

# MCCI デブリからのアクチノイド溶出機構および処理プロセスに関する基盤研究 (4)燃料デブリの組成とアクチノイド溶出挙動の関係

Basic study on actinide leaching and waste management of MCCI debris

(4)The effect of fuel debris composition on the actinide leaching behavior

\*長友 彬人<sup>1</sup>, 桐島 陽<sup>1</sup>, 秋山 大輔<sup>1</sup>, 佐藤 修彰<sup>1</sup>, 佐々木 隆之<sup>2</sup>

<sup>1</sup>東北大多元研, <sup>2</sup>京大院工

ジルコニア、セメント構成成分または普通ポルトランドセメントを含むウラン酸化物に、MA(Np, Am)トレーサを添加した模擬燃料デブリを酸化あるいは還元雰囲気で加熱処理して調製した。これを海水及び純水に浸漬し、溶出率を求めるとともに、燃料デブリの組成とアクチノイド溶出挙動の関係を考察した。

**キーワード** : MCCI 燃料デブリ, アクチノイド, 溶出挙動, 汚染水

**1. 緒言** 2011年3月に発生した、福島第一原子力発電所事故では、冷却材が喪失したことにより燃料が溶融し、被覆管成分であるジルカロイや構造材成分であるコンクリートと反応し、燃料デブリが形成した。さらに、燃料デブリが冷却水と接触したことでウランやマイナーアクチノイド(MA)、核分裂生成物(FP)の一部が汚染水に溶出した可能性がある。燃料デブリは生成時の温度や反応物、酸素濃度をはじめとする雰囲気の違いによって、さまざまな固相状態をとると考えられる。さらに、事故直後に非常用冷却水として注入された海水と、現在継続的に注入されている純水では化学組成が異なることを踏まえると、燃料デブリからの核種の溶出挙動は複雑なものになると予想される。本研究では、MAトレーサを添加した $\text{UO}_2$ を $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{SiO}_2$ および普通ポルトランドセメントと異なる組成にて混合し、さらに異なる温度や雰囲気における熱処理により模擬燃料デブリを調製した。その後、海水および純水への溶出試験を行い、核種の溶出挙動に及ぼす加熱温度や雰囲気の影響を評価した。

**2. 実験**  $^{237}\text{Np}$ 、 $^{241}\text{Am}$  および  $^{152}\text{Eu}$  トレーサを添加した  $\text{UO}_2$  と  $\text{ZrO}_2$ 、セメント構成成分( $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{SiO}_2$ )またはセメント粉を、当モル比( $\text{UO}_2$ :  $\text{ZrO}_2$ =1:1,  $\text{UO}_2$ : $\text{CaO}$ : $\text{SiO}_2$ =1:1:1 等)になるように秤量し、磨砕・混合した。これを酸化雰囲気(2%  $\text{O}_2$ )もしくは還元雰囲気(10%  $\text{H}_2$ )のなかで、1200°C または 1600°C で熱処理を行い、模擬燃料デブリを調製した。この燃料デブリを人工海水もしくは純水に固液比 4 g/L で浸漬し、31 日間の溶出試験を行った。溶出試験後、試料を孔径 0.45  $\mu\text{m}$  ニトロセルロースフィルタを用いて固液分離し、液相部分を 1M 硝酸により希釈して $\gamma$ 線測定試料を作製し、 $\gamma$ 線スペクトロメトリを実施し  $^{152}\text{Eu}$  の溶出率をもとめた。次に同試料を用いて、水酸化サマリウム共沈法により $\alpha$ 線測定試料を作製し、 $\alpha$ 線スペクトロメトリを実施し  $^{238}\text{U}$ 、 $^{237}\text{Np}$  および  $^{241}\text{Am}$  の溶出率をもとめた。

**3. 結果・考察**  $\text{UO}_2$ 、 $\text{CaCO}_3$  および  $\text{SiO}_2$  をモル比 1:1:1 で混合した試料(a)と  $\text{UO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{CaCO}_3$  および  $\text{SiO}_2$  をモル比 1:1:1:1 で混合した試料(b)を酸化雰囲気において 1600°C で加熱処理して調製した模擬燃料デブリの場合、純水系、海水系における U の溶出率は、いずれの場合でも、試料(b)の方が試料(a)に比べて低い値となった。IV 価が極めて安定な Zr がデブリ中に存在することにより、デブリ中の  $\text{UO}_2$  固溶体の安定性が増加したためと考えられる。セメント粉を用いた試料(c)についても同様の溶出試験を行い、デブリ中のセメントの微量成分が各核種の溶出率に及ぼす影響についても検討した。

**謝辞** 本研究は、科学研究費(基盤研究(A) 16H02447)「MCCI デブリからのアクチノイド溶出機構および処理プロセスに関する基盤研究」の一環として実施している。

\*Akito Nagatomo<sup>1</sup>, Akira Kirishima<sup>1</sup>, Daisuke Akiyama<sup>1</sup>, Nobuaki Sato<sup>1</sup> and Takayuki Sasaki<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Tohoku Univ., <sup>2</sup>Kyoto Univ.