pu, FP, MA）及び模擬FPフッ化物の熱伝導率試験結果を±20%の精度で再現できることを確認した。

(3)環境負荷低減効果の評価

①潜在的有害度評価

廃棄物管理法の違いによる潜在的有害度を解析・評価し、次のことが明らかになった。

- ・ MA 分離しないガラス固化体の潜在的有害度は直接処分に近いものになる。これは再処理前の冷却期間が 30 年を経ている使用済燃料では半減期 14.4 年の Pu-241 の 70%以上が Am-241（半減期 432 年）に壊変し蓄積しているためである。
- ・ MA 分離したガラス固化体の潜在的有害度は分離しない場合に比較して、炉取出し後 100 年で 1/10、1000 年で 1/100 に低減する。この結果、ガラス固化体の潜在的有害度が天然ウラン鉱床レベルまで低下するのに要する期間が炉取出し後数百年程度となり、大幅に短縮される。
- ・ 廃棄物管理法の導入時期により、MA 分離変換技術を適用できる範囲が異なってくる。この結果、柔軟な廃棄物管理法を再処理開始後 10 年までに導入すれば、約 80%の廃棄物の潜在的有害度が処分後 1000 年で 1/100 程度になり、環境負荷低減に大きく貢献できる。

②処分場占有面積評価

廃棄物管理法の違いによる処分場占有面積を評価し、次のことが明らかになった。

- ・ 高レベル廃棄物の発熱量は主に半減期の長い MA（Am-241）と半減期が約 30 年の FP（Cs-137 や Sr-90）の寄与であるが、再処理前冷却期間が 30 年程度の場合は Am-241 の寄与が大きく、地層処分後も FP の寄与より大きい。このため、高レベル廃棄物から MA を分離できればガラス固化体の発熱量は 1/2 以下に低減し、地層処分場の占有面積を大きく削減できる。
- ・ 柔軟な廃棄物管理法を再処理開始後 10 年で導入すれば約 80%のガラス固化体について MA 分離が可能となり処分場占有面積を大幅低減でき、残り 20%の MA 非分離ガラス固化体の処分場占有面積と合わせても処分場面積全体を約 43%に削減することができる。

以上の「柔軟な廃棄物管理法」のフィージビリティ・スタデーにより、高レベル廃棄物を顆粒化・貯蔵し、MA分離変換技術をバックフィットすることができれば、MA分離変換技術の有効性を格段に高め、大幅な廃棄物減容・有害度低減が可能であることを始めて明らかにした。また、廃棄物の顆粒化・貯蔵について、模擬廃液による基礎試験及び詳細熱伝導温度解析評価の結果、十分成立の見通しのあることを始めて明らかにした。

なお、柔軟な廃棄物管理法の実用化には、次のような課題のあることが分かった。

- 1) ロータリーキルンによる脱水⇒脱硝⇒粉碎を一環して行う顆粒体製造プロセスの開発試験
- 2) 模擬廃液を用いてロータリーキルンにより製造した顆粒体の熱伝導率等物性データ測定
- 3) 福島事故を踏まえ、廃棄物顆粒体貯蔵時の水没事象等重大事故等の安全性評価
- 4) 廃棄物顆粒体の高密度化等による貯蔵設備の減容
- 5) 将来再処理に向け NaNO_3 を含まない模擬廃棄物顆粒体の基礎物性試験データの拡充

柔軟な廃棄物管理法は“もんじゅ”等による廃棄物減容・有害度低減の技術開発成果を最大限に活用し、国の「エネルギー基本計画」の達成に大きく貢献することができると考えられるものであり、今後の廃棄物管理技術の有力な選択肢となる。柔軟な廃棄物管理法は導入時期が早ければ早いほど環境負荷低減効果が大きいため、今後、早期実用化に向けた確証試験等のプロジェクト開発に取り組むことが重要である。

1. はじめに

我が国においては軽水炉発電によりこれまでに発生した多数の使用済燃料が冷却保管されており、今後再処理される予定であるが、放射性廃棄物の処分場確保が順調に進んでいない状況にあって、廃棄物の減容、有害度低減による環境負荷低減は重要な課題である。そのための有効な手段の一つがマイナーアクチニド(MA)の分離変換であり、MAの分離変換を行うことにより、廃棄物の潜在的有害度は1/10～1/1000に減少し、特に使用済燃料の炉取出し後100年以降ではその効果が大きいことが知られている。

分離変換技術については国内各機関で鋭意研究開発され、階層型群分離法においてはMA分離と同時に発熱性FPを分離する案が検討されている。海外ではフランスにおいてアクチニド一括抽出のGANEX法、米国においても発熱性FPとMAの分離を基本とする種々のオプションのUREX法の研究開発が行われている。ここで、分離変換技術の実現には核種分離、MA含有燃料加工、高速中性子炉による核変換等の要素技術が全て実用化され、それらを効率的なシステムとして組み上げる必要があるが、現状は個々の技術の基礎研究や成立性確認段階にあり今後相当期間の取り組みが必要とされている。

現在、使用済燃料は再処理によるPu等の抽出、有効利用の後、MAを含む廃棄物(高レベル廃液)は再処理後すぐにガラス固化する方法が選択されている。また、ガラス固化体はその発熱量が減衰するまで約50年間、地表施設で冷却貯蔵管理される。ガラス固化体は貯蔵管理および地層処分において人工バリアとしての放射性核種の封じ込め性に優れているが、他方、再生困難のため、分離変換技術が将来実用化されても既にガラス固化された廃棄物には適用できず、MAを含む多くのガラス固化体が地層処分され、環境負荷低減につながらないという課題がある。また、今後再処理される使用済燃料は再処理前に長期間貯蔵された燃料であり、高発熱性のMAであるAm-241(半減期432年)を多く含有し、発熱量の観点からガラス固化体の発生量の増加、冷却貯蔵管理期間の延長等が懸念され、MA分離変換は一層、重要な技術となる。

以上のような廃棄物の現状やMA分離変換技術の開発状況を踏まえ、将来の開発技術を有効に活用して環境負荷低減に結びつけるためには、従来のガラス固化体管理法の課題を解決する必要がある。このため、使用済燃料の再処理からガラス固化体の地層処分までの貯蔵管理の在り方を見直して今後開発される技術のバックフィットを可能にするブレークスルーが必要である。

本研究開発はこれらを背景に、使用済燃料の再処理で発生するMAを含む高レベル廃液をすぐにガラス固化する代わりに、安定かつ再生可能な形態で冷却貯蔵(～50年)し、地層処分直前にMA分離変換とガラス固化を行う「柔軟な廃棄物管理法」を独自に考案し、そのフィージビリティ・スタデーを行うものである。

図1-1に柔軟な廃棄物管理法の概念図を示す。柔軟な廃棄物管理法はMA分離変換技術のバックフィットを可能として環境負荷低減に寄与するとともに、今後発生する高燃焼度燃料や再処理前に長期間貯蔵された燃料の再処理に対しても有効に機能することが期待される。高レベル廃棄物の再生可能な貯蔵形態としては顆粒体や焼成体等が考えられるが、本研究は処理プロセスが単純で開発要素の少ない顆粒体を主案とし、他はオプションとする。

また、福島事故を踏まえて顆粒体の貯蔵には外部電源に依存しない自然循環空気冷却方式とし、更に顆粒体を収納するキャニスター管を細径にして線出力密度を低くすることで、過酷事故発生リスクを低減する。

- 本研究開発は以上を踏まえ、柔軟な廃棄物管理法のフェージビリティ・スタデーとして以下を実施し、有効性、成立性の見通しを得ることにより本格開発へ展開することを目的とする。
- (1) 廃棄物顆粒体製造技術を選定し、実廃液組成の模擬材を用いた顆粒体化基礎試験（乾燥⇒脱硝⇒粉砕）により廃棄物顆粒化技術の成立性見通しを得る。
 - (2) 顆粒体化基礎試験により得られた模擬廃棄物顆粒体の化学特性分析等により材料化学安定性を明らかにし、貯蔵設備概念設計により長期貯蔵の成立可能性を明らかにする。
 - (3) 柔軟な廃棄物管理法の適用により高レベル廃棄物にMA分離変換技術をバックフィットした場合の潜在的有害度や処分場面積を評価し、環境負荷低減への有効性を定量的に評価する。

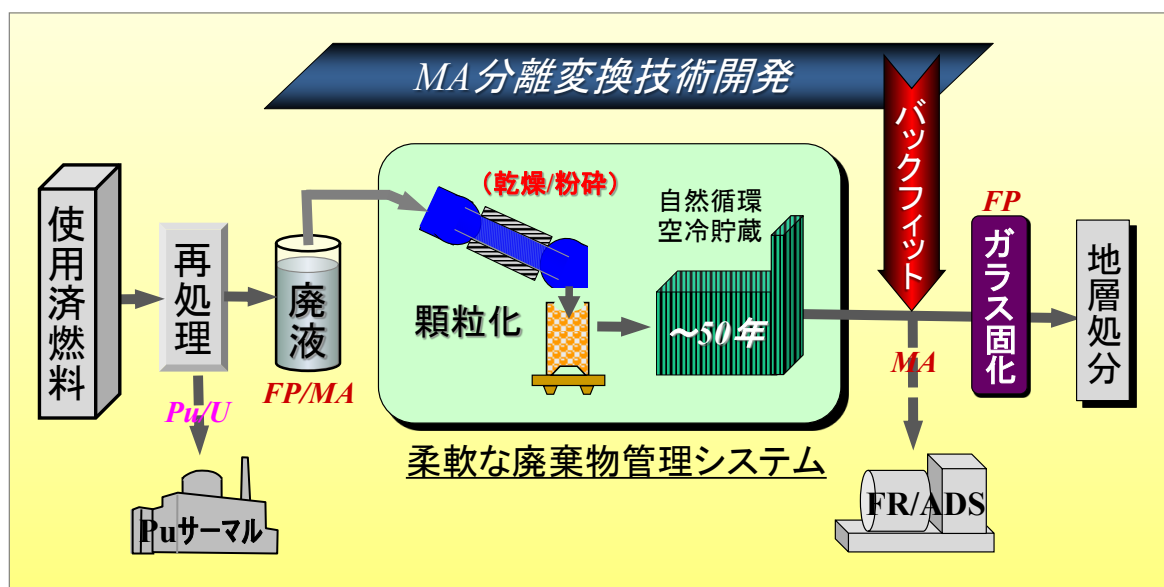


図 1-1 柔軟な廃棄物管理法の概念図

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務における2年間の全体計画を表 2.1-1 に示す。

表 2.1-1 2年間の全体計画

研究開発項目	平成25年度	平成26年度
(1) 柔軟な廃棄物管理システム開発 ① 廃棄物管理システム概念設計	システム構築	概念設計
	技術調査	技術候補選定
1 廃棄物顆粒体製造技術選定		
(2) 長期廃棄物顆粒体貯蔵の成立性評価 ① 材料化学的安定性評価	文献調査	安定性評価
	入力データ作成	熱流動過渡解析
② 貯蔵時事故安全性評価		
2 廃棄物顆粒体熱伝導度の設定	調査	解析モデル設定
(3) 環境負荷低減効果の評価 ① 潜在的有害度評価	入力データ作成	解析評価
② 処分場占有面積評価	入力データ作成	解析評価

本業務では、以下の研究開発項目を実施する。

(1) 柔軟な廃棄物管理システム開発

① 廃棄物管理システム概念設計

高レベル放射性廃液を顆粒化処理し、キャニスターに充填して自然循環空気冷却方式で貯蔵するシステムの概念設計を行う。基本仕様の設定に当っては廃棄物顆粒体に関する知見、特性データ等が必要であるが、これまでに得られている模擬廃棄物顆粒体及び(模擬廃棄物+ウラン)顆粒体に関する試験データ/知見を利用する。廃棄物顆粒体の熱伝導度はガラス固化体等に比べ低いことが判っており、充填キャニスター径を細くして線出力密度を抑制する必要がある、貯蔵時の熱伝導温度解析を行って設定する。

② 廃棄物顆粒体製造技術選定

高レベル放射性廃液から顆粒体を製造する技術としては種々考えられるが、本研究開発では模擬廃棄物顆粒体等に関するこれまでの知見を基に、廃棄物顆粒体製造技術に対する要求事項を明確にし、技術の信頼性の確保と開発実用化期間の短縮の観点から関連する廃棄物処理技術や核燃料加工技術等を調査し、候補技術案を選定する。また、今後の実用化に向けて取り組むべき廃棄物顆粒体製造技術に関する開発課題を明らかにする。

(2) 長期廃棄物顆粒体貯蔵の成立性評価

① 材料化学的安定性評価

廃棄物顆粒体は 50 年間程度以上の長期間貯蔵が必要であり、貯蔵時の材料化学的安定性は柔軟な廃棄物管理法の成立性に関わる重要検討課題である。本研究開発項目においては、まず文献調査等により材料化学的安定性に関する知見・データ等を得る。次に分子動力学法によるアクチニド酸化物の物性評価等を行い、貯蔵期間中の最高温度等の環境制限条件を明確にする。また、模擬高レベル廃液を作製し、顆粒体化までの脱水・脱硝過程を確認する基礎試験を実施するとともに、材料化学的安定性の観点から実用化のための課題を明らかにする。

② 貯蔵時事故安全性評価

本研究開発項目では、廃棄物顆粒体キャニスターが貯蔵された自然循環空気冷却設備において異常な事故シナリオを想定し、3次元熱流動詳細温度解析を行い、上記(2)①で設定された温度制限値を守って安全性が確保されることを確認する。なお、必要な場合には上記(1)①で設定したキャニスターの径の見直し等を行うようフィードバックする。

③ 廃棄物顆粒体熱伝導度の設定

顆粒体温度解析において重要な物性値である熱伝導度については、これまでに得られている顆粒体系熱伝導度解析モデルの検討、見直しを行い活用する。

(3) 環境負荷低減効果の評価

① 潜在的有害度評価

柔軟な廃棄物管理法の有効性を明らかにするため、柔軟な廃棄物管理法を導入した場合の潜在的有害度を解析し、従来のガラス固化管理法の場合と比較評価する。潜在的有害度は、想定される軽水炉使用済燃料の燃焼・冷却計算により地層処分時の廃棄物の重量組成と重量当りの潜在的有害度の時間的変化を基に求める。

なお、重量当りの潜在的有害度は ICRP の各核種の線量換算係数を引用した公開データベースを使用する。また、潜在的有害度は MA 分離変換技術の実用化時期をパラメータに変化させて評価する。

② 処分場占有面積評価

柔軟な廃棄物管理法の環境負荷低減効果として廃棄体の発熱量低減に伴う処分場占有面積の削減がある。処分場占有面積の評価は地層処分場内の3次元有限要素法熱伝導解析により、緩衝材の封じ込め機能維持のための温度制限値(100℃)を守るよう廃棄体坑道間隔を調整して求める。熱伝導度解析の入力データとして必要な廃棄体の発熱量は使用済燃料の燃焼度、冷却期間等をパラメータにした燃焼冷却計算結果より求める。処分場占有面積は従来のガラス固化体管理法の場合についても解析評価し、比較する。

3. 業務の実施内容および成果

3.1 柔軟な廃棄物管理システム開発 (H25-H26)

3.1.1 廃棄物管理システム概念設計

(1) 柔軟な廃棄物管理システムの構築

① 高レベル廃棄物をめぐる課題とニーズ

国の「エネルギー基本計画」[1]によれば、使用済核燃料の安全で合理的な取扱いは世界共通の課題であり、将来世代に負担を先送りしないよう、現世代の責任としてその対策を確実に進めることが不可欠である。このため、放射性廃棄物の適切な処理・処分が重要であり、その減容化・有害度低減のための技術開発の推進、高速炉や加速器を用いた核種変換などによる長期残留放射線量の低減、放射性廃棄物の処理・処分の安全性を高める技術等の開発を推進している。原子力委員会「分離変換技術検討会」報告書[2]によれば、高レベル放射性廃棄物に含まれる Am 等のマイナーアクチニド (MA と略記) の分離変換を行うことにより、その潜在的有害度は 1/10~1/1000 に減少し、特に使用済核燃料の炉取出し後 100 年以降ではその効果が大きいことが示されている。分離変換技術については国内外各機関で鋭意研究開発されている。また、我国は“もんじゅ”を廃棄物の減容・有害度の低減等の向上のための国際的な研究拠点と位置付けている。[1]ここで分離変換の実現には核種分離、MA 含有燃料加工、高速中性子炉による核変換等の要素技術が全て実用化され、それらを効率的なシステムとして組み上げる必要があるが、現状は個々の技術の基礎研究や成立性確認段階にあり、今後相当期間の取組みが必要とされている。[2][3]

使用済核燃料は再処理しプルサーマル利用する核燃料サイクルが行なわれる[1]が、現時点では MA 分離変換技術が確立されていないため、MA を含む廃棄物 (高レベル廃液) は、当面、再処理後すぐにガラス固化され、地表施設で約 50 年間冷却貯蔵管理の後、最終的に深地層中に処分される計画である。ガラス固化体は貯蔵管理および地層処分において人工バリアとしての放射性核種の封じ込め性に優れているが、他方、一旦ガラス固化されると MA のみを取り出すことは技術的に難しく、将来、分離変換技術が実用化されても既にガラス固化された廃棄物には適用できず、環境負荷低減につながらないという課題がある。図 3.1-1, 図 3.1-2 に現行廃棄物管理法の課題を示す。

② 柔軟な廃棄物管理システムの構築

このような廃棄物の現状や MA 分離変換技術の開発状況を踏まえ、将来の開発技術を有効に活用して環境負荷低減に結びつけるためには、従来のガラス固化体管理法の課題を解決する必要がある。これらを背景に、使用済燃料の再処理で発生する MA を含む高レベル廃液をすぐにガラス固化する代わりに、安定かつ再生可能な形態で冷却貯蔵 (~50 年) し、地層処分直前に MA 分離変換とガラス固化を行う「柔軟な廃棄物管理法」を考案し、軽水炉再処理施設の付属設備としてシステム概念を構築した。図 3.1-3 に柔軟な廃棄物管理システムの基本的考え方を示す。柔軟な廃棄物管理システムは再処理施設の一部として、高レベル廃液の乾燥・脱硝、廃棄物顆粒体製造、貯蔵の要素設備から構成される。これらのシステム要素設備の具体的仕様は本システムの早期実現のため信頼性、経済性を目標に設計する。高レベル廃棄物の再生可能な貯蔵形態としては種々考えられるが長期の貯蔵安定性、製造製、再生容易さ等を考慮する必要がある。そのような形態として顆粒体や焼成体等が考えられるが、処理プロセスが単純で開

発要素の少ない顆粒体が有望である。

図 3.1-4 に構築した柔軟な廃棄物管理法のシステム概念を示す。使用済燃料は再処理により Pu 等の有効利用の後、MA を含む廃棄物（高レベル廃液）は再処理後すぐにガラス固化するのではなく再生可能な形態にして貯蔵管理するものとする。具体的には本システムは軽水炉再処理において得られる高レベル廃液をロータリーキルン等の付属設備において乾燥・脱硝すると共に顆粒化した廃棄物顆粒体として製品を得る。廃棄物顆粒体はキャニスターに空気雰囲気において充填される。廃棄物顆粒体を含むキャニスターはガラス固化体の貯蔵施設として予定されていた設備に搬入され冷却貯蔵される。貯蔵期間は処分直前までであり、約 50 年程度である。

③ 将来の燃料サイクルにおける柔軟な廃棄物管理法の意義

図 3.1-5 に将来の核燃料サイクルにおける柔軟な廃棄物管理法の適用例を示す。将来の核燃料サイクルとしては軽水炉に替わり高速増殖炉（FBR）又は高速炉による原子力発電が行なわれ、MA 含有燃料を用いることで MA は燃焼、核変換される。FBR 使用済燃料の再処理に伴い発生する高レベル廃棄物は顆粒体等再生可能な形態で貯蔵される。高レベル廃棄物は発熱量が高いため冷却のため約 50 年保管される。一方、再処理から地層処分までの 50 年間においては、種々の技術開発が行なわれると考えられる。例えば、廃棄物の一層の減容を図るため、廃棄物の含有率が高いガラス固化体、FP 廃棄物に含まれる有用元素の分離技術、発熱量の高い Cs, Sr の分離技術等の開発実用化の可能性がある。また、MA 含有燃料製造においては、Cm-244 の高い発熱量が燃料製造の信頼性、経済性に大きな影響をもたらすが、MA を含む廃棄物の 50 年間の冷却保管によりこれら発熱性元素の減衰が図られる。このように、柔軟な廃棄物管理法は今後とも鋭意取り組みが行なわれる高レベル廃棄物の一層の環境負荷低減に向けた種々の技術開発の成果の採用を可能とするものである。図 3.1-6 に将来の核燃料サイクルにおける柔軟な廃棄物管理法の一層の環境負荷低減において果たす役割、位置付けを示す。

参考文献

- [1] 「エネルギー基本計画 2014」 経済産業省 資源エネルギー庁編、2014 年 6 月閣議決定
- [2] 原子力委員会 研究専門部会分離変換技術検討会、「分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」、2009 年 3 月
- [3] 日本原子力学会 分離変換・MA リサイクル研究専門委員会「分離変換技術はどこまで成熟したか？」 日本原子力学会誌、Vol. 52, No. 12 (2010)

高レベル廃棄物問題への対応

我国は約17,000トンの使用済燃料を保管中。将来世代に負担を先送りしないよう、現世代の責任として対策を確実に進めることが不可欠。

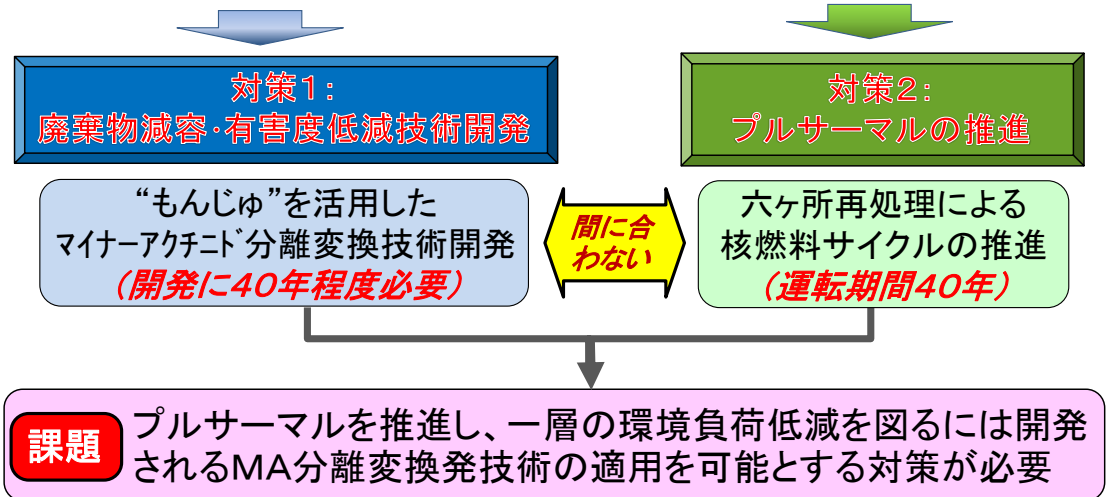


図 3.1-1 高レベル廃棄物をめぐる課題とニーズ

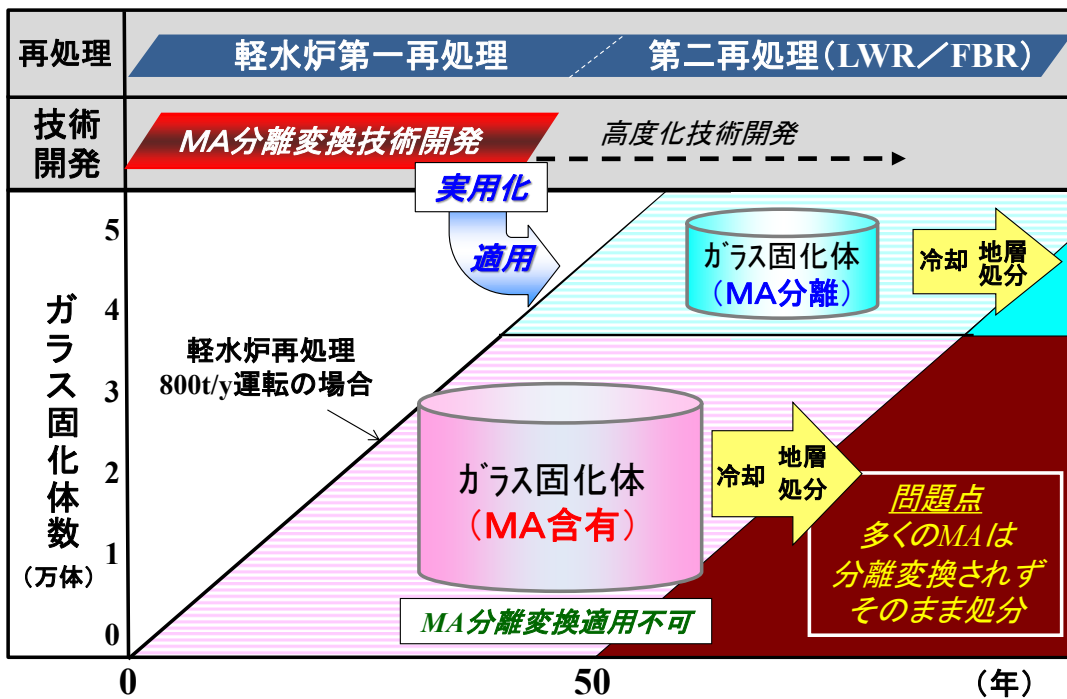


図 3.1-2 現行廃棄物管理法の課題

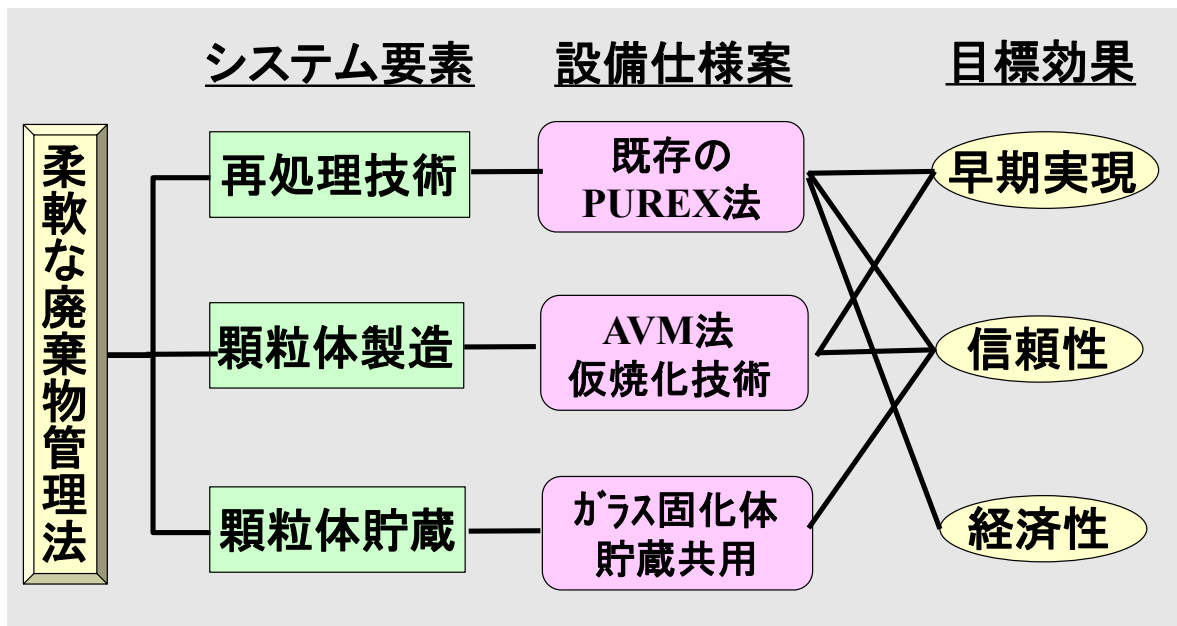


図 3.1-3 柔軟な廃棄物管理法の考え方

使用済燃料再処理廃液 (FP/MA) ⇒ 顆粒化 ⇒ 冷却貯蔵
⇒ MA分離変換 / FPガラス固化 ⇒ 地層処分

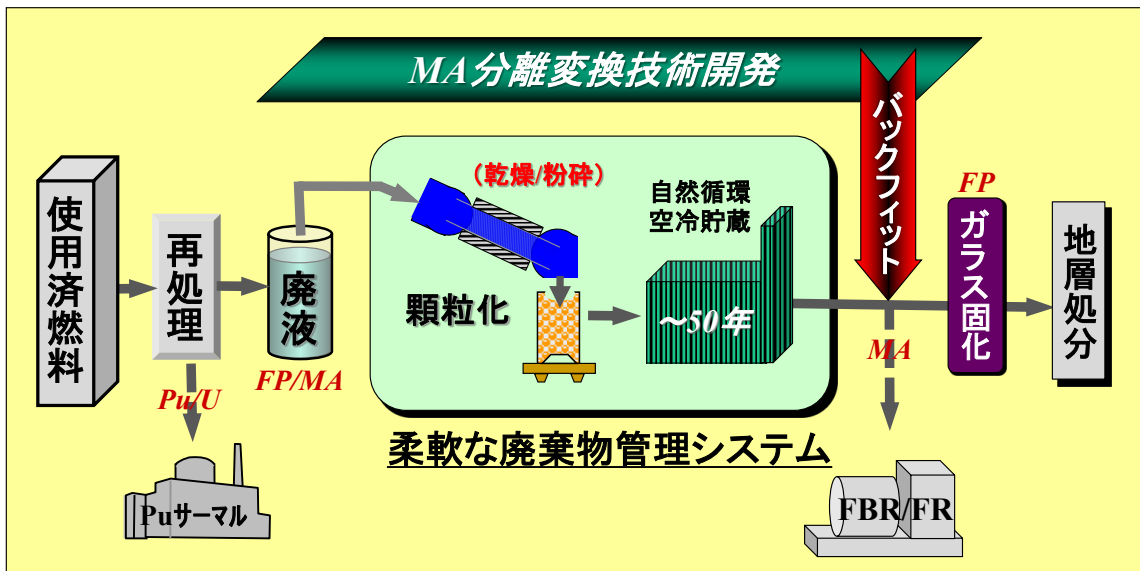


図 3.1-4 柔軟な廃棄物管理システム概念

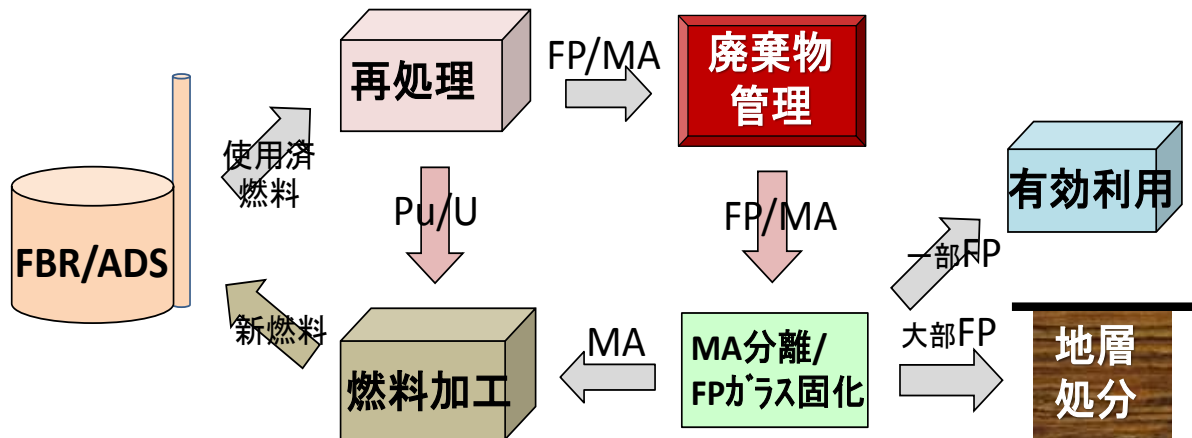


図 3.1-5 将来燃料サイクルにおける廃棄物管理

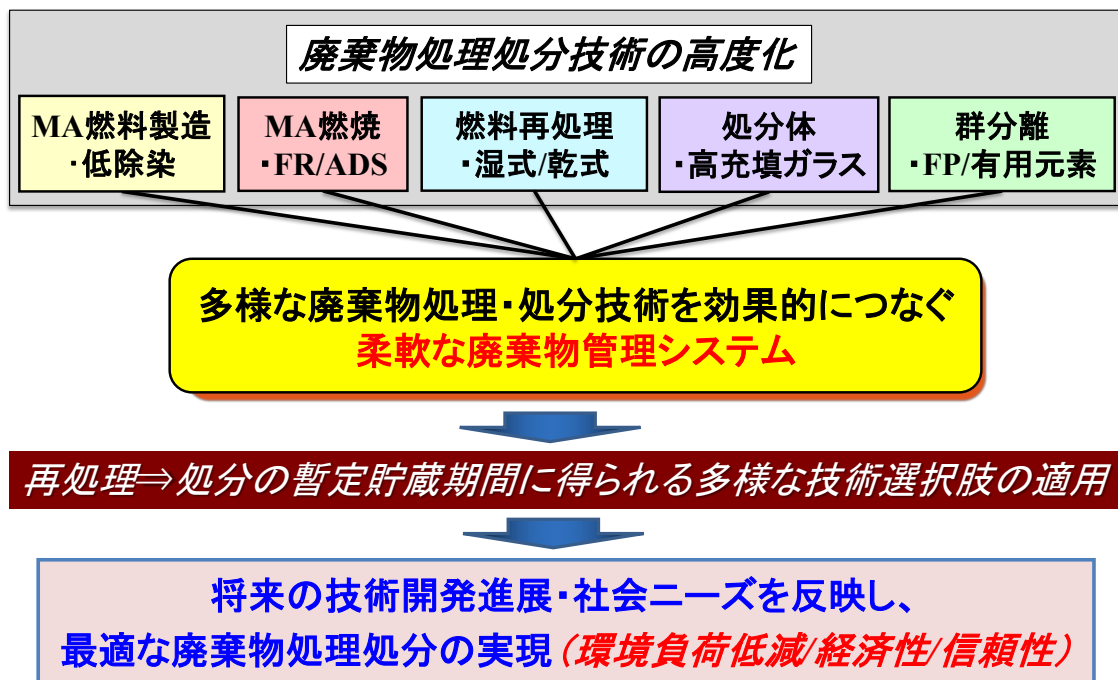


図 3.1-6 将来燃料サイクルにおける柔軟な廃棄物管理法の意義

(2) 廃棄物顆粒体貯蔵設備概念設計

構築した柔軟な廃棄物管理システム概念を基に、廃棄物の長期貯蔵時の材料化学的安定性の検討結果を踏まえ、廃棄物顆粒体貯蔵設備を概念設計した。図 3.1-7 に PUREX 法再処理設備に柔軟な廃棄物管理法を適用した場合の再処理設備の全体プロセス案を示す。柔軟な廃棄物管理システムは再処理施設の一部として、高レベル廃液の乾燥・脱硝、廃棄物顆粒体製造、貯蔵の要素設備から構成される。これらのシステム要素設備の具体的仕様は本システムの早期実現のため信頼性、経済性を目標に設計する。

廃棄物顆粒体の貯蔵設備は現行の軽水炉再処理施設の附属設備として設置されるものとし、ガラス固化体貯蔵設備を共用するものとする。従って、廃棄物顆粒体はガラス固化体と同様に自然循環空気冷却方式により冷却貯蔵されるものとする。このような現行のガラス固化体貯蔵設備を共用する前提で廃棄物顆粒体を貯蔵する場合の冷却貯蔵方式設備の構造概念図を図 3.1-8 に示す。廃棄物顆粒体はキャニスターと呼ばれる鋼鉄製（SUS 製）容器の中に充填されて収納管の中に配置される。収納管は通風管の中を貫通する構造になっている。外気から取り込まれた空気は収納管と通風管の下部から入りその間を上昇し、再び外気となって設備から出て行く経路をとる。冷却空気は外気温度である 20℃程度で入るが、収納管と通風管の間を上昇する間に廃棄物顆粒体の発熱により上昇し、設備出口では 60℃程度になる。貯蔵設備はチムニー設備を有しており、冷却空気の設備入口高さ位置とチムニー出口高さ位置の温度差に基づく空気密度差により生じる重力圧差により駆動力が得られる構造をしている。冷却空気は設備内を通過する課程において摩擦や口径変化等により抵抗を受け、圧力損出を生じるが、チムニーの高さの設計により空気温度がコンクリートの制約温度である 65℃以下になるように空気流量を確保している。この結果、現状再処理設備ではチムニー高さが約 38 mとなっている。廃棄物顆粒体の貯蔵設備はガラス固化体貯蔵設備を共用するため、チムニー高さにより決まる冷却空気の駆動力は同一である。一方、廃棄物顆粒体の発熱密度はガラス固化体に比べ数倍程度に高くなり、熱伝導率は数分の 1 程度に低くなるため熱的に厳しい状況になると予想される。

廃棄物顆粒体の長期貯蔵時の安定性については、次節における試験結果を踏まえ、貯蔵時の制限温度を NaNO_3 の相転移点（または融点）である 275℃とした。廃棄物顆粒体の貯蔵時最高温度を 275℃以下とするための方策として細径のキャニスターを採用することとし、その寸法仕様案を検討した。

図 3.1-9 に共用するガラス固化体貯蔵設備の通風管内にキャニスター本数を 4 本、7 本、12 本とした場合について、再処理前冷却期間に対する顆粒体最高温度変化の解析結果を示す。本仕様案の熱的成立見通しを得るため、発熱密度が高く熱的に厳しい顆粒体貯蔵②の場合について簡易的熱温度計算により熱温度評価を行った。解析に使用した廃棄物顆粒体キャニスター 7 本当りの発熱量の時間変化を図 3.1-10 に示す。図 3.1-10 の発熱量は、PWR 45GW d/t の使用済燃料について最も厳しい発熱量として再処理前冷却期間を 4 年とした場合と、本解析に使用した 10 年とした場合の結果である。また、温度評価において重要な特性データである熱伝導率については第 3.2.3 節の検討等を参考に 0.15W/mK とした。

これらの解析検討結果を基に設定した貯蔵設備の主な寸法仕様案を図 3.1-11 に示す。同図において顆粒体貯蔵は NaNO_3 を含む場合である。主要な仕様としては、キャニスター外径

はガラス固化体の場合の 43cm に対して 12.1cm で本数は 7 本である。顆粒体貯蔵案は既存の再処理設備の設計変更を最小とすることを目標とし、顆粒体貯蔵②案は貯蔵時の材料化学的安定性の観点を重視したものである。図 3.1-11 に顆粒体貯蔵について従来のガラス固化体貯蔵の場合と比較して貯蔵設備各部位の構成割合を示す。これらキャニスター寸法仕様設計の考え方は次の通りである。まず、従来のガラス固化体貯蔵の場合における通風管は中央部と下部の支持機構を連結支持する構造強度上の重要部材であり、顆粒体貯蔵の場合においても貯蔵設備構造を支える構造管としてそのまま採用するものとする。次に冷却空気の必要量を確保するため空気の流路面積を決める。冷却空気の流路面積は構造管 1 本当りの圧力損出がガラス固化体貯蔵の場合と同等となるように決める。これは、廃棄物顆粒体の貯蔵とガラス固化体の貯蔵が同一設備の中で共存することが有り得るため、両者の間に圧力損出が生じ、冷却空気の配分に偏りができることを防ぐためである。これにより冷却空気の流れは構造管同士に差がなくなり効率的冷却ができることになる。

次に顆粒体キャニスターの寸法仕様は構造管当りの FP/MA の廃棄物重量がガラス固化体の場合と同一となることを条件に決める。これは、顆粒体貯蔵の場合においても高レベル廃棄物の貯蔵はガラス固化体貯蔵設備の中に収納することを担保するためである。このことは必ずしも必要条件ではないが高レベル廃棄物貯蔵に伴う経済性や貯蔵場所を既に確保されている設備内に留めるためである。以上のような考え方により設定した顆粒体寸法仕様は図 3.1-11 である。また、図 3.1-12 に顆粒体貯蔵設備の各部位の温度時間変化の簡易熱伝導解析結果を示す。これらの解析結果より、従来のガラス固化体貯蔵の場合のガラス固化体中心温度の 500℃に対し、廃棄物顆粒体中心温度は 252℃である。ここでガラス固化体の中心温度 500℃はガラスの健全性確保のための制限値に相当しているが、実際はこれに対し余裕のある設計としているので本簡易解析評価は保守的になっている。

図 3.1-11 の通風管内各部位割合の図に示されるように、顆粒体の場合とガラス固化体の場合で FP 及び NaNO_3 の割合は同じである。また、構造材の割合は顆粒体の場合がやや多いが基本的に両者は同等である。また、ガラス固化体の場合のガラスの占める割合は顆粒体の場合では空気（キャニスター内の隙間）に対応し、その割合は約 2.5 分の 1 になっている。一方、冷却空気の流路面積はガラス固化体の場合に比べ顆粒体の場合は約 1.7 倍に大きくなっている。このように顆粒体の場合に冷却空気の流路面積が大きくなるのは細径のキャニスターが 7 本と多く摩擦圧損が増えるため冷却能力を確保するためである。

以上より、廃棄物顆粒体キャニスターの配置本数を 7 本とすることにより、廃棄物顆粒体の最高温度は後述の 3.2.1 節に示す材料化学安定性の観点から制限される 275℃以下となり、長期安定性を確保して貯蔵が可能であることが明らかになった。

なお、顆粒体の場合はガラス固化体の場合に比べガラス材がないため貯蔵物量（重量）が 1/5 程度と少ないにも拘らず通風管内に占める容積割合はほぼ同等であり、貯蔵設備の容量も両者で同等である。このように顆粒体の場合には顆粒体の熱伝導率が低い（ガラス固化体の 1/6 程度）ことに起因してガラス固化体にくらべ貯蔵効率が低いため、今後熱伝導率の増大等による貯蔵効率の向上の検討が重要である。

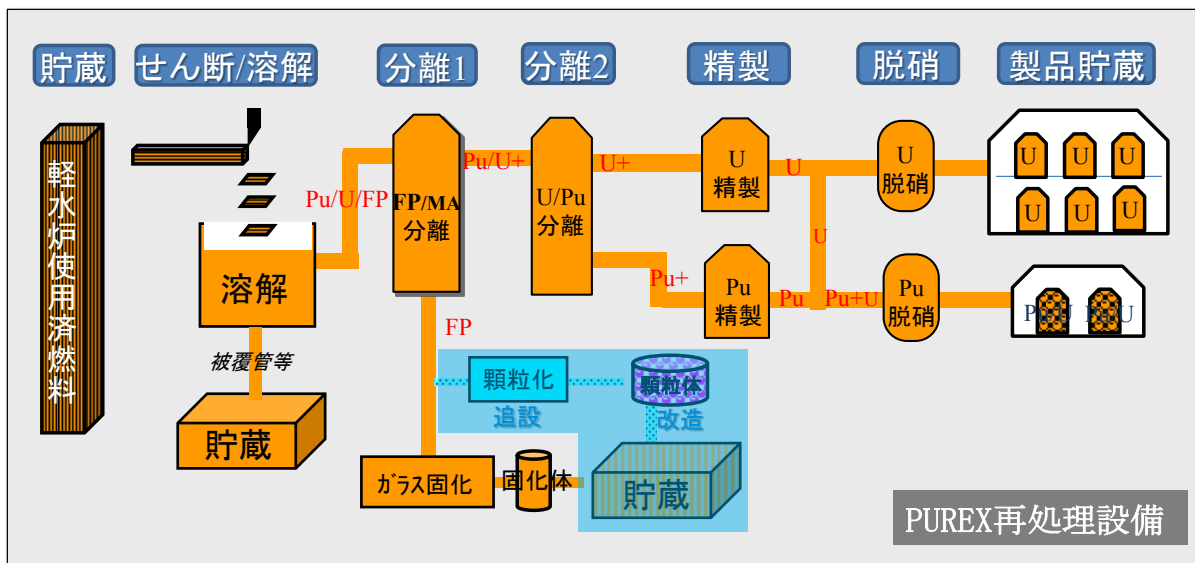
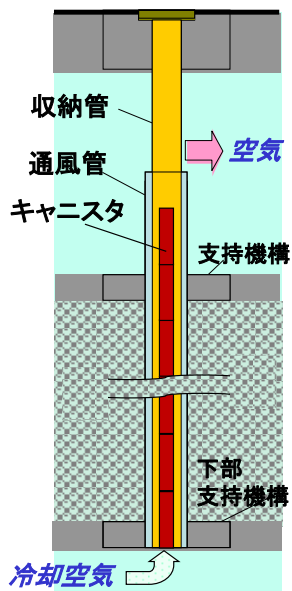


図 3.1-7 PUREX 再処理設備における柔軟な廃棄物管理システム例

貯蔵は自然循環、間接空気冷却方式とし高い安全性を確保

● 間接冷却法



● 自然循環空気冷却設備

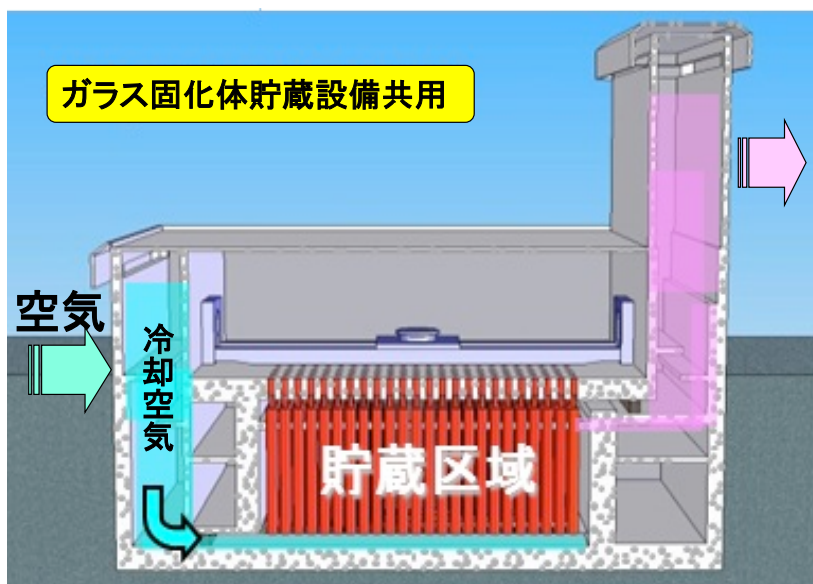


図 3.1-8 廃棄物顆粒体冷却貯蔵概念図

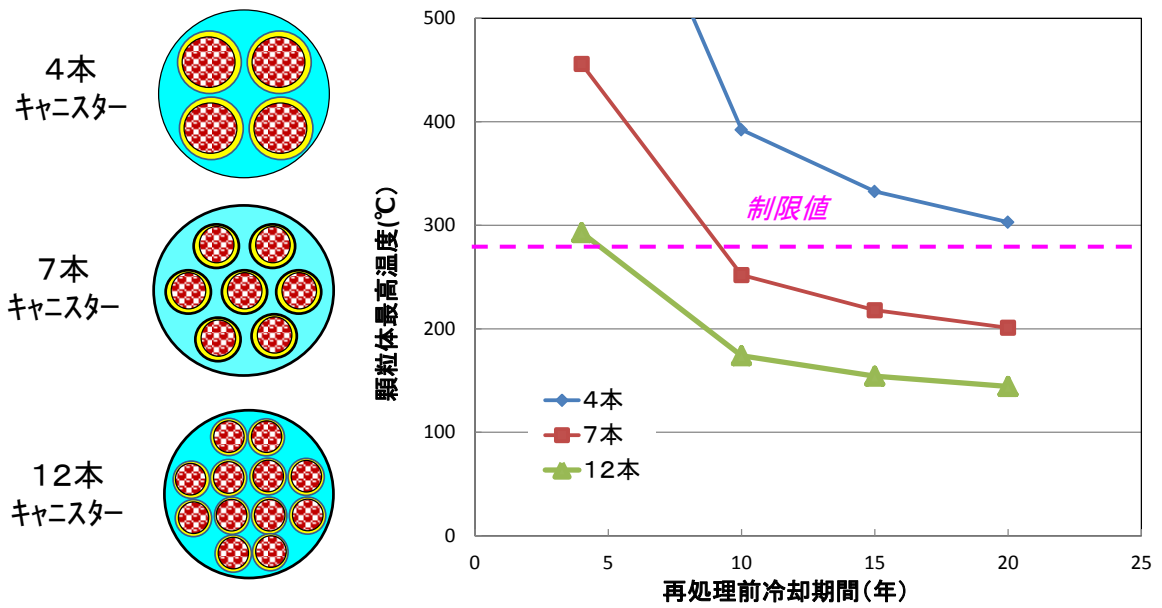


図 3.1-9 再処理前冷却期間に対する顆粒体最高温度

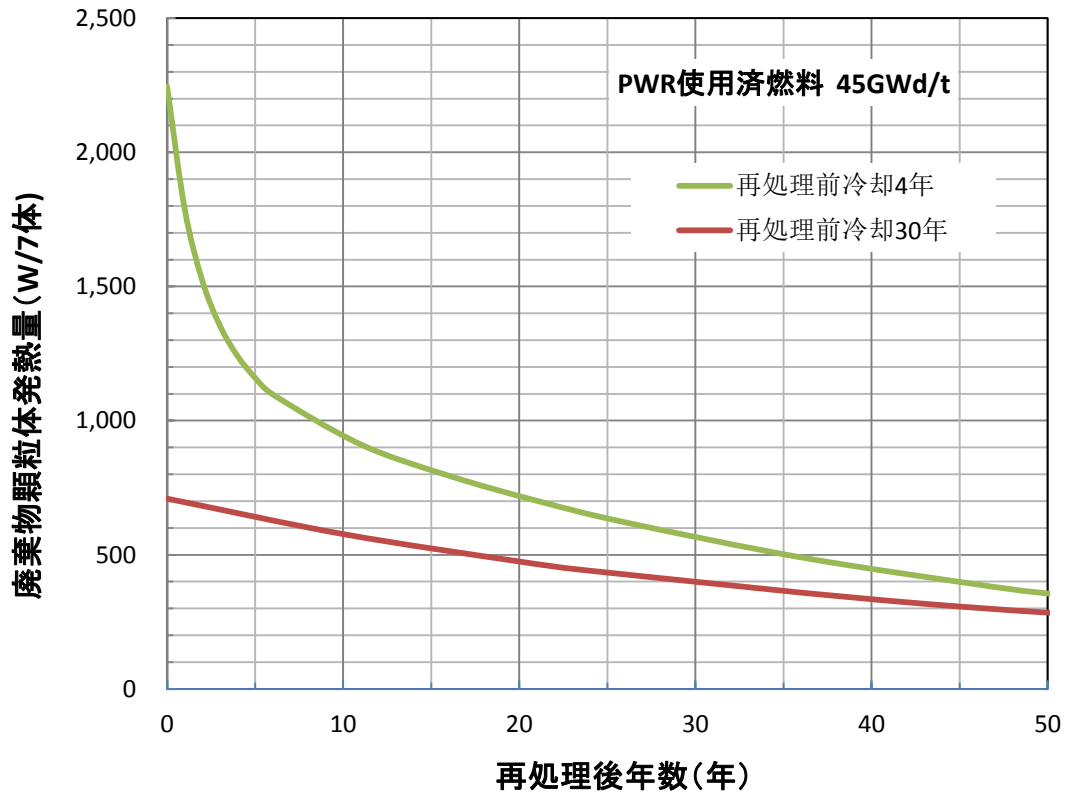


図 3.1-10 廃棄物顆粒体発熱量の時間変化

No	項目	単位	ガラス固化体	廃棄物顆粒体
1	断面図	—		
2	構成	発熱元素	FP/MA	FP/MA
3		Na	含有	含有
4		母材	ホウケイ酸ガラス	硝酸Na+空気
5		通風管外径	cm	60
6	収納管本数	本	1	7
7	収納管外径	cm	46	12.9
8	キャニスタ外径	cm	43	12.1
9	冷却期間	年	4	10
10	発熱量	w/体	2300	1120
11	熱伝導率	W/m/°C	0.9	0.14
12	中心最高温度	°C	500	252
13	水力等価直径	cm	6.0	7.4

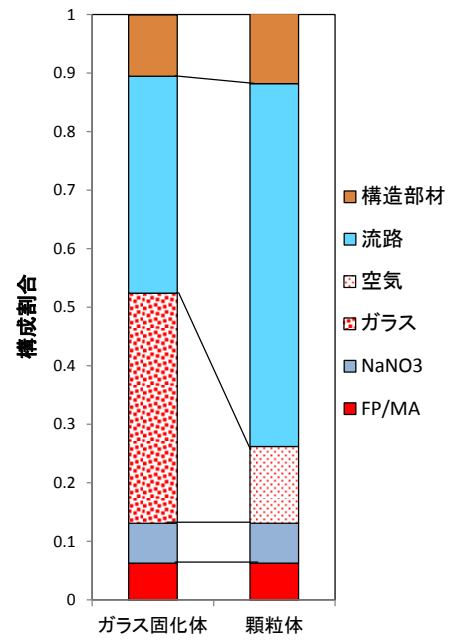


図 3.1-11 廃棄物顆粒体貯蔵設備基本仕様

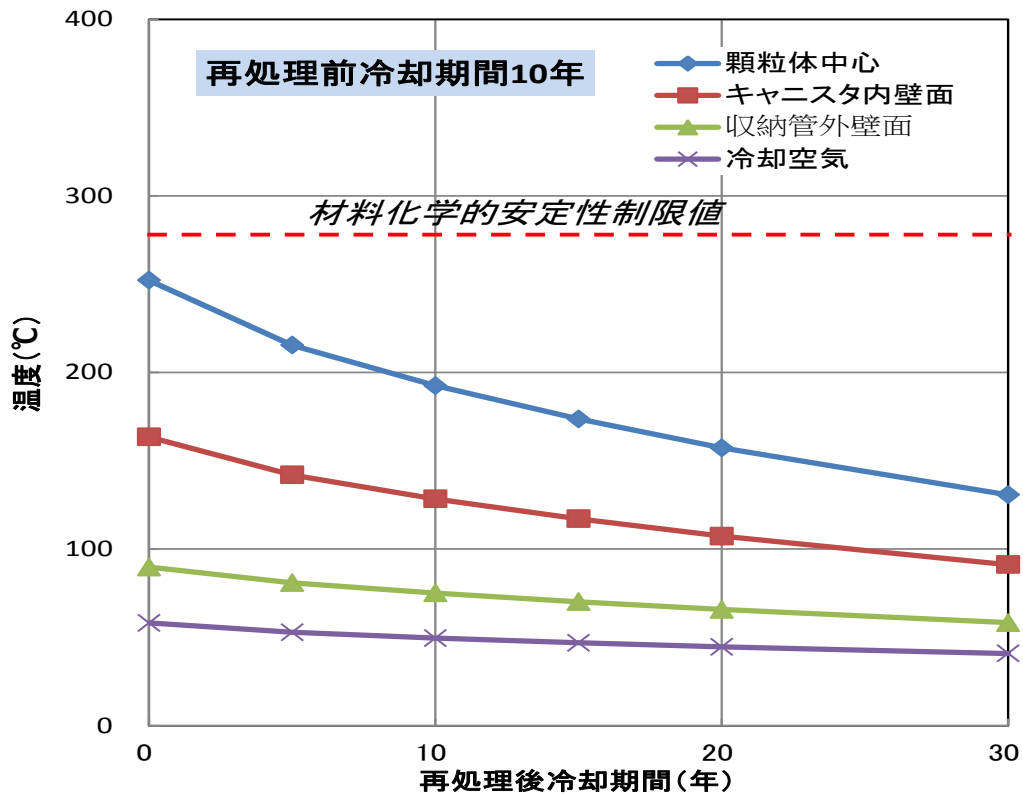


図 3.1-12 廃棄物顆粒体貯蔵設備内部の温度変化

(3) 廃棄物顆粒体高密度化の検討

柔軟な廃棄物管理システムの廃棄物貯蔵形態の主要案は顆粒体であるが、副案として考えられる顆粒体の加圧成形や熔融固化による高密度化について検討した。

柔軟な廃棄物管理システムの廃棄物貯蔵形態としては開発要素が少なく、早期実現性に優れた顆粒体が主要案として選定されている。これは、軽水炉再処理設備の稼働開始が近く予定されていることから、将来MA分離変換技術が実用化された際にできるだけ多くのMA分離を可能とし、一層の廃棄物の減容、有害度低減に寄与するためである。

一方、廃棄物顆粒体は廃棄物の充填密度が低く、熱伝導率が低いという欠点がある。この結果、廃棄物顆粒体を収納したキャニスターの径は細く、伝熱面積は多くなり、冷却空気の圧力損失が大きくなるため流路面積を広くする必要がある。また、充填密度は50%程度と低いため廃棄物貯蔵容積が大きくなり、結果としてガラス固化体に比べ貯蔵容積が約1/2程度であるにも拘わらず、貯蔵設備容量はほぼ同程度となっている。そこで、熱伝導率の向上及び貯蔵設備容量の削減等の観点から廃棄物顆粒体の高密度化貯蔵形態について検討した。顆粒体の高密度化の方法として、①焼結体、②固化体が考えられる。図3.1-13に顆粒体を基にして、焼結体及び固化体を製造するプロセス概念図を示す。

焼結体は高レベル廃液をロータリーキルン設備により廃液の乾燥・脱硝・粉砕を経て製造される廃棄物顆粒体の充填密度を高めるため加圧成形する必要がある。次に廃棄物ペレットを融点よりやや低い温度で加熱し焼結体を得る。ここで焼結温度は廃棄物顆粒体である NaNO_3 の融点 305°C または相転移点 275°C より低い温度とする。焼結温度が 275°C 程度以下と低いことは、焼結体製造の点からは有利である。一方、充填密度を高めるために必要な加圧成形は強い放射性物質である高レベル廃棄物の処理としては不利な点である。また、短尺ペレットの積重ねによるキャニスターへの充填は遠隔セル内での操作としては大きな負担となる可能性がある。

次に、廃棄物顆粒体の熔融固化法による貯蔵体の製造法は廃棄物母材の NaNO_3 の融点が低い($\sim 305^\circ\text{C}$)ことを活用して製造上の負担を最小限に留めつつ、高密度、高熱伝導率の廃棄物貯蔵体を製造できる可能性がある。図3.1-14に廃棄物顆粒体を基にした熔融固化体の製造プロセス案を示す。図3.1-14において廃棄物顆粒体を充填したキャニスターを上下方向に立て、雰囲気温度 50°C に冷却され、下部から挿入される加熱器によりキャニスター外表面を加熱する。加熱器は高さが約5cm程度で加熱温度 400°C 程度に保持して上部方向へ約1cm/分程度の速度で上昇する。これによりキャニスター外壁は $50^\circ\text{C} \Rightarrow 400^\circ\text{C}$ (5分) $\Rightarrow 50^\circ\text{C}$ の変化が下部から上部へ移動し、廃棄物顆粒体は顆粒体 $\Rightarrow \text{NaNO}_3$ 熔融 \Rightarrow 固化体と変化が下部から上部へ移動する。廃棄物の熔融・固化プロセスにおいては NaNO_3 熔融中に廃棄物元素の沈降による元素粒子の蓄積・不均一化に注意が必要である。そこで、キャニスター外壁の加熱時間について検討した。

溶液中の粒子の沈降速度は次のストークス式で評価される。

$$V_s = g(\rho_p - \rho_f)D_p^2/18\eta$$

ここで、

- V_s : 終端速度 [cm/s]
 D_p : 粒子径 [cm]
 ρ_p : 粒子の密度 [g/cm³]
 ρ_f : 流体の密度 [g/cm³] (熔融 NaNO₃ の場合は 1.8 g/cm³)
 g : 重力加速度 [cm/s²] (980.7 cm/s²)
 η : 流体の粘度 [g/(cm·s)] (熔融 NaNO₃ の場合は 0.015 g/(cm·s))

である。

ストークス式より沈降速度は粒子径の 2 乗に比例し、粒子密度に比例することが分かる。粒子重量をパラメータに粒径に対する沈降速度の関係を図 3.1-15 に示す。廃棄物中の主要元素の比重は 2~20g/cm³ 程度である。

図 3.1-15 の粒子沈降速度解析結果より、廃棄物内重元素が沈降しても固化体内に蓄積し、不均一化することを防ぐには、最大比重 20g/cm³ で粒径 10 μm の元素粒子の場合、加熱器移動速度を 4cm/分以上に、また粒径が 5 μm の場合には加熱器移動速度を 1cm/分以上にすれば加熱器の通過跡に一様に沈降⇒固化されることになる。廃棄物顆粒体は多数の原料元素粉末から成り立っており、廃棄物顆粒体の粒径としてたとえば、5 μm とすれば加熱器速度を 1cm/分以上で十分制御可能な速度である。

これらについては今後製造した顆粒体を基に温度制御試験を行い、製造される固化体の熱伝導率、密度、元素組成分布等の詳細な測定が重要である。

以上の検討を踏まえ、廃棄物貯蔵形態の比較を図 3.1-16 に示す。図 3.1-16 より、高レベル廃棄物の再生可能な貯蔵形態としては処理プロセスが単純で開発要素の少ない顆粒体又は熱伝導率が高く、貯蔵設備の減容が可能な熔融固化処理による高密度顆粒体が有望であり、今後試験測定による確認が重要である。

