

8-1 分離・変換の意義

1. はじめに

原子力発電所で用いた後の核燃料は「使用済燃料」と呼ばれ、ウランやプルトニウムが核分裂することによって生じた核分裂生成物（FP）やウラン等が中性子を吸収して生成された超ウラン元素（TRU）等の様々な放射性物質を含んでいる。これらの核種の中には、半減期が千年を超えるような長寿命のものも含まれるために、使用済燃料を着実に処理処分し、これらの長寿命核種を長年にわたって確実に閉じ込めておくことは原子力利用の大きな課題となっている。本稿では、これらの長寿命核種をより短寿命の別の核種に変換（核変換）し、使用済燃料の処理処分におけるリスクを低減することの意義について概説する¹⁻³⁾。

2. 使用済燃料中の長寿命核種

使用済燃料に含まれる主な長寿命核種を第1図に示す。1tの使用済燃料の94%は元の燃料に存在していたウラン（U）の同位体（主に²³⁸U及び²³⁵U）であり、ウランが中性子を吸収して生じるプルトニウム（Pu）の同位体が約1%を占める。また、ネプツニウム（Np）、アメリシウム（Am）、キュリウム（Cm）といったマイナーアクチノイド（MA）が約0.1%含まれる。一方、核分裂反応の結果生じるFPは4%程度を占めるが、そのおよそ1割が長寿命核種（半減期30年程度以上）である。第1図には、それぞれの核種の「線量換算係数（経口摂取）」も示している。これは、単位放射能（単位：ベクレル）を人体に経口摂取した際の被ばく線量（単位：シーベルト）を示す数値で、その核種の人体への影響の度合いを表す指標である。特にPu及びMAの値が大きく、FPはほとんどが小さな値である。これは、PuやMAが発するα線は、FPが発するβ

線及びγ線よりも人体への影響が大きいことが原因である。我が国では、U及びPuは再処理によって回収し、エネルギー源として再び利用する方針であり、MAとFPが高レベル放射性廃棄物（HLW）として地層処分され、長年にわたる閉じ込めの対象となる。

3. 潜在的毒性の低減

HLWはガラス固化され、冷却のために30～50年間貯蔵された後に、地下300メートル以深の深い地層に埋設する地層処分することが考えられている。地層処分されたHLWが人間とその環境に影響をおよぼさないよう、人間や生活環境との距離を保つため、オーバーパックや緩衝材といった「人工バリア」と、安定した岩盤などの「天然バリア」とを組み合わせた「多重バリア」を構築する。HLWの地層処分の安全性に関する評価では、人工バリアから漏れ出たHLW中の元素が天然バリアによって阻害されつつ地下水によって生物圏に運ばれ、周辺住民等に及ぼす被ばく影響が検討されている。この「地下水シナリオ」では、⁷⁹Se（半減期 2.95×10^5 年）、¹³⁵Cs（半減期 2.3×10^6 年）、²³⁷Np（半減期 2.1×10^6 年）とその娘核種といった核種の影響が大きい。一方、例えば人間が誤って処分場にボーリングしてしまう「接近シナリオ」では、α崩壊による毒性の高いアクチノイド核種が大きな影響を及ぼす。この他、再処理工程で生じる¹²⁹IはHLWには含まれず、銀系吸着材を使用したヨウ素フィルターで回収後に廃棄することになるが、長寿命であること、溶解度が高いこと等から被ばく評価上、重要な核種である。

