

# 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 (2) 燃料デブリ生成時の温度と汚染水へのアクチノイド溶出挙動の関係

Basic study on actinide leaching and waste management of MCCI debris

## (2) Relation between the temperature of fuel debris generation and leaching behavior of actinides to contaminated water

\*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、セメント構成成分および FP(<sup>137</sup>Cs, <sup>85</sup>Sr, <sup>152</sup>Eu)と MA(<sup>237</sup>Np, <sup>241</sup>Am)トレーサを添加したウラン酸化物を 1200°C または 1600°C で加熱処理を行い、模擬デブリを調製した。これを海水及び純水に浸漬後、放射能測定により各元素の溶出率を求め、デブリ生成時の温度とアクチノイド溶出挙動との関係を考察した。

**キーワード** : MCCI 燃料デブリ, マイナーアクチノイド, 溶出挙動, 核分裂生成物, 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合金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)が溶出し汚染水が生じた。本事故において、燃料デブリが生成時の温度や場所、雰囲気によってさまざまな固相状態をとることや、非常用冷却水として注入された海水と純水では構成成分が異なることを踏まえると、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 および FP トレーサを添加した UO<sub>2</sub> を、異なる温度や雰囲気における熱処理により調製して模擬燃料デブリとし、海水および純水への溶出試験を行い、それらの条件が核種の溶出挙動に及ぼす影響を評価した。

### 2. 実験

<sup>85</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu, <sup>237</sup>Np, <sup>241</sup>Am トレーサを添加した UO<sub>2</sub> と ZrO<sub>2</sub>、セメント構成成分(CaO, SiO<sub>2</sub>)またはセメント粉について等モル(UO<sub>2</sub>: ZrO<sub>2</sub>=1:1, UO<sub>2</sub>:CaO:SiO<sub>2</sub>=1:1:1 等) になるようにそれぞれ乳鉢にて磨砕・混合し、酸化もしくは還元雰囲気中 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。この模擬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 μm 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γ線測定試料を作製し、γ線スペクトロメトリを実施した。次に同試料を用いて、水酸化サマリウム共沈法によりα線測定試料を作製し、α線スペクトロメトリを実施した。また、溶出試験前の試料についても同様にγ線およびα線スペクトロメトリを実施し、試験前後の放射能強度を比較して、核種の溶出率を求めた。

### 3. 結論

UO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub>, CaO および SiO<sub>2</sub> をモル比 1:1:1:1 で混合し還元雰囲気において 1200°C または 1600°C で加熱処理して調製した模擬燃料デブリでは海水系、純水系の各条件における U の溶出率は 1200°C の場合それぞれ 0.045%, 0.018% となり、1600°C の場合それぞれ 0.022%, 0.005% と極めて低い値となった。講演では模擬燃料デブリの組成や熱処理時の雰囲気、海水浸漬と純水浸漬の違いが核種の溶出率に及ぼす影響についても議論する。

\*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.

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。