

高レベル放射性廃棄物から取り出したパラジウムの再利用へ —生活環境に持ち出して使用できる残留放射能濃度を試算—

概要

京都大学複合原子力科学研究所 高橋千太郎 特任教授、高橋知之 同准教授らのグループは、高レベル放射性廃棄物から取り出した貴金属のパラジウム (^{106}Pd 、 ^{104}Pd) に微量混入する可能性のある放射性パラジウム (^{107}Pd) について、放射線管理区域から持ち出して通常の生活環境で使用しても安全といえるクリアランスレベルを、世界で初めて試算し発表しました。

本研究は、内閣府 総合科学技術・イノベーション会議が主導する革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の一つ「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化 (藤田玲子プログラム・マネージャー、以下、藤田プログラム)」の一環として行われました。藤田プログラムでは、原子力発電所で生じる高レベル放射性廃棄物の環境への負荷を軽減するため、半減期の長い放射性同位元素 (放射性核種) を核変換することで放射能を減らすとともに、有用な元素を回収し資源として利用する方法の開発に取り組んでいます (図1)。

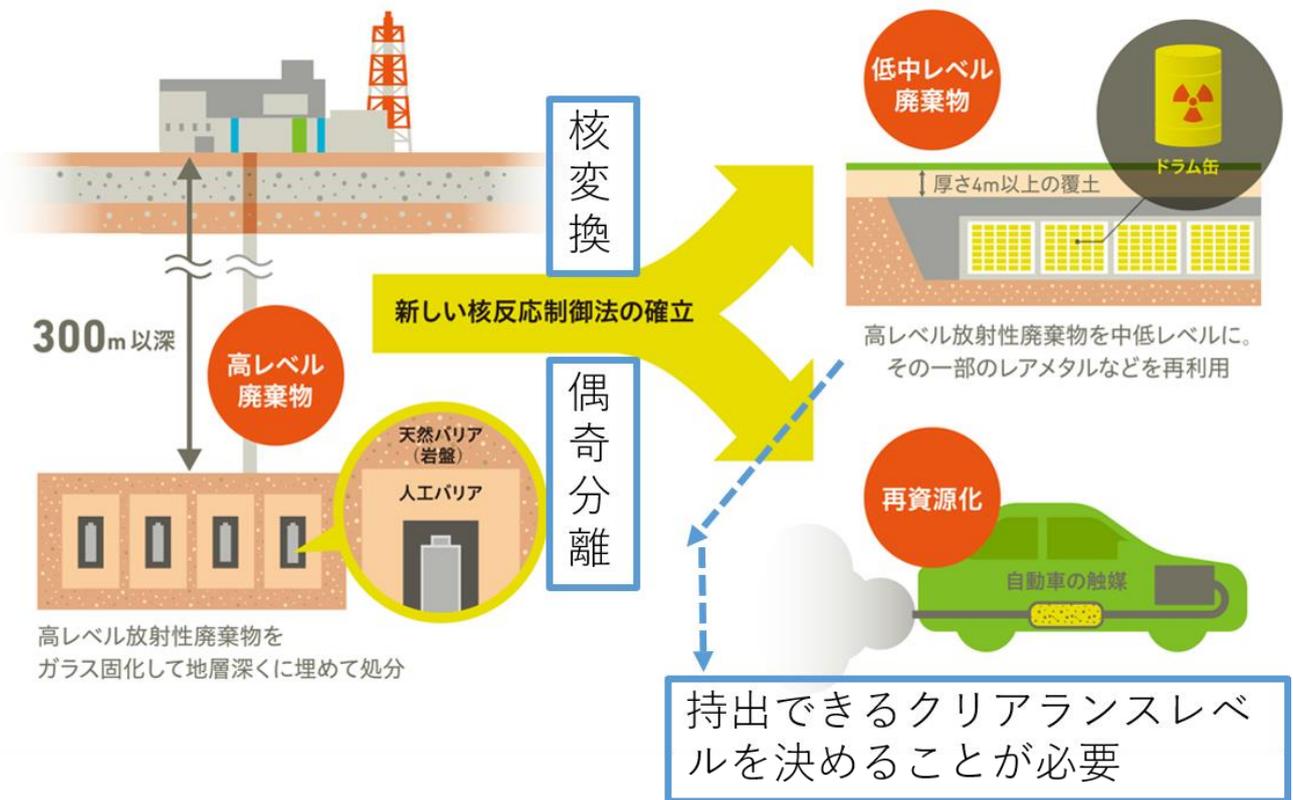


図1. ImPACT 藤田プログラムにおける高レベル放射性廃棄物の核変換と再利用に関する研究の全体概要図

高レベル放射性廃棄物にはパラジウムやジルコニウムなどの有用な元素が含まれていて、藤田プログラムではこれを回収し、分離・核変換して再利用することを目指しています。なかでも白金族元素のパラジウムは自動車排ガス触媒などに使用される貴金属で、これを回収して再利用できれば、資源の少ない日本にとって朗報となります。しかし、再利用する上での問題点の一つは、回収したパラジウムの中に微量の放射性のパラジウムが残留してしまうことです。そこで、残留した放射性パラジウムの濃度がどれくらいまでなら人体への影響は起こらず、放射線管理区域から持ち出して一般の生活環境で使用しても問題ないかという基準（クリアランスレベル）を明らかにしておく必要があります。

今回の研究では、パラジウムの原料から製品への流れ、利用形態、廃棄の状況といったマテリアルフローについて詳細に調査するとともに、人体がパラジウムを取り込む経路と量を推定して、それぞれについて放射線被ばく線量を評価し、それに基づいてクリアランスレベルを試算しました。その結果、高レベル放射性廃棄物から回収されたパラジウムに含まれる可能性のある放射性パラジウム (^{107}Pd) のクリアランスレベルは1グラム当たり約3000ベクレルと試算できました。