

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

(29) HLW 顆粒体の長期貯蔵時の化学安定性評価

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

(29) Evaluation of long term chemical stability of the HLW granule during the storage

*室屋 裕佐¹, 稲垣八穂広², 有馬立身², 鈴木 晶大³

¹阪大産研, ²九大, ³NFD

HLW 顆粒体の貯蔵用キャニスタ内での化学的安定性について、顆粒体の放射線分解およびキャニスタの内面腐食から検討し、 γ 照射試験及びキャニスタ材腐食試験により 50 年間にわたる長期挙動を評価した。

キーワード：柔軟な廃棄物管理、化学的安定性、HLW 顆粒体、放射線分解、腐食挙動

1. 緒言

柔軟な廃棄物管理法においては、HLW 顆粒体の貯蔵期間を 50 年程度と想定し、現行ガラス固化体貯蔵設備との共用や、ガラス固化体と同じキャニスタ材の使用を検討している。貯蔵中は HLW による高温且つ放射線環境下にあるため、貯蔵の成立性確認のためには顆粒体の放射線分解やキャニスタ材の内面腐食といった化学的安定性を確認する必要がある。そこで、模擬顆粒体を用いて γ 線照射による発生ガス分析 (NO_x や水素) やキャニスタ材 (SUS304L) の高温下における腐食実験を実施してきている[1]。本報告では、模擬顆粒体として 18 金属元素を含む硝酸溶液をか焼したか焼体を用いた試験結果と共に、得られた結果を基に 50 年間にわたる長期挙動について評価を行った。

2. 実験と議論

【顆粒体の放射線分解の長期挙動】含水率やか焼温度など変化させたか焼体を用いて、阪大産研コバルト照射施設 (Rabbit11) にて 500 kGy 程度の γ 線照射を行った。照射後試料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 (NO_x 検出) で測定した。微量の水を含む試料からは、か焼温度に関わらず有意な水素が検出された。50 年間線量 (11 GGy) へ線形外挿すると、製造時に含まれる水分の全量が水素となると見積もられ、すなわち含水率が 0.1% の場合、キャニスタ内の水素分圧は 4.7 atm と試算される。NO_x についてはおよそ発生量が小さく、か焼温度 600 °C ・脱水の顆粒体ではほとんど検出されなかった (10 g、500 kGy で $<1.2 \times 10^{-11}$ mol)。含水により NO_x 発生は促進されたが、それでも 50 年後の NO_x 分圧は 0.1 atm 以下と見積もられた。か焼温度を少し下げた 500 °C の試料でも NO_x はほとんど検出されず、か焼温度が若干不足した場合でも化学変化への影響は小さいと言える。以上から、NO_x については多少のか焼温度不足や水分を含んでも発生量は抑制されるが、水素発生は微量の水分にも敏感であり、顆粒体製造時の水分管理および雰囲気 (窒素置換) が重要となることが示された。また、50 年後のキャニスタ内の内圧上昇は水素・NO_x を合わせて水分 0.1% 当たり 5 atm 以下と見積もられることから、キャニスタ封入時の顆粒体含水率として、0.3% 以下を仕様値とすればキャニスタ機械強度の観点からも影響は小さいと評価された。

【キャニスタ材の高温腐食の長期挙動】顆粒体として、模擬か焼体 (か焼温度 600 °C) の含水率を変化させたものを使用し、実際の貯蔵温度に近い 200 °C において、キャニスタ材 (SUS304L) と接触反応させる腐食試験 (~85 日) を実施した。試験後、SUS304L 試験片の重量測定、XRD 及び SEM/EDS 分析を行った。NaNO₃ のみによる腐食と比較し、か焼体の方が腐食量が多くなった (Fig. 1)。これは、か焼体の性質によるもの (NaNO₃ 以外の硝酸塩、特に Ru 硝酸塩) と水分による要因が考えられる。最も保守的なケースとして、50 年間の腐食量を線形近似で評価すると、か焼体 (含水率 3 wt%) の場合で 9.7 mg/cm² となり、減肉厚さとして 53 μ m 程度が予想された。これは想定しているキャニスタ厚さ 2 mm に対して十分小さく、発生ガスによる内圧上昇や取扱い時に必要な機械強度を考慮しても、キャニスタの健全性には影響しないと判断できる。

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 30 年度~令和元年度「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」の成果を含みます。

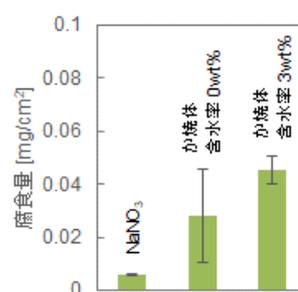


Fig. 1 腐食 (200 °C、85 日) による SUS304L の重量変化

*Yusa Muroya¹, Yaohiro Inagaki², Tatsumi Arima², Akihiro Suzuki³ (¹ISIR, Osaka Univ., ²Kyushu Univ., ³NFD)