

企画セッション | 総合講演・報告：総合講演・報告4 科学研究費助成事業 基盤研究(S)「福島原発事故で発生した廃棄物の合理的な処理・処分システム構築に向けた基盤研究」[バックエンド部会，再処理・リサイクル部会共催]

■ 2016年3月27日(日) 13:00～14:30 | 会場 講義棟B棟 B200

[OV04] 福島原発事故で発生した廃棄物の合理的な処理・処分システム構築に向けた基盤研究

座長：新堀 雄一（東北大）

[OV0401] (1)本研究の背景と目的

＊池田 泰久¹ (1.東工大)

[OV0402] (2)廃棄物性状評価研究の成果

燃料デブリの性状評価と放射性物質の溶出挙動評価

＊佐藤 修彰¹ (1.東北大)

[OV0403] (3)廃棄物処理研究の成果

固体廃棄物の除染・減容固化法及び液体廃棄物の分離・吸着法の評価

＊三村 均¹ (1.東北大)

[OV0404] (4)廃棄物処分研究の成果

高塩濃度及び従来と異なる廃棄物が処分に与える影響評価

＊出光 一哉¹ (1.九大)

総合講演・報告 4 「福島原発事故で発生した廃棄物の合理的な処理・処分システム構築に向けた基盤研究」
Basic Studies for Developing Rational Treatment and Disposal System of Radioactive Wastes Generated
by Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident

(1) 本研究の背景と目的

(1) Background and Objectives of This Study

*池田 泰久¹, 竹下 健二¹, 小崎 完², 佐藤 努², 桐島 陽³, 佐藤 修彰³, 新堀 雄一³, 三村 均³,
鈴木 達也⁴, 佐々木 隆之⁵, 稲垣 八穂広⁶, 出光 一哉⁶

¹東工大, ²北大, ³東北大, ⁴長岡技科大, ⁵京大, ⁶九大

1. 背景

福島第一原子力発電所事故では、事故発生時応急的な核燃料冷却のため、海水が原子炉内に注入されたことから、高温状態であった核燃料が海水を含む冷却水と接触したことが、従来の重大事故（米国スリーマイル島原発における冷却材喪失事故及び旧ソ連チェルノブイリ原発における原子炉爆発事故）ではなかったことである。また、従来の硝酸系再処理プロセスから発生する放射性廃棄物には該当しない異質な性状の廃棄物が発生している。従って、事故の復旧のためには、新たな科学的知見の取得と新しい概念に基づく処理・処分法の研究・開発が必要となっている。

2. 目的

上記の背景に基づき、本研究では、福島原発事故で発生した汚染物の合理的な処理・処分システム構築に向け、汚染物の性状評価－除染・処理－廃棄物の保管・管理－廃棄物の最終処分の各プロセス間の整合性を考慮し、プロセス全体としての合理性を図った処理・処分システムの開発のための基盤研究を行うことを目的とした。具体的には、廃棄物性状評価研究、廃棄物処理研究、発生する廃棄物の処分研究の3分野に分けて研究を行ってきている。

3. 研究内容及び体制

1) 廃棄物性状評価研究（東北大:桐島 陽, 佐藤 修彰, 京大:佐々木 隆之）

固体及び液体汚染物の性状評価研究として、燃料デブリ中の燃料及び構造材を含む固体の相関係の評価やそれら固体からの放射性核種の冷却水中への溶出挙動等の検討、燃料及び被覆管との反応によるUO₂-ZrO₂擬二元系や SUS 系材料、B₄C 制御材の酸化及び還元雰囲気における相関係に関する知見の取得、実照射試料やトレーサー添加試料を用いた海水あるいは純水への FP や TRU 成分の溶出挙動の評価を行ってきている。

2) 廃棄物処理研究（東北大:三村 均, 長岡技科大:鈴木 達也, 東工大:竹下 健二, 池田 泰久, 九大:稲垣 八穂広）

汚染物性状調査を踏まえて、将来的な汚染物の新規処理法について検討してきている。具体的には、新規媒体（超臨界 CO₂, イオン液体）を利用した除染法及び様々な廃棄物を対象としたガラス固化法、汚染水の海への放流のための法定レベル以下までに高除染するためのゼオライト吸着材の高機能化、Cs, Sr, α核種等の高除染吸着材の開発とその処理法、トリチウム処理法について研究を行ってきている。

