

**高レベル廃液ガラス固化トラブル原因は“白金族”よりも“ウラン・超ウラン元素”ではないか**

はじめに

日本原燃(株)のホームページ「当社の取り組み」の「ガラス固化技術の確立から新型ガラス溶融炉の開発へ」\* 第二項「困難との戦いのはじまり～ガラスの流下性低下～」の中に以下の記述があります。

「再開した試験では、安定した状態でガラス固化体 15 本を製造しましたが、さまざまな状況下での安定運転を確認するため、不溶解残渣\*<sup>1</sup>を廃液に混ぜたところ、炉底部に白金族元素\*<sup>2</sup>の堆積を示す兆候がみられ、徐々にガラスの流下性が低下したことから、洗浄運転を行い・・・」

\* <https://www.jnfl.co.jp/ja/special/highest-technology/development-glass-melter/>

※1 不溶解残渣：使用済燃料のせん断片を溶解槽で溶解した際、溶解せずに残る粒子状のもの。

※2 白金族元素：白金および白金に似た性質を持つ元素の総称。使用済燃料中のルテニウム、ロジウムおよびパラジウムは、その多くが高レベル放射性廃液に含まれ、これらが溶融炉内で沈降・堆積すると、ガラスの流下性低下の原因になる。

2020年3月になり、私たちの調べで高レベル廃液中にUやPuが混入していること、7月21日の政府交渉で日本原燃が両核種は98.2%の回収目標として申請していることがわかりました。このことは未回収1.8%分が高レベル廃液に混入することになります。ガラス固化トラブルの原因として比重の大きいUやPu、他超ウラン元素 TRU (Np ネプツニウム, Am アメリシウム, Cm キュリウム) の混入量を白金族と比較してどの程度なのか調べてみました。

燃焼度毎の使用済燃料に含まれている核分裂生成物、そして崩壊して生成する安定同位元素も含めた元素の全体量が推定された文献「使用済軽水炉燃料の核種組成評価」(1999.2 安藤良平・高野秀機 日本原子力研究所)\*の存在を知り入手することができました。この文献を使用し以下の条件で高レベル廃液中に含まれる元素の量(g)を調べ、比較してみました。

\* <https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAERI-Research-99-004.pdf>

**1) ウラン燃料を1トン燃焼させた時、発生する各核種の存在量gを読み取る**

日本原燃の新規制基準適合性審査資料では内蔵放射能は重大事故用標準燃料仕様としてPWR燃料、初期ウラン235濃縮度4.5%、燃焼度45GWd/t・Upr、冷却年数15年とし計算されています。この条件に近いものとして、PWR燃料、初期ウラン235濃縮度3.9%、燃焼度45GWd/tHM、冷却年数10年の数値を「使用済軽水炉燃料の核種組成評価」から読み取りました。

<読み取り方法(ルテニウムRuを例に)>

Ruについて「使用済軽水炉燃料の核種組成評価」p115に以下の表(表1)が出ています。

使用済燃料の燃焼度0,10,20,25,30,35,40,45(GWd/Mt)についてRuの7同位体その他の同位体計、全体の合計について値がでています。燃焼度45(GWd/Mt)下欄の5-YC,10-YC,20-YC,30-YCは1tの燃焼度45GWd/Mtの使用済燃料を5年、10年、20年、30年冷却後の各核種の質量という意味です。7同位体中Ru100,101,102,104は安定核種(放射性ではない)です。表1から取出し10年後の数値を10-YCの行を右

に見て Total の欄 3.0069E+03 を整数 3007g と読み取り表 2 を作成しました。以下各核種は同様に文献から読み取りました。

※なお燃焼度の単位が GWd/t・Upr, GWd/tHM, GWd/Mt\* と資料により分母が異なっていますが照射前の燃料ウラン 1 トン当たりの燃焼度という意味です。 \*pr:照射前, HM:ヘビーメタル, M:メタル   メタル:ウラン

