

科学研究費助成事業(基盤研究(S))公表用資料
[研究進捗評価用]

平成24年度採択分
平成26年3月25日現在

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 Nuclear Reactor Accident

池田 泰久 (IKEDA YASUHISA)

東京工業大学・原子炉工学研究所・教授



研究の概要

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・処分システム開発のため、固体/液体汚染物の性状研究、固体/液体汚染物処理研究、発生する廃棄物の処分研究の3分野の基盤研究を行っている。

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：福島原発事故、廃棄物処理処分

1. 研究開始当初の背景

これまでの原子炉重大事故は、米国スリーマイル島原発及び旧ソ連チェルノブイリ原発におけるように原子炉運転中の事故であり、今回の福島第一原子力発電所事故のように震災により原子炉停止後の冷却材喪失事故とは異なる。本事故では、原子炉4基を含む施設の崩壊、サイト内の高レベル汚染、炉心冷却に伴う高汚染水の大量発生、サイト外の広範囲な汚染等、未曾有の規模である。また、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も従来の事故ではなかったことである。従って、事故の復旧のためには、サイト内に大量に存在する放射性物質により高濃度に汚染されたコンクリート、配管、機器設備等の固体汚染物や廃油、廃液、冷却水等の液体汚染物を処理することが、重要かつ緊急な課題である。さらに、これら廃棄物は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であり、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・開発が必要となる。

2. 研究の目的

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する。

3. 研究の方法

従来とは異なる固体/液体汚染物の性状研究、固体/液体汚染物処理研究、発生する廃棄物の処分研究の3分野に分け、相互に連携しつつ実験に基づく科学的データを取得するように進めている。

4. これまでの成果

固体汚染物性状研究：燃料酸化物及び構造材からなる燃料デブリの性状に関して、主成分であるU及びZr酸化物の相解析や核分裂生成物(FP)とマイナーアクチノイド(MA)の挙動について検討し、低温での蛍石型構造がから温度の上昇とともに高酸化状態の構造が現れることを明らかにしている。また、上記酸化物の構造変化に及ぼす雰囲気や組成の影響を調べ、酸素分圧の増加とともに蛍石型構造へのZrの固溶度が増加すること、Zr濃度が増加するとUの酸化が抑制される等の知見を得ている。

液体汚染物性状研究：FPの一つであるSrと海水系成分との反応性を、室温及び高温での溶解度測定と生成する沈殿物の分析を行い、その結果と海水成分の硫酸塩や炭酸等の平衡計算との結果を比較し、沈殿生成機構を考察している。また、固体汚染物性状研究で作製した酸化物に中性子照射を行い、この試料

を海水に浸漬することにより、各核種の海水への溶出挙動について調べ、 ^{137}Cs をはじめとするFPの海水への溶出量は、高酸素分圧で作製した試料の方が多く、Cs溶出量との間に相関があることを見出している。さらに、MAを添加した模擬デブリの海水浸漬試験から、MAの溶出量は極めて低いこと、溶出量がデブリ中のU-Zrの固溶度に影響されることを明らかにしている。

固体汚染物処理研究：様々な廃棄物の新ガラス固化技術の研究として、Cs吸着模擬ゼオライト(ZEO)廃棄物の溶融法について試験し、 1200°C が適切均質固化温度であること、Csの揮発散逸量評価法として、酸分解法が適切であるとの見通しを得ている。また、除染法の研究として、超臨界 CO_2 への核種の溶解性の観点から、フッ素を含むキレート剤を配位子とするランタノイド(III)錯体の溶解度を測定し、フッ素を多く含むキレート剤を配位したもののほど溶解度が高いことを明らかにしている。さらに、熱応答性ILを用いた種々の金属酸化物の溶解性及び化学種の抽出試験を行い、ILを利用した除染法の可能性を確認している。