なお、この試算値は、原子炉施設から出てくる廃材に含まれる放射性コバルトや放射性セシウムなどの放射性核種に対するクリアランスレベルに比べて、かなり高い濃度です。これは放射性パラジウムが非常に弱いベータ線しか放出しないことから、外部被ばくを考慮する必要がないこと、化学的に安定な固体で空気中への飛散が少ないこと、土壌に沈着しても植物には移行しにくく、食品中の濃度が高くないことなどによるものです。

これまで、高レベル放射性廃棄物から回収された元素に対する具体的なクリアランスレベルを提示した例はなく、放射線管理学上の意義があります。また、再利用する概念のなかった放射性パラジウム (^{107}Pd) にはクリアランスレベルは決められておらず、再利用の道が閉ざされていましたが、本成果は、パラジウムの資源化・実用化を実現するために必要となる国際的な指針を国際原子力機関 (IAEA) において検討するための足がかりとなり得ます。さらに、取り出したパラジウムにどの程度の放射性パラジウムが混入していても再利用できるかが明示されたことで、現在進めているレーザー偶奇分離法や加速器による核変換法の開発に具体的な目標も設定できました。

本研究の結果は、2018年9月14日に国際学術誌「Journal of Nuclear Science and Technology」にオンライン掲載されたとともに、9月30日から開催された経済協力開発機構・原子力機関 (OECD/NEA) の専門家会議でも発表されました。

1. 背景

原子力発電で使用された核燃料の再処理過程で出てくる高レベル放射性廃棄物は、非常に半減期の長い放射性核種を含んでおり、その処理・処分は、後世にも負担を強いる重要な課題です。これを、より半減期が短く、保管や取り扱いが容易な核種に変えて放射能を減らす核変換技術が求められています。

高レベル放射性廃棄物には、核燃料中のウランが中性子を取り込むことで生成される「マイナーアクチノイド」と、ウランの核分裂によって生成される「核分裂生成物」が含まれています。マイナーアクチノイドについては、高速増殖炉や加速器駆動型原子炉などで加速した中性子を使った核変換技術が、長年にわたって基礎的・系統的に研究されてきました。一方、核分裂生成物については有効な核変換技術がなく、放射能を効率よく減らすための基盤開発が進んでいませんでした。

内閣府 革新的研究開発推進プログラム (ImpACT: Impulsing Paradigm Change through disruptive Technologies Program) の「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」では、放射性廃棄物の問題を解決するため、廃棄物から有用元素を回収し資源として利用する方法や、長寿命核分裂生成物 (LLFP)

