JAEA-Testing 2022-001 DOI:10.11484/jaea-testing-2022-001



有機物含有核燃料物質の安定化処理

Stabilization Treatment of Nuclear Fuel Material Contained with Organic Matter

先﨑 達也	荒井 陽一	矢野 公彦 (左藤 大輔
多田 康平	小木 浩通	川野邊 崇之	大野 真平
中村 雅弘	北脇 慎一	柴田 淳広	

Tatsuya SENZAKI, Yoichi ARAI, Kimihiko YANO, Daisuke SATO Kohei TADA, Hiromichi OGI, Takayuki KAWANOBE, Shimpei OHNO Masahiro NAKAMURA, Shinichi KITAWAKI and Atsuhiro SHIBATA

> 核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 環境技術開発センター 再処理技術開発試験部

Department of Reprocessing Technology Development Nuclear Backend Technology Center Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

May 2022

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートの転載等の著作権利用は許可が必要です。本レポートの入手並びに成果の利用(データを含む)は、 下記までお問い合わせ下さい。 なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト(<u>https://www.jaea.go.jp</u>)

より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4 電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency. Reuse and reproduction of this report (including data) is required permission. Availability and use of the results of this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency. 2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan

Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2022

有機物含有核燃料物質の安定化処理

日本原子力研究開発機構 核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 環境技術開発センター 再処理技術開発試験部

先崎 達也、荒井 陽一、矢野 公彦、佐藤 大輔、多田 康平、小木 浩通*1、 川野邊 崇之*2、大野 真平、中村 雅弘、北脇 慎一、柴田 淳広

(2022年3月16日受理)

核燃料サイクル工学研究所 B 棟における試験、分析の実施により発生し、長期間グローブボ ックス内に保管していた核燃料物質について、当該施設の廃止措置の決定に伴い、高レベル放 射性物質研究施設(CPF)の貯蔵庫においてポリ塩化ビニル製の袋(PVC バッグ)で密封して保管 していた。CPF 安全作業基準に基づく貯蔵物の定期点検において PVC バッグが徐々に膨らむ 状況が確認されたことから、当該試料中から放射線分解によると思われる何らかのガスが発生 していると考えられた。ガスが滞留した状態で放置すると、PVC バッグの破裂・破損に繋がる ため、ガスが発生しない状態に安定化する必要があると考えた。

安定化処理までの処理フローを確立するため、当該核燃料物質の性状を調査した。また、その結果から模擬物質を選定してモックアップ試験を実施した。性状調査においては放射能分析や成分分析、熱分析を実施した。放射性物質濃度及び組成を明らかにするため、y線スペクトロメトリーによる定性分析及び試料溶解による成分分析を実施した。次に、加熱処理による発熱反応を確認するため、酸素をコントロールした条件下で熱分析を実施した。熱分析の結果から有機物含有核燃料物質の組成を推定し、700°Cの熱処理により安定化が可能と判断できたことから、全量を熱処理し安定化処理作業を完了した。核燃料物質の熱処理においては、まずは少量の試料により安全性を確認した後、処理規模をスケールアップした。熱分解処理後の重量減少量の測定により、核燃料物質に混合する有機物が完全に分解できたことを確認した。

安定化処理後の核燃料物質は SUS 製貯蔵容器に収納してバッグアウトし、CPF の貯蔵庫に 貯蔵することで一連の安定化処理作業を完了した。

今後の廃止措置においても、性状不明な核燃料物質の安定化処理が必要なケースが想定され ることから、安定化処理において得られた知見について報告書にまとめる。

核燃料サイクル工学研究所:〒319-1194 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

*1 検査開発株式会社

*2 株式会社アセンド

JAEA-Testing 2022-001

Stabilization Treatment of Nuclear Fuel Material Contained with Organic Matter

Tatsuya SENZAKI, Yoichi ARAI, Kimihiko YANO, Daisuke SATO, Kohei TADA, Hiromichi OGI^{*1}, Takayuki KAWANOBE^{*2}, Shimpei OHNO, Masahiro NAKAMURA, Shinichi KITAWAKI and Atsuhiro SHIBATA

Department of Reprocessing Technology Development, Nuclear Backend Technology Center Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development Japan Atomic Energy Agency Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 16, 2022)

In preparation for the decommissioning of Laboratory B of the Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratory, the nuclear fuel material that had been stored in the glove box for a long time was moved to the Chemical Processing Facility (CPF). This nuclear fuel material was stored with sealed by a polyvinyl chloride (PVC) bag in the storage. Since it was confirmed that the PVC bag swelled during storage, it seems that any gas was generated by radiolysis of the some components contained in the nuclear fuel material. In order to avoid breakage of the PVC bag and keep it safety for long time, we began the study on the stabilization treatment of the nuclear fuel material.

First, in order to clarify the properties of nuclear fuel material, radioactivity analysis, component analysis, and thermal analysis were carried out. From the results of thermal analysis, the existence of organic matter was clarified. Then, ion exchange resin with similar thermal characteristics was selected and the thermal decomposition conditions were investigated. From the results of these analyzes and examinations, the conditions for thermal decomposition of the nuclear fuel material contained with organic matter was established. Performing a heat treatment of a small amount of nuclear fuel material in order to confirm the safety, after which the treatment amount was scaled up. It was confirmed by the weight change after the heat treatment that the nuclear fuel material contained with organic matter was completely decomposed.

Keywords: Stabilization Treatment, Heat Treatment, Chelating Resin

^{*1} Inspection Development Company Ltd.

^{*2} Ascend Co,. Ltd.

目 次

1.	序詞	公	- 1
2.	有相	幾物含有核燃料物質の情報	2
3.	有相	幾物含有核燃料物質の性状調査	3
3	.1	粉砕・混合による均一化処理	3
3	.2	γ線スペクトロメトリーによる定性分析	3
3	.3	有機物含有核燃料物質の成分分析	4
		3.3.1 分析前処理	4
		3.3.2 成分分析	4
3	.4	有機物含有核燃料物質の熱物性測定	5
4.	模打	疑試料による熱処理条件の検討	7
4	.1	模擬試料の調製	7
4	.2	熱処理条件の検討	7
5.	有柞	幾物含有核燃料物質の安定化処理	9
5	.1	5gスケール熱処理	9
		5.1.1 200 °C 処理(1 回目)	9
		5.1.2 200 °C 処理(2 回目)	9
		5.1.3 400 °C 処理(1 回目)	9
		5.1.4 400 °C 処理(2 回目)	9
		5.1.5 700 °C 処理(1 回目)	10
		5.1.6 700 °C 処理(2 回目)	10
		5.1.7 5g スケール熱処理のまとめ	10
5	.2	100gスケール熱処理	10
6.	結	丛	12
謝辞	辛		13
参考	令文	献	13

