

Reduction of Environmental Impact from Geologic Disposal by Application of Reductive Extraction

A report submitted to Central Research Institute for Electric
Power Industries (CRIEPI)

Joonhong Ahn and Daisuke Kawasaki

Department of Nuclear Engineering
University of California, Berkeley

August 31, 2003

The authors invite comments and would appreciate
being notified of any errors in the report.

Joonhong Ahn
Department of Nuclear Engineering
University of California
Berkeley, CA 94720
USA

ahn@nuc.berkeley.edu

電解還元プロセスと地層処分 環境負荷抑制

プロセス損失の上限値の探索

カリフォルニア大学バークレー校原子力工学科
安俊弘、川崎大介

2003年8月31日

目次

1	序論	3
2	方法	3
2.1	アウトライン	3
2.2	H12 処分場とその性能・環境負荷指標	4
2.2.1	処分場条件	4
2.2.2	性能決定主要核種と指標	4
2.3	電解還元処理法廃棄物	7
2.3.1	H12 処分場収容量に等価なソーダライト廃棄体の本数について	7
2.3.2	廃棄塩中のFP分率	8
2.4	環境負荷	9
3	結果と考察	12
3.1	結果	12
3.2	解析上の仮定、簡単化と限界	15
4	結論	16
5	参考文献	17

電解還元プロセスと地層処分環境負荷抑制

プロセス損失の上限値の探索

1 序論

現在、電力中央研究所（以下、電中研）では、軽水炉燃料の電解還元処理法の開発を行っている。これは、現行の軽水炉サイクルから経済性、環境負荷抑制、核不拡散抵抗性などに優れた金属燃料+乾式リサイクルシステムへの円滑な移行を実現する上で有効と考えられている。

電解還元処理法とは酸化物燃料が高温で導電性を有することを利用して直接陰極に用い、熔融塩（塩化カルシウム）を導電性溶媒に、酸素イオンを電荷担体に用いて電解することで、酸化物燃料から酸素および核分裂生成物(FP)を除去する技術である。電解の過程でアルカリやアルカリ土類などの FP が塩中に溶解し除染される一方、貴金属、遷移金属、希土類 FP は U や Pu、MA など燃料成分とともに金属に還元され回収される。熔融塩中に溶解し除染回収された廃棄物成分は、ソーダライトで固化し最終的には地層処分することが想定される。

本研究においては、従来の高レベル廃棄物地層処分¹がもたらす環境負荷を下回るようにするため、環境負荷を決定する主要核種の廃棄物への移行率の上限はどの程度か？に着目し、試算を行った。

2 方法

2.1 アウトライン

- (H12 処分場) H12 レポート[1]に記載されている高レベルガラス固化体地層処分のケースを対照例とする。このケースにおける環境負荷決定主要核種を確認する。処分場の設計仕様（埋設間隔、廃棄体総数、埋設レイアウト、温度・発熱量上限、固化体浸出率、固化体に含まれる主要核種の初期インベントリ、核種移行パラメタ）を確認する。H12 処分場に埋設される全廃棄体に相当する実発電量を求める。
- (電解還元処理法廃棄物) 電解還元処理法のプロセスフロー解析により求められた廃棄物組成とスルーputをもとに、H12 処分場と同じ発電量に伴い発生する廃棄体 1 体の組成と廃棄体総数を求める。
- (環境負荷) 前段で得られた処分条件を基に、環境負荷を求める。廃棄体のスペックによって環境負荷は変化する。ここでは、MA のプロセス損失、ソーダライト固化体の浸出時間を変数として、その影響を調べる。

以下、それぞれのステップとその結果を詳説する。

¹湿式（Purex 法）再処理+ガラス固化により発生する。本レポートでは H12 レポート[1]で報告されているケースを対照例とする。

2.2 H12 処分場とその性能・環境負荷指標

2.2.1 処分場条件

JNC が 1999 年に公表したいわゆる H12 レポートでは、処分場の基本条件として、45 GWD/ton 燃焼度の使用済み燃料を再処理してガラス固化した高レベル廃棄物 4 万本を収容することが想定されている。この際、使用済み燃料 1 トン当たり発生するガラス固化体本数は 1.25 本と設定されている。これは、ガラス固化体の健全性を保つための温度条件、埋設後の周辺温度の制約条件などを考慮に入れて決定された値である。具体的には、

- ガラス固化体の寸法を、半径 22cm、高さ 108cm（ガラス固化体体積 150 リットル）とした場合、総発熱量を 2.33kW 以下とすること（発熱、温度制約条件）、
- 廃棄物成分（Purex 再処理段階で混入する Na も含める）がガラス固化体中に占める重量割合を 25%以下に抑えること（発熱、温度制約条件）、
- Mo 酸化物の含有量を全体の 2%以下に抑えること（固化体均質性維持からの条件）、
- ガラスフリットおよび廃棄物成分に含まれる Na の合計が 10%となるようにすること（浸出性維持からの条件）

の 4 点が主要な制約条件である。

本研究では固化体としてソーダライトを想定するので、第 3、4 点目の制約条件は直接該当しない。しかし、同様の条件が存在するかどうか今後検討する必要がある。第 1、2 点目の制約条件は処分場における固化体の埋設間隔、人工バリアなど構成、地下水流条件などにも依存する。もし、ソーダライト固化体にできる限りの廃棄物成分（発熱性）を含ませて高減容化を図ろうとすると、処分条件への影響は無視できない。ここでは、ソーダライト固化体を H12 処分場にそのまま持ち込めるようになるべく互換性を保ち、H12 処分場の仕様を用いて以下の評価を行うこととした。

ソーダライト固化体を処分する場合とガラス固化体処分を想定する H12 のケースを比較するため、まず同じ処分容量の条件のもとで環境負荷を試算する。処分容量は、それぞれの固化体が発生するもととなった実発電量に換算して表す。すなわち、使用済み燃料 1 トン当たり 1.25 本で 4 万本を収容するため、処分場全体で $40,000 \div 1.25 = 32,000$ トンの使用済み燃料相当のガラス固化体が処分される。燃焼度が 45GWD/ton であるので、処分場全体で $32,000 \times 45 = 144$ 万 GWD あるいは、3,900GW 年（熱出力）となる。変換効率を 33%と仮定するとおよそ 1,300GW 年の実発電量に相当する。

