



高レベル核廃棄物(HLW)の固化処理

柳 忠*

1. はじめに

使用済みの核燃料（以下燃料）の処理処分方式には所謂使い捨て（once through）と再利用（recycle）とがある。燃料資源の乏しい我国では輸入燃料をできる限り有効に利用するため、即ち、原子炉内でウランから転換して生じたプルトニウムを準国産の燃料として確保、活用するためにも、後者の場合に必要燃料サイクルの確立を目指すこととなる。

周知の如く、昨年7月17日、日米間で新原子力協定が発効した。所謂“包括同意方式”が導入され、燃料の90%近くを米国に依存している我国にとっては燃料サイクル事業を計画的に推し進めることのできる第1の環境が整ったわけである。

所で、燃料サイクルの“要”となるのが燃料の再処理であり、ここでウラン、プルトニウムが回収されると同時に超ウラン元素（TRU）を含む核分裂生成物（F.P.）の硝酸性液が排出される（ $5\text{m}^3/2.7 \times 10^8 \text{ kWh/t U}$ ）。これが高レベル核廃棄物（High Level Nuclear Wastes, HLW）と呼ばれるもので、その放射能強度は $\geq 10^6 \text{ Ci/m}^3$ であり、このHLWの安全処理処分技術の確立が今日、原子力の平和利用における最重要課題となってきた。

HLWの処理処分法における我国の基本方針は、国の責任において、発生者の経費負担のもとに、HLWを①安定な形態に固化した後、②30～50年間冷却のための貯蔵を行い、その後、③地下数100mよりも深くて安定な地層中に処分することにより、危険核種を長期間生物圏から隔離しようとするものである。因みにHLW

の危険度の時間依存性を図1¹⁾に示した。ここでの核種の有害度指数とは、その放射能を水中の規制濃度で除したものである。

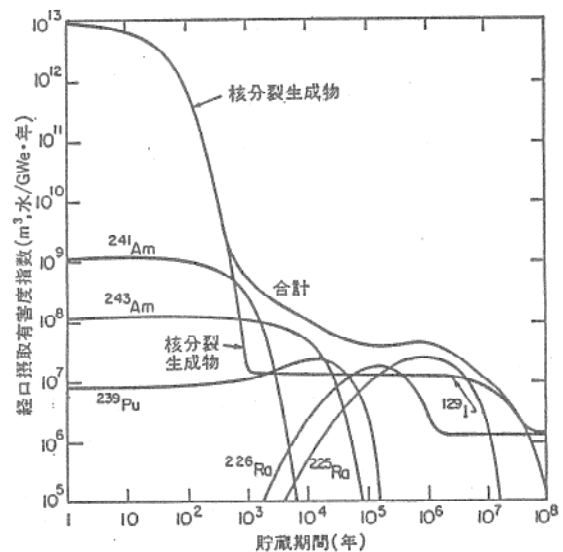


図1 ウラン燃料の再処理からの高レベル廃棄物の長期にわたる経口摂取有害度に主として寄与する核種（燃焼度は 33 MWd/kg 、ウランおよびプルトニウムの0.5%が廃棄物中に残存）

以下本稿では上記の①段階を概観し、そこでの我々の関心事を紹介したい。

2. HLW固化技術開発の現状

HLWの固化技術の開発もまた米国から始まる。米国では軍用および商（発電）用原子力施設からのHLWが各地の地下タンクに蓄えられており、タンクの腐蝕漏洩事故防止から、それらの固化処理を目的として1960年頃から各種の固化材の研究が始められた。代表的なものは、(a)ホウケイ酸系ガラス、(b)リン酸系ガラス、(c)多結晶セラミックス等である。約20年間の研究過程から、再処理工程の違いにより生ずるHLWの組成変化にあまり影響されず、さらに固化体製造工程でもこれまでのガラス工業技術での経験が応用できること等から(a)の材料（BSG）

*柳 忠 (Tadashi YANAGI), 大阪大学工学部原子力工学科, 助教授, 工学博士, 原子炉化学

を第一候補として現在、各国とも(a)の実用化のための試験を中心に進めている。

HLWの固化体の性能はその耐水性能によって評価される割合が大きい。この点から(a)の代替法として1980年頃から、低浸出性、長期安定性固化体として(c)セラミックスまたは(d)酸化チタンをベースとした人工岩石(シンロック)法が提案された。しかし良質なシンロック材の開発は未だ途上の感じである。

3. リン酸系固化体の開発

上記固化材のうち(b)については比較的早期に検討されながらその当時では高耐水性固化体を得られず、その後は見捨てられていた。最近(1983) ORNL(Oak Ridge Nat. Lab.)で改めて取り上げられ、新固化材として注目されるようになった。

A) リン酸系セラミック固化

セリウムその他の希土類およびトリウム(α , $T_{1/2}=1.4 \times 10^{10}y$)の鉱石である天然モナザイトがこれら元素のリン酸塩を主成分とすることから、それらの自然環境下での長期間の耐蝕、耐放射線性が注目され、同型固化材(M)の適用が試みられ、その低浸出性が確かめられた²⁾。この種の結晶性固化材の特性として、HLW成分元素を結晶構造の中に組込むため、熱力学的にも高い安定度が期待できる反面、組込み元素種に選択性がみられることである。即ち、本固化材はTRUの保持力には優れているが、アルカリ元素(Na)含量の高い商用HLWへ適用する場合にはアルカリ(Cs)、アルカリ土類(Sr)元素の保持性にやや難点がある。この点の対策として更にリン酸ジルコニウムを加えた、モナ