3) 廃棄物処分研究（北大:小崎 完, 佐藤 努, 東北大:新堀 雄一, 九大:出光 一哉）

福島原発事故では多量の海水が施設に浸入しており、高濃度の塩分が含まれた廃棄物を処分する可能性がある。このため、高濃度塩分が処分場に与える影響を評価するため、これら環境下のベントナイト中の陽イオン／陰イオンの拡散挙動、塩分とセメント系材料及びフェロシアンとの長期相互作用について研究を行ってきている。

以上の成果を、これまで論文(7 報以上)や当学会で口頭発表(58 件)するとともに、今後、報告書としても取りまとめ、公表していく予定である。なお、本研究は、科学研究費（基盤研究（S）24226021）の一環として実施された。

*Yasuhisa Ikeda¹, Kenji Takeshita¹, Tamotsu Kozaki², Tsutomu Sato², Akira Kirishima³, Yuichi Niibori³, Nobuaki Sato³, Hitoshi Mimura³, Tatsuya Suzuki⁴, Takayuki Sasaki⁵, Yaohiro Inagaki⁶, and Kazuya Idemitsu⁶

¹Tokyo Institute of Technol., ²Hokkaido Univ., ³Tohoku Univ., ⁴Nagaoka Univ. of Technol., ⁵Kyoto Univ., ⁶Kyushu Univ.

総合講演・報告 4 「福島原発事故で発生した廃棄物の合理的な処理・処分システム構築に向けた基盤研究」

Basic Studies for Developing Rational Treatment and Disposal System of Radioactive Wastes Generated
by Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident

(2) 廃棄物性状評価研究の成果-燃料デブリの性状評価と放射性物質の溶出挙動評価-

(2) Results of Studies on Waste Characterization – Characteristics of Fuel Debris and Their Leaching Behavior –

*佐藤 修彰¹, 桐島 陽¹, 佐々木 隆之²¹東北大, ²京大

1. 緒言

福島第一原発の廃炉のためには新たな科学的知見の取得と新概念に基づく処理・処分法の研究・開発が必要である。現在展開している「福島第一原発事故において発生した燃料デブリの合理的な処理・処分システム構築に向けた基盤研究」においては、汚染物性状評価、汚染物処理ならびに廃棄物処分の研究を様々な角度から進めている。性状評価研究としては、固体および液体汚染物の性状評価研究について、燃料デブリ中の燃料および構造材を含む固体の相関係や、それら固体から放射性核種が冷却水中に溶出する際の化学的挙動等の検討を行ってきた。特に、過去の原子炉事故と異なる環境における模擬燃料デブリの高温における相関係や、同デブリ中の燃料成分やFPおよびMA核種等放射性物質の海水・真水への溶出挙動について調べてきた。

本報告では、主成分と考えられる $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 系酸化物やSUS、コンクリート等構造材を含む模擬燃料デブリについて酸化および還元雰囲気における相関係に関する知見、および、それらを海水に浸漬した際のFPやTRU成分の溶出挙動に関する成果について紹介する。

2. 成果

1) 固体性状評価研究: UO_2 燃料と被覆管との反応によるデブリの主成分と考えられる $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 系については擬二元系状態図に基づいて、U/Zr モル比が 10/90、50/50 および 90/10 になるように $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 系模擬デブリを調製し、酸化あるいは還元雰囲気下所定温度において加熱処理した後、XRD 法により相関係を調べた。還元雰囲気においては、U/Zr 比が異なるいずれの試料においても、fcc 構造をとる UO_2 固溶体($\text{Zr}_y\text{U}_{1-y}\text{O}_{2-x}$)および tetragonal 構造の ZrO_2 固溶体(t-(U,Zr)O_2)の 2 相が確認された。一方、酸化雰囲気($\text{Ar}+2\%\text{O}_2$)においては U 濃度が高い場合には U_3O_8 へ酸化される傾向が見られたが、Zr 濃度が高い場合には、 t-(U,Zr)O_2 相を生成し、 UO_2 のみの場合より固溶体化により酸化が抑制された。他の構造材 (SUS、 B_4C 、コンクリート) との反応性についても検討した。

2) 液体性状評価研究: 調製した試料を京大原子炉で熱中性子照射して FP および放射性物質を生成させた後、試料数 10mg と福島県南相馬市小高区の海岸で採取した海水 30 ml をポリプロピレン容器中で混合し、室温(298 K)にて所定時間振とうした。その後、孔径 $0.45\ \mu\text{m}$ フィルタ等を用いて固液分離し、固相および水相中の核種の γ 放射エネルギーを測定した。また、 ^{236}Pu や MA トレーサ(^{237}Np , ^{241}Am)および FP トレーサ(^{152}Eu , ^{137}Cs)を用いて同様に検討した。海水浸漬後 160 日経過した試料では、酸化処理した場合や、U 濃度が高い試料ほど、溶出率が高い傾向が見られた。トレーサ添加試料では振とう 4 日後で、 ^{137}Cs は 78 % と最も高く、 ^{152}Eu は 1 % 程度、U では 0.1%、 ^{237}Np , ^{236}Pu , ^{241}Am の TRU 核種では 0.04% 程度であり、アクチノイド核種の溶出率が低いことがわかった。