[表 1] 取出し燃焼度 45GWd/tHM の PWR-UO<sub>2</sub> 燃料に対する核種組成データ <Ru のデータ>

#RU Concentration										
Burnup (GWd/Mt)	#Concentration in Grams/tHM									
	Neut. Flux	RU100	RU101	RU102	RU103	RU104	RU105	RU106	Others	Total
0	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00
10	2.8141E+14	6.3342E+00	2.3206E+02	2.0853E+02	3.7749E+01	1.1761E+02	9.8606E-02	3.9169E+01	1.5242E-03	6.4155E+02
20	3.1281E+14	2.6940E+01	4.6420E+02	4.3502E+02	4.3459E+01	2.6976E+02	1.2825E-01	8.9808E+01	3.1338E-03	1.3294E+03
25	3.2821E+14	4.3131E+01	5.7958E+02	5.5419E+02	4.5652E+01	3.5586E+02	1.4093E-01	1.1589E+02	4.1231E-03	1.6945E+03
30	3.4373E+14	6.3500E+01	6.9424E+02	6.7717E+02	4.7635E+01	4.4783E+02	1.5266E-01	1.4173E+02	5.2407E-03	2.0723E+03
35	3.5938E+14	8.8212E+01	8.0803E+02	8.0387E+02	4.9458E+01	5.4523E+02	1.6363E-01	1.6697E+02	6.4880E-03	2.4619E+03
40	3.7510E+14	1.1741E+02	9.2078E+02	9.3425E+02	5.1146E+01	6.4762E+02	1.7388E-01	1.9138E+02	7.8653E-03	2.8628E+03
45	3.9068E+14	1.5118E+02	1.0324E+03	1.0683E+03	5.2748E+01	7.5468E+02	1.8362E-01	2.1484E+02	9.3756E-03	3.2744E+03
5-YC	0.0000E+00	1.5118E+02	1.0324E+03	1.0683E+03	6.0388E-13	7.5468E+02	0.0000E+00	7.1270E+00	2.3199E-02	3.0137E+03
10-YC	0.0000E+00	1.5118E+02	1.0324E+03	1.0683E+03	6.9132E-27	7.5468E+02	0.0000E+00	2.3642E-01	4.0236E-02	3.0069E+03
20-YC	0.0000E+00	1.5118E+02	1.0324E+03	1.0683E+03	0.0000E+00	7.5468E+02	0.0000E+00	2.6168E-04	7.4310E-02	3.0067E+03
30-YC	0.0000E+00	1.5118E+02	1.0324E+03	1.0683E+03	0.0000E+00	7.5468E+02	0.0000E+00	2.8953E-07	1.0838E-01	3.0067E+03

2) 使用済燃料中、白金族とウラン・プルトニウム・その他の TRU 元素の存在量 g を求める

上記ルテニウムと同様文献から白金族と U・TRU 各元素の存在量を読み取りました (表 2)。

[表 2] 取出し燃焼度 45GWd/tHM の PWR-UO<sub>2</sub> 燃料に対する核種組成データ中 取出し直後、経過年毎の白金族と U・TRU 元素の合計量 g 数をまとめた表

		45GWd/Mt [g]	5-y [g]	10-y [g]	20-y [g]
白金族	Ru ルテニウム	3274	3014	3007	3007
	Rh ロジウム	546	597	597	597
	Pd パラジウム	1771	1979	1987	1987
小計		5591	5590	5591	5591
U・TRU	U ウラン	941300	941300	941300	941300
	Np ネプツニウム	718	633	637	652
	Pu プルトニウム	11310	11070	10780	10380
	Am アメリシウム	225	583	861	1243
	Cm キュリウム	94	62	52	37
小計		953647	953647	953630	953612

(表 2) からウラン、プルトニウムの存在量のうち、98.2%が回収\*され製品となり、1.8%が未回収になり、高レベル廃液に混入してきます、その量は以下 (表 3) になります。 \*日本原燃の回収目標値

[表 3]

	45GWd/Mt [g]	5-y [g]	10-y [g]	20-y [g]
U ウラン	941300	941300	941300	941300
U の 1.8%	16943	16943	16943	16943

	45GWd/Mt [g]	5-y [g]	10-y [g]	20-y [g]
Pu プルトニウム	11310	11070	10780	10380
Pu の 1.8%	204	199	194	187

3) 取出し燃焼度 45GWd/tHM の PWR-UO<sub>2</sub> 燃料を 10 年冷却後再処理した高レベル廃液に含まれる白金族元素と U・TRU 元素の量を比較する