2.2.2 性能決定主要核種と指標

H12 レポートに示されている結果（図 1）を見ると、長期の公衆への被曝線量率を決定する主要各種は Cs-135 と Np-237（とその娘核種）である。100 万年近辺の最大ピークが Cs-135 で形成され、1000 万年近辺の第 2 のピークが Th-229 で形成されていることが見て取れる。Th-229 の親である Np-237 がほぼ同じ時期にピークを迎えていることから、実際には Np-237 が経口摂取されるポイントまで輸送され、それに伴ってほぼ放射平衡を保って同伴する Th-229 が同時に経口摂取されていることによるものと推定できる。したがって、処分場の性能を観察するためには Cs-135 と Np-237 の両核種に着目していればよいことがわかる。

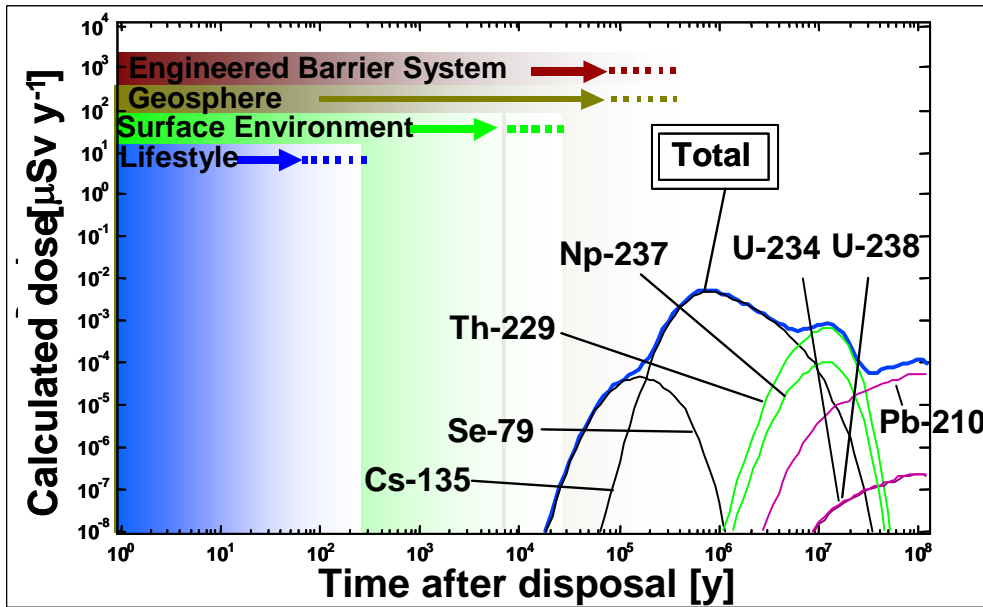


図1 : H12 レポートに示されたレファレンスケースの結果。 [2]

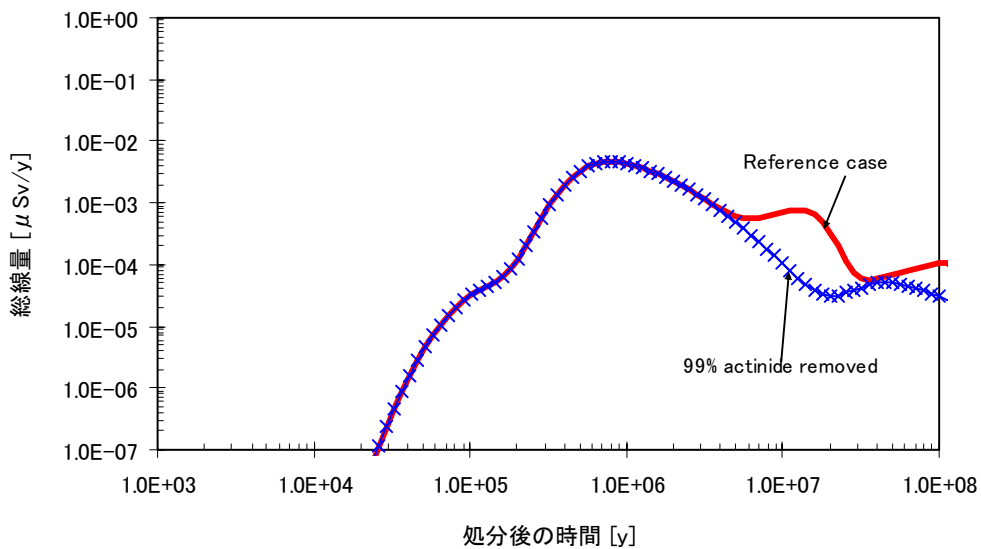


図2 : H12 レファレンスケースから 99% のアクチニドを除去して評価した結果との比較。

しかしながら、この被曝線量率という性能評価指標は、現実に存在する原子力施設の安全性を観る指標としては確立したものであるものの、特に地層処分場の評価に際しては保守的な仮定をするため得られる結果は評価条件の違いに対して鈍感である。図2は、図1と同じレファレンスケースに対して、他の条件は同じに保ったままアクチニドの固化体含有量をレファレンスの1%に減らしたケースを比べたものである。これをみると、Np-237+Th-229のピークは1桁ほど下がっているものの性能全体への影響はほとんどない。本研究の目的は電解還元処理法の地層処

分環境負荷への効果を観察することであるから、この指標では Np の量に鈍感であるため処理法の効果を十分に観察することができない。

そこで、本研究では、環境負荷指標を「処分場外部に放出されてそこに存在する放射性核種の経口摂取毒性の総和」と定義し、電解還元処理法の効果を観察することにする。この指標に利点は、(1) 被曝線量率のように生物圏までの移行評価を必要としないため不確実性が少ない、(2) 処分場からその外側への放出を考慮しているため、処分場が持つ隔離性能・メカニズムを含んだ指標である、(3) 処分場に初期埋設される放射性核種の質量と埋設条件に敏感に依存する、(4) 処分場外に存在する核種量は放出率の積分値であり、長期的な変動や不確実性に対して影響されにくい、と考えられる。

この定義により評価した H12 処分場の環境負荷は図 3 のように求められている。これによると、環境負荷を決定する主要各種は Np-237 と Cs-135 であることがわかる。また、これに関連して行った詳細な検討によれば、この指標に基づいて環境負荷を示した場合、廃棄体に含まれる Np-237 の質量と環境負荷の間に敏感な関係が成立し、Np-237 の廃棄体中の質量を減らすことによって環境負荷が効果的に減少することが観察されている[4]。

また、この図から観察される重要な点は、Np-237 の廃棄体中の質量を減少していくとあるところまでは環境負荷は減少するが、Cs-135 の質量がそのままであれば、いずれ Cs-135 が支配的となり Np-237 を削減する意味がなくなるということである。Cs-135 は核分裂生成物であり、発電量が同じであればその発生量はほぼ同じである。また、分離核変換技術によって Cs-135 を処理することはあまり現実的でない。したがって、発電量を同じとすると、発電スキームにかかわらず Cs-135 の発生量はほぼ同じと考えられる。

