

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

(1) MCCI 模擬デブリの高温における反応挙動

Basic study on actinide leaching and waste management of MCCI debris

(1) Reaction behavior of simulated MCCI debris at high temperatures

*佐藤修彰¹, 秋山大輔¹, 桐島 陽¹, 佐々木隆之²

¹東北大多元研, ²京大院工

原子炉過酷事故によって発生した MCCI デブリについて、ウラン酸化物およびセメント構成成分からなる模擬デブリを調製し、還元および酸化雰囲気における高温加熱処理を行い、固溶体の生成など MCCI デブリの高温における反応挙動を調べた。

キーワード：原子炉過酷事故、MCCI 燃料デブリ、コンクリート、ウラン酸化物、高温反応

1. 緒言

本研究では、福島第一原子力発電所(1F)事故で発生したデブリの合理的な最終処分の提案に向けた基盤研究を目的として、アクチノイドを含む MCCI(Molten Core Concrete Interaction)模擬デブリを調製し、模擬デブリ固相の性状と核種の溶出性の関連を明らかにするとともに、発生したデブリの安定化処理を検討する。具体的には、デブリの耐酸化性、耐腐食性を向上させる固溶体安定化剤を添加した模擬廃棄体を、酸素雰囲気や加熱温度を制御することにより種々調製し、デブリ中アクチノイドの地下水に対する耐溶出性を評価することで、処理の妥当性や必要性を検討する。ここでは、1F の MCCI 模擬デブリの調製および固相の性状およびアクチノイド等の核種溶出挙動を評価した後、安定化剤添加によるデブリの安定化処理および性状評価と溶出率の低減効果の確認を行い、MCCI デブリの最終処分に向け、最適化されたシンプルな処理法の提案へつなげる。ここでは、(1) MCCI デブリの高温における反応挙動について、異なる雰囲気や加熱温度に対する燃料とセメント構成成分との反応を調べた。

2. 実験および解析

UO₂は金属Uを空气中800°Cにおいて酸化処理して得たU₃O₈を水素中1000°Cにて還元して調製した。得られたUO₂とセメント構成成分(CaO, SiO₂)について、UO₂と個々の酸化物が等モル(UO₂:CaO=1:1, UO₂:CaO:SiO₂=1:1:1等)になるようにそれぞれ摩砕・混合した後、アルミナボートに所定量秤量した。シリコニット炉のアルミナ反応管内にボートをセットし、反応管内を真空排気・Ar置換した。所定温度(1200~1600°C)まで昇温した後Ar+2%O₂ガスを1時間加熱し、酸化雰囲気処理を行った。また、還元雰囲気処理の場合は、Ar+10%H₂ガスを用いた。反応後の試料について粉末XRD法により相解析を行い、高温におけるMCCIデブリの反応挙動を検討した。

3. 結果・考察

UO₂:CaO(1:1)擬二元系の場合、還元雰囲気では1200°Cでは反応しないが、1300~1400°CにおいてUO₂相の他にCa-U-O化合物が生成し、1600°CではUO₂の格子定数が小さくなり、Ca_yU_{1-y}O_{2+x}固溶体となった。酸化雰囲気では、1200°CからCa_yU_{1-y}O_{2+x}固溶体相とCaUO₄を生成し、加熱温度の上昇とともにCa₂UO₅相に変化した。次に、UO₂:SiO₂(1:1)の場合には還元および酸化雰囲気下低温においては顕著な反応は見られなかった。UO₂:CaO:SiO₂=(1:1:1)となると、還元雰囲気では、UO₂とCaSiO₃を生成し、温度上昇とともにSiO₂の揮発に伴いCa₂SiO₄に変化した。酸化雰囲気では(Ca,Si,U)O_{2+x}固溶体とCa₂SiO₄が共存したが、1300°C以上では(Ca,Si,U)O_{2+x}固溶体相のみとなった。このように還元雰囲気ではUO₂相が安定であるのに対し、酸化雰囲気では構成成分のUO₂相への固溶限度が高まり、温度上昇とともに固溶体単相を形成する傾向があることが分かった。

*Nobuaki Sato¹, Daisuke Akiyama¹, Akira Kirishima¹ and Takayuki Sasaki²

¹Tohoku Univ., ²Kyoto Univ.

本研究は、科学研究費補助金 基盤研究 (A) (課題番号 16H02447) の成果の一部です。