

一般セッション | V. 核燃料サイクルと材料：505-1 放射性廃棄物処理

2025年3月13日(木) 10:25 ~ 11:55 H会場(Zoomルーム8)

[2H03-07] 放射性廃棄物処理

座長:桜木 智史(原環セ)

10:25 ~ 10:40

[2H03]

UO₂-Zr-ステンレス系化合物の溶解挙動*頓名 龍太郎¹、小林 大志¹、佐々木 隆之¹ (1. 京大)

10:40 ~ 10:55

[2H04]

東日本大震災の影響を受けた廃樹脂に対する水蒸気共存下熱分解技術の適用性評価

*中原 滉基¹、佐藤 勇¹、内山 翠²、田尻 康智²、鬼木 俊郎²、松浦 治明¹ (1. 東京都市大学、2. 株式会社IHI)

10:55 ~ 11:10

[2H05]

熔融ホウケイ酸ガラス中の板状白金族合金の化学的存在状態解析

*加藤 瑞希¹、松浦 治明¹、佐藤 勇¹、大岩 祐毅¹、千葉 紗香¹、多田 晴香²、和泉 博貴² (1. 東京都市大学、2. 株式会社IHI)

11:10 ~ 11:25

[2H06]

プルトニウムを含む実験済廃油及び廃液の安定化処理

*佐藤 匠¹、坂本 直樹¹、大塚 智史¹ (1. JAEA)

11:25 ~ 11:40

[2H07]

SPring-8放射光を利用した福島第一原子力発電所由来放射性微粒子のマイクロXRF/XRD/XAFS分析

*小林 徹¹、谷田 肇¹、小島 雅明¹、岡本 芳浩¹、藤森 伸一¹、岡根 哲夫¹、矢板 毅¹、鈴木 紳悟¹、前田 宏治¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

11:40 ~ 11:55

座長持ち時間

UO₂-Zr-ステンレス系化合物の溶解挙動

Dissolution behavior of UO₂-Zr-stainless steel system samples

*頓名龍太郎¹, 小林大志¹, 佐々木隆之¹

¹京大

UO₂, Zr, ステンレスを初期組成とする化合物および同化合物中に生成が確認されたウラン固相の単相を調製し、水への浸漬試験を実施した。溶解量を評価し、UO₂-Zr-ステンレス系化合物の溶解挙動を種々の単相 U 固相の溶解挙動と関連付けて考察した。

キーワード：溶解挙動, UO₂-Zr-ステンレス系, 有機酸

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故では UO₂ 燃料とジルカロイ被覆管、ステンレス(SS)製の原子炉構造材が高温で反応し燃料デブリを形成した。事故後の炉内の燃料デブリが水に接触している様子が確認されており、燃料デブリの溶解など水との様々な反応が進行していると考えられる。1F 廃炉措置を安全に進めていく上で、燃料デブリの水への溶解挙動に関する基礎的理解は必要不可欠である。これまで UO₂, Zr, および SS の混合粉末を用いて、様々な温度や雰囲気で模擬燃料デブリを加熱調製し、その固相状態と水への溶解挙動について検討した[1]。調製した試料は合金相や酸化物相など複数成分の混合系であり、ウランの溶解はその固相組成に強く依存することが示唆された。しかし混合系試料の溶解反応は総じて単純ではなく、各成分の寄与を明らかにするには、単相毎の評価がその一助となることから、模擬燃料デブリ中で確認された UO₂, (U,Zr)O₂ 等の単相の溶解挙動を検討した。例えば、(U,Zr)O₂ においては、Zr が固相表面で二次固相を形成することで U の溶解抑制に寄与したことを報告した[2]。本研究ではこうした単相試料の溶解挙動の知見をもとに、混合系試料である模擬燃料デブリの溶解挙動について考察を試みた。

2. 実験

UO₂, Zr, SUS304 の混合粉末を 1200-1600°C で不活性ガス雰囲気(1ppm O₂+Ar)もしくは酸化雰囲気(2% + O₂)で 8 時間加熱し UO₂-Zr-SS 系化合物（模擬燃料デブリ）を合成した。XRD 等による固相状態、さらに浸漬試験を実施した。核種との錯生成により溶解を促進するため、ジカルボン酸のマロン酸 (mal ; HOOC-CH₂-COOH) を添加し、pH 7, イオン強度 0.5 M (NaClO₄系) とした。また湿式沈殿法により調製した異なる Zr 分率の単相 U_{1-y}Zr_yO₂ (y = 0 - 0.1) を同条件で浸漬した。所定期間浸漬後、分取液を 3kDa フィルターで限外ろ過したのち、ICP-MS により核種濃度を定量した。

