

令和 6 年 6 月 21 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H02665

研究課題名（和文）燃料デブリからの核種溶出に及ぼす有機酸・炭酸影響評価

研究課題名（英文）Impact of organic acids and carbonate ions on nuclide dissolution from fuel debris

研究代表者

佐々木 隆之（Sasaki, Takayuki）

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：60314291

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：燃料デブリの最終処分に向け、過度に保守的な前処理を施すことなく、できる限り現実的な処分方法を模索するため、想定されるデブリの有機酸や炭酸を含む水に対する化学的耐性を実験的に評価し、反応を熱力学的に解釈した。模擬燃料デブリとして、ウラン鉄酸化物やウランカルシウム酸化物やその類似体に着目し、ジカルボン酸や炭酸イオン存在下でのデブリからの核種溶出実験、および種々の分光法による固相や溶存種の状態分析を行った。その結果、それらが溶解濃度や溶解速度を増加させる傾向にあること、デブリ表面での核種の酸化還元等を伴う二次固相の生成により、固液間の新たな定常状態に達する可能性があることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、福島第一原発事故で発生したと考えられる代表的なウラン燃料デブリやその関連物質を実験室で模擬合成し、地上地下の天然水に普遍的に含まれる有機酸や炭酸を含む水に対する化学的耐性、すなわち核種の溶解反応と溶解前後のデブリ表面の化学状態変化について実験的に評価した。この基礎知見は、進行中の廃炉事業において回収が計画されているデブリの、過度に保守的でないより安全で合理的な処理処分方策の立案に有益な情報をもたらすものである。

研究成果の概要（英文）：The chemical resistance of simulated debris to water containing organic acids and carbonic acid was investigated to consider a more realistic and feasible method for the final disposal of fuel debris w/o applying excessively conservative pretreatment. The dissolution process was evaluated thermodynamically. Focusing on the uranium-zirconium solid solutions, the uranium-iron oxide, and the uranium-calcium oxide as the simulated fuel debris, we conducted the dissolution experiment in the presence of dicarboxylic acid and/or carbonate, and analyzed the solid phase conditions and the dissolved species using various spectroscopic methods. Nuclide concentrations and dissolution rates increased with the organic acid and carbonate concentrations. Then, a new steady state between solid and liquid phases was reached due to forming a secondary solid phase on the debris surface with a redox reaction.

研究分野：バックエンド工学

キーワード：燃料デブリ 東京電力福島第一原子力発電所 有機酸 炭酸 溶解挙動

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 米国スリーマイル島原発 (TMI-2) の冷却材喪失事故 (LOCA) やチヨルノービリ原発の原子炉爆発事故と異なり、東京電力福島第一原子力発電所 (1F) 事故は大地震による原子炉停止後に津波による全電源喪失と LOCA が発生、炉心が高温状態になり、燃料-被覆管および被覆管-冷却水の反応進展とともに、溶融したと考えられている。燃料棒と SUS 配管や鉄製の圧力容器等が高温で反応した際、酸化物デブリとともに、金属成分元素から成る合金相を含むデブリ、さらに格納容器底部のコンクリート成分を含む MCCI (Molten Core Concrete Interaction) デブリが形成された可能性がある。

1F の廃止措置には世界でも経験の無い燃料デブリの取出しに注目が集まるが、デブリ取出し後に直面する処分を見据えた前処理の具体的な立案・計画はまだ無い。ワンスルー方式を採用する国でなされている使用済燃料 (SF) の直接処分に係る最新の安全研究では、高燃焼度 BWR 実燃料の固相状態や水への溶出挙動に関する研究が進むなど、知見を蓄積している。しかし、1F で発生した燃料デブリはウラン酸化物とジルカロイ被覆管やステンレス構造材、コンクリートの高温接触により種々のデブリが形成されたと考えられ、諸外国の SF 研究事例を適用できない。来るべき 1F デブリ最終処分に向けた安全評価手法の確立は不可欠であり、国の廃炉対策として喫緊の課題である。1F デブリ性状に関する国内先行研究は、例えば JAEA が原子炉安全研究の一部として、TMI-2 の試料を用いて行ってきた。しかし TMI-2 のような還元条件における燃料溶融では、固体の機械的性質および組成評価等、限られた目的のために行われたものが多い。

