

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials : 505-1 Radioactive Waste Management

📅 Thu. Sep 12, 2024 10:50 AM - 11:55 AM JST | Thu. Sep 12, 2024 1:50 AM - 2:55 AM UTC 🏠 Room K(Recture RoomsB 2F B200)

[2K05-08] 1F Waste 4

Chair:Yoshihiro Okamoto(JAEA)

10:50 AM - 11:05 AM JST | 1:50 AM - 2:05 AM UTC

[2K05]

Evaluation of minor actinide dissolution behavior from simulated fuel debris by a sequential extraction technique

*Sota Sunahara¹, Daisuke Akiyama¹, Yuki Yokota¹, Akira Kirishima¹ (1. Tohoku Univ.)

11:05 AM - 11:20 AM JST | 2:05 AM - 2:20 AM UTC

[2K06]

Relation of Cooling Rate to Crystal Structure and Microstructure of (U, Zr)O₂

(4) Estimation of the Cooling Rate of U-Zr-Fe-Cr-O Particle

*Yoichi Endo¹, Kan Sakamoto¹, Atsushi Ouchi¹, Hiroki Yokoyama¹, Masato Mizokami², Mutsumi Hirai² (1. NFD, 2. TEPCO HD)

11:20 AM - 11:35 AM JST | 2:20 AM - 2:35 AM UTC

[2K07]

Cesium-rich microparticle (CsMP): A window into the damaged reactors and its environmental impacts

(11) Information on the inside of reactors provided by CsMPs and super radioactive particles.

*Satoshi Utsunomiya¹ (1. Kyushu Univ.)

11:35 AM - 11:50 AM JST | 2:35 AM - 2:50 AM UTC

[2K08]

Cesium-rich microparticle (CsMP): A window into the damaged reactors and its environmental impacts

(12) "Invisible" radioactive cesium atoms revealed: Pollucite inclusion in cesium-rich microparticles (CsMPs) from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

*Kanao Miyazaki¹, Kenji Horie², Mami Takehara², Shinya Yamasaki³, Takumi Saito⁴, Toshihiko Ohnuki⁵, Masahide Takano⁶, Hiroyuki Shiotsu⁶, Hajime Iwata⁶, Satoshi Utsunomiya¹ (1. Kyushu Univ., 2. NIPR, 3. Univ. of Tsukuba, 4. UTokyo, 5. Tokyo Tech, 6. JAEA)

11:50 AM - 11:55 AM JST | 2:50 AM - 2:55 AM UTC

Time reserved for Chair

逐次抽出法による模擬デブリからのマイナーアクチノイド溶出挙動の評価

Evaluation of minor actinide dissolution behavior from simulated fuel debris by a sequential extraction technique

*砂原 壮汰¹, 秋山 大輔¹, 横田 優貴¹, 桐島 陽¹

¹東北大学

抄録:燃料デブリ中のマイナーアクチノイド(MA)核種の溶出挙動を評価するために、MA トレーサー (²³⁷Np, ²⁴¹Am) と ¹⁵²Eu を添加した(U, Zr)O₂ 固溶体を模擬デブリとして合成し、これを対象として燃料デブリ版逐次抽出試験を実施し、各核種の溶出挙動を評価した。

キーワード: 燃料デブリ, マイナーアクチノイド, 逐次抽出法, 溶出挙動

1. 緒言

燃料デブリ中のマイナーアクチノイド (MA) 核種は放射能毒性が高く、その化学的挙動を把握することは燃料デブリの安全な保管方法や処理・処分方法を検討していくうえで重要である。そこで本研究では燃料デブリ中の MA 核種の溶出挙動を評価するために、MA トレーサー (²³⁷Np, ²⁴¹Am) と ¹⁵²Eu を添加した(U, Zr)O₂ 固溶体を模擬デブリとして合成した。これを対象として燃料デブリ版逐次抽出試験を実施し、各核種の溶出挙動を評価した。