3. 結果と考察

不活性ガス雰囲気 1200°C で加熱合成した化合物試料中の U 主固相は UO₂ であり、U の酸化や他元素の固溶は確認されなかった。また Fe-Zr 合金相が確認された。一方、不活性ガス雰囲気 1600°C で加熱合成した試料中には Fe-Zr 合金相に加え、(U,Zr)O₂ 相の生成が確認された。単相の UO₂, (U,Zr)O₂ 浸漬時の U 濃度はマロン酸濃度に比例して増加し、マロン酸が U と錯体を形成し、U 溶解度を増加させることが分かった。低マロン酸濃度条件では UO₂, (U,Zr)O₂ の U 濃度が一致したが、高マロン酸濃度条件では (U,Zr)O₂ の U 濃度は UO₂ に比べ低く、Zr 二次固相による溶解抑制が起きた。同様の傾向は混合系試料でも確認され (U,Zr)O₂ を主固相とする試料からの U の溶解は UO₂ を主固相とする試料に比べ低かった。

【謝辞】 本研究は JSPS 科研費 23KJ1187, 24K01403 の助成を受けたものです。

References : [1] R. Tonna ら, Nucl. Eng. Technol. **55**, 4 (2023) [2] R. Tonna ら, 原子力学会 2023 年秋の年会, 1D05

*Ryutarō Tonna¹, Taishi Kobayashi¹, Takayuki Sasaki¹

¹Kyoto Univ.

東日本大震災の影響を受けた廃樹脂に対する水蒸気共存下熱分解技術の適用性評価 Evaluation of the Applicability of Pyrolysis Technology with Steam to Waste Resin Affected by the Great East Japan Earthquake.

*中原滉基¹、佐藤勇¹、内山翠²、田尻康智²、鬼木俊郎²、松浦治明¹

¹東京都市大学、²株式会社 IHI

抄録 中間処理技術は保管時の潜在的リスクと保管容量を低減することを目的とし、今後決定される処分方法に柔軟に対応することを可能にする技術である。福島第一原子力発電所より発生した震災影響を受けた廃樹脂に対して、海水濃度と処理雰囲気（Ar、水蒸気）をパラメータとした TG-DSC 等の熱分析データを取得し、加熱前後における模擬含有成分の存在形態を評価した。水蒸気を添加することで 500°C、1000°C で減重率は高くなることが確認できた。また、純海水濃度では加熱後に MgO などが生成されることが確認できた。

キーワード：中間処理技術、水蒸気共存、ガス分析、広域 X 線吸収微細構造、海水濃度、Co

1. 緒言

中間処理技術は、放射性廃棄物に対して保管時の潜在的リスク低減と保管量の減容化を目的としており、今後決定される処分方法に対して柔軟に対応することが必要である。一部の放射性廃棄物を安全に保管しておくために、中間処理を行っておくことも一つの方策であり、処理技術の技術オプションの拡大に繋がるものといえる。そこで、「福島第一原子力発電所から発生する震災影響を受けた廃樹脂」に対して水蒸気共存させた条件下での熱分解技術の適用性を確認する。^[1]

2. 実験内容

廃樹脂は模擬海水に CoCl_2 を溶解させ、陽イオン交換樹脂及び陰イオン交換樹脂を 2:1 で浸漬させ Co を吸着させた。そして模擬海水の海水濃度を減少(1/4)させ、廃樹脂を処理する際の海水成分の影響を評価した。まず TG-DSC にて海水濃度による減重率・熱分解評価を行った。そして加熱後残渣を XRD で測定することで残渣に残留する海水成分を評価した。