液体汚染物処理研究：汚染水の処理の観点から、ZEO・フェロシアン化物(FC)複合吸着剤によるCs/Srの選択的除去、タンニン酸を多孔質シリカに担持したタンニン吸着剤(TN)やキレート樹脂を用いたUその他の核種の分離除去、Pt触媒を用いた水-水素同位体交換反応と水の電気分解によるT回収について検討してきている。ZEO-FC複合吸着剤により、海水からCsをほぼ100%、Srを60%以上吸着できること、 $1,000^{\circ}\text{C}$ 以上のプレス焼結固化によりCsの揮発を抑えた安定固化が可能であること、改良TN吸着剤がU(VI)で分配係数100程度、Ln(III)で500~1000程度の強い吸着能を持つことを確認している。また、合成した疎水性Pt触媒の同位体交換反応速度を評価し、現在のタンクに保管されている汚染水を40年で処理することを仮定して、水-水素同位体交換反応と水の電気分解によるT分離施設の規模を試算し、実際の適用における課題を整理している。

廃棄物処分研究：

高濃度の塩を含む廃棄物の処分の観点から、イオン強度の変化に伴うベントナイト中の陽及び陰イオンの移動挙動の変化について調べ、 Cs^+ は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こと、陰イオンに関しては、拡散係数の活性化エネルギーが自由水中の陰イオンのものと同等であることから、ベントナイト自由空隙中を拡散することを示唆するデータを得ている。また、Csを含有するFCとZEOの高アルカリ溶液やコンクリート中での挙動試験を行い、廃棄物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、高塩水環境においても安定に存在すること、高塩水環境における Cs^+ とコンクリートとの相互作用については、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ている。さらに、 Cs^+ を吸着したZEOやFCの処理・処分に関して、実際に使用されているハッシュライトの浸出率が天然ZEOよりも高く、セメント中ではハッシュライトが安定でないこと、ある種の微生物はFCをCNにまで分解可能であることが判明し、処分において考慮すべき課題であることを見出している。

5. 今後の計画

これまでの成果に基づき、さらに各テーマの研究を計画的にかつグループ間で情報の共有を図りながら効果的に進める。それにより、プロセス全体としての合理性を図った処理・処分システムを検討し、提案する。

6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

N. Sato, Y. Fukuda, A. Kirishima, and T. Sasaki, "Behavior of Uranium and Other Actinide Elements for Fuel Debris Treatment," RMW9, Los Angeles, U.S.A., Feb., 20-21, (2014).

K. Idemitsu, H. Kozaki, D. Akiyama, M. Kishimoto, M. Yuhara, N. Maeda, Y. Inagaki, T. Arima, "Migration Behavior of Selenium in the Presence of Iron in Bentonite," Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXV, Barcelona, Spain, Oct. 1 2013. (Best poster賞)

C. Oda, C. Walker, D. Chino, S. Ichige, A. Honda, T. Sato, "Na-montmorillonite dissolution rate determined by varying the Gibbs free energy of reaction in a dispersed system and its application to a coagulated system in 0.3 M NaOH solution at 70°C ," *Appl. Clay Sci.*, 2014, in press

S. Grangeon, C. Claret, C. Lerouge, F. Warmont, T. Sato, S. Anraku, C. Numako, Y. Linard, and B. Lanson, "On the nature of structural disorder in calcium silicate hydrates with a calcium/silicon ratio similar to tobermorite," *Cement and Concrete Research*, **52**, 31-37 (2013).

T. Mori, K. Sasaki, T. Suzuki, T. Arai, K. Takao, and Y. Ikeda, "Separation of Uranyl Species Using Task-specific," The 2nd China-Japan Academic Symposium on Nuclear Fuel Cycle (ASNFC 2013), Shanghai, China, Nov. 27-30, 2013.

五十嵐勇樹、三村 均, et al., "不溶性フェロシアン化物担持ゼオライトの吸着特性および安定固化," 第29回日本イオン交換研究発表会、2013年 (ポスター優秀賞)