

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	アパタイトセラミックスを用いた発熱性放射性核種固定化プロセスの開発
Title(English)	Development of Immobilization Process of Radioactive Nuclides in Apatites containing REE, Al and Fe
著者(和文)	金川俊
Author(English)	Shun Kanagawa
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11517号, 授与年月日:2020年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:竹下 健二,大貫 敏彦,加藤 之貴,鷹尾 康一郎,塚原 剛彦
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11517号, Conferred date:2020/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第		号	学位申請者氏名		金川 俊	
		氏名	職名		氏名	職名	
論文審査 審査員	主査	竹下 健二	教授	審査員	塚原 剛彦	准教授	
	審査員	大貫 敏彦	教授				
		加藤 之貴	教授				
		鷹尾 康一郎	准教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「アパタイトセラミックスを用いた発熱性放射性核種固定化プロセスの開発」と題し、以下の7章から構成されている。

第1章「緒言」では、福島第一原発事故およびその後の廃止措置の経緯を示すと共に、廃止措置に伴って発生する放射性廃棄物について組成、発生量および廃棄物の減容処理法を総括している。本研究では放射性廃棄物として HIC（高性能容器）スラリーおよび汚染土壌処理後の放射性 Cs 含有廃液に注目しており、これらの廃棄物中の ^{90}Sr や ^{137}Cs などの発熱性核種の固定化処理にはアパタイトセラミックスによる焼結処理が有効であり、ガラス固化に比べて低温処理が可能でかつセメント固化やジオポリマー固化に比べて放射線分解による水素発生が抑制できるなどの利点があるとしている。こうした研究背景を示すととも本論文の目的とその構成を述べている。

第2章「アパタイト固化体の詳細および評価方法」では、アパタイトに関する物性や本研究で重要となる放射線耐性や溶解性、アパタイト合成方法を示すととも、本研究で合成したアパタイトセラミックス組成、評価に用いた分析機器について記述している。

第3章「希土類元素を用いたアパタイトの合成および性状評価」では、希土類元素である La、Nd を用いた Cs 含有 Sr アパタイトの合成とその性状を評価している。既往研究における固相反応によるアパタイトの合成では焼成に 1000°C を超える高温が必要であったが、本研究では出発物質を溶液中で混合・乾燥させて得られた乾燥前駆体を作製することで低温合成ができることを明らかにしている。乾燥前駆体の熱重量分析の結果、 $550\sim 650^\circ\text{C}$ 付近で急激な質量減少が観測されたことから乾燥前駆体を 700°C で処理したところ焼成体が得られ、これに対し X 線回折 (XRD) およびリートベルト解析による構造分析を行った結果、高純度のアパタイト構造を有していることを確認している。加えて、合成したアパタイトを酸で溶解した溶液の元素分析を行った結果、理論値と同程度の化学量論比組成を持つことが明らかになり、希土類元素を用いた Cs 含有 Sr アパタイトが低温で合成できたと結論している。

第4章「アルミニウムおよび鉄を用いたアパタイトの合成および性状評価」では、前章で使用した希土類元素の代替としてより安価な Al および Fe を用いた Cs 含有 Sr アパタイトの合成およびその性状を評価している。前章と同様の手法で Al および Fe を用いた乾燥前駆体を合成して $300\sim 1100^\circ\text{C}$ で前駆体を焼成したところ、希土類元素を用いた場合よりさらに低温の 500°C でアパタイト結晶由来の XRD ピークが確認できたと述べている。走査型電子顕微鏡による焼成体の表面観察を行った結果、Al、Fe 両試料ともアパタイトの特徴的な球状の結晶が確認され、合成したアパタイトを酸で全溶解させた溶液の元素分析の結果、理論値と同程度の化学量論比組成を持つことを確認している。Al および Fe を用いることで 500°C というこれまでよりもより温和な条件で Cs 含有 Sr アパタイトが合成できたと結論している。

第5章「実用性評価」では、アパタイトの実用性評価を評価するために、 γ 線照射によるアパタイトの構造変化、最終処分における発熱性核種固定化アパタイトの発熱量ならびにアパタイトからの発熱性核種の水への浸出率を評価している。 ^{60}Co による $0.1\sim 1\text{ M Gy}$ の γ 線照射の結果、合成した全てのアパタイトは γ 照射前後で不純物の XRD ピークは確認されなかったと述べている。次にピット処分における ^{137}Cs および ^{90}Sr の上限濃度をそれぞれ 100 TBq/ton 、 10 TBq/ton として、発熱性元素固定化アパタイト内へ含有できる発熱性元素量を算出して発熱量を評価したところ、固化体はアパタイト構造が分解する温度に達することなく、長期間安定貯蔵できることを明らかにしている。更にホットプレスによるアパタイト成型体を作製し、ANSI16-1 に準拠して発熱性元素の浸出率を調べたところ、浸出指数 L 値 (6 以上で低レベル放射性廃棄物の固定化体として有効) は Sr に対して 9.5 (安定固定化可能) であったが、Cs に対して 6 を上回ることができず、Cs の耐浸出性向上が今後の課題であると述べている。

第6章「発熱性元素安定固定化プロセスの開発および減容率評価」では、前章までの結果から発熱性核種の安定固定化プロセスを提示し、HIC スラリー処理により発生するアパタイト量および汚染土壌の減容率を評価している。スラリー処理では ^{90}Sr 濃度が高く、現行のスラリー廃棄物を全量処理すると発熱量の制限から 60 万本という多数の廃棄体が発生するが、汚染土壌処理では元の土壌量と比較して、最終処分を必要とするアパタイト固化体の体積は最大で約二十万分の一まで減容が可能であることを明らかにしている。

第7章「結言」では本研究で得られた成果を総括し、今後の課題をまとめている。

これを要するに、本論文は福島第一原発事故の廃止措置で発生するスラリー廃棄物や汚染土壌処理で発生する Cs 含有廃液の安定固定化を可能にするアパタイト焼結体の合成技術の進展に寄与するものであり、工学上および工業上貢献するところが大きい。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として十分価値あるものと認められる。

注意：「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチャーポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。