3. 結果及び考察

図 1 に廃樹脂を加熱した際の減重率を示す。図 2 に海水濃度をパラメータとした加熱前後試料の XRD 結果を示す。図 1 より減重率は Ar 雰囲気より水蒸気雰囲気の方が高いことが確認できる。さらに海水濃度が低い場合の方が減重率は高い。また、海水濃度を変化させても熱分解挙動は類似していた。そして図 2 より海水濃度を 1/4 にした場合より模擬海水の方がピークの数が多いことが確認できる。加熱することで海水成分が残留しているか、MgO 等が生成されている可能性がある。そのため海水濃度が低い場合の方が減重率は高いと考えられる。

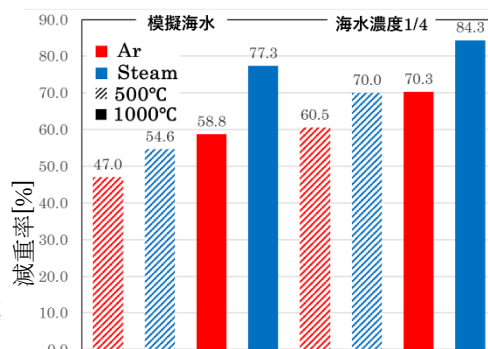


図1.海水濃度と雰囲気による減重率

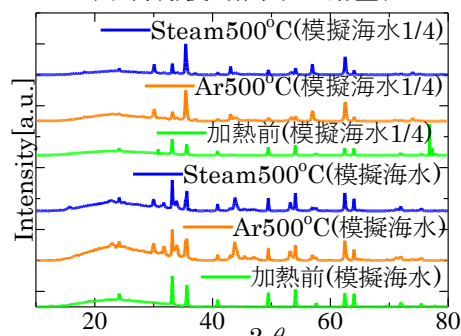


図2.海水濃度をパラメータとした加熱前後試料の XRD 回折パターン

謝辞 本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「廃炉・汚染水・処理水対策事業（固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発）」の成果の一部である。

参考文献

[1]竹下健二、尾形剛志 日本イオン交換学会誌 Vol.23 No.1(2012)

*Koki Nakahara¹、Isamu Sato¹、Midori Uchiyama²、Yasutomo Tajiri²、Toshiro Oniki²、Haruaki Matsuura¹

¹Tokyo City University、²IHI Corporation

熔融ホウケイ酸ガラス中の板状白金族合金の化学的存在状態解析

Chemical characterization of PGM plate in fused borosilicate glasses

*加藤 瑞希¹, 松浦 治明¹, 佐藤 勇¹, 大岩 祐毅¹, 千葉 紗香¹, 多田 晴香², 和泉 博貴²

¹ 東京都市大学, ² 株式会社 IHI

使用済み燃料の再処理工程にて不溶解残渣廃液中に存在する白金族合金 (Mo・Ru・Rh・Pd・Tc) は燃料の仕様・照射条件の変化に伴い組成変化が予測され、柔軟な対応が必要である。そのためホウケイ酸ガラス・廃液成分・板状白金族合金の混合加熱試験により、白金族合金とガラスとの相状態を確認し、化学形態・移行挙動について評価した。白金族合金における Mo の増加により消費酸素量が増加し Ru 化学形態に変化があることが分かった。

キーワード: 不溶解残渣, 白金族合金, XAFS, モリブデン, ルテニウム

1. 緒言

使用済み燃料の再処理工程において、不溶解残渣廃液に含まれる白金族合金 (Mo-Ru-Rh-Pd-Tc) は他の廃液と混合され、ガラス溶融炉に供給される。白金族はガラス溶融炉において、溶融初期の仮焼層状態や炉底部への沈降等による流下性に影響するため、ガラス固化工程において、白金族合金の挙動を把握することは重要である。この白金族合金は燃料の仕様、照射条件の変化に伴う廃液組成の変化が予想されるためガラス固化工程においては柔軟な対応が必要である。そこで本研究では、使用済み燃料の変動に伴う白金族合金、ガラス、廃液成分の変化に対して、加熱後の模擬ガラス固化体中の化学的存在状態の解明を目的として、板状白金族合金を使用した加熱試験及び各種分析を実施した。