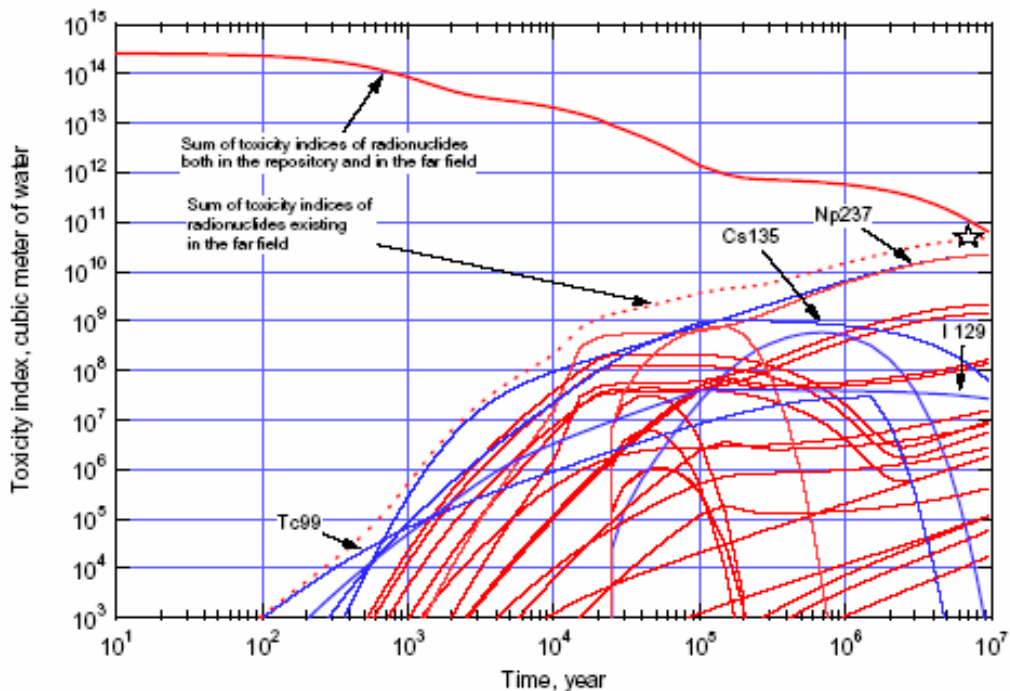


図 3 : H12 処分場に対して環境負荷を試算した例。[3]

そこで、本研究では Cs-135 と Np-237 に着目し、まず、電解還元処理法によってソーダライト固化体 1 体に含まれる核分裂生成物の量を簡略化した熱計算によって確定し、1300GW 年相当の処分場に埋設されるソーダライト固化体中に含まれる Cs-135 のもたらす環境負荷を基準線とし、それを超えない範囲で Np-237 がソーダライト固化体に含まれてよい上限値を求めることにする。

2.3 電解還元処理法廃棄物

2.3.1 H12 処分場収容量に等価なソーダライト廃棄体の本数について

ソーダライト固化による廃棄体温度が最高 800 °C という条件をもとに、廃棄体 1 体当たりの最大発熱率とそれに相当する取り出し燃料の量 [tHM] を計算した。

廃棄体温度の計算では、廃棄体円柱の形状をそれと同体積の球で近似し、廃棄体表面は常に 100 °C に冷却されていると仮定した。定常状態の熱伝導を仮定した。定常状態の最高温度（中心温度）と発熱率の関係は次式で表される[5]。

$$\frac{A_o a^2}{6K} < \Delta T \quad (1)$$

ここで ΔT [K] は中心と表面の温度差、 K [W/Km] は熱伝導率、 A_o [W/m³] は発熱密度、 a [m] は球体半径であり、元の円柱状廃棄体の半径を r 、高さを h とすると、

$$a = \sqrt[3]{\frac{3}{4} r^2 h} \quad (2)$$

で与えられる。

これより最高中心温度 800 °C、表面温度 100 °C に相当する最大発熱密度 A_o [W/m³] が得られる。 $K=0.4$ W/Km、 $r=0.22$ m、 $h=1.35$ m を代入して求められた発熱密度に廃棄体体積を乗じて廃棄体 1 体当たりの最大発熱率が 2575W と求められる。

一方、電中研殿より提示の評価結果によれば、高燃焼度（48 GWD/tHM）PWR 燃料 1 トン当たりの廃棄物中の核分裂生成物による発熱量は表 1 に示すように 2.43 kW/tHM と求められる。したがって、ソーダライト固化体が許容する最大発熱率 2575W に相当する燃料重量は高燃焼度 PWR の場合 $2575 \div 2430 = 1.06$ [tHM] と求められた。ここで廃棄体製造時は燃料取り出しから 4 年後と仮定した。また、FP 発熱率は時間とともに減衰するため、廃棄体製造時に最大値を取る。

処分場に収納される廃棄体の本数は

$$(\text{廃棄体本数}) = (\text{全燃料重量}) \times (\text{廃棄体 1 体当たりの燃料重量})$$

として得られる。全燃料重量は次式を用いて計算した。

$$(\text{燃焼度}) \times (\text{全燃料重量}) \times (\text{変換効率}) = (\text{発電量 [GW(e)年]})$$

発電量を 1300GW 年と仮定すると、高燃焼度 PWR (48GWD/t) の取り出し燃料は $3.00e+4$ tHM で、廃棄体総数は 28300 本と求まった。

ここで留意すべき点は、固化体の寸法が H12 で想定されている廃棄体と同じであること、その熱的特性がガラス固化体廃棄体ほぼ同じであること（H12 での発熱率が 2.33kW に対してソーダライトの 2.575kW）、したがって処分場の設計、人工バリアの仕様、レイアウトなどは H12 のものをそのまま仮定することができる。

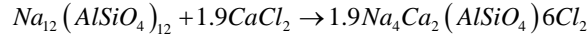
表1：燃料1トン当たりの廃棄体に含まれる核分裂生成物の量（高燃焼度PWR、燃料取り出しから4年後）