Contents

1.	Introduction 1	L
2.	Information of Nuclear Fuel Material with Organic Matter	2
3.	Property Investigation of Nuclear Fuel Material with Organic Matter	3
ŝ	3.1 Homogenization Treatment by Crushing and Mixing	3
ŝ	3.2 Qualitative Analysis by Gamma Ray Spectrometry	3
ŝ	3.3 Componential Analysis of Nuclear Fuel Material with Organic Matter	1
	3.3.1 Pretreatment	1
	3.3.2 Componential Analysis	1
ę	3.4 Measurement of Thermophysical Property of Nuclear Fuel Material with Organic	С
	Matter	5
4.	Examination of Heat Treatment Conditions7	7
4	1.1 Preparation of Simulated Sample7	7
4	1.2 Examination of Heat Treatment Conditions by Using Simulated Sample7	7
5.	Stabilization Treatment of Nuclear Fuel Material with Organic Matter)
Ę	5.1 5 g Scale Heat Treatment)
	5.1.1 200 °C Treatment (1))
	5.1.2 200 °C Treatment (2))
	5.1.3 400 °C Treatment (1))
	5.1.4 400 °C Treatment (2))
	5.1.5 700 °C Treatment (1) 10)
	5.1.6 700 °C Treatment (2)10)
	5.1.7 Summary of 5 g Scale Heat Treatment10)
Ę	5.2 100 g scale Heat Treatment)
6.	Conclusion12	2
Ac	knowledgements13	3
Re	ferences1a	3

表リスト

Table 2.1	有機物含有核燃料物質の履歴	· - 14
Table 3.1	Pu,U 濃度測定結果(Pu:α線測定装置、U:ICP-AES)	-14
Table 3.2	同位体分析結果	-14
Table 3.3	Pu1g当たりの ²³⁹ Pu+ ²⁴⁰ Puの放射能量	-15
Table 3.4	試料 1.126 g 中の Pu, U 量の分析値と計量管理値の比較	-15
Table 3.5	溶解液中 Pu, U 濃度の概算結果	-15
Table 4.1	Dowex 1X8 の少量スケール熱処理結果(0.5g 規模)	-16
Table 4.2	Dowex 1X8 のスケールアップ熱処理結果(5g 規模)	- 16
Table 4.3	有機物含有核燃料物質5gスケールの熱処理条件	-17
Table 5.1	スケールアップした熱処理条件	-17
Table 5.2	スケールアップした熱処理の作業実績	-17

図リスト

Fig. 3.1	安定化処理の検討に係る処理フロー	18
Fig. 3.2	γ線核種の定性分析結果	18
Fig. 3.3	各溶解液中の Pu 量と積算回収率	19
Fig. 3.4	各溶解液中の U 量と積算回収率	19
Fig. 3.5	有機物含有核燃料物質の示差熱分析結果	20
Fig. 4.1	Dowex 1X8 の示差熱分析結果	20
Fig. 5.1	5gスケールの熱処理における重量残存率	21

写真リスト

Photo 2.1	有機物含有核燃料物質の外観	$\cdot 21$
Photo 3.1	有機物含有核燃料物質の粉砕・混合作業の様子	22
Photo 3.2	第1回目酸溶解処理時の状況(溶解液1)	23
Photo 3.3	第2回目酸溶解処理時の状況(溶解液2)	23
Photo 5.1	200 °C 処理 1 回目前後の様子	$\cdot 24$
Photo 5.2	200 °C 処理 2 回目終了後の様子	$\cdot 24$
Photo 5.3	400 °C 処理 1 回目終了後の様子	25
Photo 5.4	400 °C 処理 2 回目終了後の様子	$\cdot 25$
Photo 5.5	700 °C 処理 1 回目終了後の様子	26
Photo 5.6	700 °C 処理 2 回目終了後の様子	26
Photo 5.7	脱硝転換容器に充填した状態(熱処理前)	$\cdot 27$
Photo 5.8	200 °C 処理後(1回目)の外観	$\cdot 27$

Photo 5.9	700 °C 処理後(2 回目)の外観	28
Photo 5.10	ステンレス製容器に回収した核燃料物質(保管直前の状態)	28

Table List

Table 2.1	History of Nuclear Fuel Material with Organic Matter 14
Table 3.1	Results of U and Pu Concentrations (Pu: α spectrometer, U: ICP-AES) $\ \cdots \cdots 14$
Table 3.2	Results of Isotope Analysis
Table 3.3	Radioactivity of $^{239}\mathrm{Pu}+^{240}\mathrm{Pu}$ per 1 g of Pu
Table 3.4	Analysis and Material Accountancy on amount of Pu and U in 1.126 g of
specimen	15
Table 3.5	Approximate Results of U and Pu Concentration in the Solution15
Table 4.1	Small Scale (0.5 g Scale) Treatment of Dowex 1X816
Table 4.2	Scale-up (5 g Scale) Treatment of Dowex 1X816
Table 4.3	Condition of 5 g Scale Treatment of Nuclear Fuel Material with Organic Matter
Table 5.1	Scale-up Treatment Condition17
Table 5.2	Achievement of Scale-up Treatment17

Figure List

Fig. 3.1	Consideration Flow on Stabilization Treatment	18
Fig. 3.2	Results on Qualitative Analysis of Gamma Nuclides	18
Fig. 3.3	Pu Amounts in the Solutions and Yields	- 19
Fig. 3.4	U Amounts in the Solutions and Yields	19
Fig. 3.5	TG-DTA of Nuclear Fuel Material with Organic Matter	20
Fig. 4.1	TG-DTA of Dowex 1X8	- 20
Fig. 5.1	Weight Reduction of 5 g Scale Treatment	-21

Photo List

Photo 2.1	Appearance of Nuclear Fuel Material with Organic Matter21
Photo 3.1	Crushing and Mixing Operation of Nuclear Fuel Material with Organic Matter
	22
Photo 3.2	Situation of 1st Acid Dissolution (Solution 1)23
Photo 3.3	Situation of 2nd Acid Dissolution (Solution 2)23
Photo 5.1	Before and After 1st 200 °C Treatment24
Photo 5.2	Before and After 2nd 200 °C Treatment24
Photo 5.3	Before and After 1st 400 °C Treatment25
Photo 5.4	Before and After 2nd 400 °C Treatment25
Photo 5.5	Before and After 1st 700 °C Treatment26

Photo 5.6	Before and After 2nd 700 °C Treatment	-26
Photo 5.7	Solution in the Crucible before Treatment	-27
Photo 5.8	Appearance after 200 °C Treatment (1st Treatment)	-27
Photo 5.9	Appearance after 700 °C Treatment (2nd Treatment)	-28
Photo 5.10	Recovered Nuclear Material in Stainless Container (before Storage)	-28

