

## 総合講演・報告4「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礎研究」

## Basic Studies for Developing Rational Treatment and Disposal System of Radioactive Wastes Generated by Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident

## (2) 廃棄物性状評価研究の成果-燃料デブリの性状評価と放射性物質の溶出挙動評価-

## (2) Results of Studies on Waste Characterization – Characteristics of Fuel Debris and Their Leaching Behavior –

\*佐藤 修彰<sup>1</sup>, 桐島 陽<sup>1</sup>, 佐々木 隆之<sup>2</sup><sup>1</sup>東北大、<sup>2</sup>京大

## 1. 緒言

福島第一原発の廃炉のためには新たな科学的知見の取得と新概念に基づく処理・処分法の研究・開発が必要である。現在展開している「福島第一原発事故において発生した燃料デブリの合理的な処理・処分システム構築に向けた基礎研究」においては、汚染物性状評価、汚染物処理ならびに廃棄物処分の研究を様々な角度から進めている。性状評価研究としては、固体および液体汚染物の性状評価研究について、燃料デブリ中の燃料および構造材を含む固体の相関係や、それら固体から放射性核種が冷却水中に溶出する際の化学的挙動等の検討を行ってきた。特に、過去の原子炉事故と異なる環境における模擬燃料デブリの高温における相関係や、同デブリ中の燃料成分やFPおよびMA核種等放射性物質の海水・真水への溶出挙動について調べてきた。

本報告では、主成分と考えられる $UO_2$ - $ZrO_2$ 系酸化物やSUS、コンクリート等構造材を含む模擬燃料デブリについて酸化および還元雰囲気における相関係に関する知見、および、それらを海水に浸漬した際のFPやTRU成分の溶出挙動に関する成果について紹介する。

## 2. 成果

**1) 固体性状評価研究:**  $UO_2$ 燃料と被覆管との反応によるデブリの主成分と考えられる  $UO_2$ - $ZrO_2$ 系については擬二元系状態図に基づいて、U/Zr モル比が 10/90、50/50 および 90/10 になるように  $UO_2$ - $ZrO_2$ 系模擬デブリを調製し、酸化あるいは還元雰囲気下所定温度において加熱処理した後、XRD 法により相関係を調べた。還元雰囲気においては、U/Zr 比が異なるいずれの試料においても、fcc 構造をとる  $UO_2$ 固溶体( $Zr_yU_{1-y}O_{2-x}$ )および tetragonal 構造の  $ZrO_2$ 固溶体( $t-(U,Zr)O_2$ )の 2 相が確認された。一方、酸化雰囲気( $Ar+2\%O_2$ )においては U 濃度が高い場合には  $U_3O_8$  へ酸化される傾向が見られたが、Zr 濃度が高い場合には、 $t-(U,Zr)O_2$ 相を生成し、 $UO_2$ のみの場合より固溶体化により酸化が抑制された。他の構造材 (SUS、 $B_4C$ 、コンクリート) との反応性についても検討した。

**2) 液体性状評価研究:** 調製した試料を京大原子炉で熱中性子照射して FP および放射化物を生成させた後、試料数 10mg と福島県南相馬市小高区の海岸で採取した海水 30 ml をポリプロピレン容器中で混合し、室温(298 K)にて所定時間振とうした。その後、孔径  $0.45 \mu m$  フィルタ等を用いて固液分離し、固相および水相中の核種の  $\gamma$  放射エネルギーを測定した。また、 $^{236}Pu$  や MA トレーサ( $^{237}Np$ ,  $^{241}Am$ )および FP トレーサ( $^{152}Eu$ ,  $^{137}Cs$ )を用いて同様に検討した。海水浸漬後 160 日経過した試料では、酸化処理した場合や、U 濃度が高い試料ほど、溶出率が高い傾向が見られた。トレーサ添加試料では振とう 4 日後で、 $^{137}Cs$  は 78 % と最も高く、 $^{152}Eu$  は 1 % 程度、U では 0.1%、 $^{237}Np$ ,  $^{236}Pu$ ,  $^{241}Am$  の TRU 核種では 0.04% 程度であり、アクチノイド核種の溶出率が低いことがわかった。

## 3. 結言

本研究の結果、 $UO_2$ - $ZrO_2$ 模擬デブリの還元/酸化処理や U/Zr 比により、 $UO_2$ 放射性核種の海水への溶出挙動に大きな影響を与えることが示唆された。

なお、本研究は、科学研究費 (基礎研究 (S) 24226021) の一環として実施した。

\*Nobuaki Sato<sup>1</sup>, Akira Kirishima<sup>1</sup>, Takayuki Sasaki<sup>2</sup><sup>1</sup> Tohoku Univ., <sup>2</sup> Kyoto Univ.