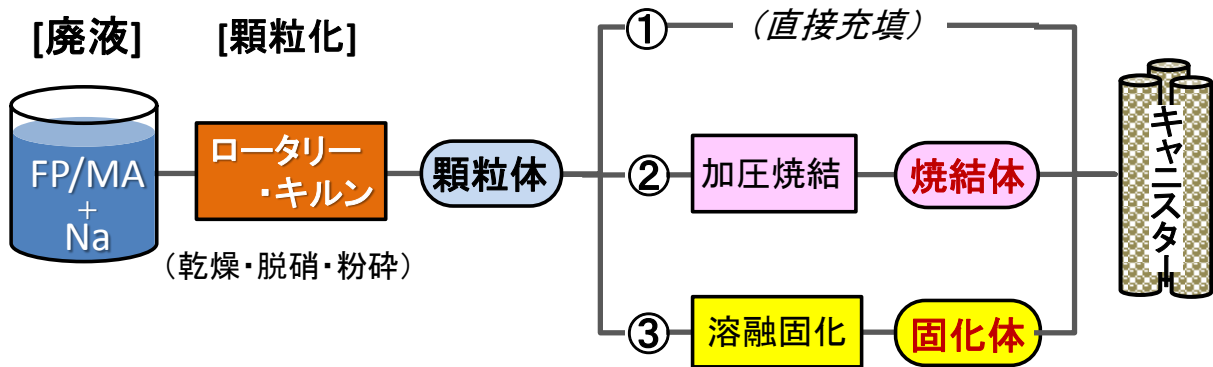


図 3.1-13 廃棄物顆粒体貯蔵形態例

NaNO₃は融点が高い(305°C) ⇒ 廃棄物熔融固化の成立性高い
 顆粒径, 加熱温度/時間の制御 ⇒ 沈降速度を抑え, 元素分布均一化

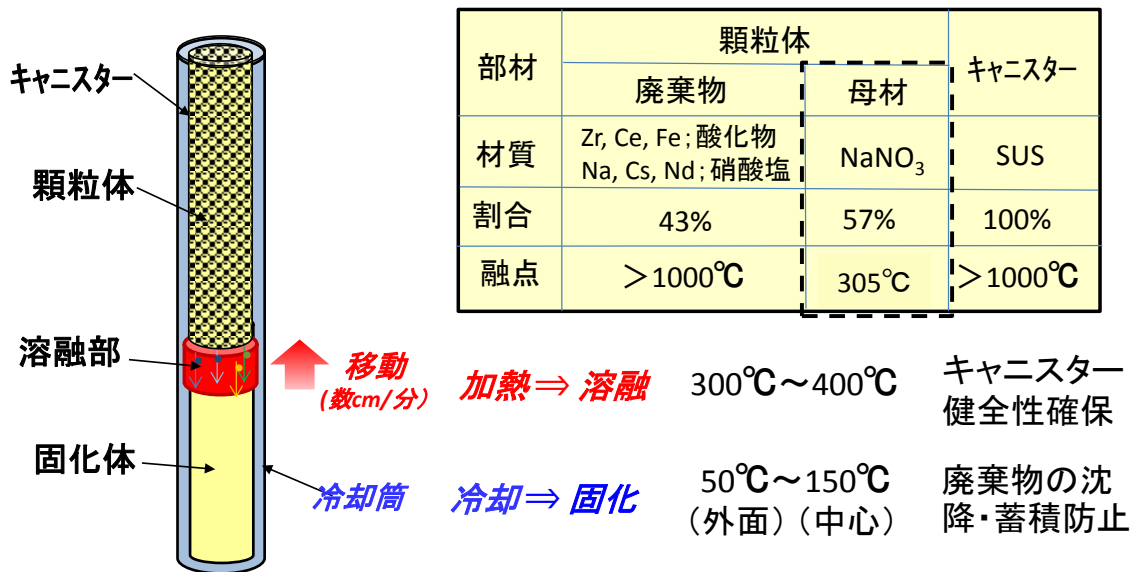


図 3.1-14 廃棄物顆粒体の熔融固化プロセス案

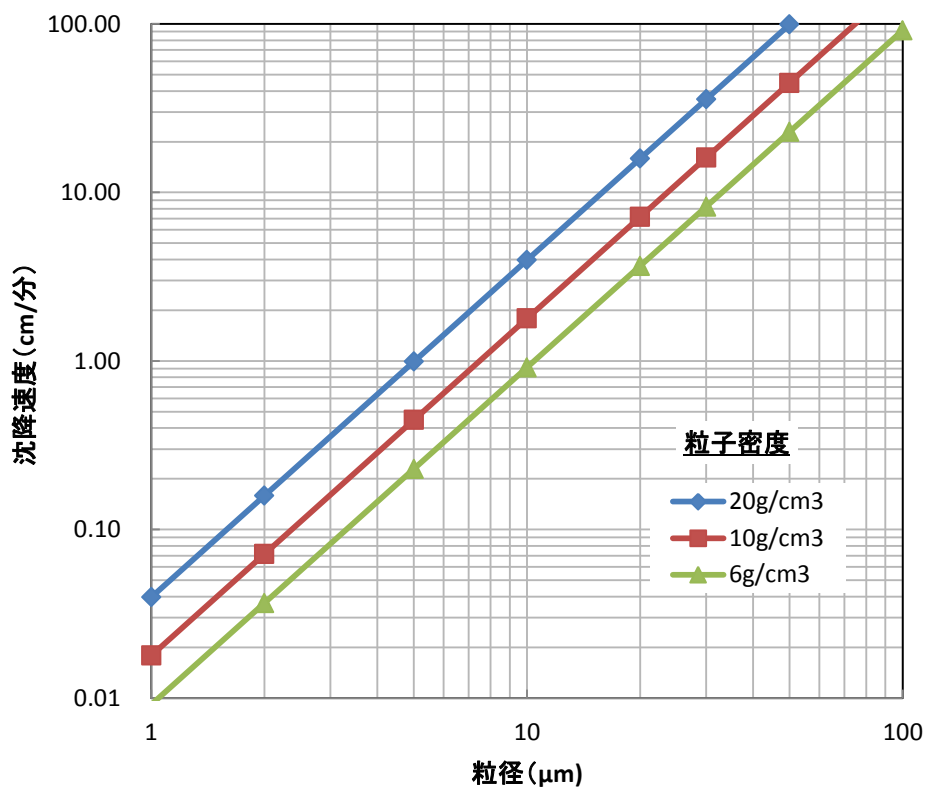


図 3.1-15 廃棄物顆粒体の溶融固化時の粒子沈降速度

案	製造プロセス				特徴・効果(試験等により確認要)				
	脱硝温度	原料粉末 母材	融点	製品化 処理	製品形態	製造性		熱伝導率 (W/m/K)	貯蔵容量 (相対)
						単純さ	揮発対策		
0	600°C	ガラス	1200°C	溶融固化	ガラス 固化体	ベース	ベース	0.9	1
①				—	顆粒体	◎	—	0.15	~1
②	600°C	NaNO ₃ (刊硝石)	305°C	溶融固化	固化体	△	—	~0.5	~1/2
3				成形加熱	焼結体	▲	—	~0.5	~1/2
4	800°C	Na ₂ O	1132°C	—	顆粒体	◎	▲	0.15	~1

図 3.1-16 廃棄物貯蔵形態の処理プロセスと特徴

3.1.2 廃棄物顆粒体製造技術選定

模擬廃棄物顆粒体等に関するこれまでの知見を基に、製造技術として満足すべき要件を明らかにし、高レベル廃棄物のガラス固化処理技術や燃料加工技術に関する文献調査を基に候補技術案を抽出した。

(1) 廃棄物顆粒体製造技術の要件

高レベル放射性廃液（高レベル廃液）は高濃度硝酸に廃棄物元素（FP、アクチニド、プロセスイナート）を溶解させた溶液であり、この廃液から顆粒体を製造するには、まず、廃液の脱水および脱硝により析出固相（酸化物または一部硝酸塩）とし、さらに造粒によって適切な大きさの顆粒体にする必要がある。また、この脱水の過程で高レベル廃液が突沸しないこと、脱硝、造粒の過程で廃棄物元素が揮発逸散しないことも必要である。

次に、実規模の高レベル廃液の顆粒化処理を考えた場合、kgオーダーの重量の廃棄物顆粒体を連続的に製造できる事が必要である。また、高レベル放射性廃液および廃棄物顆粒体は強い放射能を有する事から、遠隔操作が可能で制御が容易な単純な製造プロセスであることが必要であり、製造装置およびその材料が放射線劣化を起こし難いことが望ましい。さらには、製造装置の運転および装置の廃止に伴い発生する放射性廃棄物の量が少なく、その処理処分が容易であることが望ましい。以上の要件をまとめると次のようになる。

- 1) 高レベル放射性廃液の脱水、脱硝および造粒のプロセスからなるシステムである事。
- 2) 脱水過程で高レベル廃液が突沸しない事。
- 3) 脱硝、造粒の過程で廃棄物元素が揮発逸散しない事。
- 4) kgオーダーの重量の廃棄物顆粒体を連続的に製造できるシステムである事。
- 5) 遠隔操作が可能で制御が容易な単純な製造プロセスである事。
- 6) 製造装置およびその材料が放射線劣化を起こし難い事。
- 7) 製造装置の運転及び装置の廃止に伴い発生する放射性廃棄物の処理処分が容易である事。

(2) 高レベル廃棄物ガラス固化処理に用いられる仮焼（Calcination）プロセスの適用

先に述べた廃棄物顆粒体の製造プロセスの一部である高レベル廃液の脱水・脱硝については、現在、フランスにおいて商業規模で運転されているAVM法（Atelier Vitrification de Marcoule）によるガラス固化プラントで用いられている仮焼プロセスを適用できる可能性がある。フランスのラアグガラス固化プラント（La Hague plant）におけるAVM法によるガラス固化プロセスの概要を図3.1-17に示す。AVM法は、高レベル廃液の仮焼（Calcination）プロセスと熔融・ガラス固化プロセス（仮焼体にガラス原料(Glass frit)を加えて熔融、冷却固化）から成り、この仮焼プロセスではロータリーキルンを用いて高レベル廃液の脱水・脱硝が行われる。

フランスではAVM法について継続的な開発、改良を行いながら、これまでに約20,000体のガラス固化体が製造されている。そのプロセスの一つであるロータリーキルンを用いた仮焼プロセスは、実現性の観点から今回の廃棄物顆粒体の製造に適用できる可能性の高い方法と考えられる。なお、仮焼装置であるロータリーキルンの構造や運転条件の詳細はノウハウに属する情報であることから、その公開情報は極めて少なく、廃棄物顆粒体製造への適用に必要な工学的な観点からの詳細な情報は十分に得られない。従って、ここではPetitjeanらによっ

て報告されたラアークガラス固化施設の改良プログラムに関する公開文献情報[1]に基づいて仮焼プロセスの基本的な条件を整理した。

まず始めに、ラアークガラス固化プラントの仮焼プロセスで用いられるロータリーキルンの概略を図3.1-18に示す。図の様にロータリーキルンは回転筒 (Rotating tube) とそれを取り囲む発熱体から成り、発熱体は4つに分割されている (Zone 1-4)。ロータリーキルンは前述の図3.1-17に示す様に傾けて設置されており、高レベル廃液は回転筒の左側 (上側) から回転筒に投入され、重力によって回転筒中を移動する過程で脱水 (Zone 1-2) ・脱硝 (Zone 3-4) された後、仮焼体として右側 (下側) から取り出される。取り出された仮焼体はそのままガラス溶融炉に投入され、ガラス原料を加えて溶融・ガラス固化される。また、脱水・脱硝の過程で発生するガスは回転筒の左上方から取り出され各種処理の後、循環または排出される (図3.1-17参照)。また、図に記載されていないが、回転筒内には攪拌棒が設置されている。

ロータリーキルンの運転において基本となる条件は、温度、廃液供給量、回転速度、等である。ラアークガラス固化プラントの仮焼プロセスにおけるこれらの条件をまとめると以下の様になる。

- 1) 温度： ~200℃ (脱水)、~600℃ (脱硝)
- 2) 廃液供給量： 60~80 L/hr
- 3) 回転速度： 20~30 rpm
- 4) 突沸の抑制：高レベル廃液への硝酸アルミニウム ($Al(NO)_3$) の添加
- 5) Ru揮発の抑制：高レベル廃液への砂糖 (Sugar) の添加

特に温度の管理は良好な仮焼体を得る上で重要であり、Petitjeanらの報告においても回転筒内の温度分布が詳細に評価されている。その評価結果の一例を図3.1-19に示す。図では廃液供給量が75L/hrおよび90L/hrの場合の回転筒内の温度分布の測定値と計算値が示されており、いずれの場合においても、Zone 1 - 2 (位置：0~1.5m) の領域で200℃程度 (脱水)、Zone 3 - 4 (位置：1.5~3m) の領域で600℃程度 (脱硝) に良く制御されている事が分かる。また、その他の条件として、仮焼プロセスにおける突沸を抑制するための硝酸アルミニウム ($Al(NO)_3$) の添加、ルテニウム (Ru) の揮発を抑制するための砂糖 (Sugar) の添加が行われているが、それらの添加量については不明であり、実験的な確認が必要である。

なお、廃液中の Na (プロセスイナート) や Cs (FP) 等のアルカリ金属元素は 600℃の仮焼の後も一部または大部が硝酸塩として存在すると考えられ、また、仮焼の際に溶融状態となり一部は硝酸塩のまま揮発する可能性がある [2]。AVM 法によるガラス固化プロセスでは、仮焼体中のこれらアルカリ金属硝酸塩はその後の溶融・ガラス固化プロセス (約 1100℃) で脱硝され、その際アルカリ金属元素はガラスマトリクス ($SiO_2+B_2O_3$) 中に固定化されて揮発逸散することはない。一方、今回の廃棄物顆粒体製造においては、アルカリ金属元素が顆粒体中で硝酸塩として存在する場合、その融点は 300-400℃と低いことから、廃棄物顆粒体の冷却貯蔵時の材料化学的安定性について十分に確認評価する必要がある。冷却貯蔵時の廃棄物顆粒体の温度については、前節「3.1.1 廃棄物管理システム概念設計」 「(4) 柔軟な廃棄物管理システムの概念設計」において簡易温度解析を行っており、その温度は使用済燃料の再

処理までの冷却期間（発熱量の減衰）に大きく依存することが示されている。再処理までの冷却期間 30 年のケースでは廃棄物顆粒体冷却保管時の最高温度は 200℃程度であるが、再処理までの冷却期間 4 年のケースでは最高温度が 530℃程度になることから（図 3.1-20）、廃棄物顆粒体の温度がアルカリ金属硝酸塩の融点（300-400℃）よりも十分に低く維持される管理条件（再処理までの冷却期間、キャニスターのサイズ／配置、冷却能力等）を設定することが必要である。なお、高レベル廃液中のアルカリ金属元素の量が多い場合は仮焼の際にアルカリ金属元素自身が硝酸塩となる可能性が高いが、アルカリ金属元素の量が少ない場合はアルカリ金属元素が他の析出固相（酸化物）に取り込まれて化学的に安定な化合物（酸化物）となる可能性もある。従って、廃棄物顆粒体の化学的安定性の観点から、アルカリ金属元素を廃棄物から分離して顆粒体に入らないように処理することも一つのオプションとして考えられる。なお、廃棄物顆粒体の化学的安定性については後節「3.2.1 材料化学的安定性評価」において詳しく検討する。

以上のことより、フランスのガラス固化プラント（AVM法）の仮焼プロセスはこれまでに多くの実績を有し、今回の廃棄物顆粒体の製造においてもその実現性の観点から最も適用可能性の高い方法と考えられる。しかしながら、廃棄物顆粒体製造への適用に必要な工学的な観点からの詳細な情報が必要であり、今後、必要な情報を実験／解析によって得ていく必要がある。また、高レベル廃液中にアルカリ金属元素（主にプロセスイナートである溶媒洗浄剤注のNa）が大量に含まれる場合には、廃棄物顆粒体の材料化学的安定性の観点から冷却保管時の温度をアルカリ金属硝酸塩の融点よりも十分に低く維持される管理条件を設定することが必要である。また、アルカリ金属硝酸塩を廃棄物から分離して顆粒体に入らないようにする処理も有効と考えられる。さらには、廃棄物顆粒体の製造においては、製造する仮焼体の粒径の制御および仮焼体から顆粒体を製造する造粒に関する技術開発が必要である。

(3) 燃料粉末製造に用いられるマイクロ波加熱脱硝法の適用

マイクロ波加熱脱硝法（MH法）はMOX（U-Pu）燃料製造のために開発された方法であり、硝酸プルトニウム-硝酸ウラニル混合溶液をマイクロ波により加熱し、沈殿物を経ずに混合酸化物にする転換法である[3, 4]。このMH法は高レベル廃液から高品質な析出固相を効率的に製造する観点から、今回の廃棄物顆粒体の製造にも適用できる可能性がある。MH法による混合転換の工程を図3.1-20に、また、MH法の反応ステップを図3.1-21に示す。硝酸プルトニウム-硝酸ウラニル混合溶液を円形盆状の脱硝皿に供給し、これにマイクロ波（周波数2450MHz）を照射するとマイクロ波による分子振動により内部発熱して溶液の温度が上昇して沸騰するとともに、水分と硝酸が蒸発してウラン・プルトニウムの硝酸塩となる。更にマイクロ波を照射すると脱硝酸化物（ $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_3$ ）になる。この脱硝酸化物はさらに焙焼還元、粉碎篩分の工程を経てウラン・プルトニウム混合酸化物粉末製品（ $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ ）となる。このMH法の特徴は以下の様になる。

- 1) マイクロ波により試料が内部から均一に加熱され、また、脱硝時に均一に発泡するため、均質で粒径の細かい固体粉末が得られる。

- 2) 製造プロセスでキャリアガスを必要としないため排気ガス発生量が少なく、排気処理工程が簡単になる。
- 3) 加熱用のマイクロ波は導波管を通して伝搬されるため、装置が簡易小型であり保守性に優れる。
- 4) 装置の運転が容易で安全性に優れる。
- 5) これまでにトンオーダーの原料粉末を転換した実績がある（旧動燃、旧サイクル機構）。

以上のことより、MH法の適用によって高レベル廃液から均質な析出固相を効率的に製造できる可能性があると判断される。なお、MH法を高レベル廃液の脱水・脱硝に適用する場合、確認検討すべき事項がいくつか存在する。まづ第一に、高レベル廃液の脱水・脱硝時の温度管理である。硝酸プルトニウム-硝酸ウラニル混合溶液から脱水・脱硝によって酸化物を得る場合は、プルトニウム、ウランのいずれも揮発性が低いため厳密な温度管理の必要性は低い。一方、高レベル廃液は前節で述べた様に様々な元素を含み、揮発性の高い元素はその揮発逸散を抑制するために脱水・脱硝時の温度を厳密に管理する必要がある、その温度制御技術を確認する事が求められる。また、アルカリ金属元素の取扱い、粒径の制御および顆粒体の造粒については、前節の仮焼プロセスの場合と同様に技術開発が必要である。

参考文献

- [1] V.Petitjean, R.De Vera, et al., “La Hague Continuous Improvement Program: Enhancement of the Vitrification Throughput”, Proceedings of Waste Management’ 06 Conference, February 26-March 2, 2006, Tucson, AZ.
- [2] 電中研レビュー, 乾式リサイクル技術・金属燃料 FBR の実現に向けて, 第 6 章 高レベル廃液からの超ウラン元素の分離技術, No. 37, 49, 2000.
- [3] 細馬隆、市毛浩次、高橋芳晴、マイクロ波加熱直接脱硝法による混合転換プロセスの実証 20年の歩みープルトニウム転換技術開発施設の運転経験と技術開発ー, サイクル機構技法, No. 24, 11, 2004.
- [4] 辻信雄、マイクロ波加熱直接脱硝法による転換技術の開発、動燃技報 No. 52, 198, 1984.

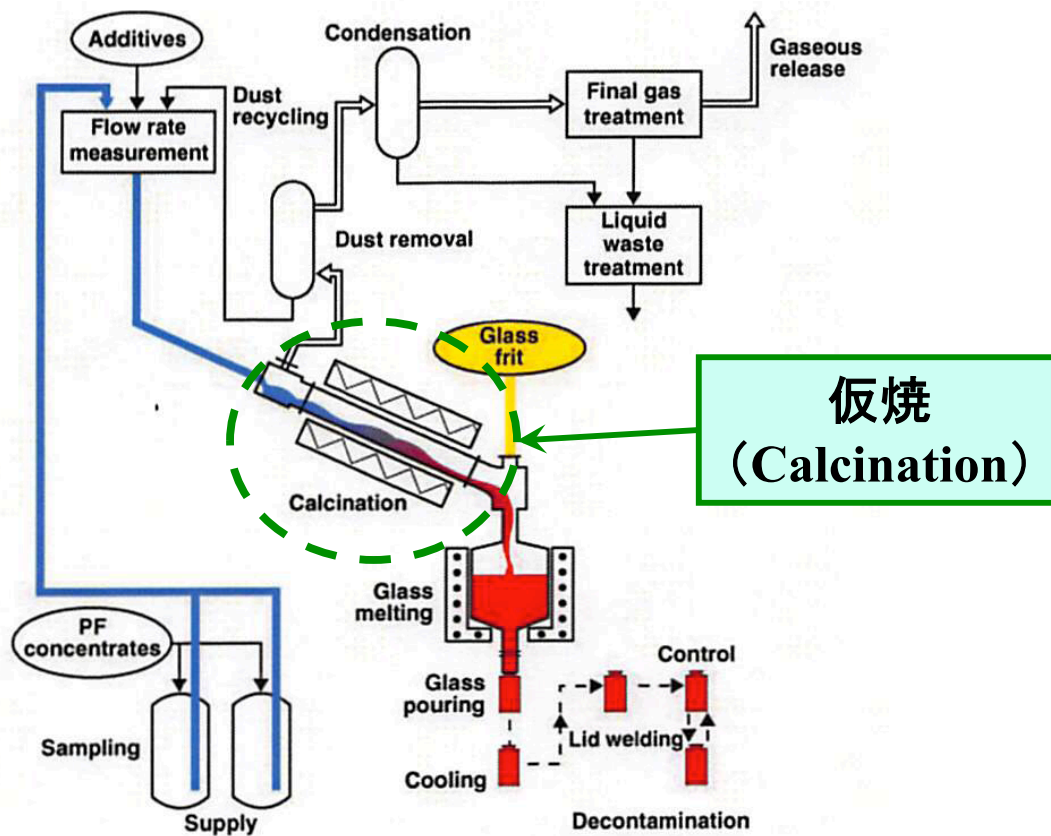


図3.1-17 ラアークガラス固化施設におけるAVM法によるガラス固化プロセスの概要

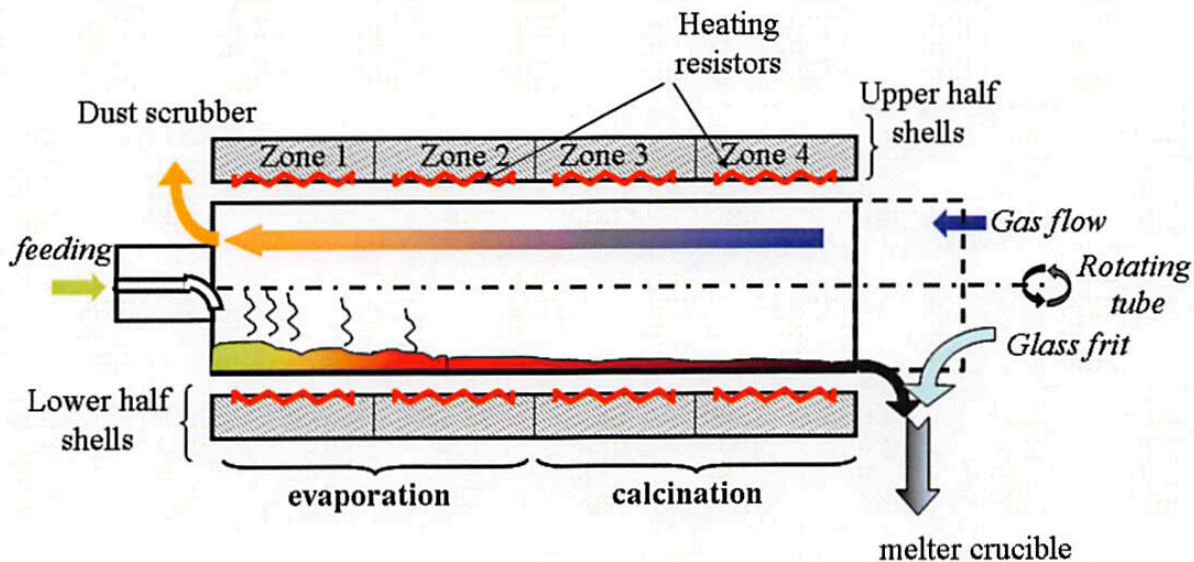


図3.1-18 ラアークガラス固化プラントの仮焼プロセスで用いられるロータリーキルンの概略 [1]

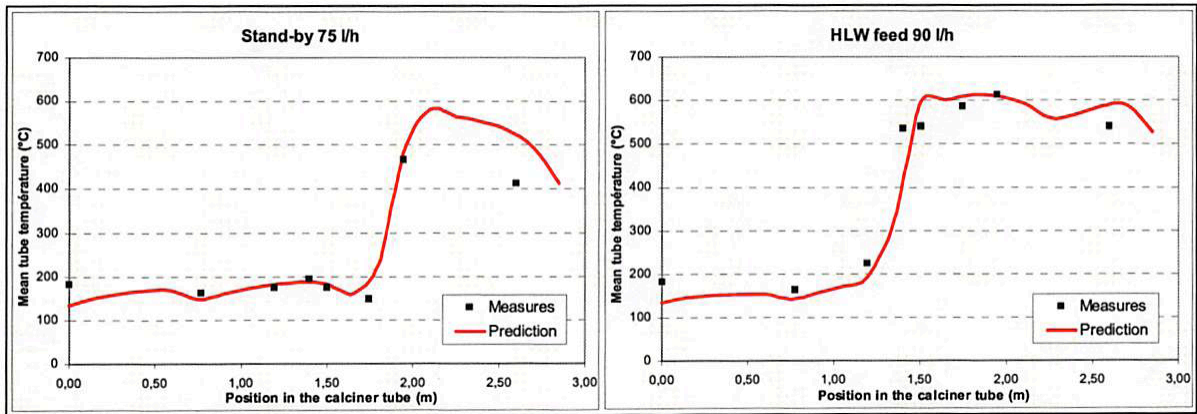


図3.1-19 ラーグガラス固化プラントのロータリーキルン回転筒内の温度分布
(廃液供給量75L/hrと90L/hrの場合) [1]

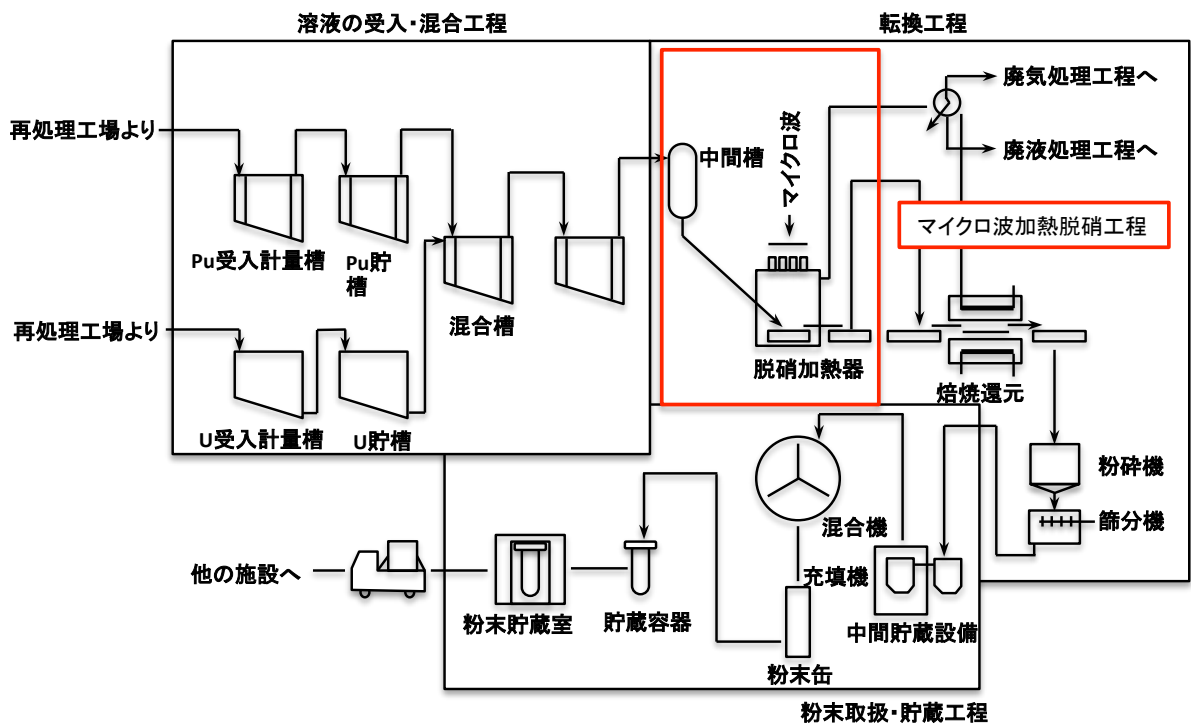


図3.1-20 MH法による混合転換の工程 [4]

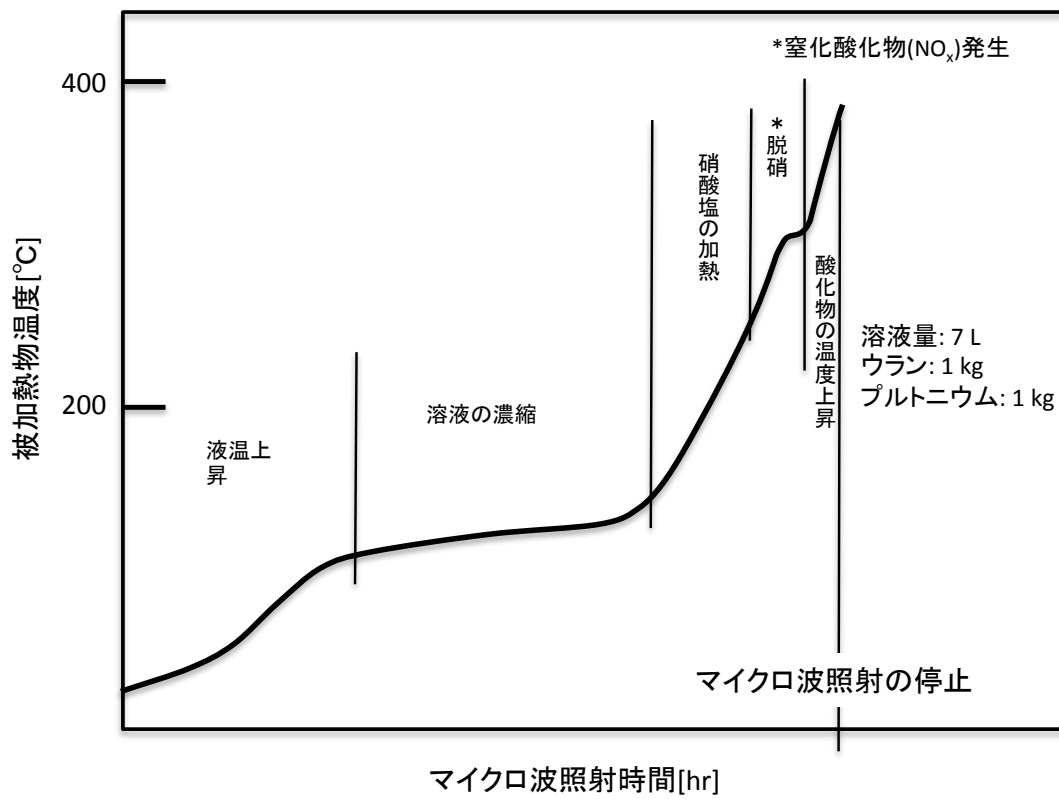


図3.1-21 MH法の反応ステップ [4]

3.2 長期廃棄物顆粒体貯蔵の成立性評価 (H25-H26)

3.2.1 材料化学的安定性評価

廃棄物顆粒体の材料化学的安定性について、文献調査等により得られる知見・データから評価を行った。次に、アクチニド酸化物の各種物性を分子動力学計算により評価するための準備を進めた。また、模擬高レベル廃液を作製し、顆粒体化までの脱水・脱硝過程を確認する基礎試験を実施した。

我が国の再処理で発生する高レベル廃液の組成を文献調査し、基礎試験で用いる模擬廃液の組成を決定した。模擬廃液の脱水・脱硝過程を確認する基礎試験を行い、 $\sim 600^{\circ}\text{C}$ で析出固相が得られることを確認した。また、アクチニド酸化物の各種物性を分子動力学計算により評価するための基礎データを収集、整備した。

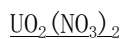
(1) 廃棄物顆粒体の材料化学的安定性の予備的評価

(1.1) 高レベル廃液組成

顆粒体の材料化学的安定性を考える上で、その組成は、それ自身が持つ最も基本的な性質である。顆粒体は高レベル廃液から直接製造することが想定されるため、まず、高レベル廃液の組成を過去の研究を参考に検討した。ここでは、2つの代表的な高レベル廃液組成を表3.2-1[1]および表3.2-2[2]に示す。いずれの廃液組成を見ても、Naがモル濃度の半分以上を占めることが分かる。これは、燃料再処理工程におけるTBPの放射線劣化によって生じるDBPおよびMBPを洗浄するために、炭酸ナトリウムや水酸化ナトリウムとして加えられたものを由来とする。現在の東海再処理工場や六ヶ所再処理工場では高レベル廃液からNaを除くことは想定されていないが、今後検討される顆粒体の組成に関して、材料化学的安定性の観点からNaが不要であると判断されれば、Naを含まない劣化溶媒洗浄剤またはNaを高レベル廃液に加えない工程の開発も検討する必要がある。また、Na以外については、FeおよびCr、Niは構造材の腐食生成物として廃液中に存在し、希土類、貴金属はFP収率が高いため存在量が多く、アクチニドは電中研の評価(表3.2-2)で存在量が多く、次いでアルカリ、低融点金属が多く含まれる結果となっている。

(1.2) 硝酸塩の融解・熱分解挙動

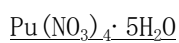
高レベル廃液は硝酸溶液として排出され、顆粒体はこれらの硝酸廃液を熱処理することで製造される。そこで、表3.2-1および3.2-2中の金属について、代表的な硝酸塩の融解・熱分解挙動を整理すると以下のようになる。



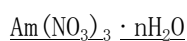
250°C - 450°C で熱分解し UO_3 へ、 500°C 以上ではそれに加えて U_3O_8 が生成する[3]。



前者は 50°C で熱分解が始まり NpO_2 へ、後者は 310°C - 340°C で熱分解し、それ以上の温度で NpO_2 へ変化する[4]。



40°C で熱分解が始まり、 250°C で急速に PuO_2 が生成する[4]。



95°C - 200°C で熱分解が起こり、 355°C 以上で AmO_{2-x} へ変化する[5]。図3.2-1参照。

Cm(NO₃)₃·nH₂O

90° C-180° C で熱分解が起こり、400° C -450° C 以上で Cm₂O₃ へ変化する[5]。図 3.2-1 参照。

RbNO₃

融点 294° C で、熱分解は、609° C で SB、642° C で RB、881° C で VB が起こる[6]。以下の表記は Gordon 等の論文に従って、SB は slight bubbling、RB は rapid bubbling、VB は vigorous bubbling のことを意味する[6]。図 3.2-2 参照。

CsNO₃

融点は 425° C -440° C 付近、710° C 以上で激しく蒸発する[7]。図 3.2-3 参照。

Sr(NO₂)₂

融点は 355° C -500° C 付近、600° C で脱硝反応が起こり、700° C で SrO へ完全に变化する[7]。図 3.2-3 参照。

Ba(NO₃)₂

融点は 588° C、熱分解挙動は、605° C で SB、661° C で SN、691° C で RN が見られる[6]。以下の表記は Gordon 等の論文に従って、SN は slight nitrous fumes、RN は rapid nitrous fumes のことを意味する[6]。図 3.2-4 参照。

Y(NO₃)₃·6H₂O

430° C で YONO₃ へ、700° C 以上で Y₂O₃ へ変化する[8]。

La(NO₃)₃

240° C -420° C で熱分解し、515° C -575° C で LaONO₃、730° C で La₂O₃ へ変化する[9]。

Ce(NO₃)₃·6H₂O

400° C まで連続的に脱水・熱分解反応して、酸化物へ変化する[7]。図 3.2-3 参照。

Pr(NO₃)₃·6H₂O

400° C 前後で脱硝・熱分解反応し、Pr₂O₃ へ変化する[8]。

Nd(NO₃)₃

280° C -350° C で熱分解し、460° C -500° C で NdONO₃ へ変化、650° C で Nd₂O₃ となる[9]。

Sm(NO₃)₃·6H₂O

350° C で脱水、400° C で SmONO₃、700° C 以上で Sm₂O₃ へと変化する[8]。

Eu(NO₃)₃·4H₂O

75° C -80° C で熱分解が始まり、455° C -480° C で EuONO₃ へ、730° C -760° C 以上では Eu₂O₃ を生成する[10]。図 3.2-5 参照。

Gd(NO₃)₃·4H₂O

Eu の場合とほとんど同じ挙動を示す。75° C -80° C で熱分解が始まり、455° C -480° C で GdONO₃ へ、730° C -760° C 以上では Gd₂O₃ を生成する[10]。図 3.2-5 参照。

ZrO(NO₃)₂·2H₂O

400° C まで連続的に脱水・脱硝し、ZrO₂ へ変化する[7]。図 3.2-3 参照。

Mo(NO₃)₆

245° C で熱分解し、MoO₃ へ変化する[11]。

Ru(NO₃)₃、RuO₂

前者の $\text{Ru}(\text{NO}_3)_3$ は、ORNL のレポートによると、溶液中では硝酸濃度が高くなるか（4 M 以上）、 350°C 以上になると RuO_4 の揮発性が高くなるとの報告がある[12]。一方、後者の RuO_2 は 1000°C まで安定に存在する[7]。図 3.2-3 参照。

$\text{Rh}(\text{NO}_3)_2$

50°C で熱分解し、 250°C で RhONO_3 、 450°C 以上で Rh_2O_3 へと変化する[8]。

$\text{Pd}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$

127°C で脱水、 327°C で PdO へ変化する[9]。

AgNO_3

融点は 214°C 、熱分解反応は、 305°C で RB 、 469°C で RN が見られる[6]。図 3.2-6 参照。

$\text{Cd}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$

融点は 66°C 、熱分解反応は、 345°C で SN 、 379°C で RN が見られる[6]。図 3.2-7 参照。

$\text{In}(\text{NO}_3)_3$

90°C までは安定に存在する[9]。

$\text{Sn}(\text{NO}_3)_4$

融点は 91°C 、 98°C から熱分解を起こす[9]。

$\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$

167°C で熱分解を開始し、 250°C で Fe_2O_3 へ変化する[13]。

$\text{Cr}(\text{NO}_3)_3$

100°C で熱分解し、 200°C で Cr_2O_3 へと変化する[9]。

$\text{Ni}(\text{NO}_3)_2$ 、 $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$

前者は、 260°C で熱分解反応を起こす[9]。後者は、 50°C 付近から熱分解反応（脱水・脱硝反応）を開始し、 350°C で NiO へと変化する[13]。図 3.2-8 参照。

NaNO_3

Na は高レベル廃液の中にモル濃度で半分以上含まれることから、その熱分解挙動は他のものに比較して一層重要となる。田川は NaNO_3 熱分解挙動について、相転移点は 275°C 、融点は $306\text{--}315^\circ\text{C}$ 、 491°C で分解が開始、 750°C で NaNO_2 、最終的に Na_2O へと変化するると報告している[8]。

顆粒体を作製する上で、硝酸塩の特に酸化物への変態温度は、熱処理温度を決定するのに重要である。これらの硝酸塩の酸化物への変態温度を図 3.2-9 にまとめた。 500°C から 600°C の間にギャップのあることが分かる。それ以上の温度を持つものにはアルカリ金属および一部の希土類元素が含まれる。これらのアルカリ金属は、高温では酸化物としてよりも硝酸溶融塩として存在する方が化学的に安定であることが理由である。但し、酸化物になると、 Cs 、 Rb は著しく揮発する。一方、希土類元素は論文だけでは変態温度を読み取るのは難しいが、おそらくこれより低い温度ですでに酸化物への変化は始まっていると考えてよい。 Ru は RuO_2 は安定であるものの、更に酸化して RuO_4 になると極めて揮発性が高くなると考えられる。

(1.3) ナトリウム化合物による顆粒体充填容器材腐食挙動

本システムでは顆粒体がある程度発熱することから、金属製のキャニスターに充填して冷却す

る予定である。その場合、顆粒体とそれに接触する金属製キャニスターとの間の共存性を確保しなければならない。金属製キャニスターの材料はまだ決まっていはいないが、炭素鋼あるいはステンレス鋼になる可能性が高い。ここでは、キャニスターとして鉄鋼材料を仮定し、顆粒体との化学的安定性について既往研究から考察する。

顆粒体に関しては仮焼する温度にもよるが、500-600°Cの仮焼では高レベル廃液にモル濃度として半分以上含まれる Na 硝酸塩がそのまま硝酸塩として存在すると予想される。顆粒体の冷却貯蔵中の温度は NaNO₃ の相転移点 (275°C) または融点 (~305°C) 以下になる様に貯蔵設備を設計することになるが、事故による冷却機能の喪失で局所的に温度が上がる可能性を想定して、ここではその最高温度を 600° C 程度とすると、NaNO₃ は溶融塩の状態が存在することになる。Goods 等の溶融塩 (NaNO₃-KNO₃ = 60:40) によるステンレス鋼および炭素鋼の腐食の研究を紹介する[21]。この溶融塩の融点は 238° C である。実験条件として、溶融塩に関しては薬品製造メーカーによる違い、塩素濃度による違い等を検討し、鉄鋼材料としては 304SS (C:Mn:Si:Cr:Ni = 0.08:2.0:1.0:18-20:8-10wt%) および 316SS (C:Mn:Si:Mo:Cr:Ni = 0.08:2.0:1.0:2-3:16-18:10-14wt%)、A36 (C:Mn:Si:Cu = 0.29:0.85-1.2:0.15-0.3:0.2wt%) を試験対象とし、溶融塩の温度は 316° C から 570° C としている。ステンレス鋼の 570°C の重量減少曲線は、放物線則とも線形則とも区別できない挙動を示し、これらステンレス鋼では腐食量に大きな差はなく、570° C において年間あたり 6-15 μm の減肉が認められたと報告している。炭素鋼の腐食量は、316°C において、年間あたり 1-4 μm の減肉が見積もられている。

一方、高レベル廃液を 600° C よりも高温で熱処理すれば、蒸気圧は高くなるものの、Na 化合物は Na 酸化物として存在する可能性が高くなる。この場合、保管中は固体、あるいはガスとしてキャニスター内に存在することになる。ここでは数少ない研究例の中から古川等によるナトリウム酸化物と炭素鋼との高温反応について紹介する[15]。試験内容は、ナトリウム化合物として Na₂O、鉄鋼材料としては炭素鋼 (C:Mn:Si = 0.14-0.15:0.43-1.07:0.19-0.23wt%) を使用し、アルゴンガス中で最高温度 1200° C まで加熱するものであった。結果は 600°C では短時間ではあるが炭素鋼の腐食は見られなかった。700° C から 800° C では Na₂O からヒュームが発生し、炭素鋼との間に液相反応が見られた。顆粒体の保管温度を仮に 600° C としても、試験期間が短いため、Na₂O と炭素鋼との腐食挙動を予測するのは、この研究からだけでは困難であり、更なる実験的な評価が必要と考えられる。

(1.4) 廃棄物顆粒体の熱伝導特性

廃棄物顆粒体は金属製のキャニスターに充填されて冷却貯蔵される。顆粒体およびキャニスターの温度は冷却貯蔵システムの長期健全性を評価する上で最も重要な因子の一つであることから、ここでは顆粒体が充填されたキャニスターの熱伝導特性について物理化学的観点から考察する。

顆粒体充填系の熱伝導特性に影響を及ぼす因子の一つとしてまず始めに検討すべきは、顆粒体の粒子サイズである。顆粒体充填系の熱伝導特性は顆粒体間の空隙サイズおよび空隙を満たす気体の熱伝導特性に大きな影響を受けるからである。粒子サイズが 0.5mm 程度では、空隙を満たすガス分子同士の衝突過程が空隙部分の熱伝導性を支配する。一方、粒子サイズが小さくなると、ガス分子同士の衝突による熱伝導への寄与は小さくなり、代わって粒子壁とガスとの衝突過程が支配的となる[16]。顆粒体の粒子サイズはその製造過程である仮焼、粉碎、造粒、その他の条件

に依存して変化し、また、実際の製造においては粒子サイズにある程度のばらつきが生じる。冷却貯蔵システムの設計とその信頼性の観点からは安定的な有効熱伝導率が望まれるが、そのためには一定の物理的・化学的過程が熱的特性を支配するような粒子サイズを設定し、そのための製造条件を設定することが必要である。

次に検討すべき因子は顆粒体を構成する化合物の種類である。顆粒体は多種の核分裂生成物、アクチニド、プロセスイナートを含み、多成分、多相からなる混合物である。前節の「(1.2) 硝酸塩の融解・熱分解挙動」においては各元素の硝酸塩および酸化物について示したが、廃液の組成や顆粒体の製造条件によってはこれらに加えて複雑な化合物が生成する可能性がある。燃焼度が高い高速炉燃料では燃焼度の低い軽水炉燃料に比べて多くの核分裂生成物が生成され、例えば、核分裂収率の比較的大きい Cs や Mo は燃料中で Cs_2MoO_4 を生成する[18]。この物質は融点が比較的 low 揮発性で水に可溶性である。高レベル廃液のガラス固化においてガラス中にイエローフェーズと呼ばれる分離相が生じることがあるが、 Cs_2MoO_4 はイエローフェーズの代表的な化合物であり、前節「3.1.2 廃棄物顆粒体製造技術選定」に示した高レベル廃液の仮焼プロセスにおいてもこの化合物が生成する可能性がある。仮焼温度が高い場合、この化合物は溶融塩となり顆粒体の表面を部分的に覆い、顆粒体は互いに面的に接触するようになる可能性がある。その場合、空隙を含む顆粒体の微細構造が変わり固相部分と顆粒体間の空隙を満たすガスの役割は、アルミナビーズやゼオライト粒子の場合のような粒子が互いに概ね点接触する系に比べて、大きく異なったものになると考えられるため、consolidated particles[16]としての検討が必要になる可能性がある。したがって、長期貯蔵時にどのような特性を持った顆粒体とすべきかについて、仮焼温度をはじめとする製造条件を含めて実験／モデル化を行い検討することが必要と考えられる。 Cs_2MoO_4 の生成量やこのほかの低融点の化合物については、核燃料挙動解析のための熱力学計算コード[17]を使って計算評価できることから、その活用も選択肢の一つである。また、貯蔵容器の長期健全性を検討する際、 Cs_2MoO_4 は Cs_2O や Na_2O の運び手として働き貯蔵容器 (SUS) の耐食性に重要な役割を持つクロム酸化物と反応して SUS の粒界腐食 (intergranular attack) を促進する化学種となる可能性も考えられる[18]。

さらに再処理や高レベル廃液の処理工程を考慮したシステム全体の検討も必要となる。高レベル廃液を高温で仮焼し NO_x を熱分解する処理も一つのケーススタディの対象となる。一方、現在の廃液はガラス固化体製造を前提として溶媒洗浄等に用いた Na 等のアルカリ成分を過剰に加えており、顆粒体中には $NaNO_3$ や Na_2O とその混合物が大過剰に存在するが、いずれも融点が低く蒸気圧が高い。したがって、顆粒体の熱伝導特性、中でも顆粒体同士の接触に関して、長期貯蔵時の健全性に影響を及ぼす可能性がある。上述の Cs_2MoO_4 や、 $NaNO_3$ または Na_2O が顆粒体の特性に及ぼす影響を小さくする選択肢として、廃液から事前に Na を分離することとともに、再処理工程で一部の硝酸ウランを廃液側に入れるまたは二酸化ウランを添加することが考えられる。ウランの添加により Cs_2UO_4 や $Cs_2U_2O_7$ 、 Na_3UO_4 等の比較的安定な化合物が生成すると考えられ、顆粒体の熱的特性や貯蔵容器の耐食性を改善させる可能性がある。このような検討を進めるうえでも、熱力学計算コード[17]の活用は有効と考えられる。

参考文献

- [1] 電中研レビュー, 乾式リサイクル技術・金属燃料 FBR の実現に向けて, 第 6 章 高レベル廃液からの超ウラン元素の分離技術, No. 37, 49, 2000.
- [2] 角田直己、岸本洋一郎、河田東海夫、根元慎一、小林洋昭、再処理高レベル廃液中の放射性核種の郡分離に関する研究, PNCT N8410, 87-08(1987).
- [3] R. S. Ondrejcin, T.P. Garrett Jr., J. Phys. Chem. 65 (1961) 470.
- [4] U. Casellato, P. Vigato, Cood. Chem. Rev. 36 (1981) 183.
- [5] V.L. Vasilyev, E.S. Kalevich, V.M. Radchenko, E.V. Shimbarev, V.P. Egunov, A.N. Izmalkov, V. Ya. Vasilyev, J. Radioanal. Nucl. Chem. 143 (1990) 269.
- [6] S. Gordon, C. Campbell, Anal. Chem. 27 (1955) 1102.
- [7] P.F. Campbell, M.H. Ortner, C.J. Anderson, Anal. Chem. 33 (1961) 58.
- [8] 田川博章, 横浜国大環境研紀要 14 (1987) 41.
- [9] K.H. Stern, J. Phys. Chem. Ref. Data, 1 (1972) 747.
- [10] W.W. Wendlandt, J.L. Bear, J. Inorg. Nucl. Chem. 12 (1960) 276.
- [11] M.S. Refat, S.A. Sadeek, S.M. Teleb, J. Argent. Chem. Soc. 92 (2004) 23.
- [12] ORNL-5562.
- [13] M.A.A. Elmasry, A. Gaber, E.M.H. Khater, J. Therm. Anal. 52 (1998) 489.
- [14] S.H. Goods, R.W. Bradshaw, J. Mater. Eng. Perform. 13 (2004) 78.
- [15] T. Furukawa, E. Yoshida, Y. Nagae, K. Aoto, Electrochemical Society Proceedings 98-9 (1998) 312.
- [16] Daizo KUNII, J.M. SMITH, "Heat Transfer Characteristics of Porous Rocks", A. I. Ch. E. Journal, Vol. 6, 71-78(1960).
- [17] T. M. Besmann, "SOLGASMIX-PV, a Computer Program to Calculate Equilibrium Relationships in Complex Chemical Systems", ORNL/TM-5775 (1977).
- [18] D. R. Olander, "Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements", TID-26711-P1(1976).

表 3.2-1 動燃再処理工場から発生する廃液組成 (ORIGEN コード使用) [1]

元 素	高レベル放射性廃液				酸化物重量での 占める割合 【%】
	モル濃度 (mol/ℓ)	溶 液 中 での化学形	酸 化 物 化 学 形	酸化物重量 【g/ℓ】	
H	2.0	H ⁺			
Na	0.97	Na ⁺	Na ₂ O	30.06	
Rb	0.0071	Rb ⁺²	Rb ₂ O	0.67	
Cs	0.032	Cs ⁺	Cs ₂ O	4.55	
Sr	0.017	Sr ⁺²	SrO	1.83	
Ba	0.019	Ba ⁺²	BaO	2.98	
Y	0.0098	Y ⁺³	Y ₂ O ₃	1.10	
La	0.016		La ₂ O ₃	2.56	
Ce	0.031		Ce ₂ O ₃	5.01	
Pr	0.015		Pr ₂ O ₃	2.45	
Nd	0.049	RE ⁺³	Nd ₂ O ₃	8.31	
Pm	0.0004		Pm ₂ O ₃	0.07	
Sm	0.010		Sm ₂ O ₃	1.77	
Eu	0.0016		Eu ₂ O ₃	0.28	
Gd	0.0008		Gd ₂ O ₃	0.15	
(Tb, Dy, Ho, Er は無視)					
Zr	0.071	Zr ⁺⁴ or ZrO ⁺²	ZrO ₂	8.91	全F.P.および添加試薬 合計 96.6
Nb	-	-	Nb ₂ O ₅	-	
Mo	0.061	MoO ₄ ⁻²	MoO ₃	8.81	
Tc	0.015	TcO ₄ ⁻	Tc ₂ O ₇	2.27	
Ru	0.034	Ru ⁺⁴	RuO ₂	4.49	
Rh	0.0068	Rh ⁺³	Rh ₂ O ₃	0.86	
Pd	0.017	Pd ⁺²	PdO	2.12	
Ag	0.00077	Ag ⁺	Ag ₂ O	0.09	
Cd	0.00088	Cd ⁺²	CdO	0.11	
In	0.00002	-	In ₂ O	-	
Sn	0.0006	SnO ₃ ⁻²	SnO	0.09	
Sb	0.00015	SbO ⁺	Sb ₂ O ₃	0.02	
Te	0.0071	TeOOH ⁺	TeO ₂	1.14	
Ge	-	-	GeO ₂	-	
As	-	-	As ₂ O ₃	-	
Se	0.011	SeO ₃ ⁻²	SeO	0.13	
Fe	0.04	-	Fe ₂ O ₃	3.19	
Cr	0.0074	-	Cr ₂ O ₃	0.56	
Ni	0.0051	-	NiO	0.38	
U	0.0081	UO ₂ ⁺²	UO ₂	2.31	
Np	0.0032	NpO ₂ ⁺	NpO ₂	0.86	
Pu	0.00022	Pu ⁺⁴	PuO ₂	0.06	
Am	0.0005	Am ⁺³	Am ₂ O ₃	0.13	
Cm	0.00005	Cm ⁺³	Cm ₂ O ₃	0.013	
計	3.4686			98.33	

表 3.2-2 使用済燃料 1 トンの再処理で発生する高レベル廃液の元素組成
 (電中研による評価。ORIGEN コード使用、PWR 48 GwD/t-U、4 年冷却) [2]

(a) アクチノイド

	質量数	重量 (g)	モル数 (mol)	合計
U	234	1.37E-01	2.92E-04	19.73
	235	4.24E+01	9.03E-02	
	236	4.70E+01	9.95E-02	
	238	9.30E+03	1.95E+01	
Np	237	7.16E+02	3.02E+00	
Pu	238	3.27E+00	6.87E-03	0.22
	239	5.10E+01	1.07E-01	
	240	2.75E+01	5.74E-02	
	241	1.35E+01	2.79E-02	
	242	8.97E+00	1.85E-02	
Am	241	3.37E+02	1.40E+00	2.41
	243	2.46E+02	1.01E+00	
Cm	243	9.15E-01	3.77E-03	0.41
	244	9.32E+01	3.82E-01	
	245	4.89E+00	2.00E-02	
	246	9.70E-01	3.94E-03	

(b) 核分裂生成物

	重量 (g)	モル数		重量 (g)	モル数
Rb	473.7	5.48	Zr	4976	53.34
Cs	3646	27.01	Mo	4795	49.13
Sr	1119	12.56	Tc	1050	10.61
Ba	2370	17.25	Ru	3346	32.78
Y	617.7	6.94	Rh	575.3	5.59
La	1736	12.49	Pd	2376	22.45
Ce	3393	24.08	Ag	117.5	1.08
Pr	1579	11.2	Cd	202.9	1.82
Nd	5770	39.81	Sn	137	1.13
Pm	46.27	0.32	Se	78.88	0.98
Sm	1163	7.78	Te	715.8	5.53
Eu	231	1.51			
Gd	244.5	1.57			
Fe	3500	62.67	(腐食生成物)		
Na	12650	550.24	(溶媒洗浄剤)		

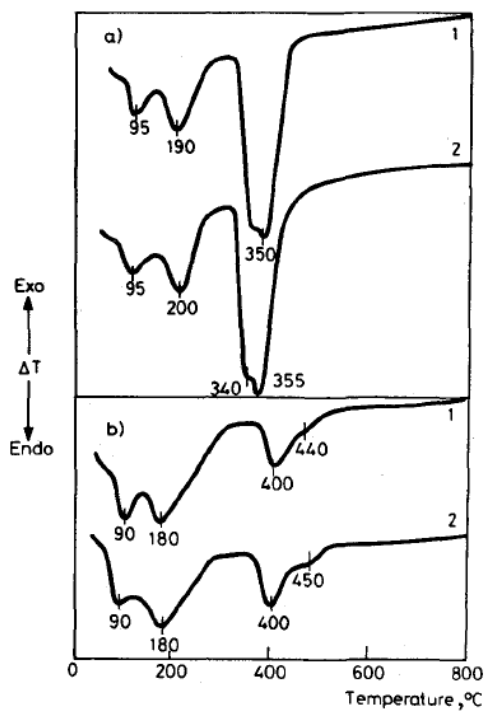


図 3.2-1 Am および Cm 硝酸塩の熱分解反応曲線 (1: Am, 2: Cm)

