

## 模擬デブリ含有セメント固化体からのウラン溶出挙動

Study on cement solidified waste containing fuel debris

\*新村 徹<sup>1</sup>, 秋山 大輔<sup>1</sup>, 桐島 陽<sup>1</sup>, 佐藤 修彰<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東北大学多元物質科学研究所

模擬燃料デブリとして  $\text{UO}_2$  と  $\text{U}_3\text{O}_8$  が含有したセメント固化体を使用して、ウランおよびセメント成分 (Ca, Al, Fe, Mg) の溶出試験を行った。

キーワード：燃料デブリ，セメント，固化体，ウラン酸化物

### 1. 緒言

2011年3月11日に発生した東日本大震災により、福島第一原子力発電所では原子炉の冷却機能が停止した。今回の事故では、崩壊熱により核燃料の温度が上昇したことにより、炉心が制御棒や構造材等と溶融し燃料デブリが生じた。燃料デブリは通常の使用済燃料と異なり、燃料成分中の  $\text{UO}_2$  と構造材成分との反応による固溶体の生成や、水素爆発による大気との接触により一部の  $\text{UO}_2$  が酸化した  $\text{U}_3\text{O}_8$  等の状態に変化した可能性がある。

今後、燃料デブリによって汚染された様々な廃棄物が多量に発生すると予想され、廃棄物の状態によって様々な廃棄体化方法が必要となると見られることから、廃棄物の固化法選択のために基礎データの取得が必要となる。本研究では、低レベル放射性廃棄物等の固化法として確立されているセメント固化法に着目し、セメント固化廃棄体の模擬試料からのウランの溶出挙動について検討した。

### 2. 実験方法

二酸化ウラン( $\text{UO}_2$ )含有模擬セメント試料 (セメント/ $\text{UO}_2$  比=1,5,10) と八酸化三ウラン( $\text{U}_3\text{O}_8$ )含有模擬セメント試料 (セメント/ $\text{U}_3\text{O}_8$  比=1,5,10) を次の手順で調製した。所定量のウラン酸化物とセメントが入ったバイアルをミックスローターで回転させ一晩混合した後、水を加え7日養生し固化体とした。さらに、固化体を乳鉢で粉砕した粉末を溶出試験のサンプルとした。そのサンプルを大気雰囲気中 (約  $20^\circ\text{C}$ ) で純水に浸漬させ、振とう器を用いて 120rpm で浸漬実験を行った。その際、比較のため  $\text{UO}_2$  と  $\text{U}_3\text{O}_8$  のみの試料も浸漬させた。サンプル浸漬後、所定時間毎に上澄み液を  $0.45\mu\text{m}$  メンブレンフィルターでろ過してサンプリングを行った。上澄み液中のウラン濃度とセメント成分濃度については ICP-AES と ICP-MS を用いて測定した。

### 3. 結果・考察

図1に時間毎における浸漬液 (純水) 中のウラン濃度を示した (C=Cement)。28日通して、 $\text{UO}_2$  と  $\text{U}_3\text{O}_8$ 、セメント/ $\text{U}_3\text{O}_8$  比=1 試料からウラン濃度の増加が確認できた。 $\text{U}_3\text{O}_8$  浸漬後に純水の pH の低下 (6.5→5) が見られたことから、それに伴ってウランの溶出量が増加したと考えられる。セメント/ $\text{UO}_2$  比=1,5,10 試料に関しては検出限界以下、セメント/ $\text{U}_3\text{O}_8$  比=1,5,10 試料に関しては  $\text{U}_3\text{O}_8$  と比べて 1 万分の 1 程度のウラン濃度に抑えることができた。セメント/ $\text{U}_3\text{O}_8$  比=10 試料に関しては、検出限界により 28 日を通してウランの溶出が見られず、セメント/ウラン酸化物比で有意なウラン濃度差は見られなかった。

### 4. 結論

セメントによるウランの溶出抑制は確認できた。しかし、そのメカニズムは溶出試験のみでは不十分である。講演では、溶出試験の他に固相分析からウラン溶出のメカニズムについて考察した結果を発表する。

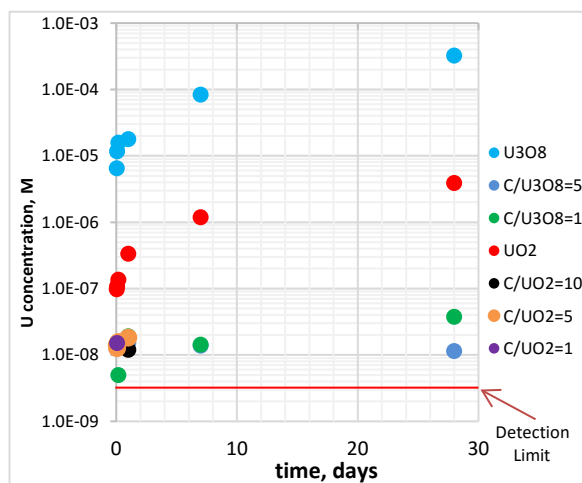


図1 ウラン酸化物、ウラン酸化物含有セメントを水に浸漬させた後の水中のウラン濃度

\*Toru Shimmura<sup>1</sup>, Daisuke Akiyama<sup>1</sup>, Akira Kirishima<sup>1</sup>, Nobuaki Sato<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University