2. 方法

Mo,Ru,Rh,Pd の粉末を MOX 燃料での組成変動を考慮した R6-2 (Mo:15,Ru:65,Rh:10,Pd:10wt%)、現行燃料に相当する R6-3(Mo:20,Ru:60,Rh:10,Pd:10wt%)、Mo を過剰に設定した R6-4 (Mo:30,Ru:50,Rh:10,Pd:10wt%) として秤量し混ぜ合わせた模擬合金を作製した。これら模擬合金についてガラス固化工程を模擬し、ホウケイ酸ガラス、模擬廃液成分を合わせた加熱試験を行った。加熱条件はガラス溶融炉上部、下部を模擬するため上部: 昇温温度 10°C/min、酸素濃度 20%、到達温度 900°C 保持時間 3h、下部: 昇温温度 10°C/min、酸素濃度 5%、到達温度 1150°C 保持時間 3h で加熱し模擬ガラス固化体を作製した。加熱後室温にて冷却後切断、切断面に対して SEM-EDS によるガラス合金界面の解析、蛍光 XAFS を用いて局所構造解析を行った。

3. 結果・考察

作製した模擬ガラス固化体を SEM-EDS にて観察した。合金とガラス界面の観察では白色部は酸化していない金属相であり、灰色部は Mo の減少した相であると考えられる。また Pd が一部合金から分離しており、Mo の酸化移行後 Ru-Rh-Pd の 3 元系を形成し Pd が酸化せず分離していると考えられる。さらに詳細な酸化状態解明のため XAFS 測定による分析を行った。Mo は酸化モリブデンとモリブデン酸塩となり、Ru は金属のままか酸化ルテニウムとなっており消費酸素量による酸化への影響が示唆された。図 2 に示した模擬ガラス固化体の EXAFS 動径構造関数より、Mo 近傍ではモリブデン酸塩に近い酸化物となっている。一方、Ru 近傍構造は Mo の合金組成割合・加熱条件により酸化ルテニウムか金属、どちらかに近い構造関数となった。

本発表は、経済産業省資源エネルギー庁「令和 5,6 年度放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究事業 (JPJ010599)」の成果の一部である。

参考文献 [1] 野本豊和, XAFS における分析深さの制御について, あいち産業科学技術総合センターニュース, 2015 年 12 月号

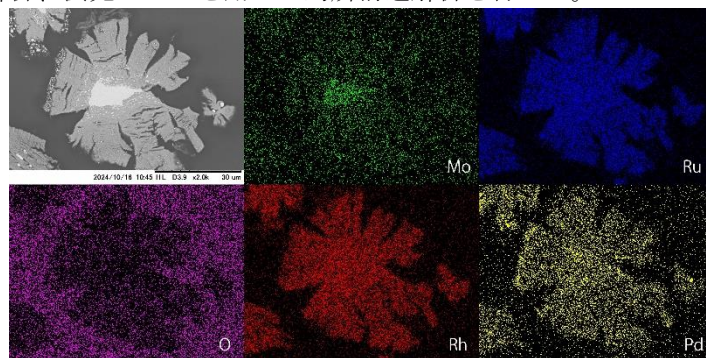


図 1. R6-2 上部模擬ガラス固化体 SEM-EDS 画像

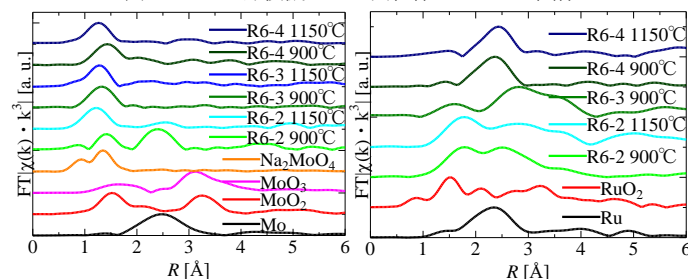


図 2. EXAFS 動径構造関数(左: Mo 近傍, 右: Ru 近傍)

*Mizuki Kato¹, Haruaki Matsuura¹, Isamu Sato¹, Yuki Oiwa¹, Sayaka Chiba¹, Haruka Tada², and Hiroki Izumi²

¹ Tokyo City Univ., ² IHI Corporation

プルトニウムを含む実験済廃油及び廃液の安定化処理

Stabilization of post-experiment waste oils and solutions containing plutonium

*佐藤 匠¹、坂本 直樹¹、大塚 智史¹

¹JAEA

核燃料（窒化物、炭化物、金属）に関する研究で発生したプルトニウム（Pu）を含む実験済廃油及び廃液を安定な状態で廃棄するため、Puを分離回収後に油固化剤または石膏を用いて固化するための条件を調べた。