を取り出し、数十年単位で半減する核種もしくは安定核種に変換して放射能を減らす方法を開発しています。

化学分離やレーザー偶奇分離法で有用元素を回収し再利用する方法の開発とともに、困難であった核分裂生成物についても、加速器を用いた核変換技術を開発するなど、多くの成果を挙げてきました。

高レベル放射性廃棄物に含まれる有用な元素のうち、特に白金族元素のパラジウムは、非常に高価な貴金属です。自動車排ガス触媒や化学工業での触媒としてのほか、歯科用の資材（義歯や補綴材）、電子部品、装飾品などに利用され、日本では年間約 80 トンの需要があります。安定した供給が求められますが、資源の少ない日本はそのすべてを輸入に依存してきました。高レベル放射性廃棄物 1 トンにはパラジウムが約 1 キログラム含まれているので、これを回収して再利用できれば朗報となります。

高レベル放射性廃棄物からパラジウムを取り出すと、安定核種のパラジウム（例えば ^{104}Pd や ^{106}Pd ）だけでなく放射性核種のパラジウム（ ^{107}Pd ）も含まれています。藤田プログラムでは、パラジウムの質量が偶数なら安定核種、奇数なら放射性核種であることを利用し、偶奇分離法と呼ばれるレーザーによる分離方法で、質量が偶数の（つまり安定核種の）パラジウムだけを取り出す研究を進めています。

しかし、この分離方法も完全ではなく、取り出したパラジウムの中に微量の放射性のパラジウムが残留してしまいます。仮に 1 年間に 1 万ベクレルの ^{107}Pd を経口摂取したとすると、成人の場合、年間で約 0.0004 ミリシーベルトの放射線被ばくを受けることが分かっています。そこで、放射性のパラジウムがどれくらい残留していても再利用できるのか、一般環境へ持ち出すことのできる放射能濃度の指標（クリアランスレベル）をあらかじめ決めておく必要があります。

ある物質に放射性物質が含まれていても、その量や濃度が小さければ、人体には影響せず、普通に使用しても問題ありません。原子力発電所などの建築廃材については、すでにクリアランスレベルの設定に必要な調査や検討が行われ、クリアランスレベル以下であれば、一般環境で再利用することが認められています。しかし、高レベル放射性廃棄物から取り出したパラジウム中に残留する放射性パラジウムのクリアランスレベルについての調査研究は、世界的にも行われていませんでした。

高レベル放射性廃棄物からパラジウムを回収して再利用するという革新的な技術開発を可能にするためには、1) パラジウムの原料から製品への流れ、利用形態、廃棄の状況といったマテリアルフローについて詳細な調査研究を実施して人体がパラジウムを取り込む経路と量を推定すること、2) それぞれの経路について仮に放射性パラジウムが含まれていた場合の被ばく線量を明らかにすること、さらに、3) 得られた線量評価値に基づき、回収されたパラジウム中に含まれる放射性パラジウム（ ^{107}Pd ）のクリアランスレベルを試算して、藤田プログラムの目標値として提示することが求められていました。

2. 研究手法・成果

パラジウムの輸入から、製品への加工、使用量などのマテリアルフローに関しては、貿易統計などの政府文書、（独）石油天然ガス・金属鉱物資源機構ほか関係機関の報告書などを調査しました。放射性パラジウムの環境動態や人での線量評価に関しては、国際原子力機関（IAEA）の技術文書、国際放射線防護委員会（ICRP）の出版物を中心に調査しました。

パラジウムの人体摂取量や食品中濃度などに関しては、主として国際保健機関（WHO）や英国食品調査報告書を、職業環境における粉塵の最大許容空気中濃度などに関しては日本産業衛生学会の勧告をそれぞれ参照し、これらの勧告や報告書等に記載のない数値は、過去の関連する論文を参照しました。図 2 に、調査から得られた、日本におけるパラジウムのマテリアルフロー図を示しています。

クリアランスレベルの導出は、過去に原子力安全委員会が行った「原子力施設から出てくる資材のクリアラ

ンスレベルの設定」の手順に準じて行いました。すなわち、初めにパラジウムの利用経路を詳細に調査し、高い線量を与える可能性のある経路（使用状況）を選択し、それぞれについて線量評価に必要な数値（パラメーター）を収集しました。