1. 序論

原子力施設は老朽化等により廃止措置が進められており、核燃料サイクル工学研究所 B 棟は 1962年(昭和37年)の建設から約60年が経過している。廃止措置の一環として、施設内に保有 する核燃料物質の移動を進めており、その一部は高レベル放射性物質研究施設(CPF)において 試験試料として再利用するために貯蔵している。安定化処理の対象とした核燃料物質(以下、有 機物含有核燃料物質)もその一つであり、B 棟のグローブボックスクリーンアップ時に回収した 核燃料物質で、ガラス容器に入れた状態で保管してきた。CPFに移動する際は、ガラス容器を グローブボックスからバッグアウトすることでポリ塩化ビニル製の袋(PVC バッグ)で密封して 搬出し、PVC バッグに密封された状態で 2007年(平成19年)から CPF の貯蔵庫で保管してい る。本試料は、CPF 安全作業基準に基づく貯蔵物の定期点検において PVC バッグが徐々に膨 らむ状況が確認されたことから、2009年(平成21年)、2012年(平成24年)、2015年(平成27 年)、2017年(平成29年)にグローブボックスへ一旦バッグインした後、バッグアウトすること で PVC バッグの交換作業を実施し、膨らみを解消した。

貯蔵中の核燃料物質は、ガスが発生しない状態に安定化する必要があることから、まず、有 機物含有核燃料物質の性状を調査した。放射性物質濃度及び組成を明らかにするため、γ線ス ペクトロメトリーによる定性分析及び試料溶解による成分分析を実施した。次に、加熱処理に よる発熱反応を確認するため、酸素をコントロールした条件下で熱分析を実施した。熱分析の 結果から有機物含有核燃料物質の組成を推定し、700°Cの熱処理により安定化が可能と判断で きたことから、全量を熱処理し安定化処理作業を完了した。

今後の廃止措置においても、性状不明な核燃料物質の安定化処理が必要なケースが想定され ることから、安定化処理において得られた知見について報告書にまとめる。

2. 有機物含有核燃料物質の情報

有機物含有核燃料物質の計量管理情報によると、Pu 量は約 5g、U 量は約 7 g であり、Am を約 0.1 g 含有している。有機物含有核燃料物質の総重量は 138 g であり、約 100 g は核燃料 物質以外で構成されている。計量管理を開始した 2006 年からの管理状況を Table 2.1 に示す。 CPF に受入れて以降は、計量管理情報は改訂されていないため、²⁴¹Pu の 8[·]崩壊による ²⁴¹Am 含有量は増加している可能性がある。

CPFの貯蔵庫は、常温・常圧であり、また、有機物含有核燃料物質を内包するガラス瓶は単 独で PVC バッグに密封しているため試薬等との接触もなく、熱的、化学的反応が生じない状 態で保管していた。この状況から、核燃料物質に有機物又は水分が同伴しており、水素ガスが 発生していると推察された。

有機物含有核燃料物質の外観を確認するため、グローブボックスに貯蔵容器(ガラス容器)を バッグインした。貯蔵容器内の有機物含有核燃料物質の外観を Photo 2.1 に示す。全体的には 黒色の塊状であり、所々がまだらに茶色であった。グローブ越しに貯蔵容器の線量率を測定し た結果、 γ 線による線量は 6.1 mSv/h、8 線は 0.9 mSv/h、中性子線は 1.0 mSv/h であった。厚 さ 0.02 cm の鉛遮蔽越しに γ 線、8 線の線量を測定した結果、 γ 線は 3.4 mSv/h、8 線は 0.8 mSv/h であり、厚さ 0.02 cm の鉛遮蔽により γ 線が半減した。例として、²³⁹Pu の主な γ 線のエネル ギーは 0.4 MeV であり、鉛に対する減弱係数は 0.2172 cm²/g である ¹⁾。減弱係数に密度を乗 じて線減衰係数を求めると、約 2.47 cm⁻¹である。厚さ 0.02 cm の鉛に対しては、5 %程度しか 遮蔽されてないと予想される。また、²⁴¹Am の主な γ 線エネルギーは 0.06 MeV であり、減弱 係数は 4.563 cm²/g である ¹⁾。同様に、減弱係数に密度を乗じて線減衰係数を求めると約 57.0 cm⁻¹となり、厚さ 0.02 cm の鉛に対しては、70 %の γ 線が遮蔽される。このことから、高線量 の原因は Am が多く含まれていることに起因すると推察された。

3. 有機物含有核燃料物質の性状調査

ガスが発生しない状態となるまでの安定化処理方法を検討するためには、核燃料物質の性状 を把握する必要がある。ガスは絶えず発生した状態であると予想されるが、数年かけて PVC バッグが膨らむ様子を考慮すると、ガスの発生速度は速いものではなく、ガスの組成分析のサ ンプルを得ることは困難である。外的因子から隔離された状態の PVC バッグ内でもガスは発 生し、高線量であり、固形物であることから、この核燃料物質には有機物が含まれている可能 性は高いが、それらに関する情報は全く得られていない。まずはガスの発生原因を調査し、そ れと並行して安定化処理の検討に重要な情報を取得する必要がある。

そこで、放射性物質に係る分析を実施し、含有する Pu, U の他、放射線分解に影響を与える 因子について調査した。また、上記の分析に必要な前処理と同時に、ガスの発生源除去に対す る適性を調査するため、酸溶解性や熱的特性についても調査した。

安定化処理を確立するための処理フローを Fig. 3.1 に示す。2 章にも示した通り、グローブ ボックスの整理の過程で計上された経緯があることから、計量管理において計上されている Pu, U 量を確認する必要がある。有意量の核燃料物質が含まれていなければ、放射性固体廃棄物と して廃棄することになる。Pu, U の分析のためには溶液化が必要であり、併せて酸溶解性を確 認する。また、その他の放射線源についても確認する。溶解処理等の過程において、有機物の 存在を確認できた場合は、熱分解処理も視野に入れた処理検討が必要となる。CPF においては、 100 g 規模の加熱装置は限られており、脱硝転換装置が第一の候補となる。脱硝転換装置では、 運転上の加熱温度の上限は 750°C との制限があり、そこまでの加熱で熱分解が可能であるかを 明らかにする必要がある。また、安全性の観点からは、加熱と同時に急激な発熱反応や化学反 応の進行による爆発が生じないことを確認する必要がある。そのためには、酸素濃度をコント ロールした状況下での熱物性の測定が必要であり、本検討においては酸素濃度を 2000~4000 ppm に制御して、示差熱分析を実施した。

3.1 粉砕・混合による均一化処理

Photo 2.1 でも示した通り、本核燃料物質は塊状であるため、試料の均一性はもとより、微量の試料を利用する示差熱分析において代表性のある試料の分取が実施できない。そこで、分析前処理として、試料を粉末化及び混合を実施した。

ボールミル作業においては、ボールと同程度の直径 2cm 程度の塊は粉砕されないことから、 まず篩(メッシュ 2.8 mm)を用いて塊と粉末に分級し、塊はスパチュラを用いて粗砕した。粗砕 片と回収粉末を混合し、ボールミル処理を実施することで約 99.8 %の粉末を回収した。作業時 の状況を Photo 3.1 に示す。

