

## 放射性ヨウ素を含む廃棄物 (2) 廃ヨウ素吸着剤の銅マトリックス固化体に関する研究<sup>†</sup>

福本雅弘<sup>††</sup>

<sup>129</sup>I の放出抑制機能に優れた廃棄体として、長期にわたる廃棄体の健全性を期待することから延性に優れた金属であり、還元性の環境下で耐食性が期待できる金属である銅をマトリックスとした廃ヨウ素吸着剤の固化体がある。試験的にそのヨウ素の放出抑制機能を確認しておくため、模擬の廃ヨウ素吸着剤のホットプレス法による銅マトリックス固化体を作製し、非酸化性雰囲気下で腐食試験を行った。得られた銅の腐食速度は約 1500 h 後で  $\mu\text{m/y}$  のオーダーであった。

**Keywords:** ヨウ素, 処分, 廃棄体, 銅, 放射性廃棄物, 腐食, 浸出, 処分場, 電気化学, 低レベル廃棄物, 吸着剤

The solidified waste of iodine adsorbent in copper matrix is developed as a waste form potentially limiting release of <sup>129</sup>I by taking advantage of good ductility which could be expected to perform long term normal state and good corrosion resistance in reducing condition. The solidified waste was produced by the hot pressing method. The corrosion test in anaerobic condition using the solidified waste of simulated iodine adsorbent in copper matrix was carried out to confirm the containment ability to iodine in the matrix experimentally. The obtained corrosion rate of copper was  $\mu\text{m/y}$  order of magnitude at about 1500h of test period.

**Keywords:** iodine, disposal, waste form, copper, radioactive waste, corrosion, leaching, repository, electrochemistry, low-level waste, adsorbent

### 1 はじめに

使用済み燃料中に含まれる <sup>129</sup>I については、以下のよう  
にいくつかの対応方策が考えられる。

- ・海洋放出 (フランス, イギリス)
- ・地層処分 (カナダ, スウェーデン, フィンランド, アメリカ  
(使用済み燃料の直接処分))
- ・浅地層よりも若干深い地層処分[1]
- ・核変換[2]
- ・宇宙処分[3]

日本においては、商業再処理施設ではヨウ素吸着剤によ  
ってほとんどのヨウ素を気相から吸着分離する計画であ  
り、ここでは、廃ヨウ素吸着剤を地層処分する場合を考  
える。

使用済み燃料中に含まれる <sup>129</sup>I は、処分場の性能評価  
の観点からみると、以下の特徴を有している。

- ・半減期が  $1.57 \times 10^7$  y と長い。
- ・人工バリア材や天然バリア材に収着されにくく、バ  
リア中を移行しやすい。
- ・還元性の環境下で低溶解度の固相を形成し難いため、  
バリア中を移行しやすい。

ここで、概略的評価であるが、<sup>129</sup>I が処分場の性能評価  
に与える影響の程度を検討するために、<sup>129</sup>I の放射エネルギー  
を 40 年間の再処理施設の操業を考慮して  $5 \times 10^{15}$  Bq[1] とし、  
預託実効線量当量換算係数を  $7.4 \times 10^{-8}$  Sv/Bq[4]、河川水  
量を  $10^8 \text{ m}^3/\text{y}$  (たとえば、利根川の年平均流量は  $9.8 \times 10^9 \text{ m}^3/\text{y}$ 、  
多摩川は  $1.4 \times 10^9 \text{ m}^3/\text{y}$  である[5])、水の摂取量を  $0.61 \text{ m}^3/\text{y}$  (文