複数のパラメーターが過去に報告されている場合は、最も高い線量を与える（保守的な）パラメーターを選択して線量を計算し、常に安全側の評価となるように留意しています。線量評価は、対象とするパラジウム製品には均一に単位濃度、つまり1グラムのパラジウムに1ベクレルの放射性パラジウム (^{107}Pd) が含まれているものと仮定し、1年間に受ける被ばく線量を計算しました。次に、原子力施設に起因する資材のクリアランスレベルの設定に使われた年間10マイクロシーベルトを与える濃度を計算し、求められた濃度のうち、もっとも低い濃度がクリアランスレベルとして適当であるとしました。

表1に、4つの評価経路（使用状況）において計算された年間の被ばく線量と、それをもとに計算された年間10マイクロシーベルトを与える ^{107}Pd の濃度を示します。これらの経路は、パラジウムのマテリアルフローから見て量的に重要なもの、使用方法として特徴的なもの、高い線量を与えると推定されたものです。これ以外の経路についても検討しましたが、ここに示した以上に高い線量を与える経路は見つかっていません。

以上の結果、高レベル放射性廃棄物から回収されたパラジウムに含まれる可能性のある放射性パラジウム (^{107}Pd) のクリアランスレベルは1グラム当たり約3000ベクレルと試算できました。これまで、高レベル放射性廃棄物から回収された元素に対する具体的なクリアランスレベルを提示した例はなく、本成果が初めてとなります。なお、この1グラムあたり3000ベクレルというクリアランスレベルの試算値は、原子炉施設から出てくる廃材に含まれる放射性コバルトや放射性セシウムのような放射性核種に対するクリアランスレベルに比べて、かなり高い濃度です。例えば、トリチウムのクリアランスレベルの30倍、コバルト-60の3万倍になります。これは、放射性パラジウムが非常に弱いベータ線しか放出しないことから、外部被ばくを考慮する必要がないこと、化学的に安定な固体で空気中への飛散率が小さいこと、土壌に沈着しても植物には移行しにくく、食品中の濃度が高くないことなどによるものです。