1F 燃料デブリが冷却水と接触し、様々な核種が溶出し汚染水となる機構について知見も得られてきた。冷却循環水や炉内の微量酸素に加え、使用済燃料起因の放射線や崩壊熱が存在する炉内環境において、燃料デブリの酸化反応が徐々に進行していると考えられ、取り出し時までの経年変化の推定が課題となってきた。すなわち、これら種々の燃料デブリの化学的安定性や経年変化特性および、各核種の挙動を実験により明らかにし、燃料デブリの性状把握や長期変動予測に貢献することが、廃炉を進める上で重要である。近年、燃料デブリを純水に浸漬し、デブリからの核種溶出に与える要因及び影響の評価が行われている。模擬燃料デブリによる 1 か月程度の溶出試験検討によれば、4 価アクチノイドの溶出率は極めて低く、最も高い溶出率を示したマトリクス元素である U でも、デブリ表面での部分的な 6 価への酸化を受けて最大約 0.1% であった。また被覆管材の Zr を固溶させることで固相が安定化し、各核種の溶出率はさらに低下した。それらのデブリ固相の水への溶出実験結果は、実燃料デブリの将来の処理や処分において初期固相状態が重要な意味を持つことを示唆している。1F のデブリが生成した時の炉内雰囲気が大気雰囲気か水素還元雰囲気かで、生成するデブリの化学状態が大きく異なるという想定は、種々の模擬デブリ熱処理時の酸素ポテンシャル依存性実験で、U や他核種の酸化数が様々な値をとることからも明らかになってきている。また、事故直後に海水が注水されたことに鑑み行われた人工海水を用いたデブリ浸漬実験では、純水と比して核種の溶出率が増加する場合は見られ、水溶液の化学組成も重要であることが認識されてきた。

(2) 調製した模擬デブリの固相状態と模擬冷却水へのウラン、核分裂生成物 (FP) および超ウラン元素 (TRU) の溶出性の関係理解を目指すためには、網羅的な実験検討のもとに化学的な理解を深めていく必要がある。本研究の課題は、事故冷却時のデブリ挙動研究のさらに先にある。つまり 1F 燃料デブリの最終処分の視点に立つとき、取り出す燃料デブリを前処理せずに、直接地層処分するという選択肢がまずは検討対象となる。この場合、我が国の SF 再処理プロセスで高レベル放射性廃棄物 (ガラス固化体、HLW) 処分の安全評価研究と同様、処分環境の地下水中に、炭素源としての有機酸および無機炭酸が普遍的に存在することを無視できないだろう。我々は、最近の模擬デブリを用いた溶出挙動研究のほかに、HLW 中のアクチノイドの溶出+再沈殿で生じる非晶質状の多価金属水酸化物固相の溶解反応に関する熱力学的研究を長く進めてきた。中でも 4 価アクチノイドの見かけの溶解度 (=定常状態で様々な溶存化学種で構成される見かけの液中濃度) を有機酸や無機酸が増加させる現象を見出し、それらと核種との錯生成反応の重要性を説いてきた。しかし、本研究で着目する燃料デブリは、二酸化ウラン ($UO_2(cr)$) やその酸化物 ($U_3O_8(s)$) など) を主体とする結晶性固相およびその混合物であり、これまで扱ってきた非晶質相と全く異なるものであり、有機酸や炭酸との錯生成反応がデブリ溶解性に及ぼす研究は皆無である。そこで、デブリ中の構成元素 (マトリクスウランや FP、TRU) への有機酸や炭酸との錯生成能に着目しつつ、デブリがどのように溶解し、化学的な変化 (長期劣化) を受けるかについて、熱力学的・分光学的に解明することが必要である。