2. 実験

2-1. 模擬デブリの合成

MA トレーサー (²³⁷Np, ²⁴¹Am) と ¹⁵²Eu を添加した U₃O₈粉末を、Ar + 10% H₂ 気流下 1000 °Cで 4 時間加熱して MA 添加 UO₂を調製した。この MA 添加 UO₂ 粉末と ZrO₂ 粉末とをモル比 U:Zr = 100 : 0, 90 : 10, 50 : 50 で混合後、Ar+10%H₂ 気流下 1600 °Cで 4 時間加熱して(U, Zr)O₂ 固溶体から成る模擬デブリ試料を調製し、それぞれ XRD を用いて結晶構造を評価した。

2-2. 燃料デブリ版逐次抽出試験

逐次抽出試験では小型遠心分離機とフィルターカップを使用した。模擬デブリ試料 200 mg と抽出液 400 μL をフィルターカップに入れ、1 時間浸漬後、遠心分離により固液分離した。ここでは抽出液として酢酸 (10⁻² M)、塩酸 (10⁻² M)、硝酸 (3 M) を逐次的に用いた。はじめの抽出終了後、超純水で試料を洗浄後し、次により反応性の高い抽出液を用いて抽出を行った。各抽出段階で液相に溶出した ²³⁸U, ²³⁷Np, ²⁴¹Am, ¹⁵²Eu の放射能を測定し、溶出率を導出した。²³⁸U, ²³⁷Np, ²⁴¹Am の放射能測定には Si 半導体型 α 線検出器を使用し、¹⁵²Eu の放射能測定には Ge 半導体型 γ 線検出器を使用した。

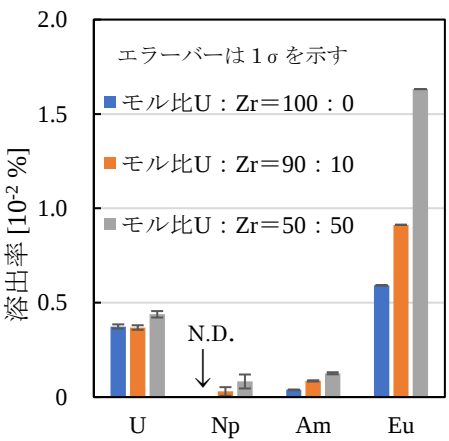


図 1 酢酸抽出時の各模擬デブリからの U, Np, Am, Eu の溶出率

3. 結果と考察

図 1 に酢酸抽出時の各模擬デブリからの U, Np, Am, Eu の溶出率を示す。Np, Am, Eu は模擬デブリ中の Zr 量の増加と共に溶出率が増加する傾向がみられた。Zr が UO₂ 相に固溶する置換型の固溶体形成時に、MA や Eu の一部が UO₂ 相から析出しマイナー相を形成したと見られ、酢酸のような反応性の低い抽出液においてはマイナー相からの溶出の影響が顕著となったと考えられる。このほか、他の抽出液で抽出した際の各核種の溶出挙動についても報告を行う。

【謝辞】本研究は JSPS 科研費 JP23K26584 の助成を受けたものです。

*Sota Sunahara¹, Daisuke Akiyama¹, Yuki Yokota¹ and Akira Kirishima¹

Tohoku Univ.

1F 炉内状況推定のための(U, Zr)O₂ の結晶構造及び微細組織への冷却速度影響試験

(4) Fe、Cr を含む U 含有粒子の冷却速度推定の試み

Relation of Cooling Rate to Crystal Structure and Microstructure of (U, Zr)O₂

(4) Estimation of the Cooling Rate of U-Zr-Fe-Cr-O Particle

*遠藤 洋一¹, 坂本 寛¹, 大内 敦¹, 横山 博紀¹, 溝上 暢人², 平井 睦²

¹NFD, ²東電 HD

U-Zr-Fe-Cr-O 系模擬デブリを異なる冷却速度で冷却し、冷却後の微細組織観察を行った結果、U-Zr-O 相と Cr-Fe-O 相の相分離組織の間隔を利用することで U-Zr-Fe-Cr-O 系の粒子やデブリの冷却速度が推定できる可能性を見出した。