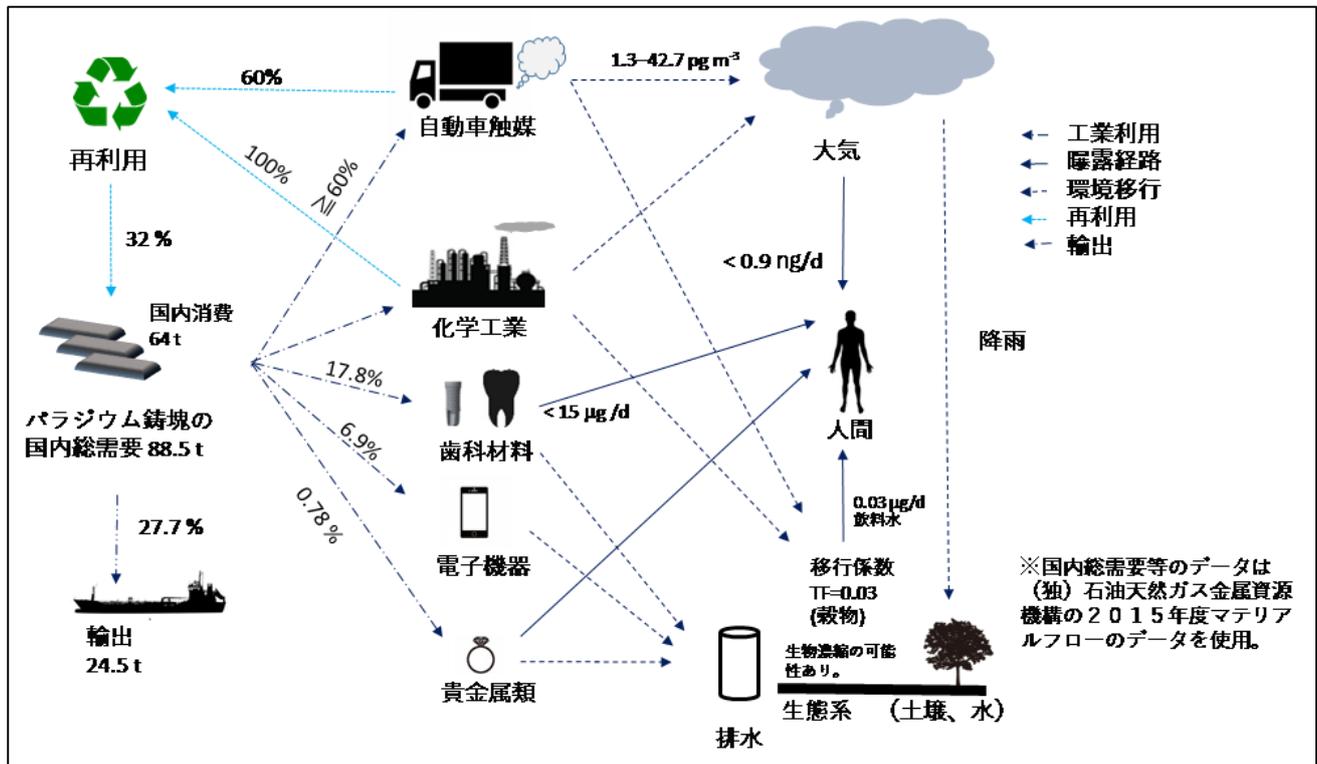


図2. 日本におけるパラジウムの利用状況と人での曝露量

評価経路（使用形態）	1Bq/g の濃度での最大線量（mSv/年）	10 μ Sv/年に相当する濃度（Bq/g）	備考
自動車排ガス触媒から放出された微粒子の吸入	3.3×10^{-12}	3.1×10^9	成人、一般公衆
食品・飲料水からの摂取	1.3×10^{-10}	7.8×10^7	1-2 歳児
歯科補綴材（義歯など）からの溶出	2.0×10^{-10}	4.9×10^7	成人、一般公衆
パラジウムの加工時における粉塵の吸入	3.2×10^{-6}	3.2×10^3	成人、金属加工 作業者

表 1. ^{107}Pd が 1 Bq/g 含まれていた場合の 4 評価経路における年間の最大放射線被ばく実効線量

表の説明：自動車排ガス触媒への利用は、量的に最も大きいですが、これまでに観測されている最も高い空気中濃度のパラジウムエアロゾル（微粒子）を吸入したとしても、含まれる放射性パラジウムによって受ける線量は大きくない。また、歯科補綴材としてパラジウムが使用されているが、溶解して体内に摂取される量は比較的少なく、放射性パラジウムが 1 Bq/g の濃度で含まれていても最大の線量は年間 2.0×10^{-10} ミリシーベルトである。一方、パラジウム金属を加工するような職業環境において、日本産業衛生学会が定める空気中粉塵の最大許容濃度である $2\text{mg}/\text{m}^3$ でパラジウムの粉塵が存在し、その中に放射性パラジウムが 1 Bq/g の濃度で含まれていた場合は、対象とした評価経路の中では最も高い線量 3.2×10^{-6} ミリシーベルトが予測された。年間 10 マイクロシーベルト以下の線量であれば一般環境に持ち出せるとすると、クリアランスレベルは $3200\text{Bq}/\text{g}$ となる。

3. 波及効果、今後の予定

本研究で放射性パラジウムの具体的なクリアランスレベルを提示したことは、まず放射線管理学上の意義があります。加えて、取り出したパラジウムにどの程度の放射性パラジウムが混入していても再利用できるかを明示したことで、藤田プログラムが現在進めているレーザー偶奇分離法や加速器による核変換法の開発に、具体的な目標を提示したという意義もあります。

次の段階として、パラジウムに関して使用したパラメーター（線量評価に用いた数値）が適切であるかどうかの検証を行います。経口摂取量など一部の数値については、実験を行って確認をする必要があります。また、パラジウム以外にジルコニウムなどの再利用も考えられており、それらの元素についてもクリアランスレベルを検討していきます。

藤田プログラムでは、本成果がクリアランスレベルを提示したことによって、放射性核種を含む物質を再利用して生活環境に持ち込むという行為の正当性と利点についての議論の出発点になることも期待しています。

4. 研究プロジェクトについて

- 内閣府 革新的研究開発推進プログラム (ImPACT)
- プログラム・マネージャー：藤田 玲子
- 研究開発プログラム：核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化
- 研究開発課題：長寿命核分裂核種の再利用に伴う放射線被ばく線量の評価とクリアランスレベルの検討
- 研究開発責任者：高橋千太郎（京都大学複合原子力科学研究所 特任教授）