3.2 γ線スペクトロメトリーによる定性分析

均一化した有機物含有核燃料物質を 0.104 g 分取し(電子天秤、エー・アンド・デイ社製 MC-6100)、y線スペクトロメトリー(CANBERRA 社製 GC2020型)を測定した。得られたス ペクトルグラフを Fig. 3.2 に示す。本測定においては ²⁴¹Am と ¹³⁷Cs が検出され、カウント数 は 1×10⁵、1×10²であった。定量的な評価ではないが、²⁴¹Am に比較して ¹³⁷Cs のカウントが 約 1/100 以上であることから、¹³⁷Cs はコンタミネーションであり、y 線の主要核種は ²⁴¹Am で あると推察された。また、²⁴¹Am, ¹³⁷Cs による y 線以外には有意な y 線は検出されなかった。

3.3 有機物含有核燃料物質の成分分析

3.3.1 分析前処理

均一化した有機物含有核燃料物質を 1.126 g 分取し(電子天秤、エー・アンド・デイ社製 MC-6100)、酸溶液への溶解処理を試みた。分取した全試料を 8M 硝酸溶液に投入して約 80 °C に加温して、加熱濃縮を行った。乾固に近い状態となった後、8M 硝酸に(1+1)フッ酸を微量添 加し、約 80 °C に加温した。沈殿物が残ったため、再度乾固に近い状態となるまで加熱濃縮し た。得られた乾固物に対し、1M 硝酸溶液を投入したところ、白色の繊維状の沈殿物が生成し たため、デカンテーションにより沈殿物と上澄み液を分離した(溶解液 1, Photo 3.2)。

分相した白色繊維状の沈殿物はろ紙などの有機物であると推定し、過酸化水素の添加による 有機物の酸化分解処理を試みた。1M 硝酸溶液を加えた状態で 15%過酸化水素水を滴下し、 100°Cまで加熱したところ、過酸化水素水を1mL滴下した時点で、沈殿物の形状が白色繊維 状から白色粉末状に変化した。溶解処理の過程で濃縮が進んだことから、8M 硝酸溶液を追加 して、温度 80°C で2時間加熱した。その後、24時間放冷、静置し、翌日に室温付近まで温度 が低下したところで、デカンテーションにより上澄み液を回収した(溶解液 2, Photo 3.3)。

最終的に得られた白色粉末状の沈殿物について、更なる溶解処理を試みた。まずは 0.1M 硝酸溶液を投入し、温度を 80°C で 2 時間加熱し、24 時間放冷、静置し、翌日に室温付近まで温度が低下したところで、デカンテーションにより上澄み液を回収した(溶解液 3)。上記と同様の手順で、1M 硝酸溶液、8M 硝酸溶液で溶解処理を実施し、それぞれを溶解液 4,5 として回収した。加熱した状態では沈殿物は微粒子の状態で溶液全体に拡散し、目視上では完全に溶解したように観察されたが、溶解液の温度の低下と共に、沈殿物が容器の底に沈降する様子が観察された。

3.3.2 成分分析

上記の処理により得られた各溶解液について、Pu 濃度、U 濃度を分析した。Pu 濃度は a 線 測定装置(CANBERRA 社製 SPD-450-18-100-AB)で、U 濃度は ICP 発光分光分析法(ICP-AES、 島津製作所社製 ICPS-7500 改)により求めた。a 線測定装置による分析では、Am 濃度について も測定した。分析結果を Table 3.1 に示す。Pu 濃度について、過酸化水素水と硝酸の混合液を 用いた溶解条件(溶解液 2)において、もっとも Pu 濃度が高く、次いで 8M 硝酸の溶解液(溶解 液 5)の Pu 濃度が高く、1M 硝酸溶液(溶解液 1, 4)では 10⁵ Bq/mL オーダーと、Pu 濃度は硝酸 濃度に依存していた。また、²³⁸Pu+²⁴¹Am の放射能量は ²³⁹Pu+²⁴⁰Pu よりも高い傾向にあり、 核燃料物質の高い線量率の原因は Am にあることを裏付ける結果となった。U 濃度については、 最初の酸溶解の時点で大半の U が溶解する傾向あることを確認した。

α線測定装置では Pu の同位体を明らかにできないため、溶解液 1 の Pu, U の同位体の組成 について質量分析(Thermo Fisher Scientific 社製 TRITON Plus)を実施した。本年度に測定し た Pu, Uの同位体比率と、CPFに移動前の事前分析として 2006 年に実施した分析結果を Table 3.2 に示す。Pu については、²⁴¹Pu(半減期 14 年)の核的損耗による影響を受けているが、全体 的には 2006 年の分析結果と同等であった。一方、U については、²³⁵U が約 2 %増加する結果 となった。これは前処理として実施した均一化によって、2006 年当時よりも正確な分析が実施 できた結果であると推定している。また、Pu の組成は ²³⁹Pu と ²⁴⁰Pu の合計が Pu 全体の約 97 % になる結果であった。Pu 1 g 当たりの ²³⁹Pu+²⁴⁰Pu の放射能量は Table 3.3 に示す通りであり、 ²³⁹Pu+²⁴⁰Pu が Pu 全体の約 97 %であったことを考慮して、溶解液中の総放射能量から溶解液 に含まれる Pu 量の総量を算出すると、0.05 g と推定される。本検討での実測値と計量管理値 の比較を Table 3.4 に示す。この結果から、分析値と計量管理値は同程度であり、試料中に含 まれる Pu, U は完全に溶解できたと考えられる。

本試験においてはデカンテーションにより溶解液の一部を沈殿物に残した状態で、新たな酸溶液を追加した。そのため、溶解液2以降は、直前の溶解液の一部を含んだ状態になる。そこで、溶解液投入量から Pu, U の溶解量を概算した結果を Table 3.5 に示す。回収した溶解液と 残留した溶解液の Pu, U 量の合計量から、直前の溶解液の残留液に含まれる Pu, U 量の差分を求めた。CPF における分析に対する精度は、試料調製から測定までの合計で±10%程度であることから、直前の溶解液中に含まれる Pu, U 濃度が高く、また、続く溶解液中の Pu, U 濃度が低い条件となる場合、後者の核物質量は前者の分析上の誤差範囲内に含まれる可能性がある。 溶解液3の Pu 濃度は直前の溶解液の濃度の 10⁻³であり、溶解液2のU 濃度は 10⁻¹ と、何れも分析上の誤差の影響を受ける濃度差である。直前の溶解液の分析誤差の影響を受けた結果、これらの分析結果はマイナス収支になったと推定している。また、Table 3.4 の分析値を収率の100%、マイナス収支となった条件の収率を0%として、各溶解液に対して Pu, U の積算収率を求めた結果を Fig. 3.3, 3.4 に示す。U については、溶解液1, 2 の時点でほぼ全量が溶出しており、酸濃度依存性は確認できなかった。一方で、Pu については、過酸化水素による有機物の分解処理以降で溶出が進んだこと、また、硝酸溶液濃度の増大により溶出量が増したことから、白色繊維状の沈殿物は Pu を吸着する性質を有することが示唆された。