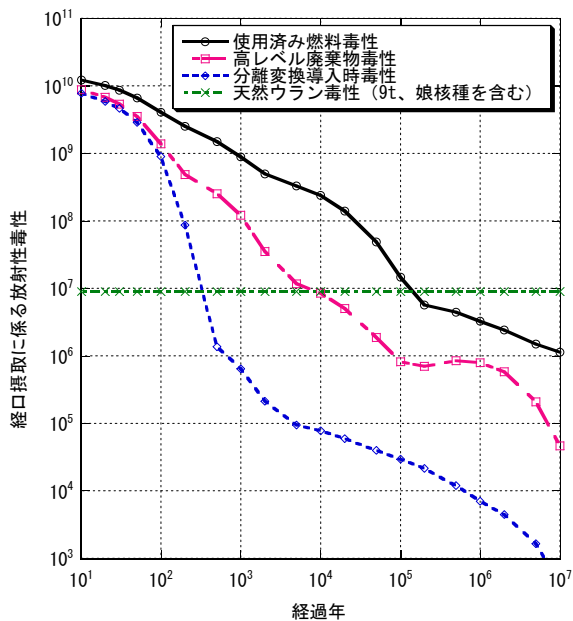
現在の処分場性能評価では、上記のいずれの核種についても「地下水シナリオ」に基づけば低い被ばく線量に抑えることが可能であるとしている。しかしながら、処

核種	半減期	核分裂生成物 (FP)	
		線量換算係数 (μSv/kBq)	含有量 (1トン当たり)
Se-79	29万5千年	2.9	6g
Sr-90	28.8年	28	0.6kg
Zr-93	153万年	1.1	1kg
Tc-99	21万1千年	0.64	1kg
Pd-107	650万年	0.037	0.3kg
Sn-126	10万年	4.7	30g
I-129	1,570万年	110	0.2kg
Cs-135	230万年	2.0	0.5kg
Cs-137	30.1年	13	1.5kg

核種	半減期	超ウラン元素 (TRU)	
		線量換算係数 (μSv/kBq)	含有量 (1トン当たり)
U-235	7億年	47	10kg
U-238	45億年	45	930kg
Pu-238	87.7年	230	0.3kg
Pu-239	2万4千年	250	6kg
Pu-240	6,564年	250	3kg
Pu-241	14.3年	4.8	1kg
Np-237	214万年	110	0.6kg
Am-241	432年	200	0.4kg
Am-243	7,370年	200	0.2kg
Cm-244	18.1年	120	60g

核種	半減期	マイナーアクチノイド (MA)	
		線量換算係数 (μSv/kBq)	含有量 (1トン当たり)
U-235	7億年	47	10kg
U-238	45億年	45	930kg
Pu-238	87.7年	230	0.3kg
Pu-239	2万4千年	250	6kg
Pu-240	6,564年	250	3kg
Pu-241	14.3年	4.8	1kg
Np-237	214万年	110	0.6kg
Am-241	432年	200	0.4kg
Am-243	7,370年	200	0.2kg
Cm-244	18.1年	120	60g

第1図 使用済燃料に含まれる長寿命核種（PWR4.5%濃縮燃料、燃焼度45GWd/t）

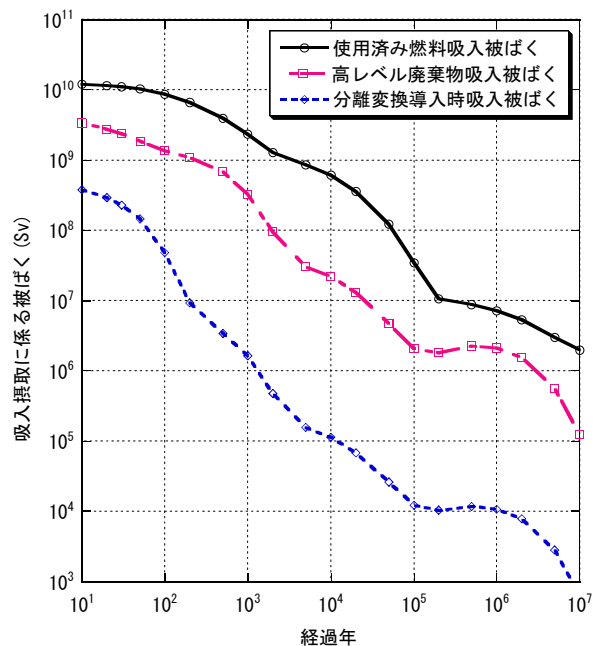


第2図 使用済燃料1tHM当りの経口摂取毒性の経時変化
 (条件：UO₂燃料PWR, 炉内滞在時間：5年, 燃焼度：
 45,000MWD/t, 再処理：99.5%のU及びPuを回収,
 分離変換：HLWから99.5%のMAを回収)