	[g/tHM]	[W/tHM]	[mol/tHM]	valence	mol当量/tHM
LI	6.45E-04	0.00E+00	9.21E-05	1	9.21E-05
BE	2.17E-04	5.07E-09	2.41E-05	2	4.82E-05
ZN	5.65E-05	0.00E+00	8.64E-07	2	1.73E-06
GA	1.69E-03	0.00E+00	2.42E-05	3	7.27E-05
GE	8.18E-01	0.00E+00	1.13E-02	4	4.51E-02
AS	2.78E-01	0.00E+00	3.71E-03	-3	
SE	8.34E+01	1.26E-04	1.06E+00	-2	
BR	3.04E+01	0.00E+00	3.80E-01	-1	
RB	5.66E+02	1.48E-08	6.62E+00	1	6.62E+00
SR	1.25E+03	1.05E+02	1.43E+01	2	2.85E+01
Y	6.89E+02	5.60E+02	7.75E+00	3	2.33E+01
TC	1.11E+03	9.36E-03	1.12E+01	4	4.48E+01
RU	3.16E+03	2.45E+00	3.13E+01	2	6.25E+01
RH	5.92E+02	3.94E+02	5.75E+00	3	1.73E+01
SN	8.16E+01	6.70E-03	6.87E-01	4	2.75E+00
SB	1.68E+01	1.21E+01	1.38E-01	-3	
TE	6.86E+02	7.72E-01	5.38E+00	-2	
I	3.12E+02	2.15E-05	2.46E+00	-1	
CS	3.87E+03	8.38E+02	2.91E+01	1	2.91E+01
(うち Cs-135	6.17e+02 g/tHM)				
BA	2.37E+03	5.18E+02	1.73E+01	2	3.45E+01
total	1.48E+04	2.43E+03	1.33E+02		2.49E+02

2.3.2 廃棄塩中の FP 分率

廃棄塩中の全陽イオン当量に対する FP 陽イオン当量を計算する。廃棄体 1 体には上で得られた 1.06 tHM に相当する FP が含まれるものとする。燃料 1 トンに相当する FP の陽イオン当量は 249 mol 当量/tHM（表 1）なので、廃棄体 1 体当たり 264 mol 当量の陽イオン FP が含まれる。

ソーダライト固化体は



に従って製造し母材の無水ゼオライト 1705g に対して 3.8 モル当量の塩化物で 837m³ の固化体ができることが知られている。体積 837 cm³ のソーダライト中の陽イオン含有量を 3.8mol 当量だとすると、廃棄体 1 体当たりの陽イオン含有量は次のように求まる。

$$(\text{廃棄体 1 体当たりの陽イオン当量}) = (\text{廃棄体体積}) \times (3.8 [\text{mol 当量}]) / (837 [\text{cm}^3]) = 932 \text{ mol 当量}$$

従ってソーダライト中の全陽イオン当量に対する FP 陽イオン当量分率は、(264 mol 当量) / (932 mol 当量) = 0.283 (28.3%) と得られた。これは、電中研殿より提示された廃棄塩中の FP 分率の範囲 (5~30%) の中にあること、この仕様の廃棄体が H12 処分場の熱条件を満たすことなどの理由から、今回はこの値で固定し特にパラメータサーベイは行わなかった。

2.4 環境負荷

第 2.2.2 節に示した考察に基づき、処分場環境負荷を決定する主要核種である Cs-135、Np-237 に注目する。着目する核種のもたらす環境負荷 $I(t)$ [m³-water] は、親核種の存在を無視しその核種の処分場からの放出率[mol/年]を $\phi(t)$ とすると、

$$I(t)[\text{m}^3\text{-water}] = \frac{\lambda N_A}{3.7E10[\text{Bq/Ci}](\text{MPC})} \int_0^t \exp(-\lambda\tau) \phi(t-\tau) d\tau \quad (3)$$

で表される。ここで、 λ は崩壊定数[1/sec]、 N_A は Avogadro 数 [1/mol] である。また、MPC はその核種が経口摂取されるときの水溶液中の最大許容濃度[Ci/m³-water] である。

式 (3) 中の積分は、着目核種の処分場外側領域における質量を表し、指数関数は崩壊により減少を補正する項である。長寿命核種の場合、この崩壊補正項の影響は小さい。処分場の最下流端から流れ出る地下水中の着目核種の濃度 $C(t; N_x)$ が求められると、放出率 $\phi(t)$ は流れと垂直方向に並ぶ廃棄体の本数 N_y と地下水流量 F により、

$$\phi(t) = N_y F C(t; N_x) \quad (4)$$

で表される (図 4 参照)。

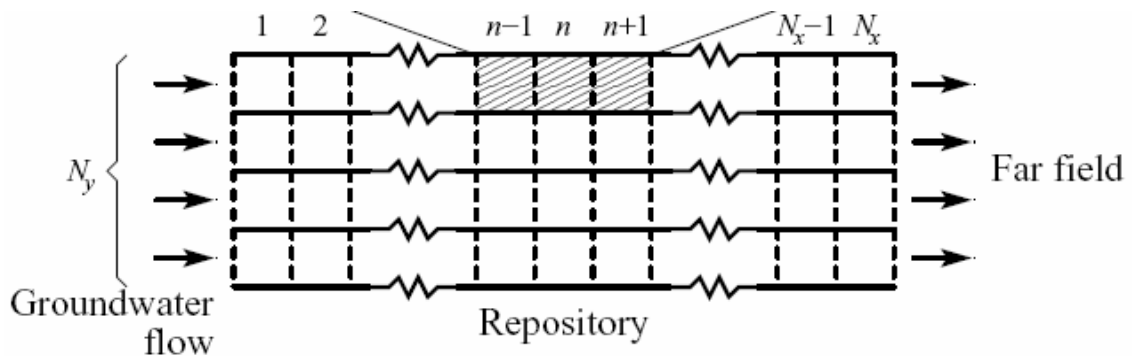


図 4 : 処分場内部の 2 次元廃棄体配列と地下水流れ方向。

ここで、処分場は $N_x \times N_y$ の配列で廃棄体が並んでいて、地下水は N_x の方向に流れていると

仮定する。\$N_y\$ 列並ぶ \$N_x\$ の廃棄体の列はどれも同等であると仮定する。\$F\$ は一列あたりに流れる地下水流量である。最下流端から流れ出る地下水中の核種濃度 \$C(t; N_x)\$ は各廃棄体からの放出モードと \$N_x\$ に依存する。

各廃棄体からの放出モードには、調和溶解と溶解度限界の 2 種類があり、それぞれ、\$C_s\$、\$N_p\$ の放出モードに相当する。

\$C_s\$ の地下水での溶解度は十分に大きいため、廃棄体溶解に伴って放出される \$C_s\$ は全量地下水中に溶解すると仮定できる。このモードを調和溶解と呼ぶ。調和溶解の場合、核種の固化体からの放出率は、固化体の溶解速度、すなわち浸出時間 \$T_L\$、固化体 1 本に初期含まれる核種の質量 \$M_o\$ で決定される。