献[6]の全流動動物からミルクを除いた値)、河川に <sup>129</sup>I が一定に  
10,000 y にわたって流入するとして 1 つの試算をすると、  
河川水の飲用による被ばく線量は  $2.3 \mu\text{Sv/y}$  となる。これ  
は、放射性固体廃棄物の浅地中処分における規制除外線  
量である  $10 \mu\text{Sv/y}$ [7] と比しても下回っているが、被ばく  
線量は選定された処分場によって変動する。よって、現  
時点においては、日本の地質環境への天然現象が及ぼす  
影響を推論できると考えられる 100,000 y 程度[8] にわた  
って、<sup>129</sup>I を人工バリアから徐々に放出するようなシステ  
ムを検討しておくことが必要である。ベントナイト 1 m  
を有する人工バリアシステムの性能評価の例では、ベ  
ントナイトへの分配係数を 0 とすると 100,000 y 程度に比  
してごく短期に <sup>129</sup>I のほぼ全量が人工バリアから放出され  
る[9]。したがって、<sup>129</sup>I を 100,000 y 程度にわたって少  
しずつ放出するような廃棄体の開発が望まれる。

<sup>129</sup>I の放出抑制機能に優れた廃棄体としては、無機ガラ  
ス質をマトリックスとするもの[10-14]、セメントをマト  
リックスとするもの[15-17]、ヨウ化ソーダライト[18-19]、  
ヨウ化アパタイト[20-21]、電気石[22]など多くのものが提  
案されている。ここでは、長期にわたる廃棄体の健全性  
を期待することから延性に優れた金属であり、還元性の  
環境下で耐食性が期待できる金属である銅をマトリッ  
クスとした固化体[23-26]について述べる。

マトリックスとして銅を選定したのは、銅鐸の腐食速  
度が  $1 \mu\text{m/y}$  未満[27]といった評価がされており、スウェ  
ーデンの銅製オーバーパックの評価例では Pessimistic  
case で腐食速度が約  $50 \text{ nm/y}$ [28] という評価がなされて  
いるように、その耐食性に期待したからであるが、廃ヨ  
ウ素吸着剤の銅マトリックス固化体に対して、試験的にそ  
のヨウ素の放出抑制機能を確認しておく必要がある。

そのため、模擬の廃ヨウ素吸着剤のホットプレス法に

<sup>†</sup> Radioactive Iodine Waste (2) Research on solidified waste of iodine adsorbent in copper matrix, by Masahiro Fukumoto (fukumoto@tokai.jnc.go.jp).

本稿は、日本原子力学会バックエンド部会第 15 回夏期セミナーの講演内容に加筆したものである。

<sup>††</sup> 核燃料サイクル開発機構 Japan Nuclear Cycle Development Institute  
〒319-1194 那珂郡東海村村松 4-33

よる銅マトリックス固化体を作製し、非酸化性雰囲気中で腐食試験を行ったので報告する。

2 試験方法

2.1 模擬廃ヨウ素吸着剤の作製

ヨウ素吸着剤は、Sud-Chemie 社製 AgS (銀シリカゲル) AC6120/12, 直径 1-2 mm, 銀含有率 12 wt% を用いた。PFA 製密閉容器内で I<sub>2</sub> を 150 °C, 200 h で吸着させた後、

品番	部品名	材質
1-1	プレスシャフト	SUS304
1-2	SUSフランジ上	SUS304
1-3	SUSベローズ	
1-4	SUSフランジ下	SUS304
1-5	Cuパイプ	OFC
1-6	Cuワタ	OFC

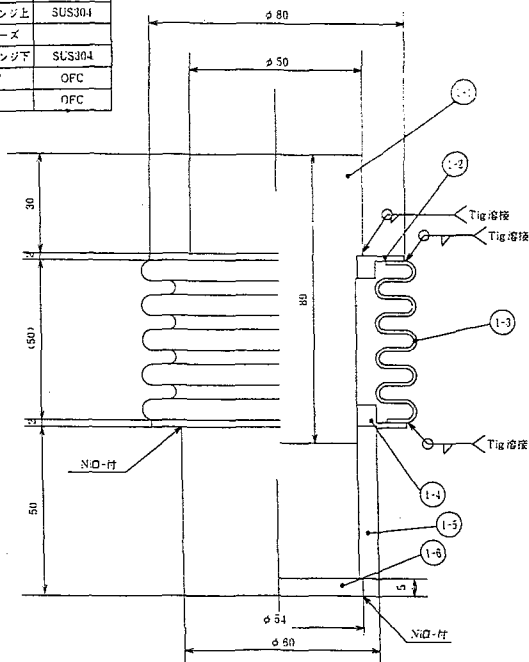


Fig.1 Copper capsule (jig part is included)