分による被ばく評価が数百万年にも及んでいることから、長寿命核種を別の核種に変換（核変換）することができれば、将来のリスクを現世代で確実に下げることが可能になると考えられる。

核変換の対象は、潜在的な毒性が高く、合理的な核変換が可能なMAが第一に考えられている。それらに次いで、¹²⁹I及び⁹⁹Tc（半減期2.1×10⁵年）は中性子捕獲反応断面積が比較的大きく中性子捕獲反応によってそれぞれ安定なキセノンおよびルテニウムに変換することができるので、原理的に核変換が可能であると考えられている。しかし、実際に核変換するには多くの余剰中性子を必要とすることや高速中性子システムでは中性子エネルギーを下げる必要があることから、コストや技術的観点からその実現性を検討しなくてはならない状況である。その他の核種、¹³⁵Cs等は、有効な核変換には同位体分離が必要であること等から、現在ではあまり核変換対象として考えられていない。

MAの核変換の効果は、放射性廃棄物の潜在的毒性（内包する放射能に各核種の線量換算係数を乗じ、ベクレル単位をシーベルト単位に変換した値の総和）を、使用済燃料、再処理後のHLW及び核変換技術によりHLWからMAを取り除いた廃棄物について比較することで示すことができる（第2図）。第2図には、濃縮ウラン燃料の原料とした天然ウラン9tの潜在的毒性を比較の対象として示している。使用済燃料の潜在的毒性が、原料とした天然ウランの潜在的毒性を下回るまでに要する時間はおよそ10万年であるが、再処理からのHLWは約1万年、核変換



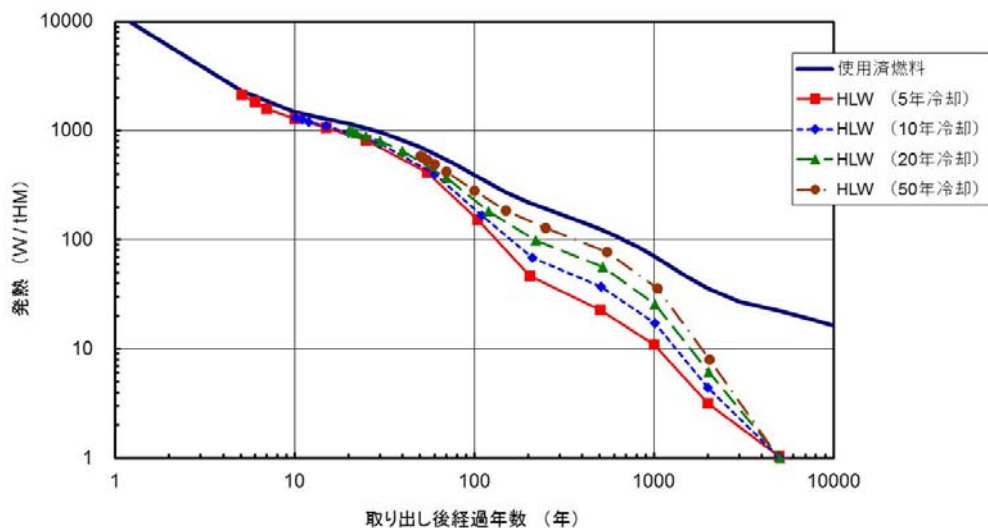
第3図 使用済燃料1tHM当りの吸入摂取毒性の経時変化
 (条件：第2図と同様)