これまでの UCB における研究の結果[によれば²、調和溶解核種が複数の廃棄体から放出される場合、浸出時間に加えてもうひとつの特性時間が重要となる。それは、処分場に流入した未汚染の地下水が処分場内を流下し汚染されたあと処分場外部に出てくるまでの滞在時間である。処分場が流れ方向に十分な広がりを持つ場合（すなわち、流れ方向に多くの廃棄体を配列する場合）、流入した地下水が処分場内部に滞在する時間は、浸出時間よりも長くなる可能性がある。その場合、処分場から流出する地下水中の着目核種の濃度は時間とともに増加するが、その後一定の値を示す。その一定値は、その核種の廃棄体中の初期質量、廃棄体 1 体あたりに割り当てられた人工バリアとニアフィールド母岩の持つ核種保持能力（緩衝材、母岩の持つ吸着分配能と体積、空隙率、密度で決定される）、地下水流速によって決定され、理論上の上限濃度であり、流下する廃棄体の数 \$N_x\$ に依存しない。一方、流れ方向への処分場の広がり小さい場合、あるいは地下水流れが速い場合、流入した地下水は浸出時間終了前に流下し処分場外部に放出される。この場合は、濃度は理論上の上限値には達せず、放出までに流下した廃棄体の本数 \$N_x\$ に比例して濃度が増加する。

以上を要約すると調和溶解の場合には、\$(N_x, N_y)\$ で示される廃棄体配列のそれぞれの場合の処分場からの核種の最大放出率 \$\phi_{N_x, N_y}^{peak}\$ は次式であらわされる。

$$\phi_{N_x, N_y}^{peak} = \begin{cases} N_x N_y \frac{M_o}{T_L}, & N_x T_1 < T_L \\ F N_y C_o, & N_x T_1 > T_L \end{cases} \quad (5)$$

ここで、\$T_L\$ は浸出時間、\$C_o\$ は

$$C_o = \frac{M_o}{R \epsilon_p V + K \epsilon SL} \quad (6)$$

で表される核種の濃度である。\$T_1\$ は、

$$T_1 = \frac{R \epsilon_p V + K \epsilon SL}{F} \quad (7)$$

² 詳細については添付資料 1 参照のこと。

で定義される時定数であり、核種の1コンパートメント（廃棄体とその周辺の人口バリアとニアフィールド母岩を含む領域）における滞留時間を表す。そのほかのパラメータの定義は表1を参照されたい。

もうひとつの放出モードである溶解度限界放出に対しても同様の考察が成り立つが、この場合は調和溶解よりもメカニズムが複雑である。調和溶解の場合には、水相中への核種の放出が継続する時間は固化体の浸出時間としてあらかじめ規定できるが、溶解度限界モードの場合、放出継続時間は核種の溶解度、核種の析出固相近傍における物質移動特性（拡散係数、地下水流速、吸着分配係数など）、上流から流れてくる地下水中の着目核種の濃度によって決定されるため、廃棄体によって異なる。同じ地下水流に含まれる廃棄体の場合、一般に上流の廃棄体で核種の放出が早く終わり、下流ほど遅くなることがこれまでの数値計算でわかっている[5]。

このような複雑さが加わるものの、溶解度限界核種に関しても基本的には同様に取り扱うことができる³。すなわち、 (N_x, N_y) で示される廃棄体配列のそれぞれの場合の処分場からの核種の最大放出率 ϕ_{N_x, N_y}^{peak} は

$$\phi_{N_x, N_y}^{peak} = FN_y C^* \frac{\beta}{\zeta} \begin{cases} (1 - \gamma^{N_x}), & N_x < \bar{t}/T_{res} \\ \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{\zeta \bar{t}}{\varepsilon_p RV}\right) \right\}, & N_x > \bar{t}/T_{res} \end{cases} \quad (8)$$

ここで、

$$\alpha \equiv \sqrt{\frac{K\lambda}{D}}, \beta \equiv \frac{S\varepsilon D\alpha}{\sinh \alpha L}, \gamma \equiv \frac{F}{F + \zeta}, \zeta = \lambda R\varepsilon_p V + \beta \cosh \alpha L \quad (9)$$

と定義される。また、

$$M^o \exp(-\lambda \bar{t}) - \frac{\beta}{\lambda} [1 - \exp(-\lambda \bar{t})] \{C^* \cosh(\alpha L) - \bar{C}\} = 0 \quad (10)$$

を解いて、 \bar{t} が求められる。 C^* は核種の溶解度である。

式(5)および(8)に見られる2領域については、図5を参照のこと。

式(3)にしたがい核種放出率の時間積分を求めて厳密に環境負荷を評価する方法では、廃棄体配列、廃棄体の初期核種インベントリの効果を網羅的に調べるのは見通しが悪い。今回はCs-135とNp-237の半減期がほぼ同じであること、また、式(5)と(8)で与えられる最大放出率がすでに N_x と N_y の関数になっていることを利用し、これらを用いてソーダライト固化体を処分した場合の環境負荷について考察する。すなわち、環境負荷 $I(t)$ [m³-water]を求める代わりに、

$$\frac{\lambda N_A}{3.7E10(MPC)} \phi_{N_x, N_y}^{peak} \quad (11)$$

³ 添付資料2参照。

を数値評価する。単位は $\text{m}^3\text{-water}/\text{年}$ となる。処分場から毒性放出率の意味を持つ。

ソーダライト固化体に人為的に Np-237 を添加し、その場合の毒性放出率を求める。また、処分場の容量を現在の 1300GW 年から 10 倍に拡大した場合の毒性放出率を求める。これらと比較することによって、電解還元処理法における Np 回収プロセス損失の許容範囲、処分場容量が 10 倍拡大した場合に目指すべき Np のプロセス損失を探索する。

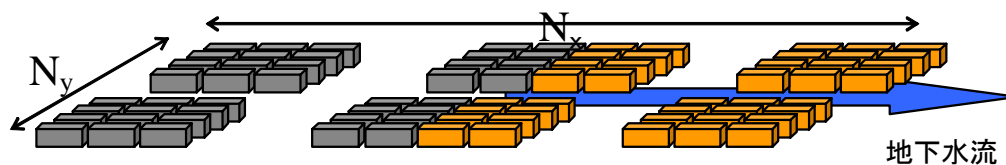


図 5：処分場内部における 2 領域。上流側（灰色）はすでに移流先端が通過したあとで、隣り合う 2 つのコンパートメント内部における核種の濃度プロファイルは異なる。一方、下流側（オレンジ色）の領域はまだ移流先端が到達していないため、隣り合う 2 つのコンパートメント内部における核種の濃度プロファイルは同じである。このような 2 領域は調和溶解でも溶解度限界溶解でも出現する。灰色とオレンジ色の領域の境界は時間とともに下流側（右）に進むが、境界が右端に到達する前にオレンジ色領域のコンパートメントに存在する核種がすべて水相中に溶解しきってしまう状態になると、処分場から出て行く地下水の核種濃度が理論上の上限値をとる。