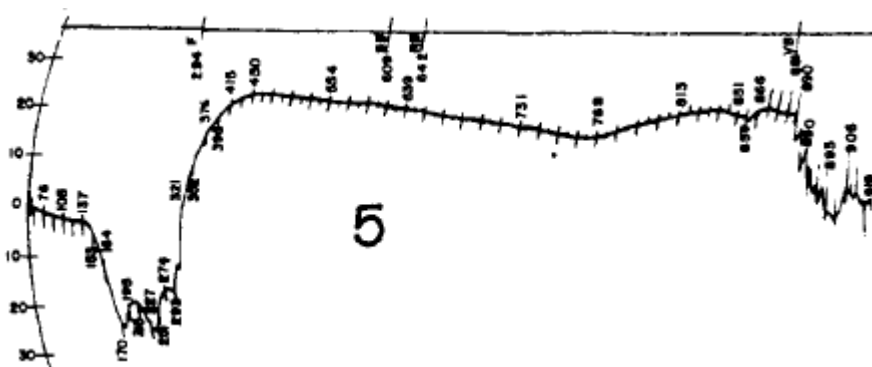


図 3.2-2 Rb 硝酸塩の熱分解反応曲線

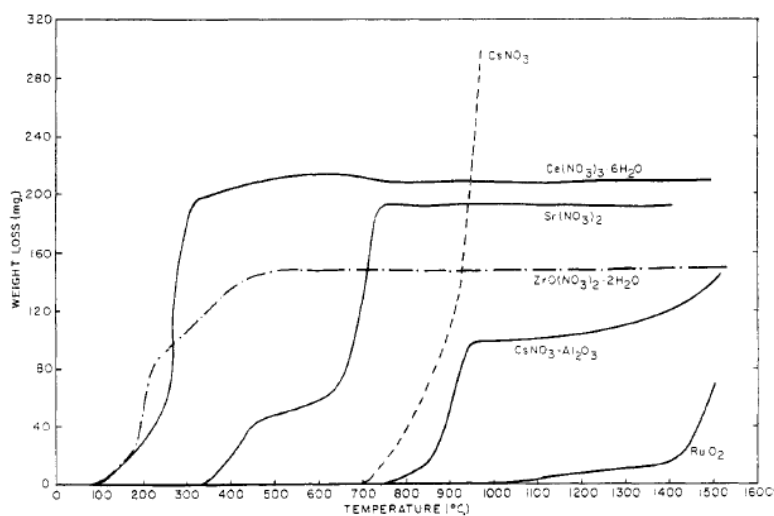


図 3.2-3 Cs、Sr、Ce、ZrO 硝酸塩および Ru 酸化物の熱分解反応曲線

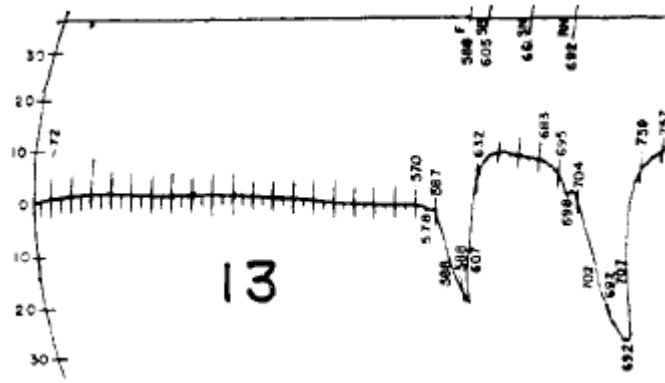


図 3.2-4 Ba 硝酸塩の熱分解反応曲線

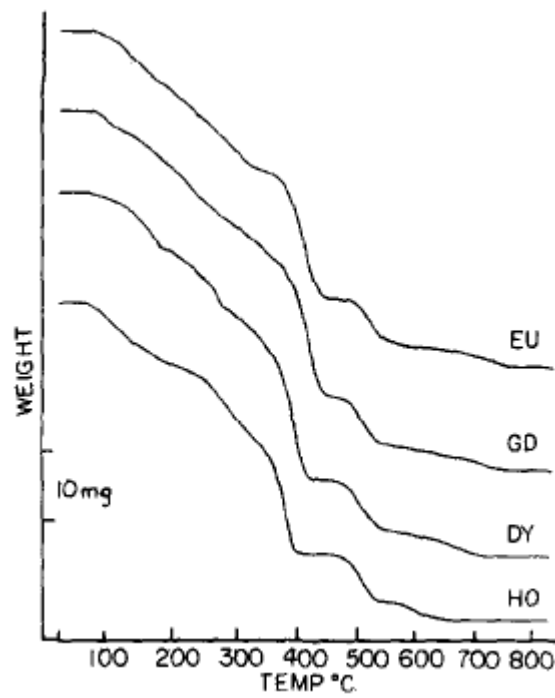


図 3.2-5 Eu および Gd 硝酸塩の熱分解反応曲線

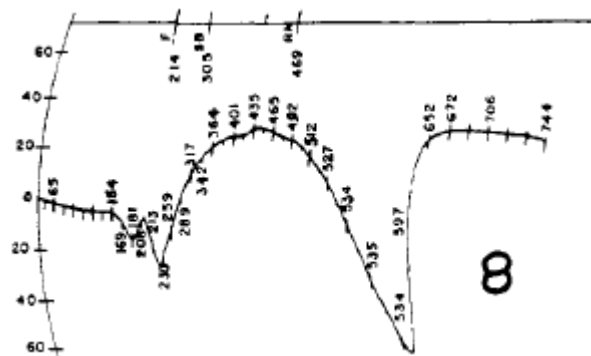


図 3.2-6 Ag 硝酸塩の熱分解反応曲線

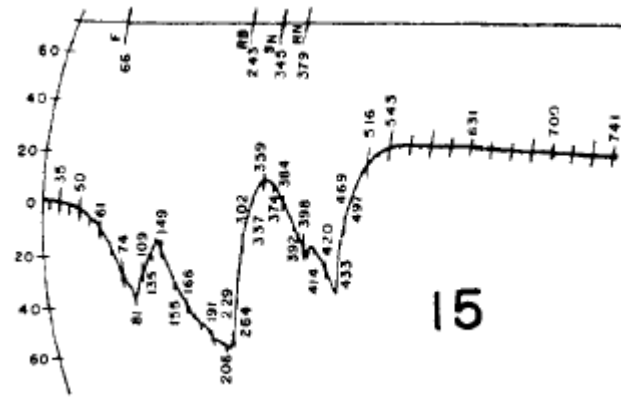


図 3.2-7 Cd 硝酸塩の熱分解反応曲線

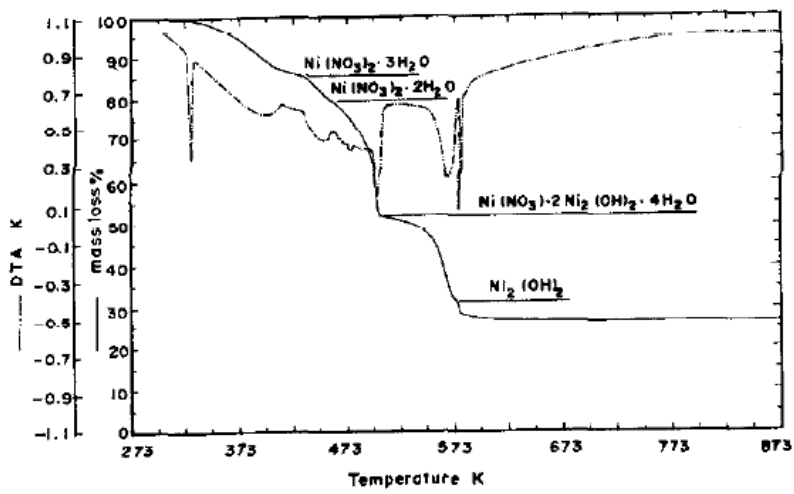


図 3.2-8 Ni 硝酸塩の熱分解反応曲線

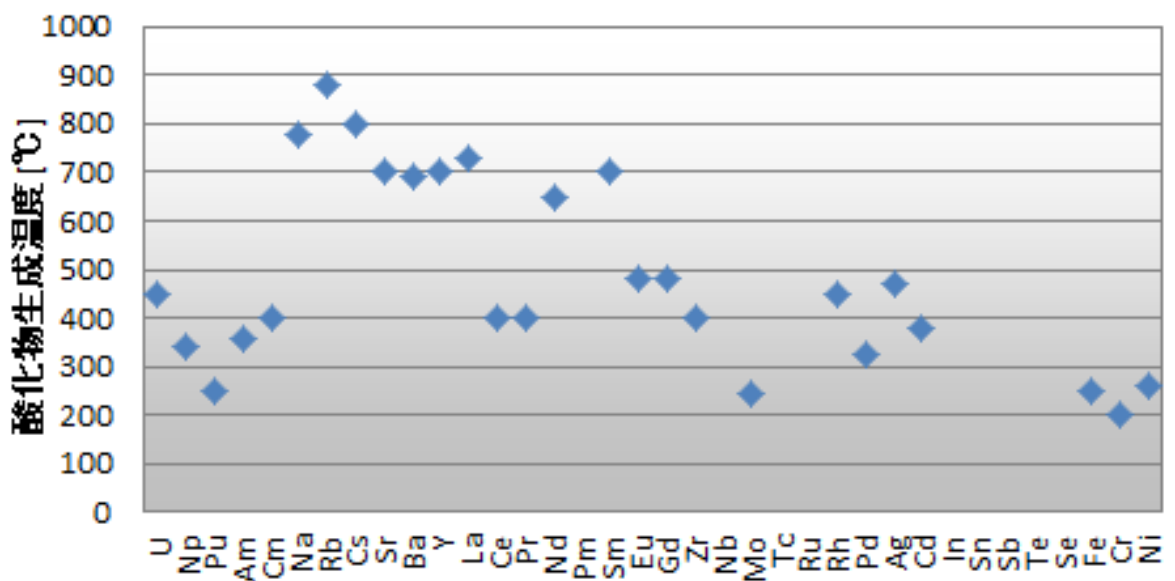


図 3.2-9 硝酸塩から酸化物への相変化温度

(2) アクチニド酸化物の各種物性の分子動力学計算

顆粒体の熱化学的特性の一部を分子動力学 (MD) 法で評価することを予定している。顆粒体は高レベル放射性廃液をもとに製造されるため、多種の元素が含まれることになる。古典力学をもとに粒子 (ここではイオン) を運動させることが可能な MD 法は、第一原理計算 (量子力学がベース) に比べて、多くの粒子つまり大きな体系で計算することが可能ではあるが、計算対象に含まれる粒子間の原子間ポテンシャル関数があらかじめ定義されていなければならない。そこで、計算を効率的に進めるために、既存の MD 計算研究で、比較的多くの粒子間ポテンシャルが定義されているものを検討した。ここでは、Pedone 等によるガラス (高レベル廃棄物ガラスも考慮している) の MD 計算研究を参考にした[1]。Pedone 等の採用している二体原子間ポテンシャル関数は式 (1) で表される。

$$U(r) = \frac{z_i z_j e^2}{r} + D_{ij} \left[\left\{ 1 - e^{-a_{ij}(r-r_0)} \right\}^2 - 1 \right] + \frac{C_{ij}}{r^{12}} \quad (1)$$

右辺第一項は粒子間の両距離で作用するクーロン項、第二項は近距離で作用するモース項、第三項は極近距離における反発項として定義される。この第三項は高温・高圧で重要となる。ここで、 r は粒子間距離、 z_i は粒子の電荷、 D_{ij} 、 a_{ij} 、 r_0 および C_{ij} は粒子の組み合わせによって (金属イオン-酸素) 決定されるポテンシャルパラメータである。但し、粒子の組み合わせによっては、 C_{ij} を 0 としても大きく物性に影響しない。Pedone 等によって既に決定されているポテンシャルパラメータを表 3 に示す。

表 3.2-3 ではアクチニド-酸素イオン間のポテンシャルパラメータが存在しない。そこで、今年度は、核燃料を考慮する上で必要不可欠な U^{4+} と O^{2-} の間のポテンシャルを決定した。ポテンシャル決定過程は以下の通り。

- 1) イオン性を Pedone 等のものと合わせるために、 U の部分電荷を $0.6 \times (+4) = +2.4e$ とする。まず、 D をある値に固定し、 C を 0.0 とし、 UO_2 の室温での格子定数に最も合うような a と r_0 のペアを選び出し、融点直下で 3120 K の格子定数を再現するものを D - a - r_0 ペアとしてポテンシャルパラメータの候補とする。
- 2) 次に D を変えて、(1) を再び実行する。これにより複数の D - a - r_0 のペアがポテンシャルパラメータの候補となる。
- 3) D - a - r_0 の D に対して、 UO_2 の室温での体積弾性率に合うものを選ぶ。これにより、 D の最終的な値が決定される。この D に対して (1) を実行することにより、 a と r_0 に対する最終的な値、つまり熱膨張および体積弾性率を最もよく再現するような値が決定される。
- 4) r が 0.0 Å 近傍で反発エネルギーが大きくなるように、 C を $1.0 \text{ eV}\text{\AA}^{-12}$ とした。

表 3.2-4 に $U^{2.4}O^{1.2}$ のポテンシャルパラメータをまとめる。このポテンシャルパラメータを使って計算した熱膨張と圧縮率を実験値と比較し、その整合性を図 3.2-10 および図 3.2-11 に示す[2, 3]。

アクチニド化合物として UO_2 - ZrO_2 固溶体に着目し、その熱伝導率を MD 法で評価した。更に、顆粒体への含有量が大きいと思われる Nd_2O_3 、 Fe_2O_3 、 Na_2O についても評価した。特に Na_2O に関し

ては実験値がないため、参考値として計算した。平衡 MD 法では、グリーン-久保の関係式から熱伝導率 κ が求まる。

$$\kappa = \frac{1}{3k_BTV^2} \int_0^\infty dt \langle \mathbf{J}(t) \cdot \mathbf{J}(0) \rangle \quad (2)$$

ここで k_B はボルツマン定数、 V はスーパーセル体積、 $\mathbf{J}(t)$ はエネルギー流である。

$$\mathbf{J}(t) = \sum_{i=1}^N \left[\frac{m_i v_i^2}{2} + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} U(r_{ij}) \right] \mathbf{v}_i + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N (\mathbf{v}_i \cdot \mathbf{r}_i) \mathbf{F}_{ij} \quad (3)$$

この式で m_i は i 番目の粒子の質量、 v_i は速度、 r_i は位置、 $U(r_{ij})$ は二粒子間のポテンシャルエネルギー、 F_{ij} は力である。計算条件として顆粒体貯蔵時を考慮し、温度を 300 K-800 K、圧力は大気圧 ($P=0.1$ MPa) とした。

UO_2 - ZrO_2 固溶体の熱伝導率を図 3.2-12 に示す。熱伝導率は温度と共に低下し、組成が 50mol% ZrO_2 のあたりで最も低くなっている。それぞれ、フォノン伝導のウムクラップ過程と不純物散乱過程による熱伝導率の低下が再現されている。Ronchi 等の測定値[4]より低温で計算値が大きいのは、MD 計算では格子欠陥 (ZrO_2 以外の不純物、転位など) が考慮されていないからである。また、純粋な ZrO_2 は本来ならば 800 K 以下では単斜晶構造をとるのであるが、ここでは簡単のため UO_2 と同じ立方晶螢石構造と仮定した。

次に、 ZrO_2 - Nd_2O_3 固溶体の熱伝導率を図 3.2-13 に示す。 Nd_2O_3 の熱伝導率は 300 K でも低く、固溶体での存在比が大きくなるほど熱伝導率も低下した。これは、 Nd_2O_3 の結晶構造が螢石構造と似ており、そこから酸素が取り除かれたような欠陥螢石構造とも見なすことができるため、酸素空孔によるフォノン散乱のせいで熱伝導率が低下したものと解釈できる。 Nd_2O_3 は参考になる実験値がないが、結晶構造が同じ La_2O_3 のものが 6-2 W/mK (300 K-800 K) であり[5]、それと比較しても過小評価となった。一方、安定化ジルコニアの熱伝導率は温度に依存せず 2 W/mK 程度であり、固溶体としてはおおよそ再現できていると考えられる。

Fe_2O_3 と Na_2O の結果を図 3.2-14 に示す。 Fe_2O_3 は温度範囲 300 K-800 K に対して 15-7 W/mK 程度となった。Akiyama 等の測定値と比較しても妥当な値と思われる[6]。一方、 Na_2O は 800 K で溶解した。したがって図中 700 K までが固体の熱伝導率である。 Na_2O の融点は実験的に 1405 K と測定されており、MD の融点 (~ 800 K) はそれに比べて低い。一般に、融点が低いと熱伝導率も低くなる傾向があるので、今回の計算では Na_2O の熱伝導率を低く見積もっている可能性がある。実験値との整合性を高めるにはポテンシャルパラメータの改良が必要であると考えている。

顆粒体の熱伝導率が低いことは、その長期保管システムを不安定化させる要因になる。そこで、MD 計算または実験から得た顆粒体構成要素の熱伝導率を考慮し、顆粒体そのものの熱伝導率を推定した。1) 溶媒洗浄剤として Na が入る場合、2) Na が入らない場合を考える。1) はさらに低温で焼成するのか (Na の主な化学形: $NaNO_3$)、高温で焼成するのか (主な化学形: Na_2O) に分けられるが、 $NaNO_3$ の熱伝導率が低いと判断し[7]、保守的に $NaNO_3$ を選択する (図 3.2-15)。ここで顆粒体を空气中に球状粒子が分散したものとして見なすと (空隙率の高い物質と仮定)、次の

Maxwell モデルが適用可能になる [8]。

$$k_e = k_m \frac{\lambda + 2 - 2\phi(1 - \lambda)}{\lambda + 2 + \phi(1 - \lambda)} \quad (4)$$
$$\lambda = \frac{k_d}{k_m}$$

ここで k_e は分散系物質の有効熱伝導率、 k_m は母相（空気）の熱伝導率、 k_d は分散相の熱伝導率、 ϕ は分散相の体積分率である。1) の場合について、分散相 (NaNO_3) の熱伝導率を 0.514 W/mK 一定、母相を空気の温度依存性 (300 K-800 K で 0.0262-0.057 W/mK) を考慮して計算した結果を図 3.2-16(a) に示す。2) では分散相 (低熱伝導率酸化物) の熱伝導率をおおよそ 2 W/mK 一定として計算した (図 3.2-16(b))。いずれも、分散相の体積分率が高いと熱伝導率は増加し、温度依存性は空気と同様に温度の上昇と共に増加した。後述の複合粒子 (CPC) モデルによる模擬顆粒体の熱伝導率は 0.1-0.2 W/mK と推定されており、それらの値と今回算出した値は同程度となった。

参考文献

- [1] A. Pedone, G. Malavasi, M.C. Menziani, A.N. Cormack, U. Segre, J. Phys. Chem. B 110 (2006) 11780.
- [2] D.G. Martin, J. Nucl. Mater. 152 (1988) 94.
- [3] U. Benedict, G.D. Andreotti, J.M. Fournier, A. Waintal, J. Physique 43 (1982)L171.
- [4] C. Ronchi, M. Sheindlin, M. Musella, G.J. Hyland, J. Appl. Phys. 85 (1999) 776.
- [5] L. Fornarini, J.C. Conde, C. Alavani, D. Olevano, S. Chiussi, Thin Solid Films 516 (2008) 7400.
- [6] T. Akiyama, H. Ohta, R. Takahashi, Y. Waseda, J. Yagi, ISIJ International 32 (1992) 829.
- [7] Y. Nagasaka, A. Nagashima, Int. J. Thermophys. 12 (1991) 769.
- [8] A.F. Williams, B.W. Leitch, N. Wang, Nucl. Eng. Technol. 45 (2013) 839.

表 3.2-3 二成分酸化物から決定されたポテンシャルパラメータ[1]

	D_{ij} (eV)	a_{ij} (\AA^{-2})	r_0 (\AA)	C_{ij} (eV \AA^{12})
Li ^{0.6} -O ^{-1.2}	0.001114	3.429506	2.681360	1.0
Na ^{0.6} -O ^{-1.2}	0.023363	1.763867	3.006315	5.0
K ^{0.6} -O ^{-1.2}	0.011612	2.062605	3.305308	5.0
Be ^{1.2} -O ^{-1.2}	0.239919	2.527420	1.815405	1.0
Mg ^{1.2} -O ^{-1.2}	0.038908	2.281000	2.586153	5.0
Ca ^{1.2} -O ^{-1.2}	0.030211	2.241334	2.923245	5.0
Sr ^{1.2} -O ^{-1.2}	0.019623	1.886000	3.328330	3.0
Ba ^{1.2} -O ^{-1.2}	0.065011	1.547596	3.393410	5.0
Sc ^{1.8} -O ^{-1.2}	0.000333	3.144445	3.200000	2.6
Ti ^{2.4} -O ^{-1.2}	0.024235	2.254703	2.708943	1.0
Zr ^{2.4} -O ^{-1.2}	0.206237	2.479675	2.436997	1.0
Cr ^{1.8} -O ^{-1.2}	0.399561	1.785079	2.340810	1.0
Mn ^{1.2} -O ^{-1.2}	0.029658	1.997543	2.852075	3.0
Fe ^{1.2} -O ^{-1.2}	0.078171	1.822638	2.658163	2.0
Fe ^{1.8} -O ^{-1.2}	0.418981	1.620376	2.382183	2.0
Co ^{1.2} -O ^{-1.2}	0.012958	2.361272	2.756282	3.0
Ni ^{1.2} -O ^{-1.2}	0.029356	2.679137	2.500754	3.0
Cu ^{0.6} -O ^{-1.2}	0.090720	3.802168	2.055405	1.0
Ag ^{0.6} -O ^{-1.2}	0.088423	3.439162	2.265956	1.0
Zn ^{1.2} -O ^{-1.2}	0.001221	3.150679	2.851850	1.0
Al ^{1.8} -O ^{-1.2}	0.361581	1.900442	2.164818	0.9
Si ^{2.4} -O ^{-1.2}	0.340554	2.006700	2.100000	1.0
Ge ^{2.4} -O ^{-1.2}	0.158118	2.294230	2.261313	5.0
Sn ^{2.4} -O ^{-1.2}	0.079400	2.156770	2.633076	3.0
P ^{3.0} -O ^{-1.2}	0.831326	2.585833	1.800790	1.0
Nd ^{1.8} -O ^{-1.2}	0.014580	1.825100	3.398717	3.0
Gd ^{1.8} -O ^{-1.2}	0.000132	2.013000	4.351589	3.0
Er ^{1.8} -O ^{-1.2}	0.040448	2.294078	2.837722	3.0
O ^{-1.2} -O ^{-1.2}	0.042395	1.379316	3.618701	22.0 ^b

表 3.2-4 U^{2.4}-O^{-1.2} ポテンシャルパラメータ

	D_{ij} [eV]	a_{ij} [\AA^{-12}]	r_0 [\AA]	C_{ij} [eV \AA^{-12}]
U ^{2.4} -O ^{-1.2}	0.03667	2.398825	2.897745	1.0

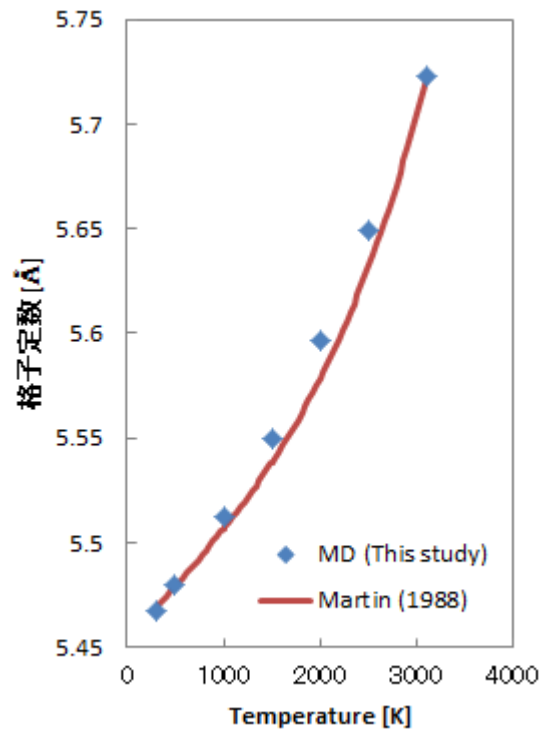


図 3.2-10 UO_2 熱膨張の MD と実験値との比較[2]

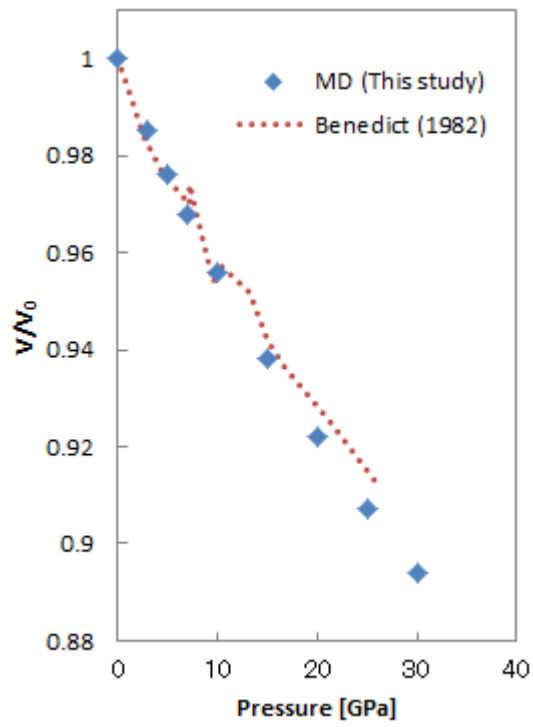


図 3.2-11 UO_2 圧縮率の MD と実験値との比較[3]

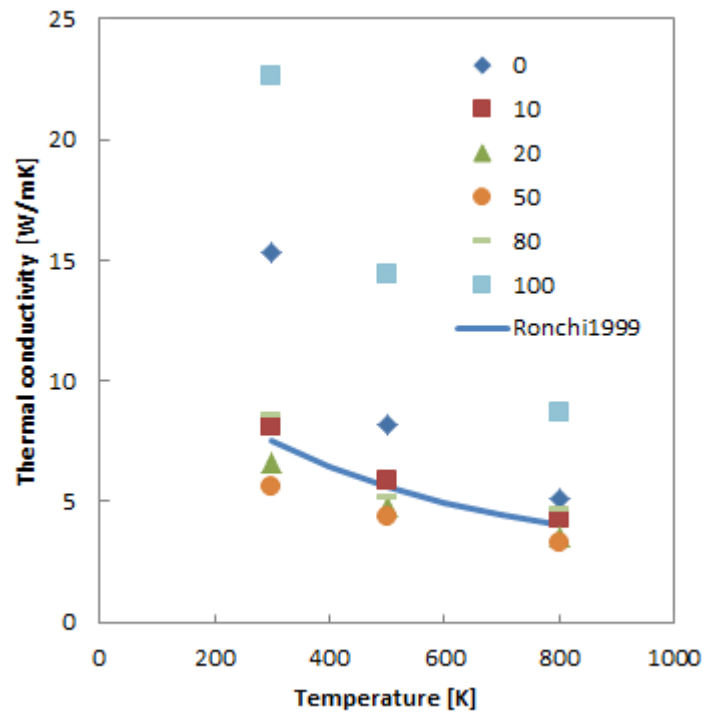


图 3.2-12 UO_2-ZrO_2 热传导率

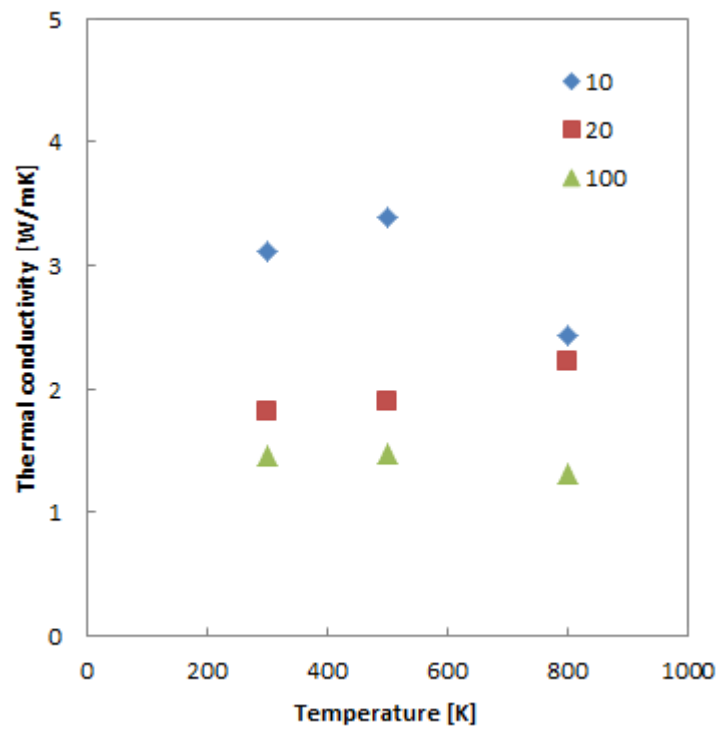


图 3.2-13 $ZrO_2-Nd_2O_3$ 热传导率

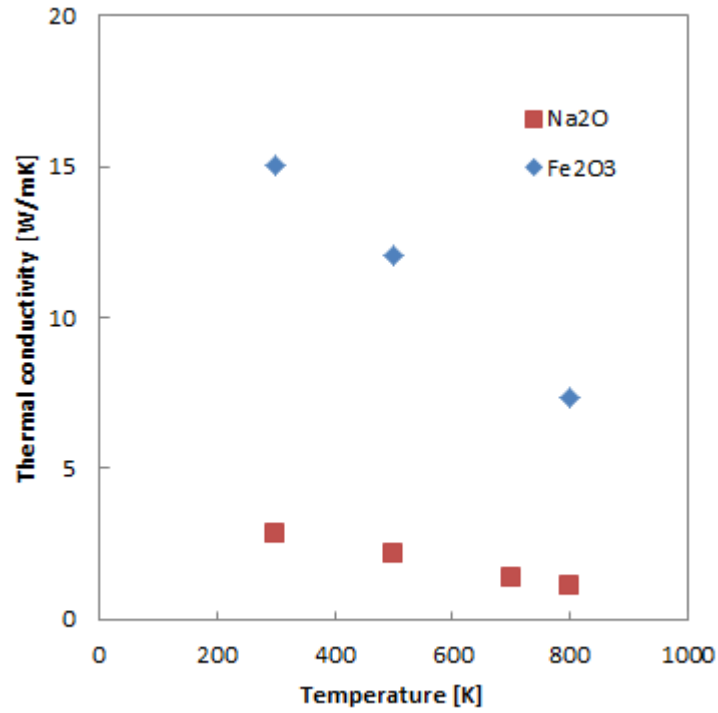


図 3.2-14 Fe₂O₃およびNa₂Oの熱伝導率

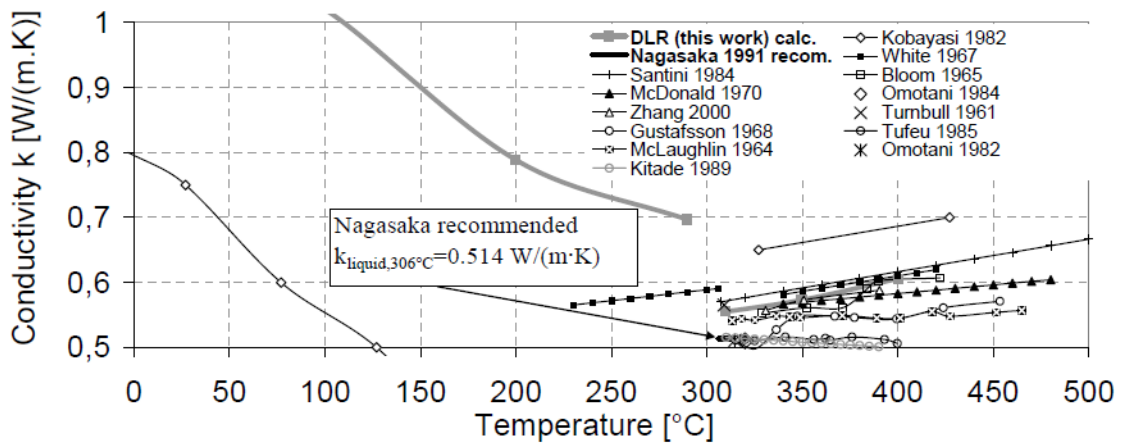


図 3.2-15 NaNO₃熱伝導率

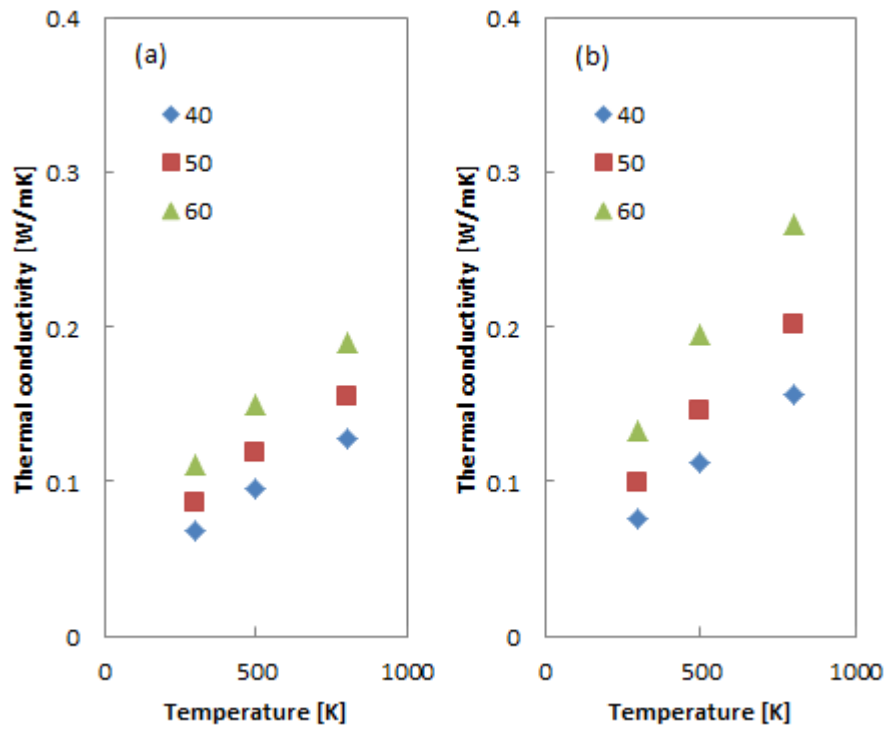


図 3.2-16 顆粒体の有効熱伝導率 (a) 硝酸ナトリウム、(b) 低熱伝導率酸化物と空気

(3) 模擬高レベル廃液の脱水・脱硝基礎試験（仮焼試験）

模擬高レベル廃液を作製し、顆粒体化までの脱水・脱硝過程を確認する基礎試験を実施した。まず初めに、前節 3.2.1.1. 廃棄物顆粒体の材料化学的安定性の予備的評価の結果に基づき、基礎試験で用いる模擬高レベル廃液の組成を決定した。前節表 3.2-2 に示した高レベル廃液組成（燃料 1 トンの再処理で発生する廃棄物組成）を参考とし、模擬廃液では高レベル廃液中のアクチニドを全て Ce に置き換え、FP は一部を安定同位体および他元素に置き換え、一部は省略した。また、プロセスイナート（Na, Fe）は高レベル廃液と同量とした。その組成（モル比）を表 3.2-5 に示す。次に、この組成（モル比）を基に模擬廃液中の各元素の濃度を決定した。模擬廃液中の各元素の濃度は、旧動燃で評価された高レベル中の元素濃度を参考に[1]、主要な白金族元素である Ru の濃度が 0.034[mol/L]となるように調整し、他元素の濃度は Ru の濃度を基準として表 3.2-5 に示す組成比（モル比率）となるように調整した。模擬廃液の最終的な組成（モル濃度）を表 3.2-6 に示す。次に、この組成を持つ模擬廃液を図 3.2-17 に示す模擬廃液作製のフローチャートに従って作製した。まず、各元素の硝酸塩を原料試薬とし、表 3.2-6 に示す所定量を秤量した。これを 3[mol/L]硝酸（90mL）とともにテフロン製分解容器（耐圧密封容器）に投入し、90℃の恒温槽中に 24hr 保持して溶解させた。試薬はほぼ全量溶解して茶色の溶液となり、これを模擬廃液とした。

次に、上記の手順で作製した模擬廃液の脱水・脱硝過程を確認する基礎試験（仮焼試験）を行った。仮焼試験のフローチャートを図 3.2-18 に示す。作製した模擬廃液 40mL をアルミナるつぼに分取し、電気炉を用いて大気中で昇温することで脱水・脱硝（仮焼）を行った。先述の 3.1.2. 廃棄物顆粒体製造技術選定における高レベル廃棄物ガラス固化処理仮焼プロセスの調査結果に基づき、脱水温度は 200℃、脱硝温度は 600℃とした。仮焼（脱水・脱硝）の温度プログラムを図 3.2-19 に示す。

仮焼試験の結果を以下に示す。まず、仮焼後のアルミナるつぼ中の析出固相の外観を図 3.2-18 に示す。析出固相はフレーク状でるつぼの底部に固着しており、ミクロスパーテルを用いて粉砕することで析出固相の大部分をアルミナるつぼから取り出すことができた。取り出した析出固相は、図 3.2-20 に示すように黒褐色の粉末状または数 mm の塊状であり、塊状の固相はミクロスパーテルで簡単に粉砕することができた。次に、模擬廃液の仮焼で得られた析出固相（仮焼体）について、XRD、DTA/TG、SEM/EDX を用いてその性状（組成、化合物相、等）および物性（融点、熱伝導特性、等）を分析した。仮焼体の XRD 分析結果を図 3.2-21 に示す。NaNO₃ の明確なピークが確認され、模擬廃液の主成分である Na は硝酸塩の形態で存在することが分かる。また、ピークの大きさは小さいものの Cs と Nd も硝酸塩の形態で存在するものと判断される。一方、Ce、Fe、Zr については酸化物の形態で存在するものと判断される。仮焼体の DTA/TG 分析結果を図 3.2-22 に示す。275℃付近で DTA の吸熱反応ピークが見られ、図の右側に示す田川による NaNO₃ 単体の DTA/TG 分析結果[2]との比較から、これは NaNO₃ の相転移または熔融反応と判断できる。また、600 から 800℃付近にかけて TG の連続的な減少が見られ、これは NaNO₃ の熱分解／脱硝反応と判断できる。仮焼体の SEM/EDX 分析結果を図 3.2-23 に示す。形状、大きさ、色の異なる結晶粒が凝結しており、粒によって組成が大きく異なる事から、種類の異なる複数の結晶（硝酸塩、酸化物）が混在して析出することが分かる。

また、高レベル廃液の仮焼に関する今後の研究課題として、各種仮焼条件で作製した仮焼体の特性の更なる分析評価およびその熱伝導特性の評価が挙げられる。また、仮焼体から顆粒体を作製する造粒方法と顆粒体の諸特性についても更なる調査検討が必要である。

参考文献

- [1] 角田直己、岸本洋一郎、河田東海夫、根元慎一、小林洋昭、再処理高レベル廃液中の放射性核種の郡分離に関する研究, PNCT N8410, 87-08(1987).
- [2] 田川博章, 横浜国大環境研紀要 14 (1987) 41.

表 3.2-5 模擬廃液の組成（モル比）

	高レベル廃液	[mol]	模擬廃液	[mol]	[mol%]
アクチニド	U	19.73	Ce	25.79	2.66
	Np	3.02			
	Pu	0.22			
	Am	2.41			
	Cm	0.41			
FP	Rb	5.48	Cs	32.49	3.35
	Cs	27.01			
	Sr	12.56	Sr	12.56	1.30
	Ba	17.25	Ba	17.25	1.78
	Y	6.94	La	19.43	2.00
	La	12.49			
	Ce	24.08	Ce	24.08	2.48
	Pr	11.2	Nd	62.19	6.46
	Nd	39.81			
	Pm	0.32			
	Sm	7.78			
	Eu	1.51			
	Gd	1.47			
	Zr	53.34	Zr	53.34	5.50
	Mo	49.13	Mo	49.13	5.06
	Tc	10.61	-	-	-
	Ru	32.78	Ru	32.78	3.38
	Rh	5.59	Rh	5.59	0.58
	Pd	22.45	Pd	22.45	2.31
	Ag	1.08	-	-	-
	Cd	1.82	-	-	-
	Sn	1.13	-	-	-
	Se	0.98	-	-	-
Te	5.53	-	-	-	
プロセス イナート	Fe（腐食性生 物）	62.67	Fe	62.67	6.46
	Na（溶媒洗浄 剤）	550.24	Na	550.24	56.70

表 3.2-6 模擬廃液の最終的な組成 (モル濃度および試薬重量)

元素	濃度 [mol/L]	原料化合物	原料化合物重量 [g] (90ml 溶液中)
Cs	0.0337	CsNO ₃	0.600
Sr	0.0130	Sr(NO ₃) ₂	0.252
Ba	0.0179	Ba(NO ₃) ₂	0.427
La	0.0202	La(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	0.797
Ce	0.0517	Ce(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	2.052
Nd	0.0645	Nd(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	2.584
Zr	0.0553	ZrO(NO ₃) ₂ · 2H ₂ O	1.351
Mo	0.0510	H ₂ MoO ₄	0.754
Ru	0.0340	Ru(NO ₃) ₃	0.985
Rh	0.0058	Rh(NO ₃) ₃	0.153
Pd	0.0233	Pd(NO ₃) ₂	0.490
Fe	0.0650	Fe(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O	2.400
Na	0.5707	NaNO ₃	4.433

表 3.2-7 模擬廃液 (Na 無) の組成 (モル比)

高レベル廃液	[mol]	模擬廃液	Na 有 [mol%]	Na 無 [mol%]
U	19.73	Ce	2.66	6.15
Np	3.02			
Pu	0.22			
Am	2.41			
Cm	0.41			
Rb	5.48	Cs	3.35	7.74
Cs	27.01			
Sr	12.56	Sr	1.30	2.99
Ba	17.25	Ba	1.78	4.11
Y	6.94	La	2.00	4.63
La	12.49			
Ce	24.08	Ce	2.48	2.48
Pr	11.2	Nd	6.46	5.73
Nd	39.81			
Pm	0.32			
Sm	7.78			
Eu	1.51			
Gd	1.47			
Zr	53.34	Zr	5.50	12.7
Mo	49.13	Mo	5.06	11.7
Tc	10.61	-	-	-
Ru	32.78	Ru	3.38	7.81
Rh	5.59	Rh	0.58	1.33
Pd	22.45	Pd	2.31	5.35
Ag	1.08	-	-	-
Cd	1.82	-	-	-
Sn	1.13	-	-	-
Se	0.98	-	-	-
Te	5.53	-	-	-
Fe (腐食性生物)	62.67	Fe	6.46	14.9
Na (溶媒洗浄剤)	550.24	Na	56.70	0

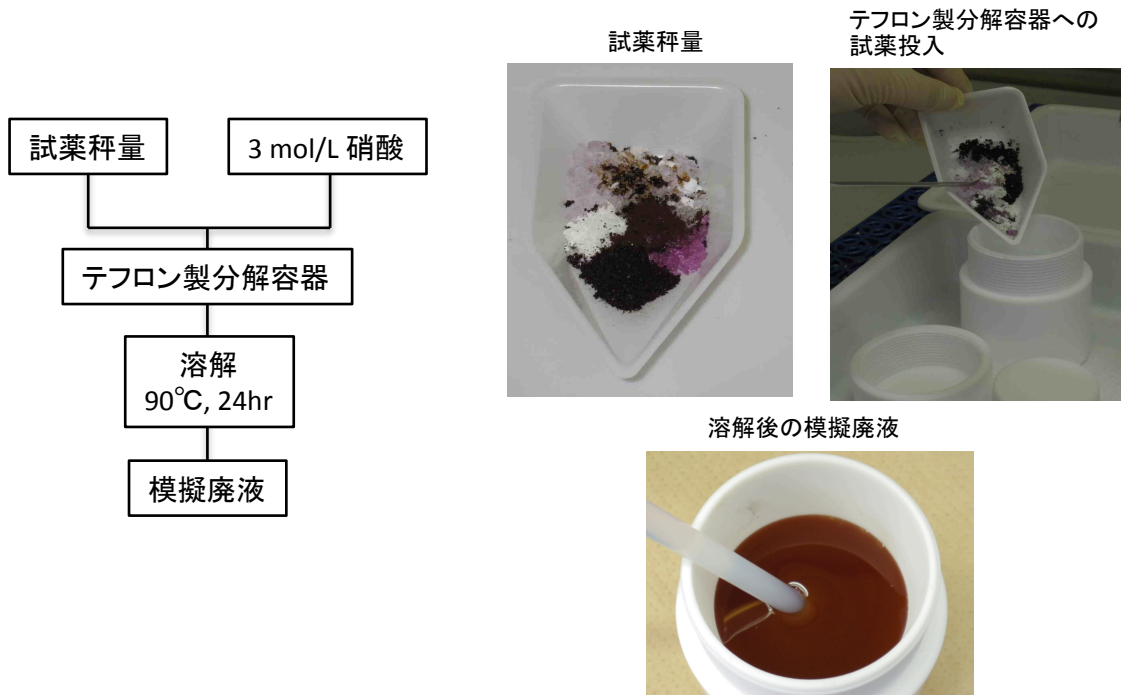


図 3.2-17 模擬廃液作製のフローチャート

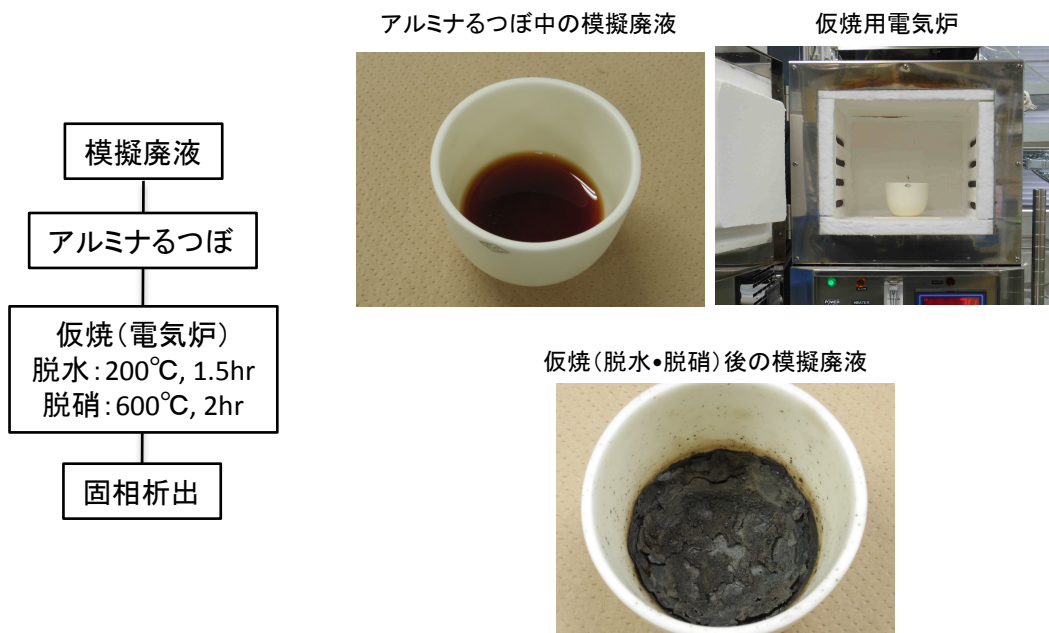


図 3.2-18 模擬廃液の脱水・脱硝のフローチャート

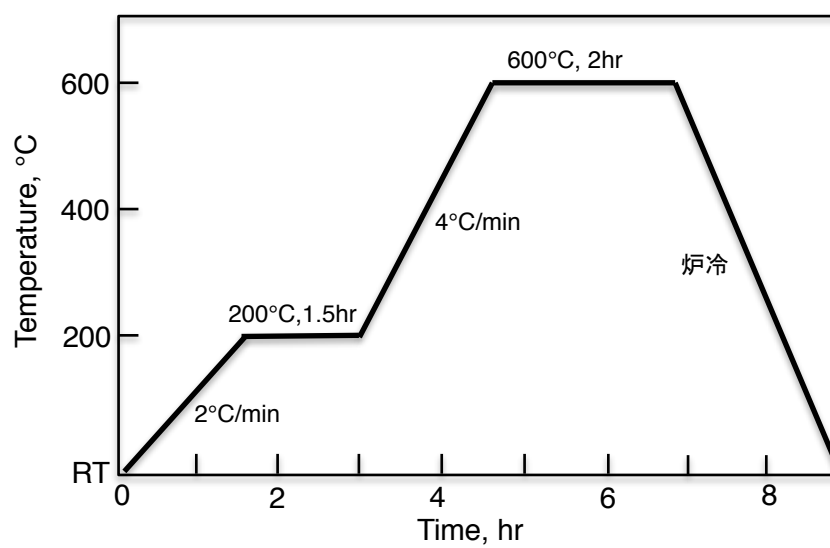


図 3.2-19 模擬廃液の脱水・脱硝の昇温プログラム

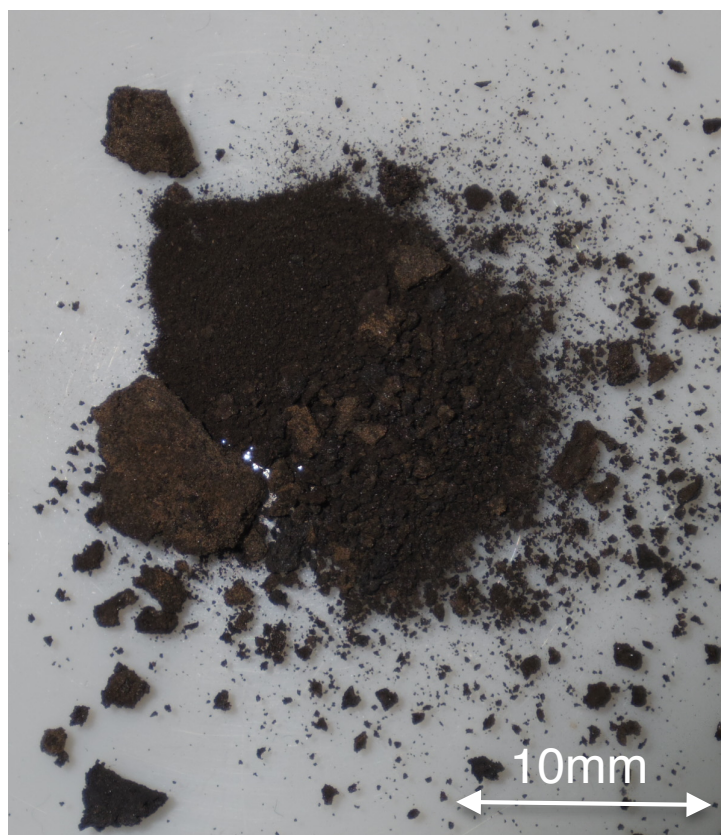


図 3.2-20 模擬廃液の脱水・脱硝により得られた析出固相

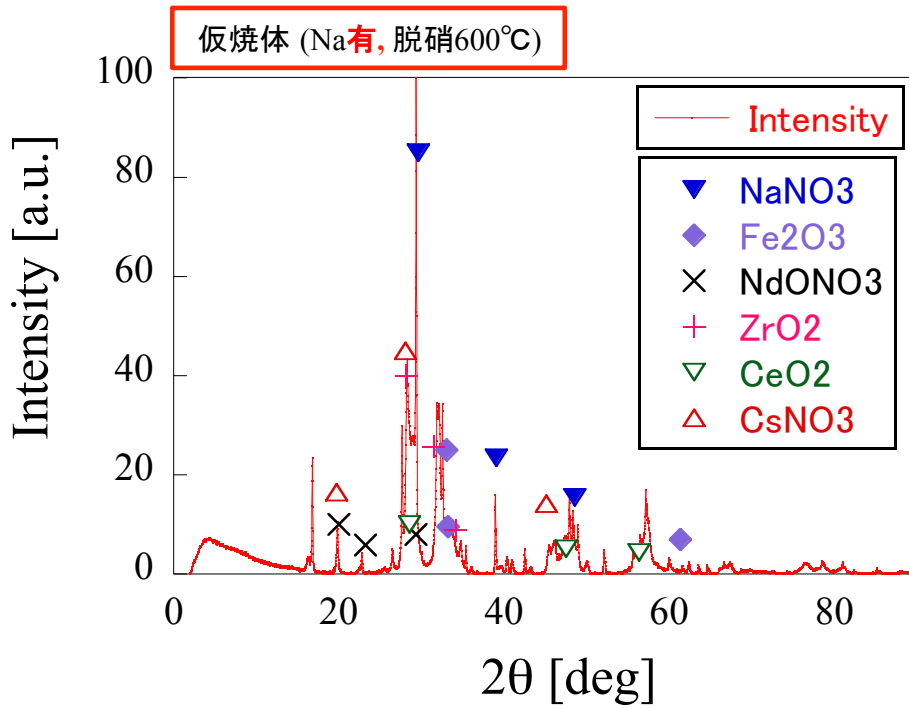


図 3.2-21 仮焼体 (Na 有、脱硝 600°C) の XRD 分析結果

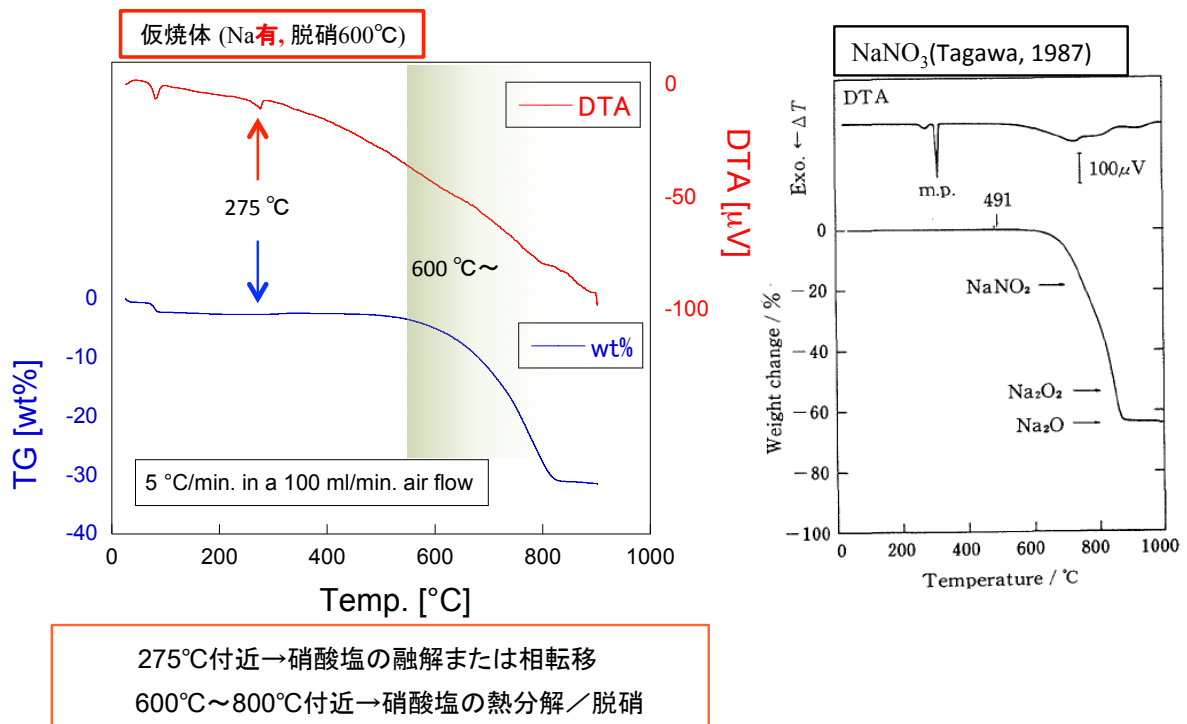


図 3.2-22 仮焼体 (Na 有、脱硝 600°C) の DTA/TG 分析結果

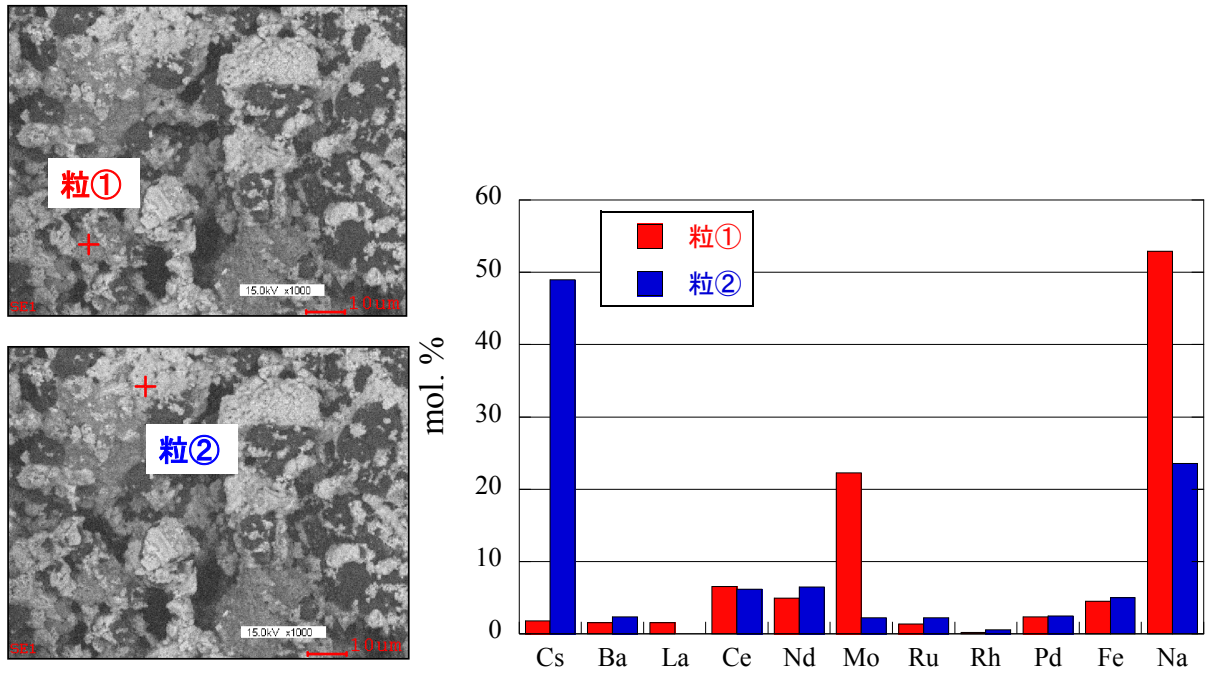


図 3.2-23 仮焼体 (Na 有、脱硝 600°C) の SEM/EDX 分析結果

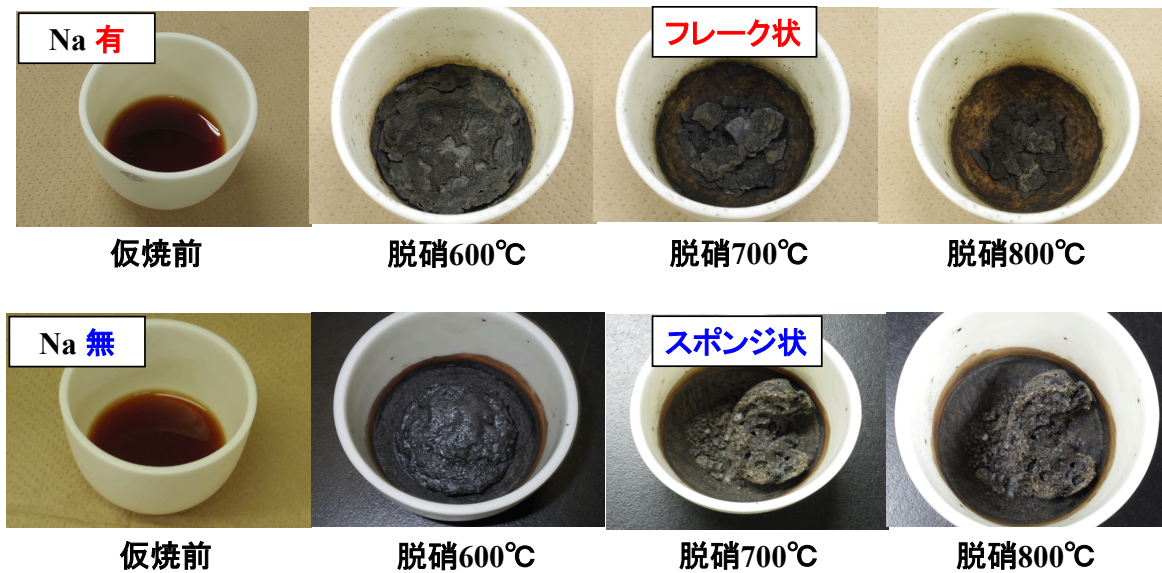


図 3.2-24 仮焼体 (Na 有/無、脱硝 600-800°C) の外観

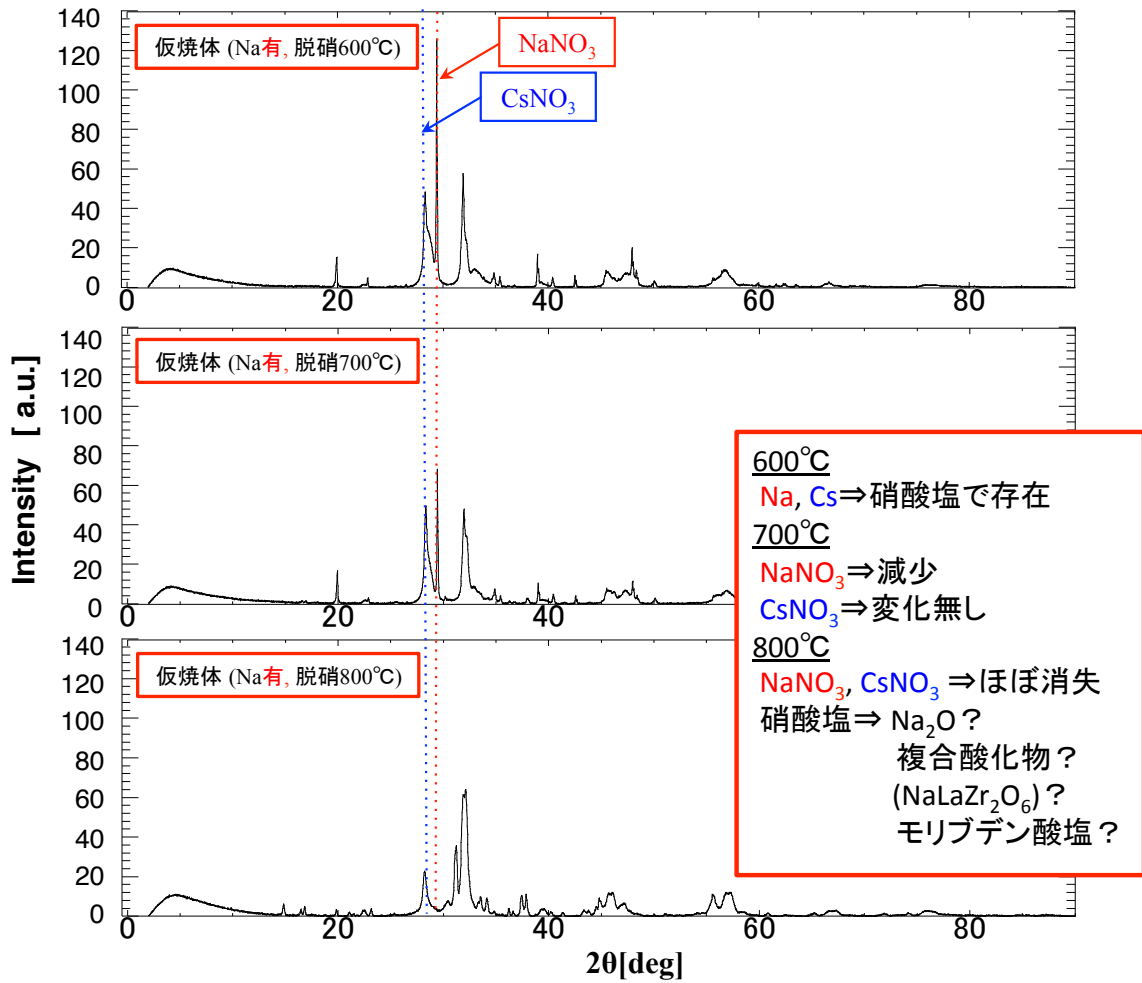


図 3.2-25 仮焼体 (Na 有、脱硝 600°C, 700°C, 800°C) の XRD 分析結果

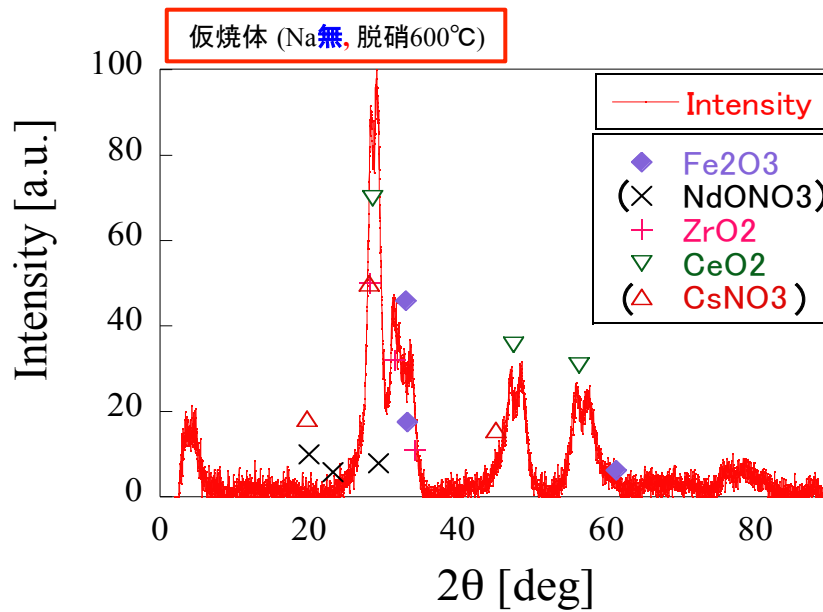


図 3.2-26 仮焼体 (Na 無、脱硝 600°C) の XRD 分析結果

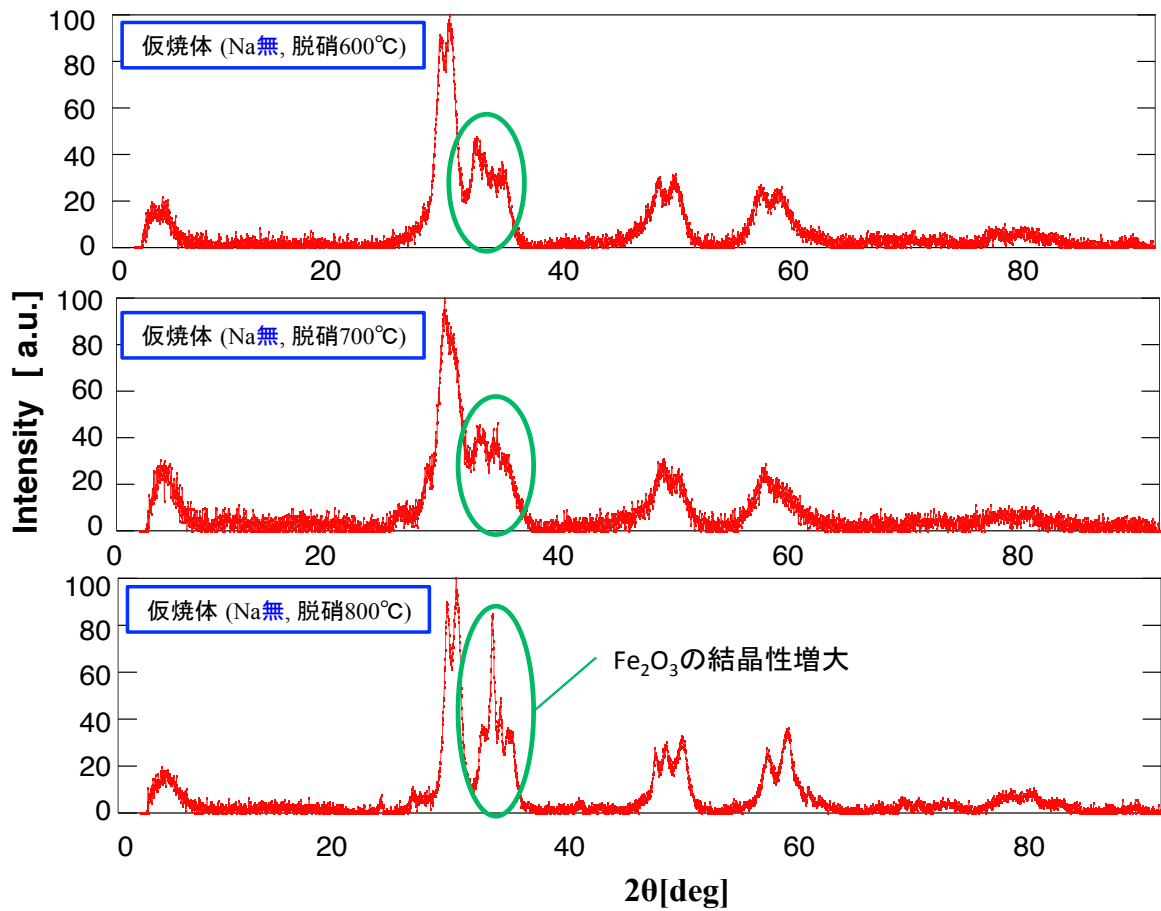


図 3.2-27 仮焼体 (Na 無、脱硝 600°C, 700°C, 800°C) の XRD 分析結果

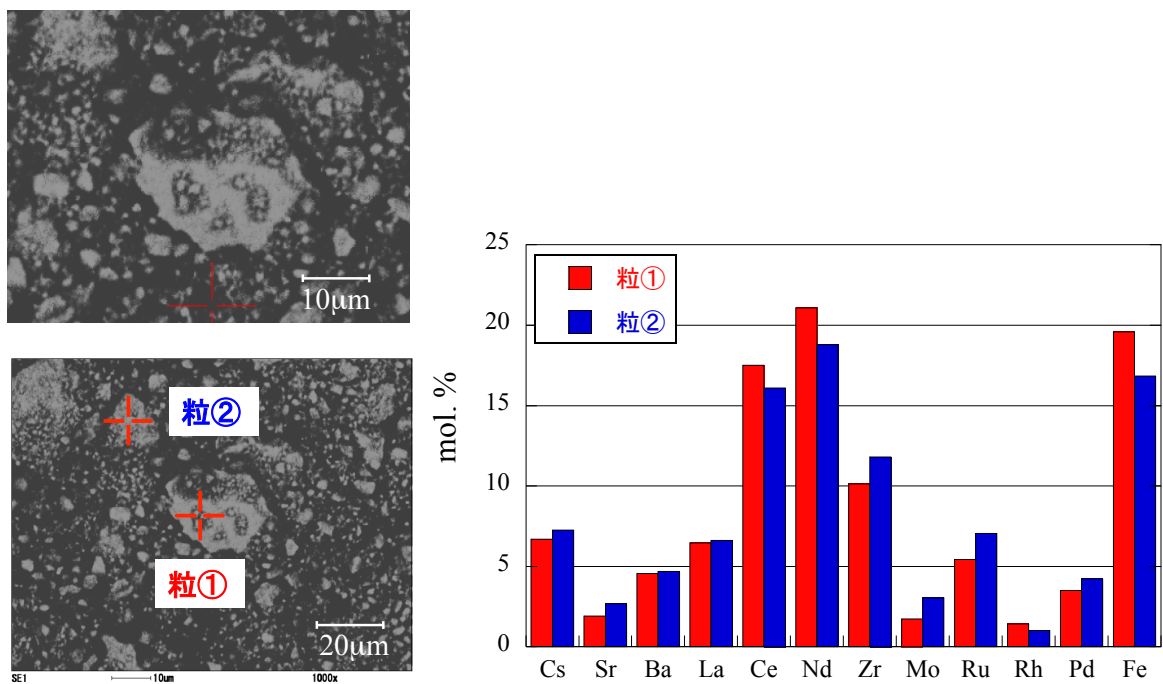


図 3.2-28 仮焼体 (Na 無、脱硝 600°C) の SEM/EDX 分析結果

3.2.2 貯蔵時事故安全性評価

自然循環空気冷却方式の廃棄物顆粒体キャニスター貯蔵設備において想定される、顆粒体貯蔵に固有な異常事故事象シナリオを構築し、3次元熱流動詳細温度過渡解析のための解析体系メッシュ、物性値等の入力データを準備した。また、結果が公開されているガラス固化体貯蔵設備[1]について解析を実施し、解析コードと解析モデルの妥当性を検証した。