後は数百年まで短縮できる。また、第3図に示した吸入摂取毒性は「接近シナリオ」で重要であるが、核変換の効果がより顕著に表れている。

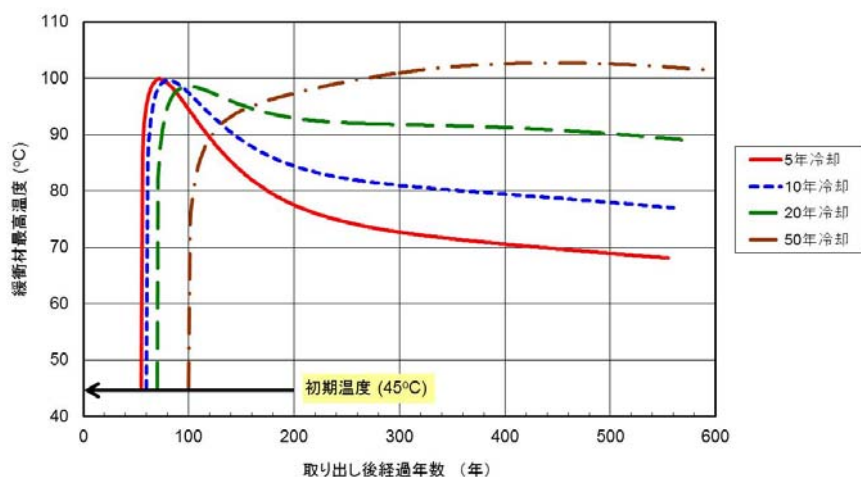
核変換を行わずに、分離技術を適用するだけでも被ばく影響の低減が可能である。例えば、Csは発熱性FPの代表格であるが、同時に長寿命で地下水への溶解度の高い¹³⁵Csを含むため、最も重要な元素の1つである。これをHLWから分離し、長期にわたって安定で熱にも強い焼成体とすることで、短期的には処分場への熱影響制限を緩和し、長期的には焼成体の低い浸出率によって被ばくを抑制することが可能となる。

4. 廃棄体定置面積の削減

我が国では、HLWはガラス固化して地下300メートル以深の安定地層に廃棄する。地層処分場の設計においては、廃棄坑道壁面の温度制限や坑道間の温度制限を考慮する必要がある。HLWの発熱は、再処理後約50年程度は、FP特に⁹⁰Sr（半減期28.8年）及び¹³⁷Cs（半減期30.1年）が支配的な核種であるが、その後はMAである²⁴¹Am（半減期432年）が1500年後頃までの支配的な核種である。HLWに含まれる²⁴¹Amの量は、使用済燃料を炉心から取り出した後、再処理までの冷却期間に大きく依存する。これは、冷却期間の間に²⁴¹Pu（半減期14.4年）がβ崩壊で²⁴¹Amに変化するためである。第4図は、原子炉から取出し後、再処理までの冷却期間を変化させた時のHLW（使用済燃料の重金属1tあたり）の発熱を示す。我が国では、HLWは製造後50年程度で処分することとしているために、処分



第4図 HLW（使用済燃料の重金属1tあたり）の発熱の経時変化（条件：UO₂燃料PWR、炉内滞在時間：3年、燃焼度：43,000MWD/t、再処理：99.5%のU及びPuを回収）



第5図 ガラス固化体を処分した際の緩衝材最高温度の経時変化（条件：UO₂燃料PWR、炉内滞在時間：3年、燃焼度：43,000MWD/t、再処理：99.5%のU及びPuを回収、使用済燃料の重金属1t当り1.12本のガラス固化体が発生と仮定）

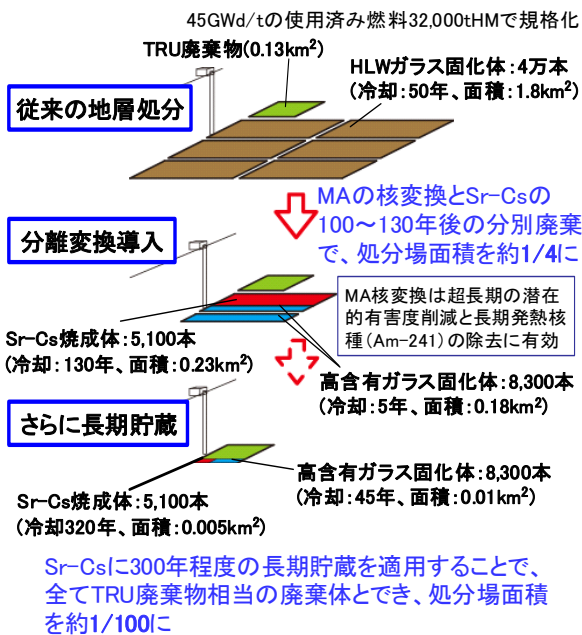
場における廃棄体定置面積を決める因子は、土木工学的な空洞の安定性と、廃棄体周りに配置される緩衝材（ベントナイト）の最高温度の制限（100℃）となる。図から分かるように、再処理によってPuが除去されるため、²⁴¹Amの蓄積量が冷却期間によって異なり、取り出し後100～2000年で大きな差異が生じている。