以上の通り、有機物含有核燃料物質には a 線核種が多く含まれており、線量率に対しては特 に Am の存在が大きく寄与していると考えられる。大洗研究所燃料研究棟における汚染事象の 原因は、Pu からの a 線による樹脂の放射線分解によりガスが発生したものであるなど²⁾、a 線 近傍の物質へ直接作用し、ラジカルの生成よりも水素などを形成する傾向にあり、有機物の放 射線分解によるガスの発生に寄与することが広く知られている。ガスの発生を防ぐには、a 線 核種とガスの発生源を分離することが有効であり、本検討により溶解による分離はスケールア ップに対応することが困難であることが推察された。

3.4 有機物含有核燃料物質の熱物性測定

均一化した有機物含有核燃料物質を分取し、高純度 Ar 雰囲気条件(酸素濃度約 2000 ppm)及 び酸素濃度 4030 ppm 雰囲気条件で室温~750 °C までの示差熱分析(島津製作所社製 DTG-50H)を行った。昇温速度は5°C/min とし、試料中の水分を蒸発させるため 100°C で 10 分間保持した後、再び 750°C まで5°C/min で昇温した。示差熱分析結果を Fig. 3.5 に示す。 両雰囲気条件において、100 °C での温度保持前後に水分の蒸発によると思われる吸熱ピーク が見られた。なお、100 °C での温度保持に伴い重量減少は見られなくなっており、減少量もご く僅かであるため、試料中に含まれる水分量は熱処理において無視できる程度であると考えら れる。

その後の昇温により、200~450 °C にかけて緩やかに重量減少し、400 °C 付近の吸熱方向 への DTA 曲線の変化に合わせて重量減少速度が上昇している。この結果は「分解・還元反応」 又は「昇華・蒸発・脱水反応」に近い傾向と考えられる。また、酸素濃度 4030 ppm 雰囲気条 件での DTA 曲線の変化においては、480 °C 付近で発熱反応と思われるピークが認められたが、 非常に小さな変化(約 1 μV)であった。

以上のことから、200°Cから熱分解を開始し、また、400°C付近で吸熱反応を示す有機物が 含まれていることが明らかとなり、また、750°Cまでの昇温過程において異常発熱の原因とな り得る発熱ピークはないことを確認した。

4. 模擬試料による熱処理条件の検討

4.1 模擬試料の調製

B 棟のグローブボックスでは、同位体分析の前処理等においてイオン交換樹脂を利用した a 核種の吸着溶離作業の実績があり、3 章にて実施した試料の溶解処理時に Pu を吸着する挙動 が確認されたことから、有機物含有核燃料物質に含まれる有機物はイオン交換樹脂である可能 性が考えられた。そこで、B棟で使用した可能性のあるイオン交換樹脂 Dowex 1X8 を用い、 示差熱分析(リガク社製 Thermo plus EVO II/TG·DTA)を行った。なお、Dowex 1X8 の交換基 は塩化物イオンであり、分析装置の腐食が懸念されることから、事前に 1M 水酸化ナトリウム 水溶液で交換基を水酸化物イオンに変換処理したものを用いた。得られた示差熱分析の結果を Fig. 4.1 に示す。200°C付近から重量変化が起こっており、480°C付近に発熱ピークを確認し た。Dowex 1X8の製品情報によると、スチレン、エチルスチレン、ジビニルベンゼンが主成分 とされている³⁾が、それぞれの成分の沸点は150°C未満であり、本検討での分析結果とは一致 しない。上記の各成分の共重合体である類似のイオン交換樹脂の熱分解のデータによると、 400-600°Cの間に、熱分解に起因する重量減少が生じることが確認されている4~6%。矢幡らの 実験では、硫酸基を保持するイオン交換樹脂を酸素雰囲気中で熱分解した場合、発生する気体 の主成分は O₂, CO₂, CO であり、CH₄の発生量は僅か(50 ppm 程度)であることを確認してお り、また、750°C で完全分解が可能であると報告している 5)。本検討では塩素を除去した状態 で熱分解を行っているが、同様のメカニズムで分解していると考えられる。

Dowex 1X8 の熱的特性は、200 °C 付近から重量変化及び 480 °C 付近での発熱ピークを持つ 点において、有機物含有核燃料物質と同様の熱的特性であったことから、B 棟試料中には Dowex 1X8 又は Dowex 1X8 と類似したイオン交換樹脂が含まれていることが推定された。そ のため、核燃料物質に含有する有機物の模擬物質として採用し、熱処理条件の検討を実施した。

4.2 熱処理条件の検討

3 つのアルミナるつぼに、水酸化ナトリウム水溶液で塩素を除去した Dowex 1X8 を 0.5 g ず つ量り取り(電子天秤、METTLER TOLEDO 社製 S304S)、蓋をしない状態でそれぞれ 500、 600、700 °C の所定温度に昇温する少量スケールでの熱処理を実施した。所定温度到達後に 1 時間温度を保持し、その後室温まで放冷した。放冷後のそれぞれのるつぼ内容物重量及びるつ ぼ内外観を Table 4.1 に示す。重量減少及び外観の結果から、700 °C の熱処理によってほぼ 100 %の Dowex 1X8 が処理できることを確認した。このことから、当該核燃料物質中の有機物 は 700 °C で熱処理できる見通しが得られた。

次に、10 倍量にスケールアップした処理を実施した。得られた結果を Table 4.2 に示す。 700 °C で 1 時間加熱した条件では、投入した試料量の約 97 %の重量減に留まり、外観におい ても黒色の残渣物の残留を確認した。これはスケールアップに伴い、処理する Dowex 1X8 の 重量が増加したことによって、必要な加熱保持時間が不足したためと考えられる。そのため、 再度 700 °C で 1 時間加熱を行ったところ、100 %近い重量減少となることを確認した。このこ とから、処理量を増やした場合においても、加熱保持時間を長くすることで B 棟試料中の有機 物を熱処理可能であると推定した。

以上の結果から、5gスケールの熱処理条件は Table 4.3 のとおり実施することで処理完了で きると推定される。ただし、当該核燃料物質中に含まれる有機物が Dowex 1X8 であると断定 できないため、200°C、400°C、700°C と段階的に熱分解を実施し、各処理後の重量変化を確 認することで、可能な限りマイルドな条件で熱分解処理を実行することとした。なお、有機物 含有核燃料物質の総重量は約 120 g であるため、はじめに 5gスケールの熱処理を行って処理 の適用性や安全性を確認した後、その結果をもってスケールアップ処理を行うか又は 5gスケ ールのバッチ式処理を行うかの判断をすることとした。

5. 有機物含有核燃料物質の安定化処理

有機物含有核燃料物質の安定化処理は、100 g 超スケールの熱処理ができること及び装置自体に遮蔽能力を有することから、CPF 分析室にある GA-2B グローブボックス内の脱硝転換装置を用いて実施することとした。