(1) 解析評価手法

汎用の流体解析コードを用い、自然対流及び熱輻射を考慮した3次元の熱流動解析を実施し、得られた貯蔵時の顆粒体最高温度から健全性を評価した。

1) 使用コード及び計算手法

- ・使用解析コード：STAR-CCM+ (Ver. 8.06)
- ・解析の種類：固体と流体の熱連成定常解析
- ・使用する主な物理モデル
 - －乱流モデル：Realizable $k-\epsilon$ 2層モデル
 - －壁面近傍の取り扱い：All Y^+
 - －気体の熱膨張による浮力（自然対流の駆動力）
 - －熱輻射計算：表面-表面輻射（形態係数の計算を含む）
- ・数値解析手法
 - －解析アルゴリズム：分離型流れ、分離型エネルギー
 - －対流項差分スキーム：二次精度

2) 解析ケース及び形状モデル

解析ケースの一覧を表 3.2-8 に、解析形状モデルの概要を図 3.2-29 に示す。また、ガラス固化体貯蔵設備及び顆粒体貯蔵設備の通風管内構造物の寸法仕様を表 3.2-9 に示す。解析形状モデルは通風管 1 本の 1/2 をモデル化した単管モデルを基本とした。

解析結果の妥当性を公開された他の解析例¹⁾と比較し検証するために、図 3.2-30 に示すガラス固化体貯蔵設備の解析モデルを使用した。

顆粒体貯蔵については、通風管内部を円管で仕切る方式の前年度の形状モデルを変更し、通風管の中に複数の収納管をそのまま配置する方式に変更した。変更に伴い、収納管同士の間隔を一定に保つためのスペーサを配置した。スペーサの軸方向間隔はキャニスター高さとし、キャニスター中央部に比べて低温となるキャニスター端部位置にスペーサを設置した。事故時の収納管曲がりを考慮したケースでは、通常時に顆粒体温度が最も高温になる最上部のキャニスター位置で上下のスペーサが破損し、収納管同士が接近することにより冷却空気流路の狭窄が生じるものとした。解析形状モデルを、図 3.2-31 に示す。事故時の高充填密度化を考慮した非定常解析では、計算負荷低減のため着目部近傍に限定した部分モデルを使用した。

3) 物性値

解析で使用した物性値を、表 3.2-10 及び図 3.2-32 に示す。

(2) 評価条件および評価結果

① ガラス固化体貯蔵設備ベンチマーク解析の評価結果

ガラス固化体貯蔵設備について、公開されている解析例[1]との比較結果を以下に示す。

1) 評価条件

ガラス固化体貯蔵設備の解析評価条件を表 3.2-11 に示す。設定は公開の解析例[1]に示されている次の条件に準拠した。

- ・環境温度（給気温度等）；29℃
- ・ガラス固化体の発熱量；2,000W×9／1 通風管（9 キャニスタを装荷）
- ・他解析の条件に合わせて収納管内表面～キャニスター外表面間のみで熱輻射を考慮（通風領域の熱輻射を無視している点で、保守側の設定となっている。）

2) 評価結果

ガラス固化体貯蔵設備の解析結果を、表 3.2-12 及び図 3.2-33 に示す。本解析による固化体中心温度は 409.6℃であり、公開の解析例における 410℃にほぼ一致する結果となっている。

以上から、同一の解析手法を適用した顆粒体中心温度の解析結果は、保守性が確保された妥当なものになると評価される。

② 顆粒体貯蔵設備の評価結果

顆粒体貯蔵設備について、通常時及び異常事故時の評価条件及び評価結果を以下に示す。

1) 評価条件

通常時及び事故時の評価条件を表 3.2-13 及び表 3.2-15 に示す。異常事故事象の内で部分モデルを用いる高充填密度化後の非定常解析では、異常事故事象の前後でトータルの発熱量が変化しないことから空気流量の変化は小さいと考え、空気流量は一定とした。また、着目部へ流入する冷却空気の条件（流量及び温度）及び着目部の初期温度を通常時の解析結果を参考にして設定した。

2) 評価結果

顆粒体貯蔵設備の解析結果を、表 3.2-14 及び図 3.2-34、図 3.2-35 に示す。

通常時では、表 3.2-14 に示すように冷却空気の通風流量は通風管 1 本当たり 0.62kg/s であり、表 3.2-12 に示すガラス固化体貯蔵設備での通風流量 0.50kg/s を上回っている。また、排気温度は約 45℃と制限値（65℃以下）を満足するものである。顆粒体中心の最高温度については 185℃と顆粒体の制限温度（275℃）に対して約 90℃の余裕が示された。

異常事故時では、（収納管曲り）時に 211℃、（高充填密度化）時に 196℃、また（収納管曲り）＋（高充填密度化）重畳時でも 221℃であり、制限値（275℃）に対して約 50℃以上の余裕を持っていることが示された。

以上から、顆粒体貯蔵設備では、顆粒体貯蔵時に固有な異常事故事象が生じた場合でも安全性が確保される見通しを得た。

参考文献

- [1] 原子力安全・保安院 放射性廃棄物規制課、「ガラス固化体等の貯蔵時の冷却に対する考慮について」、平成 23 年 1 月；日本原燃株式会社再処理事業所廃棄物管理事業許認可申請に係る第 2 回意見聴取会 配布資料 3

表 3.2-8 解析ケースの一覧

ケース	対象設備	事象	形状モデル	解析の種類	形状メッシュ	発熱量	備考
1	ガラス固化体貯蔵	通常時	1/2単管モデル	定常	多面体要素	2000W/1体	公開の解析例と同等の条件
2-1	顆粒体貯蔵B 7本キャスタ	通常時	1/2単管モデル	定常	多面体要素	1120W/7体	
2-2		収納管曲がり	1/2単管モデル	定常			
2-3		充填率変化	部分モデル	非定常			

注記 ケース1
 ・公開されている解析例とガラス固化体中心温度がほぼ一致するようにチューニングを実施した解析ケース。
 ・顆粒体貯蔵のケース23は、本ケースの条件を踏襲して解析を実施した。

ケース2-2
 ・地震時に生じた収納管曲がりによる流路狭窄を模擬。
 ・流路狭窄部は、通常時に最も高温となる上段のキャスタ位置とした。

ケース2-3
 ・地震時に生じた顆粒体の充填率の高密度化の影響を模擬。
 地震動による充填率の変化：50%(地震前)→70%(地震後)
 ・通常時に最も高温となる上段のキャスタに対象部位を限定した部分モデルを用いた。

表 3.2-9 貯蔵設備の構造寸法仕様

項目	単位	ガラス固化体 貯蔵設備	顆粒体 貯蔵設備
通風管外径	mm	600	600
通風管内径	mm	580	580
通風管肉厚	mm	10	10
収納管外径	mm	460	129
収納管内径	mm	440	123.4
収納管肉厚	mm	10	2.8
キャスタ外径	mm	430	121.0
キャスタ内径	mm	420	118.2
キャスタ肉厚	mm	5	1.4
キャスタ高さ	mm	1200	1200
収納管ピッチ	mm	-	193.4
(流路面積)	mm ²	98017.7	172719.3
(濡縁長さ)	mm	3267.3	4659.0
(等価水力直径)	mm	120.0	148.3

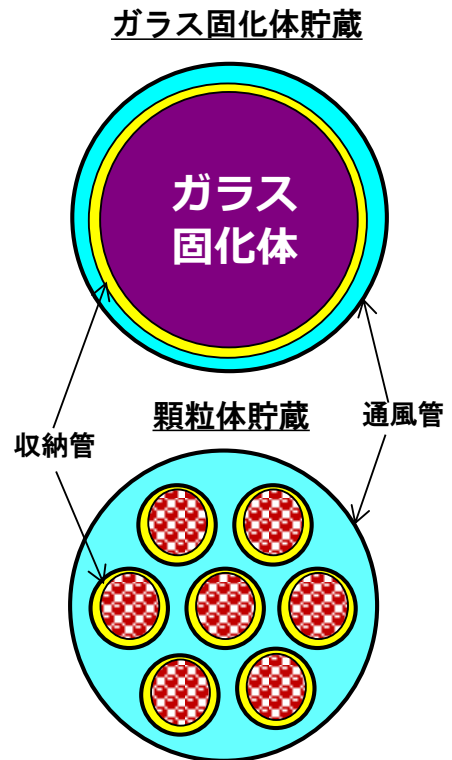


表 3.2-10 使用した物性値

項目	単位	内容	備考	
ガラス固化体	熱伝導率	(W/m・K)	0.9	-
顆粒体	熱伝導率	(W/m・K)	$\lambda_{0\%} = 0.03$	空気相当
			$\lambda_{50\%} = 3.8027E-11 \cdot T(K)^3 - 1.5179E-07 \cdot T(K)^2 + 2.6628E-04 \cdot T(K) + 2.1490E-02$	図3.2-32a 参照
			$\lambda_{70\%} = (70/50) \cdot \lambda_{50\%}$	充填率に比例
	密度	(kg/m ³)	1.188 (キャニスタ上部: 顆粒体充填率 0%)	空気相当
1610 (キャニスタ下部: 顆粒体充填率70%)			NaNO ₃ 体積分率 70%	
比熱	(J/kg・K)	1007 (キャニスタ状部: 顆粒体充填率 0%)	空気相当	
		1500 (キャニスタ下部: 顆粒体充填率70%)	低温溶融塩相当	
炭素鋼	熱伝導率	(W/m・K)	34	-
	密度	(kg/m ³)	7850	-
	比熱	(J/kg・K)	465	-
	放射率	-	0.6 (キャニスタ外面～収納管内面間の熱輻射を考慮)	圧延鋼板相当
ステンレス鋼	熱伝導率	(W/m・K)	16	SUS304 300K相当
	密度	(kg/m ³)	7920	
	比熱	(J/kg・K)	499	
	放射率	-	0.1 (キャニスタ外面～収納管内面間の熱輻射を考慮)	SUS板加工面相当
空気 (1気圧)	密度	(kg/m ³)	理想気体近似	-
	分子粘性率	(Pa・s)	$\eta_{air} = 1.0838E-14 \cdot T(K)^3 - 3.4542E-11 \cdot T(K)^2 + 6.4444E-08 \cdot T(K) + 2.2657E-06$	図3.2-32b 参照
	定圧比熱	(J/kg・K)	$C_p = -2.7367E-07 \cdot T(K)^3 + 6.3222E-04 \cdot T(K)^2 - 2.4454E-01 \cdot T(K) + 1.0296E+03$	図3.2-32c 参照
	熱伝導率	(W/m・K)	$\lambda_{air} = -1.5592E-08 \cdot T(K)^2 + 7.8662E-05 \cdot T(K) + 4.0455E-03$	図3.2-32d 参照

表 3.2-11 ガラス固化体貯蔵設備の解析評価条件

項目	単位	ケース1	備考	
基準圧力	Pa	101325.0	外気圧(1気圧)	
基準密度	kg/m ³	1.1685	外気(1気圧、29℃)の空気密度	
重力加速度	m/s ²	9.807		
入口境界	圧力	Pa	0.0	基準圧力に対する相対値
	流体温度	℃	29.0	外気温
出口境界	圧力	Pa	0.0	基準圧力に対する相対値
	流体温度	℃	29.0	外気温(逆流時のみ有効)
発熱量	W	18000	通風管 1本当たりの発熱	
収納管内の熱輻射	-	考慮	公開の解析例と同じ保守側の設定	
通風領域の熱輻射	-	-		

表 3.2-12 ガラス固化体貯蔵設備の解析評価結果

項目	単位	ケース1	公開の解析例	備考
発熱量	W	18000	1800	通風管1本当たり
風量	kg/s	0.500	—	通風管1本当たり
排気温度	°C	64.8	(65°C以下)	
固化体最高温度	°C	409.6	410.0	

表 3.2-13 顆粒体貯蔵設備の解析評価条件 (通常時及び収納管曲り事象時)

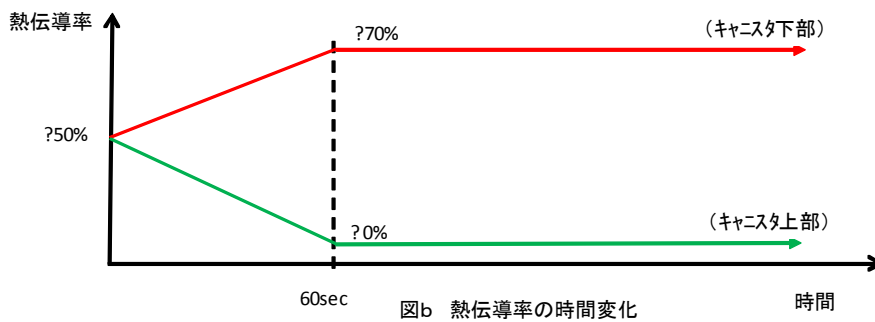
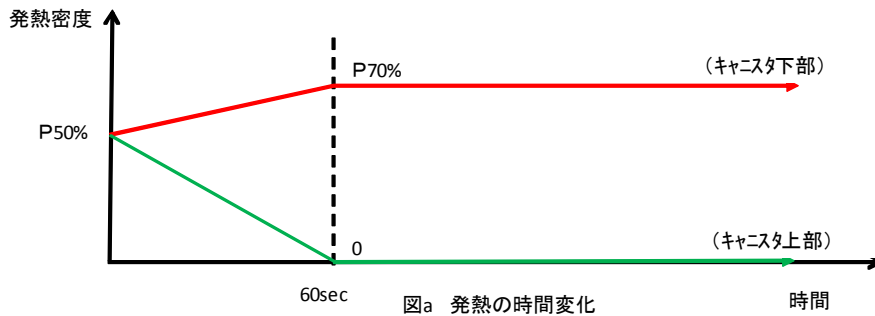
項目	単位	顆粒体貯蔵設備	備考	
基準圧力	Pa	101325.0	外気圧(1気圧)	
基準密度	kg/m3	1.1685	外気(1気圧、29°C)の空気密度	
重力加速度	m/s2	9.807		
入口境界	圧力	Pa	0.0	基準圧力に対する相対値
	流体温度	°C	29.0	外気温
出口境界	圧力	Pa	0.0	基準圧力に対する相対値
	流体温度	°C	29.0	外気温(逆流時のみ有効)
発熱量	W	10080	通風管 1本当たりの発熱	
収納管内の熱輻射	—	考慮	公開の解析例と同じ保守側の設定	
通風領域の熱輻射	—	—		

表 3.2-14 顆粒体貯蔵設備の解析評価結果

項目	記号	単位	顆粒体貯蔵設備	備考	
通常時	通風流量	—	kg/s	0.619	通風管1本当たり
	排気温度	—	°C	45.2	
	顆粒体中心温度	T0	°C	185.2	
異常事故時 (収納管曲がり)	通風流量	—	kg/s	0.628	通風管1本当たり
	排気温度	—	°C	45.0	
	顆粒体中心温度	T1	°C	210.5	
	顆粒体中心温度増加量	$\Delta T1=T1-T0$	°C	25.3	
異常事故時 (高充填率化)	顆粒体中心温度(初期値)	T2	°C	186.0	
	顆粒体中心温度(終値)	T3	°C	196.2	
	顆粒体中心温度増加量	$\Delta T2=T3-T2$	°C	10.2	
異常事故時 (収納管曲がり+高充填率化)	顆粒体中心最高温度	$T_{max}=T0+\Delta T1+\Delta T2$	°C	220.7	

表 3.2-15 顆粒体貯蔵設備の解析評価条件（高充填率化事象時）

項目	単位	顆粒体貯蔵設備	備考	
基準圧力	Pa	101325.0	外気圧(1気圧)	
基準密度	kg/m ³	1.169	外気(1気圧、29℃)の空気密度	
重力加速度	m/s ²	9.807		
入口境界	流量	kg/s	0.044	ケース2-1の流量(0.619/7本)の1/14
	流体温度	℃	42	対応部位でのケース2-1の通気温度
出口境界	流量配分	—	1	
収納管内の熱輻射	—	考慮	公開の解析例と同じ保守側の設定	
通風領域の熱輻射	—	—		
発熱部	上部体積比	—	0.286	キャニスタ上部、充填率 0.0%
	下部体積比	—	0.714	キャニスタ下部、充填率 70.0%
時間設定	ステップ幅	sec	1	0~100sec 間
		10	100sec以降	
	終了時間	Hr	30	
発熱の時間変化	—	—	下図a 参照	
熱伝導率の時間変化	—	—	下図b 参照	



- ・計算が発散するのを防ぐために、60秒間では発熱密度が変化するものとした。
- ・熱伝導率の変化時間は、発熱密度化に合わせて60秒とした。
- ・比熱と密度は、充填率変化後(充填率70%)での値に固定した。

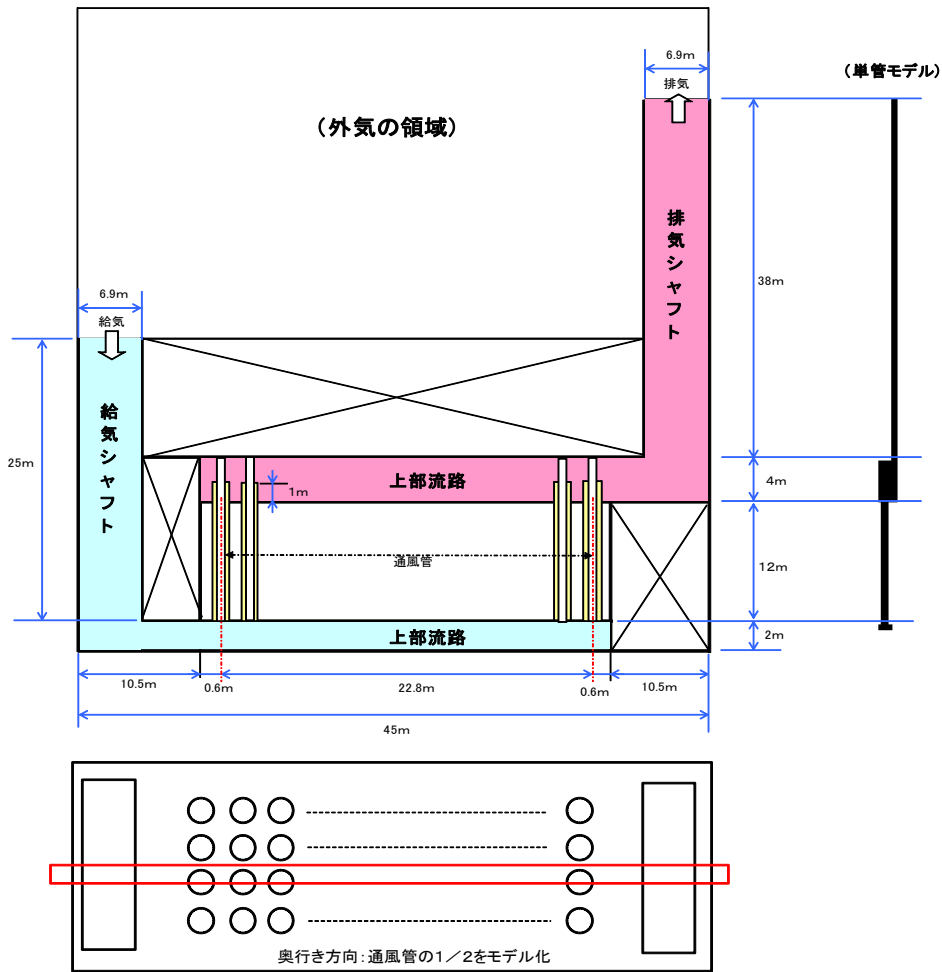


図3.2-29 形状モデルの概要

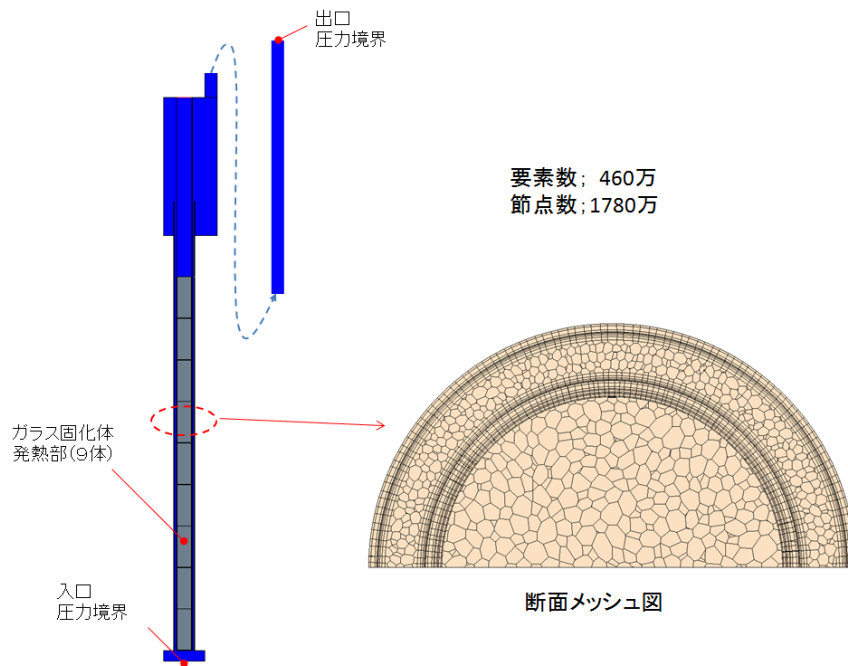


図3.2-30 ガラス固化体貯蔵設備の解析モデル

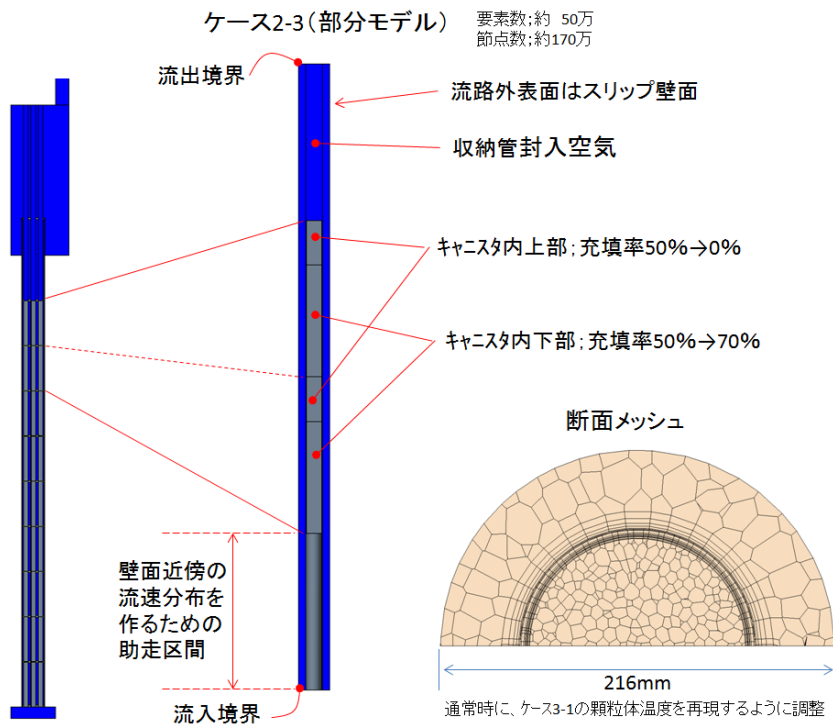
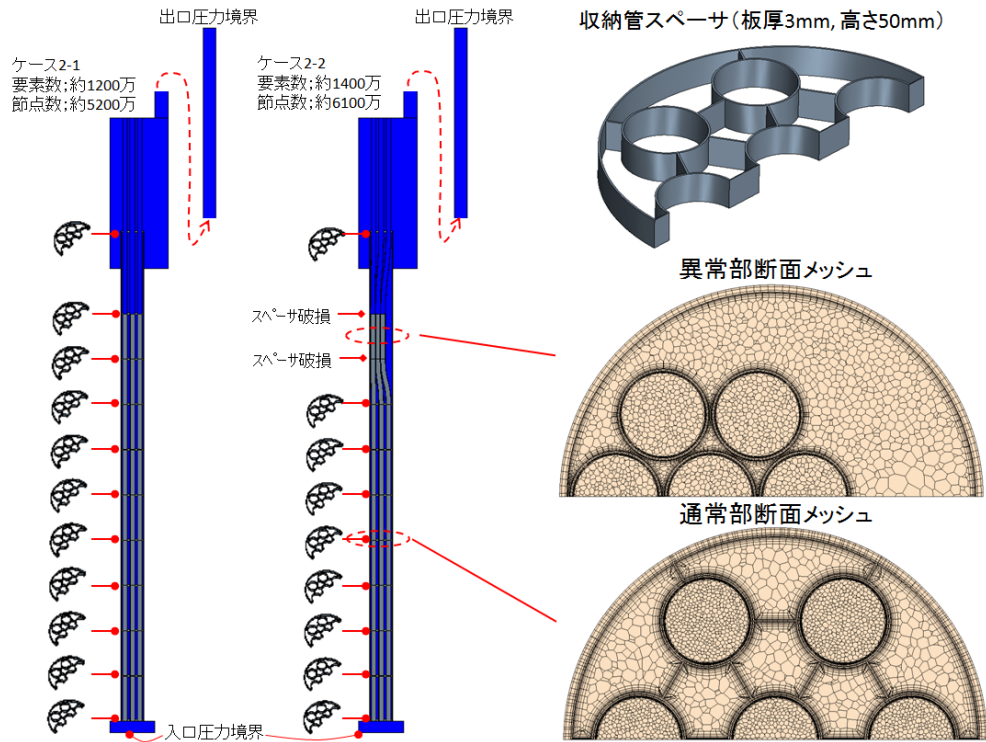


図3.2-31 顆粒体貯蔵設備の解析モデル

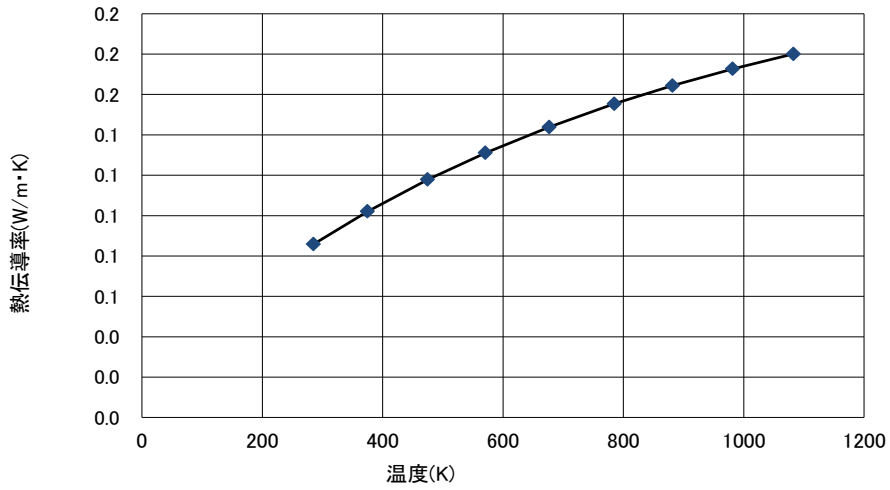


図3.2-32a 顆粒体の熱伝導率（充填率50%）

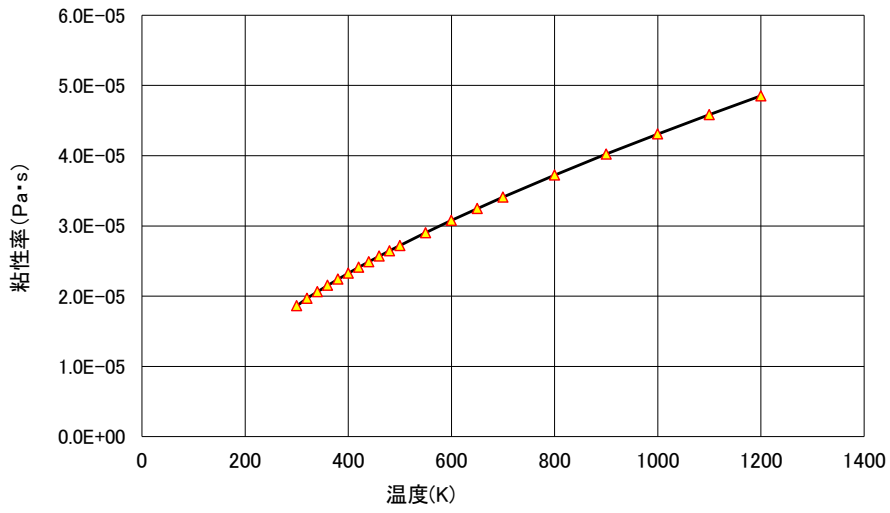


図3.2-32b 空気の粘性率（1気圧）

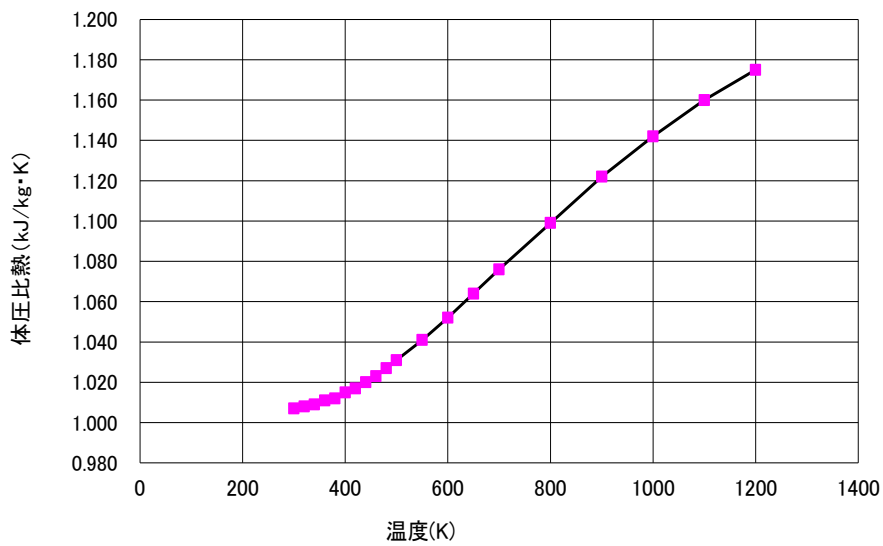


図3.2-32c 空気の定圧比熱（1気圧）

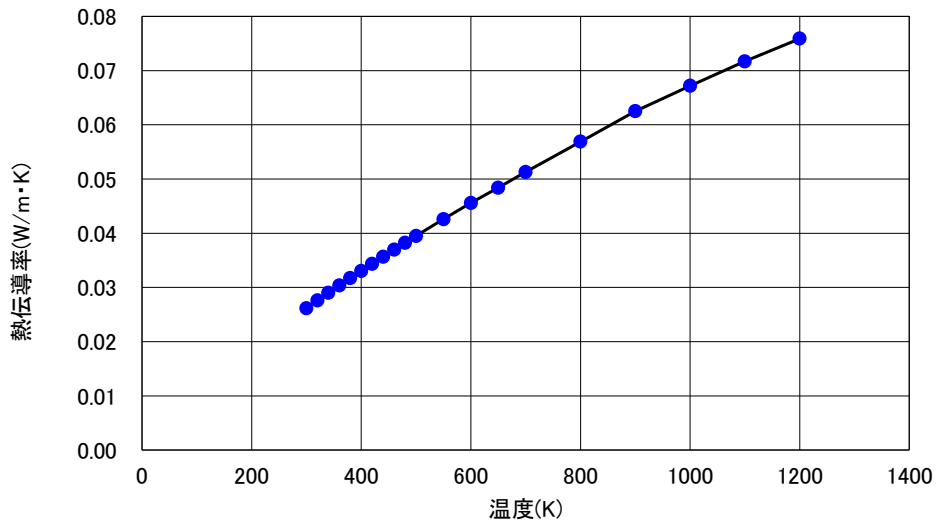


図3.2-32d 空気の熱伝導率（1気圧）

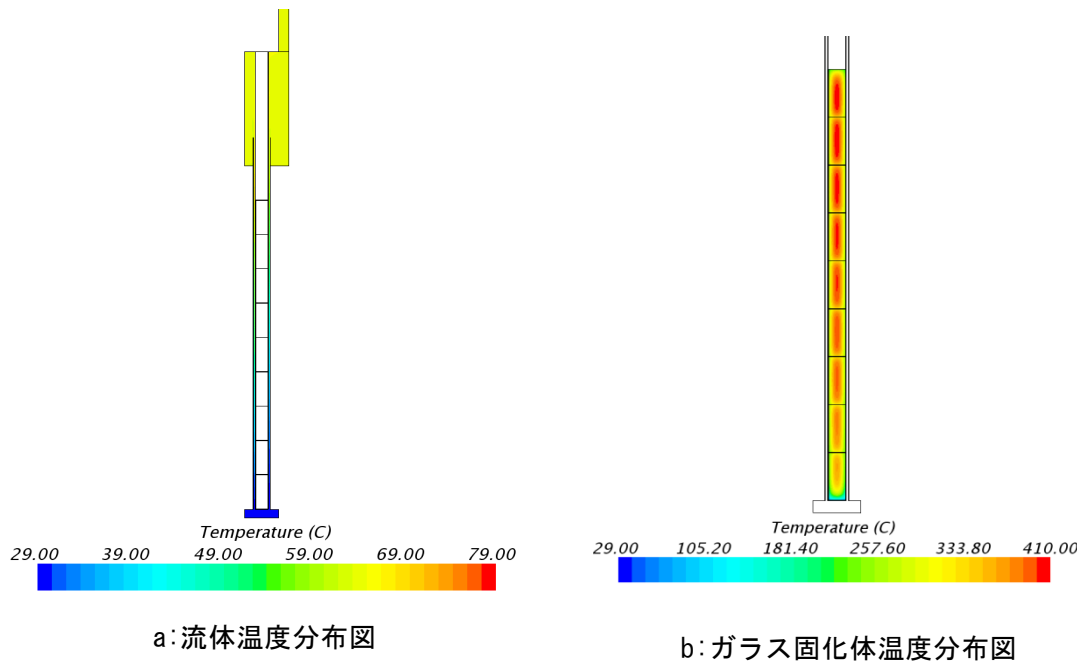
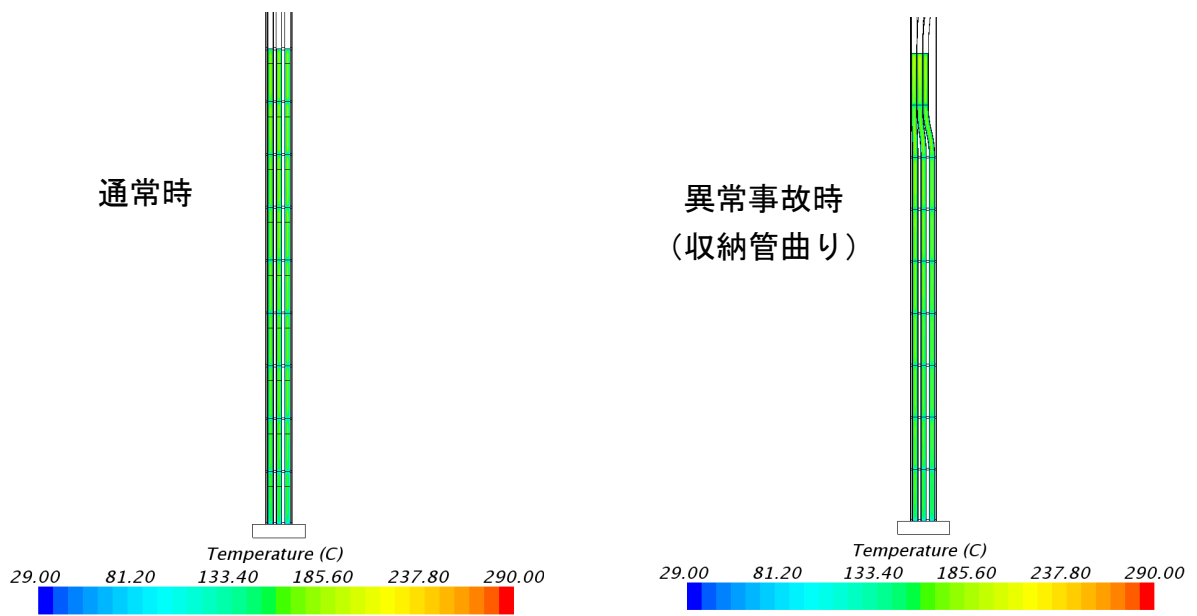
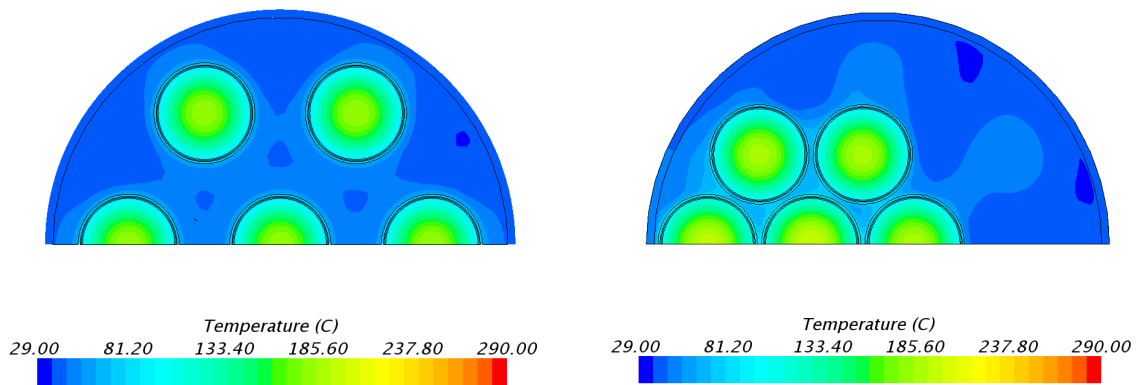


図3.2-33 ガラス固化体貯蔵設備の解析結果

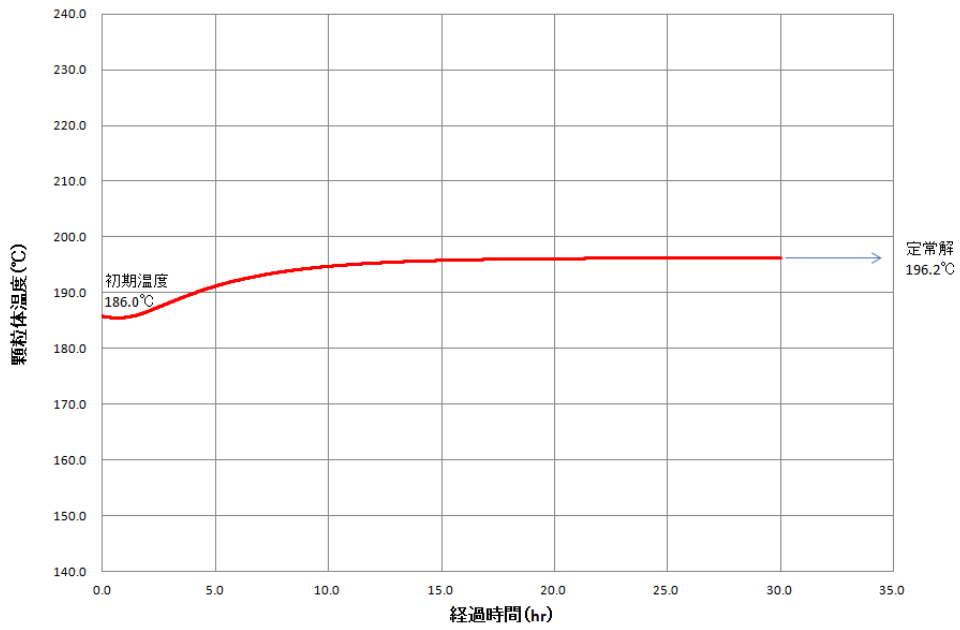


a: 顆粒体の温度分布図

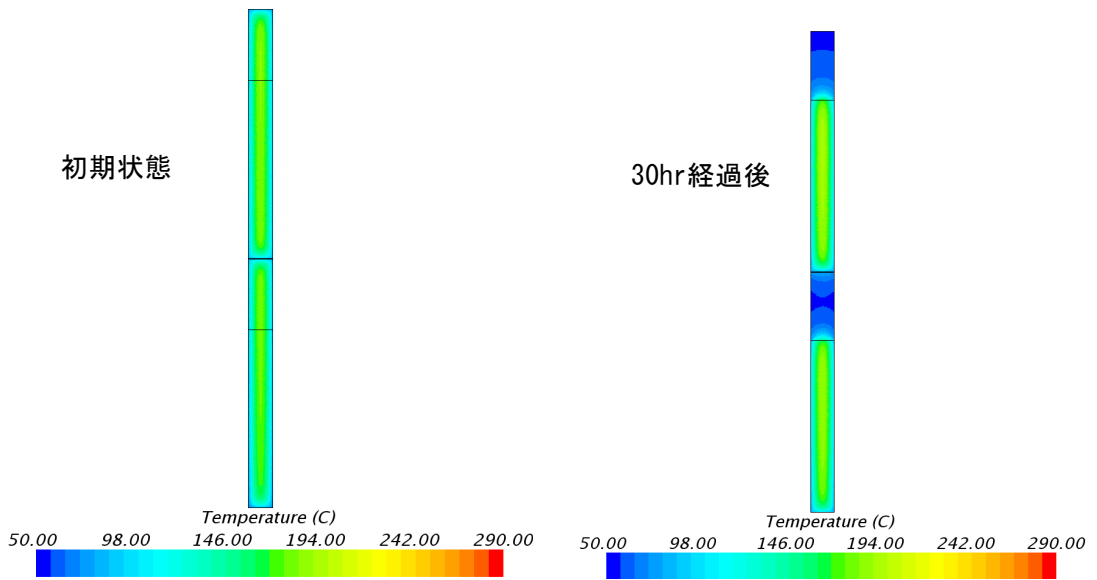


b: 顆粒体最高温度部の水平断面内温度分布図

図3.2-34 顆粒体貯蔵設備の解析結果 (1 / 2)



a: 異常事故時（高充填率化）顆粒体最高温度の時間変化



b: 顆粒体の温度分布図

図3.2-35 顆粒体貯蔵設備の解析結果（2 / 2）

3.2.2 廃棄物顆粒体の熱伝導率解析モデルの設定（再委託先：福島高専）（H25-H26）

廃棄物顆粒体の熱伝導率について、既存の顆粒体系熱伝導率解析モデルの調査を行い、貯蔵時及び事故時の廃棄物顆粒体の熱伝導率を設定するとともに、その適用性を評価した。また、設定した廃棄物顆粒体の熱伝導率を用いて廃棄物顆粒体の製造粒径について検討した。

(1) 廃棄物顆粒体系熱伝導率の設定

既存の顆粒体系熱伝導率解析モデルの調査結果により、廃棄物顆粒体系熱伝導率解析モデルとして FP, MA, Pu, U から成るリサイクル原料顆粒体と雰囲気ガスの混合体系用に開発された次のような複合粒子回路（CPC）モデル[1]が選定された。

・ 充填リサイクル原料熱伝導率（ λ_{RM} ）；

$$\lambda_{RM} = f_{g2} \lambda_{g2} + f_{m2} \lambda_{m2} + \frac{(1 - f_{g2} - f_{m2})}{\frac{k_2(1+d/L)}{\lambda_{g2}} + \frac{(1-k_2)}{\lambda_{m2}}} \quad (1)$$

・ 粉末リサイクル原料熱伝導率（ λ_{m2} ）；

$$\frac{1}{\lambda_{m2}} = \frac{(1 - \delta_s)}{\lambda_{m1} f_v} + \frac{\delta_s}{\lambda_{g1}} \quad (2)$$

・ リサイクル原料自体の熱伝導率（ λ_{m1} ）；

$$\frac{1}{\lambda_{m1}} = \frac{a}{\lambda_{UO_2}} + \frac{b}{\lambda_{Pu}} + \frac{c}{\lambda_{FP}} \quad (3)$$

ここで、

f_i ：充填率 $\varepsilon_i = 2(f_i+1)^3 - (2f_i+1)^3$ より決まる粒子の寸法定数

（ ε_1 は原料固溶体内充填率、 ε_2 は粉末充填率）

λ_g ：雰囲気ガスの熱伝導率、

λ_{mi} ：原料固溶体 ($i=1$) 又は粉末 ($i=2$) の熱伝導率、

$F=1/(1+d/L)$ はガス・粒子混合列の不連続係数、 d はガスの平均自由行程、

L は粉末間距離

k_2 ：ガス・粒子混合列内ガス割合

δ_s ：粉末表面ガス厚割合、

f_v ：粉末内部物質寄与割合

である。また、

λ_{UO_2} 、 λ_{FP} 、 λ_{Pu} ：それぞれ UO_2 、FP、 PuO_2 の熱伝導率

a 、 b 、 c ：リサイクル原料中の UO_2 、FP、 PuO_2 の存在割合で、 $a+b+c=1$

である。

(2) CPC 熱伝導率解析モデルの廃棄物顆粒体系への適用性検討

FP, MA を含む核物質顆粒体であるリサイクル原料や FP 顆粒体について、熱伝導率解析モデル CPC モデルによる模擬リサイクル原料の熱伝導率試験結果の解析精度評価が行なわれており、これらの結果を基に、CPC モデルの廃棄物顆粒体の貯蔵時及び事故時の廃棄物顆粒体の熱伝導率としての適用性を検討した。

① CPC 解析モデルによる模擬 FP 顆粒体熱伝導率試験結果の評価

NaNO_3 を含有しない模擬フッ化物 FP 顆粒体の実験データについて、CPC 熱伝導率解析モデルによる解析評価結果を図 3.2-36～図 3.2-38 に示す。図 3.2-24 は粒径 $40\ \mu\text{m}$ 以下の空気ガスの場合及び He ガスの場合、図 3.2-37 は粒径 $40\text{--}63\ \mu\text{m}$ の空気ガスの場合及び He ガスの場合である。更に図 3.2-26 は粒径 $63\text{--}125\ \mu\text{m}$ の空気ガスの場合及び He ガスの場合である。

これらの比較より、CPC 解析モデルは模擬廃棄物顆粒体系熱伝導率の試験結果に対して、熱伝導率の温度依存性、粒径依存性、雰囲気ガス依存性について再現性が良いと言える。

② CPC 熱伝導率解析モデルの精度評価

CPC 熱伝導率解析モデルの模擬リサイクル原料及び模擬フッ化物 FP 顆粒体の実験データに対する予測解析の精度評価の結果を図 3.2-39 に示す。これより、CPC モデルはこれまでの模擬顆粒体熱伝導率の試験結果全体に対しては $\pm 20\%$ の精度を有している。

また、模擬フッ化物 FP 顆粒体系の熱伝導率実験データについての予測解析精度評価を図 3.2-40 に示す。図 3.2-40 の比較は試験データ数が 33 点であり約 $1/3$ と少なくなっているが、フッ化物 FP 顆粒体系の熱伝導率に対する CPC 解析モデルの予測精度は $\pm 10\%$ 程度となっている。なお、本比較はフッ化物顆粒体の場合であり、リサイクル原料の場合の試験結果から酸化物では約 5% 程度低下すると予想されるが、これらを考慮しても $\pm 20\%$ の精度の範囲には収まると考えられる。

③ NaNO_3 の熱伝導率の検討

顆粒体系熱伝導率解析モデル CPC は U, Pu, FP, MA から成るリサイクル原料及び FP/MA 粒子体系における熱伝導率解析モデルとして開発されたものである。これに対して廃棄物顆粒体は FP/MA + NaNO_3 から成る混合粒子系であり、その適用性の検討が必要である。そこで、 NaNO_3 に関する熱伝導率試験結果を文献調査した。図 3.2-41 に Y. Nagasaki 他による NaNO_3 熱伝導率試験結果のまとめを示す。[2] 同図には NaNO_3 の 305°C 以下の固体系及び 305°C 以上の熔融系の熱伝導率がまとめられている。 NaNO_3 固体系の熱伝導率実験データは温度に対して温度に対して負の依存性をもち、 $100^\circ\text{C}\text{--}306^\circ\text{C}$ で $1.0\text{--}0.5\text{W}/^\circ\text{Cm}$ の範囲である。図 3.2-42 に CPC 熱伝導率解析モデルにおける FP 熱伝導率を上記 NaNO_3 固体系熱伝導率と比較して示す。同図の比較結果より CPC 熱伝導率の FP 熱伝導率と NaNO_3 の熱伝導率はほぼ同程度であると言える。従って、CPC 熱伝導率解析モデルにおいて FP 熱伝導率を (FP + NaNO_3) の熱伝導率とすることが妥当と考えられる。なお、顆粒体の熱伝導率は廃棄物顆粒体の長期貯蔵時の材料化学的安定性等柔軟な廃棄物管理法の成立性に係る重要な物性データであり、今後 顆粒体製造技術により作製した模擬廃棄物顆粒体の熱伝導率測定試験により確認が重要である。

以上より、CPC 熱伝導率解析モデルは廃棄物顆粒体系に対し適用性があると判断される。

(3) 製造廃棄物顆粒体の粒径の検討

顆粒体系熱伝導率解析モデル CPC モデルを用いて、廃棄物顆粒体の製造において目標とすべき粒径について検討した。

製造される廃棄物顆粒体の粒径は幅広く分布していると考えられる。これまでに得られたリサイクル原料(U, Pu, FP, MA)の模擬試験の粒径は $0.1 \mu\text{m}$ から数 $100 \mu\text{m}$ に分布している。CPC モデルでは顆粒体系熱伝導率として粒子・ガス混合列内のガス熱伝導率が不連続効果により実効的に次式で定義される F 倍に低減するとしている。

$$\lambda g \rightarrow F \cdot \lambda g \quad F = 1/(1 + d/L)$$

ここで、 d はガスの平均自由行程、 L は粒子間距離である。 F は粉末粒径に対し非線形であるため、粉末粒径が分布している場合は体積平均の粒径ではなく、熱伝導率として等価な実効平均粒径を用いることが必要である。そこで、粒径分布を表す函数 W_i を基に下式により求められる Le を実効粒子間距離として採用することとしている。

$$F = \sum W_i / (1 + d/L_i) = 1 / (1 + d/Le)$$

図 3.2-43 に模擬リサイクル原料の場合の粒径分布例を示す。粒径分布の測定結果より体積平均粒径が $2.1 \mu\text{m}$, $16.6 \mu\text{m}$ であるのに対して、実効平均粒径はそれぞれ $0.35 \mu\text{m}$, $2.1 \mu\text{m}$ と $1/3 \sim 1/6$ に小さくなる。このように粒径分布は熱伝導率に大きく影響するため、熱伝導率の評価には実効平均粒径を用いることが重要である。

以上のことを踏まえ、顆粒体系熱伝導率解析モデル CPC モデルを用いて、熱伝導率の向上の観点から、顆粒体の粒径のあり方を検討した。図 3.2-44 に顆粒体平均径と熱伝導率の関係を示す。同図より顆粒体の熱伝導率は粒径の増加により主として粒子—ガスの混合成分の熱伝導率の上昇により増加するが、 $10 \mu\text{m}$ 程度以上粒径が大きくなるとほぼ飽和に達することが分る。これらの結果より、顆粒体の粒径としては実行平均粒径として $10 \mu\text{m}$ 以上とすることが望ましいと言える。

以上より、廃棄物顆粒体の製造技術の開発に当っては、熱伝導率の等価な実効平均粒径が $10 \mu\text{m}$ 程度以上となることを目標とする。

参考文献

- [1] 日立 GE ニュークリア・エナジー株式会社、平成 21 年度 文部科学省 原子力システム 研究開発事業、「FBR 移行サイクルの柔軟性向上技術の実用化に関する研究開発 成果報告書」、平成 22 年 3 月
- [2] Y. Nagasaka, A. Nagashima, Int. J. Thermophys. 12 (1991) 769.