2. 研究の目的

福島第一原発では循環浄化水による炉内冷却が続いている。様々に生じた燃料デブリの表面では、真水に近い浄化水がウランを非常に緩やかに酸化し、FP や TRU が溶出している姿が最近の調査・研究で見えてきた。一方、燃料デブリを取出した後、廃炉完遂に向けて前進するには、最終処分に対するまだ見えない処分安全評価基準をクリアする必要がある。諸外国の使用済燃料の直接処分に照らして、過度に保守的な前処理を施すことなく、できる限り現実的な処分方法を模索するためには、未処理の燃料デブリが様々な水条件に対しどのような化学的耐性を有するかをまず理解することが重要である。地下水において最も注目すべき成分の一つが、核種との相互作用が強い有機酸および炭酸である。本研究では、デブリが水と接触する際の、デブリの化学的劣化に及ぼす有機酸・炭酸の寄与明らかにする。原子炉容器内の構造材等と高温反応した際に生じるデブリを想定した種々の模擬デブリを調製し、有機酸および炭酸存在下でのデブリからの核種溶出実験、および分光法による固相表面や溶存種の状態分析を行ない、デブリ溶解反応の理解を目指す。そして処分安全評価に資するため、熱力学を基礎とするデブリ溶解の反応について留意すべき点を提唱することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 本研究では、デブリの化学的劣化に及ぼす有機酸・炭酸の寄与明らかにするため、使用済燃料が格納容器内材料と高温反応した際に生じる種々のデブリを想定した模擬デブリやその基礎となる化合物を調製し、有機酸および炭酸存在下でのデブリからの核種溶出実験、および分光法による固相表面や溶存種の状態分析を行ない、デブリ溶解反応の総合的理解を目指した。予察的検討において、模擬燃料デブリであるウラン化合物等からの U の見かけの溶解度が炭酸および有機酸濃度によって変化することの見通しを得ていたため、浸漬後の模擬デブリ固相状態の分光測定を行うとともに、液相条件依存性のより詳細な検討を進め、溶解挙動の熱力学的な解釈を進めることとした。

(2) 本研究は以下のような流れで進めた； 単相としての模擬デブリ調製、 相関係（固相状態）評価、 デブリの水浸漬による核種の溶解濃度測定、溶解度積評価、溶出濃度の有機酸・炭酸添加影響の解釈、 固相表面および溶存種の化学状態評価、 まとめである。それぞれの項目の概要を以下に示す。

模擬デブリ調製：単相としての U 酸化物として、構造材金属としての Fe、および、コンクリート成分であるセメント構成元素としての Ca を、事故進展の炉内を想定した雰囲気条件で混合する。その他、比較として 3 価希土類酸化物等も調製した。

固相状態評価：調製後、X 線回折法により結晶状態、走査電子顕微鏡・エネルギー分散型 X 線分析法によりサブミクロン径多結晶の組成、またその他の必要に応じて熱重量-示唆熱分析 (TG-DTA) により熱的安定性を評価し、調製条件が相関係に及ぼす影響を考察した。

デブリの溶解反応評価：試料の一部は、京大複合研の研究用原子炉で熱中性子照射して FP を製造し、線スペクトル法等によりインベントリを評価した後、溶出実験に資することとした。上記で得た模擬デブリ固相を水に浸漬する。添加する有機酸は、水相での酸解離定数および対象核種との錯生成定数が既知で、化学構造が既知のジカルボン酸であり、EDTA など一般的な多座配位子の模擬物質として用いる。炭酸は重炭酸 Na を用いる。pH を制御し、Eh は初期状態を大気雰囲気とし、成り行きでの Eh 値変化をモニターする。このとき、デブリ固相表面および溶液中での U および Fe 価数はそれぞれ+4/(+5)/+6、+2/+3 を取りうる。Zr は 4 価である。所定の期間浸漬後、水相を一部分取り、限外フィルタでろ過後、ウランをはじめとする核種溶解濃度を測定し、濃度の有機酸・炭酸濃度依存性について整理した。

分光学的状態評価：XRD 等の分光学的手法を用いて、浸漬前後の固相表面等のマクロな変化を比較観察する。さらに XAFS 法を用いて、U や Fe の酸化数、有機/炭酸錯体の配位数・結合距離・価数を評価した。