- 研究機関：平成 28 年 4 月～平成 31 年 3 月

本研究開発課題では、高レベル放射性廃棄物から回収した有用元素を再利用するにあたり必要なクリアランスレベルを明らかにするため、それぞれの元素の市場で動き（マテリアルフロー）を調査し、高い線量を与えると想定される経路や特殊な利用経路について実際に線量評価を行い、LLFP の資源化の開発研究に資することを目指しています。

藤田 玲子 プログラム・マネージャーよりコメント

ImPACT プログラム「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」では、レーザー偶奇分離法を用いて重要元素の回収を可能とするとともに、加速器による新しい核変換の経路を実現することにより、高レベル放射性廃棄物に含まれる長寿命核分裂生成物（LLFP）を低減・資源化する方法を提案することを目指しています。



回収された有用元素を再利用する際には、微量混入する放射性核種による被ばく影響を避けることが必須です。今般、京都大学複合原子力科学研究所のグループがパラジウムの製造や利用、人体への曝露、放射線被ばく線量に関して広範な調査研究と試算を行い、クリアランスレベルを世界で初めて提案しました。本成果は、高レベル放射性廃棄物の低減・資源化へ向けた大きな一歩になると考えています。

<用語解説>

高レベル放射性廃棄物：使用済み核燃料の再処理で出てくる廃棄物のうち特に放射能の高いもの。地下埋設による廃棄処分が計画されているが、半減期の長い放射性同位体を含んでいるため長期の管理を必要とする。

パラジウム：白金族元素の一つ。白金やロジウムと共に自動車排ガスを浄化するための触媒として多く利用されている。また、金や銀との合金として義歯や歯科用補綴材（詰め物）にも利用されている。質量数が偶数の同位体は安定であるが、質量数が奇数の ^{107}Pd は半減期の長い放射性同位元素（放射性核種）である。

クリアランスレベル：ある物質に放射性物質が含まれていても、その濃度が小さければ人体への影響ははなく、放射線管理区域から持ち出して一般生活環境で使用しても問題ない。このことから原子力発電所などの建物が解体される際に出てくるコンクリートや鉄筋などは、微量の放射性物質が含まれていても、あらかじめ決められた放射能濃度（クリアランスレベル）以下であれば一般環境で使用することが認められている。

核変換：原子核に陽子や中性子をぶつけて、陽子や中性子の数の異なる元素や同位体に変えること。高レベル放射性廃棄物に含まれる半減期の長い放射性同位元素（放射性核種）を核変換して、安定同位体や半減期の短いものに変えることで、廃棄物の環境への負荷を低減しようとする技術開発が進められている。

偶奇分離法：原子核の質量が偶数か奇数かによってレーザーによる励起の程度が異なることを利用して、原子量の偶数・奇数で同位元素を分離すること。パラジウムの場合、安定同位元素の質量数が偶数（104 と 106）、放射性同位元素の質量数が奇数の 107 であることから、レーザー偶奇分離法によって安定同位元素（安定核種）と放射性同位元素（放射性核種）を分離できる。

<論文タイトルと著者>

(1)

タイトル：Estimation of the radiation dose of ^{107}Pd in palladium products and preliminary proposal of appropriate clearance level (パラジウム製品に放射性パラジウム (^{107}Pd) が含まれていたときの放射線量の推定と適切なクリアランスレベルの予備的提示)

著者：Sentaro TAKAHASHI, Momoyo IKEDA, Kayoko IWATA, Sota TANAKA, Rui AKAYAMA, and Tomoyuki TAKAHASHI

掲載誌：Journal of Nuclear Science and Technology DOI : 10.1080/00223131.2018.1516580

(2)

タイトル：Lifecycle of palladium in Japan: for setting clearance levels of ^{107}Pd (日本におけるパラジウムのライフサイクル：放射性パラジウム (^{107}Pd) のクリアランスレベル設定に向けて)

著者：Tomoyuki Takahashi, Kayoko Iwata, Sota Tanaka, Naoki Takashima, Tomoyuki Ikawa, Sentaro Takahashi

掲載誌：Journal of Nuclear Science and Technology DOI : 10.1080/00223131.2018.1435316