5.1 5g スケール熱処理

5.1.1 200 °C 処理(1 回目)

アルミナるつぼに均一化した有機物含有核燃料物質を電子天秤(エー・アンド・デイ社製 GX-6100)を用いて 4.75gを量り取り、脱硝転換装置にて 200°C で保持時間 1 時間の熱処理を 実施した。熱処理前後の外観を Photo 5.1 に示す。処理前後を比較すると、茶色の粉末が黒色 の粉末に変化し、重量は 3.82gに減少した。本処理における重量減少は約 20%の重量減に相 当し、有機物含有核燃料物質の示差熱分析結果においても 200°C 付近で約 20%の重量減が確 認されていることから、200°C における分解反応はほぼ終了しているものと考えられる。

5.1.2 200 °C 処理(2 回目)

200 °C での熱分解が完全に完了していることを確認するために、引き続き 200 °C で保持時間1時間の熱処理を実施した。熱処理後の外観を Photo 5.2 に示す。処理前後に見た目上の変化は見られなかった。重量は3.77gまで減少したが、本処理における重量減少は初期重量比で約1%の重量減に相当し、前回の処理に比べてほとんど重量減少が見られなかった。今回の結果及び示差熱分析の結果から、200 °C における熱分解反応が終了したと判断した。

5.1.3 400 °C 処理(1 回目)

400 °C で保持時間 30 分間の熱処理を実施した。熱処理後の外観を Photo 5.3 に示す。処理 前にるつぼ壁面に付着していた粒径の小さい試料が処理後には見られなくなった。また、試料 の表面にひび割れたような形跡が確認された。重量は 2.16 g に減少しており、本処理における 重量減少は初期重量比で約 34 %の重量減に相当する。有機物含有核燃料物質の示差熱分析結果 においては 400 °C 付近で約 40 %の重量減が確認されていることから、400 °C で 30 分の熱処 理では完全に処理できていないことが推定された。

5.1.4 400 °C 処理(2 回目)

引き続き 400 °C で保持時間 30 分間の熱処理を実施した。熱処理後の外観を Photo 5.4 に示 す。処理前後に見た目上の変化は見られなかったが、重量は 1.86 g に減少しており、本処理に おける重量減少は初期重量比で約 6%、前回の重量減少と足し合わせると初期重量比で約 40% の重量減となった。これは、示差熱分析の結果と同等であり熱分解反応が終了したとみられる ことから、400 °C における処理を終了した。 5.1.5 700 °C 処理(1 回目)

700 °C で保持時間 10 分間の熱処理を実施した。熱処理後の外観を Photo 5.5 に示す。処理 後の試料外観は黒色が薄くなり、淡緑色を示していた。重量は 1.63 g に減少しており、本処理 における重量減少は初期重量比で約 5 %の重量減に相当し、有機物含有核燃料物質の示差熱分 析結果においても 400~700 °C にかけて約 10 %の重量減が確認されていることから、700 °C における処理はほぼ終了しているものと考えられる。

5.1.6 700 °C 処理(2 回目)

引き続き 700 °C で保持時間 10 分間の 2 回目の熱処理を実施した。熱処理後の外観を Photo 5.6 に示す。処理前後に見た目上の変化は見られず、重量は 1.62 g であり、1 回目の熱処理後 と同等であったことから、1 回目の熱処理により有機物含有核燃料物質の熱分解が終了したと 考え、5 g スケール熱処理の全工程を終了した。

5.1.7 5g スケール熱処理のまとめ

5gスケールの有機物含有核燃料物質の熱処理における重量残存率をFig.5.1 に示す。700°C での処理により初期重量比で約66%の重量が減少した。Table 3.4 に示す有機物含有核燃料物 質中のPu,U量を基に、今回処理した約4.8gの試料中に含まれるPu,U量を求めると、Pu 及びUはそれぞれ0.3gとなる。熱処理後の化学形態をPuO2及びU3O8と仮定すると、処理 後の有機物含有核燃料物質中に含まれるPuO2,U3O8量はそれぞれ0.4g及び0.3gということ になる。るつぼ内に残存した1.6gから本重量を差し引いた残りの0.9g分が性状不明の残留物 ということになる。イオン交換樹脂は、そのほぼ全重量が熱分解により消失すると考えられる ため、残留物には酸素とは反応しない物質(例えば、SiO2等)が含まれている可能性がある。有 機物についても長年の放射線分解により、その一部が変質している可能性も否定できないが、 最終的に得られた処理物は熱的分解及び酸化分解に対しても安定な状態であることは示差熱分 析の結果からも明らかであり、保管上の問題はないと考える。

なお、各熱処理の実施中において、るつぼからの試料の吹き出しや、黒煙の発生や異常発熱 等の現象は認められず、事前の予想通りに安全に処理できることがわかった。

これらの結果を受けて、残りの有機物含有核燃料物質の処理はスケールアップを行い、全量 を一度に熱処理することとした。スケールアップした熱処理条件を Table 5.1 に示す。なお、 処理容器として適したサイズのるつぼがないことから、脱硝転換装置で従来使用している窒化 ケイ素製の脱硝転換容器を利用することとした。また、有機物含有核燃料物質全量の線量率は 7 mSv/h と高線量であり、作業者の不要な被ばくを避けるため、200°C 及び 400°C での熱処理 後の試料の取出し及び目視確認は必ずしも実施しないこととした。

5.2 100g スケール熱処理

有機物含有核燃料物質全量の熱処理は、Table 5.2 に示すスケジュールで実施した。有機物含 有核燃料物質を収納している貯蔵容器全体の重量を測定後、内容物全量を脱硝転換容器に移し、 空の貯蔵容器の重量を測定することで試料全量の重量を測定し、その実測値は 104.34 g であっ た。

処理後の脱硝転換容器を脱硝転換装置から取出し、有機物含有核燃料物質の目視確認を行ったところ、その外観は5gスケールと同様に淡緑色に変色していた。熱処理前後の外観をPhoto 5.7~5.9 に示す。脱硝転換容器上部の開放部をグローブボックスのパネル面に近づけた状態(測定距離約 20 cm)で y線の線量率測定を行ったところ、850 µSv/h を示した。また、脱硝転換容器から熱処理後の回収作業においては、鉛 5.0mm 厚に相当する鉛遮蔽の衝立越しでの線量率は 20 µSv/h、衝立の上部から脱硝転換容器を覗き込む形でのパネル面線量率は 150 µSv/h であった。作業員には鉛エプロンを着用し作業員の被ばく低減に十分に配慮し、また、作業員 8 名体制で被ばくを分散しながら、スパチュラによる有機物含有核燃料物質のかき出し作業を実施した。回収後の外観をPhoto 5.10 に示す。