まとめ：得られた知見をもとに有機酸および炭酸を含む水と接する燃料デブリの溶解反応の特徴について総括した。

4. 研究成果

(1) 模擬デブリの調製

鉄-ウラン酸化物である $UFeO_4$ 単相の調製法は以下のように確立した。 U_3O_8 粉末および Fe_3O_4 を U:Fe モル比 1:1 で混合し、真空密閉石英管中で 1473K で 7 時間加熱した。熱処理後、1 M HNO_3 中に 353 K で 3 時間懸濁攪拌し、未反応 U_3O_8 を酸溶解除去した。一部の試料は研究用原子炉で熱中性子を照射し FP を生成させた。これらの核種の生成量は Ge 半導体検出器を用いたガンマ線測定等により評価した。その存在割合はマトリクス元素である U および Fe よりもはるかに小さい。一方、カルシウム-ウラン酸化物である $CaUO_4$ 単相の調製は次の通りである。 UO_2 粉末と $CaCO_3$ をモル比 1:1 で乳鉢で混合後、電気炉中で空気雰囲気下、1473K で 4 時間加熱した。粉末を再度粉砕し、このプロセスは 8 回繰り返した。精製のために粉末を 0.01M HCl に懸濁し、遠心分離により固液分離し上ずみを廃棄した。洗浄は 3 回繰り返した。さらに Milli-Q 水で 3 回洗浄し、真空デシケーター中で 3 日間乾燥させ、黄色粉末を得た。

(2) 固相状態の評価

X線回折装置による固相の結晶構造解析は、生成相が観察されたパターンをオープンデータベースに記録されたパターンと照合することにより決定した。いくつかのサンプルの微細構造と元素組成は、加速電圧 15 kV のエネルギー分散型 X 線分光法分析装置が付随した走査型電子顕微鏡を使用して評価した。測定前処理においては少量の粉末試料をカーボンテープに貼付し、マグネトロンスパッタリングによって Pt-Pd をコーティングした。X 線吸収微細構造測定は、高エネルギー加速器研究機構 KEK フォトンファクトリーで行った。二結晶モノクロメーター内の 1 対の Si (111) 結晶によって単色化された X 線ビームをビームラインで利用した。鉄-ウラン酸化物については、U の L 3-edge および Fe K-edge の XAFS スペクトルを透過法により収集し、固相および水相における Fe および U の酸化状態を評価した。試料内のウランおよび鉄がそれぞれ 5 価および 3 価であることが確認された。これらの分光測定の二次標準物質として、 UO_2 やアルカリ沈殿で熟成させた Metaschoepite ($UO_3 \cdot 2H_2O$)、 Fe_3O_4 を 1073 K で加熱し調製した Fe_2O_3 を使用した。またカルシウム-ウラン酸化物については、XRD スペクトルが既往のそれと一致したことを確認し、 $CaUO_4$ が得られた。カルシウムとウランの酸化数はそれぞれ 2 価および 6 価であった。

(3) 模擬デブリの溶解反応評価

鉄-ウラン酸化物 ($UFeO_4$) 固相を、有機配位子を含まない液に浸漬したとき、U 濃度は中性 pH から pH の低下に伴い増加し、浸漬後 1 か月で定常状態に至った。この条件下では、固相表面の 5 価 U と 3 価 Fe の間で酸化還元反応が生じ、まず 6 価 U と 2 価 Fe として溶解することが示唆された。浸漬前後の粉末 XRD 測定では、相状態に顕著な変化は見られなかったものの、熱力学的な解析から、6 価 U 固相の Metaschoepite が溶解度制限固相であると推察された。一方、高 pH 域においても中性域より U 濃度が増加した。大気由来の溶存炭酸イオンがウラニルイオンと強く錯生成したためと考えられた。また U 濃度にフィルタの孔径依存性はみられず、コロイドの顕著な生成は確認されなかった。ジカルボン酸であるマロン酸を含む液に固相を浸漬したところ、有機配位子を含まない場合と比して、U の溶解が促進された。マロン酸濃度の増加 ($0.001M \sim 0.01M$) に伴って U 濃度が単調に増加し、ウラニルイオンとマロン酸との強い錯生成が示唆された。

