

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

(受託者) 国立大学法人九州大学

(研究代表者) 稲垣八穂広 大学院工学研究院

(再委託先) 日立 GE ニュークリア・エナジー (株)、国立高等専門学校機構福島工業高等専門学校

(研究期間) 平成25年度～26年度

1. 研究開発の背景とねらい

国の「エネルギー基本計画」[1]によれば、放射性廃棄物の環境負荷低減は世界共通の重要な課題であり、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）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。特に MA の分離変換については、廃棄物の潜在的有害度を 1/10～1/1000 に減少させ、炉取出し後 100 年以降での効果が大きいことが示されており [2][3]、国内外各機関で鋭意研究開発が実施されている。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ことになる。ガラス固化体は貯蔵管理および地層処分における廃棄物閉じ込めに優れるが、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ないことから、環境負荷低減につながらないという課題がある。図 1 に現行廃棄物管理法の課題を示す。

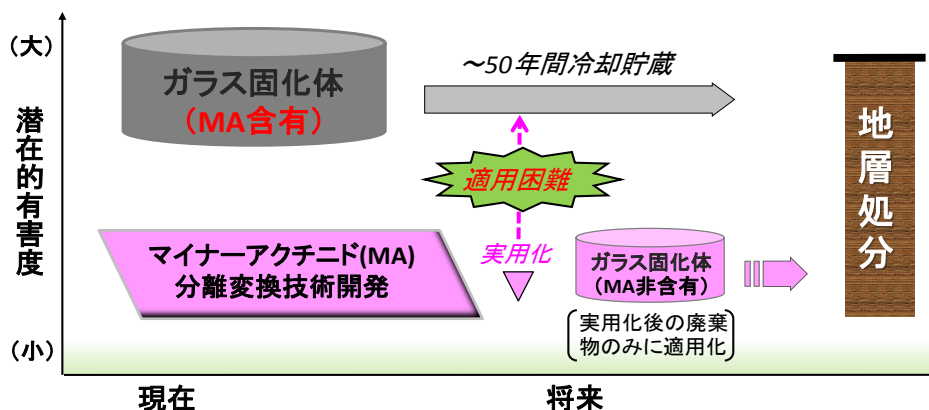


図 1 現行の廃棄物管理法の課題 (MA 分離変換技術の適用可能性が少ない)

以上のことより、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と考えられる。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高レベル廃液 (MA を含む) をすぐにガラス固化する代わりに、MA 分離変換実用化まで安定かつ再生可能な形態で冷却貯蔵し (最長～50 年)、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、そのフェージビリティ・スタディを行うものである。図 2 に柔軟な廃棄物管理法の概念図を示す。本研究では、この柔軟な廃棄物管理法の有効性を定量的かつ具体的に評価すると共に、実用化に必要な研究開発課題を整理する。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概念設計を行い、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

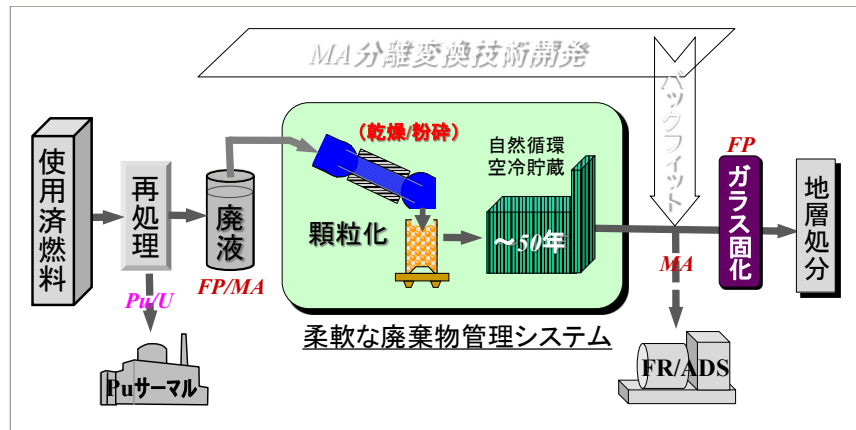


図2 柔軟な廃棄物管理法の概念図

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。

2. これまでの研究成果

2. 1 柔軟な廃棄物管理システムの開発

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[4]、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. 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

高レベル廃液組成に関するこれまでの報告[5]に基づいて模擬高レベル廃液を作製し(アクチニドはCeで模擬、FPは安定核種で模擬し組成を一部単純化)、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600-800℃とした。SEM/EDX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、主成分であるNaNO₃の相転移または溶融[6]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 NaNO_3 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度解析モデルの調査・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。

2. 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[7]の挙動を解析・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。
- ・柔軟な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廃棄物量が異なってくる。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%の廃棄物に MA 分離が適用でき、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の挙動を解析・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、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、地層処分後もその寄与が大きい。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・スタディにより、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定量的に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⇒粉砕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、将来の廃棄物減容・有害度低減の技術開発成果の活用に有効に寄与すると考えられ、今後の廃棄物管理法の有力な選択肢となる。また、その導入時期が早いほど環境負荷低減効果が大きく、今後、早期実用化に向けた確証試験等の開発に取り組むことが重要である。

3. 今後の展開

本研究開発事業では MA 分離変換技術の有効性を向上するため高レベル廃棄物を顆粒化・貯蔵する柔軟な廃棄物管理法のフィージビリティ・スタディを行なった。その結果、柔軟な廃棄物管理法は分離変換技術の有効性を向上させ、潜在的有害度、処分場面積、環境負荷の低減に有効である事を明らかにすると共に模擬廃液の顆粒化原理試験により成立の見通しのある事を確認した。

一方、柔軟な廃棄物管理法の実用化には、廃棄物顆粒体製造技術の開発、製造模擬顆粒体の熱伝導率等のデータに基づく成立性の確証等が必要であることが明らかになった。また、環境負荷低減効果は廃棄物顆粒化の導入時期に依存し、導入が速いほど効果が大きいことが分った。

以上を踏まえ、今後、柔軟な廃棄物管理法の早期導入に向け、①ロータリーキルン法による廃棄物顆粒体製造技術開発、②模擬廃棄物製造顆粒体の熱伝導率等特性データ取得、③長期貯蔵安定性評価、廃液化再生試験、アクチニド・マスバランス評価等を実施してその成立性を確証し、実証試験を経て、廃棄物の減容・有害度低減による一層の環境負荷低減に寄与する技術選択肢として資することが可能と考えられる。

4. 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)
- [4] 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.
- [5] 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.
- [6] 田川博章, 横浜国大環境研紀要 14 ; 41-57 (1987)
- [7] 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