第5図は、緩衝材最高温度の経時変化を第4図の4種類の冷却期間について示したものである。冷却期間によらず、再処理後50年で処分するものとした。冷却期間が長くなるに従い、200年以降の緩衝材最高温度が高くなっていることが分かる。一般に、我が国の処分方法では、30年程度の半減期を持つ発熱性FP（⁹⁰Sr及び¹³⁷Cs）による処分後20年程度での緩衝材最高温度が最も厳しい条件を与え

るが、MAである²⁴¹Amの存在も長期的には重要であることが分かる。即ち、冷却期間を長期化してFPの減衰を待つだけでは処分場の面積低減効果に限界があり、燃料取り出し後の速やかな再処理とMAの核変換を組み合わせることが必要であることが分かる。

日本原子力研究開発機構では、加速器駆動システム（ADS）によるMA核変換と組み合わせ、発熱性FPを分離後に焼成体として固化後、約100～300年冷却してから廃棄する方法を検討してきている。分離変換により地層処分した場合の廃棄体定置面積の低減効果の例として、第6図には、ADSによるMA核変換と発熱性FPの分離・貯蔵を組み合わせした場合の廃棄体定置面積の削減効果の検討例を示す。現行ガラス固化体では六ヶ所工場相

当の800t/年の処理を40年間続けた際に定置面積約1.8km²が必要となるが、ADSによるMA核変換を行なうことで廃棄体定置面積を約25%程度まで削減できる。ADSサイクル（乾式処理）から生じる廃棄物は量が少ないので廃棄体定置面積にはほとんど影響しない。発熱性FPの分離・貯蔵を行なった場合には、分離後の貯蔵期間で必要な定置面積は異なるが、300年貯蔵後に高密度廃棄が可能となり、約1/100程度まで削減できる可能性があることを示している。



日本原子力研究開発機構 辻本和文
 (平成27年10月28日)

参考文献

- 1) 「総説 分離変換工学」日本原子力学会（2004年2月）
- 2) 西原健司、大井川宏之、「アクチノイド核種のマスバランス解析に基づく群分離・核変換シナリオと効果の検討」、JAEA-Research、2006-081 (2006)
- 3) 「日本原子力研究開発機構における長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」JAEA-Review、2008-074 (2008)

第6図 分離変換技術導入による廃棄体定置面積の低減効果

今後の原子力利用のあり方にかかわらず、廃棄物処分は解決すべき課題である。現在考えられている地層処分ですら十分に安全な処分が可能と考えられているが、我が国を含めて実際の処分地確保はフィンランドやスウェーデンなどの一部の国を除いて進んでいない。

これまで示したように、使用済燃料を再処理し、さらにHLWからMAを回収して核変換して、使用済燃料に含まれる長寿命の核種を短寿命化することで、廃棄物の人体への影響を大きく減じることができ、放射性廃棄物処分の負担の軽減に役立つ可能性がある。なお、MAを核変換しても長寿命のFPは残っており、現段階では地層処分はなお必要である。分離変換技術は、地層処分技術の代替技術としてではなく、地層処分の負担軽減を目指した技術として、世界的にも活発に研究開発が進められている。特に、国土が狭隘で地震や火山活動の活発な我が国においては、分離変換技術の研究開発を他国に先駆けて進める必要性が高い。