

## 燃料デブリをはじめとした 放射性廃棄物のバックエンド工学

アクチニウムやウラン、プルトニウムなどを含む元素群・アクチノイドは、全て放射性物質であるため取り扱える量や場所に制限があり、また酸化状態が変わると化学挙動も変化することから、基礎的な物理化学特性や熱力学データは未整備の状態が続いてきました。「私がアクチノイドの基礎研究に没頭するようになったきっかけは、学生時代、光吸収・発光スペクトルを測定していて、ある状態のウランが水溶液中で発光していることに気が付いたときでした。当時は発光しないものと考えられていた化学状態なので、光を吸収させると蛍光を発するというのが驚きでしたね。さっそく下手な英語で論文に書いて発表したところカルフォルニア大学バークレー校の先生の目に留まり、米国化学会に招待され講演を行うことになりました。最終的にその成果は、当時改訂作業が進んでいた『The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements\*』というこの分野を代表する教科書に記載されました」。地道な実験を積み重ねてきた一学生にとって、これ以上ない刺激になったことは言うまでもありません。やがて基礎研究だけではなく、そこで得た知見を社会に生かすことはできないかと考えるようになりました。

注目したのが、原子力発電所で使用した燃料などの放射性廃棄物です。「原発のゴミが残り続けてしまうと、原子力は決して“持続可能なエネルギー”とは言えなくなってしまいます。そこで地層処分を進めるわけですが、人間が作ったバリアの耐久年数はどれくらいか、バリアが壊れたとき放射性物質は地表にどんな影響や危険を及ぼすのか、といった懸念が出てきます。そうした不安を少しでも拭うことはできないか、と考えました」。

そういった研究を黙々と続けているさなかに、東日本大震災と東京電力福島第一原子力発電所の事故が起こりました。「本当にショックでした」と当時を振り返る桐島教授は、研究成果を通して市民に伝えてきた原子力の安全性が覆され、茫然自失になった時期もあると言います。しかし放射化学の専門家として、また福島の隣県であり東北を代表する大学の研究所の一員として向き合わなければならない問題でもあります。教授として一研究室を率いることになった桐島教授は、燃料デブリを重要な研究テーマに位置付けました。

多元物質科学研究所  
金属資源プロセス研究センター  
エネルギー資源プロセス研究分野 教授

## 桐島 陽

KIRISHIMA, Akira

1976年生まれ。神奈川県出身。東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻博士課程 修了。2002年日本原子力研究所(現・日本原子力研究開発機構)博士研究員、2005年東北大学多元物質科学研究所助手・助教、2007年フロリダ州立大学化学部博士研究員、2013年東北大学多元物質科学研究所准教授、2019年同教授。所属団体/日本放射化学会(2022年6月まで理事)、日本原子力学会、原子力規制委員会核燃料安全専門審査会審査委員、原子力発電環境整備機構(NUMO)技術アドバイザー委員会委員、原子力損害賠償・廃炉等支援機構(NDF)廃棄物対策専門委員会委員。受賞/日本放射化学会 奨励賞、平成15年度 東北大学大学院工学研究科長賞、Migration '03 POSTER AWARD

<http://www2.tagen.tohoku.ac.jp/lab/kirishima/>

\* The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements (3rd ed.),  
Editors:Lester R. Morss, Norman M. Edelstein, Jean Fuger, Springer, 2006

## FOREFRONT REVIEW

2011年に発生した福島第一原子力発電所の原子力事故。原子炉の中には毒性が高く複雑なアクチノイド元素などが含まれる膨大な量の燃料デブリが残されており、その処理プロセスが大きな課題となっています。桐島研究室では燃料デブリの物理・化学特性の把握や汚染水へのアクチノイドの溶出挙動研究、汚染物の安定化および廃棄体化法の開発を行い、福島第一原発の廃止措置や放射性廃棄物の処分実現に貢献することを目指しています。

# 福島第一原子力発電所の燃料デブリ 模擬体を作って処理技術を検討

## 事故当時の炉内を想定し 模擬デブリを作製

2011年に発生した東京電力福島第一原子力発電所(以下、福島第一原発)の事故の影響は、今なお多くの課題を私たちに突きつけています。その一つが、膨大な量に及ぶ放射性廃棄物の処理問題です。福島第一原発の放射性廃棄物には汚染土壌といった比較的取り扱いが容易なものから、原子炉内に取り残されている燃料デブリといった性状や汚染の