400 °C, 20h で脱水した。吸着量は 0.07 g-I<sub>2</sub>/g-AgS とした。

2.2 模擬廃ヨウ素吸着剤と銅粉末の混合

銅粉末は、関東化学株式会社, Cu ≥ 99.85 wt%, 100-200 メッシュ (150 μm-75 μm) を用いた。ヨウ素吸着剤が固化後の状態で 30 vol% 程度になるように模擬廃ヨウ素吸着剤と銅粉末を混合した。

2.3 銅製のカプセルに充填, 脱気, 密封溶接

銅製のカプセル (治具部を含む) を Fig.1 に示す。模擬廃ヨウ素吸着剤と銅粉末を混合したものを, 40 mm 程度の高さまで充填し, 脱気後, 密封溶接した。

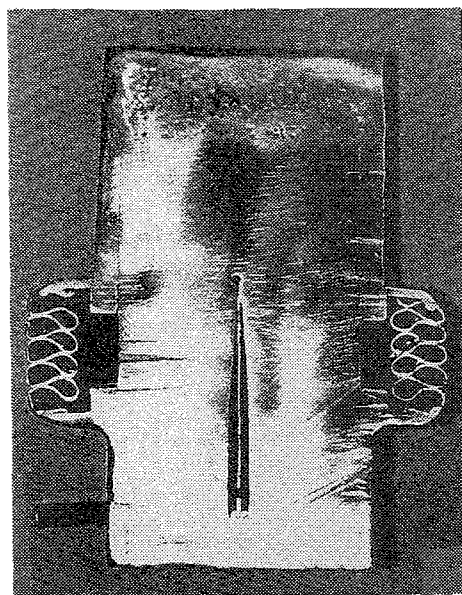
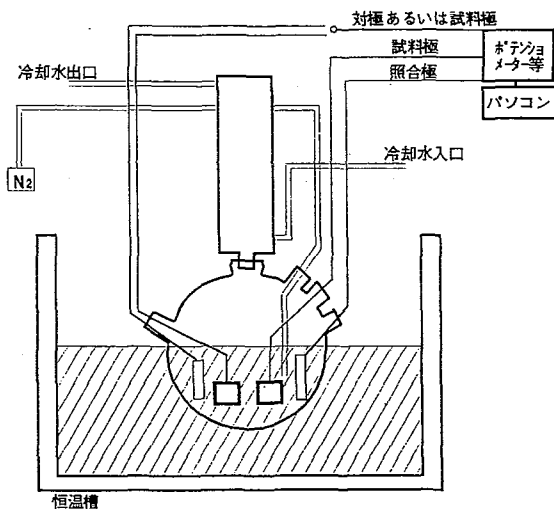
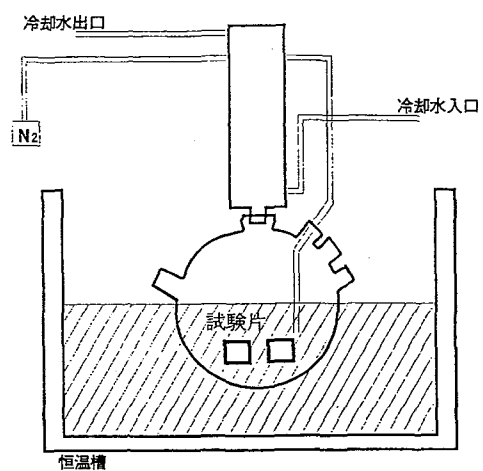


Fig.2 Photograph of cross section of solidified waste



分極抵抗法及び交流インピーダンス法の場合



浸出液中の定量分析から評価する場合

Fig.3 Conceptual diagram of corrosion test apparatus

Table 1 composition of leachant

イオン種(M)		
Cl <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
0.006	0.001	0.1

備考：ナトリウム塩で添加

## 2.4 ホットプレス

ホットプレスの条件は 750 °C, 25 Mpa, 保持時間 3 h とした。ホットプレス後の固化体（治具部を除くと 50 mm φ×約 20 mmH）の断面写真を Fig.2 に示す。