3 結果と考察

3.1 結果

前節までに述べた方法に基づき、処分場からの毒性放出率を数値評価する。今回は廃棄体の熱特性が H12 レポートで仮定されているガラス固化体とほぼ同じであるため、同じ処分場のスペックを用いて評価した。仮定したパラメータ値を表 2 にまとめた。

これらの数値を元に式 (5) と (8)、および (11) を用いて計算した結果を図 6 と 7 に示す。図 6 は H12 レポートで仮定された 4 万本と同等の収容量を持つ場合、図 7 はその 10 倍 (13000GW 年) を仮定した場合の計算結果である。

表 2：処分場のパラメータ値

廃棄体表面積 [m^2] (半径、長さから計算)	$S = 2.17$
廃棄体埋設間隔 [m]	$d = 10$
緩衝材領域の厚さ [m]	$L = 0.98$
コンパートメント中 NFR 体積 [m^3]	$V = 10.85$
空隙率 (緩衝材)	$\epsilon = 0.41$
空隙率 (ニアフィールド母岩)	$\epsilon_p = 0.02$
密度 (緩衝材) [kg/m^3]	2100
密度 (NFR) [kg/m^3]	2600
地下水流速 [m/yr]	$v = 1$
コンパートメント中地下水の体積流量 [m^3/yr]	$F = 0.0217$
浸出時間 [yr]	$T_L = 1\text{E}4, 1\text{E}5, 1\text{E}6$

	Cs-135	Np-237
拡散係数 [m ² /yr]	0.046	0.03
吸着係数 (緩衝材) [m ³ /kg]	0.01	1.0
遅延係数 (緩衝材) K		
吸着係数 (ニアフィールド母岩) [m ³ /kg]	0.05	1.0
遅延係数 (ニアフィールド母岩) R		
半減期 [yr]	2.3e+6	2.14e+6
最大許容濃度 MPC (10CFR20) [Ci/m ³]	1e-5	2e-8
溶解度 [mol/m ³]	—	2e-5
廃棄体 1 体当たりのモル数 [mol]	4.84, 3.19 (H12)	4.0, 0.4, 0.04

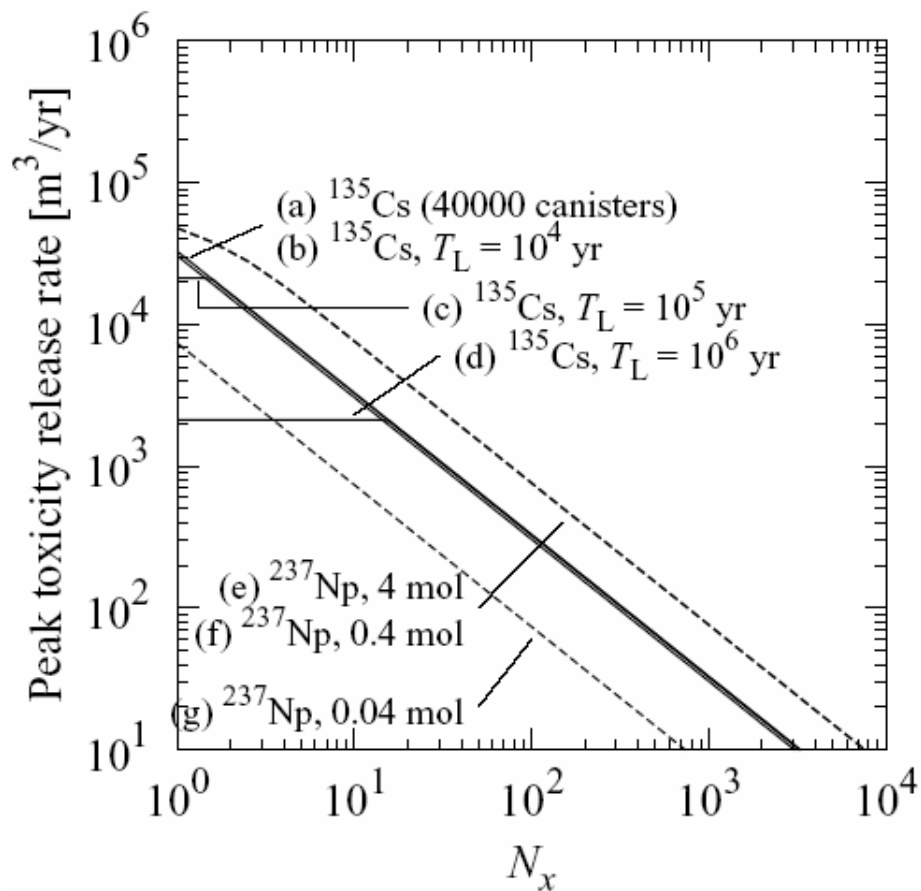


図6：最大毒性放出率。

- (a) Cs-135, H12report で仮定されるガラス固化体40000本 (1300GW年)、Cs-135, 3.19 mol/canister, $T_L = 10^4$ yr。
 (b)~(d)：高燃焼度PWR、電解還元処理法からのソーダライト固化体28300本 (1300GW年)、Cs-135, 4.84 mol/canisterを仮定；(b) $T_L = 10^4$ yr、(c) $T_L = 10^5$ yr、(d) $T_L = 10^6$ yr。
 (e)~(g)：高燃焼度PWR 電解還元処理法からのソーダライト固化体28300本 (1300GW年)、(e)Np-237, 4 mol/canister、(f) Np-237, 0.4 mol/canister、(g) Np-237, 0.04 mol/canisterを添加。

