

MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発 (18) HLW 顆粒体のキャニスタ封入前の吸湿による貯蔵時化学安定性への影響

Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology

(18) Chemical stability during storage of the HLW granules containing moisture contaminated before loading into canister

*室屋 裕佐¹, 鈴木 晶大², 遠藤 洋一²

¹ 阪大産研, ² NFD

HLW 顆粒体の貯蔵時化学的安定性に関して、吸湿させた模擬顆粒体へのガンマ線照射を行ったところ放射線分解による NO_x や H₂ の発生が増えることがわかり、顆粒体製造後は湿潤空気になるべく触れさせずにキャニスタに封入する必要があることがわかった。

キーワード：柔軟な廃棄物管理、化学的安定性、放射線分解、模擬硝酸塩仮焼体、湿分

1. 緒言

柔軟な廃棄物管理法における 50 年間を想定した HLW 顆粒体の貯蔵は、現行ガラス固化体貯蔵設備を共用し、同じキャニスタ材を使用することを考えている。貯蔵の成立性確認のためには、顆粒体の化学安定性を確認する必要がある。顆粒体は酸化物と硝酸塩の混合体であり、放射線分解により NO_x (NO, NO₂) や水素のガス発生が想定される。これまで、純粋な NaNO₃ 粉末、仮焼した粉末状顆粒体や高密度顆粒体についてガス発生の線量依存性を評価した[1]。本発表では、吸湿によるガス発生への影響を調べるため、いくつか異なる仮焼温度 (300 °C、600 °C、900 °C) の模擬顆粒体について含水率を変化させ (0、1、3 wt%)、ガンマ線照射およびガス分析を行った。

2. 実験と議論

バイアル瓶に入れた試料をアルゴン脱気した後、阪大産研・コバルト照射施設 (Rabbit11、167.7 TBq) において 400 – 500 kGy 程度のガンマ線照射を行った。照射後、瓶内の気相部をガスクロマトグラフ (水素検出)、および化学発光法に基づく微量濃度ガス分析装置 (NO_x 検出) で測定した。

まず、脱水した粉末状顆粒体 (仮焼温度 : 300, 600 °C) について水素発生量の含水依存性を調べた (線量 : 445 kGy)。いずれの試料でも水素は検出限界以下であった。検出限界値を 50 年間線量 (11 GGy) へ線形外挿し、細径キャニスタ内の水素分圧を見積もると <3 atm と試算される。これはキャニスタの機械的強度からみると十分に低い値であるが、細径キャニスタに空気を導入できるほど水素の発生量が小さいかは現段階では不明である。今後、更に測定精度を上げた実験を行う予定である。次に含水率を変化させた試料 (1、3 wt%) について同様の実験を行った。いずれの試料でも水素発生が見られ、含水率が高いほど発生量も増加する傾向が見られた。50 年間線量では、含水率 1 % では含まれる水のおよそ半分程度が、含水率 3 % の試料ではおよそ全ての水が水素に変換されると見積もられた。前述と同様に水素圧力を見積もるといずれも高い値を示し (>80 atm)、水分は可能な限り除去すべきであることが示された。

次に NO_x (NO, NO₂) 発生の含水依存性を調べた。脱水試料については、300 °C 仮焼体では辛うじて検出されたが、600 °C 仮焼体ではほぼ検出限界であった。300 °C の試料について 50 年後の NO_x 分圧を見積もると、0.3 atm 程度とあまり大きくないと見積もられた。水分を含んだ試料では、前述の脱水した場合よりも、仮焼温度 300 °C の試料で著しい発生量増加が認められた。硝酸成分と吸着水の共存する環境において NO_x 生成に至るパスがあることが示唆された。

3. まとめ

仮焼した粉末状顆粒体へのガンマ線照射を行い、生成するガス物質 (水素や NO_x 等) の分析およびその含水率依存性を測定した。水分を排除することでいずれのガスも発生量が極めて抑制されたが、水分を含ませると、発生量が増加した。顆粒体製造後は湿潤空気になるべく触れさせずにキャニスタに封入する必要があることがわかった。

参考文献 [1] 室屋ら、日本原子力学会 2017 年秋の大会 3A09

本報告は、特別会計に関する法律 (エネルギー対策特別会計) に基づく文部科学省からの受託事業として、日本核燃料開発株式会社が実施した平成 29 年度及び平成 30 年度「MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発」の成果です。

*Yusa Muroya¹, Akihiro Suzuki², Yoichi Endo² (¹ISIR, Osaka Univ., ²NFD)