カルシウム-ウラン酸化物 ($CaUO_4$) 固相を、還元的条件において炭酸を含まない液に浸漬したとき、 $CaUO_4$ 固相中でウランは 6 価から 5 価に還元され、非化学量論的な $CaUO_{4-x}$ に変化した。溶解したウランは水相で 4 価まで還元されることで非晶質のウラン水酸化物固相を形成し、ウランの見かけの溶解度が制限されることを見出した。また、炭酸を含まない酸化的条件では、酸性から中性 pH 域で Metaschoepite、塩基性域では重ウラン酸ナトリウムを 2 次鉱物として形成することが示唆された。さらに、高濃度の炭酸を含む酸化的条件下では、浸漬後の XRD 測定等で初期 $CaUO_4$ 以外の固相は認められなかったが、得られたカルシウム濃度から、溶解度が炭酸カルシウム 2 次鉱物によって制限されると解釈された。即ち $CaUO_4$ からのカルシウム溶解が抑制され、その結果ウランの溶解も抑制される可能性を示唆した。

ジルコニウム-ウラン酸化物固溶体の模擬として、 $m-ZrO_2(cr)$ の溶解試験を行った。弱アルカリ性炭酸水への浸漬直後から溶解が進行し、1 か月後に定常状態に達した。Zr 濃度は全炭酸濃度とともに上昇した。主な支配化学種 $Zr(OH)_x(CO_3)_y^{4-x-2y}$ は、 $(x,y)=(2,2)$ 、 $(0,5)$ と推測され、Zr 濃度実測値は、低炭酸濃度域では $Zr(OH)_4(am)$ を溶解度制限固相と仮定した溶解度曲線に近く、初期固相のアモルファス化を示唆した。炭酸濃度が高いほど Zr 濃度は初期固相の溶解度曲線に近い傾向にあった。炭酸は Zr の溶解促進だけでなく、固相のアモルファス化の進行を抑制する可能性が考えられた。さらにこの固相を取出し、硝酸浸漬した結果、5 回の溶解濃度が大きく変化しなかった。その平均濃度は $10^{-8} M$ 程度で高炭酸ほどやや低く、結晶性 ZrO_2 よりも少し高い値となった。平均粒径及び ZrO_2 の格子定数をもとに固相表面から溶解した原子層数は 10^{-4} 層以下、すなわち表面第 1 層の一万分の一以下に相当することが分かった。つまり、アモルファス生成、およびその炭酸濃度による違いは固相最表面のごく一部のことであった。また、酸浸漬の結果から、炭酸濃度によらず、表面の僅かなアモルファス Zr が除去されたことに加え、 $m-ZrO_2(cr)$ の表面活性な部位も繰り返し溶解したと推測された。

(4) まとめ

鉄-ウラン酸化物試料の浸漬実験を十分な定常状態に至る最長 3 か月間実施し、核種の溶解濃度を調査した。 $FeUO_4$ の表面溶解の初期段階において 3 価 Fe イオンと 5 価 U イオンの間で酸化還元反応が進行し、Fe は 2 価、U は 6 価となった。鉄イオンは試料容器内の溶存酸素存在下で 3 価に酸化され、水酸化鉄 () が Fe の溶解度を制限すると熱力学的に推定された。一方、ウラニルイオンの濃度は Metaschoepite や重ウラン酸ナトリウムなどの再沈殿固相の生成により制限され、また、Fe の再沈殿固相への吸着等により U 濃度の減少が起こると解釈された。このように炉内滞留水や処分場環境地下水のような固液表面付近での反応が有意になりえる場合は、いわゆる閉じた系での溶解度律速反応が卓越し、核種溶解度が支配される可能性が示唆された。さらに、FP では Ru や Ce 等の多価イオン濃度は減少し、対照的に可溶性 Cs イオンの濃度が減少したことも、この解釈と矛盾しなかった。1F 建屋内の燃料デブリは現在も冷却水および混入する地下水に晒されており、これには一定量の天然有機物を含有する。本研究でのカルボン酸系配位子での模擬実験の結果は、デブリの溶解促進に及ぼす有機物の寄与を示唆するものであり、熱力