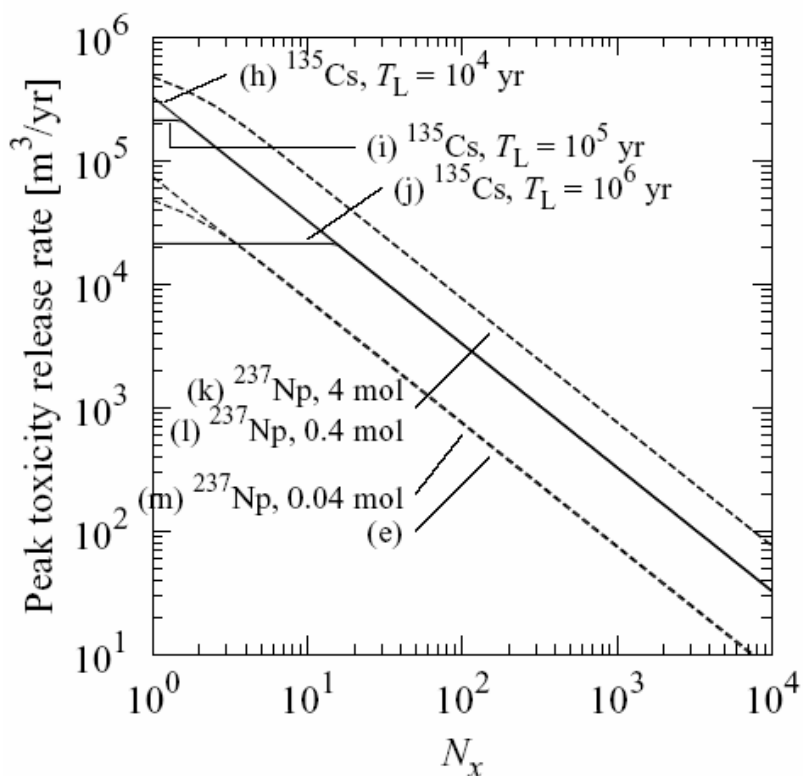


図7：処分容量10倍の場合の最大毒性放出率。

(b) (i) (j) : Cs-135, 283000 本, 他は(b)(c)(d)での仮定と同じ。
 (k) (l) (m) : Np-237, 283000 本, 他は(e)(f)(g)での仮定と同じ。

図6には、H12 処分場から Cs-135 によってもたらされる毒性放出率をケース(a)として示す。これは、高燃焼度 PWR+電解還元法+ソーダライト固化で同じ 1300GW 年の処分場収容量、かつガラス固化体と同じ浸出時間である 1 万年を仮定した場合 (b) とほとんど同じ結果となった。核分裂生成物に関しては総核分裂数が同じで固化体性能が同じであれば、処分場の環境負荷に寄与する度合いは同じであることが確認された。

電解還元法の利点は、廃棄物側に含まれるアクチニド核種の量を格段に少なくすることができる点である。しかし、化学的な分離プロセスの原理から完全な分離はできない。そこで、どの程度の分離に意味があるかが重要な検討課題となる。それを調べるため、まったく Np-237 を含まないケース(a)の廃棄体に人為的に Np-237 を 4 モル、0.4 モル、0.04 モル加えて評価した結果が図6のケース(e)(f)(g)である。これらは廃棄体の熱的な特性を有意に変えないと仮定して同じ処分場仕様で計算した。4 モルという値は H12 処分場のガラス固化体に含まれる Np-237 とその親核種である Am-241 の初期インベントリの合計にほぼ等しい。

ケース(e)(f)の結果はほとんど変わらない。これは、溶解度限界が強く働き各廃棄体から Np-237 が溶け切る時間がこの 2 ケースの間でほとんど変わらないためである。また、この 2 ケースの結果は Cs-135 のケース(a)の結果よりも常に大きい値となる。一方、0.04 モルであるケース (g) の場合、その値は常にケース(a)を下回る。おおよそ Np-237 の値が 0.1 モル/廃棄体となったとき、Cs-135 と Np-237 の毒性放出率がほぼ同じとなる。

この結果から、もし、同じ処分場の容量でソーダライト固化体を適用した場合、数%程度のプロセス損失があっても廃棄物中に Np が含まれても全体の毒性放出率には影響を及ぼさず、それより Np のプロセス損失を小さくする意味はあまりない。

ここで、もしソーダライト固化体の浸出特性が改善した場合を考える。図 6 のケース (c) (d) はそれぞれ浸出時間が 10 万年 (ケース(a)の 10 倍)、100 万年 (同 100 倍) と延びた場合、どのような効果があるかを示したものである。浸出時間が延びると図 5 における灰色の領域 (移流先端よりも上流側) が処分場内部で拡大することになる。この領域では式 (5) の第 1 式により、処分場内部の廃棄体総数 $N_x N_y$ が一定である場合、放出率は N_x に依存しないことがわかる。したがって、図 6 に示すように N_x の小さい領域で横軸に平行な領域が現れる。また、その平行な領域がケース (c)、ケース (d) と浸出時間が長くなるにつれて拡大する。

処分場の設計上の要請から、同じ地下水流に含まれる廃棄体の数が比較的小さい場合 (N_x が小さい領域で処分場が設計される場合)⁴、おなじ Cs-135 の埋設量でも浸出が格段に緩慢に起きるため、Cs-135 の毒性放出率は大きく改善される。この場合、たとえば、 $N_x=4$ で浸出時間が 100 万年まで改善できた場合、電解還元法のプロセス損失を 0.04 モルまで減少させることによって処分場からの毒性放出率はおよそ 1 桁減少することができる。これは、およそ 10 倍の処分場容量で現在の H12・4 万本処分場と同等の毒性放出率を実現できる可能性のあることを示唆している。

図 7 は処分容量を 10 倍に拡大した場合の結果を示す。比較のため、図 6 でも示したケース(e)の結果も再掲する。ケース(e)は最初の 4 万本処分場が実現すると仮定した場合処分場がもたらす毒性放出率であり、将来の処分場のヴァリエーションは、少なくともそのレベルを実現するか、あるいは下回ることを目指すべき、という一種の基準線と考えられる。

発電量を 10 倍にすると固化体 1 体に含まれる廃棄物量を増やさない限り、固化体の本数は比例して増加し Cs-135 の量も 10 倍増加する。図 7 に示すケース(h)(i)(j)はそれぞれ図 6 のケース(b)(c)(d)に相当するが、廃棄体本数がそれぞれの 10 倍である点が異なる。同じ本数の廃棄体に 4 モル、0.4 モル、0.04 モルの Np-237 を添加したケースが、それぞれ(k)(l)(m)である。

Cs-135 の埋設量が 10 倍に増えたため、たとえ Np-237 の含有量がゼロであっても、10 倍に拡大したソーダライト固化体埋設処分場からの毒性放出率(h)は、(e)に比べて 2.5 倍ほど大きい。しかし、浸出時間が 100 万年(ケース(j))となり、Np-237 の含有量が 0.04 モル(ケース(m))まで抑えられれば、Cs-135 と Np-237 の毒性放出率が元の 4 万本処分場と同等のレベルになるよう処分場を設計することができる。

3.2 解析上の仮定、単純化と限界

今回の解析では多くの単純化と仮定が導入されており、結果の解釈には注意が必要である。今回の結果を元にこの方向性の研究を進めていくと判断された場合、以下の点でより詳細な検討が必要である。

廃棄体の温度計算における球体近似と定常状態の仮定の効果は、ともに (熱の問題で) 保守的な方向に結果をずらす。廃棄体の高減容化 (より多くの発熱性廃棄物成分を廃棄体単位体積あたりに含むこと) を目指す場合は、処分場での埋設間隔、人工バリア仕様の再検討などを行った