## 2.5 腐食試験

腐食試験装置の概念図を Fig.3 に、降水系高 pH 型地下水組成を参考にした試験溶液の組成を Table 1 に示す。銅の腐食速度は、分極抵抗法、交流インピーダンス法および浸出液中の定量分析から評価した。腐食試験試料は、分極抵抗法および交流インピーダンス法の場合 15 mm×20 mm×2 mm の試験試料の電極面積 1 cm<sup>2</sup> を除いて絶縁塗料を用いて被覆した後試験容器内の溶液中に浸漬し、一方、浸出液中の定量分析から評価する場合 15 mm×20 mm×2 mm の試験試料を試験容器内の溶液中に浸漬した。試験温度は 50 °C, 試験時間は 1500 h 程度とした。浸出液中の銅の定量分析は ICP-MS により行った。浸出液中の定量分析から評価する場合の腐食試験後の試料は電子顕微鏡及び EPMA による観察を行った。

## 3 試験結果

分極抵抗法、交流インピーダンス法および浸出液中の定量分析から評価した銅の腐食速度は、約 1500 h 後で、それぞれ 5 μm/y, 1 μm/y および 1 μm/y 程度であった。電子顕微鏡による観察の結果からは銅マトリックス部と模擬廃ヨウ素吸着剤の界面部で銅の局部腐食が観察されなかったことから、金属銀による局部腐食は生じないと考えられる。また、EPMA による観察の結果から銅マトリックス表面全域に腐食生成物がみられることから局部的腐食ではなく不動態域での全面腐食が起きていると考えられる。

## 4 おわりに

銅マトリックス固化体の非酸化性雰囲気下での腐食試験の結果、銅マトリックス固化体の銅の腐食速度は、おおむね μm/y のオーダーであったことから、銅マトリックス固化体は <sup>129</sup>I を 100,000 年程度にわたって少しずつ放出するような廃棄体の候補の 1 つと考えられる。

今後は、浸出したヨウ化物イオンが銅の腐食速度に与える影響評価等を行なっていく予定である。

## 参考文献

- [1] 武田聖司, 木村英雄, 和達嘉樹: <sup>129</sup>I 廃棄物処分に関する安全性検討. 日本原子力学会 1999 年春の年会, p.782 (1999).
- [2] Konings, R.J.M.: Transmutation of iodine: Results of the EFTTRA-T1 irradiation test. *Journal of Nuclear Materials* **244**, 16-21(1997).
- [3] 神山弘章: 高レベル放射性廃棄物の宇宙処分. 原子力工業 **41**(10), 61-70(1995).
- [4] 河合勝雄, 橘晴夫, 服部隆充, 須賀新一: ICRP Publication 30 に基づく単位摂取量当たりの預託実効線量当量等の一覧表, 日本原子力研究所, JAERI-M87-172 (1987).
- [5] 国立天文台編: 理科年表平成 4 年, 丸善 (1991).
- [6] ICRP Publication 23, Report of the Task Group on Reference Man (1975).
- [7] 放射線審議会基本部会: 放射性固体廃棄物の浅地中処分における規制除外線量について. 昭和 62 年 12 月 (1987).
- [8] 原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会: 高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発等の今後の進め方について. 平成 9 年 4 月 15 日(1997).
- [9] 田中皓: TRU 廃棄物の特性を考慮した人工バリアシステムの検討. PNC ZJ1211 92-001(1992).
- [10] 西高志, 松田将省, 内藤孝, 鈴木梯: バナジウム系低温熔融ガラスの耐水性. 日本原子力学会 1995 年春の年会, p.471(1995).
- [11] 村瀬拓也, 藤原啓司, 西高志, 野下健司, 吉田拓真, 鈴木梯: 放射性ヨウ素の固定化技術の開発-(2)よう化銀ガラスによる放射性ヨウ素の固定化-. 日本原子力学会 1997 年秋の大会, p.653 (1997).
- [12] 村瀬拓也, 藤原啓司, 西高志, 野下健司, 吉田拓真, 鈴木梯: 放射性ヨウ素の固定化技術の開発-(3)よう化銀ガラスによる放射性ヨウ素の固定化-. 日本原子力学会 1997 年秋の大会, p.654 (1997).
- [13] 藤原啓司, 村瀬拓也, 和田隆太郎, 西村務, 今北毅, 杉村泰, 栗本宜孝: 放射性ヨウ素の固定化技術の開発(4)HIP 法による放射性ヨウ素の固定化. 日本原子力学会 1997 年秋の大会, p.655 (1997).
- [14] 藤原啓司, 村瀬拓也, 和田隆太郎, 西村務, 今北毅, 杉村泰, 栗本宜孝: 放射性ヨウ素の固定化技術の開発(5)HIP 法による放射性ヨウ素の固定化. 日本原子力学会 1997 年秋の大会, p.656 (1997).
- [15] 金子昌章, 豊原尚実, 和田幹雄: セメントによる放射性ヨウ素の固定化. 日本原子力学会 1995 年秋の大会, p.681(1995).
- [16] 村瀬拓也, 藤原啓司, 金子昌章, 豊原尚実, 和田幹

