

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

(3) 模擬燃料デブリの核種溶出率に基づく実汚染水の一考察

Basic Study on actinide leaching and waste management of MCCI debris

(3) Validation of radionuclides dissolved in the 1F cooling water system

*坂本 峻一¹, 佐々木 隆之¹, 小林 大志¹, 秋山 大輔², 桐島 陽², 佐藤 修彰²

¹京都大学工学研究科、²東北大学多元研

福島第一原発の汚染水中のアクチノイド濃度分析値について、燃料の核種インベントリおよび実験で得た模擬燃料デブリからの核種溶出率から推算される放出放射エネルギーと対比し、化学状態の異なる種々のアクチノイドの冷却水への溶出挙動の理解を試みた。

キーワード：福島第一原発、実海水、汚染水、アクチノイド濃度、溶出率

1. 緒言

福島第一原発事故における溶融炉心に大量の冷却水（初期には海水）が投入され汚染水が発生した。本研究で注目するアクチノイド核種の濃度分析データは数少ないが、表 1 に示すように、複数の核種についての報告がある[1]。採取場所や時間により濃度は変動すると考えられるが、様々な化学反応（沈殿や吸着）を無視することができれば、アクチノイド核種間の濃度比の情報は有用と考えられる。一方、ORIGEN コード計算による炉内インベントリ(A_i (Bq)) [2]と、我々が評価した模擬燃料デブリからの核種溶出率(R)値[3,4]から、汚染水中のアクチノイド核種の濃度比を推算できると期待される。

2. 検討手法と考察

あるアクチノイド M の水中に溶出した放射エネルギー $A_{f,M}$ (Bq)は、 $A_{i,M}$ (Bq)と R_M の積で表される。

$$A_{f,M} = A_{i,M}R_M \quad (1-1)$$

例えば、Np(IV)、Np(V)、Pu(IV) の R_M はそれぞれ 10^{-4} 、 10^{-1} 、 10^{-4} である[3,4]。実際の燃料デブリの溶出挙動については図 1 に示すように、 M の溶出経路として燃料デブリ(db)からの溶出と、 M の親核種 P の溶出後(aq)の崩壊の 2 通りを考える。それぞれの経路における溶出率を R_M^* 、 R_P^* とすると、(1-1)式は次式で表される。

$$A_{f,M} = A_{i,M}R_M^* + A_{i,P_1}R_{P_1}^*D_{P_1 \rightarrow M} + A_{i,P_2}R_{P_2}^*D_{P_2 \rightarrow M} + \dots \quad (1-2)$$

ここで $D_{P \rightarrow M}$ は、ある半減期の P_{aq} の M_{aq} への崩壊の補正係数である。ある汚染水中の任意の 2 核種における濃度比と放射エネルギー比(Z_{XY})に次式の関係が成り立つと考えられる。

$$Z_{XY} = [M_X]_{tot}/[M_Y]_{tot} = A_{f,MX}/A_{f,MY} \quad (2)$$

考察例として、 $Z_{Pu-240/Cm-244}$ について述べる。親核種が燃料デブリ中に存在しないか短/長半減期であれば、考慮の必要はない。表 1 から $[^{244}Cm]_{tot}$ が得られる一方、 $[^{240}Pu]_{tot}$ は $^{239}Pu+^{240}Pu$ 濃度分析値から推算する。しかし、 ^{239}Pu は親核種 ^{239}Np の溶出の寄与が考えられ、 ^{239}Np の溶出率は上述の通り係数 (IV, V) により異なる。4 価 Np の R_M^* を用いて得られる ^{239}Pu 濃度から $[^{240}Pu]_{tot}$ を計算したとき、 $[^{244}Cm]_{tot}$ との濃度比と放射エネルギー比が一致する R_{Cm}^* は R_{Pu}^* の 0.5 倍程度のときである。同様に $Z_{Am-241/Cm-244}$ について考察した結果、 R_{Am}^* は R_{Cm}^* の値と概ね一致した。

参考文献

[1]JAEA, 2013, http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/131128/131128_01ss.pdf, [2]西原ら, 2012, JAEA-Data/Code 2012-018, [3] A. Kirishima et al., 2014, JNST, 52:10, p1240-1246, [4] T. Sasaki et al., 2015, JNST, 53:3, p303-311.

*Shunichi Sakamoto¹, Takayuki Sasaki¹, Taishi Kobayashi¹, Daisuke Akiyama², Akira Kirishima² and Nobuaki Sato²

¹Kyoto Univ., ²Tohoku 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。

表 1. SARRY 出口水中のアクチノイド濃度報告値. 2013 年 6 月 27 日時点[1]

核種	濃度(Bq/ml)
^{238}Pu	$(2.1 \pm 0.3) \times 10^{-3}$
$^{239}Pu+^{240}Pu$	$(8.3 \pm 1.8) \times 10^{-4}$
^{241}Am	$(5.6 \pm 1.3) \times 10^{-4}$
^{244}Cm	$(6.3 \pm 1.4) \times 10^{-4}$

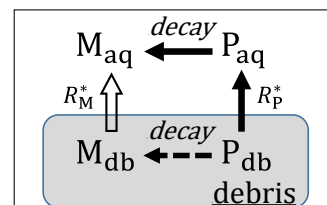


図 1. デブリからの核種 M の溶出経路例