

課題番号 : 2024B-E07

利用課題名 (日本語) : 高温 XAFS による MOX 使用済燃料由来高レベル放射性廃棄物固化用新開発マトリックスの冷却条件および加熱保持に対する熱安定性の評価と計算予測の検証

Program Title (English) : Evaluation of loading capacity and thermal stability of Newly developed glass matrixes for high-level radioactive nuclear waste from spent MOX fuels under cooling and heating treatments by high-temperature XAFS

利用者名 (日本語) : 矢野哲司¹⁾, 加藤駿¹⁾, 細川恵生¹⁾, 畠山直也¹⁾, 石橋一輝¹⁾, 池谷柚紀子¹⁾, 榎枝竜之介²⁾, 細葉藤和²⁾, 宮部大亮²⁾

Username (English) : T. Yano¹⁾, T. Kato¹⁾, M. Hosokawa¹⁾, N. Hatakeyama¹⁾, K. Ishibashi¹⁾, Y. Ikeya¹⁾, R. Enoeda²⁾, T. Hosoba²⁾, D. Mlyabe²⁾

所属名 (日本語) : 1) 東京科学大学物質理工学院, 2) 日本板硝子株式会社伊丹研究所

キーワード : 放射性廃棄物固化ガラス, 高レベル放射性元素, 高温 XAFS, 充填性能, 熱安定性

1. 概要 (Summary) 目的・用途・実施内容

原子力発電による電力供給の継続に伴って蓄積されている使用済燃料を再処理することで再利用可能な燃料元素 U, Pu を抽出し新たな燃料「MOX(Mixed oxides)燃料」として使用する計画にある。今後, MOX 使用済燃料と呼ばれる異なる使用済燃料が生じ, これらから生じる高レベル放射性廃棄物も処分対象となる。申請者は, 資源エネルギー庁のプロジェクトのもとに MOX 使用済燃料由来の高レベル放射性廃棄物固化と処分に対し, 処分場面積を最小化するのに必要な充填率のさらに 1.5 倍まで充填猶予のあるボロシリケートガラスの探索と開発を進め, その候補ガラス組成を複数種得た。本研究は, 開発した新規ボロシリケートガラスマトリックスが「処分までの実プロセスで受ける熱履歴」に対して安定性が確保できるのかどうかを検証するためのものであり, 「熔融炉からキャニスターへの流下によって冷却させるに至るまで」と「崩壊熱によって被るガラス転移温度 T_g 近傍で加熱保持されるまで(処分までの冷却期間)」に対する熱安定性を評価し, 優れた組成を絞り込むことを目的として行う。

今後半世紀以上の中長期にわたる MOX 使用済燃料についての課題は, 日本だけでなく世界的にも初めての取り組みであり, 原子力発電方式の変更に伴って, 新たなガラスマトリックスの開発が継続的に求められることが想定され, その開発には実験的手法だけではなく, データベースと学習による計算による予測の併用が必須である。高温保持の放射性元素の化学状態変化のデータは乏しく, 計算(経験的/非経験的分子動力学法が有力)の信頼性を高める元となるデータを収集できればそれらを解決できる扉を開けることが可能となる。本研究のデータは, 「計算機科学の手法と結びつけるためのもの」である。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

試料には, 安定同位体からなる模擬放射性廃棄物を充填させた MOX 廃液固化用に新たに開発したガラス 3 種 (Zr, Mo を含む), Ni を含むアルミノシリケート等である。測定は全ての試料について透過法を用い, 標準物質測定によってエネルギー校正を行った後, 室温測定のための試料ガラスについては板状試料を, 高温測定用試料ガラスについては, 内径 2mm Φ の白金リングに嵌め込んだ試料を用いた。高温測定には専用に開発した小型電気炉を光学系上に設置し, 通電状態を確認した後, 室温, 各ガラスのガラス転移温度, 所定の温度という順に測定を進めた。測定元素は Ni, Zr, Mo の各 K 端であり, EXAFS 領域まで測定した。高温加熱中の試料からの成分揮発を抑制するために, 電気炉内部は乾燥雰囲気に保持した。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

図 1 に、MOX 廃液充填用に開発したガラス 3 種 (STDBF, BF, STDBF+BF) のうち、STDBF の Mo K 端 EXAFS の k 空間の EXAFS 振動結果を例として示す。データは、室温から 950℃ の温度範囲においても $k \sim 9 \text{ \AA}^{-1}$ の領域まで高い S/N 比の質の高いデータが得られ、他のガラスにおいても同様の結果となった。図 2 に R 空間にフーリエ変換した動径関数を示す。ガラス転移温度以上の温度に 6 時間以上保持しても、第一近接元素の Mo-O ピークよりも長い R の領域に Mo-Mo 相関を示すピークの生成は見られず、Mo 酸塩の凝集傾向は検出されなかった。このことは、開発された廃棄物充填性能の大きい新規のガラスマトリックスは、一度ガラスの中に溶解した後、ガラス固化体を閉じ込めるステンレスキャニスターへ流し込む際に受ける比較的ゆっくりとした冷却過程においてもその析出を十分に抑制できる性能を有していることがわかる。測定された室温、高温融液の Ni, Mo および Zr 等の廃棄物成分の XAFS データは、ガラス固化体用ガラスおよび融液の中に安定して溶解している化学状態を示す実験ライブラリデータとして登録し、計算機科学的的手法による溶解状態シミュレーションの参照実験データとして利用する予定である。

4. その他・特記事項 (Others)

なし

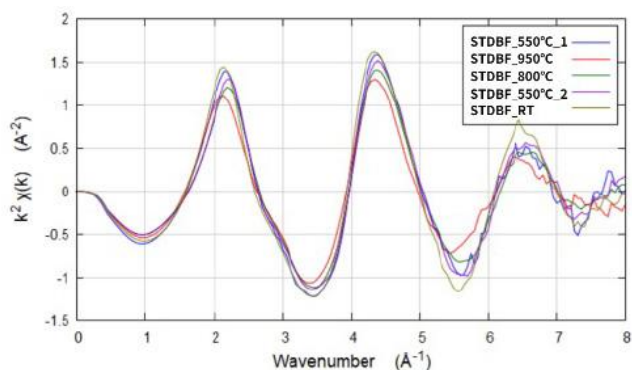


図1:MOX 由来模擬放射性廃棄物充填
STDBF ガラス中の Mo-K 端 EXAFS 振動の
温度依存性

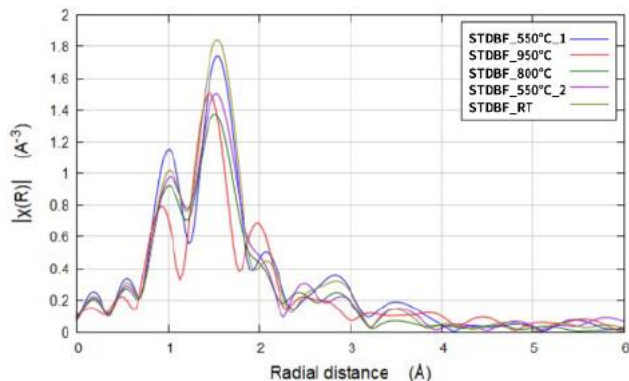


図 2:MOX 由来模擬放射性廃棄物充填
STDBF ガラス中の Mo-K 端動径分布関数の
温度依存性