学的な観点でその影響を見積もることができると期待された。また、カルシウム-ウラン酸化物は、海外の発電所等の事故事例では見られないが、1F 格納容器底部での生成が推測されている。特に地層処分の地質環境、すなわち還元雰囲気において、 CaUO_4 のウランの還元が進行し再沈殿の 4 価ウラン水酸化物によるウランの溶解度制限が考えられた。さらに地下水中には比較的高い濃度の炭酸が存在することから、Ca との錯生成の影響も考慮すべきであることが示唆された。また、ジルコニウム-ウラン酸化物固溶体の模擬としての二酸化ジルコニウムにおいて、溶解、アモルファス化しやすい表面活性な結晶性 Zr が微量かつ一定量存在すると考えられた。低炭酸濃度下では表面の僅かなアモルファスに見かけの溶解度が制限された一方、高炭酸濃度では表面溶解でアモルファスの残留が殆ど起きないと考えられる。これは有機酸においても同様の解積が可能であることを明らかにした。今後は地層処分安全評価に資するため、より広範な地下水条件での溶解反応について検討を進める必要があり、例えば本研究で予察的な考察に用いた天然有機酸（フミン物質）を用いて熱力学的、速度論的な理解を深めていくことが望まれる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Tonna Ryutaro, Sasaki Takayuki, Kodama Yuji, Kobayashi Taishi, Akiyama Daisuke, Kirishima Akira, Sato Nobuaki, Kumagai Yuta, Kusaka Ryoji, Watanabe Masayuki	4. 巻 55
2. 論文標題 Phase analysis of simulated nuclear fuel debris synthesized using UO ₂ , Zr, and stainless steel and leaching behavior of the fission products and matrix elements	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nuclear Engineering and Technology	6. 最初と最後の頁 1300 ~ 1309
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.net.2022.12.017	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Tonna Ryutaro, Sasaki Takayuki, Okamoto Yoshihiro, Kobayashi Taishi, Akiyama Daisuke, Kirishima Akira, Sato Nobuaki	4. 巻 589
2. 論文標題 Dissolution behavior and aging of iron-uranium oxide	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 154862
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2023.154862	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kato Yuto, Kobayashi Taishi, Sasaki Takayuki	4. 巻 -
2. 論文標題 Dissolution behavior of CaUO ₄ under reducing condition	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 QSEC annual report, KU	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Qi Zhao, Taishi Kobayashi, Takeshi Saito, Takayuki Sasaki	4. 巻 411
2. 論文標題 Gamma-irradiation-induced molecular-weight distribution and complexation affinity of humic acid with Cs ⁺ , Sr ²⁺ , and Eu ³⁺	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Hazardous Materials	6. 最初と最後の頁 125071
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jhazmat.2021.125071	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Md. Moniruzzaman, Taishi Kobayashi, Takayuki Sasaki	4. 巻 21
2. 論文標題 Phase transformation of mixed lanthanide oxides in an aqueous solution	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences	6. 最初と最後の頁 15-27
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Moniruzzaman Mohammad, Kobayashi Taishi, Sasaki Takayuki	4. 巻 19
2. 論文標題 Solubility of Mixed Lanthanide Hydroxide and Oxide Solid Solutions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology	6. 最初と最後の頁 353-366
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7733/jnfcwt.2021.19.3.353	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Moniruzzaman Mohammad, Kobayashi Taishi, Sasaki Takayuki	4. 巻 19
2. 論文標題 Solubility of Mixed Lanthanide Hydroxide and Oxide Solid Solutions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology	6. 最初と最後の頁 353-366