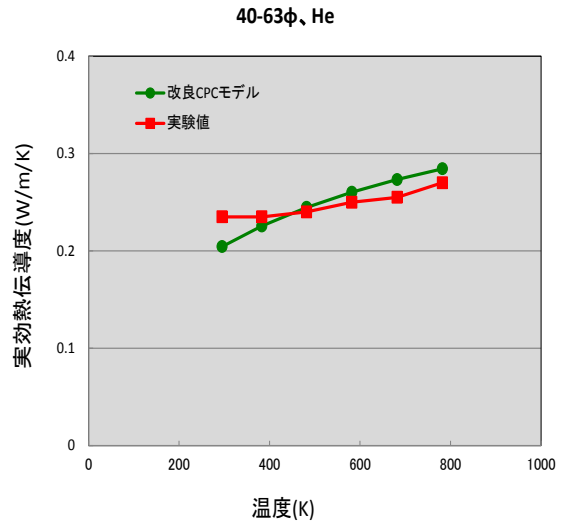
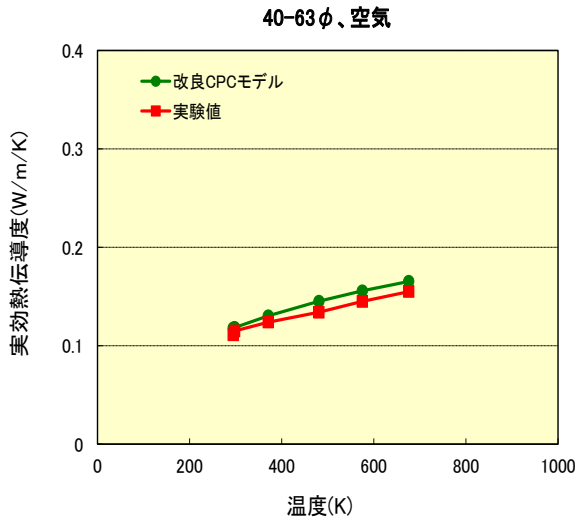


図 3.2-36 CPC熱伝導率解析モデルの検証(1)

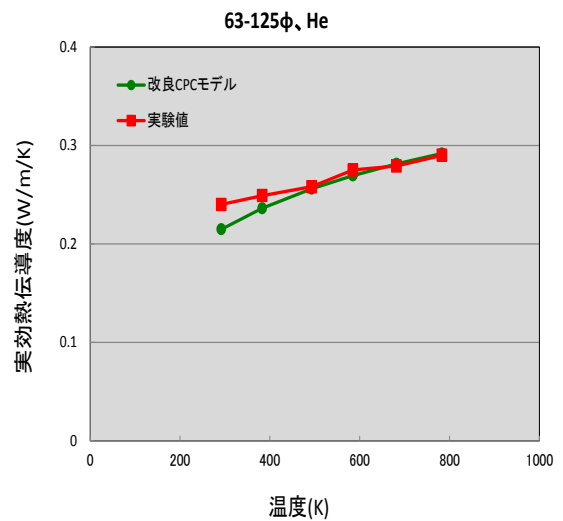
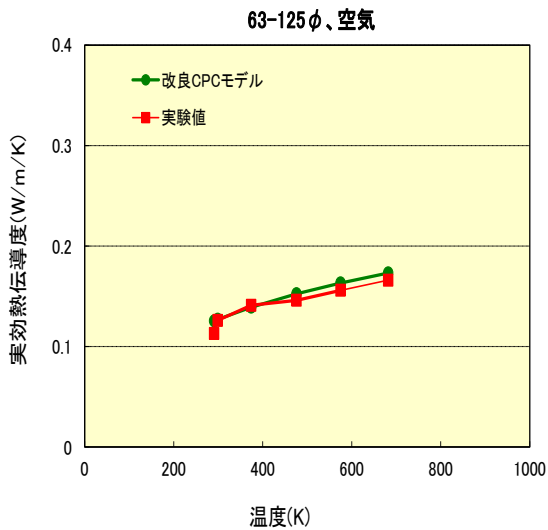


図 3.2-37 CPC熱伝導率解析モデルの検証(2)

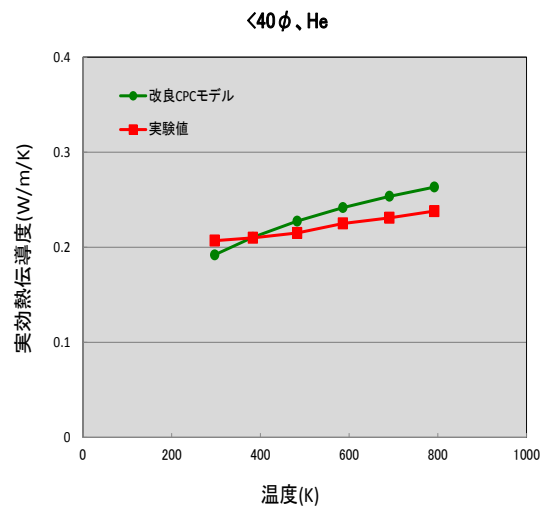
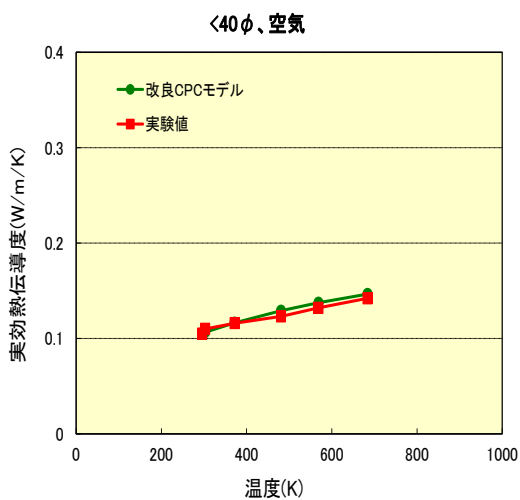


図 3.2-38 CPC熱伝導率解析モデルの検証(3)

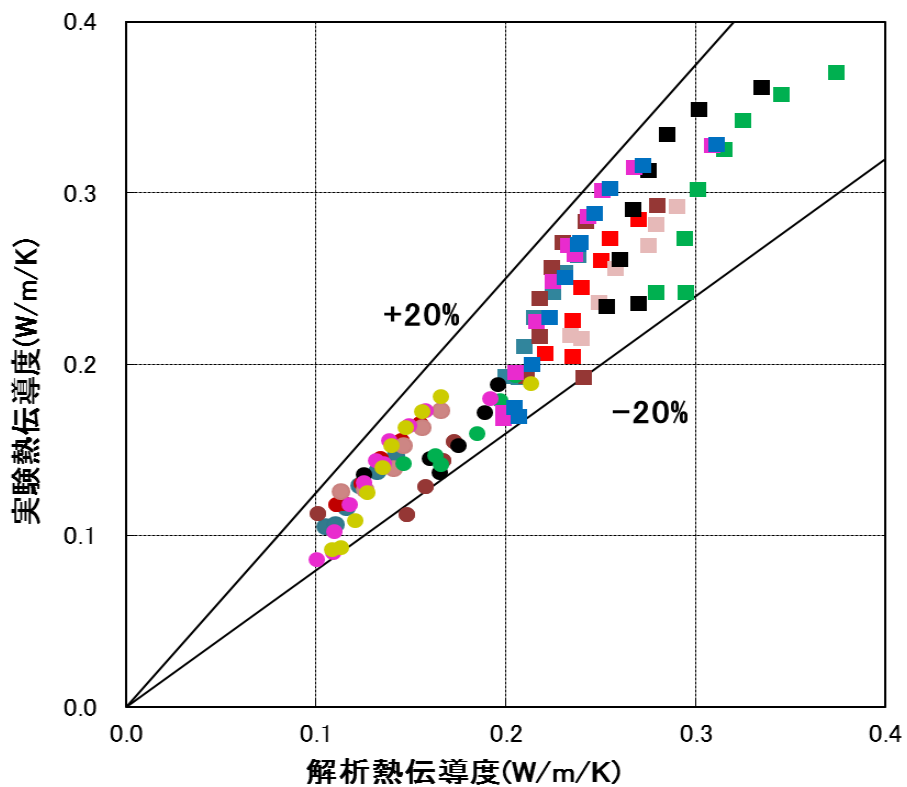


図 3.2-39 模擬顆粒体系熱伝導率試験結果

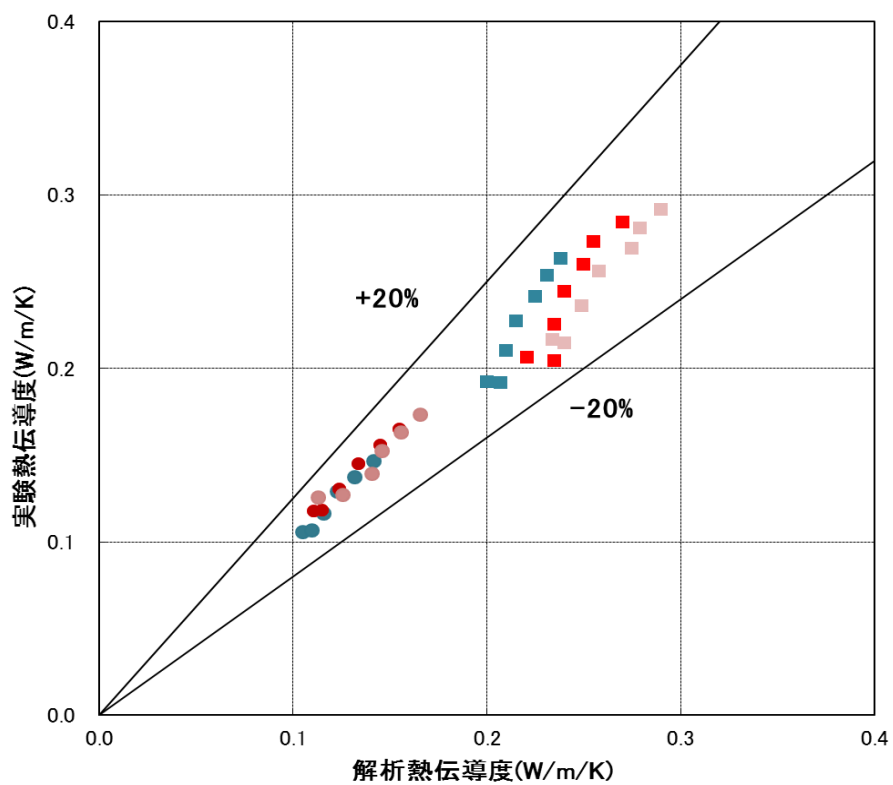


図 3.2-40 フッ化物模擬 FP 顆粒体系熱伝導率試験結果

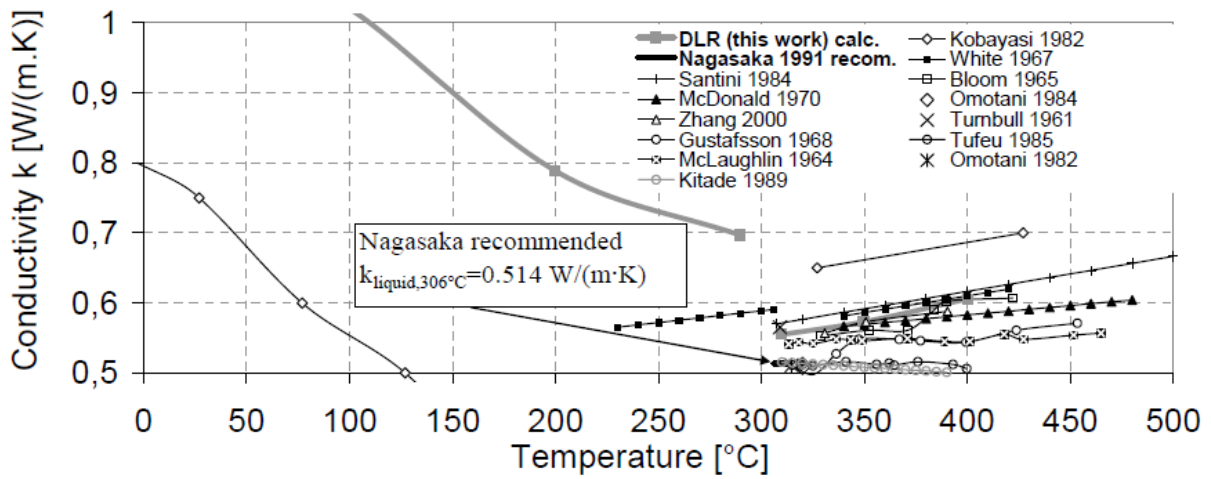


図 3.2-41 NaNO_3 の熱伝導率データ

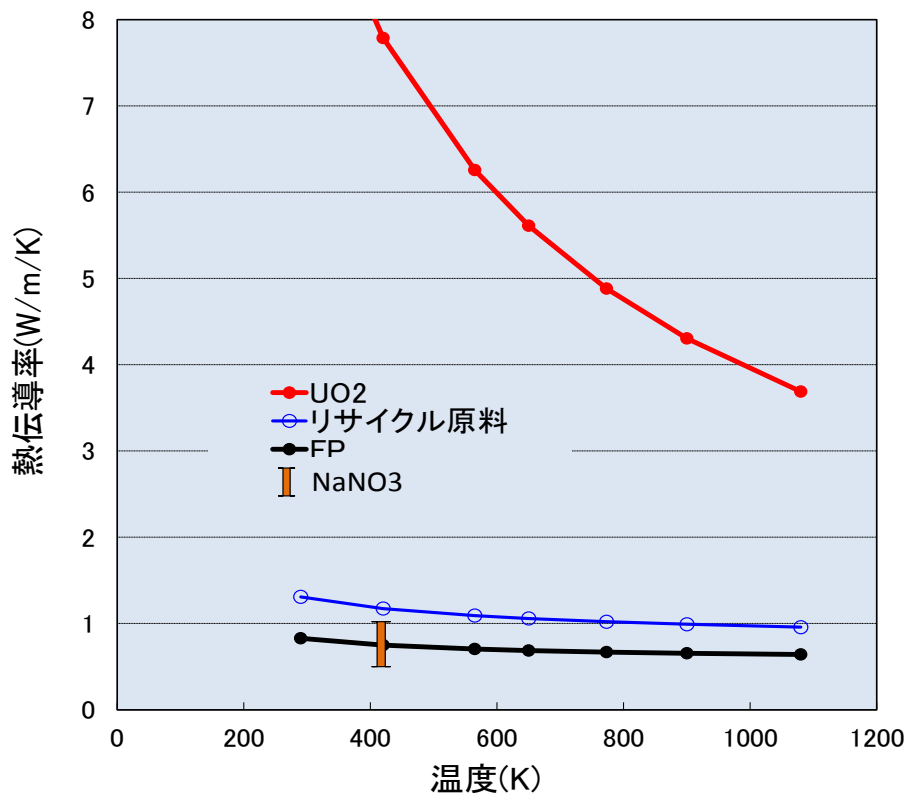


図 3.2-42 FP 及び NaNO_3 熱伝導率の関係

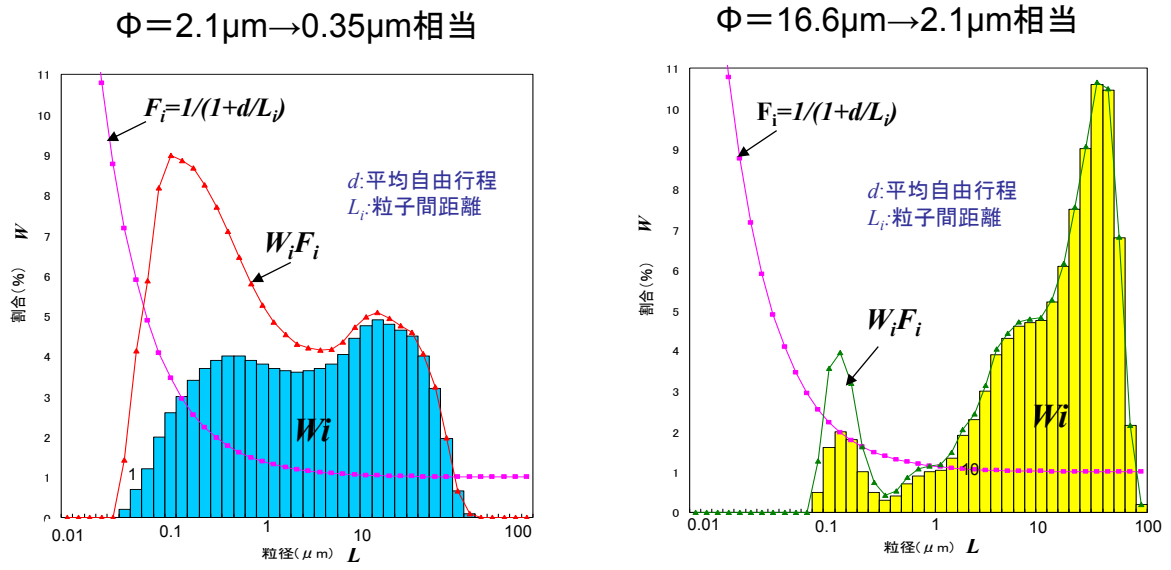


図 3.2-43 顆粒体粒径分布と実効粒径の説明

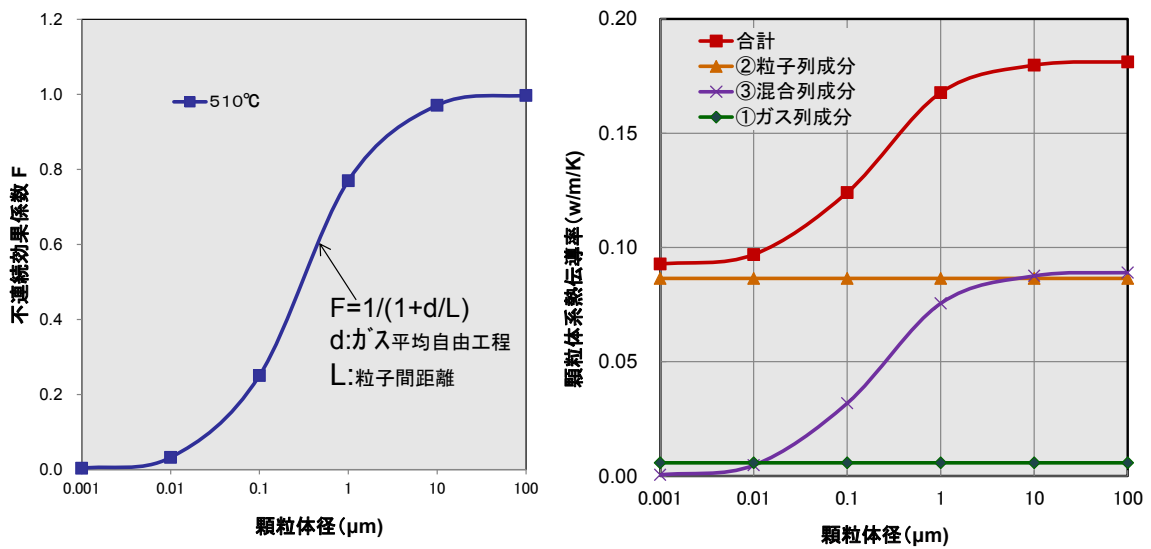


図 3.2-44 顆粒体径と熱伝導率の関係

3.3 環境負荷低減効果の評価（再委託先：日立GE）（H25-H26）

3.3.1 潜在的有害度評価

(1) 環境負荷低減効果の評価条件

柔軟な廃棄物管理法の環境負荷低減効果の評価条件として、マイナーアクチニド分離変換技術実用化時期、使用済燃料の再処理前冷却期間、柔軟な廃棄物管理法の開発実用化時期等について検討し設定した。

① マイナーアクチニド分離変換技術実用化時期

マイナーアクチニド分離変換技術については国内各機関で鋭意研究開発され、高速炉・均質装荷法、高速炉非均質装荷法、加速器利用・階層型群分離法等種々のサイクル・システムが検討されている。代表的開発事例としてFBR均質炉心の先進湿式法再処理（酸化物燃料サイクル）のMA分離変換技術の研究開発状況は以下の通りである。

1) MA 分離技術

Am、Cmの分離技術としては抽出クロマトグラフィー法及びSETFICS/TRUEX法がある。抽出クロマトグラフィー法については、化学的に類似の分離挙動を示す希土類（RE）の随伴を許容しAm+Cmを分離した後、Am+CmとREを各々回収する2サイクルプロセス、あるいは、Am+Cmを選択的に回収する単サイクルプロセスが検討され、吸着剤の分離性能に関する比較評価のため、バッチ試験、カラム試験が行われている。種々の吸着剤を用いたMA回収用フローシートの構築・比較評価が行なわれており、試験で取得・蓄積したデータを基に総合的に評価し、最適な吸着剤、分離プロセス、フローシートの選定に取り組むとともに、機器開発においては、安全性等、再処理機器としての要件を確認する基礎的な試験や工学規模試験の方法についての検討が行われている。また、抽出クロマトグラフィー法は経済性、二次廃棄物の低減等の観点で優れると評価された。

再処理技術への適用の観点からは、抽出クロマトグラフィー法は開発途上の技術であるが、実用化時の効果の大きさ、開発課題と開発期間を考慮して今後の開発対象とされ、SETFICS法は、抽出クロマトグラフィー法の代替技術と位置づけられている。

2) MA 含有酸化物燃料

MA含有MOX燃料の工学規模での製造技術については、セル内での遠隔操作による簡素化ペレット法を用いた燃料製造に係る研究開発が実施されている。脱硝容器の大容量化技術、有機バインダーなしの転動造粒技術、有機潤滑材の添加を極少化するダイ潤滑技術、ペレット焼結・O/M比調整技術等の開発が行われている。

MA含有MOX燃料では、MAが含まれることによる焼結性、物性等への影響の把握、MAからの高発熱、高線量のために遠隔操作が必要となること等への対応が課題となる。MA含有MOXペレットの焼結性への影響について、MAを添加したMOX燃料の製造試験が実施されている。また、高酸素ポテンシャル下で焼結することで均質性の良いペレットを製造できることを確認するとともに、高燃焼度化に対応するために、その後に加熱還元することで低O/M比に調整する技術の開発も行われている。MAを添加したMOX燃料の製造試験については、5%のAmを含有したMOXペレット及び2%ずつのNp及びAmを含有したMOXペレットが製作され、「常陽」での照射試験用の燃料ピンとして組み立てられた。また、以上と並行して、設計研究の中で、セル内設備遠隔保守技術、高発熱燃料の取扱技術の開発が行われている。

3) 核変換システム

酸化物燃料大型FBR炉心（1500MWe級）の設計研究では、均質炉心体系でのMAリサイクルでは、軽水炉から高速炉への移行期における変動（軽水炉使用済燃料の種類・燃焼度・貯蔵期間と処理割合）を考慮しても、MA含有率は最大で5%程度と評価された。

この結果を基に、MAを5%程度まで含有した燃料を装荷した大型均質炉心のボイド反応度、ドップラー係数等の炉心安全に関する設計諸量の評価が実施されている。高速炉多重リサイクル超ウラン元素（TRU）を燃料とした均質装荷炉心（MA約1%添加）及びMA含有率5%までの均質装荷炉心についての評価を行った結果、MA添加率が5%以下ならば、ボイド反応度が仮想的な炉心損傷事故時に即発臨界に至るのを回避できるボイド反応度の限界の目安である6\$以内に収まることを確認している。また、増殖比は1.1以上、燃料取り出し時のMA核変換率は30～40%になるとの見通しが得られている。

4) 海外における分離変換技術研究開発

[フランス]：燃料サイクルにおける分離変換の方式としては、MAをU及びPuとともに高速炉のドライバー燃料としてリサイクルする「均質リサイクル」、ならびにMAはU及びPuとは別の燃料／ターゲットとしてリサイクルする「非均質リサイクル」の2通りの考え方を検討している。非均質リサイクルの場合は、MA燃料／ターゲットを高速炉の炉心の一部に装荷する方式とADSへ装荷する方式の2通りがある。

分離技術の研究開発では湿式再処理において、均質リサイクルに適用できるGANEXと呼ばれるアクチノイドの一括抽出法の研究開発が進められているが、未だ十分な性能の抽出剤は見出されていない。非均質リサイクルのためには、再処理において、U及びPuを分離した後に、Am及びCmを分離する必要がある。2005年に、ATALANTEのCBTにおいて、軽水炉使用済燃料13 kgを用いて、U及びPuだけでなくNpも回収する改良PUREX法によりNpを99.6%以上分離後、DIAMEX-SANEX法により、Am及びCmをそれぞれ99.9%以上分離することに成功した。しかし、Am及びCmの分離法について、改善の余地が多くあることも明らかになった。

核変換用燃料の研究開発では、1980年代に均質サイクルのためのNp又はAmを2%添加したMOX燃料並びに非均質リサイクルのためのNp又はNp+Amを40%含有するUO₂燃料の照射試験SUPERFACTが実施された。非均質リサイクルのための燃料については、MgOを不活性母材とするCERCER燃料の研究が行われるとともに、欧州における共同研究プログラムにおいて、Moを不活性母材とするCERMET燃料の研究が行われている。

[米国]：軽水炉使用済燃料の再処理においては、Puを単離しないことが大前提ではあるが、処分場を有効に使用する観点から、使用済燃料の大部分を占めるUを分離し、再利用のための貯蔵又は廃棄物として簡単に処分できるようにすること及び発熱性FPのSr及びCs並びにMAを分離することなどが基本的考え方である。再処理法としては、Puを単離するPUREX法に代わるものとして、種々のバリエーションのあるUREX+法の研究開発が行われている。

UREX+1a法は、UREX法によりUを単離し、FPEX法によりSr及びCsを分離した後に、TRUEX-TALSPEAK法により、Np、Pu、Am、Cmを分離回収するものである。2006年には、軽水炉使用済燃料1 kgを用いて、UREX+1a法の試験が行われ、99.9%以上のU、Np、Pu、Am、Cmの回収に成功した。UREX+1a法では、超ウラン元素が一括して回収されるため、燃料製造においては、ホットセルにおける遠隔製造が必要になる。これを回避するために、Am及びCmはNp及びPuと分け

て回収するプロセスUREX+3法の研究開発も実施されている。UREX+1a法はMAの均質リサイクル用の再処理法であり、UREX+3法はMAの非均質リサイクル用である。

軽水炉使用済燃料から回収されるPu及びMAは高速炉に装荷される計画であるが、その化学形については酸化物又は金属が検討されている。MA含有の高速炉燃料の開発については、金属燃料について、均質リサイクル用及び非均質リサイクル用の燃料照射試験が、ATR及びフェニックス炉で行われている。

5) 分離変換技術の成熟度評価

分離変換技術の成熟度に関する「分離変換・MAリサイクル」専門部会の評価結果を図3.3-1、図3.3-2に示す。MA分離変換の実現には、MA装荷炉心技術、MA分離・再処理技術並びにMA含有燃料技術の全てが確立する必要があるが、現状においてはその何れの技術においても成熟度は9段階の2～3段階にあると評価されている。また、今後研究開発を進め、成熟度レベルを高めて行くに際して、実MAを用いた工学スケールの試験が必要であり、開発上の大きな壁になることが指摘されている。

以上のようなMA分離変換技術開発の現状から、MA分離変換の実用化には関連する全ての技術が整合性を取って確立される必要があり、今後数十年を必要とすると考えられる。

なお、従来、MA分離変換技術については、FBRによるMA核変換を想定し、そのためのMA分離技術の導入を想定している。従って、MA分離変換技術の実用化時期について明確に設定することは困難であるが、本研究開発では従来に倣い現行の軽水再処理（六ヶ所再処理工場）に続くFBR再処理から実用化されるものとする。

② 使用済燃料再処理前冷却期間

平成25年度に実施した調査結果によれば、わが国においてこれまでに発生し、貯蔵されている軽水炉使用済燃料はPWR及びBWRタイプで合わせて約17,000tあり、燃焼度は約30,000MWd/tから45,000MWd/tになっている。また、今後の使用済燃料の取出し平均燃焼度としては六ヶ所再処理設備の受け入れ条件から、45000MWd/tであると想定される。

軽水炉使用済燃料の潜在的有害度の主たる要因としてはアクチニドや核分裂生成核種の内、マイナーアクチニド等の超長半減期核種が重要な役割を占めている。マイナーアクチニドは使用済燃料の取出し燃焼度やその発生量に依存すると同時に再処理までの先行核種からの崩壊による蓄積量にも依存する。再処理前に蓄積するマイナーアクチニドの主要な核種であるAm-241は、親核種であるPu241の半減期が約18年であり、放射性廃棄物の管理法の違いにより、再処理前の冷却年数は5～50年程度の範囲で変わりえるため冷却期間は重要なパラメータである。

図3.3-3にBWR及びPWRの高燃焼度導入時期を示す。また、軽水炉使用済燃料に関する発生、処理実績等を基に推定されるわが国の軽水炉使用済燃料の蓄積量の経時的变化を図3.3-4に示す。同図より我が国でこれまでに発生した軽水炉使用済燃料は25,870tであり、海外設備及び東海設備で8,160tが再処理済み、六ヶ所再処理設備で425tが再処理済み、2,945tが貯蔵中である。国内原子力発電所サイトには総量14,350tの軽水炉使用済燃料が貯蔵されており、現在貯蔵冷却中の使用済燃料は合計17,295tである。[4]

これらの使用済燃料の冷却期間は今後六ヶ所再処理設備で処理されることになるが、操業

計画を基に竣工後 5 年で定格 800 t /年の処理量で連続運転した場合の累積処理量から平均の再処理前冷却期間を算定した。その結果、個々の使用済燃料の再処理前冷却期間は何時の時点で再処理を行うかに依存するため不確定であるが、我が国でこれまでに発生した軽水炉使用済燃料について今後六ヶ所再処理設備で処理される場合の全体の平均的な再処理前冷却期間は約 30 年と算定された。

③ 柔軟な廃棄物管理法の実用化時期

柔軟な廃棄物管理法は使用済燃料の再処理により発生する MA を含む廃棄物（高レベル廃液）を再生可能な形態（顆粒体等）とし、キャニスターに充填して冷却のため貯蔵管理するものである。柔軟な廃棄物管理法の実現には湿式再処理の場合、1) 高レベル廃液の調整、2) 顆粒体の製造（乾燥・脱硝による）、3) 顆粒体の貯蔵管理、の要素プロセスの確立が必要である。この内、1) 高レベル廃液の調整は既存の PUREX 法を適用可能であり、2) 顆粒体の製造の技術は既に実用化されている仏国のガラス固化 (AVM 法) における仮焼法等が適用可能と考えられる。また、3) 顆粒体の貯蔵は自然循環空冷のガラス固化体貯蔵設備を共用できる。これらの要素技術の内最も開発期間を要するのは顆粒体製造技術と考えられる。顆粒体製造技術については、ロータリーキルンによる確証試験に 4 年、実機実証に 3 年、許認可・工事に 3 年として 10 年程度が必要と考えられ、再処理稼動開始から 10 年で適用可能と考えられる。

図 3.3-5 に廃棄物顆粒化開始時期と顆粒化割合の関係を示す。同図において、定格再処理量は竣工後 5 年で達成するとしている。図 3.3.-5 より柔軟な廃棄物管理法の導入時期が再処理開始後 10 年の場合顆粒化割合は 81%である。

以上の柔軟な廃棄物管理法の有効性評価条件のまとめを図 3.3.-6 に示す。

参考文献

- [1] 日本原子力学会 分離変換・MA リサイクル研究専門委員会「高レベル廃棄物管理に対する分離変換技術導入効果の検討」原子力委員会 研究開発専門部会 分離変換技術検討会資料第 1-3-1 号、平成 20 年 9 月 19 日
- [2] 日本原子力学会 分離変換・MA リサイクル研究専門委員会「平成 12 年以降の分離変換に対する国外の状況変化」日本原子力研究開発機構 分離変換技術検討会資料第 2-1 号、平成 20 年 10 月 1 日
- [3] 日本原子力学会 分離変換・MA リサイクル研究専門委員会「分離変換技術はどこまで成熟したか？」 日本原子力学会誌、Vol. 52, No. 12 (2010)
- [4] H. Tanaka, JNFL, "Current State of Japan's Nuclear Fuel Cycle Project" GLOBAL-2013, Oct. 1, 2013, Salt Lake City, UT, USA

開発段階の考え方(ADSの例)



- 原子力学会の研究専門委員会において、NASAやJAXAで活用されている**技術成熟度(TRL)**基準を参考に、現状と今後の方向性を議論。
- 実用化に向け、**次の段階に進むための課題認識を関係者で共有**するために有効。
- 特に、異分野間(核設計、燃料設計、再処理、等)での**水平連携**、及び、基礎基盤研究—工学技術開発—プラント工学技術の**垂直連携**のための情報共有が重要な目的
- レベルの絶対値の議論に注力するべきではない。

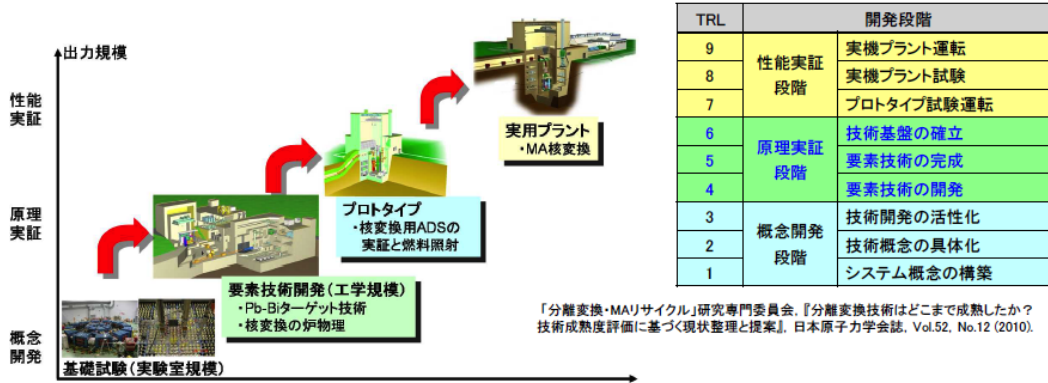
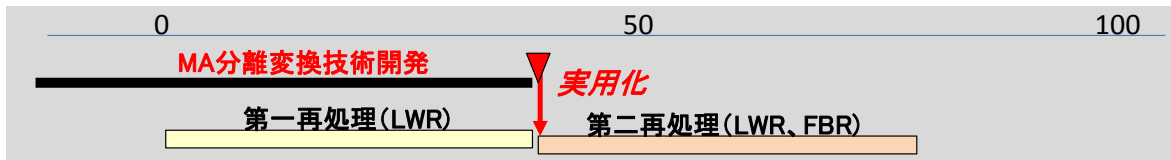


図 3.3-1 分離変換技術の開発段階評価



●分離変換技術の成熟度評価

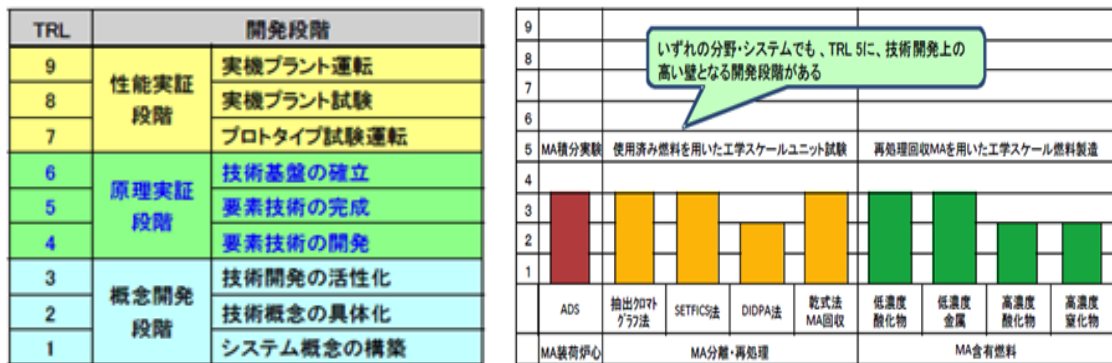


図 3.3-2 分離変換技術の成熟度評価

<BWR>					
ステップ	—	従来型	ステップⅠ	ステップⅡ	ステップⅢ
格子配列	—	8×8	8×8	8×8	9×9
平均燃焼度	GWD/t	28	33	39.5	45
最高燃焼度	GWD/t		40	50	55
U濃縮度	%				
SF発生量	%	ベース	-15	-29	-38
導入時期	年		1987年	1991年	1999年
<PWR>					
ステップ	—		従来型	ステップⅠ	ステップⅡ
格子配列	—		17×17	17×17	17×17
平均燃焼度	GWD/t		31.5	39.5	45
最高燃焼度	GWD/t		39	48	55
U濃縮度	%				
SF発生量	%		ベース	-20	-30
導入時期	年		1975年	1989年	2004年

図 3.3-3 BWR 及び PWR の高燃焼度燃料導入時期

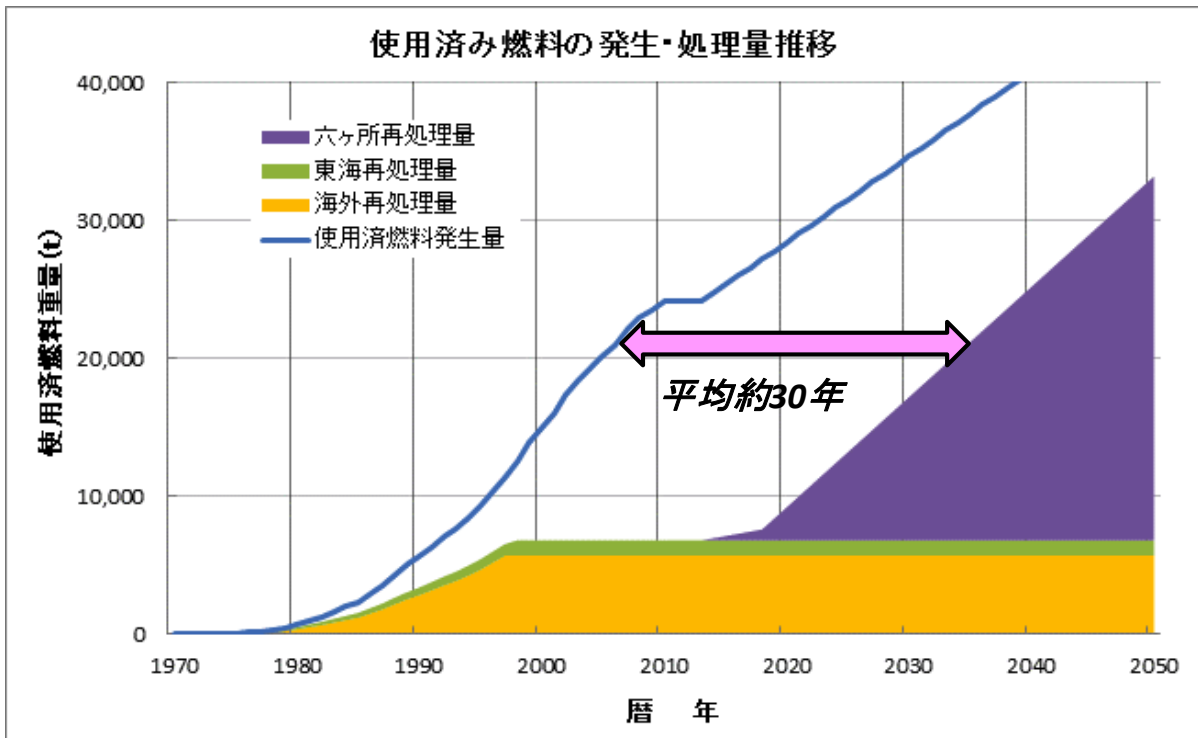


図 3.3-4 軽水炉使用済燃料の発生・再処理実績及び予定

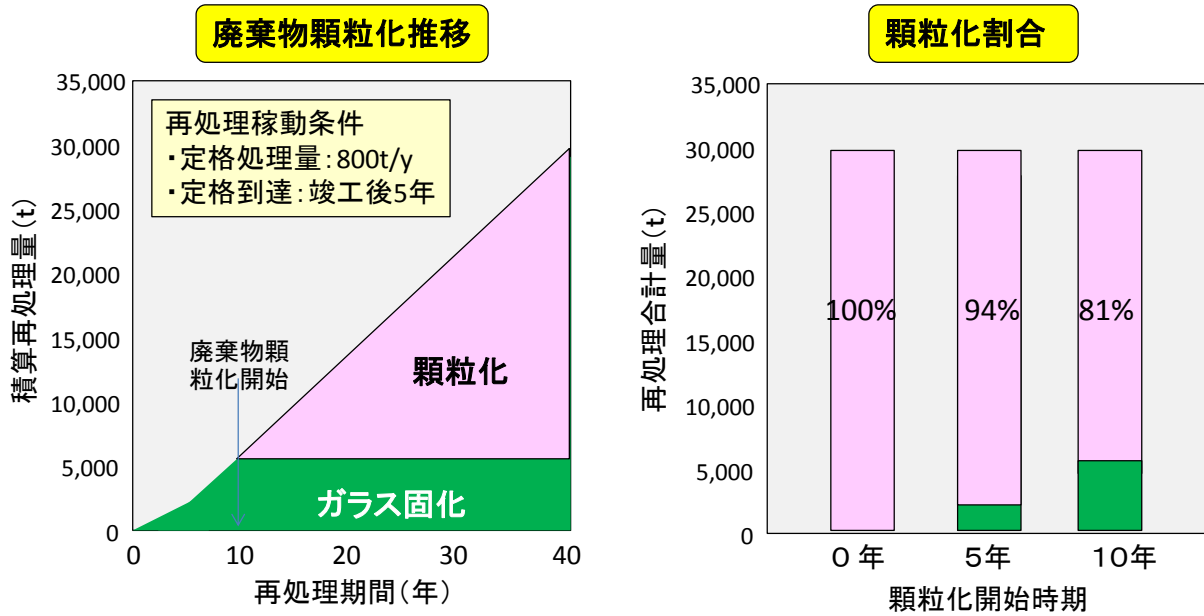


図 3.3-5 廃棄物顆粒化開始時期と顆粒化割合

1. **MA分離変換技術**はFBR再処理から実用化(従来と同様)
2. **柔軟な廃棄物管理法の実用化**は現行再処理開始後10年目
4. 現行再処理は800t/年、40年運転、総処理量は32,000t
3. 使用済燃料の現行再処理前冷却期間は実績を基に30年

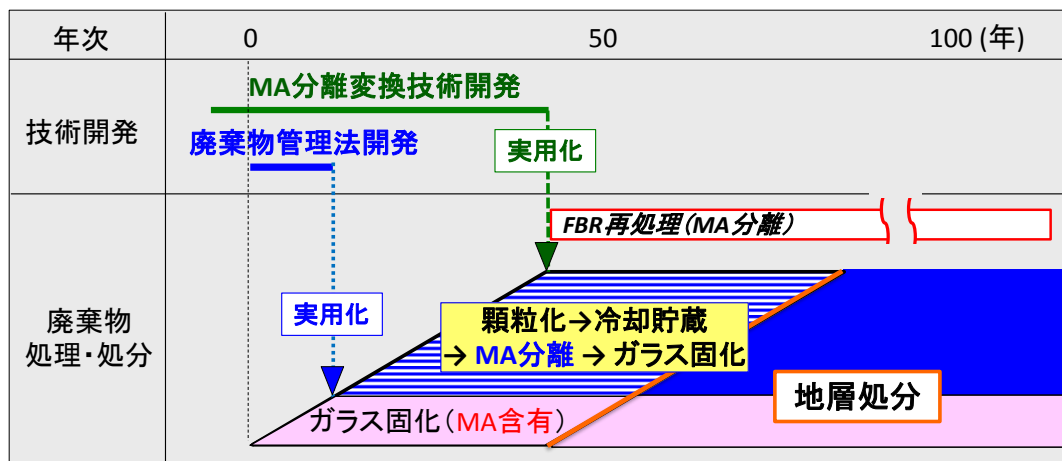


図 3.3-6 柔軟な廃棄物管理法の有効性評価条件

(2) 潜在的有害度評価

① 潜在的有害度解析入力データ、評価条件

1) 潜在的有害度解析・評価手法

放射性廃棄物の環境負荷低減には長寿命核種であるマイナーアクチニドの分離変換による短寿命化が有効であると考えられている。マイナーアクチニドの分離変換の有効性評価には、最終的に地層処分される放射性廃棄物の潜在的放射性有害度が評価指標の一つとして用いられている。使用済核燃料の潜在的放射性有害度は、含有する各核種の放射能 (Bq) を公衆の経口摂取による被ばく線量 (Sv) に換算して総和をとることで得られる。被ばく線量へ変換することで、アルファ線、ベータ線、ガンマ線、それらのエネルギーの人体への影響の違いが考慮される。潜在的放射性有害度は使用済核燃料あるいはそれに起因する放射性廃棄物が公衆に経口摂取された場合の被ばく線量を表す量である。現実には使用済燃料から発生した放射性廃棄物は人間社会から隔離して処分される (例えば地層処分) ため、遅延や拡散の効果により全ての放射性核種が公衆に摂取されることは有り得ない。そのため、潜在的放射性有害度は処分後の核種移行を考慮しないソースタームに相当する量である。あるいは、それ以上の害を及ぼさないという放射線影響の上限も意味している。また、経口摂取による内部被ばくを前提として被ばく線量に換算していることから、地層処分における地下水シナリオのように、廃棄体から放射性核種が放出され、生活圏到達することを暗に想定した指標である。地層処分における人間侵入シナリオのように、廃棄体からの放射線によって直接的に公衆が被ばくするといった事態は想定されていない。潜在的放射性有害度は、しばしば被ばく線量 (Sv) を職業人の年間経口摂取限度 20mSv/年/人、あるいは公衆の年間経口摂取限度 1 mSv/年/人で除して、(年・人) の単位で表される。この場合は全ての放射性核種が一年間に経口摂取された場合、何人の健康を害しうるかを表す量となる。

以上を踏まえ、本研究では、高レベル廃棄物の潜在的有害度は使用済燃料から発生する主要なアクチニド同位元素及び核分裂生成同位元素の有害度の総和として次式により評価される。

$$\text{潜在的有害度 (t)} = \sum (\text{処分時同位元素重量} \times \text{重量当り有害度時間変化 (t)})$$

ここで処分時同位元素重量はガラス固化体として最終処分される廃棄体に含有されるアクチニド同位元素及び核分裂生成同位元素の重量であり、重量当り有害度時間変化(t)は地層処分される各同位元素の超長期に渡る崩壊系列による生成される核種を考慮した有害度 (Sv) の時間変化である。

軽水炉使用済燃料は炉取り出し後冷却貯蔵され、その後再処理されてガラス固化体又は顆粒体として発熱量が処分場受入れ許容値以下になるまで冷却貯蔵される。この間、潜在的有害度に大きな影響を与える Am-241 量は再処理による Pu241 の分離・MOX 燃料化や MA 分離の時期により処分体内の存在量が異なってくる。従って、処分時同位元素重量は炉取り出しから再処理までの年数や再処理後 MA 分離までの年数の組合せによる評価が必要であり、アクチニド同位元素及び核分裂生成同位元素の炉取り出し後の年次発生重量が必要である。

本研究開発では軽水炉使用済燃料の燃料タイプ (PWR, BWR, 燃焼度) 毎のアクチニド及び核

分裂生成同位元素の炉取り出し後の年次発生量を基に潜在的有害度の解析評価を実施した。なお、重量当り有害度時間変化(t)については ICRP Publication 74 から各核種の線量換算係数を引用して作成された公開データベース「使用済核燃料の潜在的放射性有害度評価のためのデータベース」(JAEA-Data/Code 2010-012)を採用した。

2) 潜在的有害度解析評価の対象核種

潜在的有害度解析入力データとして地層処分時の長寿命核種毎の重量が必要である。長寿命核種については公開データベースを参考に次のアクチニド核種 25 核種、核分裂生成核種 29 核種を評価対象核種として選定した。

即ち、アクチニド核種としては下記の 25 核種、

Th-229, Th-230, Th-232, Pa-231, U-234, U-235, U-236, U-237, U-238, Np-237,
Pu-239, Pu-240, Pu-241, Pu-242, Pu-243, Pu-244, Am-241, Am-242m, Am-243, Cm-243,
Cm-244, Cm-245, Cm-246, Cm-247, Cm-248

また、核分裂生成核種としては下記の 29 核種である。

Se-79, Rb-87, Sr-90, Zr-93, Nb-94, Tc-99, Rh-102, Ru-106, Pd-106, Ag-106m,
Cd-113m, Sb-125, Sn-126, Te-127m, I-129, Cs-134, Cs-135, Cs-136, Ce-144, Pm-146,
Sm-146, Pm-147, Sm-147, Sm-151, Eu-152, Eu-154, Eu-155, Ho-166m

これらの潜在的有害度評価核種の年次重量データについて、燃料タイプ、燃焼度をパラメータとして作成準備した。表 3.3-1、図 3.3-7、図 3.3-8 に代表的核種組成として PWR、45GWd/t、冷却期間 30 年の単位重元素重量当りの核分裂生成核種及びアクチニド核種の重量を示す。これらの使用済燃料中の核種重量はアクチニド核種に関しては、燃焼度の増加に伴い増加するが特に重量の大きい核種の増加割合が大きい、即ち高次化が進むこと、再処理前冷却期間 (CT) の依存性は其々の核種の崩壊系列に従って変化しているが、量的に有意な寄与をする核種として Pu-241 の減少とそれに対応した Am-241 の増加が顕著に表れてくることが示された。また、PWR と BWR の比較からは、燃焼度が同じため大きな相違はないが、やや BWR の方が PWR より高次化が進むことが分った。

一方、核分裂生成核種については、ほぼ燃焼度の増加に対応して殆どの核種が増加している。また、再処理前冷却期間 (CT) に対してはその半減期により減少速度は異なるが全ての核種が減少する。更に、PWR と BWR の比較においては、核種により多少の差異はあるが大きな差は無いと言える。特に、潜在的有害度や発熱量に効果の大きい Sr-90 及び Cs-137 については両方で殆ど差のないことが確認された。

②MA 分離変換技術の潜在的有害度低減効果

1) 軽水炉使用済燃料直接処分の場合の潜在的有害度

図 3.3-9 に軽水炉使用済燃料直接処分の場合の潜在的有害度の解析結果を示す。対象とした軽水炉使用済燃料は燃焼度 45GWd/t の PWR 使用済燃料である。潜在的有害度は、単位重量 (tHM) 当りの使用済燃料に含まれる各核種の放射能 (Bq) を公衆の経口摂取による被ばく線量 (Sv) に換算し、総和をとったものである。横軸の時間は使用済燃料を炉心から取出し時点からの経過時間である。図 3.3-9 には新燃料 1tHM を得るのに必要な天然ウラン 7.5 トンの潜

在的有害度を天然ウランレベルとして併せて示す。図 3.3-7 よれば、使用済燃料の潜在的有害度は経過時間と共に低減するが、低減速度は遅く天然ウランレベルに到達するには炉取出し後、約 10 万年を要することが分る。次に、使用済燃料直接処分の潜在的有害度のアクチノイド核種と核分裂生成核種の内訳を図 3.3-10 に示す。図 3.3-10 より炉取出し後約 30 年までは核分裂生成核種の寄与が大きいがそれ以降は急速に低下してアクチノイド核種の寄与が主となることが分る。また、図 3.3-10 において炉取出し後約 30 年以降の核分裂生成核種の潜在的有害度は Sr-90 と Cs-137 によるものであり、核分裂生成核種の潜在的有害度を低減する上で両核種の分離が重要であることが分る。次にアクチノイド核種の潜在的有害度のと核分裂生成核種の潜在的有害度の内訳を其々図 3.3-11 及び図 3.3-12 に示す。これらの結果から、核分裂生成核種の主たる寄与は Cs-155 及び Sr-90 であり、これらの核種の半減期が約 30 年であることから核分裂生成核種の潜在的有害度は約 30 年を境に急速に低下するものと理解される。一方、アクチノイド核種の潜在的有害度は Pu, Am, Cm 等が寄与し時間経過と共に孫核種の寄与が顕在化するため複雑である。

2) MA 分離変換しない場合のガラス固化体の潜在的有害度

図 3.3-13 に MA 分離変換しない場合のガラス固化体の潜在的有害度場合の解析結果を示す。評価対象の軽水炉使用済燃料は燃焼度 45GWd/t の PWR 使用済燃料であり、再処理前冷却期間 (CT) は基準ケースとしてこれまでの軽水炉使用済燃料の実績に基づき 30 年の場合と従来の評価ベースである 4 年の場合を示してある。図 3.3-13 の結果より、基準ケースの CT30 年の場合のガラス固化体の潜在的有害度は、炉取出し後 1000 年位まで使用済燃料直接処分の場合の潜在的有害度に近いことが分る。即ち、MA 分離変換しない場合には再処理による放射性廃棄物の有害度低減効果は大きくなく、環境負荷低減効果は大きくないと言える。なお、従来の評価ベースである CT4 年の場合のはガラス固化体の潜在的有害度は、炉取出し後 1000 年位まで使用済燃料直接処分の 1/8 程度と低く、MA 分離変換しなくとも再処理による放射性廃棄物の有害度低減効果があり、環境負荷低減に寄与すると言える。

図 3.3-14 に Pu-241 及び Am-241 重量の再処理前冷却期間 (CT) 依存性を、図 3.3-15 に MA 潜在的有害度の CT 依存性を、そして図 3.3-16 及び図 3.3-17 に CT=4 年と CT=30 年の場合の MA 核種別潜在的有害度を示す。これらの結果より、Pu-241 は半減期が約 18 年であるため、冷却期間が 50 年程度までについては Am-241 の生成量が冷却期間に大きく依存して変化し、潜在的有害度に影響を与えるものであることが分る。

以上より、再処理前冷却期間が 30 年程度と予想される軽水炉使用済燃料については再処理プルサーマル利用と同時に MA 分離変換による高レベル廃棄物の潜在的有害度の低減が重要であることが明らかになった。

3) MA 分離変換する場合のガラス固化体の潜在的有害度

図 3.3-18 に MA 分離変換する場合のガラス固化体の潜在的有害度の解析結果を示す。評価対象の軽水炉使用済燃料は燃焼度 45GWd/t の PWR 使用済燃料であり、再処理前冷却期間 (CT) は基準ケースとしてこれまでの軽水炉使用済燃料の実績に基づき 30 年の場合である。ここで MA の分離回収率は 99% である。図 3.3-18 の結果より、MA 分離変換する場合のガラス固化体の潜在的有害度は、MA 分離変換しない場合に比べ大幅に低減し炉取出し後 100 年で 1/10、1000 年で 1/100 に低減することが分る。そしてこの結果、MA 分離変換する場合のガラス固化体の

潜在的有害度は天然ウランレベルまで低下する時期は炉取出し後約 300 年程度となり、大幅に短縮されることが分る。なお、図 3.3-10 の結果より MA 分離した場合の潜在的有害度は Sr-90 と Cs-137 によるものであることが示されており、MA 分離変換する場合のガラス固化体の潜在的有害度を更に低減するためには Sr-90 と Cs-137 の分離が非常に重要であることが分る。

また、図 3.3-19 には MA 分離回収率を 99.9%, 99%, 90% とパラメータ変化させた場合の潜在的有害度解析結果を示す。図 3.3-19 の結果より MA 分離回収率により潜在的有害度は大きく変化するが、有害度を天然ウランレベル以下にする時期を炉取出し後数百年程度とする観点から、回収率は 99% 以上を目標とする必要があることが示された。

参考文献

- [1] 安藤良平、高野秀機、「使用済軽水炉燃料の核種組成評価」、JAERI-Research 99-004
1999 年 2 月
- [2] 西原健司、「使用済核燃料の潜在的放射性毒性評価のためのデータベース」
JAEA-Data/Code 2010-012, Japan Atomic Energy Agency, September 2010
- [3] 原子力発電環境整備機構、「高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性」
NUMO-TR-04-01, 2004

表 3.3-1 LWR 使用済燃料 1 トン当りの核種別重量 (g)
(PWR、45GWd/t、冷却期間 30 年)

核分裂生成核種				アクチノイド核種			
SE 79	6.15E+00	TE127M	3.73E-31	TH229	2.80E-06	PU242	7.71E+02
RB87	3.21E+02	I129	2.42E+02	TH230	1.94E-02	PU244	6.09E-02
SR 90	3.45E+02	CS134	8.12E-03	TH232	4.72E-03	AM241	1.30E+03
ZR 93	9.58E+02	CS135	5.22E+02	PA231	8.07E-04	AM242M	7.08E-01
NB 94	1.70E-03	CS137	8.38E+02	U234	2.43E+02	AM243	1.70E+02
TC 98	1.13E-02	CE144	1.04E-09	U235	8.29E+03	CM243	2.55E-01
TC 99	1.05E+03	PM146	2.09E-04	U236	5.06E+03	CM244	2.14E+01
RU106	2.90E-07	PM147	7.76E-02	U237	1.23E-05	CM245	4.92E+00
RH102	2.13E-06	SM147	3.13E+02	U238	9.28E+05	CM246	5.09E-01
PD107	3.12E+02	SM151	1.17E+01	NP237	6.70E+02	CM247	7.27E-03
AG110M	1.11E-13	EU152	3.00E-03	PU238	2.20E+02	CM248	5.14E-04
CD113M	4.04E-02	EU154	2.58E+00	PU239	6.02E+03		
SN126	3.06E+01	EU155	1.59E-01	PU240	2.70E+03		
SB125	5.43E-03	HO166M	1.56E-03	PU241	3.97E+02		

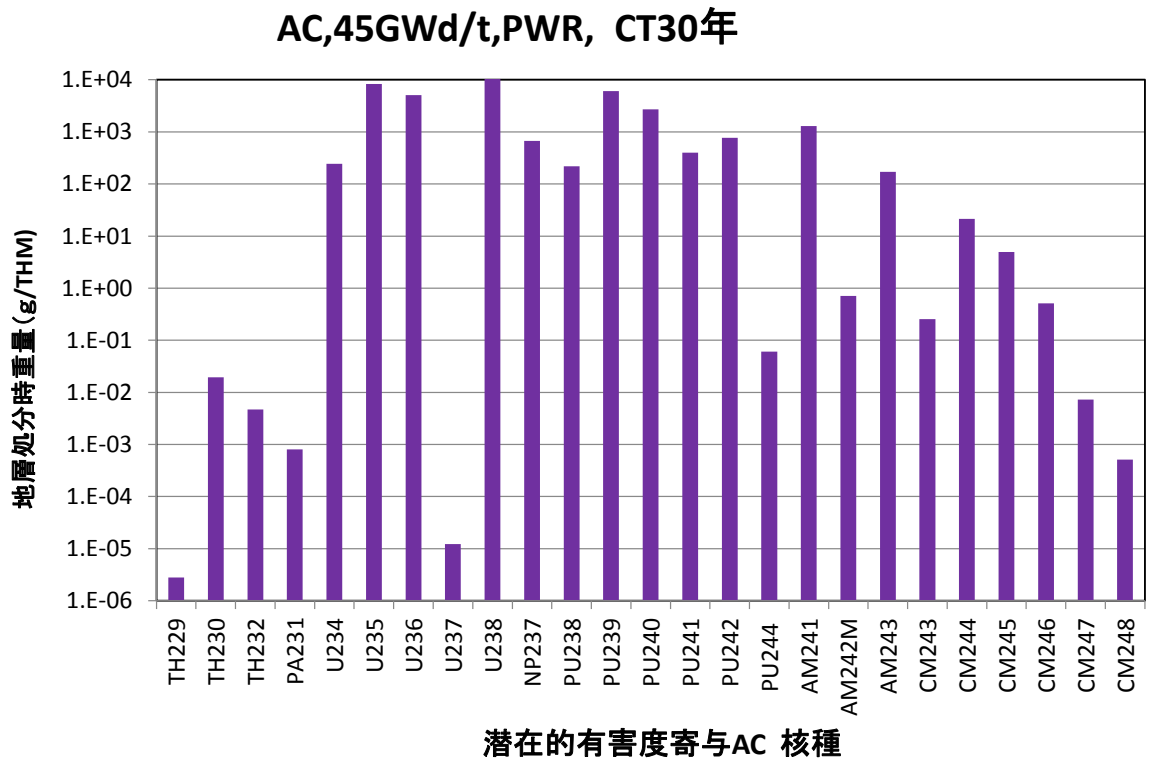
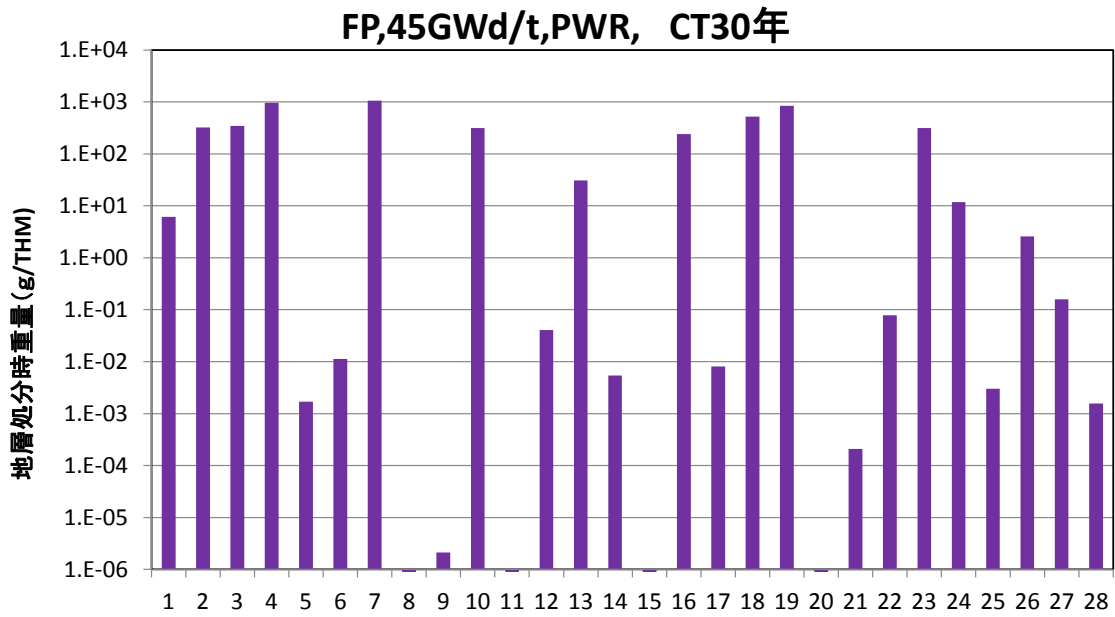


