

課題番号 :2024A-E11
利用課題名 (日本語) :マイクロビーム XAFS による福島第一原子力発電所から発生する廃棄物のコンポジット固化体に固定化された元素の電子状態解析
Program Title (English) :Electronic structure analysis of elements immobilized in composite solidified waste generated from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant by microbeam XAFS
利用者名(日本語) :中瀬正彦¹⁾, 牧涼介²⁾, Ikhwan Fauzia¹⁾, 小林 徹³⁾, 谷田 肇³⁾, 下条 晃司郎³⁾, 桜木 智史⁴⁾, 田中真悟⁴⁾, 丸山恵史⁵⁾, 小澤沙紀⁶⁾, 西條佳孝⁶⁾, 渡邊真太⁶⁾
Username (English) :M. Nakase¹⁾, R. Maki²⁾, F. Ikhwan¹⁾, T. Kobayashi³⁾, H. Tanida³⁾, K. Shimojo³⁾, T. Sakuragi⁴⁾, S. Tanaka⁴⁾, S. Maruyama⁵⁾, S. Ozawa⁶⁾, Y. Saijo⁶⁾, S. Watanabe⁶⁾
所属名(日本語) :1)東京工業大学, 2) 京都大学, 3)原子力機構, 4) 岡山理科大 AGC 株式会社
キーワード: マイクロビーム、XAFS、XRF、福島第一原子力発電所、燃料デブリ、固化体、処分

1. 概要 (Summary) 目的・用途・実施内容

福島第一原子力発電所 (1F) から多様な廃棄物が発生した。例えば ALPS プロセスで高濃度放射核種を含む汚染水は処理され、最後に残るトリチウムは十分希釈され海洋放出が可能となった。次に二次廃棄物を含む多くの固体廃棄物の処理・処分が必要となる。我々が提案する「ハイブリッド固化体」は、多様な廃棄物を既に原子力の廃棄物処分の安全評価で利用されているジルカロイやステンレス鋼(SUS)で粉末冶金的手法により固化したもので、2022B、2023A 期ではマイクロビーム XAFS により金属マトリクスと、その中に単分散させた廃棄物との界面での金属間化合物形成や元素分布との相関を明らかにし、多くの廃棄物特にとり SUS の適合性が高いことが分かった。KB ミラーで集光した高輝度放射光を用いることで、効果的に固化元素の電子状態を明らかにできることが確かめられた。2024A では、ハイブリッド固化体とは別の概念の「コンポジット固化体」マイクロビーム XAFS を実施した。これは、ハイブリッド固化体のように各廃棄物を安定なマトリクス中に単分散させるのではなく、結晶構造に固溶させた、より強固な固化体と我々は定義している。コンポジット固化体として、我々はシンロック (SYNROC) に注目している。多様な元素がそれぞれに安定な結晶相中に固溶された、自然界で見られるような多相系の状態で安定となる。頑強な固化体が作れる性質から、An も含有する 1F 廃棄物(特に燃料デブリ)の廃棄体として有望であると考えた。シンロックはかつて高レベル廃液の技術選定がなされた際は、ガラスよりもシンロッ

クの方が廃棄体としての物性は優れるが、合成に高温が必要という課題があった。しかし、スパークプラズマ焼成 (SPS) を適用すると、シンロック固化体が一軸圧縮と交流電流の印加により、迅速かつ焼成温度を低下させることが可能で、50 MPa、100 °C/分で昇温し、保持時間 5 分程度で焼成可能であることを明らかにした。合成物の詳細な性状把握のため、固化体内の模擬廃棄物の状態や均一性といった観点の評価が必要であり、顕微鏡的手法の中でも電子状態が分かるマイクロビーム XAFS が適している。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

SPring-8 BL22XU において、高輝度放射光を KB ミラーで集光したマイクロビームにより XRF マッピング図を取得し、そこから特徴的な部位を選定し、XAFS 測定を行った。固化体試料については、酸化物系模擬燃料デブリ (CeO₂、SUS、Zr の熔融・焼結体)、金属系のデブリをシンロックの一種であるムラタイトに SPS で固化した試料等について測定を行った。これら試料の顕微鏡による組織観察、微構造解析、特に電子状態(価数など)の解明を目的とした。Ce の L₃ 吸収端、Zr の K 吸収端を用いて、蛍光法による XAFS 測定を行った。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

今回、U の模擬物質である Ce を用い模擬燃料デブリ、並びにこれを SPS によりシンロック固化した試料について、顕微鏡によるテクスチャー観察と、特徴的な部位における元素の電子状態を良好に観察することが

できた。今後、更に系統的に作成したデブリを固化したシンロックを合成してマイクロビームによる観察を行うと共に、これまでに得られているマイクロビームを用いたXRFの元素マッピングデータの画像補正も行い、論文用にデータ整理と考察の充実を行う。また、いずれは取得した点測定データと画像の特徴量を生かした簡易的な電子状態マップに調整したい。また、浸出試験や α 、 β 、 γ 線照射試料のTEM分析なども進める。

4. その他・特記事項 (Others)

SPS 装置を用いた U(ウラン)含有シンロック合成を作成する拠点における許認可申請が間に合わなかったため、次期マシンタイムにて実施できるよう調整する。