キーワード：実験済核燃料物質、安定化処理、窒化物燃料、炭化物燃料、金属燃料、廃油、廃液

1. 緒言

JAEA 大洗原子力工学研究所の燃料研究棟では、施設の廃止措置に向けて、高速炉または加速器駆動システム用の燃料（窒化物、炭化物、金属）に関する研究開発に伴って発生した Pu を含む実験済試料の安定化処理を実施してきた^[1,2]。本発表では、実験済廃油及び廃液を安定な状態で廃棄するため、Pu を分離回収した後に油固化剤または石膏を用いて固化するための条件を調べた結果について報告する。

2. 実験方法

処理対象の廃油は粉末または小片状の Pu 試料を含む切削油、真空ポンプ油等で、廃液は ICP 発光分析等を実施後の希硝酸溶液が主であり、主な共存物質として NaCl, LiCl, KCl 等の塩化物が最大 10 wt %含まれる。まず真空ポンプ油及び塩化物を含む希硝酸を用いた固化処理の模擬試験により処理条件を確認後、グローブボックス内で Pu を含む廃油及び廃液の処理を行った。廃油については金属製篩を用いた分離及びガラスフィルタを用いた吸引ろ過によって Pu を分離回収後、廃油を 80 °C に加熱しながら 12-ヒドロキシステアリン酸を主成分とする油固化材を添加して攪拌し、室温まで冷却することで固化した。一方、廃液については TRU レジン等を用いて Pu を分離回収後、NaOH を加えて中和し、常温で石膏を散布投入しながら攪拌することで固化した。分離回収した Pu は、空气中 650 °C で 2 時間加熱して付着した廃油または廃液を分離するとともに Pu を酸化物に転換して安定化した。

3. 結果及び考察

廃油に油固化材を 60 vol% 添加した廃油固化体（図 1(a)）は全体が固化し、600 °C 以下で完全燃焼すること等から、可燃性固体廃棄物として扱えることが確認された。一方、廃液に重量比 1:1 の割合で石膏を添加した廃液固化体（図 1(b)）は、塩化物が 10 wt% 共存しても全体を固化でき、塩化物の漏出も見られないため、不燃性固体廃棄物として扱えることが確認された。酸化熱処理後の Pu は、X 線回折により酸化物に転換されたことが確認された。これらの結果から、本手法が実験済廃油及び廃液の安定化の方法として有効であることが分かった。

参考文献

[1] 森下ほか、有機物を含有した核燃料物質の安定化処理、JAEA-technology-2021-024 (2021).

[2] 佐藤ほか、燃料研究棟における実験済核燃料物質の安定化処理、JAEA-technology-2023-016 (2023).

*Takumi Sato¹, Naoki Sakamoto¹, Satoshi Ohtsuka¹

¹Japan Atomic Energy Agency

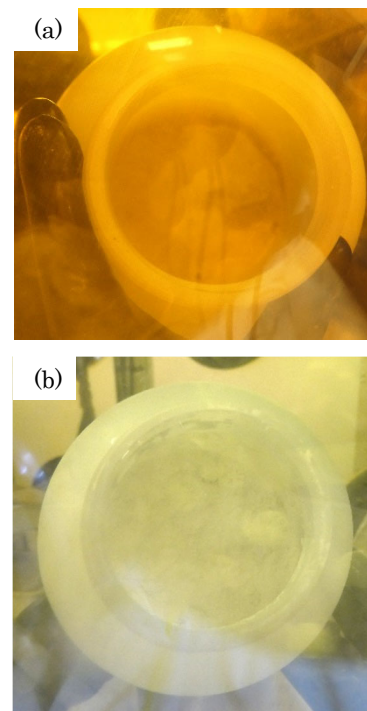


図 1 安定化処理後の実験済試料（ポリエチレン製容器入）
(a)廃油固化体、(b)廃液固化体

SPring-8 放射光を利用した福島第一原子力発電所由来放射性微粒子のマイクロ XRF/XRD/XAFS 分析

Micro XRF/XRD/XAFS analysis of radioactive particulates from Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant using synchrotron radiation at SPring-8