図 3.3-7 LWR 使用済燃料アクチノイド核種重量



潜在的有害度寄与FP核種

図 3.3-8 LWR 使用済燃料核分裂生成核種重量

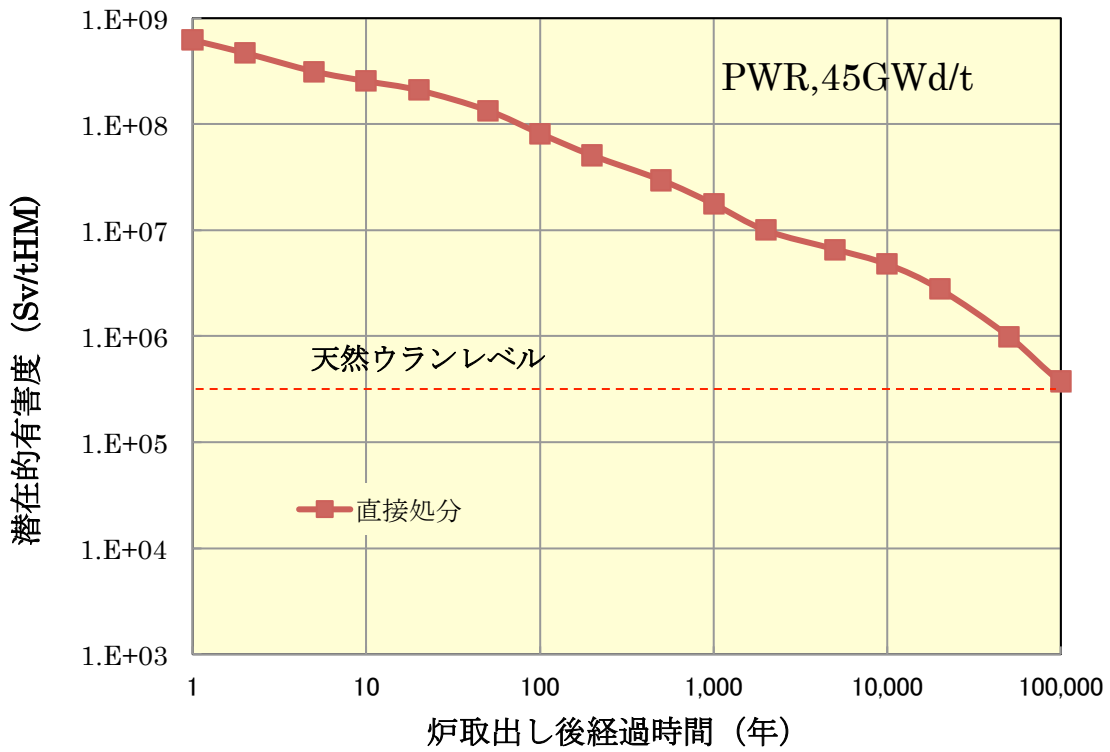


図 3.3-9 LWR 使用済燃料直接処分の潜在的有害度

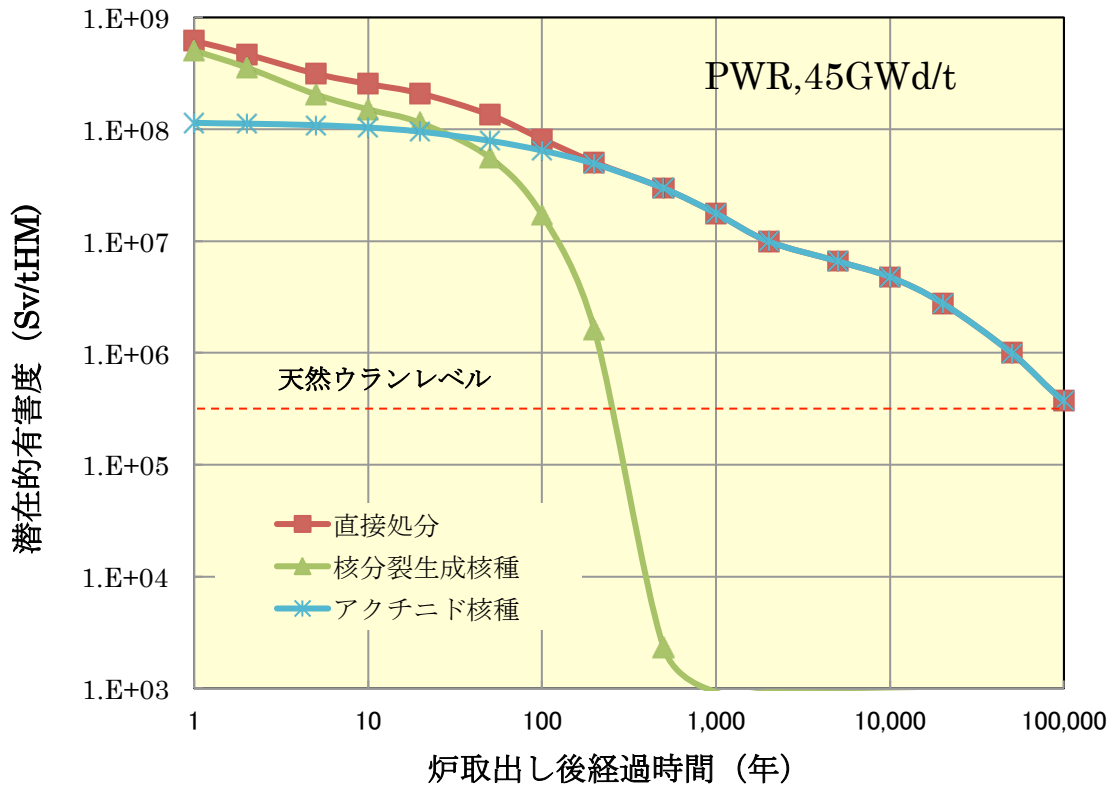


図 3.3-10 LWR 使用済燃料の潜在的有害度の内訳

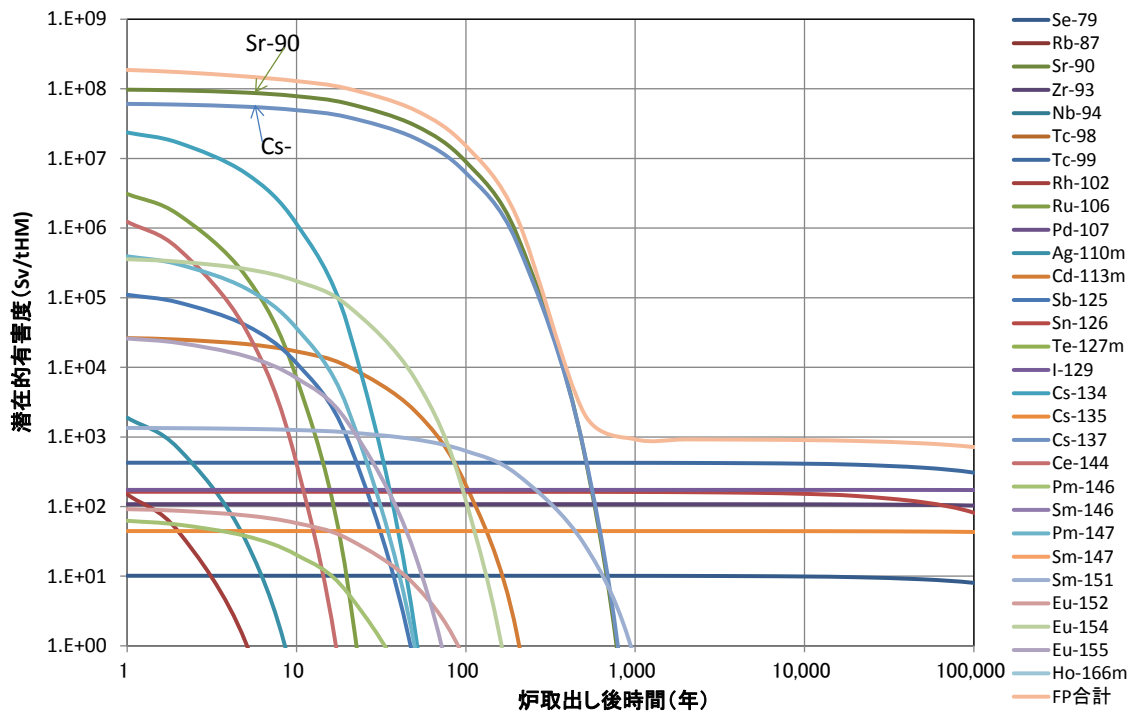


図 3.3-11 核分裂生成核種の潜在的有害度

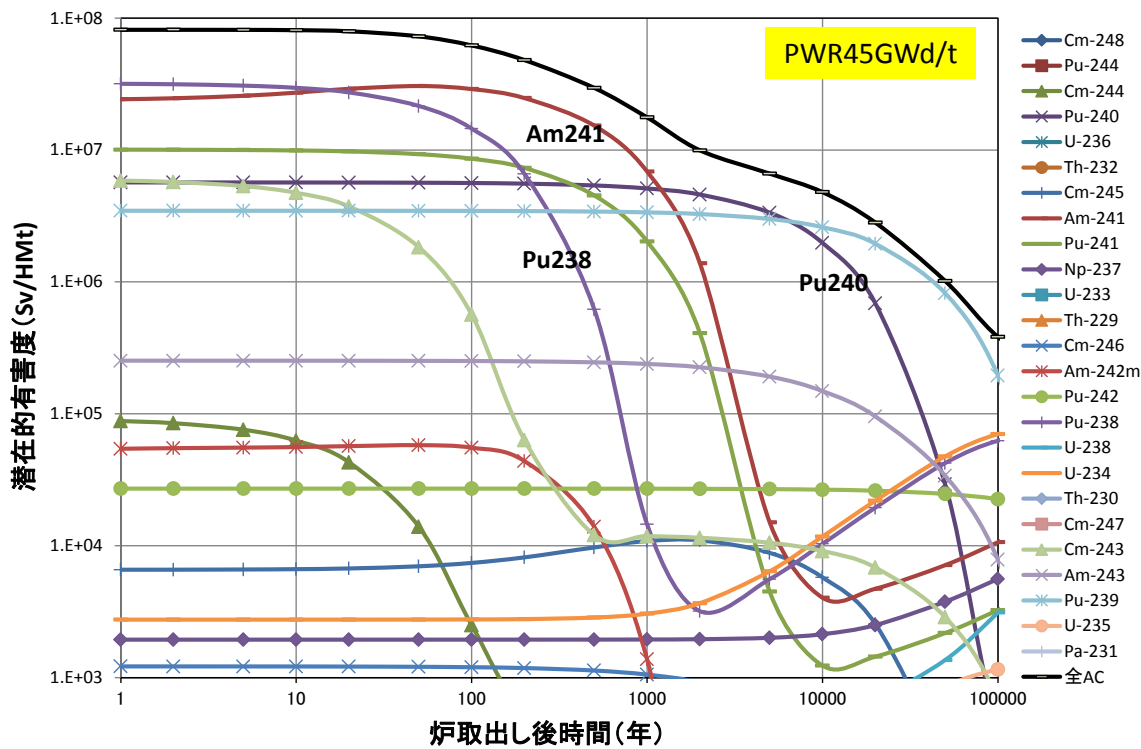


図 3.3-12 アクチニド核種の潜在的有害度

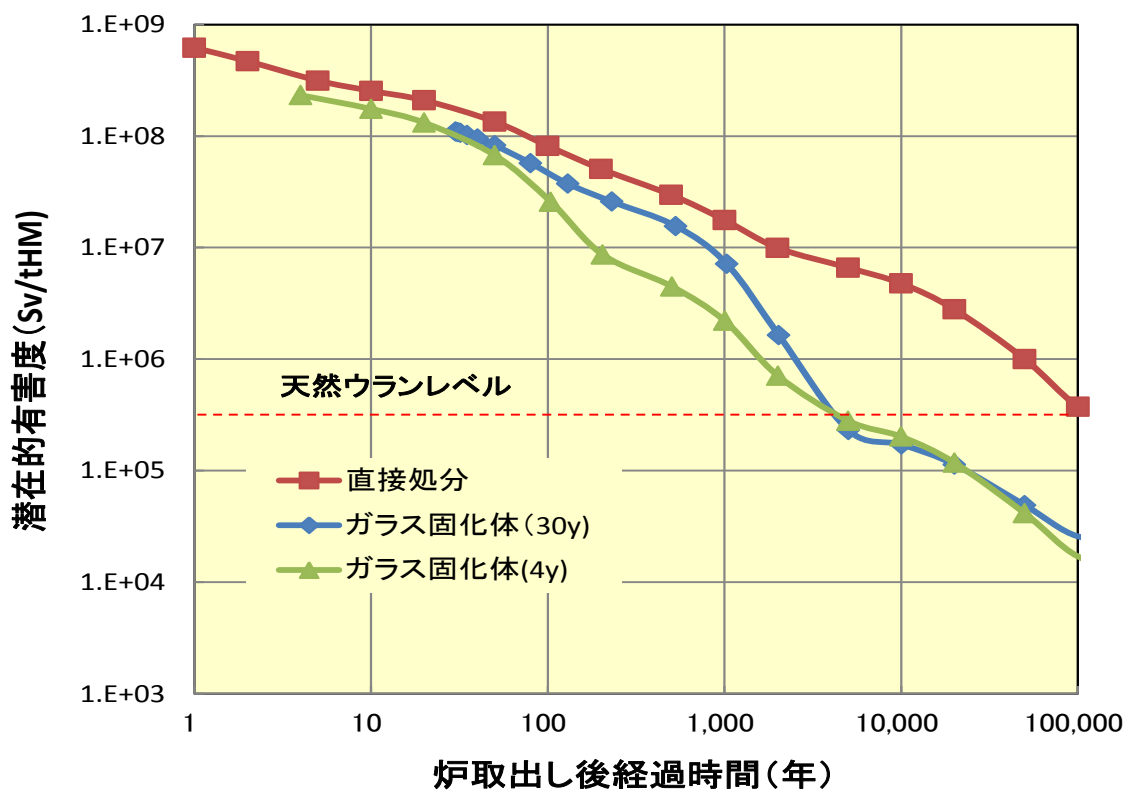


図 3.3-13 ガラス固化体潜在的有害度

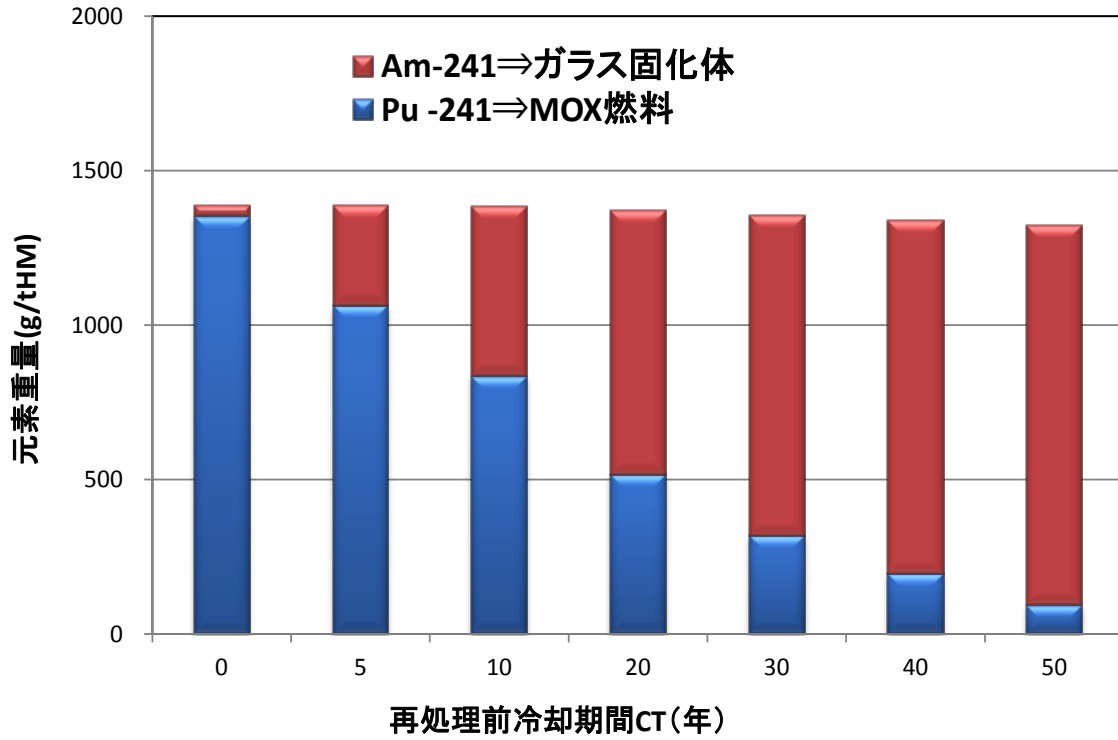


図 3.3-14 Pu-241 及び Am-241 重量の再処理前冷却期間依存性

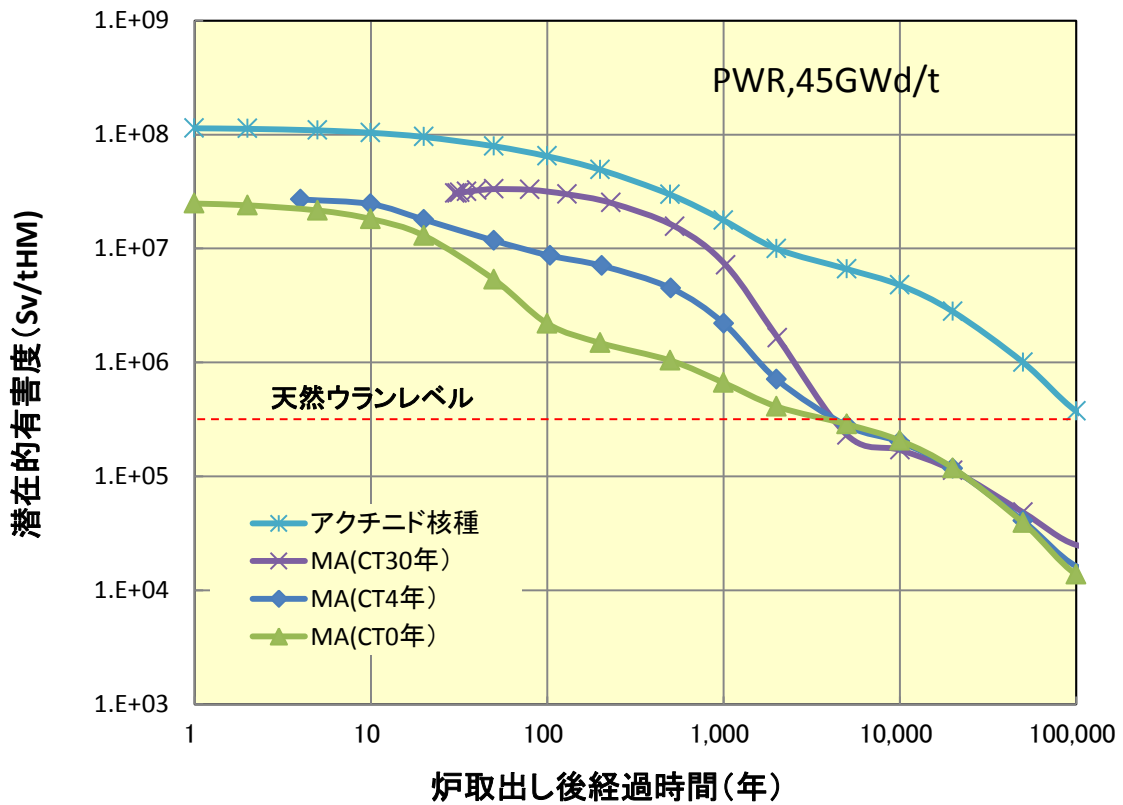


図 3.3-15 MA 潜在的有害度の再処理前冷却期間依存性

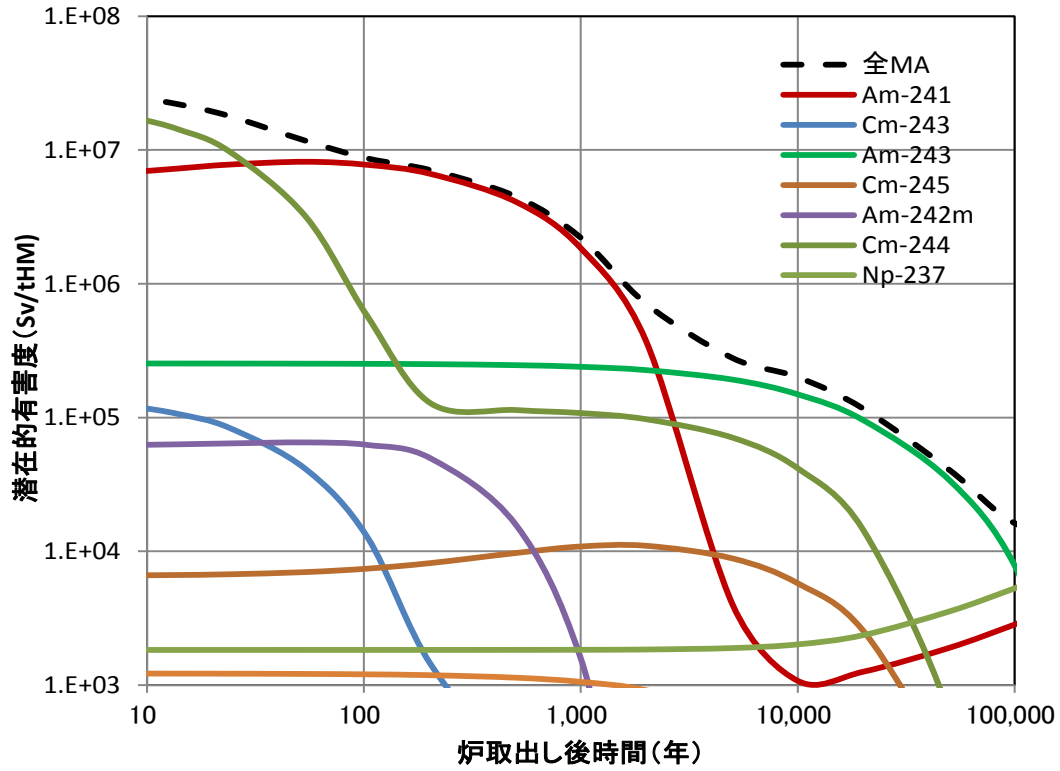


図 3.3-16 MA 核種別の潜在的有害度 (CT4 年)

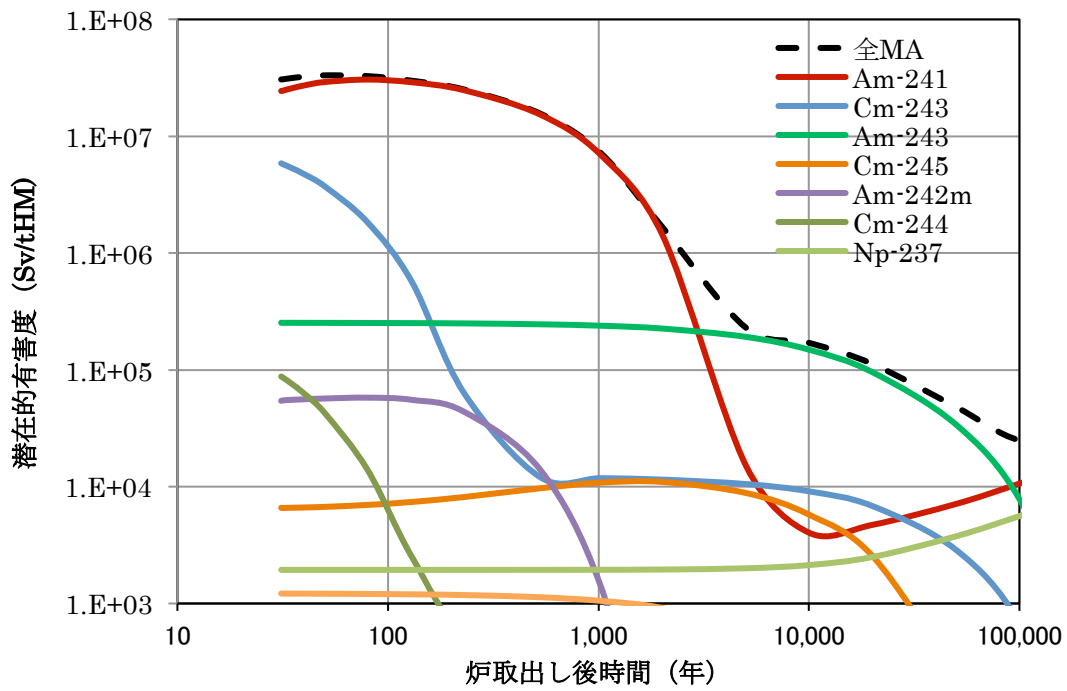


図 3.3-17 MA 核種の潜在的有害度 (CT30 年)

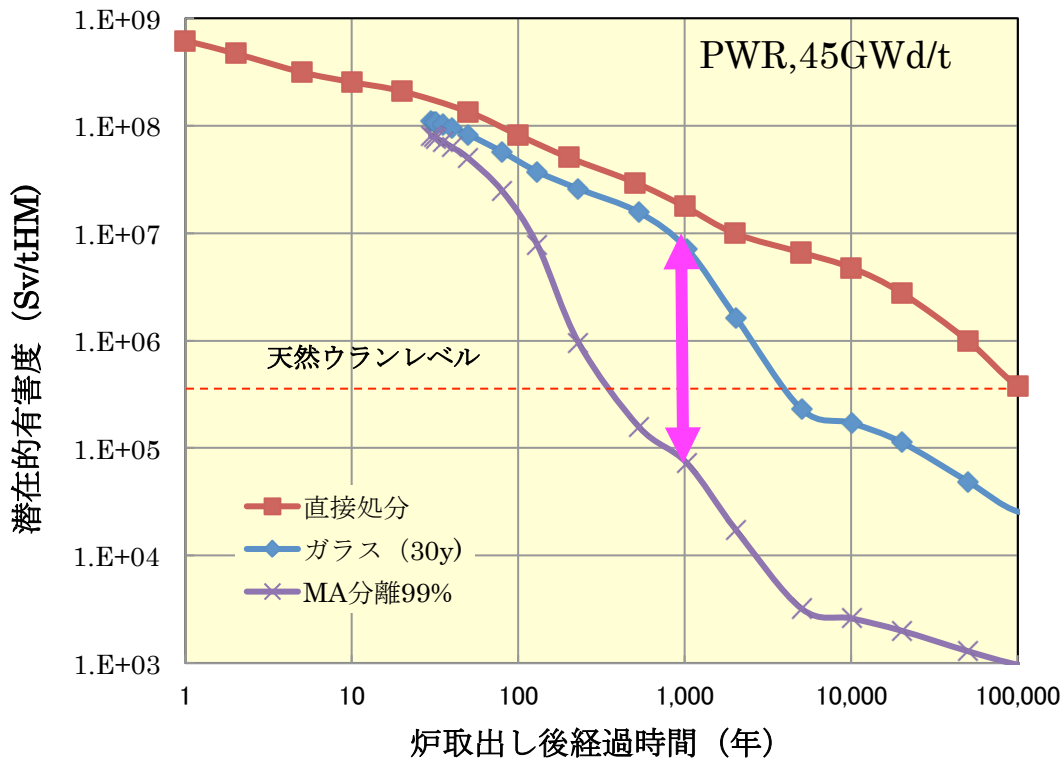


図 3.3-18 MA 分離による潜在的有害度 (CT30 年)

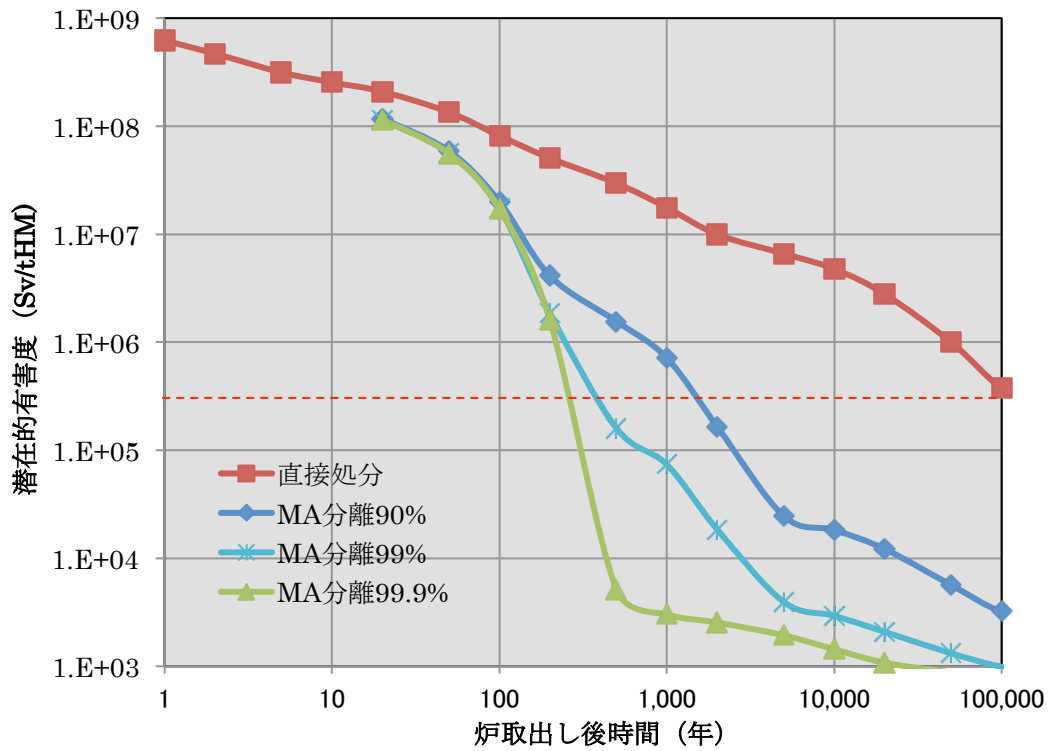


図 3.3-19 潜在的有害度の MA 分離回収率依存性 (CT30 年)

③ 柔軟な廃棄物管理法の潜在的有害度低減効果

柔軟な廃棄物管理法の潜在的有害度の低減効果は、現行管理法に比べ MA 分離変換技術の適用対象廃棄物を拡大することによるものである。即ち、柔軟な廃棄物管理法の有効性は(1)MA 分離変換による潜在的有害度低減効果と(2)現行管理法に対する MA 分離変換技術の適用される廃棄物量の違いを考慮して評価される。このうち、(1) MA 分離変換による潜在的有害度低減効果は前節において評価された。一方、(2) MA 分離変換技術の適用される廃棄物量は、対象とする使用済燃料から発生する高レベル廃棄物の内 MA 分離変換技術が適用可能な物量である。ここでは対象とする使用済燃料は現行の軽水炉再処理設備、即ち六ヶ所再処理設備で処理されるものとする。

軽水炉再処理は現在建設が完了し、本格稼働の準備中にあるが、現行の廃棄物管理法においては再処理により発生するプルトニウムの有効利用を図るプルサーマル利用を実施すると共に高レベル廃棄物は MA 分離変換技術が実用化されていないため、MA を含有した状態でガラス固化される。MA 分離変換技術は今後鋭意開発が行なわれるが、その実用化には相当の期間を要し、また、MA の核種変換には FBR 等が必要であり、同時に FBR 使用済燃料再処理設備が必要であることから早くとも FBR 再処理からの実用化が実際的と考えられている。従って、現行の軽水炉再処理から発生する全ての MA は高レベル廃棄物から分離されることなくガラス固化され地層処分されると考えられる。現行軽水炉再処理は処理能力が年間 800 トンであり、運転期間 40 年であることから 32,000 トンの軽水炉 UO₂ 使用済燃料から発生する高レベル廃棄物量である。

一方、MA 分離変換技術の適用される廃棄物量は、六ヶ所再処理設備で処理される使用済燃料に対して柔軟な廃棄物管理法が適用され、高レベル廃棄物が再生可能な形態で貯蔵される物量に依存する。ここでは図 3.3-5 に示したように柔軟な廃棄物管理法の開発期間を再処理開始後 10 年とし、六ヶ所再処理設備の計画によれば定格 800 t/年の処理量に到達するまで 5 年とする計画であることを踏まえ、六ヶ所再処理の全処理量の 19%は従来型の MA 含有ガラス固化体が発生し、81%が顆粒体として貯蔵されるものとする。そして、廃棄物顆粒体は 50 年間冷却貯蔵された後に MA 分離され残渣の MA を含有しない廃棄物のみがガラス固化体として地層処分されるとした。

図 3.3-20 に現行廃棄物管理法の場合のガラス固化体の潜在的有害度を左図に柔軟な廃棄物管理法の場合の潜在的有害度として、MA 分離ガラス固化体と MA 非分離のガラス固化体として右図に処分体数を図形の面積割合で示す。また、図 3.3-21 には炉取出し後 1000 年の時点の潜在的有害度に着目して、横軸に各ガラス固化体数割合をとり、直接処分、現行管理法、柔軟管理法の場合について比較して示す。

(3) 柔軟な廃棄物管理法の潜在的有害度低減効果のパラメータ感度解析

柔軟な廃棄物管理法の現行管理法に対する潜在的有害度低減効果は前提とする諸条件の変動により変化する可能性があり、パラメータ感度解析を行なった。基準となる代表ケースにおける潜在的有害度解析結果(ケース I)は図 3.3-12 の通りである。変動パラメータとしては①軽水炉炉型の違い(PWR, BWR)②使用済燃料燃焼度の違い、③使用済燃料の再処理前冷却期間、④MA 分離変換技術開発期間、及び柔軟な廃棄物管理法の開発期間である。

表 3.3-10 に潜在的有害度感度解析のパラメータ変動範囲を示す。潜在的有害度のパラメータ感度解析結果は以下の通りである。

① 軽水炉炉型 (PWR, BWR) の違い (ケースⅡ)

図 3.3-23 に代表条件における炉型の PWR を BWR とした場合の潜在的有害度解析結果を示す。また、解析に使用した高レベル廃棄物の核種毎重量として図 3.3-24 にアクチニド核種をまた図 3.3-25 に核分裂生成核種を示す。

BWR の場合の潜在的有害度の時間変化である図 3.3-23 と PWR の場合の潜在的有害度の時間変化である図 3.3-21 を比較すると、両者は殆ど一致していると言える。PWR と BWR の高レベル廃棄物の核種毎重量は、図 3.3-24 のアクチニド核種及び図 3.3-25 の核分裂生成核種共に差異があるが、各核種の潜在的有害度の合計であることから差が小さくなっている。

以上より、PWR の潜在的有害度は軽水炉の代表ケースとして妥当と言える。

② 燃焼度の違い (ケースⅢ)

図 3.3-26 に代表条件における燃焼度 45GW d/t を燃焼度 33GW d/t とした場合の潜在的有害度解析結果を示す。また、解析に使用した燃焼度 33GW d/t の高レベル廃棄物の核種毎重量として図 3.3-27 にアクチニド核種をまた図 3.3-28 に核分裂生成核種を示す。

燃焼度 33GW d/t の場合の潜在的有害度の時間変化図 3.3-26 と燃焼度 45GW d/t の場合の潜在的有害度の時間変化図 3.3-21 を比較すると、両者は殆ど一致していると言える。PWR と BWR の高レベル廃棄物の核種毎重量は、図 3.3-27 のアクチニド核種及び図 3.3-28 の核分裂生成核種共に差異があるが、各核種の潜在的有害度の合計であることから差が小さくなっている。以上より、PWR の潜在的有害度は軽水炉の代表ケースとして妥当と言える。

③ 再処理前冷却期間の違い (ケースⅣ)

図 3.3-29 に代表条件における再処理前冷却期間 30 年を 4 年 とした場合の潜在的有害度解析結果を示す。また、再処理前冷却期間 4 年の場合の高レベル廃棄物の核種毎重量として図 3.3-30 にアクチニド核種をまた図 3.3-31 に核分裂生成核種を示す。

再処理前冷却期間 4 年の場合の潜在的有害度の時間変化図 3.3-29 と再処理前冷却期間 30 年の場合の潜在的有害度の時間変化図 3.3-23 を比較すると、両者に大きな差があり、例えば処分後 1000 年の時点では約 3 倍程度になっている。これは、図 3.3-32 に示すように再処理前冷却期間の違いにより Pu-241 の減衰により生成される Am-241 の量に違いが生じるためである。また、廃棄物管理法の違いによる潜在的有害度は図 3.3-33 のようになる。図 3.3-33 より、再処理前冷却期間が短い場合には MA 分離変換効果は相対的に低下するがそれでも 1/10 以上の低減効果があり、柔軟な廃棄物管理法の有効性が高いと言える。

④ MA 分離変換技術開発期間の違い (ケースⅤ)

図 3.3-34 に MA 分離変換技術開発実用化が 10 年早まり、再処理開始後 30 年になった場合の廃棄物管理法による潜在的有害度の違いを示す。図 3.3-34 より MA 分離変換技術開発実用化時期が早まっても直接処分及び柔軟な廃棄物管理法の潜在的有害度は影響を受けないが、従来管理法の場合は一部の廃棄物の MA 分離変換が可能となり、潜在的有害度の低減が可能になる。一方、逆に MA 分離変換技術の実用化時期が 40 年以上となった場合には、現行の軽水炉再処理の次の再処理から発生する廃棄物の MA 分離変換が困難となり環境負荷低減に影響を与えることになる。

これに対し、柔軟な廃棄物管理法の場合は MA 分離変換技術の実用化時期に関係なく潜在的有害度低減に有効である。

⑤ 柔軟な廃棄物管理法導入時期の影響（ケースVI）

柔軟な廃棄物管理法は再処理開始後 10 年程度で導入可能と考えられるが、不確実性があるため 5 年の前倒し及び遅延のケースを検討した。図 3.3-35 に 5 年前倒しの場合を、図 3.3-36 に 5 年遅延の場合を示す。図 3.3-35 より柔軟な廃棄物管理法が再処理開始後 5 年で導入した場合には MA 分離変換技術は再処理廃棄物の 94%に適用され潜在的有害度は大幅に低減される。また、図 3.3-36 より柔軟な廃棄物管理法が再処理開始後 15 年で導入した場合には MA 分離変換技術は再処理廃棄物の 69%に適用され、潜在的有害度の低減効果はやや減少するが、それでも全体として環境負荷低減効果は大きいと言える。

以上のように、柔軟な廃棄物管理法の潜在的有害度低減効果は種々の評価パラメータを変動させて感度評価した結果、その環境負荷低減効果は有効であることが分った。なお、柔軟な廃棄物管理法の導入時期に関しては、直接潜在的有害度低減効果に影響するため、できるだけ早期の導入が望ましく、早期の技術開発が重要である。

表 3.3-2 潜在的有害度のパラメータ評価ケース

項目	単位	ケースⅠ	ケースⅡ	ケースⅢ	ケースⅣ	ケースⅤ	ケースⅥ
		基準	炉型	燃焼度	再処理前冷却期間	MA分離変換開発期間	柔軟な管理法導入時期
炉型	—	PWR	BWR	PWR	PWR	PWR	PWR
燃焼度	GWd/t	45	45	33	45	45	45
再処理前冷却期間	年	30	30	30	4~40	30	30
MA分離変換開発期間	年	40	40	40	40	20~50	40
柔軟な管理法導入時期	年	10	10	10	10	10	5~15

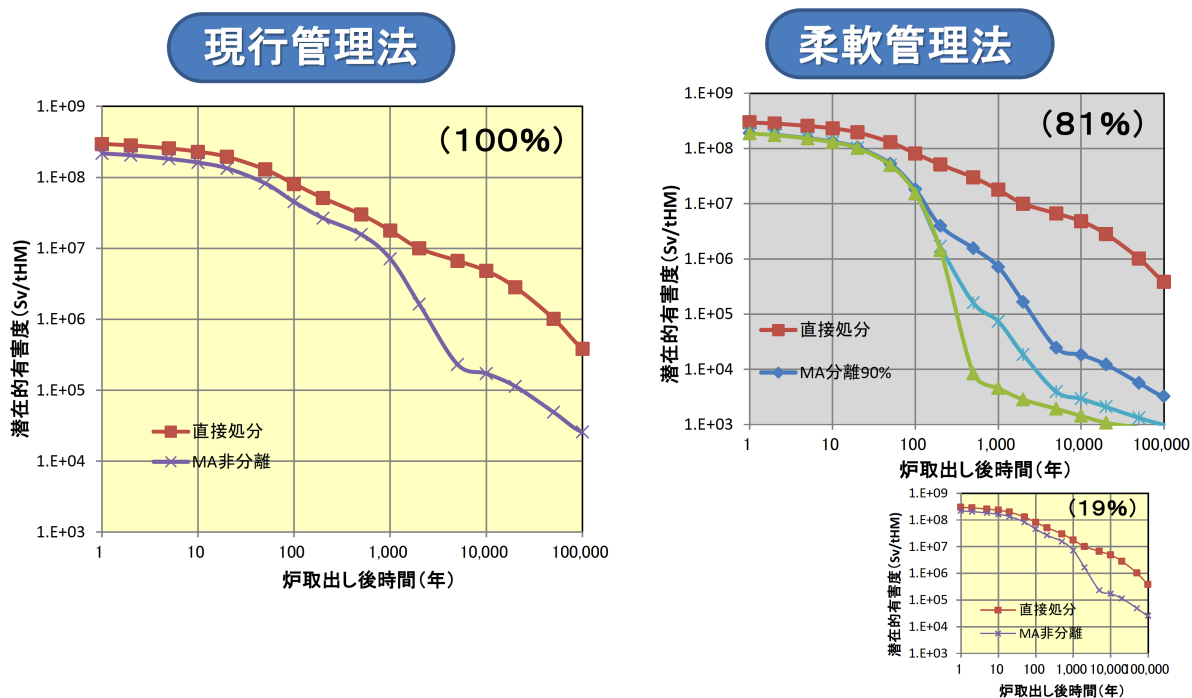


図 3.3-20 廃棄物管理法の潜在的有害度比較

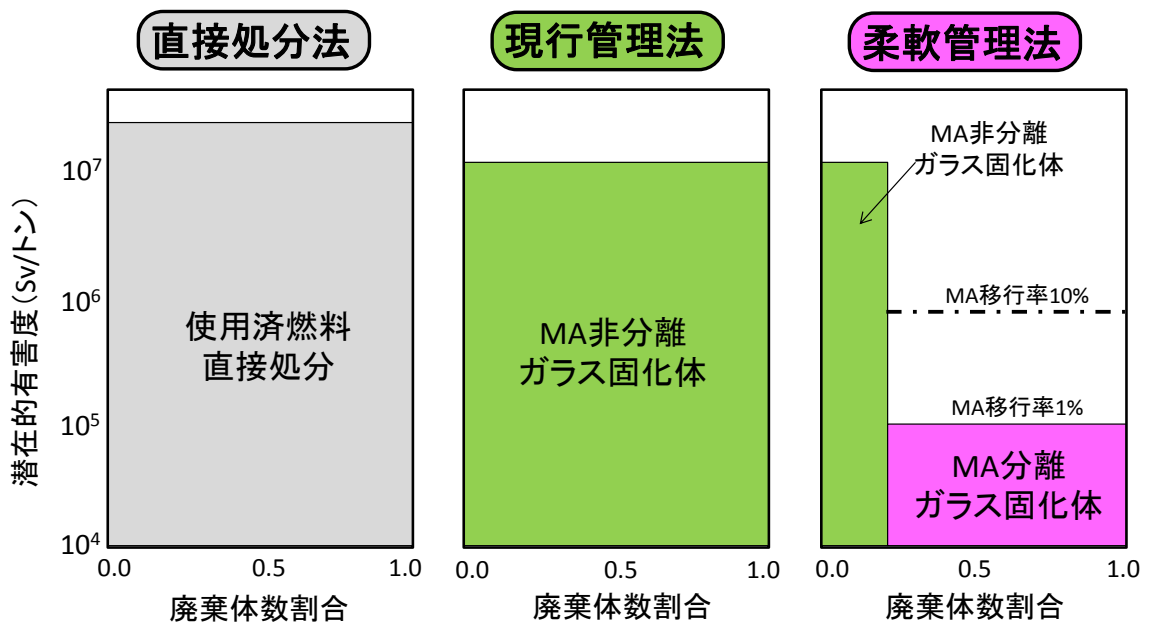


図 3.3-21 潜在的有害度比較 (処分後 1,000 年時点)

- 代表ケース条件
- ①炉型: PWR
 - ②燃烧度: 45GWd/t
 - ③再処理前冷却期間: 30年
 - ④MA分離変換技術開発: 40年
 - ⑤廃棄物顆粒化技術開発: 10年

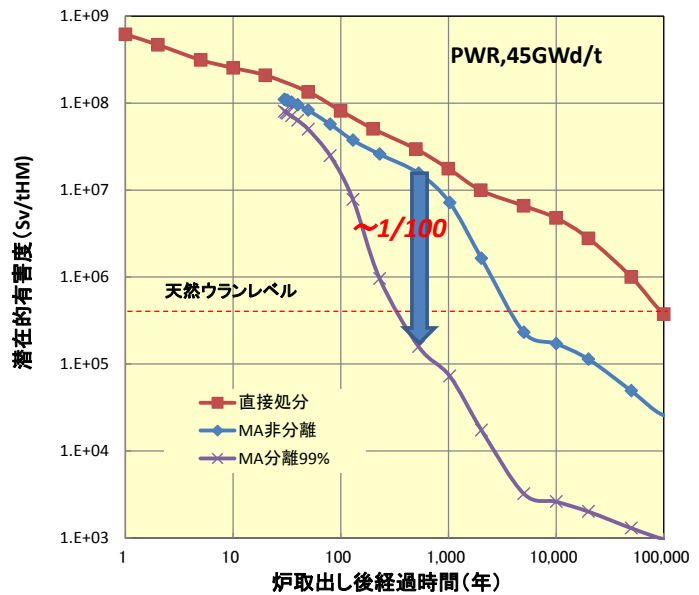


図 3.3-22 代表ケースの潜在的有害度

- 炉型変更ケース**
- ①炉型: **BWR**
 - ②燃烧度: 45GWd/t
 - ③再処理前冷却期間: 30年
 - ④MA分離変換技術開発: 40年
 - ⑤廃棄物顆粒化技術開発: 10年