処理後の有機物含有核燃料物質の回収量は 34.22 g であり、熱処理前後で約 70 %の重量減と なった。5 g スケールでの最終的な重量変化は約 66 %の重量減であり、それと同等の結果が得 られたことから、熱処理による安定化処理は完了したと判断した。なお、回収した有機物含有 核燃料物質全量の γ 線の線量率は、SUS 製の貯蔵容器及び GB パネル越しに測定して約 4 mSv/h であった。当初の線量測定時においては試料の保管容器にガラス容器を使用していたた め、単純に比較はできないが、線量率は熱処理前と同程度であると考えられる。

6. 結論

B棟のグローブボックスクリーンアップ時に回収した性状不明の核燃料物質について、PVC バッグが徐々に膨らむ状況が確認されたことから、ガスが発生しない状態に安定化処理を実施 した。性状調査において、a線核種(Pu, Am)を含み、酸溶解処理において Pu を吸着する繊維 状物質の存在を確認した。繊維状物質は有機物と推定し、熱分析の結果から有機物含有核燃料 物質には、イオン交換樹脂である Dowex 1X8 あるいは類似物が含まれていると推定した。模 擬試料を用いた検討により、段階的に 700 °C まで加熱する熱処理条件を選定し、脱硝転換装 置を利用した 700 °C の熱処理によって核燃料物質から有機物を除去することで、安全に安定 化処理を実施した。安定化処理後の核燃料物質は SUS 製貯蔵容器に収納してバッグアウトし、 CPF の貯蔵庫に貯蔵することで、2020 年 10 月 19 日に一連の安定化処理作業を完了した。今 後も定期的に PVC バッグの健全性を点検していく予定であり、保管から 6 か月経過した時点 においては PVC バッグの膨張等は確認されていない。

謝 辞

本作業の実施に当たり、有機物含有核燃料物質の粉砕・混合処理や熱処理にご協力いただき ました検査開発株式会社 新井健太郎氏、菊島訓氏、庄司大輔氏、木田貴寛氏、菊地博氏、鈴 木眞司氏、内田広明氏、矢ノ倉淳一氏、岩崎伊佐央氏、米川貴範氏、渡邊明氏、打越竜彦氏に 感謝いたします。有機物含有核燃料物質の熱分析や線量測定等にご協力頂きました株式会社ア センド田中仁氏、森島博氏、放射能分析や成分分析等にご協力頂きました株式会社アセンド柴 正憲氏に感謝いたします。また、本成果の内、模擬試料の熱分解条件検討における示差熱分析 については、環境技術開発センター 再処理技術開発試験部 研究開発第2課の星野貴紀氏、 鈴木誠矢氏、検査開発株式会社 鈴木諒氏の協力により得られたものであり、協力に感謝いた します。

参考文献

- 1) 公益社団法人日本アイソトープ協会: "アイソトープ手帳 11版", 丸善出版株式会社, pp.98-162 (2014).
- 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構,"大洗研究開発センター燃料研究棟における汚染について(補正)", https://www.jaea.go.jp/02/press2017/p18021401/h01.pdf, (accessed 2021-03-22).
- 3) 富士フイルム和光純薬株式会社、"安全データシート"、ダウエックス™ 1x8 200-400 メッシュ強塩基性 I 型陰イオン交換樹脂(Cl 形)、 https://labchem-wako.fujifilm.com/sds/W01W0232-9753JGHEJP.pdf、(accessed 2021-03-

22).

- 4) 矢幡胤昭, 寺門範充, 栗原正義, "触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理,第1報; 基礎試験", JAERI-M 88-008, (1988), 25p.
- 5) 矢幡胤昭, 平田勝, 寺門範充, 栗原正義, "触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理, 第 2 報; ベンチスケール試験", JAERI-M 88-233, (1988), 29p.
- 6) 矢幡胤昭,木下弘毅,平田勝,"触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理,第3報;総括反応 速度の把握", JAERI-M 90-075, (1990), 68p.

2006年3月	B 棟のグローブボックスのクリーンアウトの実施により、核燃料物質を含ま
	ない廃棄物として扱われていた固形物を回収した。
	一部を分取して成分分析した結果、Pu、EU を検出したため、核燃料物質と
	して計量管理を開始した。
2007年3月	ガラス製の容器に入れ、PVC バッグで密封した状態で B 棟から CPF の貯蔵

Table 2.1 有機物含有核燃料物質の履歴

	庫に移動し、保管を開始した。
2009年7月	月例点検において PVC バッグが徐々に膨らむ傾向にあった。B 棟から受入れ
	てから2年4か月経過後、PVCバッグを交換した。PVCバッグ交換後は貯
	蔵庫にて再度保管した。
2012年8月	前回交換から3年1か月後、再度 PVC バッグを交換した。
2015年12月	前回交換から3年4か月後、再度 PVC バッグを交換した。
2017年8月	前回交換から1年8か月後、再度 PVC バッグを交換した。

Table 3.1 Pu, U 濃度測定結果(Pu: α 線測定装置、U: ICP-AES)

溶解液	液量	$^{239}Pu+^{240}Pu$		²³⁸ Pu+	²⁴¹ Am	U	
	ml	Bq/ml	Bq	Bq/ml	Bq	g/L	g
1	12	$2.2{ imes}10^{5}$	2.6×10^{6}	1.0×10^{7}	1.2×10^{8}	2.80	3.4×10^{-2}
2	12	1.0×10^{7}	1.2×10^{8}	1.2×10^{7}	1.4×10^{8}	0.65	7.8×10^{-3}
3	18	$2.1 imes 10^4$	3.8×10^{5}	5.1×10^{5}	9.2×10^{6}	0.44	7.9×10^{-3}
4	18	3.0×10^{5}	5.4×10^{6}	$5.9 imes 10^{5}$	1.1×10^{7}	0.10	1.8×10^{-3}
5	18	3.3×10^{6}	5.9×10^{7}	3.2×10^{6}	5.8×10^{7}	0.05	9.0×10^{-4}
未回収分	2	3.3×10^{6}	6.6×10^{6}	3.2×10^{6}	6.4×10^{6}	0.05	1.0×10^{-4}
Total			1.9×10^{8}		3.4×10^{8}		5.2×10^{-2}

Table 3.2 同位体分析結果

	²³⁴ U	<u>235U</u>	236U	238U	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	$^{241}\mathrm{Pu}$	242 Pu
分析値	0.095	<u>2.771</u>	0.142	<u>96.992</u>	0.445	73.804	22.715	1.185	1.851
計量管理值*	0.067	0.866	0.043	99.024	0.404	74.228	22.001	1.829	1.538

*2006 年 12 月測定(測定器: Thermo Fisher Scientific 社製 MAT262)

	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu
半減期(Sec)	7.6×10^{11}	2.1×10^{11}
λ	9.1×10 ⁻¹³	3.4×10^{-12}
N(Pu1g 条件の Pu 原子数)	$2.5 imes 10^{21}$	2.5×10^{21}
Bq/g-Pu	2.3×10^{9}	8.4×10^{9}
Pu 存在比(%)(分析值)	73.804	22.715
Bq/g-Pu(核燃料物質中の含有量)	1.7×10^{9}	1.9×10^{9}
Bq/g-Pu(²³⁹ Pu+ ²⁴⁰ Pu)	3.6×10^{9}	