ザイトーリン酸ジルコニウム複合型固化体(M-ZP)が試みられ、満足すべき低浸出性が示された^{3),4)}。

B) リン酸系ガラス固化

A)の結晶性リン酸塩固化はⅢ、Ⅳ価元素核種の保持に特に優れているが、その固化体の製造工程にはHLWと原料との混合体の仮焼、プレス、高温($\geq 950^\circ\text{C}$)焼結操作を要し、単純操作でHLWの一括固化処理が可能なガラス法に比べて難がある。前述の如く、リン酸系ガラス固化材は耐水性で劣るが、その各種金属酸化物に対する高い溶解機能は認められていた。ORNLではメタリン酸鉛に約9 wt%の酸化第二鉄を添加することにより得られる鉛・鉄リン酸ガラス(LIPG)の耐水性が飛躍的(約 10^4 倍)に向上することを見出し、これをガラスフリットとして良好なHLWのガラス固化体の作製の可能性を示した⁵⁾。我国の商用HLWを模擬したHLWへの適用を試みた結果⁶⁾から、HLW中のジルコニウムがガラス固化体の結晶化を促し耐水性が著しく劣化することが判明した。これを抑制するためにはより高温($\geq 1100^\circ\text{C}$)での溶融を必要とし、その場合ガラスと溶融炉材との反応が無視できなくなる。できるだけ低い温度でガラス化することが優位となるため、ガラス化に先行してHLWのギ酸による脱硝処理でジルコニウムを沈澱除去(>95%)することによりこの問題を解決した。同時に酸化第二鉄量を若干下げることにより、950°C溶融で固化体へのHLWの負荷量を15 wt%以上にまで増加させることができた⁷⁾。表1にHLWのリン酸系固化体の浸出性に関する結果を例示した。現在当ガラス固化体の浸出挙動の他、ガラスとしての

表1 リン酸系固化体の浸出率

	結晶性固化体		ガラス固化体	
	M	M-ZP	LIPG	BSG
HLW負荷, wt%	14.0	19.0	15.0	30
密度, g/cm ³	4.2~4.5		4.8	2.6
バルク浸出率, g/cm ³ ·day	2.5E-7*	2.6E-7	3.1E-7	1.7E-5

* 2.5×10^{-7}

熱的性質を求め、その長期安定性を検討している。

4. 次世代のHLWの処理技術

HLW中にはその量に多少はあるものの、約35種のF.P., 5種のTRUおよび5種の分離試薬、鋼管類腐蝕物からの元素等45種におよぶ元素が含まれている。これらを一括してある種の材料で固化する場合、それらの固化体中での安定性には当然差違があり、またこの他にも放射能毒性の軽重やその持続時間にも違いがある。その上、F.P.の中には単離されれば別途利用可能なものもあり、見方によってはHLWは資源となり得る⁸⁾。これらのことから、我々の生活廃棄物のあるものが回収される他、可燃、不燃物等に分けられて処理処分されるように、HLWもまた処理処分の一層の効率化を図るためには効果的なグループ分け(群分離)される必要がある。原子力委員会の放射性廃棄物対策専門部会は昨年10月25日、「群分離・消滅処理技術研究開発長期計画」に関して、今後約10年を見通した計画をまとめている⁹⁾。概要は、①半減期が数10年で崩壊熱が問題となるもの(Cs, Sr群)、②超長半減期のもの(TRU群)、③将来有効利用できるもの(Tc, Ru, Rh, Pd群)およびそれ以外のもの(その他の元素群)の4群に分け、②のTRUは原子炉または加速器で再度照射して短半減期や安定核種に変換(消滅処理)し、最終(地中)処分の負担の軽減化を図るための技術開発の必要性を指摘したものである。我国では従来より原子力研究所で、溶媒抽出法とイオン交換法等を組合せた群分離法の研究が続けられている。我々もまた有用核種の回収と群分離に鉛、鉄、リンの化合物を適用し、かつ分離回収残渣をそのままリン酸ガラス固化材

として活用し得る技術の確立に努めている。

5. あとがき

自然界には廃棄物は存在しない。人間社会においてのみである。本年1月号の“Time”誌の表紙絵をみるまでもなく、いまや地球上は限無く汚染物質で覆われている。人類が原子力の恩恵を真に享受できるか否かの決め手もまた、核廃棄物の処理処分技術にある。

我々はHLWを危険な厄介者としてではなく資源として積極的に利用することができるのではないかと考え、これを“高レベル放射性物質”と呼ぶことにしている⁹⁾。

参 考 文 献

- 1) 清瀬; “原子力化学工学”, 第Ⅲ分冊(1984), 日刊工業
- 2) B. Sales, C., et al.; Nucl. Chem. Waste Manage. 4,(1983) 281.
- 3) T. Yanagi, et al.; ibid., 6, (1986) 127.
- 4) T. Yanagi, et al.; J. Nucl. Sci. Technol., 24, (1987) 404.
- 5) Sales, B.C., et al.; Science 226, (1984).
- 6) T. Yanagi, et al., J. Nucl. Sci. Technol., 25, (1988) 661.
- 7) T. Yanagi, et al., Submitted to 1989 Joint Intern. Waste Manage. Conference.
- 8) 辻, 柳, 他, “高レベル放射性廃棄物利用調査研究報告(I), (II)” (1984), (1987), 日本原子力産業会議, 関西原子力懇談会
- 9) “高レベル廃棄物の有用元素を資源化” 原子力工業 34,(1988), No. 12, p2, 日刊工業.