3. 結言

本研究の結果、 $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 模擬デブリの還元/酸化処理や U/Zr 比により、 UO_2 放射性核種の海水への溶出挙動に大きな影響を与えることが示唆された。

なお、本研究は、科学研究費 (基盤研究 (S) 24226021) の一環として実施した。

*Nobuaki Sato¹, Akira Kirishima¹, Takayuki Sasaki²

¹ Tohoku Univ., ² Kyoto Univ.

総合講演・報告 4 「福島原発事故で発生した廃棄物の合理的な処理・処分システム構築に向けた基礎研究」
Basic Studies for Developing Rational Treatment and Disposal System of Radioactive Wastes Generated
by Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident

**(3) 廃棄物処理研究の成果－固体廃棄物の除染・減容固化法及び液体廃棄物の
分離・吸着法の評価－**

(3) Results of Studies on Radioactive Waste Treatment –Evaluation of Decontamination・Volume
Reduction Solidification Method for Solid Wastes and Separation・Adsorption Method for Liquid Wastes–

* 三村 均¹, 池田 泰久², 竹下 健二², 鈴木 達也³, 稲垣 八穂広⁴

¹東北大, ²東工大, ³長岡技科大, ⁴九大

1. 諸言

福島第一原発事故の固体および液体廃棄物処理では、ステップ初期での除染の経験から、コンパクトで効率性および安全性の高い新規処理法の開発が重要となっている。本研究では、汚染物性状調査を踏まえて、将来的な汚染物の新規処理法について検討し、処分時の安全性評価にかかわる基礎データを取得した。

2. 成果

1) 固体廃棄物処理研究： 高濃度に汚染された固体廃棄物には従来の除染技術が適用できないことが予想され、通常の核燃料サイクル工程のものとは異なる固体廃棄物も発生している。そこで、新規媒体（超臨界 CO₂やイオン液体）を利用した除染法および様々な廃棄物の効率的なガラス固化技術について検討した。研究成果としては、熱応答性イオン液体(IL)を用い硝酸水溶液から IL 相へ効率的に U(VI)が抽出されることから、ウラン廃棄物への適用性を見出した。超臨界 CO₂への金属錯体の溶解性を調べ、フッ素を含むキレート剤と modifier を用いることでランタノイド(III)を、またフッ素型クラウンエーテル誘導体により Sr(II)を高効率に除染可能であることを明らかにした。Cs 吸着ゼオライトのガラス固化技術としては、熔融ガラス固化条件と Cs 固定化率等の固化体の諸特性との相関をコールドおよびホット試験により評価した。1,100℃が適切均質固化温度であること、融剤添加量の増加による Cs 固定化率の低下は、ホウ酸との化合物生成が影響していることを明らかにした。

2) 液体廃棄物処理研究： 原子炉の安全な冷却及び処分の軽減の観点から、汚染水中の放射性物質の除去・淡水化・再利用、汚染海水及び余剰の精製淡水の海への放流のため、法定レベル以下にまで高除染する技術開発が必要である。Cs および Sr の高除染は、フェロシアン化物担持A型ゼオライトにより、海水から Cs、Sr を 95 %および 60 %以上吸着できること、高温焼結により安定固化が可能であることを見出した。多核種用高除染剤としては、タンニン酸を化学修飾した新規有機複合吸着剤により、海水系で Cs, Sr, Ln、An および I に高い吸着性を有することを見出した。トリチウム除去のための水・水素同位体交換プロセスの開発では、水蒸留プロセスとの比較、多段分離塔型および新規な疎水性白金触媒を用いたトリクルベクト型を評価し、水・水素交換法は比較的小規模での分離プロセス構築が可能であることを明らかにした。

3. 結言

本研究の成果として、固体廃棄物および液体廃棄物に対する新規の除染技術が開発され、コンパクトで効率性および安全性の高い将来的な新規除染処理法の構築が可能であることが示された。なお、本研究は、科学研究費（基盤研究（S）24226021）の一環として実施した。

* Hitoshi Mimura¹, Yasuhisa Ikeda², Kenji Takeshita², Tatsuya Suzuki³, Yaohiro Inagaki⁴

¹Tohoku Univ., ²Tokyo Institute of Technol., ³Nagaoka Univ. of Technol., ⁴Kyushu Univ.