⁴ 例えば、ヤッカマウンテン処分場は同じ地下水流に含まれる廃棄体の数がおそらくせいぜい 1 本程度(多層処分場でも多くても 10 程度)であり、この場合に当てはまる。

上、非定常熱計算を実施する必要がある。これと同じ範疇で、ソーダライト固化体の熱的特性（熱伝導率など）の知見を整理しその満たすべき温度条件を確定する必要がある。

廃棄体の性能という観点からは、浸出特性が重要である。今回はガラス固化体と同等を標準ケースとし、そこからパラメタサーベイを行ったが、より現実的な範囲を知ることが肝要である。ガラス固化体には Mo などの元素の含有量に対して均質性（とひいては浸出特性）の観点から制約条件があったが、これらと類似の制約条件がソーダライトにあるかどうか調査が必要である。

今回の解析では、環境負荷を定義しつつも、実際にはその一段階前の量である毒性放出率を数値評価した。より正確には、毒性放出率の理論上の上限値を用いた。式(3)によると、環境負荷は毒性放出率の時間積分で得られる。今回は着目した Cs-135 と Np-237 の半減期がほぼ同じであることを利用して、積分区間が同じであること、さらにその区間の中で毒性放出率がそれぞれの理論上の上限値であることを暗黙に仮定した上で、毒性放出率を比較した。今回の結果を検証する意味でも、 (N_x, N_y) のいくつかの点において実際に数値的に毒性放出率を時間関数として求め、その積分値を評価する作業を行うべきである。

今回の評価では、Np の式(8)は放射性崩壊による核種の減衰を考慮しているが、Cs の式(5)はそれを無視している。浸出時間が 100 万年を超えるような条件が興味の対象となった場合には放射性崩壊の影響を考慮し、式(5)を再考する必要がある。

今回の計算では Np は常に溶解度限界放出モードを仮定しているが、浸出時間が長い場合、或いは初期インベントリが小さい場合には調和溶解モードになる可能性がある。また、今回は溶解度限界放出モードの場合、浸出時間が顕わに影響を及ぼさないような関係が仮定されているが、実は、浸出時間が十分長くなると固化体に残っている間に崩壊する効果が無視できなくなり、析出固相が消失する時間に影響を及ぼす。より厳密な解析のためには、Np の固化体中の含有量が少なく、溶解度限界モードから調和溶解モードに遷移する領域での挙動をより詳しく解明する必要がある。

4 結論

電中研殿が開発中の電解還元処理法にソーダライト固化を組み合わせた廃棄物処理・処分スキームに対して、処分場の環境負荷の観点から電解還元処理法における Np のプロセス損失に求められる条件を検討した。まず、

- H12 レポートに示されている燃焼度 45GWD/トン軽水炉使用済み燃料 Purex 法再処理により得られるガラス固化体 4 万本処分の条件を整理し、発電量 1300GW 年で処分場の容量を表した。
- H12 レポートおよび同じ処分場を対象に行われた環境負荷解析結果の結果から、着目核種を Np-237 と Cs-135 とした。
- 環境負荷を定量的に定義した。
- 燃焼度 48GWD/トン PWR 使用済み燃料に対して、ソーダライト固化体の組成を、H12 処分場と同等の熱条件を元に概算した。また、それを元に同じ発電量

(1,300GW 年)に相当するソーダライト廃棄体の本数を計算し 28,300 本と求められた。

- 環境負荷を評価する際の基本的な量である「毒性放出率」を定義しその理論上の上限値を定式化した。

これらを元に、(1)ソーダライト固化体の浸出時間、(2)電解還元プロセスの損失としてソーダライト固化体に混入する Np-237 の質量、(3)処分場の容量、に着目し、毒性放出率を数値評価した。数値結果を検討した結果、次の点が観察された。

- Np の固化体 1 体当たりの含有量がおよそ 0.1 モル程度であるとき、Cs-135 の毒性放出率と同等になる。このことから、この容量の処分場を考える場合、廃棄体 1 体当たりに含まれる Np の量を 0.1 モル以下に削減しても環境負荷の観点からはあまり効果がない。今回のソーダライト廃棄体 1 体には Cs-135 が 4.84 モル含まれている。Cs-135 の MPC は Np-237 のその 500 倍大きい、Np は Cs-135 のおよそ 50 分の 1 (Cs-135 が 4.84 モルに対して Np-237 が 0.1 モル) 程度まで含んでもよいことになる。これは、Np-237 の溶解度制限が効いているためと考えられる。
- ソーダライト固化体の浸出時間が 1 万年からさらに 10 万年、100 万年と改善した場合、その効果は、流れ方向の固化体同士の連結の少ない処分場構成の場合により顕著に現れる。浸出時間を 100 万年まで延ばすことができ、固化体の Np の含有量を 0.04 モルまで削減することができると、連結の少ない処分場構成の場合、H12・4 万本処分場の数分の 1 の環境負荷を実現することができる。
- ソーダライト固化体の浸出時間を 100 万年程度まで延ばすことができ、Np の含有量を 0.04 モルまで削減した場合、10 倍の発電量で H12 処分場と同等の環境負荷を実現できる可能性がある。

今回の調査研究は電解還元処理法+ソーダライト固化の持つ可能性を環境負荷の観点から概括的に検討することが目的であったが、また一方で、処分の環境負荷評価と燃料サイクル性能評価を統合する観点からもパイロット研究的な意味があるものと考えられる。今後、この方向での研究をさらに実用的なものとし、合理的なサイクル・処分統合評価を実現するため、次のような展開が必要と考える。

- 分離プロセスの詳細解析、特に廃棄物発生形態の解明と理解。
- 廃棄体のスペックを決める部分の系統的なモデル化。
- 廃棄体の材料学的・地球化学的な知見の蓄積（少なくともガラス固化体と同等レベルの理解が必要。）

5 参照文献

[1] H12 レポート

[2] K. Miyahara, et.al., An Overview of the H12 Performance Assessment in Perspective, Scientific Basis for Nuclear Waste Management, 2001, Boston, Materials Research Society.

[3] Ahn, J., Possibility of Safety Improvement for Vitrified HLW Geologic Disposal by Partitioning and Transmutation, *Global '99, International Conference on Future Nuclear Systems*, August 29-September 3, 1999, Jackson Hole, Wyoming (1999).

[4] Ahn, J., D. Kawasaki, P. L. Chambré, Relationship among Performance of Geologic Repositories, Canister-Array Configuration, and Radionuclide Mass in Waste, *Nuclear Technology*, **126**, 94-112, 2002.

[5] Carslaw and Jaegar,