程度が現時点では不明で取り扱いが困難なものまで幅広く含まれますが、特に桐島教授たちが着目した燃料デブリは非常に高い放射線量と発熱量を持つため、取り出し作業を進めるにあたってできるだけ化学的な性質を理解・把握しておく必要があります。「事故当時の炉内を想定し、二酸化ウランをはじめとする核燃料や原子炉内の構造物の材料などを原料とした混合物を高温の電気炉で加熱処理し、模擬デブリを作製。その結晶構造

や化学的な安定性の評価を行ってきました」。原料の組み合わせや加熱時間、合成中の酸素濃度などの条件を変えながら作製した模擬デブリは、これまでに合計37種類にのぼると言います。

## 「固溶体化」が燃料デブリの 化学的性質を決めるカギに

現在、福島第一原発では、燃料デブリの取り出し準備のために格納容器内部にロボットや各種センサーを投入しています。桐島教授によれば、「機材に付着したウランなどの放射性物質を含む粒子は微量のため詳細な化学分析は難しいものの、電子顕微鏡での解析によって実験室で作製した模擬デブリとある程度似た構造を持つ」ことが分かってきているとのこと。合成した模擬デブリは炉内から取り出



作製した模擬デブリの一例。加熱前は粉末状だったが、加熱することで溶解し、黒い塊のような物質に変化します。

酸素を嫌う物質を、グローブボックスという特別な雰囲気の中で取り扱っています。



## 沖縄で聞いた、「三線」の音色に魅せられて

5年ほど前から、沖縄民謡などで演奏される「三線」を習いに教室に通っています。先生は波照間島出身の方です。沖縄に旅行に出かけたときに演奏している方を見て「自分もやってみたいな」と思いました。せっかく自分の三線を買ったので、昼休みや夕方の学生が帰った後に暇を見つけては研究室で練習しています。三線は先生に紹介して頂いた宮古島の工房で注文したものだから、なかなか良い音が出ます。中学生くらいまでヴァイオリンを習っていたので弦楽器には馴染みがありました。楽譜が漢字で書かれていてまったく違うのではじめは驚きました。歌詞も沖縄の言葉で意味がよく理解できなかつたりもしますが、琉球文化を感じられる音色が気に入っています。



MY FAVORITE

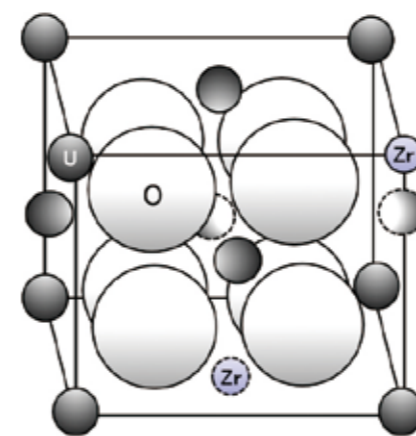


管状電気炉を使って試料の高温加熱実験を行う準備中です。

に桐島教授たちは、ウランや毒性の高い放射性物質が模擬デブリからどの程度溶け出すかを調査するため、ネプツニウムやアメリカシウムを加えた模擬デ

ブリを合成して同様の観察を行いました。しかし放射性物質が海水中に溶け出す割合は極微量。これにより、「燃料デブリの固溶体化が進むことで化学的に安定し、放射性物質が水や海水に溶け出しにくくなる」と結論付けた桐島教授は、固溶体化が燃料デブリの長期保管や処理・処分に向けた技術開発の鍵になると考えています。「使用済み核燃料を安全に扱う従来の技術・知識を応用することで処理・保管することも十分可能と言えるでしょう」。

した高放射性の微粒子と異なり、電子顕微鏡による観察だけでなくX線やガンマ線、レーザー光などさまざまな方法で分析することができるため、実際の混合物に近い性質を明らかにすることが可能です。「その結果見えてきたのが、二酸化ウラン、ジルコニウム、ステンレス鋼を原料とした模擬デブリが「固溶体」を形成するということでした」。



二酸化ウランの結晶にジルコニウムの原子が入り込むことで固溶体を形成。酸素がほとんどないと比べて、微量の酸素が存在するときの方が固溶体化は早く進行しました。

「固溶体」とは、核燃料と周囲の金属材料が高温で一緒に溶け、その後冷却するプロセスの中で形成されると考えられる物質で、マグマが冷えて固まり、岩石となるプロセスでも生じる物質です。事故直後に冷却のため海水が使われていたことをふまえ、研究室では固溶体化した模擬デブリを純水や海水に浸け、1年以上にわたって結晶構造の変化を観察してきました。しかし特に大きな変化はなく、化学的に安定であることが分かりました。さら

