

福島原発事故で発生した廃棄物の合理的な処理・処分システム構築
 に向けた基盤研究(50)模擬燃料デブリからのアクチノイド溶出挙動について
 Basic Studies for Developing Rational Treatment and Disposal System of Radioactive Wastes Generated
 by Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident

(50) Leaching Behavior of Actinide Elements from Simulated Fuel Debris

*桐島 陽¹, 平野正彦¹, 佐藤修彰¹, 佐々木隆之²

¹東北大学多元物質科学研究所, ²京都大学大学院工学研究科

U-Zr 混合酸化物に Np, Am, Pu トレーサを添加して模擬デブリを作成した。これを海水や純水に浸漬し、アクチノイド元素の溶出挙動について検討した。浸漬中の水温やデブリ調製時の雰囲気はアクチノイドの溶出に与える影響について発表する。

キーワード：燃料デブリ、アクチノイド、溶出試験

1. 緒言

2011年3月に発生した福島第一原子力発電所において冷却材損失事故が発生し、燃料デブリが形成された。形成された燃料デブリは燃料成分のほか、核分裂生成物およびマイナーアクチノイドを含んでおり、冷却水と接触したことで、一部核種が溶出し汚染水となった。本事故において注水された海水は多種多様なイオンや懸濁物を含んでおり、核種の溶出挙動は純水のものとは異なると考えられる。事故によって発生した燃料デブリは、生成時の場所や温度、雰囲気により様々な固相状態をとると考えられ、溶出挙動は複雑なものになると考えられる。本研究では、Np, Am, Pu トレーサが添加された模擬燃料デブリを熱処理雰囲気やその組成を変化させて海水への核種溶出試験を行ったほか、純水浸漬との比較や、水温、浸漬時間による核種溶出挙動への影響を評価した。

2. 実験

²³⁶Pu, ²³⁷Np, ²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ¹⁵²Eu トレーサを添加した UO₂ と ZrO₂ を乳鉢にて磨砕混合し、異なる雰囲気（酸化雰囲気、還元雰囲気、および Ar 雰囲気）で熱処理を行い、模擬燃料デブリを調製した。この燃料デブリを海水もしくは純水に固液比 4 g/L で浸漬し、最長 124 日間の溶出試験を行った。溶出試験後、試料を孔径 0.45 μm フィルタを用いて固液分離し、残渣成分は熱濃硝酸にて溶解し 0.45 μm フィルタを用いて残渣成分を取り除いた後に希釈した。固相、液相の両試料に対してγ線スペクトロメトリを実施し、γ線放出核種の溶出率を調べた。その後、水酸化サマリウム共沈法により固相および液相のα線測定試料を作製し、α線スペクトロメトリを実施することでα線放出核種の溶出率を求めた。

3. 結果・考察

異なる雰囲気にて 18 時間熱処理を行った UO₂:ZrO₂=50:50 の模擬燃料デブリを、25 °C の海水に 10 日間浸漬試験した際のアクチノイドの溶出率を下表に示す。還元雰囲気デブリでは U 溶出率が 0.02% と極めて低いのにに対し、Ar 雰囲気デブリでは 0.08%、酸化雰囲気デブリでは 0.11% となった。これはデブリ生成時 (= 熱処理時) の酸素分圧が高くなると、固相内でより溶出しやすい U(VI) への酸化が進行したためと考えられる。同様に Np(V) へと酸化されうる Np の溶出率も増加した。発表では、水温やデブリ組成、浸漬時間による溶出率の違いについても議論する。

なお、本研究は、科学研究費基盤研究(S)「福原発事故で発生した廃棄物の合理的な処理・処分システム構築に向けた基盤研究」(24226021)の一環として実施した。

Akira Kirishima¹, Masahiko Hirano¹, Nobuaki Sato¹, Takayuki Sasaki²

¹IMRAM, Tohoku University, ²Department of Nuclear Engineering, Kyoto University

表 デブリ生成雰囲気が核種溶出に与える影響

雰囲気	溶出率(%)		
	還元	Ar	酸化
U-238	0.02	0.08	0.11
Np-237	0.01	0.01	0.04
Am-241	0.02	0.02	0.03
Pu-236	N.D.	N.D.	N.D.