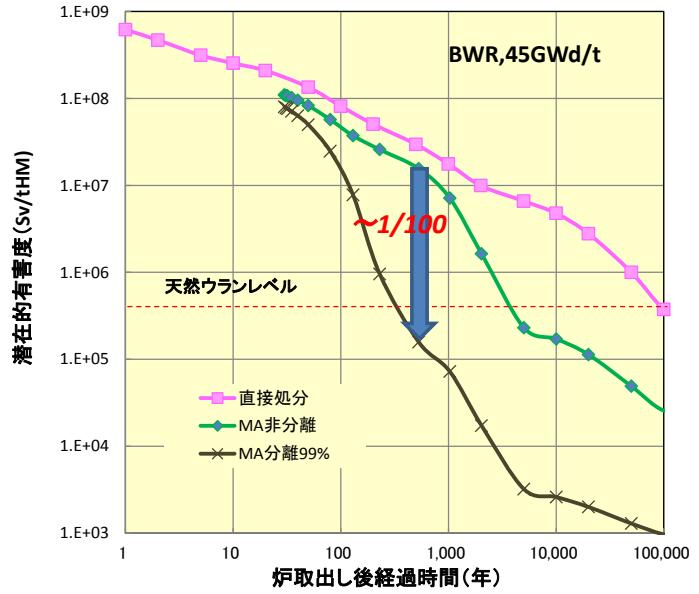


図 3.3-23 BWR使用済燃料廃棄物の潜在的有害度

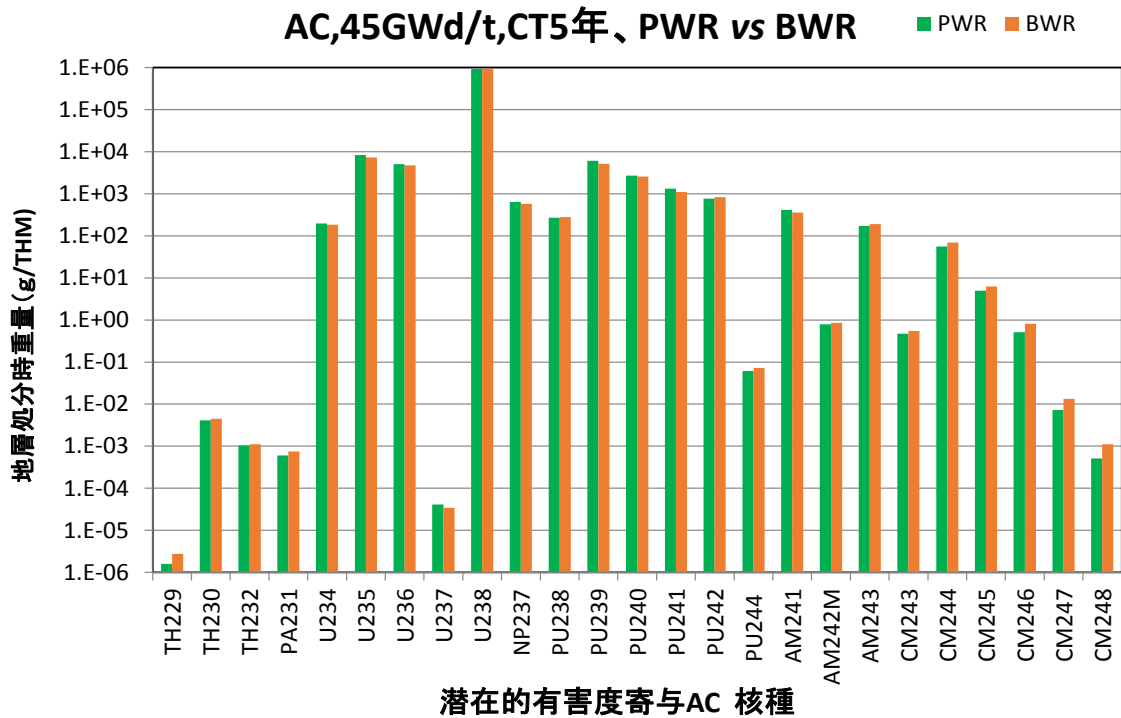


図 3.3-24 アクチニド核種重量の炉型依存性

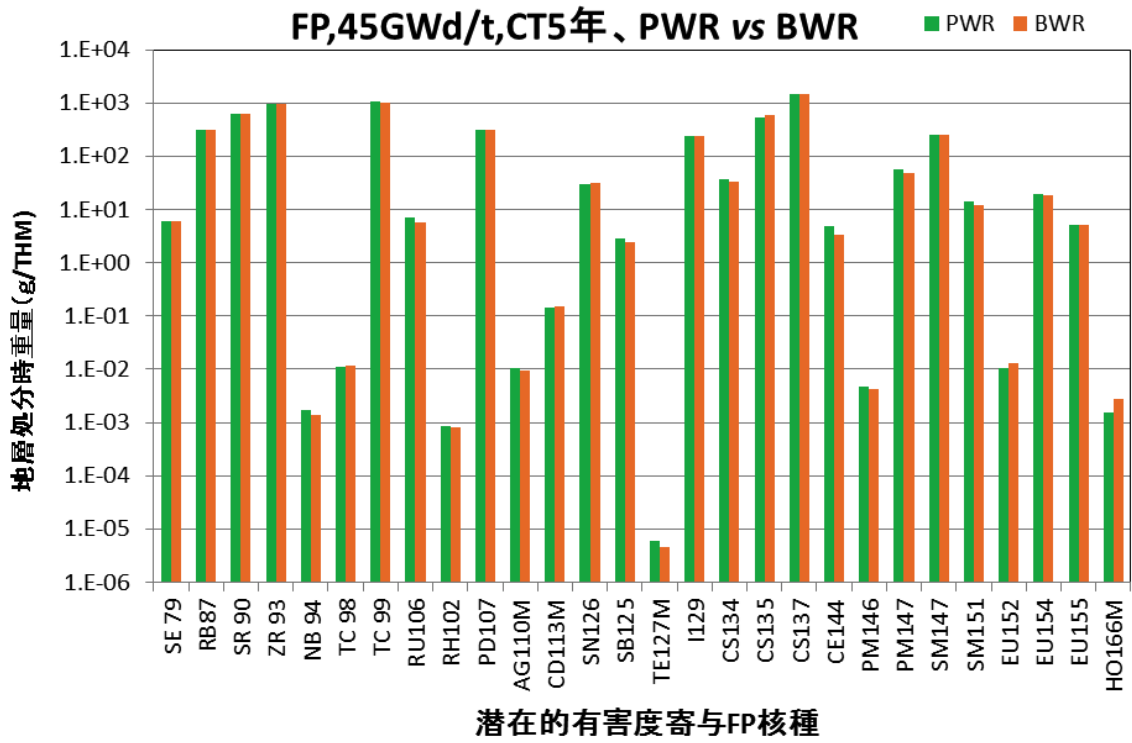


図 3.3-25 核分裂生成核種重量の炉型依存性

燃焼度変更ケース

①炉型: PWR
 ②燃焼度: 33GWd/t
 ③再処理前冷却期間: 30年
 ④MA分離変換技術開発: 40年
 ⑤廃棄物顆粒化技術開発: 10年

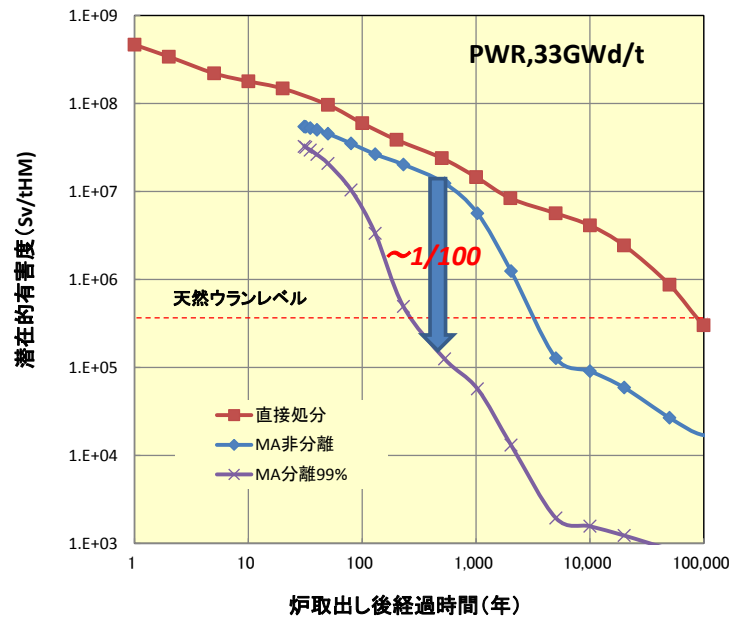


図 3.3-26 燃焼度 33GWd/t の場合の潜在的有害度

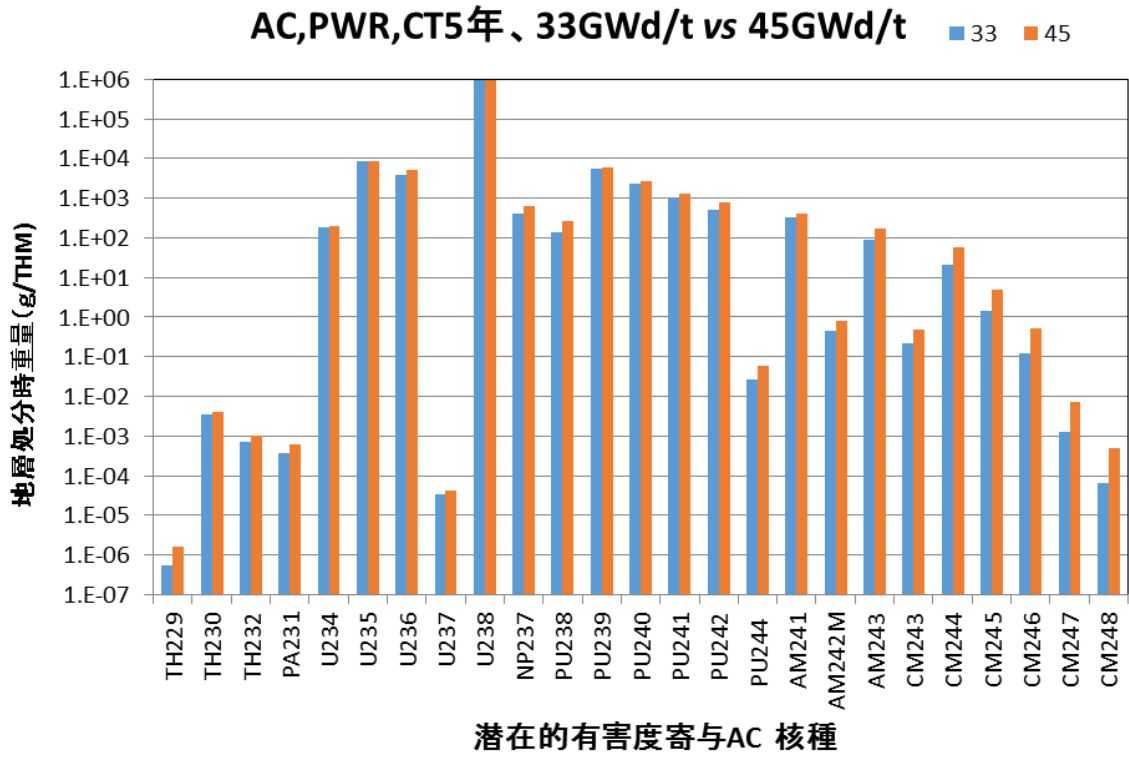


図 3.3-27 アクチノイド核種重量の燃焼度依存性

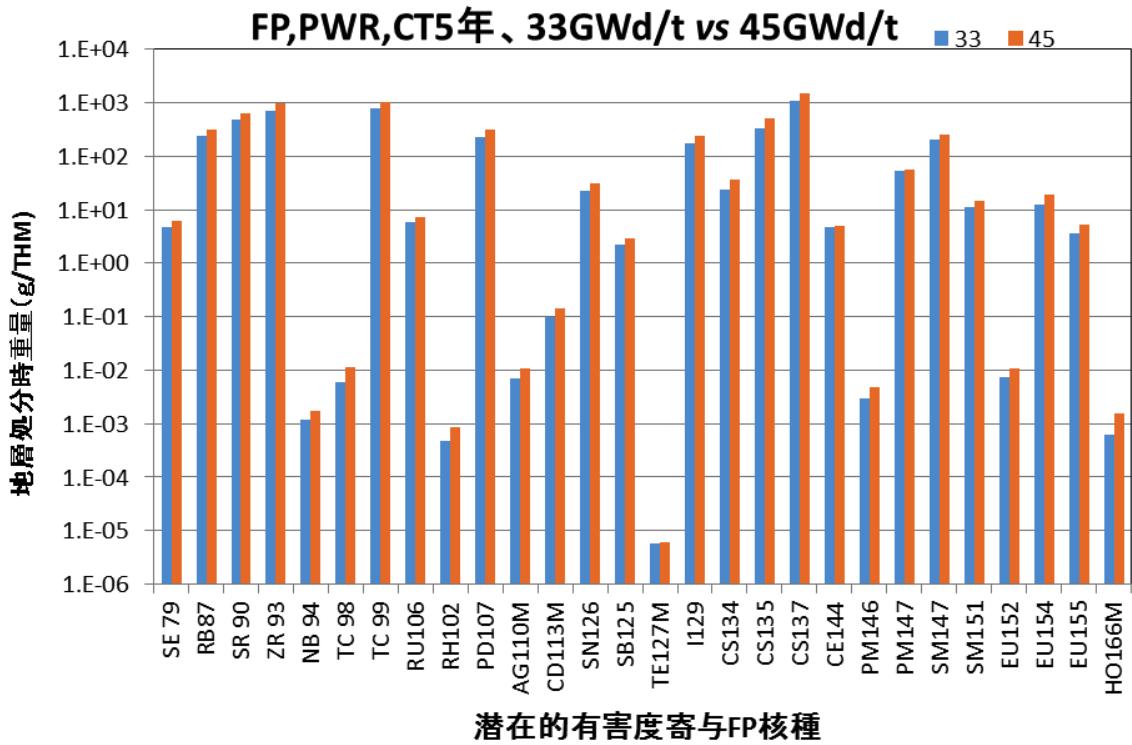


図 3.3-28 核分裂生成核種重量の燃焼度依存性

冷却期間変更ケース

①炉型: PWR
 ②燃焼度: 45GWd/t
 ③再処理前冷却期間: 4年
 ④MA分離変換技術開発: 40年
 ⑤廃棄物顆粒化技術開発: 10年

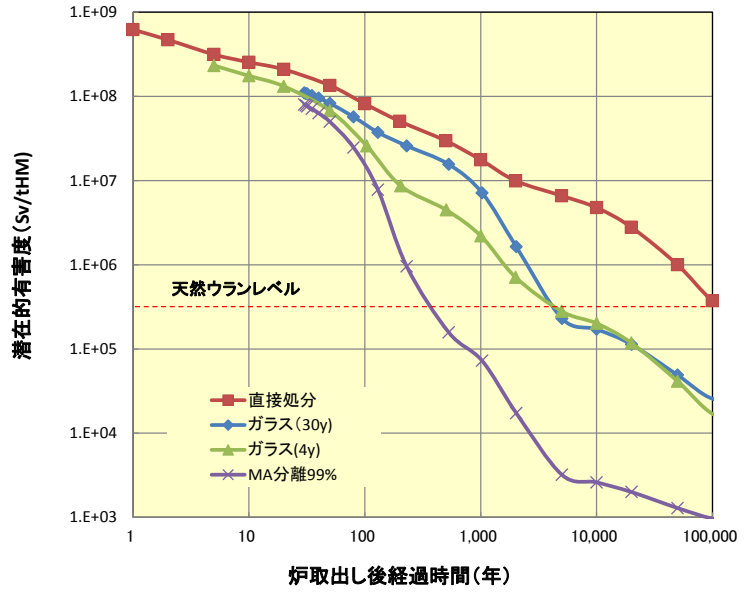


図 3.3-29 潜在的有害度の再処理前冷却期間依存性

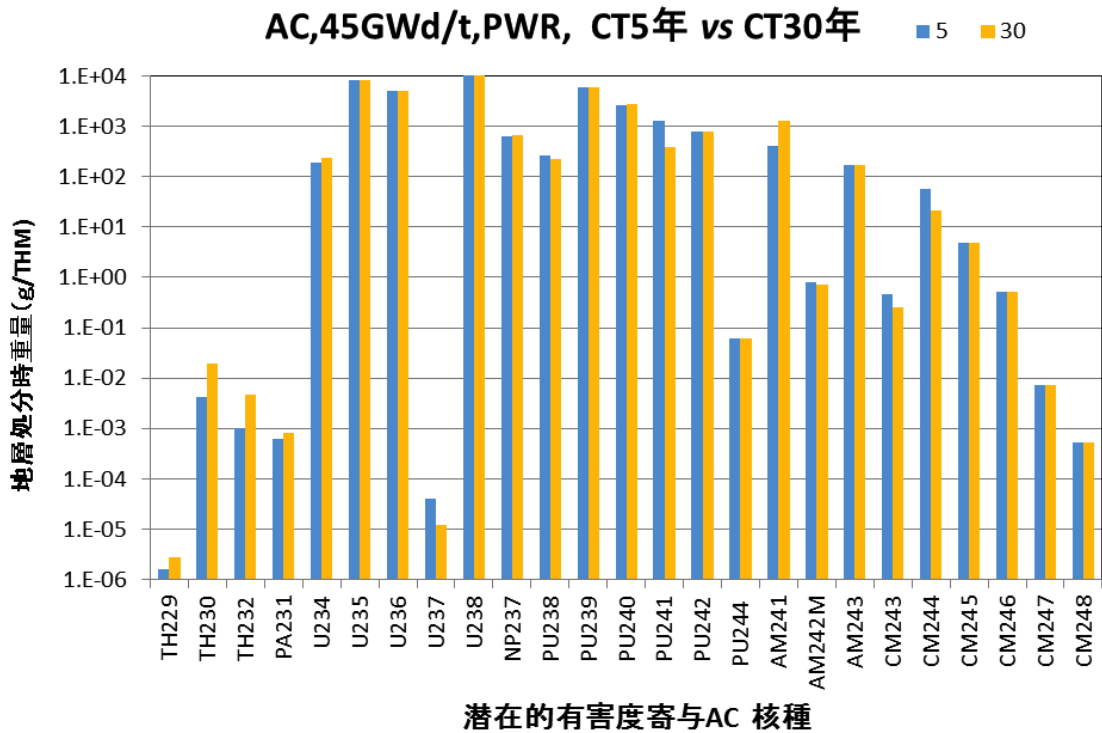


図 3.3-30 アクチニド核種重量の再処理前冷却期間依存性

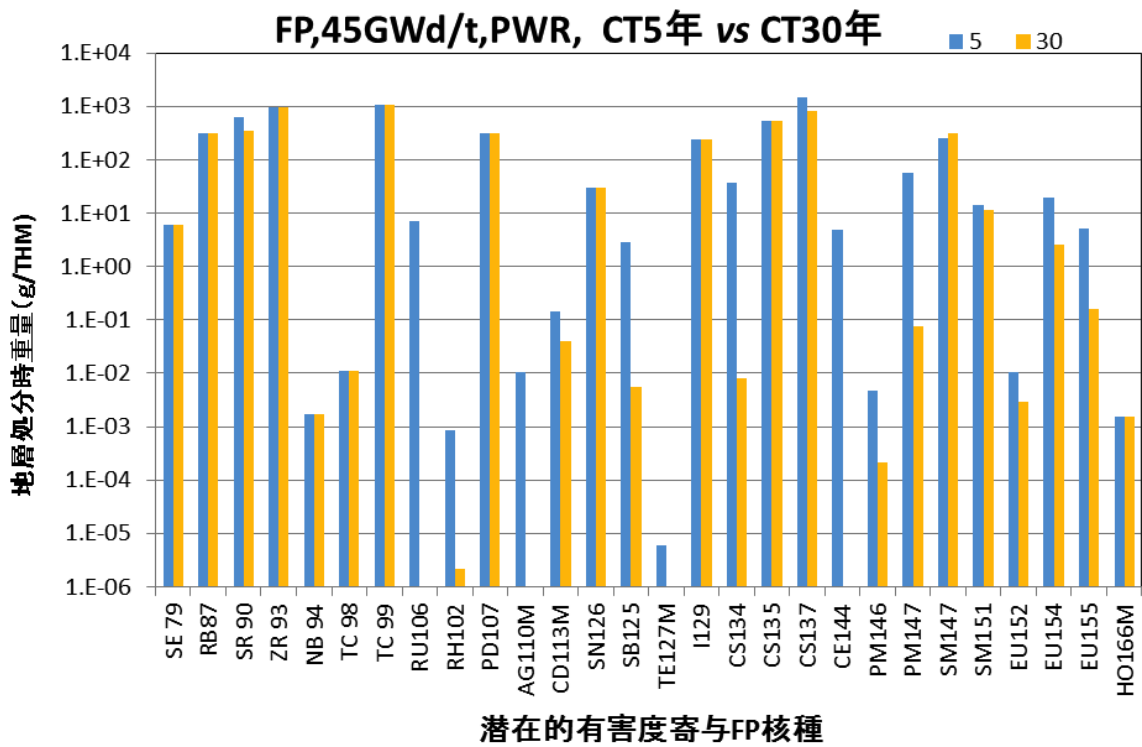


図 3.3-31 核分裂生成核種重量の再処理前冷却期間依存性

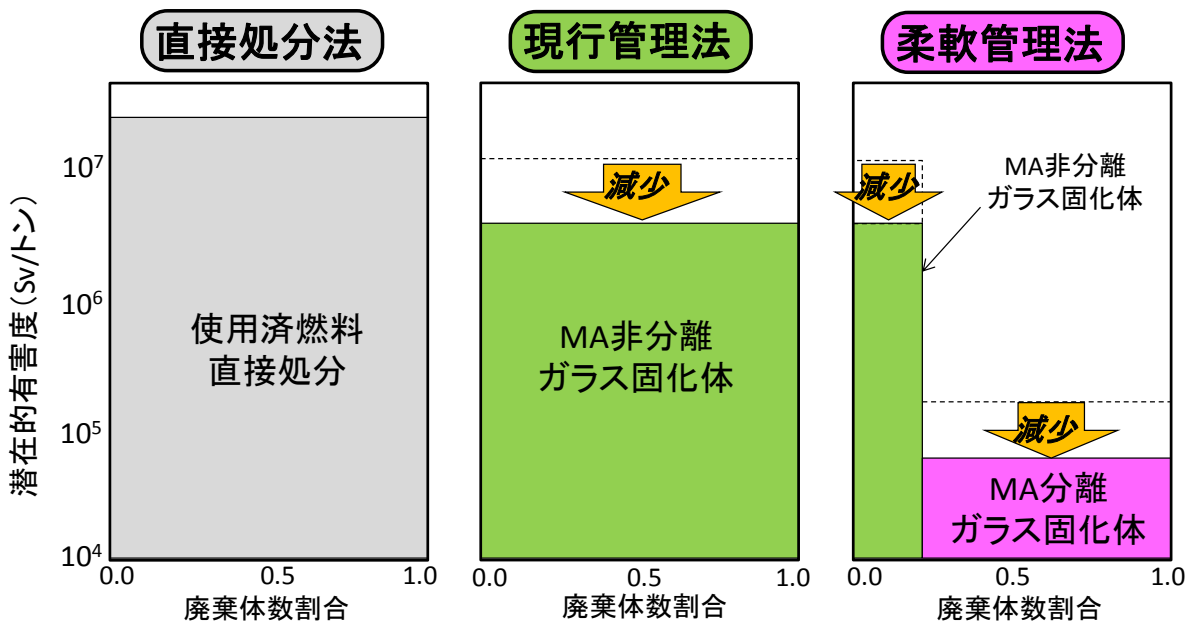


図 3.3-32 潜在的有害度の再処理前冷却期間依存性

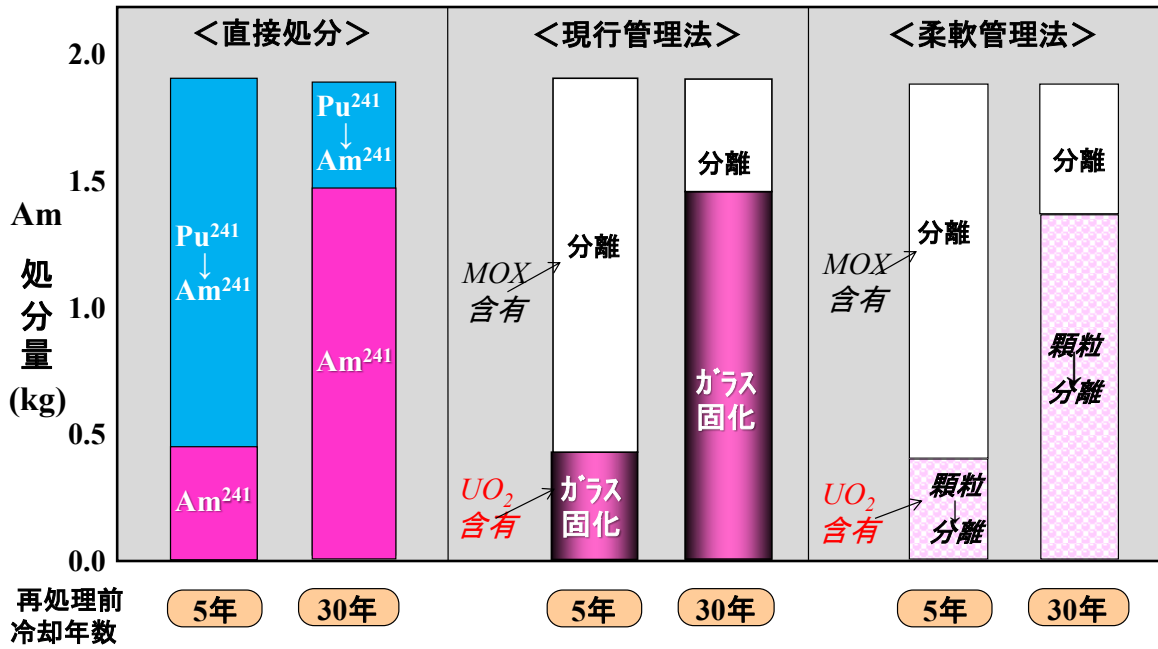


図 3.3-33 Am 処分量の再処理前冷却期間依存性

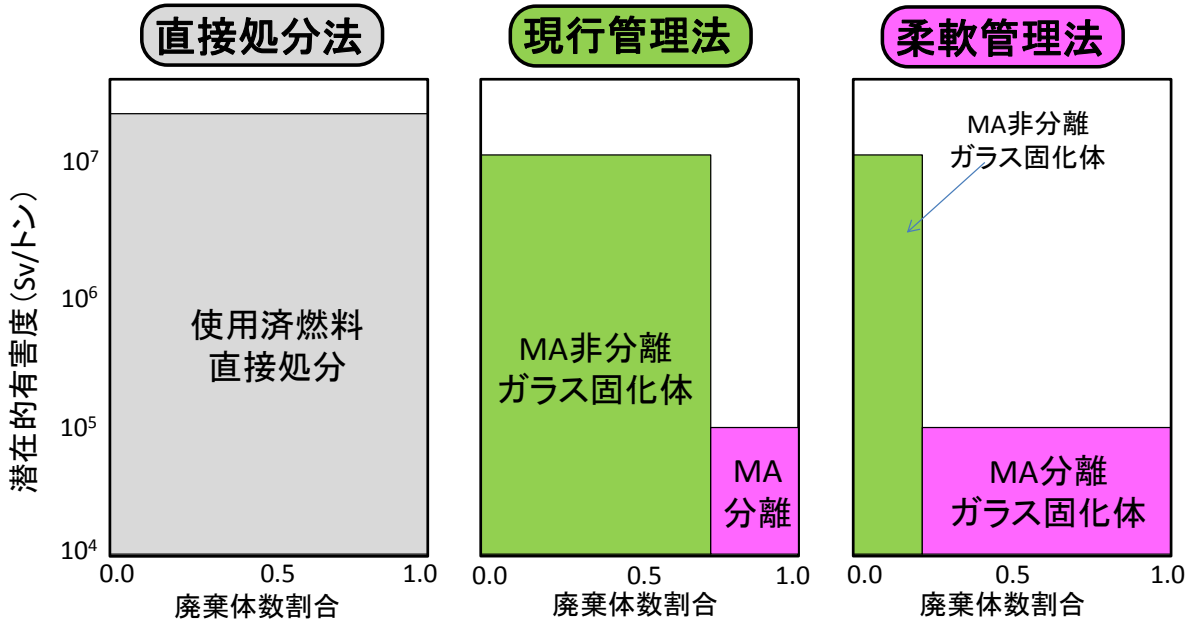


図 3.3-34 MA 分離変換技術開発期間 10 年前倒し実用化

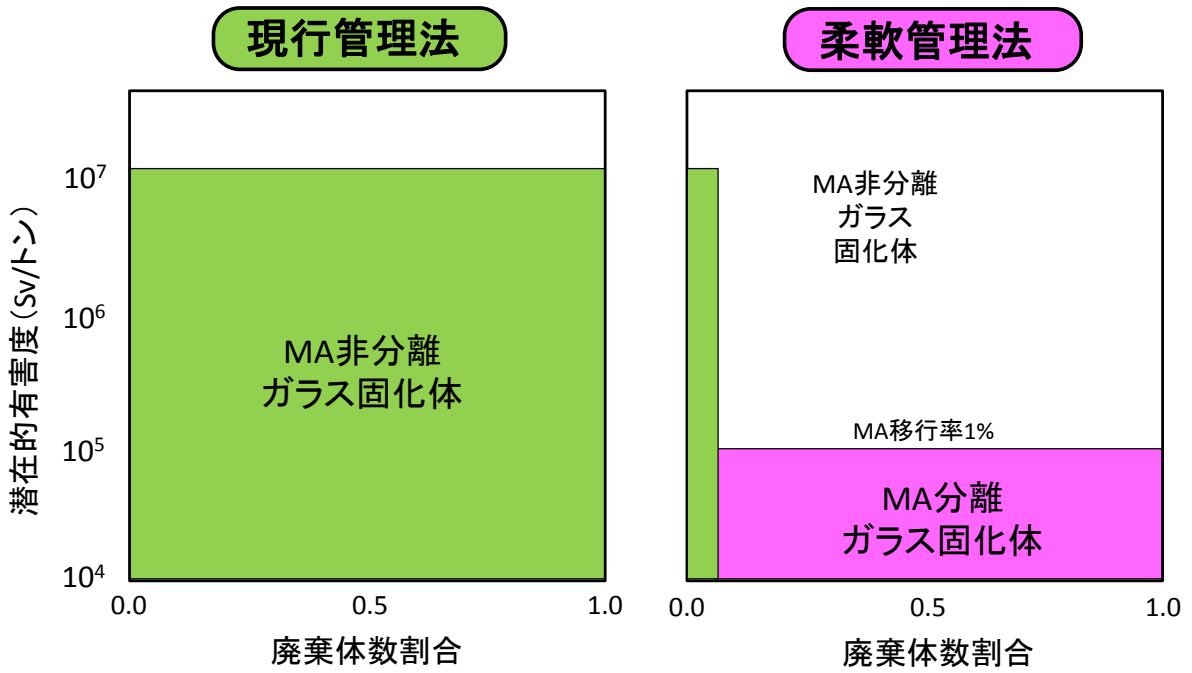


図 3.3-35 柔軟な廃棄物管理法の導入前倒し時の潜在的有害度

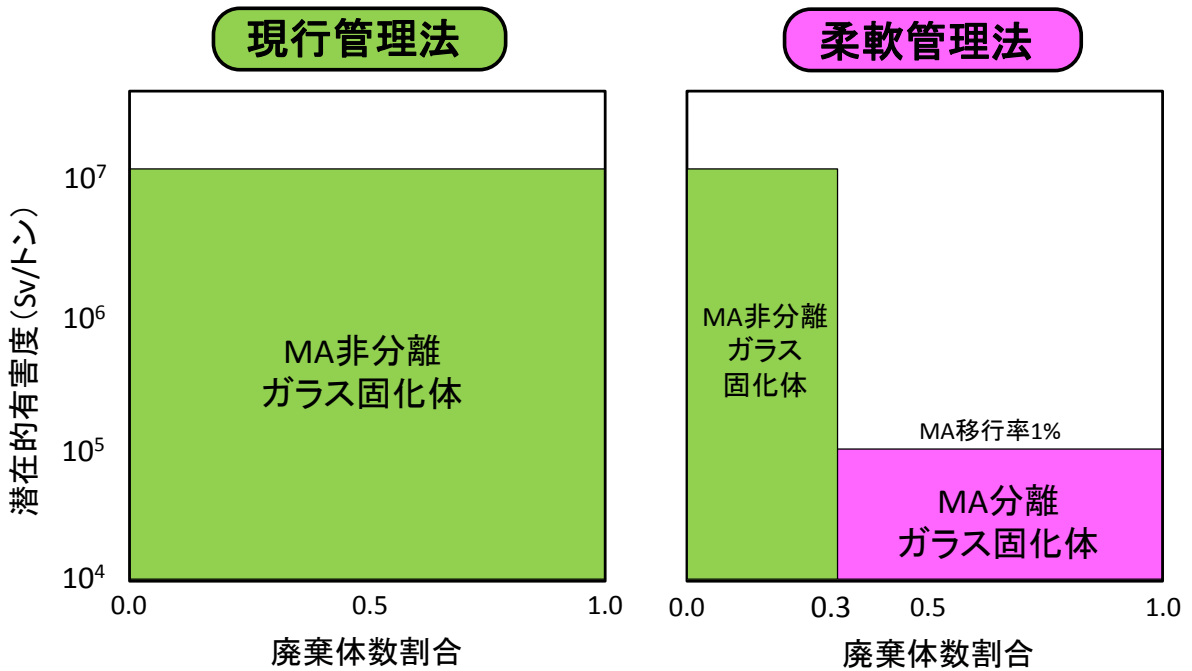


図 3.3-36 柔軟な廃棄物管理法の導入遅延時の潜在的有害度

3.3.2 処分場占有面積評価

柔軟な廃棄物管理法の環境負荷低減効果としての処分場占有面積の低減がある。本節では、廃棄体発熱密度時間変化等の入力データを基に、柔軟な廃棄物管理法及びガラス固化体管理法について、処分場 3 次元有限要素法熱伝導解析を行い、処分場面積を比較評価して柔軟な廃棄物管理法の有効性を評価した。

(1) 処分場占有面積解析評価条件

① 廃棄体の定置方式

処分場占有面積評価に必要な高レベル廃棄物（ガラス固化体）の地層処分に関する基本的概念及びこれまでの検討内容について調査し、評価条件を設定した。

廃棄体の定置方式には、諸外国で考えられ検討されてきたものとして、処分坑道に廃棄体を直接定置する又は坑道側面に処分孔を設ける方法（処分孔横置き方式）と、処分坑道から処分孔を一定間隔で掘削しそこに定置する方法（処分孔縦置き方式）が基本的なものとして考えられる。

地下施設を構成する各坑道については建設時から最終的に埋め戻しが行われるまで空洞の力学的安定性が確保されていることが要求される。さらに地下施設は地下深部に建設されること、掘削断面としては小さいものの数多くの連設した坑道群となること、総延長としては相当な距離となることなど、これまでに経験していない技術要素を含んでいることから、現状では、経験的な手法を直ちに適用することはできないため解析的な手法に基づき、空洞の力学的安定性が評価されている。評価は理論解に基づく方法で概略の検討が行われ、次に数値解析に基づく方法で理論解による検討が行なわれている。理論解による検討では、深度と支保工厚の関係を求め、現実的な範囲で概略の支保工厚が設定されている。数値解析による検討では2次元あるいは3次元弾塑性解析により、理論解による検討で設定した支保工厚の妥当性が確認されるとともに、空洞の力学的安定性の観点から最大せん断ひずみ、局所安全率、支保工応力度を指標として評価され、必要となる坑道離間距離と廃棄体ピッチが求められている。表3.3-3に空洞の力学的安定性から決まる坑道離間距離と廃棄体ピッチ及び最小占有面積を示す。

② 処分場占有面積解析用発熱量入力データ

高レベル廃棄物処分場所要占有面積は①廃棄体の発熱量時間的变化、②処分場体系寸法仕様を基にした解析メッシュ、処分体及び処分場内物性データ等を主な入力データとして、処分場 3 次元体系の熱伝導解析手法により緩衝材最高温度を 100℃以下とすることを条件に必要な処分孔離隔距離から決定される。図 3.3-37 に具体的処分場熱伝導解析体系を示す。

廃棄物管理法の違いにより主として廃棄体の発熱量が異なり、処分場所要占有面積に違いが出てくる。ガラス固化体の発熱量は軽水炉使用済燃料の同位元素重量に各元素単位重量当り発熱量を乗じ、総和を取って求めたものである。

軽水炉使用済燃料の再処理により発生する高レベル廃棄物ガラス固化体の発熱量として燃焼度及び再処理前冷却期間の組合せとして次のようなケースについて算出した。

- ・ 燃焼度 45GWd/t PWR 及び BWR U₂ 使用済燃料、再処理前冷却期間 4 年
- ・ 燃焼度 45GWd/t PWR 及び BWR U₂ 使用済燃料、再処理前冷却期間 30 年

図 3.3-38 に燃焼度 45GWd/t 軽水炉使用済燃料、再処理前冷却期間 (CT) 4 年の場合のガラ

ス固化体発熱量の処分後の発熱量の時間変化を示す。また、表 3.3-4 に廃棄体、人工バリア、岩盤の熱特性データを示す。図 3.3-39 にはガラス固化体発熱量の内訳として、核分裂生成核種 (FP) の発熱量及びマイナーアクチニド核種 (MA) の発熱量を処分後 1 年目、10 年目、100 年目について示す。核分裂生成核種 (FP) の発熱量の主な寄与核種は Cs-137 と Sr-90 であり、マイナーアクチニド核種 (MA) の発熱量の主な寄与核種は Am-241 である。ガラス固化体管理法の場合は核分裂生成核種 (FP) の発熱量とマイナーアクチニド核種 (MA) の発熱量の和であり、顆粒化廃棄物管理法の場合は核分裂生成核種 (FP) の発熱量そのものである。図 3.3-39 の比較より、燃焼度 45GWd/t 軽水炉使用済燃料、再処理前冷却期間 4 年の場合のガラス固化体発熱量はガラス固化体管理法に対して顆粒化廃棄物管理法の場合は約 15% 低下している。再処理前冷却期間 (CT) が 4 年の場合にはマイナーアクチニドの蓄積量はそれほど多くないため両管理法の発熱量の違いは大きくない。

次に、図 3.3-40 に燃焼度 45GWd/t 軽水炉使用済燃料、再処理前冷却期間 (CT) 30 年の場合のガラス固化体発熱量の処分後の発熱量の時間変化を示す。また、図 3.3-41 にはガラス固化体発熱量の内訳として、核分裂生成核種 (FP) の発熱量及びマイナーアクチニド核種 (MA) の発熱量を処分後 1 年目、10 年目、100 年目について示す。図 3.3-41 の比較より、燃焼度 45GWd/t 軽水炉使用済燃料、再処理前冷却期間 30 年の場合のガラス固化体発熱量はガラス固化体管理法に対して顆粒化廃棄物管理法の場合は約 50% 低下している。再処理前冷却期間 (CT) が 30 年の場合にはマイナーアクチニドの蓄積量が多いため両管理法の発熱量に大きな違いが生じている。

③ 処分場熱伝導温度解析手法の検証

柔軟な廃棄物管理法の有効性の一つとして高レベル廃棄物処分場面積の低減効果が期待されるが、処分場面積の評価には処分場 3 次元熱伝導温度解析が必要である。そこで、本節では核燃料サイクル開発機構、「わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第 2 次とりまとめ」[1] [2]において評価されている基準ケースについて処分場所要面積の解析を行い、解析入力データ及び解析手法の妥当性を検証した。

図 3.3-42 に処分場熱伝導温度解析の検証結果を示す。解析条件として処分体は PWR45GWd/t の使用済燃料の炉取出し 4 年後のガラス固化体である。また、処分体の定置方式は横置きで硬岩系岩盤の場合である。ガラス固化体の発熱量は図 3.3-43 を用いた。同図には解析に用いた処分時ガラス固化体発熱量を公開データと比較して示す。比較結果より両者は一致しており、発熱データは妥当なものであることが確認された。

図 3.3-42 の比較により本研究開発の手法は公開されている処分場緩衝材温度をよく再現しており、本研究開発で使用する熱伝導解析手法及び入力データの妥当性が検証された。

参考文献

- [1] 核燃料サイクル開発機構、「わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第 2 次とりまとめ—総論レポート、JNCTN1400 99-020
- [2] 核燃料サイクル開発機構「わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第 2 次とりまとめ—分冊 1 わが国の地質環境、JNCTN1400 99-021

表 3.3-3 処分坑道寸法仕様

	硬岩系岩盤			軟岩系岩盤		
	坑道 離隔距離	廃棄体 ピッチ	廃棄体 占有面積	坑道 離隔距離	廃棄体 ピッチ	廃棄体 占有面積
横置方式	2.0D (4.44m)	3.13m	13.9(m ² /本)	2.5D (5.55m)	3.13m	17.4(m ² /本)
縦置方式	2.0D (10.0m)	2.0d (4.44m)	44.4(m ² /本)	2.6D (13.0m)	3.0d (6.66m)	86.6(m ² /本)
備考	D: 処分坑道径(横置 2.22m, 縦置 5m) d: 処分孔(横置, 縦置共に 2.22m)					

表 3.3-4 廃棄体、人工バリア、岩盤の熱特性データ

No	項目	密度 [kgm ⁻³]	比熱 [kJkg ⁻¹ K ⁻¹]	熱伝導率 [Wm ⁻¹ K ⁻¹]	備考	
1	ガラス固化体	2800	0.96	1.2		
2	オーバーパック	7860	0.47	51.6	300K炭素鋼の値	
3	緩衝材	1712	0.59	0.78	含水比:7% 乾燥密度:1.6Mgm ⁻³	
4	岩盤(硬岩)	2670	1.0	2.8		
5	岩盤(軟岩)	2200	1.4	2.2		
6	隙間	ベントナイト	1040	0.217	0.153	粉末の値
		空気	0.9799	1.01	0.003	
		水	960.3	4.212	0.6761	

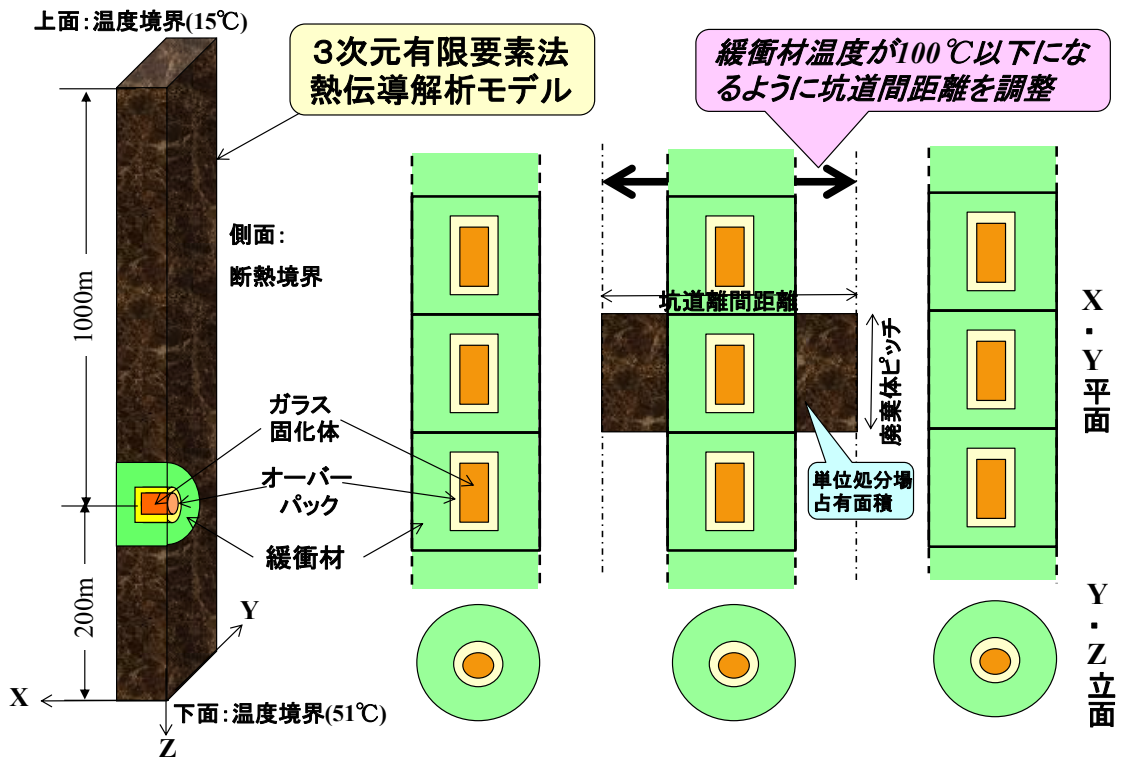


図 3.3-37 処分場熱伝導解析体系 (横置き方式の場合)

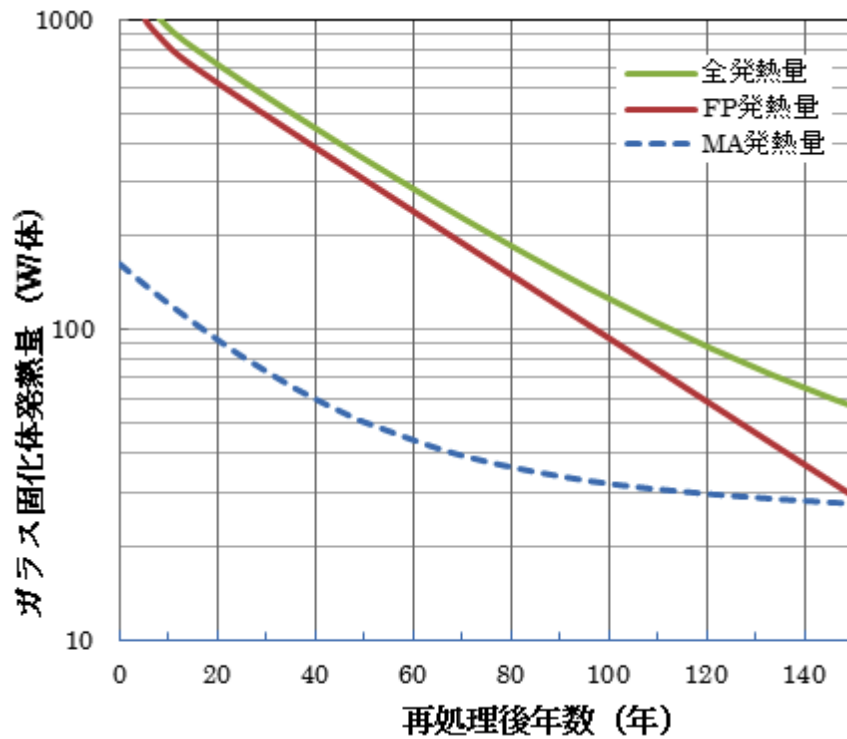


図 3.3-38 ガラス固化体発熱量内訳 (PWR, CT4 年)

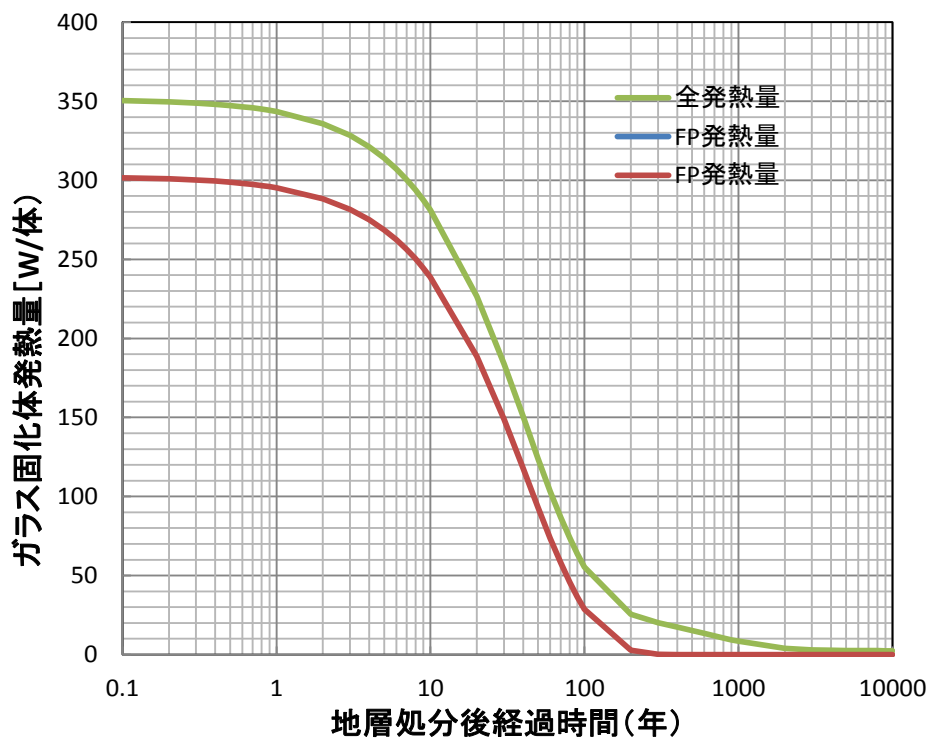


図 3.3-39 処分場熱温度解析発熱量入力値 (PWR, CT4 年)

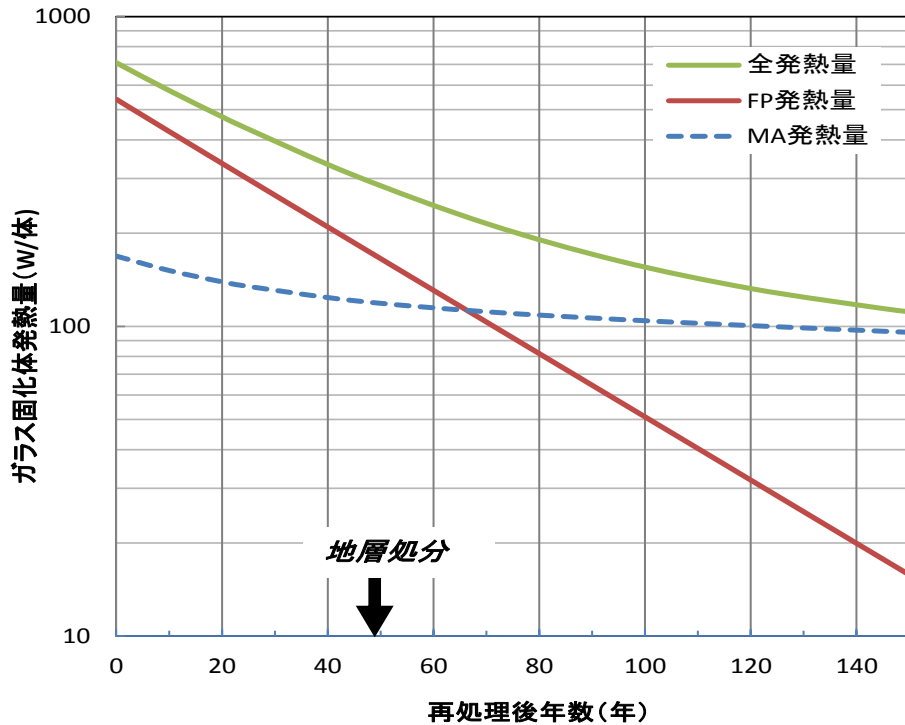


図 3.3-40 ガラス固化体発熱量内訳 (PWR, CT30 年)

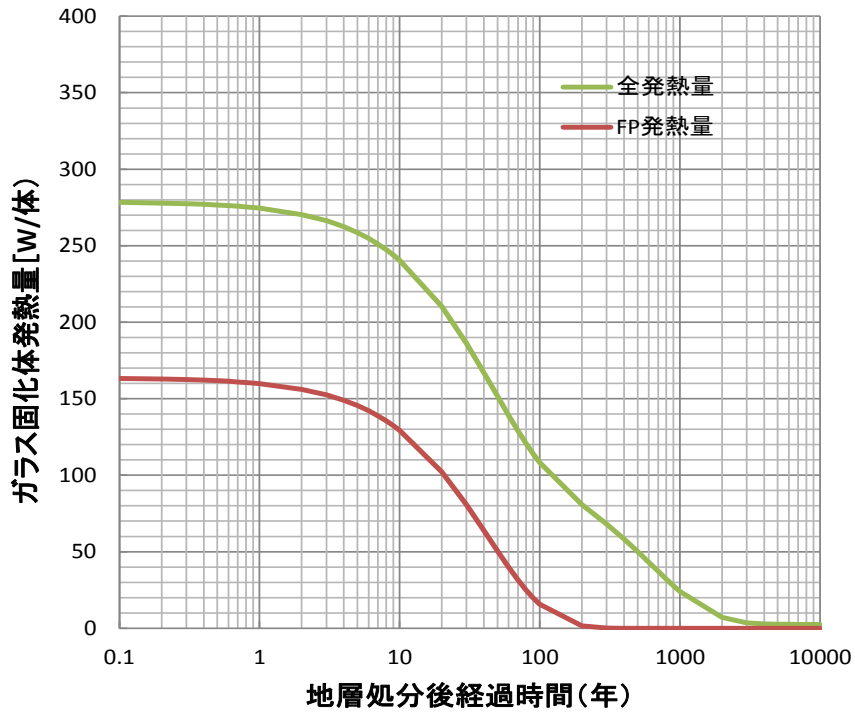


図 3.3-41 処分場熱温度解析入力値 (PWR, CT30 年)

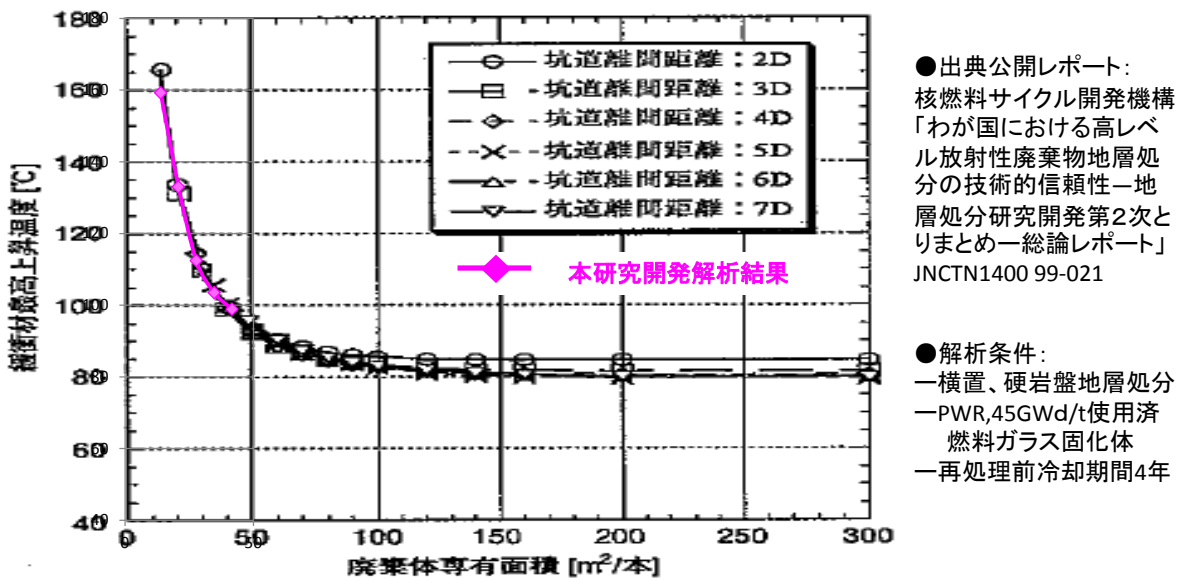
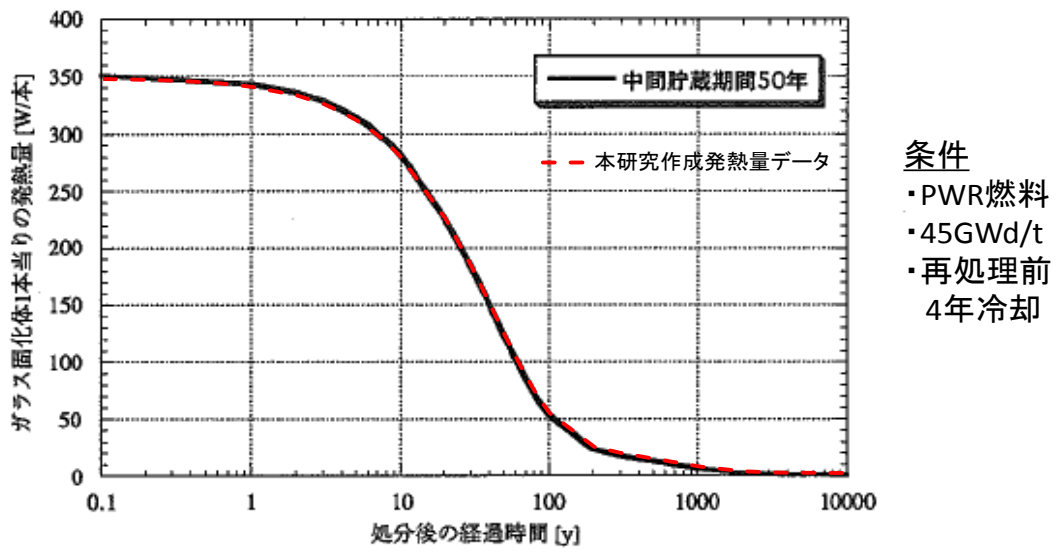


図 3.3-42 処分場熱温度ベンチマーク解析結果



(出典:わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性
平成11年11月26日 核燃料サイクル開発機構)

図 3.3-43 発熱量入力値ベンチマーク解析結果

(2) 柔軟な廃棄物管理法の処分場面積低減効果

廃棄物管理法の処分場面積は、1)MA 分離変換によるガラス固化体当りの処分場面積(占有面積 Ω)と、2)MA 分離変換が適用されるガラス固化体又は適用されないガラス固化体の数量 N を基に、次式により評価される。

$$\text{処分場面積} = \Omega (\text{MA 無}) \times N (\text{MA 無}) + \Omega (\text{MA 有}) \times N (\text{MA 有})$$

従って、柔軟な廃棄物管理法の処分場面積低減効果の評価には、まず MA 分離変換によるガラス固化体処分場占有面積の低減効果の評価し、次に MA 分離変換が適用可能なガラス固化体数を算定して評価する。ここで、処分場占有面積の評価は、処分体の定置方式、岩盤条件等に依存するが、ここでは先行評価例を参考に硬岩系岩盤の横置方式及び縦置方式とする。

① 横置方式の場合

1) MA 分離変換の占有処分場面積低減効果(横型定置)

図 3.3.-44 に地層処分場熱伝導温度解析体系図を、図 3.3.-45 に廃棄体の処分場定置時のガラス固化体、オーバーパック、緩衝材等の詳細寸法仕様を示す。廃棄体は横置き方式、硬岩系岩盤とし、深度は 1,000m とした。解析体系の境界条件は地上面 15°C、地下温度勾配は 1°C/300m とし、側面は断熱条件の無限体系とした。ガラス固化体及び人工バリアの寸法及び熱物性データは図 3.3-45、表 3.3-3 を用いた。また、ガラス固化体の発熱量は PWR45GW d/t の使用済燃料の炉取出し 4 年後からの発熱データとして図 3.3-42 を用いた。図 3.3.-46 には発熱量に対応して緩衝材最高温度を制限値の 100°C 以下とする処分孔間隔の調整方法を示す。

これらの条件、入力データを基に処分場内熱伝導温度解析結果を行った。解析は処分孔間隔を変化させ、MA 有無、再処理前冷却期間 (CT) をパラメータに変化させ実施した。解析ケースの代表例として MA 有り、CT30 年、処分孔 6d (d ; 処分孔径=2.2m) の場合の解析結果を表 3.3.-3、図 3.3.-47、図 3.3.-48 に示す。表 3.3.-3 は解析条件及び主要解析結果、図 3.3.-47 はガラス固化体中心温度、緩衝材最大、最小温度の処分開始後の経時変化である。また、図 3.3.-48 は処分開始後の代表的経過時間における緩衝材内温度分布である。本ケースにおいて、緩衝材最高温度は処分後 50 年の時点において 94.7°C となっている。

次に MA ありの場合における処分孔間隔に対する緩衝材最高温度の変化を CT4 年及び 30 年の場合について図 3.3.-49 に示す。図 3.3.-49 の結果より緩衝材最高温度が 100°C になるのは CT4 年の場合と CT30 年の場合の何れも処分孔間隔は 5d から 6d の間にあり大きな違いはないことが分る。次に CT30 年の場合における処分孔間隔に対する緩衝材最高温度の変化を MA 有り、無しの場合について図 3.3.-50 に示す。図 3.3.-50 の結果より緩衝材最高温度が 100°C になるのは MA 有りの場合は処分孔間隔が 5d 程度であるのに対して、MA 無しの場合は 2d 程度であり両者に大きな違いのあることが分る。処分場面積は処分体ピッチが同じ場合には処分孔間隔に比例するため、MA 無しの場合の処分場面積は MA 有りの場合の処分場面積の 1/2.5~1/3 程度に大きく削減されることが分る。

2) 柔軟な廃棄物管理法の効果(横型定置)

廃棄物管理法による処分場面積の低減効果の評価するため、上記の MA 分離変換の有無による処分場面積の違いを基に、廃棄物管理法の違いによる MA 分離変換が適用される廃棄体数を

考慮して評価した。図 3.3-51 に廃棄物管理法の違いによる処分場面積評価手法を示す。ここでは、評価対象とする廃棄物は現行軽水炉再処理設備において 40 年間に処理される 32,000 トンの軽水炉使用済燃料から発生する高レベル廃棄物とする。

なお、処分場面積評価においてガラス固化体の発熱量が低く緩衝材最高温度が制限値に対して余裕がある場合の対応方法として、a. 処分孔間隔の縮減と b. ガラス固化体中の廃棄物含有量増加があり、ここではまず、処分孔間隔縮減を優先し、残りにガラス固化体の廃棄物含有率 15% を上限に増加することにより対処するものとする。図 3.3-52 に対応方法の説明図を示す。また、図 3.3-53 に FP/MA 含有率と緩衝材最高温度の関係の感度解析結果を示す。

以上のデータを基に、柔軟な廃棄物管理法と従来の廃棄物管理法の処分場面積の評価結果を図 3.3-54 に示す。図 3.3-54 において、MA 含有ガラス固化体の占有面積は $41.7\text{m}^2/\text{体}$ 、MA 非含有ガラス固化体の占有面積は $13.9\text{m}^2/\text{体}$ である。また、ガラス固化体数は従来管理法の場合総量が 40,000 体であるが全て MA 含有である。これに対して柔軟な管理法の場合は MA 含有ガラス固化体が 7,500 体、MA 非含有ガラス固化体が 29,500 体の計 37,000 体である。柔軟な管理法の場合にガラス固化体総数が少なくなるのは、発熱量の低下を一部 FP 含有率の増加に振り向けるためである。これらの物量及び占有面積を基に評価される処分場面積は従来管理法の場合が 1.67km^2 であるのに対して、柔軟な管理法の場合は 0.72km^2 であり、約 43% に低減される。このように、柔軟な廃棄物管理法は MA 分離変換技術を有効に活用し、処分場面積の大幅な低減に貢献することが分った。

② 縦置方式の場合

1) MA 分離変換の占有処分場面積低減効果(縦型定置)

図 3.3.-55 に地層処分場熱伝導温度解析体系図を、図 3.3.-56 に廃棄体の処分場定置時のガラス固化体、オーバーパック、緩衝材等の詳細寸法仕様を示す。廃棄体は縦置き方式、硬岩系岩盤とし、深度は 1,000m とした。解析体系の境界条件は地上面 15°C 、地下温度勾配は $1^\circ\text{C}/300\text{m}$ とし、側面は断熱条件の無限体系とした。ガラス固化体及び人工バリアの寸法及び熱物性データは図 3.3-45、表 3.3-3 を用いた。また、ガラス固化体の発熱量は PWR45GW d/t の使用済燃料の炉取出し 4 年後からの発熱データとして図 3.3-42 を用いた。図 3.3.-57 には発熱量に対応して緩衝材最高温度を制限値の 100°C 以下とする処分孔間隔の調整方法を示す。

これらの条件、入力データを基に処分場内熱伝導温度解析結果を行った。解析は処分孔間隔を変化させ、MA 有無、再処理前冷却期間 (CT) をパラメータに変化させ実施した。縦置方式の基準ケースとして MA 有り、CT30 年、廃棄体段数 1 段の場合の解析結果を表 3.3.-6、図 3.3.-58、図 3.3.-59 に示す。表 3.3.-6 は解析条件及び主要解析結果、図 3.3.-58 はガラス固化体中心温度、緩衝材最大、最小温度の処分開始後の経時変化である。また、図 3.3.-59 は処分開始後の代表的経過時間における緩衝材内温度分布である。本ケースにおいて、緩衝材最高温度は処分後 50 年の時点において 91.3°C となっている。

次に MA ありの場合における処分孔間隔に対する緩衝材最高温度の変化を CT4 年及び 30 年の場合について図 3.3.-60 に示す。図 3.3.-60 の結果より緩衝材最高温度が 100°C になるのは CT4 年の場合と CT30 年の場合の何れも占有処分面積は $40\text{m}^2/\text{体}$ 程度であり、大きな違い

はないことが分る。次に CT30 年の場合における占有処分面積に対する緩衝材最高温度の変化を MA 有り、無しの場合について図 3.3.-60 に示す。図 3.3.-60 の結果より緩衝材最高温度が 100℃になるのは MA 有りの場合の占有処分面積は 40m²/体程度であるのに対して、MA 無しの場合の占有処分面積は 15m²/体程度で両者に大きな違いのあることが分る。処分場面積は処分体ピッチが同じ場合には処分孔段数に比例するため、MA 無しの場合の処分場面積は MA 有りの場合の処分場面積の～1/3 程度に大きく削減されることが分る。

2) 柔軟な廃棄物管理法の効果(堅型定置)

廃棄物管理法による処分場面積の低減効果を評価するため、上記の MA 分離変換の有無による処分場面積の違いを基に、廃棄物管理法の違いによる MA 分離変換が適用される廃棄体数を考慮して評価した。ここでは、評価対象とする廃棄物は現行軽水炉再処理設備において 40 年間に処理される 32,000 トンの軽水炉使用済燃料から発生する高レベル廃棄物とする。

なお、処分場面積評価においてガラス固化体の発熱量が低く緩衝材最高温度が制限値に対して余裕がある場合の対応方法としては横置方式の場合と同様に、a. 処分孔間隔の縮減と b. ガラス固化体中の廃棄物含有量増加があり、ここではまず、処分孔間隔縮減を優先し、残りにガラス固化体の廃棄物含有率 15%を上限に増加することにより対処するものとする。図 3.3-52 に対応方法の説明図を、また、図 3.3-53 に FP/MA 含有率と緩衝材最高温度の関係の感度解析結果を示す。

以上のデータを基に、柔軟な廃棄物管理法と従来の廃棄物管理法の処分場面積の評価結果を図 3.3-61 に示す。図 3.3-61 において、MA 含有ガラス固化体の占有面積は 44.4m²/体、MA 非含有ガラス固化体の占有面積は 14.8m²/体である。また、ガラス固化体数は従来管理法の場合総量が 40,000 体であるが全て MA 含有である。これに対して柔軟な管理法の場合は MA 含有ガラス固化体が 7,500 体、MA 非含有ガラス固化体が 27,200 体の計 34,700 体である。柔軟な管理法の場合にガラス固化体総数が少なくなるのは、発熱量の低下を一部 FP 含有率の増加に振り向けるためである。これらの物量及び占有面積を基に評価される処分場面積は従来管理法の場合が 1.78km²であるのに対して、柔軟な管理法の場合は 0.74km²であり、約 41%に低減される。このように、柔軟な廃棄物管理法は MA 分離変換技術を有効に活用し、処分場面積の大幅な低減に貢献することが分った。

なお、図 3.3-62 に堅置方式処分の場合の高含有ガラス固化体の効果を示す。堅置方式の場合には発熱量等に余裕がある場合の処分場占有面積の低減は定置段数の増加で調整される。処分体定置段数は 1 段、2 段、3 段と不連続的であるため緩衝材最高温度の変化が大きい。この結果、熱的余裕を十分活用して処分場面積の低減に結びつけられない。この対策として FP の含有率の高められるガラス固化体を開発し実用化が期待される。

表 3.3-5 基準解析条件及び結果のまとめ (横置方式)

解析条件

- ・使用済燃料:PWR/45GWd/t
- ・再処理前冷却:30年
- ・再処理後冷却:50年
- ・MA:有
- ・処分場定置方式:横置方式
- ・岩盤:硬岩盤
- ・処分孔間隔:6d (4.44m)

解析結果

- ・緩衝材最高温度:94.7°C
- ・同上発生時間:定置後50年
- ・廃棄体最高温度:104.2°C
- ・同上発生時間:定置後20年

表 3.3-6 基準解析条件及び結果のまとめ (縦置方式)

解析条件

- ・使用済燃料:PWR/45GWd/t
- ・再処理前冷却:30年
- ・再処理後冷却:50年
- ・MA有無:MA有
- ・処分場定置方式:縦置方式
- ・処分体段数:1段積
- ・岩盤:硬岩盤
- ・処分孔間隔:6d (4.44m)

解析結果

- ・緩衝材最高温度:91.3°C
- ・同上発生時間:定置後50年
- ・廃棄体最高温度:100.4°C
- ・同上発生時間:定置後20年

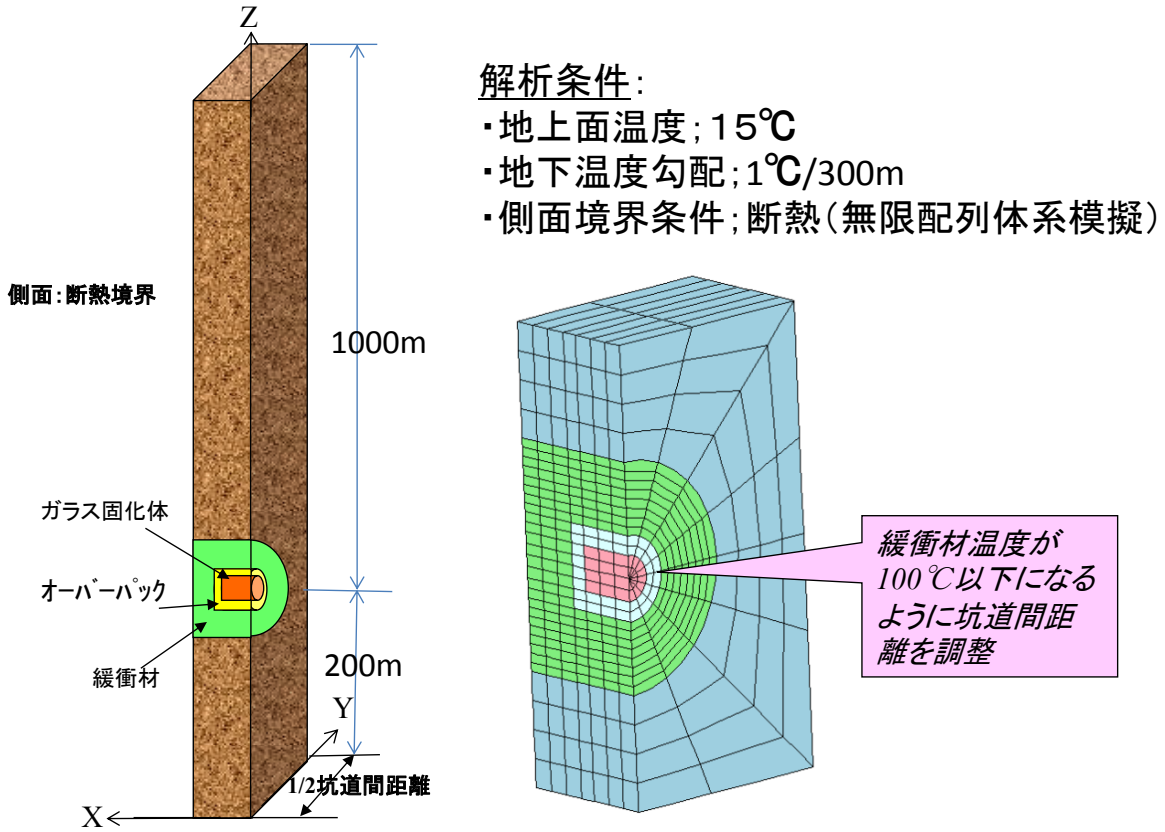


図 3.3-44 地層処分場熱伝導温度解析体系図 (横置き)

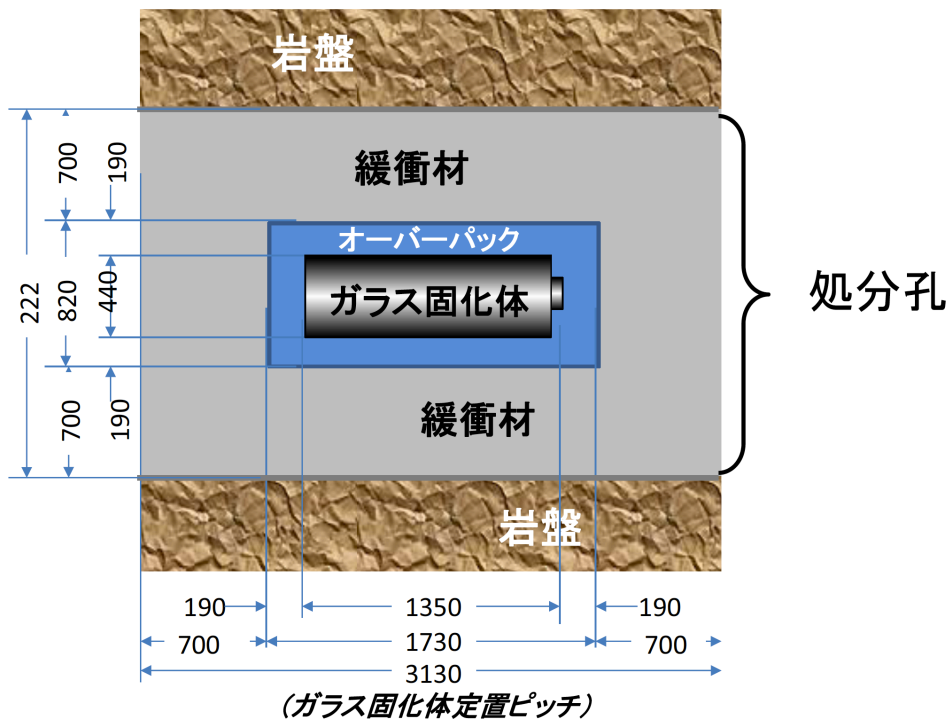


図 3.3-45 廃棄体定置詳細寸法仕様 (横置方式)

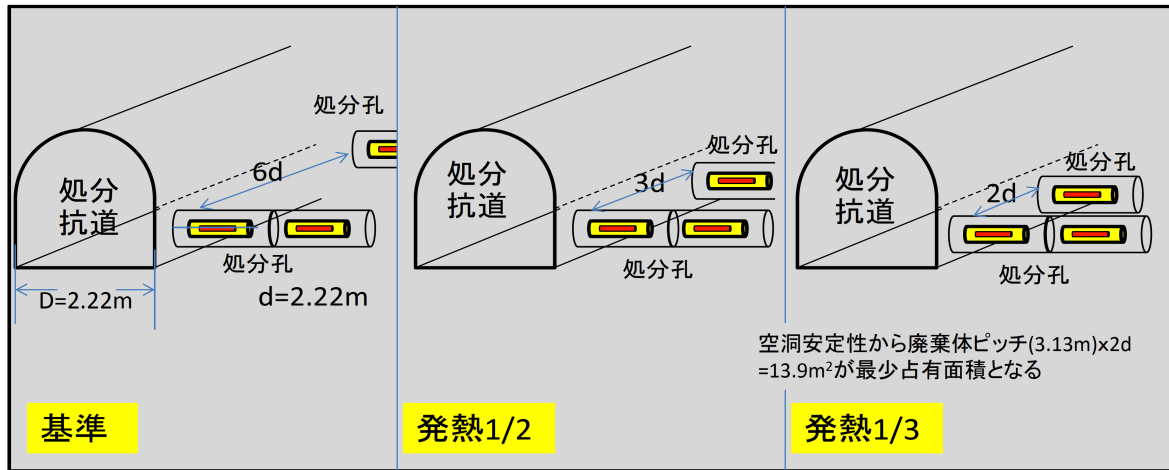


図 3.3-46 処分体の横置き配置法

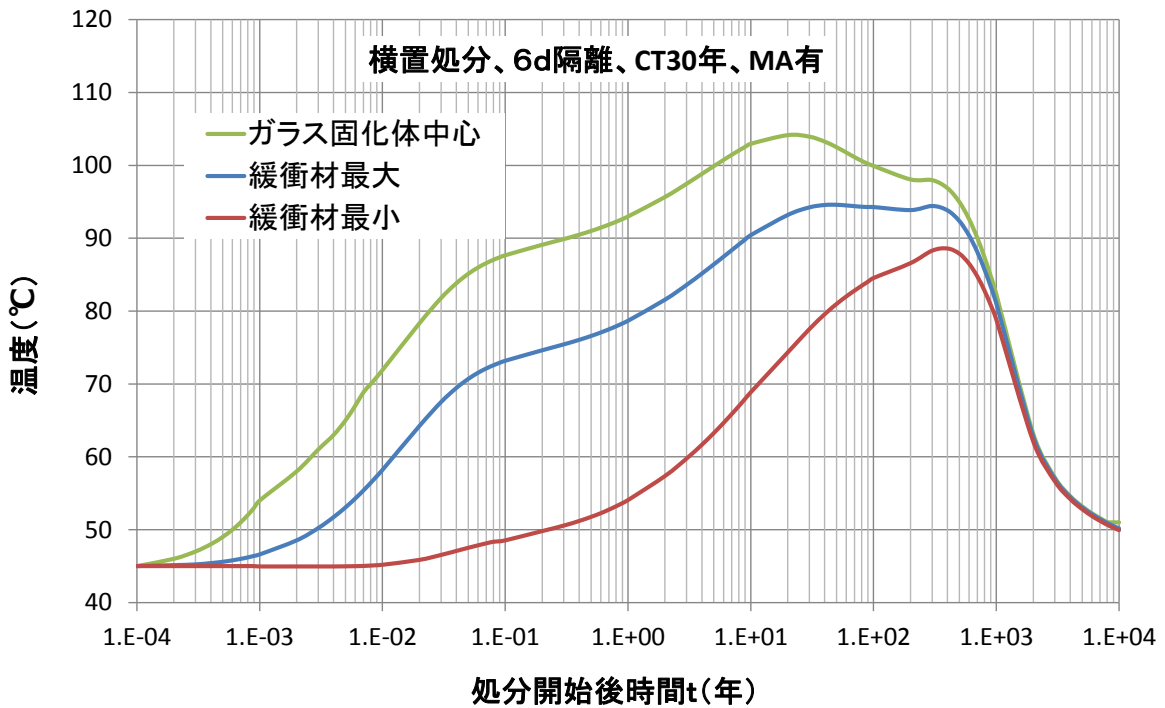


図 3.3-47 地層処分時の処分体温度変化 (横置)

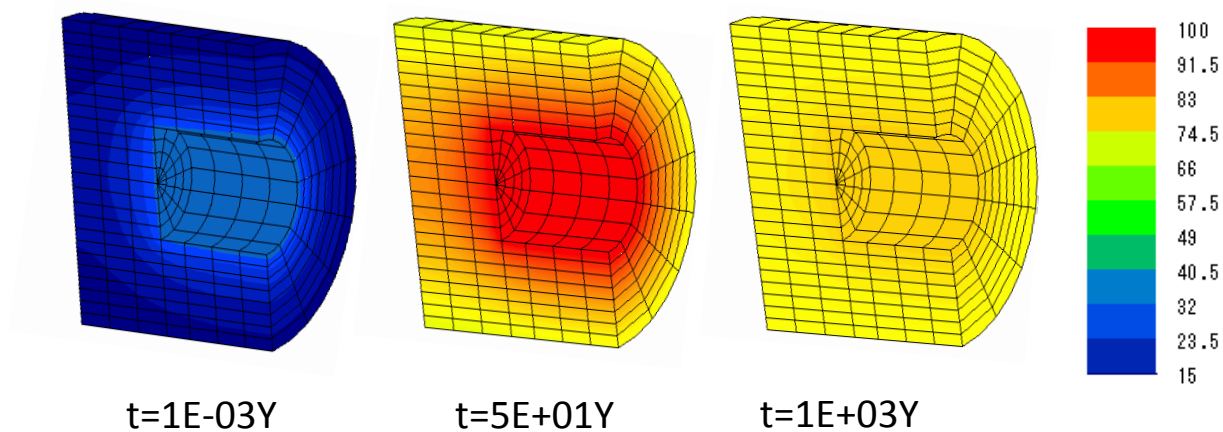


図 3.3-48 緩衝材内温度分布の時間変化 (横置)