## さまざまな条件下で合成し 燃料デブリの実態を解き明かす

燃料デブリには他にも、制御棒に含まれる炭化ホウ素や、原子炉建屋底部に使用されているコンクリートなどさまざまな物質が関与している可能性があります。また、高温状態から冷却水などで急冷された場合に化学的性質はどのように変化するか、酸素濃度によってどのような影響を受けるのか、といったことも今後の検討課題です。「今回の分析は炉内で最も起こりうる条件を想定したものでしたが、他にもさまざまな条件が考えられます。どのような条件でどのような燃料デブリが生成されるのか、その燃料デブリはどのような性質を持つのか。それらの一つひとつ検証し、基礎科学の側面から燃料デブリの安全な取り出しと保管、処理・処分についての検討をサポートしていくことが、私たち大学の人間が果たすべき役割だと思っています」。

## TERM INFORMATION

### 燃料デブリ

核燃料が溶融し、原子炉内の様々な物質と融合した生成物のこと。炉心溶融物、溶融燃料、コリウムなどとも呼ばれます。福島第一原子力発電所の燃料デブリでは、燃料を包む管に使われるジルコニウムの他に、原子炉の構造材であるステンレス鋼や制御用材料などとして利用されていた炭化ホウ素などの成分が含まれると推測されています。

### 固溶体

ある結晶を構成している1種類の原子またはイオンの一部が、同じ構造の結晶を作ることができる別の原子またはイオンと置き換わった状態。

### ネプツニウム、アメリカシウム

それぞれ、原子番号93と95のアクチノイド元素。ウランよりも重く、天然には存在せず、原子炉や加速器を用いた核反応で製造することができる。確認されている全ての同位体が放射性。

### 制御棒

原子炉内の中性子数を調整することにより、核分裂反応の進行を制御し、原子炉の出力を制御するための重要部品。

# 放射性廃棄物の地層処分に必要な基礎研究の強化

## 地下300mよりも深い地層中に放射性廃棄物を埋設する

「放射化学アプローチによって燃料デブリの化学的性質を明らかにし、今後の保管や処理・処分方策を検討する材料を提供するバックエンド研究を行うことは、放射化学の専門家としての役目であると同時に、責任でもあります」。桐島教授がこのように語る理由は、長年にわたって放射性廃棄物の処分に関連した研究を続けてきたからに他なりません。

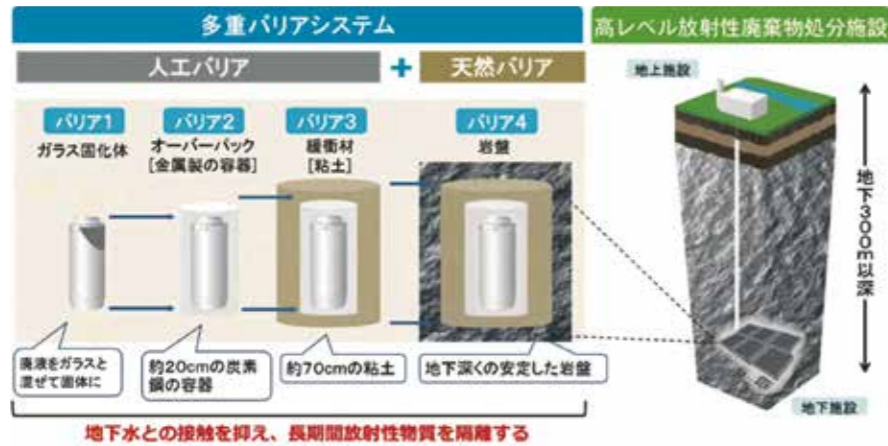
「日本では現在、原子力発電環境整備機構 (NUMO) などが中心となり、地下300m以深に地層処分場をつくってガラス固化体などの高レベル放射性廃棄物を処分する計画が進められています。炭素鋼の容器に入れたガラス固化体を緩衝材となる粘土で覆い、さらに地下深くの岩盤に埋めることで何層ものバリアをつくり、地下水との接触を抑えつつ長期間にわたって放射性物質を隔離する計画です」。地下は何億年という単位で安定した環境を維

持することができ、地表の影響も受けにくいことから、日本だけではなく世界各国で地層処分にに向けた動きが活発化しています。一方、火山や活断層など自然災害や人的災害の影響を受け難い地質環境の選択が求められることから、処分場の建設が可能な地域は必然的に限られてきます。

「候補地となった地域の住民からは当然反対意見も出てきますので、地層処分の安全性を正確に評価し、講演会や住民説明会などの場で紹介することで理解促進に務めています」。