キーワード：福島第一原子力発電所，冷却速度，U-Zr-Fe-Cr-O 系，相分離，拡散係数

1. 緒言

これまで冷却速度と(U, Zr)O₂の結晶構造、微細組織の関係の把握に取り組んできたが、Fe、Cr を含む U-Zr-Fe-Cr-O の 5 元系においても、冷却時の条件の影響を受けた組織を有していると考えられる粒子が見つっている^[1]。図に示す 2 号機原子炉建屋オペレーティングフロア養生シート領域 30（以下、2u オペフロ養生シート領域 30）の粒子は、U-Zr-O 相と Cr-Fe-O 相で構成されており、U-Zr-Fe-Cr-O 系溶融体が冷却過程で相分離した粒子と考えられ、析出物サイズが冷却速度に依存する可能性が示唆される。そこで、異なる冷却速度で冷却した U-Zr-Fe-Cr-O 系模擬デブリの微細組織観察を行って、冷却速度を推定する手法を探索した。

2. 手法

2u オペフロ養生シート領域 30 の粒子の組成となるように UO₂、ZrO₂、FeO、Cr₂O₃ の混合粉末を YSZ るつぽ内、Ar (G2) 気流下で完全溶融する 1900 °Cにおいて 10 分加熱後、急冷（冷却速度：1900 から 1200 °Cまでおよそ 700 °C/分）または徐冷（冷却速度：5 °C/分）して、断面の SEM/EDS 観察・分析を実施した。

3. 結果

図に採取粒子、模擬デブリの微細組織を比較している。いずれも U-Zr-O 相と Cr-Fe-O 相が入り組んだ相分離組織が観察されたが、その間隔には大きな差があり、2u オペフロ養生シート領域 30 の粒子が最も短く 0.1 μm 程度、急冷した模擬デブリで 1 μm 程度、徐冷した模擬デブリで 10 μm 程度であった。完全溶融し

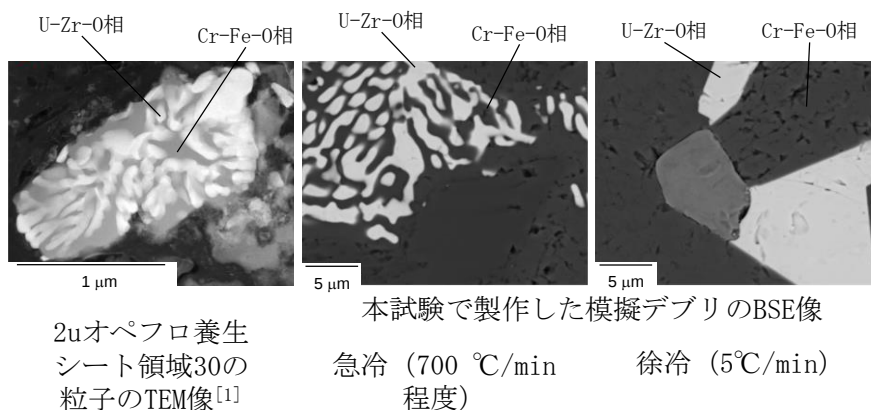


図 採取粒子、模擬デブリの微細組織の比較

ている 1900 °Cから固相割合が 50%を超えると予測される 1750 °Cまでに析出物が成長し、析出物の成長は構成元素の平均拡散距離に従うと仮定すると、模擬デブリの観察結果から拡散係数は 10⁻⁹ cm²/s 程度と見積もられた。評価した拡散係数を用いると、2u オペフロ養生シート領域 30 の粒子の冷却速度は約 10³ °C/s と推定され、高温安定相の(U,Zr)O₂粒子が観察されている結果と整合した。

参考文献

[1] 1～3 号機格納容器内部調査関連サンプル等の分析結果、2020 年 11 月 26 日 東京電力ホールディングス株式会社

*Yoichi Endo¹, Kan Sakamoto¹, Atsushi Ouchi¹, Hiroki Yokoyama¹, Masato Mizokami², and Mutsumi Hirai²

¹NFD, ²TEPCO HD

高濃度放射性セシウム含有微粒子（Cesium-rich microparticle, CsMP）の本質的解明に基づく炉内の情報と環境影響

(11) CsMP と"超"高放射性粒子が示す炉内情報

Radioactive cesium-rich microparticle (CsMP): A window into the damaged reactors
and its environmental impacts