- 雄：セメントによる放射性ヨウ素の固定化（Ⅱ）。日本原子力学会 1997 年春の年会, p.578 (1997).
- [17] 村瀬拓也, 藤原啓司, 金子昌章, 豊原尚実, 和田幹雄：放射性ヨウ素の固定化技術の開発(6)セメントによる放射性ヨウ素の固定化。日本原子力学会 1997 年秋の大会, p.657 (1997).
- [18] 上田真三, 加藤博康, 中澤俊之, 尾上毅, 齋木渉, 八登唯夫：ソーダライト廃棄体によるヨウ素の固定化(1)。日本原子力学会 1998 年秋の大会, p.821 (1998).
- [19] 上田真三, 加藤博康, 中澤俊之, 尾上毅, 齋木渉, 八登唯夫：ソーダライト廃棄体によるヨウ素の固定化(2)－ソーダライトの溶解度評価－。日本原子力学会 1999 年春の年会, p.761 (1999).
- [20] Audubert, F., Carpena, J., Lacout, J.L., Tetard, F.: Elaboration of an iodine-bearing apatite Iodine diffusion into a  $Pb_3(VO_4)_2$  matrix. *Solid State Ionics* **95**, 113-119 (1997).
- [21] カルペナ ジョエル, オードウベール ファビエンヌ：拘束マトリックスとしてリン灰石を用いて放射性ヨウ素, 特にヨウ素 129 をコンディショニングする方法, 公表特許広報, 特表平 9-509255 (1997).
- [22] Burakov, B.E., Anderson, E.B., I.Shabalev, S.: A search of the most optimal forms of the solidification of high-level waste geologically compatible with hosting granitoid rocks, *NATO Advanced Research Workshop, Russia* (1996).
- [23] 神崎学, 福本雅弘, 宮本陽一, 中西芳雄：廃ヨウ素吸着剤の銅マトリックス固化試験。日本原子力学会 1996 年秋の大会, p.659 (1996).
- [24] 神崎学, 神谷茂, 林晋一郎, 福本雅弘, 池田諭志：廃ヨウ素吸着剤の銅マトリックス固化（Ⅱ）－固化体の特性評価試験－。日本原子力学会 1997 年秋の大会, p.785 (1997).
- [25] 神崎学, 福本雅弘：ヨウ素吸着剤の銅マトリックス固化技術の開発。動燃技報, No.106, 77-83 (1998).
- [26] 福本雅弘, 河村和廣：廃ヨウ素吸着剤の銅マトリックス固化体中におけるヨウ素の閉じ込め状態の評価。日本原子力学会 1999 年春の年会, p.762 (1999).
- [27] 三ツ井誠一郎, 久保田満, 村上隆：下田遺跡から出土した銅鐸の埋蔵環境, 下田遺跡。大阪府文化財調査研究センター調査報告書, pp.371-381(1996).
- [28] SKB: SR 95 Template for safety reports with descriptive example, SKB TECHNICAL REPORT 96-05, Swedish Nuclear Fuel Waste Management Co.(1995).