総合講演・報告 4 「福島原発事故で発生した廃棄物の合理的な処理・処分システム構築に向けた基盤研究」
Basic Studies for Developing Rational Treatment and Disposal System of Radioactive Wastes Generated
by Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident

(4) 廃棄物処分研究の成果－高塩濃度及び従来と異なる廃棄物が処分に与える影響評価－

(4) Results of Studies on Radioactive Waste Disposal – Evaluation of Effects of Uncategorized Waste on Disposal –

*出光 一哉¹, 小崎 完², 佐藤 努², 新堀 雄一³

¹九大, ²北大, ³東北大

1. 緒言

福島第一原発の廃炉のためには新たな科学的知見の取得と新概念に基づく処理・処分法の研究・開発が必要である。「福島第一原発事故において発生した廃棄物の合理的な処理・処分システム構築に向けた基盤研究」においては、廃棄物性状評価、廃棄物処理ならびに廃棄物処分の研究を様々な角度から進めている。処分研究として、従来と異なる廃棄物が処分に与える影響について実験的に検討を行なってきた。本報告では、高塩濃度環境におけるベントナイト中の核種の移行挙動およびコンクリートとの相互作用、共沈処理によって発生したフェロシアン等の廃棄物の安定性に関する成果について紹介する。

2. 成果

1) 高濃度の塩を含む放射性廃棄物固化体が核種移行に与える影響：高塩濃度ではベントナイトの乾燥密度が低い場合は拡散係数が大きくなる傾向があるが、乾燥密度が高い場合はその変化は小さいこと、Cs⁺については、収着係数とそのエンタルピー、見かけの拡散係数とその活性化エネルギーをそれぞれ求め、低乾燥密度では自由空隙中の拡散が、高乾燥密度では2水分子層状態のモンモリロナイト層間の拡散が支配的である可能性を明らかにした。また、モンモリロナイト端部へのCsの収着挙動を、パイロフィライトを用いた分子動力学計算で検討し、結晶端部に複数の収着サイトが存在することを明らかにした。一方、陰イオンの拡散に関しては、みかけの拡散係数の活性化エネルギーは自由水中の陰イオンのものと同様であることから、ベントナイト自由空隙中を拡散経路としていることが示唆された。高塩濃度ではベントナイト中のモンモリロナイトの膨潤性が低下することで自由空隙が増え、拡散係数の増大が起こる。しかし、陽イオンと同様、乾燥密度が高い場合は、その変化は小さい。

2) 従来とは異なる廃棄物が処分に与える影響：高塩濃度におけるCs⁺とコンクリートとの相互作用については、Ca/Siモル比（C/S比）が0.4に低下してもCSHは安定であること、CSHとCsとの相互作用はC/S比が小さい方が強くなることを明らかにした。処分場の構造物等に利用するセメントがその劣化によってCsの閉じ込め効果を向上させることを示唆する結果を得た。処分場において生成するカルシウムシリケート水和物（CSH）が、高塩濃度においても安定に存在することを、ラマンスペクトルやEuの蛍光寿命から明らかにした。さらに、Cs⁺を吸着したゼオライトや鉄共沈物の処理・処分に関して、実際に使用されているハーシュライトの浸出率が天然ゼオライトよりも高く、セメント中ではハーシュライトが安定でないことを示唆する結果を得ている。一方、フェロシアンに対しては、ある種の微生物はフェロシアンをシアン化物イオン（CN⁻）にまで分解可能であることが確認され、フェロシアンを容器等に入れて直接処分すると、微生物活動によってCN⁻が浸出する可能性を示している。

3. 結言

本研究の結果、高塩濃度環境は低密度ベントナイトにおいて核種の拡散を増大させるが、高密度の場合は影響が小さいこと、高塩濃度環境においてコンクリート中のCSHは安定であり閉じ込め機能を維持することを明らかにした。一方、セメント中ではハーシュライトが不安定化すること、微生物がフェロシアンを分解しシアン化物イオンを発生させる可能性が示唆された。なお、本研究は、科学研究費（基盤研究（S）24226021）の一環として実施した。

*Kazuya Idemitsu¹, Tamotsu Kozaki², Tsutomu Sato², Yuichi Niibori³

¹ Kyushu Univ., ²Hokkaido Univ., ³Tohoku Univ.