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7733/jnfcwt.2021.19.3.353	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計15件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 頓名龍太郎, 小林大志, 佐々木隆之
2. 発表標題 (U,Zr)O ₂ の水への溶解メカニズムに関する考察
3. 学会等名 日本原子力学会2023年秋の大会, 1D05
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 花房拓豊, 小林大志, 佐々木隆之
2. 発表標題 ZrO ₂ の溶解反応における固相表面に関する考察
3. 学会等名 日本原子力学会2023年秋の大会, 1D06
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Sasaki, Y. Kato, R. Tonna, T. Kobayashi, Y. Okamoto
2. 発表標題 Dissolution and aging of metal monouranates: Simulated debris of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station
3. 学会等名 Migration 2023, Nantes, France (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井野広海, 秋山大輔, 桐島 陽
2. 発表標題 不活性雰囲気下でのU-Fe-O系模擬燃料デブリの相関係に関する研究
3. 学会等名 日本原子力学会2023年秋の大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 加藤 雄斗, 小林 大志, 佐々木 隆之
2. 発表標題 CaUO ₄ の炭酸存在下での溶解挙動
3. 学会等名 日本原子力学会 2022年秋の大会, 1A01
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 頓名龍太郎、小林大志、佐々木隆之、秋山大輔、桐島陽、佐藤修彰、岡本芳浩
2. 発表標題 鉄-ウラン系酸化物固相の溶解反応
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会, MAG39-11
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ryutaro Tonna, Takayuki Sasaki, Taishi Kobayashi, Yoshihiro Okamoto, Daisuke Akiyama, Akira Kirishima, Nobuaki Sato
2. 発表標題 Dissolution Behavior and Aging of Iron-uranium Oxide; Simulated Debris of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (1F)
3. 学会等名 IYNC2022, Koriyama (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 頓名龍太郎、小林大志、佐々木隆之、秋山大輔、桐島陽、佐藤修彰
2. 発表標題 UFeO ₄ 固相溶解に関する熱力学的考察
3. 学会等名 2021年日本原子力学会春の年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 加藤 雄斗、小林 大志、佐々木 隆之
2. 発表標題 CaUO ₂ の還元雰囲気での溶解挙動
3. 学会等名 2021年日本原子力学会秋の大会, 1C02
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 頓名龍太郎, 小林大志, 佐々木隆之, 秋山大輔, 桐島陽, 佐藤修彰
2. 発表標題 5価ウラン-鉄酸化物の溶解メカニズムに関する考察
3. 学会等名 2021年日本原子力学会秋の大会, 1C01
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Zhao Qi, Kobayashi Taishi, Saito Takeshi, Sasaki Takayuki
2. 発表標題 Gamma-irradiation-induced molecular-weight-dependent distribution of humic acid complexed with metal ions
3. 学会等名 2021年日本原子力学会春の年会, 3J13
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 頓名龍太郎, 佐々木隆之, 小林大志, 関本俊
2. 発表標題 UFe04主固相とする模擬デブリの熱中性子照射および核種溶出挙動
3. 学会等名 第55回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 頓名龍太郎, 小林大志, 佐々木隆之, 秋山大輔, 桐島陽, 佐藤修彰
2. 発表標題 UFe04固相溶解に関する熱力学的考察
3. 学会等名 日本原子力学会2021年春の年会, 3I13
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Md Moniruzzaman, Taishi Kobayashi, Takayuki Sasaki
2. 発表標題 Characterization of the solubility controlling solid phases of mixed lanthanide oxides (L1,L2,L3,)203 (L1,L2,L3=La,Nd,Eu,Tm)
3. 学会等名 AESJ 2021 Spring Meeting, 3J11
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 佐藤修彰、桐島陽、佐々木隆之、高野公秀、熊谷友多、佐藤宗一、田中康介	4. 発行年 2023年
2. 出版社 東北大学出版会	5. 総ページ数 180
3. 書名 燃料デブリ化学の現在地	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	桐島 陽 (Kirishima Akira) (00400424)	東北大学・多元物質科学研究所・教授 (11301)	
研究分担者	秋山 大輔 (Akiyama Daisuke) (80746751)	東北大学・多元物質科学研究所・講師 (11301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------