

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

(26) HLW 顆粒体の異なる製造条件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
(26) Chemical stability during storage of the HLW granules prepared in different manufacturing conditions

*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、含水率や焼成温度など、か焼体の条件を複合的に変化させて、放射線分解により発生する水素および NO_x の発生量評価や反応機構の検討を行った。

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、製造条件

1. 緒言

柔軟な廃棄物管理法における HLW 顆粒体の貯蔵は、現行ガラス固化体貯蔵設備を共用し、また同じキャニスタ材を用いて封入する。貯蔵期間は 50 年を想定しているが、顆粒体は HLW からの放射線環境下にあるため、貯蔵の成立性確認のためには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、か焼体についてガス発生量の線量依存性や含水率依存性を評価してきた[1]。本発表では、含水率や焼成温度など、複合的な条件の変化によるガス発生への影響を調べた。

2. 実験と議論

バイアル瓶に入れた試料 (10 g) 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、前回報告[1]において吸湿させた顆粒体 (1~3%) よりも 1 桁小さな含水率のか焼温度 600 °C の粉末試料 (0.1%、0.2%) について NO_x 発生量を調べた (図 1)。いずれも検出され (3.9×10⁻¹¹ および 9.8×10⁻¹¹ mol)、微量な含水によって NO_x 発生が増加する傾向も見られた。50 年後のキャニスタ内の NO_x 分圧はそれぞれ 0.013、0.033 atm と見積もられた。水分を含むと NO_x 発生は促進されるものの、分圧上昇に対するキャニスタ機械強度の観点から小さいと見積もられる。脱水 600 °C の顆粒体では、NO_x 発生はほとんど検出されず (<1.2×10⁻¹¹ mol) (図 1)、顆粒体製造後の吸湿を低減することで更に抑制効果が期待できる。か焼温度を少し下げた 500 °C の粉末でも NO_x はほとんど検出されない (<2.9×10⁻¹¹ mol) ことから、か焼温度が若干不足した場合でも NO_x 発生量の増加はほとんどないと言える。

次に、同様の試料で水素についても測定を行った。いずれの試料でも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た。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。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、水素発生は微量の水分にも敏感であり、顆粒体のキャニスタへの密封前に湿潤空気に触れさせないことが重要であるとわかった。

3. まとめ

か焼した硝酸塩へのガンマ線照射を行い、生成するガス (水素、NO_x) の分析を行った。NO_x についてはか焼温度が 500 °C 以上であれば多少の水分を含んでも発生量は抑制されたが、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が重要となることが示された。

参考文献 [1] 室屋ら、日本原子力学会 2017 年秋の大会 3A09、2019 年秋の大会 3B12

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から実施した 2018 年度~2019 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。

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

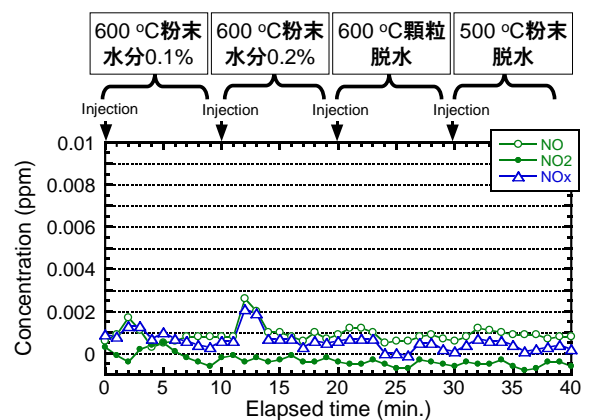


Fig. 1. Time profile of NO_x concentration generated from calcined nitrate prepared in various conditions.