## 深部地下の放射性物質の動きを共同研究でシミュレーション

「北海道には日本原子力研究開発機構幌延深地層研究センターがあり、放射性廃棄物の地層処分にあって技術的な信頼性を確認するため、実際の深地層を活用した研究開発が行われており、私たちが共同研究に参画しています」。例えば、地下350mの地点にある調査坑道にはガラス固化体の代わりに模擬オーバーバックと緩衝材で作った実物大の人工バリアがあり、センターでは埋設後、このバリアや周辺の岩盤がどのように変化するか、地下水の中を物質がどのように移動するか等を計測・観察しています。「バリアが壊れたあと、放射性物質がどのように動くのかを知るのは非常に重要で、計算によってシミュレーションします。そこで



高レベル放射性廃棄物を処分するための多重バリアシステムにより、地下に埋設したあと長期間放射性物質を隔離することができます。出典: 経済産業省資源エネルギー庁 (<https://www.enecho.meti.go.jp/about/whitepaper/2018html/3-4-4.html>)

## 趣味の時間はもちろん、家族との時間も大切にしています

休日は三線の教室に行くこともあります。あとは子どもたちともよく遊びに出かけますね。小学5年生の男の子と小学2年生の女の子がいるので、遊び盛りということもあって近場の公園や遊園地に連れていきます。最近は息子が好きな家庭用ゲーム機で対戦ゲームをしたり、近所の公園 (仙台市) で娘の自転車の練習に付き合うことが多いかもしれません。夏休みには遠出をすることもあり、今年は家族で気仙沼大島に海水浴に行きました。去年も行きましたが、島や海が好きなので気に入っています。沖縄に惹かれるのと同じ理由かもしれません。



試料の顕微鏡観察の一場面

重要となるのが基礎となる熱力学のデータであり、信頼できる良質なデータを測る技術も必要になってくるため、私が学生時代から行ってきた基礎研究の重要性を改めて実感しています」。現在、桐島教授はこの基礎研究に関連し、深部地下水中で長寿命の放射性核種が化学的にどのように振る舞うかを、幌延センターで採取した実際の深部地下水を用いた実験とシミュレーションで明らかにしようとしています。

## 放射性廃棄物の問題は後世のために解決すべきもの

一方、最近では企業からレアメタルやレアアースに関連した相談を受けることもあり、桐島教授の研究室では共同で調査する事例も増えてきています。「レアメタルやレアアースは鉱石から採取される非鉄金属ですが、この鉱石にはウランなどの放射性物質が含まれていることが多く、精錬した際にゴミとして取り出されます。こうした放射性物質の分析や安全な取り扱い方法について相談されるケースがあ

るので、分離・測定プロセスの開発にも携わっています」。レアメタルやレアアースは数多くの工業製品の原材料として非常に重要な元素ですが、海外では取り出された後の放射性物質が適切に処理されないまま投棄されたこともあり、問題になってきました。「天然放射核種 (NORM) 問題とも言われています。発展途上国に多いのですが、日本では環境意識の高まりもあって安全に安定した形で処理し、企業の社会的責任を果たしたいという需要が増えてきているようです」。

原子力発電により排出される高レベル放射性廃棄物をはじめとした放射性物質のゴミ問題は、これまであまり注目を浴びることはありませんでした。しかし「後世のことを思えば誰かが専門的な知識を持ってきちんと取り組まなくてはならない問題もある」と桐島教授は強調します。「福島事故をきっかけに“やはり原子力は怖い”と思われるようになってしまいましたが、私たちのような専門家がきちんと安全性を評価し、長期的なリスクも分かり易く説明していくことで、市民の皆さんが過度に不安を感じることなく日常生活を送ることができるのが一番の理想。そのためにも、こうした放射性物質の分析や安全な取り扱い方法について、今後も真摯に向き合い続けたいと思っています」。



模擬デブリ中の元素分布の分析

## TERM INFORMATION

### ガラス固化体

使用済核燃料を再処理して、再使用できるウランやプルトニウムを抽出後に残る、高放射性廃液をガラスで固めたもの。高レベル放射性廃棄物となる。

### 日本原子力研究開発機構 幌延深地層研究センター

高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発を行う研究センター。国内唯一の稼働中の深部地下研究施設を有する。

### 天然放射核種 (NORM) 問題

地殻中に存在する天然の放射性核種。ウランやトリウムとその壊変系列核種 (放射性壊変した後の核種も放射性核種となり娘核種や子孫核種といった放射性の壊変生成物をつくること) が代表例。