日本原燃の新規制基準適合性審査資料では内蔵放射能は重大事故用標準燃料仕様として PWR 燃料、初期ウラン 235 濃縮度 4.5%，燃焼度 45GWd/t・U<sub>pr</sub>，冷却年数 15 年とされ計算されています。この条件に近いものとして、PWR 燃料，初期ウラン 235 濃縮度 3.9%，燃焼度 45GWd/tHM，冷却年数 10 年後の値で考察することにしました。

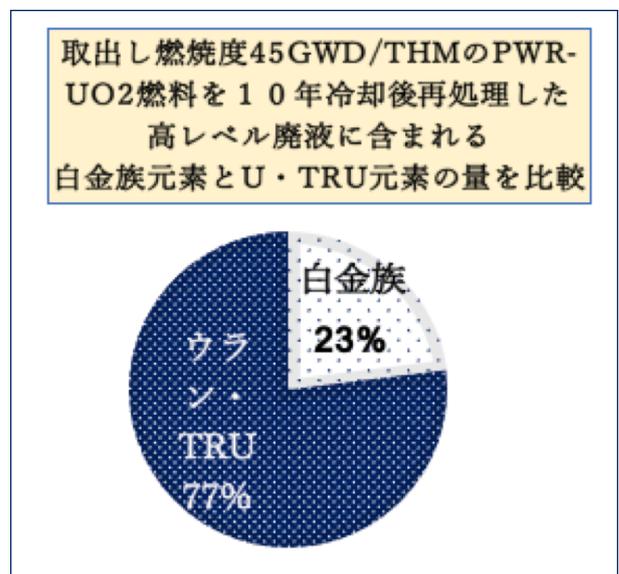
(表 2) の値のうち回収されるウランとプルトニウムを除いた核種の存在量は全て再処理され高レベル廃液に移行すると仮定しました。ウランとプルトニウムについては(表 3) からその 1.8%が高レベル廃液に移行すると仮定しました。これをまとめると(表 4)になり，これから両者を比較すると(図 1)になります。

[表 4] U 燃料 1 t 再処理,高レベル廃液中の核種 g

		10-y [g]
白金族元素	Ru	3007
	Rh	597
	Pd	1987
	小計	(23%) 5591

		10-y [g]
ウラン・TRU 元素	U	16943
	Np	637
	Pu	194
	Am	861
	Cm	52
	小計	(77%) 18688

[図 1] 高レベル廃液中 Pt 族と U・TRU 質量比較



※ 参考 1 金属の比重 白金族 [ Ru:12.4 Rh:12.4 Pd:12.0 ]

ウラン [ U:19.0 ] TRU 超ウラン元素 [ Np:20.5 Pu:19.9 Am:13.7 Cm:13.3 ]

\* 白金族は他に Os,Ir,Pt がありますが，U235 の核分裂で生成しません。

※ 20年冷却後再処理し発生した高レベル廃液について同様に計算したところ白金族23%、U・TRU77%と10年冷却(図1)と変わりませんでした。したがって日本原燃六ヶ所再処理工場では15年冷却であり白金族とU・TRUの割合は同じと考えられます。ウラン235濃縮度が日本原燃4.5%に対し本考察では3.9%ですが、白金族とU・TRUの割合は変わらないでしょう。

**結論：** 高レベル廃液には白金族元素の3倍以上のウラン・超ウラン元素が含まれており、その比重はいずれも白金族3元素よりも大きい。ガラス溶融炉トラブルの原因として白金族元素対策以上にU・TRU元素の対策を立てなければ解決は難しいのではないかと。

#### 4) まとめ

高レベル廃液のガラス固化溶融炉において、白金族を多く含む不溶解残渣廃液を炉に投入するとたちまち、炉の底部に白金族が沈降し炉底を詰まらせ、溶融液のジュール熱加熱を妨げトラブルを起こすと報告されてきました。しかし、上記高レベル廃液に白金族よりも比重が大きいウランや超ウラン元素(Np,Pu,Am,Cm)が3倍以上も含まれており、これを多量に含む不溶解残渣廃液を溶融炉に投入すると、これらの重い元素が先に沈降する可能性があると考えられます。ガラス溶融炉モックアップ(実物大模型)試験では模擬廃液として非放射性物質を使用していると聞きますが、そのような廃液を使用しても全て放射性であるウラン・超ウラン元素を含む廃液のガラス固化の影響による成否を判断できないと思われます。