(11) Information on the inside of reactors provided by CsMPs and super radioactive particles

*宇都宮 聡

九州大学

福島第一原発由来 1 号機由来の最高 Cs 放射能粒子を検出した。 $^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$ 放射能はそれぞれ $6.02 \times 10^5 \text{ Bq}$ 、 $2.48 \times 10^6 \text{ Bq}$ 、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は 0.971、0.954 であり 1 号機由来であることが示唆された。粒子内部は非晶質の炭素のみからなり、粒子表面に付着している多様な微粒子に Cs が収着していた。

キーワード：福島第一原発，“超”高放射性粒子，同位体，TEM，EELS

1. 緒言

2011 年 3 月に福島原発で起きた原子力災害により 520 PBq の放射性核種が放出された。 ^{137}Cs は半減期が約 30 年で現在も環境中の高線量の要因となっている。環境中に放出された難水溶性 Cs の 1 つの形態として 1 号機由来の放射性粒子が存在する。粒径が数百 μm ～数 mm と比較的大きく、1 粒子あたりの放射能が高い。1 号機由来粒子は原発から北北西方向の局所的な場所からのみ発見されており、この場所は 1 号機の水素爆発による放射性核種が沈着したことで、その周囲よりも特異的に線量が高くなっている。本研究でこれまでの福島の粒子中で最も放射能が高い粒子、“超”高放射性粒子の発見と精密分析に基づいて、その成因と条件を推定することを目的とした。

2. 実験

2018 年 8 月に福島県双葉郡双葉町で採取した土壌から、2 つの粒子(FTB1、FTB26)を単離した。Ge 半導体検出器を用い放射能を測定後、SEM/TEM-EDX を用いて構造・組成分析を実施した。また、より放射能の高かった FTB26 については XRF による詳細な組成分析の後、X-CT により粒子の 3 次元像の構築を行った。更に粒子表面及び粒子断面に対して SIMS による Cs 同位体分析を行った。断面の一部を FIB で加工し TEM/STEM-EDX、EELS 分析を行った。

3. 結果・考察

今回単離した FTB1 と FTB26 の $^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$ 放射能はそれぞれ $6.02 \times 10^5 \text{ Bq}$ 、 $2.48 \times 10^6 \text{ Bq}$ 、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は 0.971、0.954 であり、1 号機由来の放射性粒子であることが示唆された。FTB26 の放射能は、これまでに報告されている福島原発由来の放射性粒子の中で最高の放射能を示した。FTB1 は粒径が 300 μm 程で主に O, Al, Si, Fe から構成されていた。FTB26 は粒径が約 3 mm と大きく、歪な形状の放射性粒子だった。組成分析の結果、主成分は C で構成され、表面には Si が主成分の微粒子や繊維状の微粒子が点在していた。XRF、X-CT から、粒子表面にのみ高密度な部分が存在し、粒子内部は低密度かつ多孔質な構造であることが分かった。更に、断面の組成分析及び EELS の結果から、FTB26 はガラス様炭素またはポリマーをコアとして、建屋内建造物由来とされる微粒子が表面に埋め込まれた構造をしていた。この組織は 1 号機メルトダウン時に建屋内で充満していた大気微粒子を捕獲したものと考えられる。また、同位体分析の結果、非晶質炭素から Cs は検出されず、表面の微粒子からのみ Cs が検出された。また、Cs が水素爆発以前に揮発し、圧力容器から原子炉建屋内部に放出された後に建屋内建造物に吸着していたことを示唆している。さらに各粒子の合計はメルトダウン時の建屋内大気中ダストの平均的な組成を示した。

*Satoshi Utsunomiya¹

¹Kyushu Univ.