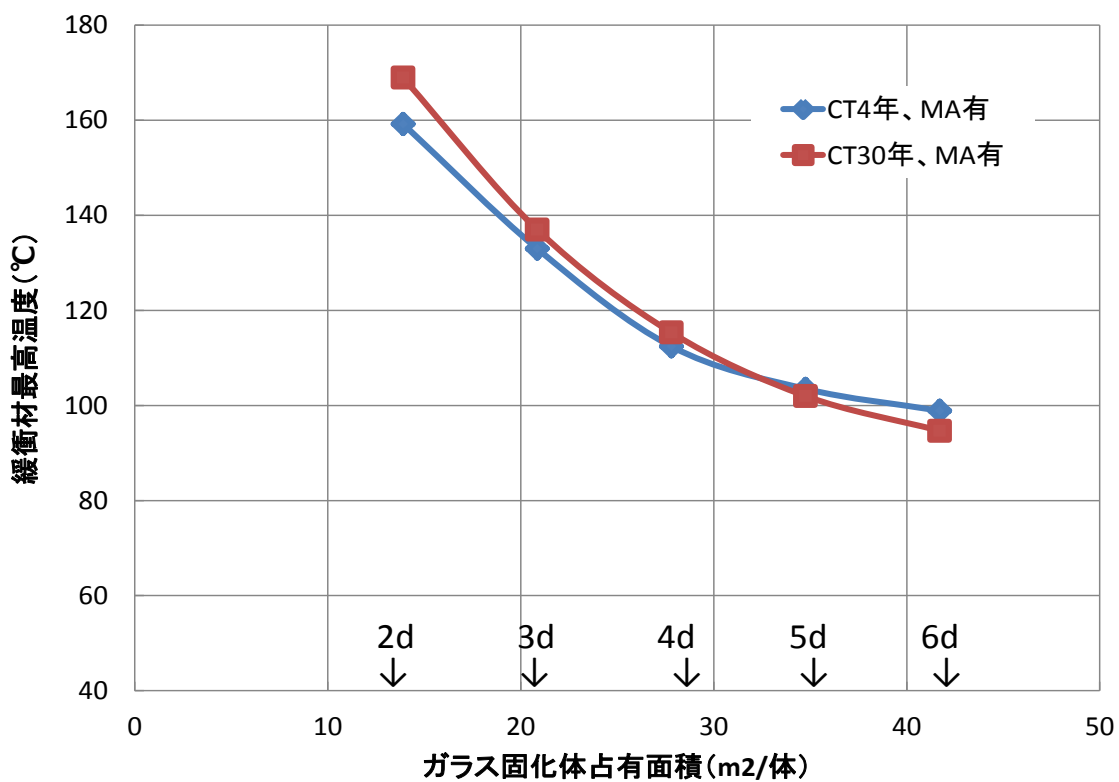


図 3.3-49 ガラス固化体占有面積に対する緩衝材最高温度 (横置)

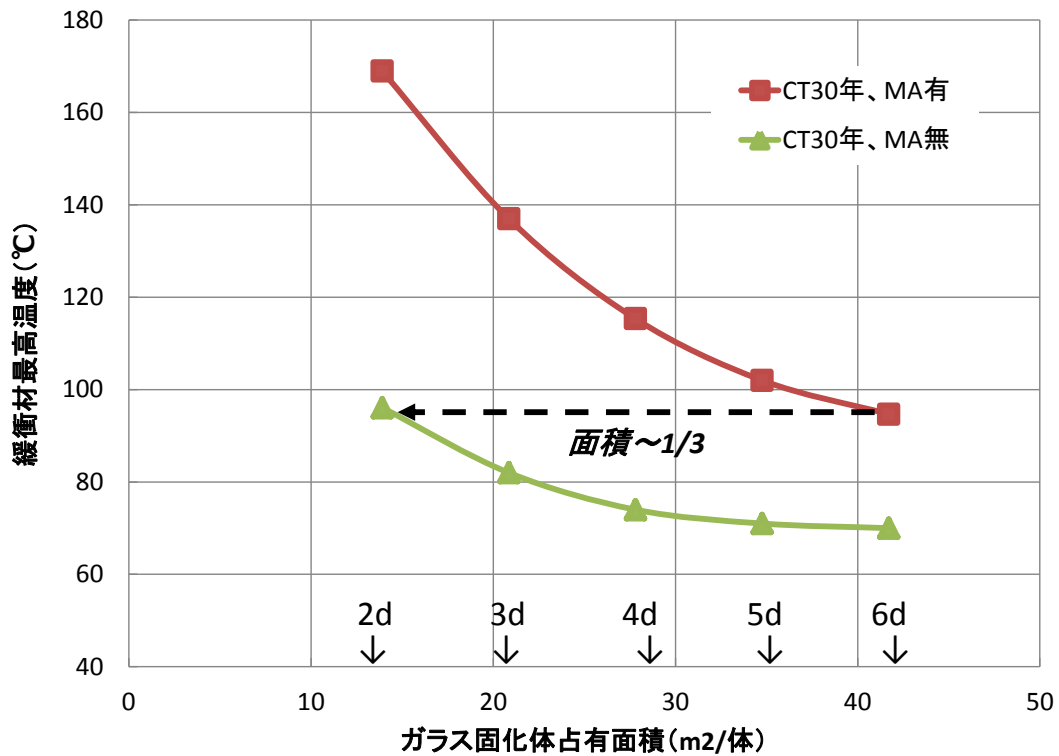


図 3.3-50 MA 分離の有無による緩衝材最高温度の違い

$$\text{廃棄物管理法の処分場面積} = \Omega_{有} \times N_{有} + \Omega_{無} \times N_{無}$$
 ここで、 $\Omega_{有}$ 、 $\Omega_{無}$ はMA有、無の占有面積、 $N_{有}$ 、 $N_{無}$ はMA有、無の体数を示す。

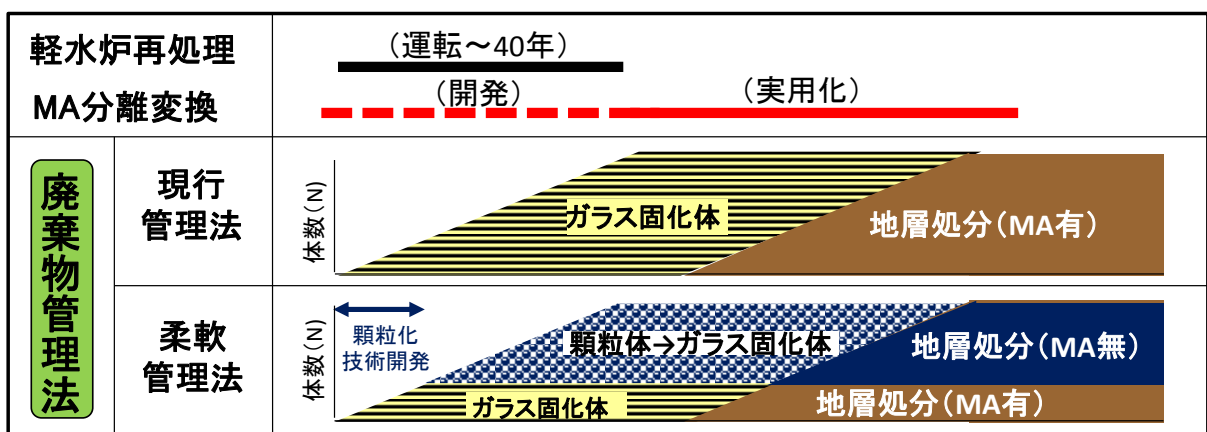


図 3.3-51 廃棄物管理法と処分場面積評価

発熱量低下⇒緩衝材温度に余裕

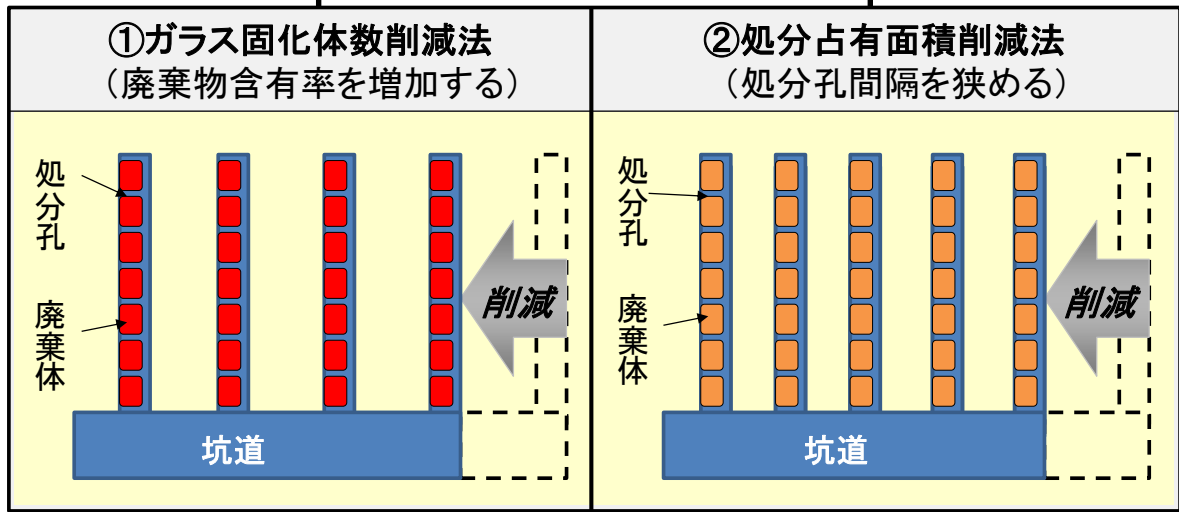


図 3.3-52 発熱量低下の処分場面積削減反映方法

T V F 固化ガラス標準組成

酸化物成分	組成 (wt%)	備考
SiO ₂	46.7	ガラス原料 75wt%
B ₂ O ₃	14.3	
Al ₂ O ₃	5.0	
Li ₂ O	3.0	
CaO	3.0	
ZnO	3.0	
Na ₂ O	10.0	廃棄物 25wt%
P ₂ O ₅	0.3	
Fe ₂ O ₃	2.0	
NiO	0.2	
Cr ₂ O ₃	0.1	
FP酸化物	9.9	
アクチノイド酸化物	2.5	
合計	100.0	

制約条件

- ・固化体製造時の最大発熱: 2.3kW/本
 - ・廃棄体酸化物の最大割合: 15wt%(60kg)
 - ・モリブデン酸化物の最大割合: 3wt%(12kg)
- (出典: 原子力委員会「分離変換技術検討会」
資料第1-3-1号)

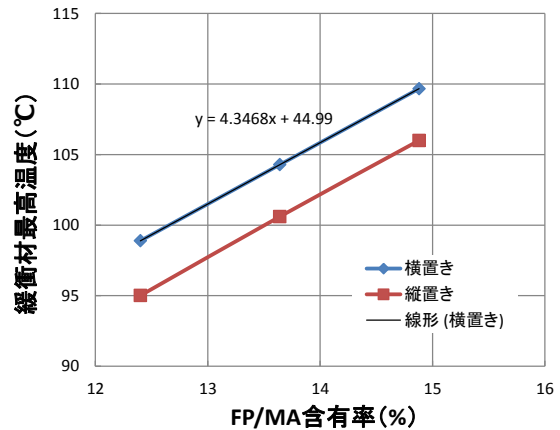


図 3.3-53 FP/MA 含有率と緩衝材最高温度の関係

項目	単位	廃棄物管理法		備考	
		現行法	柔軟法		
MA有	単体面積	m ² /体	41.7	41.7	処分孔 間隔6d 酸化物含 有率制約
	緩衝材温度	°C	94.7	94.7	
	体数	万体	4	0.75	
	面積	km ²	1.67	0.31	
MA無	単体面積	m ² /体	—	13.9	処分孔 間隔2d 緩衝材温 度制約
	緩衝材温度	°C	—	100	
	体数	万体	—	2.95	
	面積	km ²	—	0.41	
合計	面積	km ²	1.67	0.72	
	相対値	—	1.0	0.43	

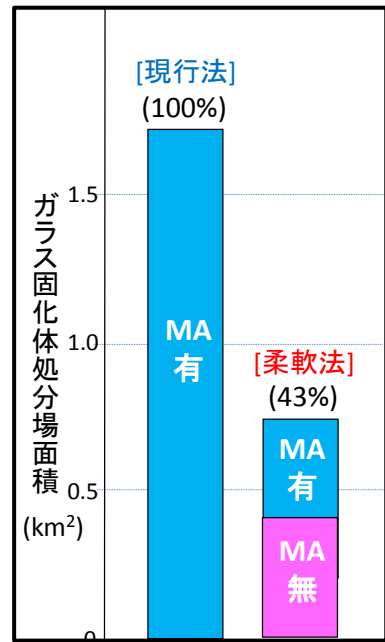


図 3.3-54 廃棄物管理法による処分場面積の比較 (横置)

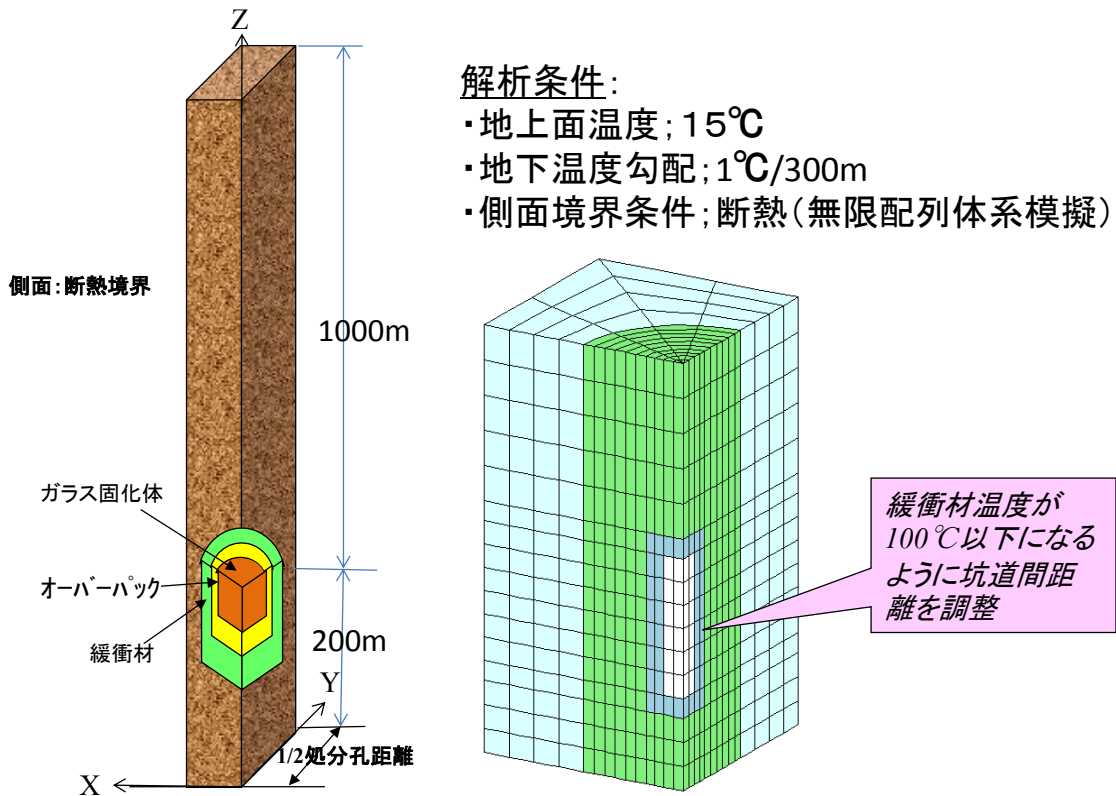


図 3.3-55 処分場内熱温度解析体系 (縦置方式)

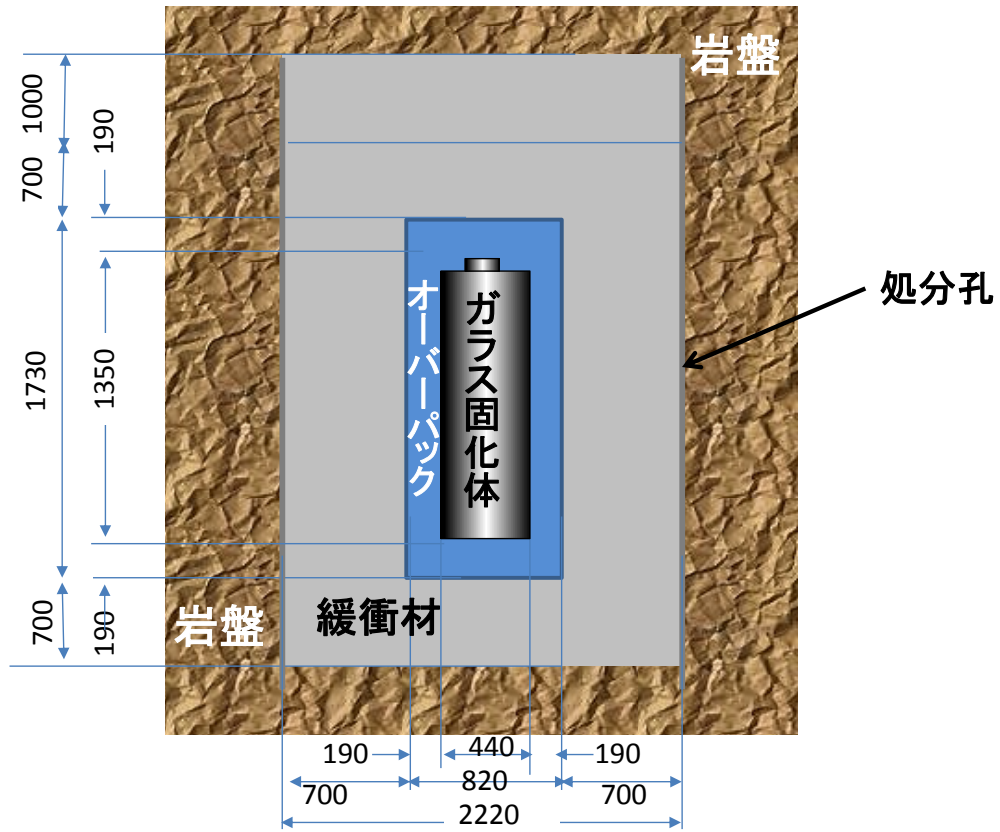


図 3.3-56 廃棄体定置詳細寸法仕様 (豎置方式)

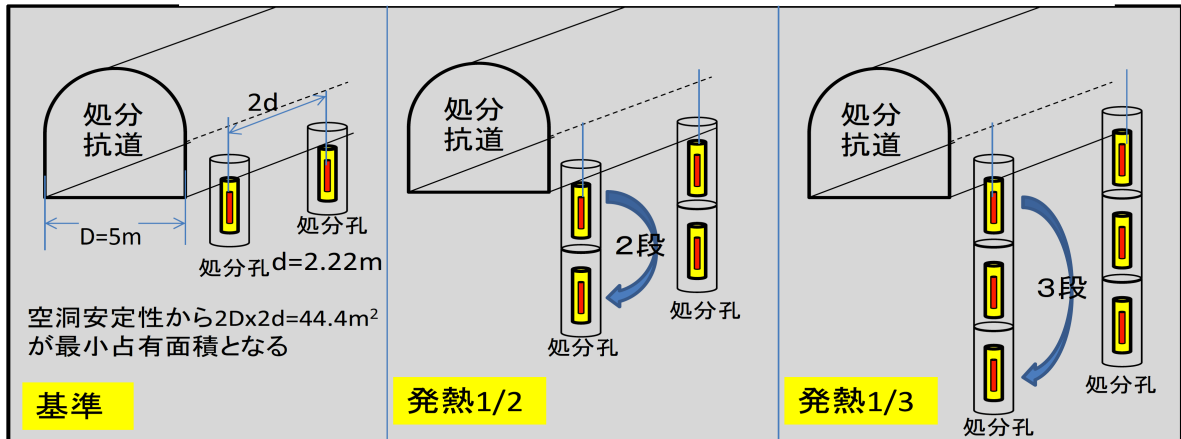


図 3.3-57 処分体の豎置き配置法

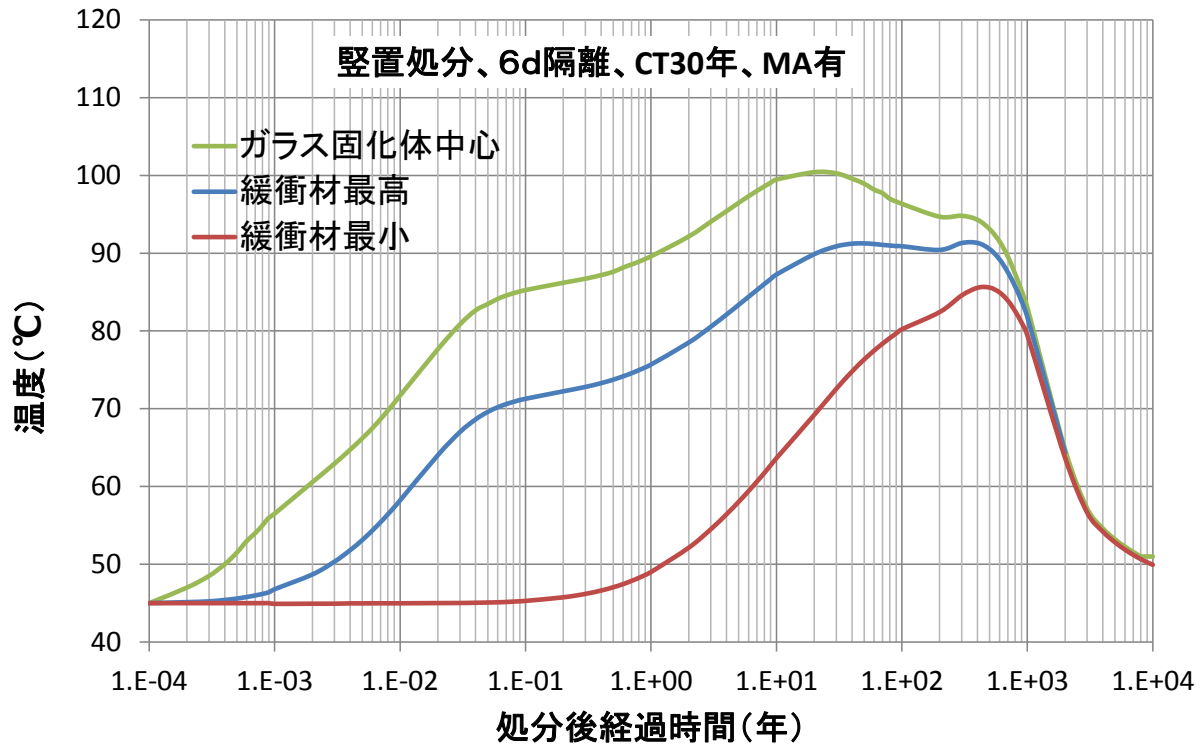


図 3.3-58 地層処分時の処分体温度変化（豎置）

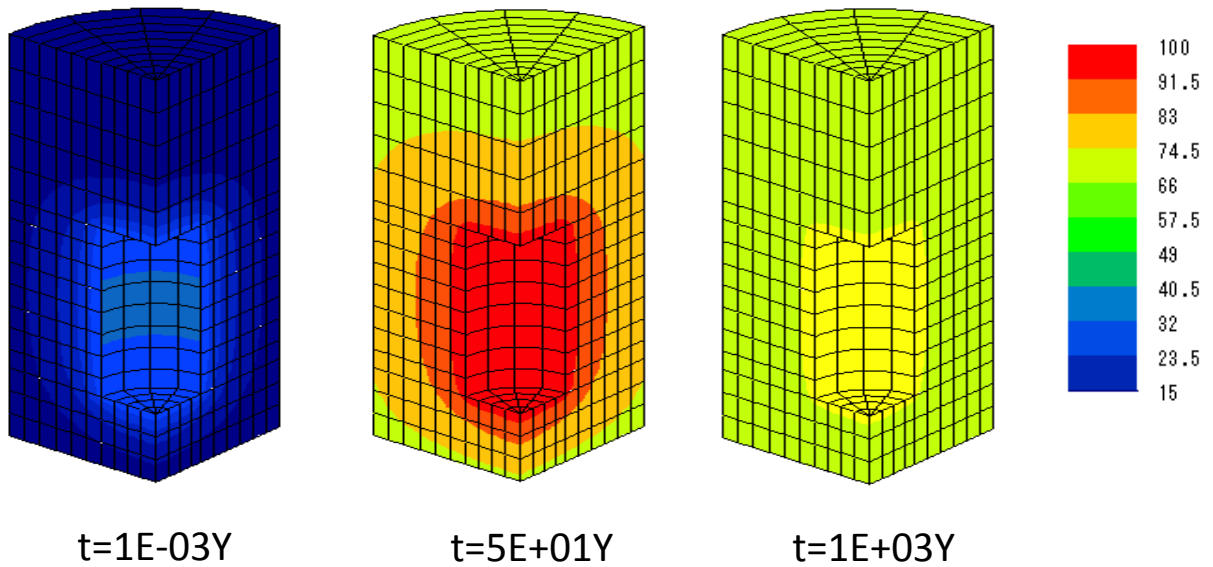


図 3.3-59 緩衝材内温度分布の時間変化（豎置）

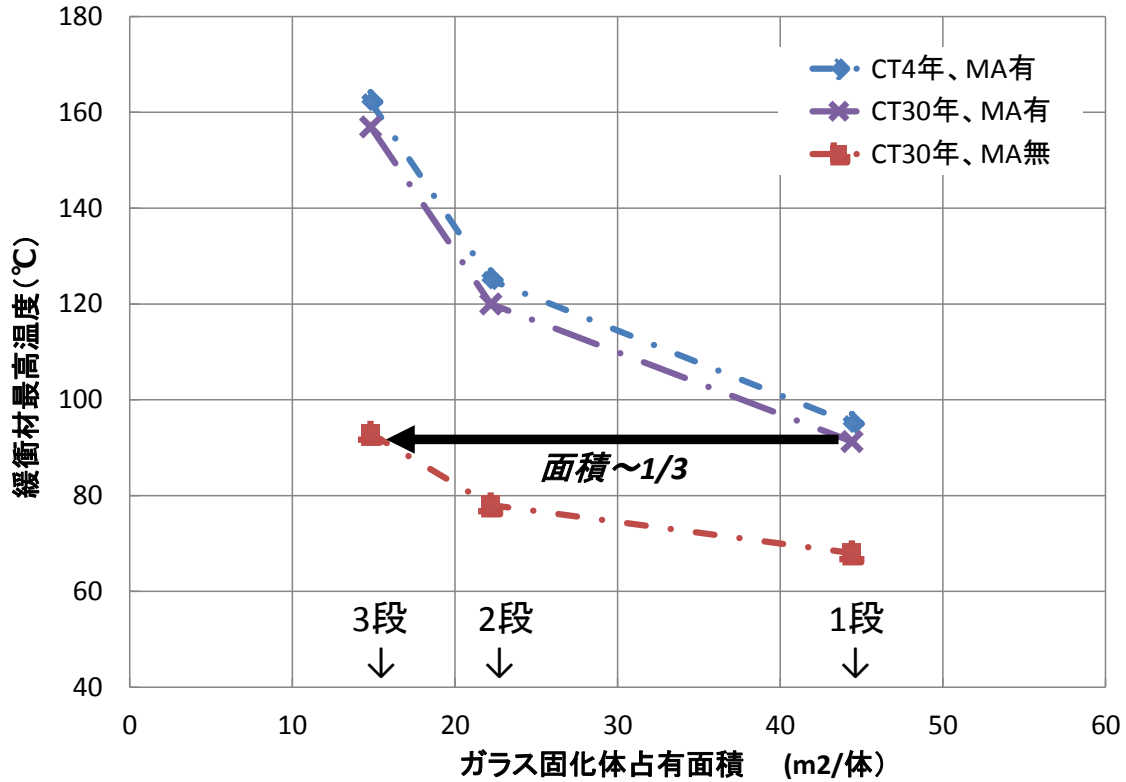


図 3.3-60 ガラス固化体占有面積に対する緩衝材最高温度（豎置）

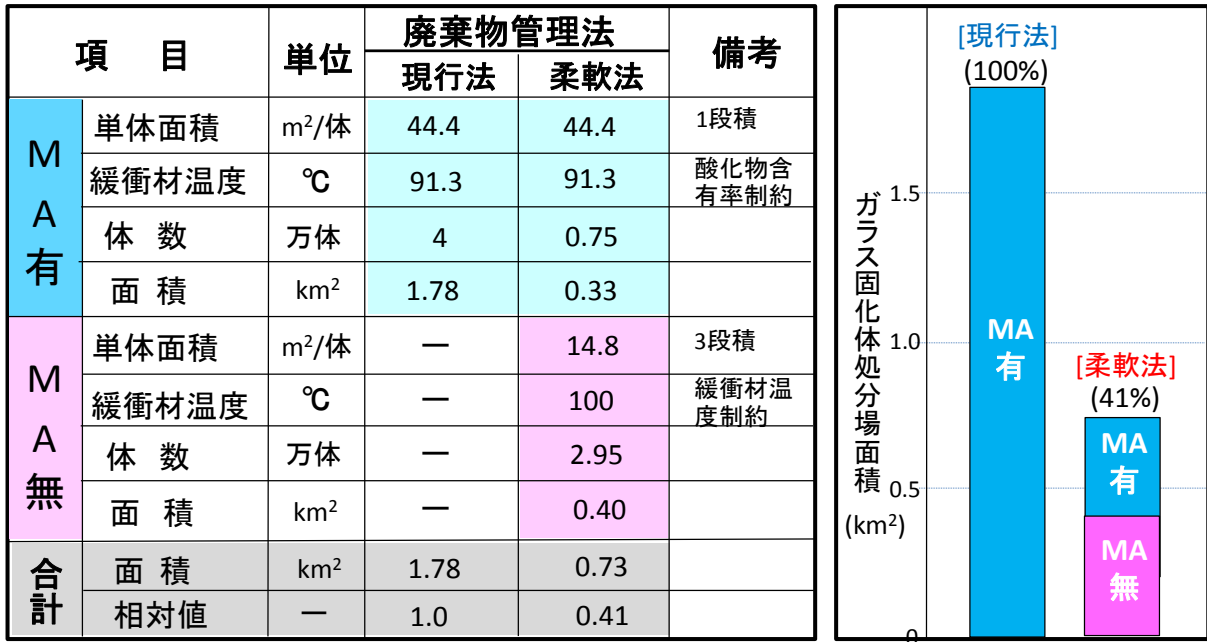


図 3.3-61 廃棄物管理法による処分場面積の比較（豎置）

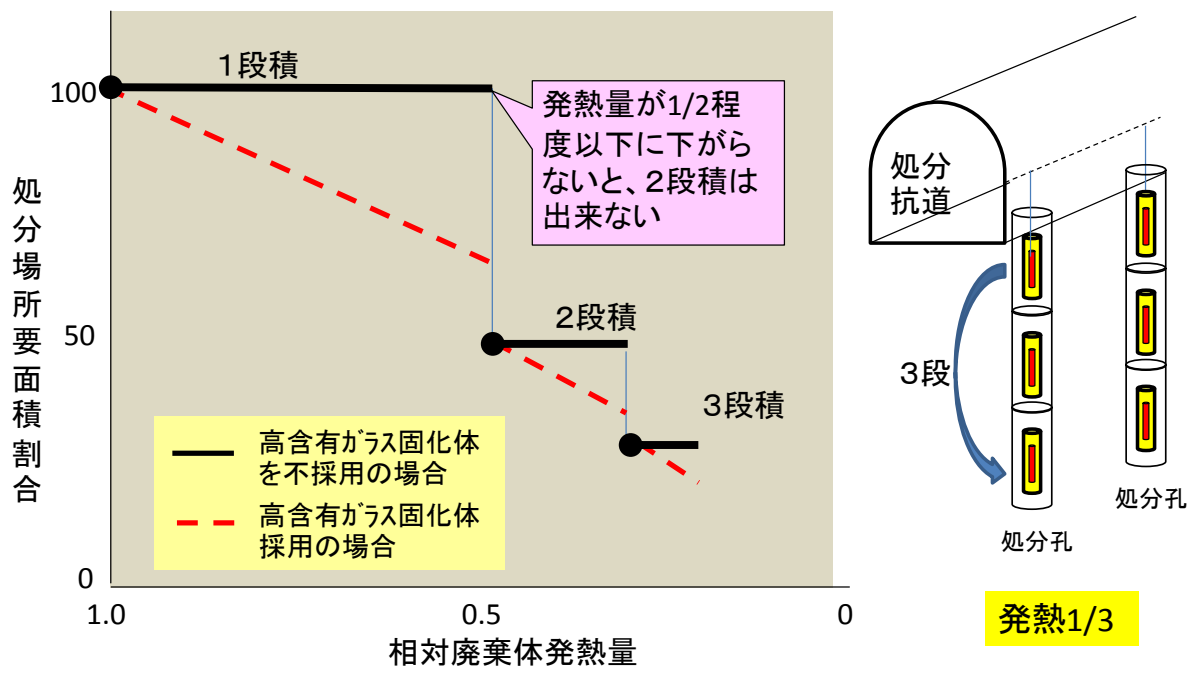


図 3.3-62 高含有ガラス固化体の効果（豎置）

(3) 柔軟な廃棄物管理法の処分場面積低減効果のパラメータ感度評価

柔軟な廃棄物管理法の現行管理法に対する処分場面積低減効果は前提とする諸条件の変動により変化する可能性があるため、パラメータ感度解析を行なった。基準となる代表ケースとして横置方式の場合における処分場面積解析結果（ケースⅠ）は図 3.3-54 の通りである。変動パラメータは①軽水炉炉型の違い（PWR, BWR）②使用済燃料燃焼度の違い、③使用済燃料の再処理前冷却期間、④MA 分離変換技術開発期間である。表 3.3-7 に処分場面積感度解析のパラメータ変動範囲を示す。

処分場面積のパラメータ感度解析結果は以下の通りである。

① 軽水炉炉型（PWR, BWR）の違い（ケースⅡ）

炉型の違いにより処分場面積が影響を受けるのはガラス固化体の発熱量の違いによるものである。図 3.3-63 に代表条件における炉型の PWR と BWR の場合のガラス固化体発熱量を示す。図 3.3-63 の比較より PWR と BWR のガラス固化体発熱量は殆ど一致していることが分る。PWR と BWR の高レベル廃棄物の核種毎重量は、図 3.3-24 のアクチノイド核種及び図 3.3-25 の核分裂生成核種共に差異があるが、これらの核種の寄与の合計量であるガラス固化体全体の発熱量は差が小さくなっている。

以上より、PWR の処分場面積評価結果は軽水炉の代表ケースとして妥当と言える。

② 燃焼度の違い（ケースⅢ）

燃焼度の違いにより処分場面積が影響を受けるのはガラス固化体の発熱量の違いによるものである。図 3.3-64 に代表条件における燃焼度 45GWd/t を燃焼度 33GWd/t とした場合のガラス固化体発熱量の比較を示す。なお、燃焼度の違いによる MA 分離変換効果を見るため、核分裂生成核種（FP）の影響を考慮して、燃焼度 33GWd/t の発熱量は燃焼度の違いの補正として 45/33 を乗じている。図 3.3-64 において、MA 無しの発熱量は燃焼度によらずほぼ同じであるのに対して、MA ありの場合は 45GWd/t に比べ 33GWd/t の方が発熱量は高い。これは 33GWd/t の場合には MA の寄与が大きいことを意味している。この結果、MA 分離変換による発熱量の低下は 45GWd/t に比べ 33GWd/t の方が大きいことが分る。

以上より、本研究開発において、MA 分離変換効果の処分場面積の評価条件として 45GWd/t としていることは効果を控えめに評価していることになり、軽水炉の代表ケースとして妥当と言える。

③ 再処理前冷却期間の違い（ケースⅣ）

図 3.3-65 に現行管理法と柔軟管理法において再処理前冷却期間を変化させた場合した場合の処分場面積比を示す。従来管理法のガラス固化体は MA 及び FP を含有しているが、再処理前冷却期間により MA の増加と FP の減少の競合関係にあり、ガラス固化体全体の発熱量は大きく変化しないため処分場面積の変化は小さい。一方、柔軟な廃棄物管理法の場合は MA を含有しないため、ガラス固化体の発熱量は再処理前冷却期間の増加に伴い FP 発熱量の低下に従い小さくなる。なお、FP 発熱量な主たる寄与は Cs-137 と Sr-90 であるがいずれも半減期が約 30 年であり、再処理前冷却期間が 30 年程度を過ぎるとその効果は小さくなる。

④ MA 分離変換技術開発期間の違い（ケースⅤ）

図 3.3-66 に現行管理法と柔軟管理法において MA 分離変換技術の開発期間を変化させた場合した場合の処分場面積比を示す。同図において炉型は PWR, 45GWd/t, 再処理前冷却期間は 30

年である。MA 分離変換技術の開発期間を変化させた場合した場合には MA 分離ガラス固化体及び MA 非分離ガラス固化体の占有面積は変わらないが、その体数が変わることにより処分場全体の面積が変化する。

柔軟な廃棄物管理法の場合には MA 分離変換技術の実用化時期が 40 年より早まっても全てのガラス固化体の MA は分離されるので実用化時期にかかわらず一定の低い値となる。これに対して、現行管理法の場合は MA 分離変換技術の実用化時期が早まれば、それに応じて MA 分離が適用されるので処分場面積は小さくなる。この結果、MA 分離変換技術の実用化時期が早まる場合には柔軟な廃棄物管理法と現行管理法の処分場面積低減効果の差は小さくなるが、柔軟な廃棄物管理法の優位性は変わらず、その有効性は高い。

⑤ 柔軟な廃棄物管理法導入時期の影響（ケースVI）

柔軟な廃棄物管理法は再処理開始後 10 年程度で導入可能と考えられるが、不確定性があるため 5～15 年の間で変動した場合を検討した。図 3.3-67 に柔軟な廃棄物管理法の開発期間に対する従来管理法と柔軟な管理法の処分場面積比の評価結果を示す。図 3.3-67 より従来管理法の処分場面積は柔軟な管理法の開発期間に関係しないため処分場面積は一定であるが、柔軟な管理法の場合は MA 分離変換技術の適用される廃棄物量が反比例して減るため、ほぼ柔軟な管理法の開発期間に比例して処分場面積は比例して増加する。この結果、例えば、柔軟な管理法の導入が 5 年に早まった場合には処分場面積は約 66%低減するのに対して、15 年に遅れた場合には約 50%となる。このように柔軟な廃棄物管理法の開発期間はその有効性に大きく影響するが、それでも 15 年程度までに導入されれば全体として処分場面積の低減効果は大きく十分な意義があると言える。

以上のように、柔軟な廃棄物管理法の処分場面積効果は種々の評価パラメータを変動させて感度評価した結果、その環境負荷低減効果は有効であることが分った。なお、柔軟な廃棄物管理法の導入時期に関しては、潜在的有害度低減の場合と同様に、直接、処分場面積低減効果に影響するため、できるだけ早期の導入が望ましく、早期の技術開発が重要である。

表 3.3-7 処分場面積感度解析のパラメータ変動範囲

項目	単位	ケースⅠ	ケースⅡ	ケースⅢ	ケースⅣ	ケースⅤ	ケースⅥ
		基準	炉型	燃焼度	再処理前冷却期間	MA分離変換開発期間	柔軟な管理法導入時期
炉型	—	PWR	BWR	PWR	PWR	PWR	PWR
燃焼度	GWd/t	45	45	33	45	45	45
再処理前冷却期間	年	30	30	30	4~40	30	30
MA分離変換開発期間	年	40	40	40	40	20~50	40
柔軟な管理法導入時期	年	10	10	10	10	10	5~15

炉型変更ケース

①炉型: **BWR**

②燃焼度: 45GWd/t

③再処理前冷却期間: 30年

④MA分離変換技術開発: 40年

⑤廃棄物顆粒化技術開発: 10年

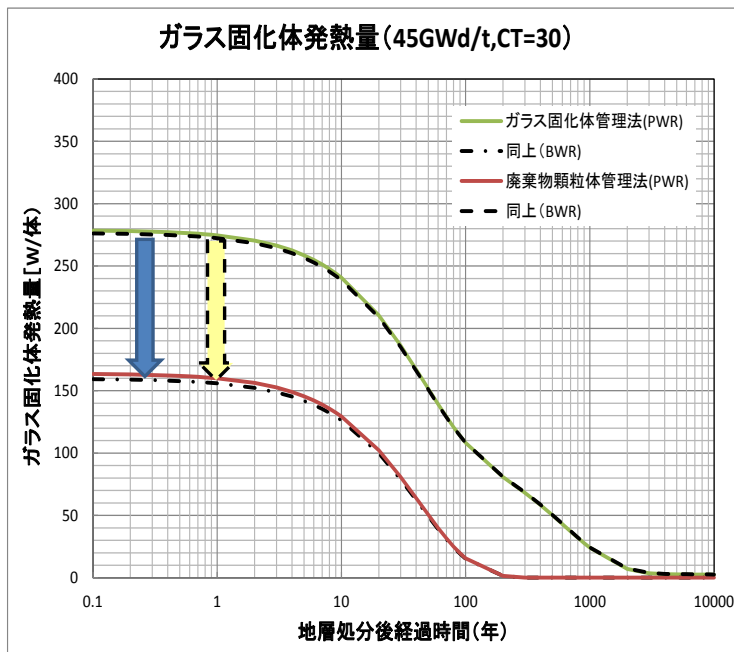


図 3.3-63 炉型の違いによるガラス固化体発熱量の影響

燃焼度変更ケース

①炉型: PWR
 ②燃焼度: 33GWd/t
 ③再処理前冷却期間: 30年
 ④MA分離変換技術開発: 40年
 ⑤廃棄物顆粒化技術開発: 10年

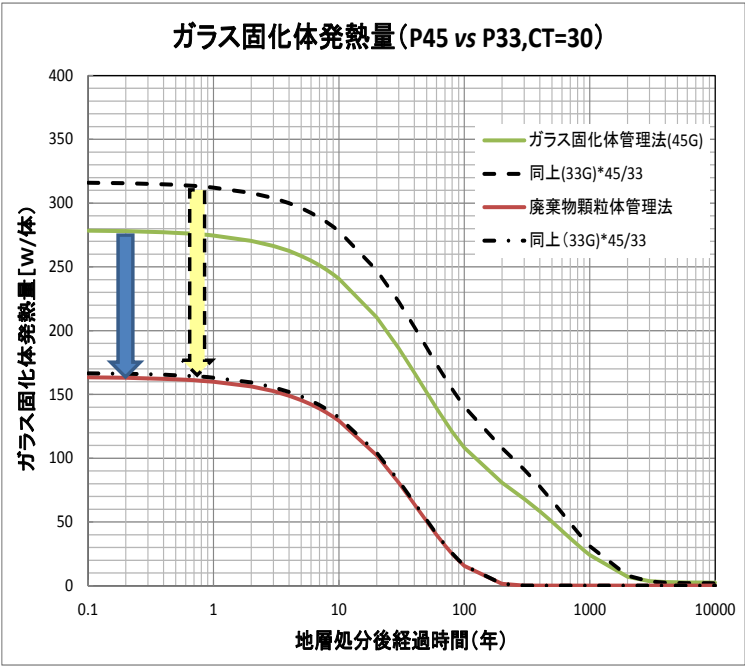


図 3.3-64 燃焼度の違いによるガラス固化体発熱量の影響

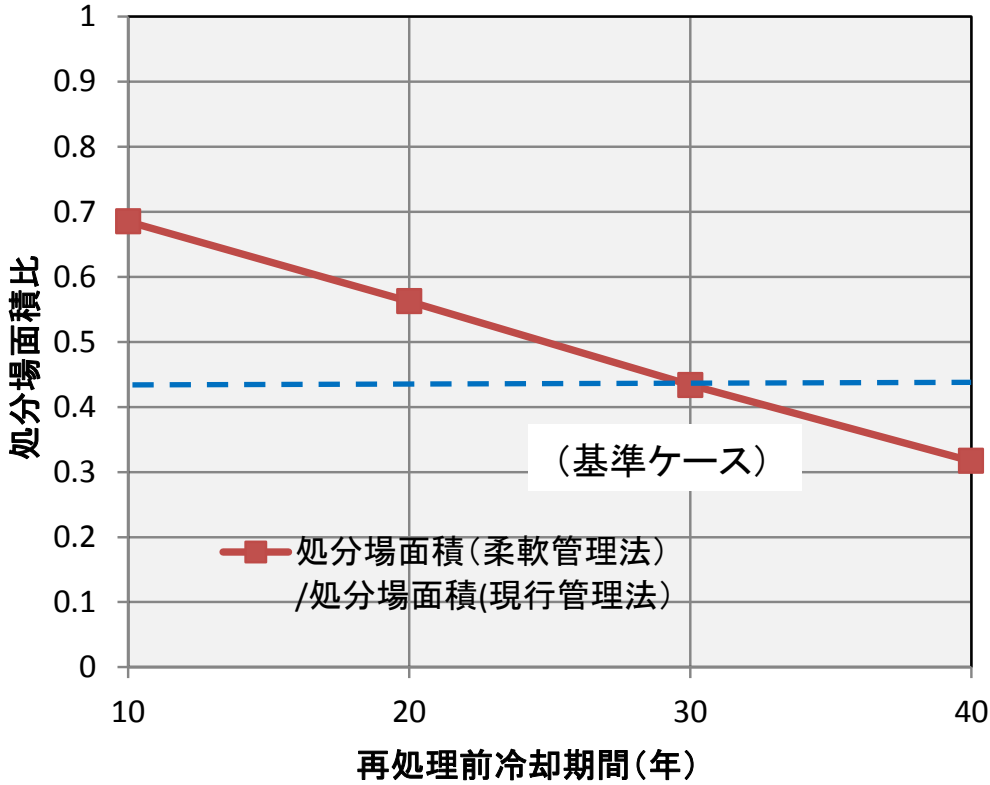


図 3.3-65 再処理前冷却期間の処分場面積低減効果

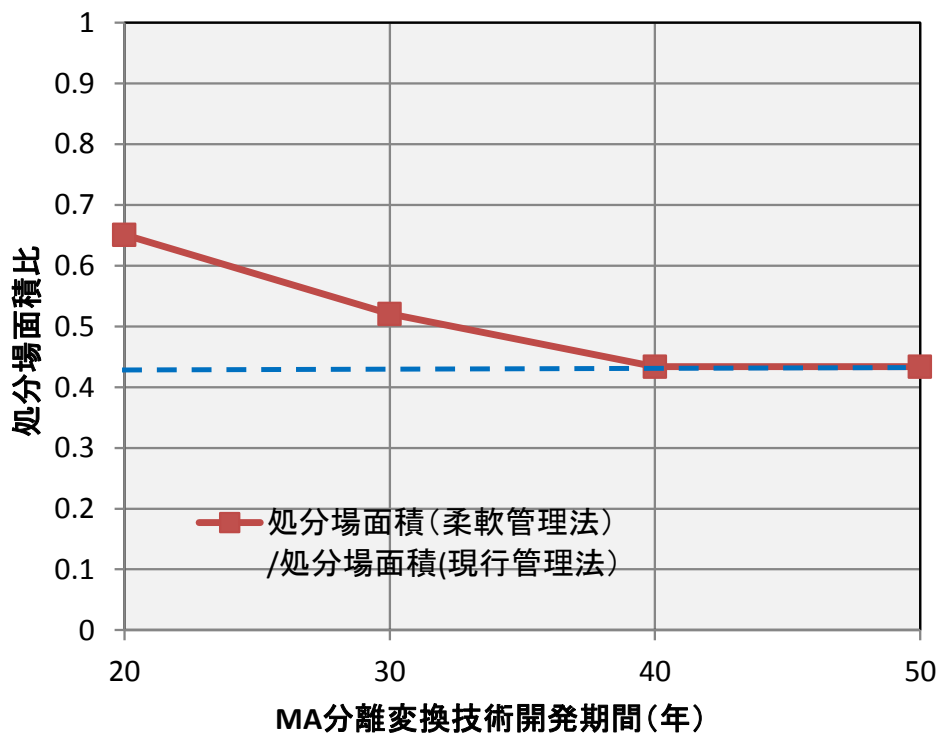


図 3.3-66 MA 分離変換技術開発期間の処分場面積低減効果

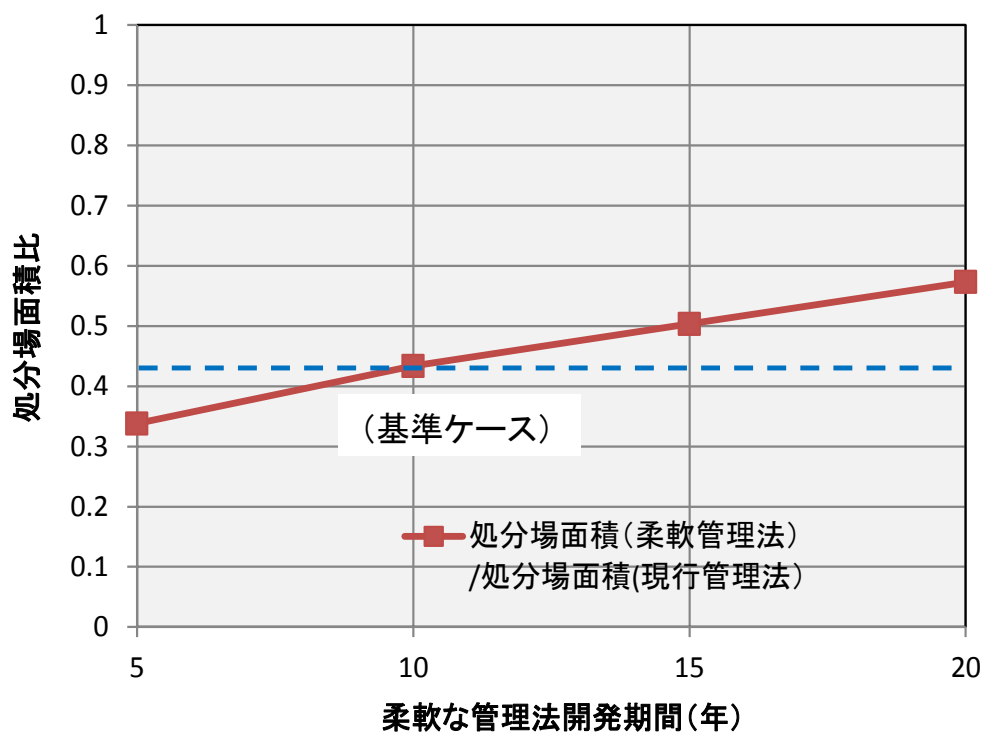


図 3.3-67 柔軟な廃棄物管理法開発期間の処分場面積低減効果

4. 研究推進

本業務では、研究開発の効率的かつ効果的な遂行を目的として、各研究項目間の密な連携と整合性をはかるため、各研究項目の担当責任者全員が集まって議論する会合を以下の様に計7回実施した。その結果、担当者間の十分な情報共有がはかれ、研究開発を効率的かつ効果的に遂行することができた。

(1) 第1回会合

日時 2013年10月25日(金)、15:00~18:00

場所 (株)日立製作所日立事業所応接5号

出席者 稲垣、有馬(九大)、佐藤(福島高専)、深澤(日立GE)、矢澤、渡邊、浅野(日立パワー)、山下(泰榮エンジ)、

主な議事 ①全体計画の確認

②各研究の内容と計画の確認

(2) 第2回会合

日時 2014年1月10日(金)、15:00~18:30

場所 九州大学伊都キャンパス W2号館 931会議室

出席者 稲垣、有馬(九大)、佐藤(福島高専)、深澤(日立GE)、山下(泰榮エンジ)

主な議事 ①全体スケジュールの確認

②各研究の進捗状況の確認

- ・高レベル廃液組成の調査結果について
- ・仏ラアーク再処理工場のガラス固化施設における高レベル硝酸廃液の仮焼プロセスの調査結果の確認と顆粒化プロセスへの適用について
- ・燃料製造に用いられるマイクロ波加熱脱硝技術の顆粒化プロセスへの適用について
- ・潜在的有害度及び処分場占有面積の解析入力データ作成状況について

(3) 第3回会合

日時 2014年3月7日(金)、15:00~18:00

場所 九州大学伊都キャンパス W2号館 931会議室

出席者 稲垣、有馬(九大)、佐藤(福島高専)、深澤(日立GE)、浅野(日立パワー)、山下(泰榮エンジ)

主な議事 ①全体スケジュールとP0コメントの確認

②各研究の進捗状況の確認と成果のとりまとめ

- ・材料化学安定性評価の文献調査、分子動力学計算、基礎試験について
- ・高レベル廃液中のNaの取扱いについて
- ・熱流体解析による貯蔵設備の温度評価モデルについて
- ・報告書の全体構成について

(4) 第4回会合

日 時 2014年6月24日(火)、13:00～17:00

場 所 九州大学東京オフィス(有楽町)

出席者 稲垣、有馬(九大)、佐藤(福島高専)、深澤(日立GE)、山下(泰榮エンジ)

主な議事 ①全体スケジュールの確認

②各研究の内容と計画の確認

(5) 第5回会合

日 時 2014年9月24日(水)、10:00～14:30

場 所 九州大学博多駅オフィス

出席者 稲垣、有馬(九大)、佐藤(福島高専)、深澤(日立GE)、山下(泰榮エンジ)

主な議事 ①全体スケジュールの確認

②各研究の進捗状況の確認

- ・廃棄物顆粒体の材料化学的安定性について
- ・廃棄物顆粒体の熱伝導特性について
- ・廃棄物顆粒体の製造方法について
- ・潜在的有害度及び処分場占有面積の解析入力データ作成状況について

(6) 第6回会合

日 時 2014年12月17日(水)、10:00～14:30

場 所 九州大学博多駅オフィス

出席者 稲垣、有馬(九大)、佐藤(福島高専)、深澤、星野(日立GE)、山下(泰榮エンジ)、

主な議事 ①全体スケジュールの確認

②各研究の進捗状況の確認と成果のとりまとめ

- ・成果報告会(H27.1.16)の資料作成について
- ・報告書の全体構成について

(7) 第7回会合

日 時 2015年3月19日(木)、15:00～17:00

場 所 日立製作所日立事業所 本館2階応接5号

出席者 稲垣、有馬(九大)、佐藤(福島高専)、深澤(日立GE)、渡邊、浅野(日立パワー)、山下(泰榮エンジ)、

主な議事 ①2年間の公募研究の総括

②今後の展開について

5. 結言

本研究開発事業ではマイナーアクチニド分離変換技術の有効性を向上するためのための柔軟な廃棄物管理法のフィージビリティ・スタデーを行い、以下の成果が得られた。

(1) 柔軟な廃棄物管理システム開発

① 廃棄物管理システム概念設計

高レベル放射性廃液をロータリーキルン法により顆粒化処理し、廃棄物顆粒体を金属製キャニスターに充填して貯蔵する設備仕様を設定した。廃棄物の貯蔵形態は種々考えられるが、技術開発期間が少なく早期導入可能性を考慮して顆粒体を主案とし、貯蔵設備の減容を図る高密度顆粒体を副案とした。廃棄物顆粒体の貯蔵設備は再処理施設における自然循環空気冷却方式のガラス固化体貯蔵設備を共用するものとし、通風管内の構造仕様を変更することで対応するものとした。顆粒体貯蔵設備の仕様設定においては、廃液中の約半分を占める硝酸ナトリウム NaNO_3 の融点が高いことを考慮し、貯蔵期間中の廃棄物顆粒体最高温度が NaNO_3 の相移転点 275°C 以下となることを条件とした。その結果、ガラス固化体貯蔵設備の通風管に細径キャニスターを7本配置する設計とした。なお、貯蔵設備の容量はガラス固化体貯蔵設備とほぼ同程度となった。貯蔵設備の減容を図るため、 NaNO_3 の融点の低いことを活用して熔融固化による高密度顆粒体の可能性を検討し、今後試験等による開発課題とした。

② 廃棄物顆粒体製造技術選定

高レベル廃棄物溶液の乾燥・脱硝・顆粒化にはフランスのガラス固化プロセスで用いられる仮焼プロセスが適用可能と考えられ、今後、廃棄物顆粒化技術の実用化に向けロータリーキルンによる開発試験を行い、確証が必要である。処理温度として 200°C （乾燥）～ 600°C （脱硝）が想定されるが、揮発性核種の飛散や貯蔵後の廃液再生化の容易性から脱硝温度の低減を目指した開発試験が重要である。

また、フランスのガラス固化の場合と異なり、顆粒化プロセスとしては熱伝導率の観点から均一性が保たれる範囲でできるだけ大粒径顆粒体の製造が望ましく、ロータリーキルン内の粉碎棒の仕様・条件が重要である。また、次節2.(1)の基礎試験によれば、EDX分析の結果、粒ごとに元素の偏在のあることが示されたが、模擬廃液からNaを除いた場合には元素偏在は見られなかった。今後、これらについて、顆粒体製造技術に基づく試験により均一性の検証とその影響等について検討が必要である。

(2) 長期廃棄物顆粒体貯蔵の成立性評価

① 材料化学的安定性評価

模擬高レベル廃液を作製し、顆粒体化までの脱水・脱硝過程を確認する基礎試験を実施した。模擬高レベル廃液の組成としては既存の再処理設備における廃液組成を参考に、モル数で半分以上を占めるNaを含有し、FP及びアクチニド核種については非放射性または化学特性が類似する模擬元素で置換した。なお、将来の再処理を想定し、Naを含有しない模擬廃液についても基礎特性試験を実施した。

Naを含有する試験では脱水温度は 200°C 、脱硝温度は 600°C とした。SEM観察の結果、粒内に分離相を確認した。またXRD分析結果により、主要元素の内、Zr, Ce, Feは酸化物であるのに

対し Na, Cs, Nd は硝酸塩の状態であることが確認された。

模擬廃棄物顆粒体のTG/DTAによる熱分析を行った。分析結果より、加熱温度275℃近辺に吸熱ピークを示すことが観測され、NaNO₃の相転移または熔融に伴うものと判断された。本結果を踏まえ、廃棄物顆粒体の長期貯蔵時の材料化学的安定性確保のため、廃棄物顆粒体の貯蔵時の最高温度は異常事故時を含め275℃以下とするものとした。

② 貯蔵時事故安全性評価

「廃棄物管理システム概念設計」において設定された廃棄物顆粒体キャニスター7本配置の廃棄物顆粒体貯蔵設備について、顆粒体系の熱伝導率として、次節(3)に示す熱伝導率解析モデル(CPC)を用いて、3次元熱流動詳細温度過渡解析を実施した結果、通常時の顆粒体最高温度として185℃を得た。次に、顆粒体貯蔵に固有な異常事象シナリオとして、収納管の曲がりによる温度上昇や高充填率化による温度上昇を解析し、廃棄物顆粒体貯蔵時の異常事故時最高温度は約221℃と評価された。これらの結果、廃棄物顆粒体貯蔵時の材料化学安定性の制限である275℃を十分下回り、安全性は確保されることが確認された。

③ 廃棄物顆粒体熱伝導率の設定

廃棄物顆粒体の熱伝導率解析モデルとして既存の熱伝導率解析モデルの調査・検討から複合粒子回路(CPC)モデルを選定し、このモデルが模擬リサイクル原料(U, Pu, FP, MA)及び模擬FPフッ化物の熱伝導率試験結果を20%の精度で再現できることを確認した。一方、廃棄物顆粒体において半分以上を占めるNaNO₃は、文献調査の結果、NaNO₃の熱伝導率はFPフッ化物の熱伝導率に近い値であることが確認され、CPCモデルの廃棄物顆粒体への適用妥当性を確認した。

(3) 環境負荷低減効果の評価

① 潜在的有害度評価

直接処分、MA非分離、MA分離の各条件における潜在的有害度を解析評価した。次に、柔軟な廃棄物管理法の導入を再処理後10年として、処分後1000年時点における潜在的有害度を現行ガラス固化体管理法の場合と比較評価した。その結果、次のことが明らかになった。

- ・MA分離しない場合、ガラス固化体の潜在的有害度は直接処分に近いものになる。これは再処理前の冷却期間が30年を経ている使用済燃料では半減期14.4年のPu-241の70%以上がAm-241に変換し蓄積しているためである。

- ・MA分離変換した場合のガラス固化体の潜在的有害度は、MA分離変換しない場合に比較して、炉取出し後100年で1/10、1000年で1/100に低減する。この結果、MA分離変換した場合にはガラス固化体の潜在的有害度が天然ウラン鉱床レベルまで低下するのに要する期間が炉取出し後数百年程度となり、大幅に短縮される。

- ・廃棄物管理法の違いにより、MA分離変換技術の適用範囲が異なってくる。この結果、柔軟な廃棄物管理法を再処理開始後10年までに導入すれば、約80%の廃棄物の潜在的有害度は処分後1000年で1/100程度になり、環境負荷低減に大きく貢献できる。

③ 処分場占有面積評価

MA分離変換の有無による処分場面積の支配因子となるガラス固化体の発熱量を比較するとともに、処分場占有面積を評価した。その結果、次のことがわかった。

・高レベル廃棄物の発熱量は主に半減期の長い Am-241 と半減期が約 30 年の Cs-137 や Sr-90 の寄与であるが、再処理前冷却期間が 30 年程度の場合は Am-241 の寄与が大きく、地層処分後は核分裂生成核種 FP の寄与より大きい。このため、高レベル廃棄物の MA を分離できれば廃棄体の発熱量は 1/2 以下に低減し、地層処分場の占有面積を大きく削減できる。

・柔軟な廃棄物管理法を再処理開始後 10 年で導入すれば約 80% のガラス固化体の処分場占有面積を大幅低減し、MA 非分離のガラス固化体の処分場面積と合わせても処分場所要面積全体を約 43% に削減することができる。

以上の「柔軟な廃棄物管理法」のフィージビリティ・スタデーにより、高レベル廃棄物を顆粒化・貯蔵し、MA 分離変換技術をバックフィットすることができれば、MA 分離変換技術の有効性を格段に高め、大幅な廃棄物減容・有害度低減が可能であることを始めて明らかにした。また、廃棄物の顆粒化・貯蔵について、模擬廃液による基礎試験及び詳細熱伝導温度解析評価の結果、十分成立の見通しのあることを始めて明らかにした。

なお、柔軟な廃棄物管理法の実用化には、次のような課題のあることが分かった。

- 1) ロータリーキルンによる脱水⇒脱硝⇒粉碎を一環して行う顆粒体製造プロセスの開発試験
- 2) 模擬廃液を用いてロータリーキルンにより製造した顆粒体の熱伝導率等物性データ測定
- 3) 福島事故を踏まえ、廃棄物顆粒体貯蔵時の水没事象等重大事故等の安全性評価
- 4) 廃棄物顆粒体の高密度化等による貯蔵設備の減容
- 5) 将来再処理に向け NaNO_3 有/無の模擬廃棄物顆粒体の基礎物性試験データ拡充

柔軟な廃棄物管理法は“もんじゅ”等による廃棄物減容・有害度低減の技術開発成果を最大限に活用し、国の「エネルギー基本計画」の達成に大きく貢献することができると考えられるものであり、今後の廃棄物管理技術の有力な選択肢である。柔軟な廃棄物管理法は導入が早ければ早い程環境負荷低減効果が大きいため、今後、早期実用化に向けた確証試験等のプロジェクト開発に取り組むことが重要である。