本報告は小出裕章先生からアドバイスを得作成することができ感謝しております。(永田)

※ 参考2 六ヶ所再処理工場貯蔵高レベル廃液各貯槽中 含有放射性核種とその放射能(Bq)一覧  
(ウランは大量に含まれているはずだが掲載されておらず)

### 補足2. 2. 蒸発乾固における放出量の評価 補足2. 2. 3 ①内蔵放射能の設定(2/2)



(単位: Bq)

核種	高レベル濃縮廃液貯槽 (120m <sup>3</sup> )	高レベル濃縮廃液一時貯槽 (25m <sup>3</sup> )	高レベル廃液混合槽 (20m <sup>3</sup> )	供給液槽 (5m <sup>3</sup> )	供給槽 (2m <sup>3</sup> )	不溶解残渣廃液貯槽 (70m <sup>3</sup> )	不溶解残渣廃液一時貯槽 (5m <sup>3</sup> )
Sr90	8.63E+17	1.80E+17	1.44E+17	3.59E+16	1.44E+16	0.00E+00	0.00E+00
Y90	8.63E+17	1.80E+17	1.44E+17	3.60E+16	1.44E+16	0.00E+00	0.00E+00
Ru106	4.21E+14	8.78E+13	7.02E+13	1.76E+13	7.02E+12	2.18E+14	3.11E+13
Rh106	4.21E+14	8.78E+13	7.02E+13	1.76E+13	7.02E+12	2.18E+14	3.11E+13
Cs134	2.01E+16	4.19E+15	3.35E+15	8.38E+14	3.35E+14	0.00E+00	0.00E+00
Cs137	1.27E+18	2.65E+17	2.12E+17	5.31E+16	2.12E+16	0.00E+00	0.00E+00
Ba137M	1.21E+18	2.51E+17	2.01E+17	5.02E+16	2.01E+16	0.00E+00	0.00E+00
Ce144	2.63E+13	5.48E+12	4.39E+12	1.10E+12	4.39E+11	0.00E+00	0.00E+00
Pr144	2.63E+13	5.48E+12	4.39E+12	1.10E+12	4.39E+11	0.00E+00	0.00E+00
Sb-125	7.20E+15	1.50E+15	1.20E+15	3.00E+14	1.20E+14	1.18E+11	1.68E+10
Pm147	4.95E+16	1.03E+16	8.25E+15	2.06E+15	8.25E+14	8.08E+11	1.15E+11
Eu154	8.18E+16	1.71E+16	1.36E+16	3.41E+15	1.36E+15	1.34E+12	1.91E+11
Pu238	2.10E+14	4.38E+13	3.51E+13	8.76E+12	3.51E+12	3.50E+14	5.00E+13
Pu239	2.01E+13	4.19E+12	3.35E+12	8.38E+11	3.35E+11	3.35E+13	4.79E+12
Pu240	3.21E+13	6.68E+12	5.35E+12	1.34E+12	5.35E+11	5.34E+13	7.63E+12
Pu241	4.42E+15	9.21E+14	7.37E+14	1.84E+14	7.37E+13	7.36E+15	1.05E+15
Pu242	1.34E+11	2.80E+10	2.24E+10	5.60E+09	2.24E+09	2.24E+11	3.20E+10
Am241	8.78E+16	1.83E+16	1.46E+16	3.66E+15	1.46E+15	3.64E+14	5.20E+13
Am242	2.88E+14	5.95E+13	4.80E+13	1.20E+13	4.80E+12	1.19E+12	1.70E+11
Am243	7.93E+14	1.65E+14	1.32E+14	3.31E+13	1.32E+13	3.29E+12	4.70E+11
Cm242	2.38E+14	4.97E+13	3.97E+13	9.94E+12	3.97E+12	9.89E+11	1.41E+11
Cm243	6.54E+14	1.36E+14	1.09E+14	2.72E+13	1.09E+13	2.71E+12	3.87E+11
Cm244	6.10E+16	1.27E+16	1.02E+16	2.54E+15	1.02E+15	2.53E+14	3.62E+13

各機器のインベントリに燃料仕様の変動に係る補正係数を乗じた値