Table 3.3 Pulg当たりの ²³⁹Pu+²⁴⁰Puの放射能量

Table 3.4 試料 1.126 g 中の Pu, U 量の分析値と計量管理値の比較

	Pu	U
計量管理値	0.04 g	$0.05~{ m g}$
分析値	$0.05~{ m g}$	$0.05~{ m g}$

	Table 3.5 浴解液中 Pu, U 濃度の燃鼻結果							
液型流		液量	$^{239}Pu+^{240}Pu$			U		
	谷門牛们义	ml	Bq/ml	Bq	Bq	g/L	g	g
1	溶解液	12	0.0×1.05	2.6×10^{6}	4 4×106	9.90	3.4×10^{-2}	F Cx10-9
1	残留液	8	2.2×10^{3}	1.8×10^{6}	4.4×10 ⁶	2.80	2.2×10^{-2}	5.6×10^{-2}
0	溶解液	12	1.0×107	1.2×10^{8}	0.0×1.08		7.8×10^{-3}	0 4×10-3
Z	残留液	8	1.0×104	8.0×10^{7}	2.0×10°	0.69	5.2×10^{-3}	- 9.4×10 5
9	溶解液	18	9.1×104	3.8×10^{5}	- 9.0×107	0.44	7.9×10^{-3}	<u>ዓ</u> ር∨10-3
э	残留液	2	2.1×104	4.2×10^{4}	- 0.0×10*	0.44	8.8×10^{-4}	5.0×10 °
4	溶解液	18	2.0×1.05	5.4×10^{6}	C 0×106	0.10	1.8×10^{-3}	1 1 1 1 1 0 - 3
4	残留液	2	5.0~105	6.0×10^{5}	6.0×10°	0.10	2.0×10^{-4}	1.1×10 °
F	溶解液	18	2 2 2 106	5.9×10^{7}	C Ex107	0.05	9.0×10^{-4}	9 0×10-4
Э	残留液	2	0.0×10°	6.6×10^{6}	0.0^10'	0.05	1.0×10^{-4}	0.U^10 ª
Tot	al				1.9×10^{8}			5.2×10^{-2}

Table 3.5 溶解液中 Pu, U 濃度の概算結果

加熱条件	試料量	熱分解後の重量 (重量減少率)	加熱後の外観
500 °C, 1 h	0.4998 g	0.0104 g (97.9 %)	単年の残渣物が残留
			赤ロジズ山初かえ田
600 °C, 1 h	$0.4975~{\rm g}$	0.0024 g (99.5 %)	黒〜灰色の残渣物が僅かに残留
700 °C, 1 h	0.4987 g	0.0001 g 未満 (>99.9 %)	僅かに目視できる程度

Table 4.1 Dowex 1X8 の少量スケール熱処理結果(0.5g 規模)

Table 4.2 Dowex 1X8 のスケールアップ熱処理結果(5g 規模)

加熱条件	試料量	熱分解後の重量 (重量減少率)	加熱後の外観
700 °C, 1 h	4.9987 g	0.1384 g (97.2 %)	国家 10 - 10 - 10 - 10 - 10 - 10 - 10 - 10
700 °C, 2 h	4.9987 g	0.0003 g (>99.9 %)	僅かに目視できる程度

	Dowex 1X8 の熱処理から	安全を考慮した		
	推定された処理条件	段階的な処理条件		
試料量	$5~{ m g}$	$5~{ m g}$		
処理温度	700 °C	$200 ^{\circ}\mathrm{C} \Rightarrow 400 ^{\circ}\mathrm{C} \Rightarrow 700 ^{\circ}\mathrm{C}$		
保持時間	2 h	$1 h \Rightarrow 30 \min \Rightarrow 10 \min$		
処理完了	金見)は小ぶ日こと ないこし	各処理温度において、		
判断基準	<u>車車減少か見られないこと</u>	重量減少が見られないこと		

Table 4.3 有機物含有核燃料物質 5gスケールの熱処理条件

Table 5.1 スケールアップした熱処理条件

	5gスケール処理条件	スケールアップ処理条件	
試料量	5 g	100 g 超	
処理温度	$200 \circ C \Rightarrow 400 \circ C \Rightarrow 700 \circ C$	$200 \ ^{\circ}\mathrm{C} \Rightarrow 400 \ ^{\circ}\mathrm{C} \Rightarrow 700 \ ^{\circ}\mathrm{C}$	
保持時間	$1 h \Rightarrow 30 \min \Rightarrow 10 \min$	$1 h \Rightarrow 1 h \Rightarrow 20 min$	
		各処理温度において、	
処理完了 判断基準	各処理温度において、 重量減少が見られないこと	保持時間の加熱を実施すること	
		及び	
		700 °C 処理後に 66 %程度の	
		重量減となっていること	

Table 5.2 スケールアップした熱処理の作業実績

	処理温度	保持時間
Day 1	200 °C	25 min
Day 2	200 °C	60 min
Day 3	400 °C	60 min
Day 4	700 °C	20 min
Day 5	700 °C	20 min



Fig. 3.1 安定化処理の検討に係る処理フロー



Fig.3.2 Y線核種の定性分析結果







Fig. 3.4 各溶解液中のU量と積算回収率



Fig. 3.5 有機物含有核燃料物質の示差熱分析結果



Fig. 4.1 Dowex 1X8 の示差熱分析結果



Fig. 5.1 5gスケールの熱処理における重量残存率



Photo 2.1 有機物含有核燃料物質の外観



ボールミル装置外観

処理後の回収作業



回収した粉末外観

分析サンプル外観

Photo 3.1 有機物含有核燃料物質の粉砕・混合作業の様子

JAEA-Testing 2022-001



処理開始(8M 硝酸)

濃縮中

濃縮中



(1+1)フッ酸添加

濃縮後

乾固物に 1M 硝酸添加







濃縮後

乾固物に 8M 硝酸添加

(1M 硝酸+15%過酸化水素水)





Photo 5.1 200 °C 処理 1 回目前後の様子(左側:処理前、右側:処理後)



Photo 5.2 200 °C 処理 2 回目終了後の様子



Photo 5.3 400 °C 処理 1 回目終了後の様子



Photo 5.4 400 °C 処理 2 回目終了後の様子



Photo 5.5 700 °C 処理 1 回目終了後の様子



Photo 5.6 700 °C 処理 2 回目終了後の様子



Photo 5.7 脱硝転換容器に充填した状態(熱処理前)



Photo 5.8 200 °C 処理後(1回目)の外観



Photo 5.9 700 °C 処理後(2回目)の外観



Photo 5.10 ステンレス製容器に回収した核燃料物質(保管直前の状態)