*小林 徹¹, 谷田 肇¹, 小島 雅明¹, 岡本 芳浩¹, 藤森 伸一¹, 竹田 幸治¹, 辻 卓也¹, 福田 竜生¹, 芝田 悟朗¹, 川崎 郁斗¹, 土井 玲祐¹, 岡根 哲夫¹, 矢板 毅¹, 佐藤 志彦², 鈴木 紳悟³, 前田 宏治³,

¹JAEA 物質科学研究センター, ²JAEA 廃炉環境国際共同研究センター,

³JAEA 照射燃料集合体 試験施設

SPring-8 の原子力機構専用ビームラインにおいて福島第一原子力発電所 (1F) 由来の放射性微粒子試料の放射光分析を実施した。今回の実験では、1F 1～3号機の格納容器内部調査で採取した微粒子について、マイクロビームによる蛍光 X 線分析 (XRF)、X 線回折 (XRD)、X 線吸収分光 (XAFS) 測定を実施した。

キーワード: 福島第一原子力発電所、核燃料物質、放射光分析、マイクロビーム、XRF/XRD/XAFS

1. 緒言

大型放射光施設SPring-8の原子力機構専用ビームラインBL22XUにおいて、令和6年2月に福島第一原子力発電所 (1F) 2号機の格納容器内部調査で採取した微粒子試料に対する初めての放射光分析実験を実施した。続けて令和6年7月の実験では、1～3号機由来の微粒子試料についての分析を実施した。本講演では、これらの試料の主要構成元素の分布と結晶構造、化学状態について紹介する。

2. 実験

用いた試料は 1F 1~3 号機の格納容器内部調査で採取した放射性微粒子であり、大洗研 FMF にて試料調整と密封化を行い、SPring-8 に運搬した。SPring-8 においては KB ミラーにより $1 \mu\text{m}^2$ に集光した X 線を用い、蛍光 X 線分析 (XRF)、X 線回折 (XRD)、X 線吸収分光 (XAFS) の各測定を同一粒子に対して実施した。

2. 結果

XRF 測定で得られた U 及び Zr の空間分布を図 1 に示した。1 号機試料は U と Zr を同程度含む試料が多く、3 号機試料では U と Zr の比率が両極端な粒子が多いなどの特徴が見られた。また、それぞれの粒子について XRD 測定と U, Pu, Zr の XAFS 測定を行い、その結晶構造や化学状態を明らかにした。本講演では、主要な粒子について、XRD や XAFS の結果を紹介し、その特徴について議論する予定である。

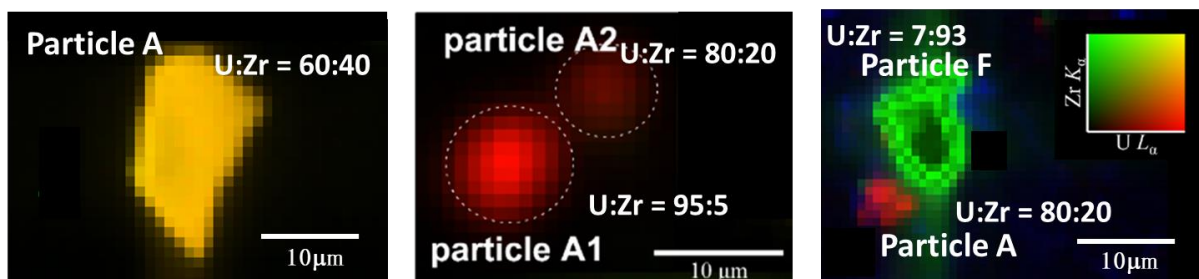


図1. 1F 1号機(左)、2号機(中央)、3号機(右)から採取された放射性微粒子の蛍光 X 線マッピング

*Tohru Kobayashi¹, Hajime Tanida¹, Masaaki Kobata¹, Yoshihiro Okamoto¹, Shin-ichi Fujimori¹, Yukiharu Takeda¹, Takuya Tsuji¹, Tatsuo Fukuda¹, Goro Shibata¹, Ikuto Kawasaki¹, Reisuke Doi¹, Tetsuo Okane¹, Tsuyoshi Yaita¹, Yukihiko Sato², Shingo Suzuki³ and Koji Maeda³

¹JAEA, MSRC, ²JAEA, CLADS, ³JAEA, FMF