高濃度放射性セシウム含有微粒子 (Cesium-rich microparticle, CsMP) の本質的解明に基づく炉内の情報と環境影響

(12) 福島第一原発から放出された"放射性セシウム原子"の可視化

Radioactive cesium-rich microparticle (CsMP): A window into the damaged reactors
and its environmental impacts

(12) "Invisible" radioactive cesium atoms revealed: Pollucite inclusion in cesium-rich microparticles (CsMPs) from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

*宮崎 加奈子¹, 堀江 憲路², 竹原 真美², 山崎 信哉³, 斉藤 拓巳⁴, 大貫 敏彦⁵,
高野 公秀⁶, 塩津 弘之⁶, 岩田 孟⁶, 宇都宮 聡¹

¹九大, ²国立極地研, ³筑波大, ⁴東大, ⁵東工大, ⁶JAEA

本研究では、環境試料から単離した高濃度放射性 Cs 含有微粒子(CsMP)に対して、 γ スペクトロメトリー、SEM、TEM を用いた系統的な分析に加えて HAADF-STEM とマルチスライス法像シミュレーションを行い、世界初の放射性 Cs 原子の可視化に成功した。

キーワード：高濃度放射性セシウム含有微粒子、放射性セシウム原子、ポルサイト

1. 緒言

2011 年 3 月に発生した福島第一原発の事故により～520 PBq の放射性物質が放出された。現在は ^{137}Cs による放射線量への寄与が大きく、環境中における放射性 Cs の動態の把握は重要な課題となっている。しかし、環境試料中に含まれる放射性 Cs の原子・分子スケールでの直接観察は濃度が低いために困難であった。本研究は、環境試料中の放射性セシウム原子を電子顕微鏡観察によって可視化することを目的として行った。

2. 実験

本研究では、環境試料から単離した高濃度放射性 Cs 含有微粒子(CsMP)に対して、 γ スペクトロメトリー、SEM、TEM を用いた系統的な分析に加えて HAADF-STEM とマルチスライス法像シミュレーションを行い、得られた像を比較、検討した。

3. 結果・考察

3 つの CsMP の中に Cs を高濃度(27-36%以上)含有する粒子が含まれ、ゼオライトの一種であるポルサイトを同定した。これらの組成式は $(\text{Cs}, \text{K}, \text{Ba})_{2.2}(\text{Fe}_{0.84}, \text{Zn}_{0.84}, \text{X}_{0.5})_{2.2}\text{Si}_{4.1}\text{O}_{12}$ と $(\text{Cs}, \text{K}, \text{Ba})_{1.5}(\text{Fe}_{0.66}, \text{Zn}_{0.32}, \text{X}_{0.6})_{1.6}\text{Si}_{4.6}\text{O}_{12}$ と $(\text{Cs}, \text{K}, \text{Ba})_{1.7}(\text{Fe}_{0.60}, \text{Zn}_{0.32}, \text{X}_{1.0})_{1.9}\text{Si}_{4.4}\text{O}_{12}$ (X には他の微量元素 Ti、Mn、Rb、Zr、Mo、Sn が含まれる)であった。 $[111]$ から観察したポルサイトの HAADF-STEM 像はポルサイト中の Cs 原子の六回対称の配列を示し、相対的な強度はシミュレーション像と一致した。Cs と比べて同サイトに位置する Ba、K の濃度が低いこと、Cs 同位体中の約 5 割が放射性 Cs 同位体であり、この像で可視化された Cs 原子の 2 分の 1 は放射性 Cs の原子を示しており、世界初の放射性 Cs 原子の可視化に成功した。ポルサイトはメルトダウンが起こった際に局所的に濃縮された Cs がシリカと反応し、熱水反応によって形成して、CsMP 中に取り込まれたと考えられる。また、これらのポルサイト中の放射性 Cs による β 線損傷エネルギーを計算したところ、非晶質化線量と比較して 2 桁以上低いため、結晶構造は長期間保持されることが予想される。これらの結果はメルトダウン時の炉内における Cs 分配挙動に関する新しい知見であり、シビアアクシデント現象の解析に有用である。

*Kanako Miyazaki¹, Kenji Horie², Mami Takehara², Shinya Yamasaki³, Takumi Saito⁴, Toshihiko Ohnuki⁵, Masahide Takano⁶, Hiroyuki Shiotsu⁶, Hajime Iwata⁶, Satoshi Utsunomiya¹

¹Kyushu Univ., ²NIPR, ³Univ. of Tsukuba, ⁴UTokyo, ⁵Tokyo Tech, ⁶JAEA