

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

(5) デブリ中のカルシウムとホウ素の FP 溶出への影響

Basic study on actinide leaching and waste management of MCCI debris

(5) The effect of calcium and boron in the debris on the fission products leaching

*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

¹京都大学大学院工学研究科, ²東北大学多元物質科学研究所

被覆管材料のジルコニウム、制御棒構成材である炭化ホウ素、セメント構成成分であるカルシウムおよびケイ酸を二酸化ウランと混合し、酸化または還元雰囲気中で熱処理を行って、模擬の MCCI デブリやホウ素含有デブリを調製した。熱中性子照射により FP 核種を生成させた後、過塩素酸 Na 水溶液に浸漬し、溶液相の γ 線スペクトロメトリーにより、核種の溶出挙動を調べた。

キーワード：MCCI デブリ、ホウ素含有デブリ、核分裂生成物、規格化溶出率

1. 緒言 東日本大震災およびそれに伴う津波により東京電力福島第一原発（1F）の一部号機では LOCA が発生し、炉心溶融となった。二酸化ウランはジルコニウム合金製の燃料被覆管、炭化ホウ素を含む制御棒などと共に溶融状態となり、圧力容器下部を貫通、原子炉底部のコンクリートと接触し、MCCI 燃料デブリを形成したと考えられている。燃料デブリ中の放射性核種の汚染水への溶解挙動や処理処分方法の基礎検討として、本研究では、模擬燃料デブリを熱中性子照射後、生成した核分裂生成物(FP)の浸漬試験を行い、試料中のセメント成分(Ca, Si)および制御棒成分(B)が核種の溶出挙動に与える影響について検討した。

2. 実験 燃料(UO₂)、酸化した燃料被覆管(ZrO₂)、セメント成分(CaCO₃ + SiO₂)、制御棒(B₄C)の各模擬成分を初期固相とし、所定モル比で磨砕・混合し、Ar+10% H₂(還元)または Ar+2% O₂(酸化)の雰囲気下、温度(1200/1400/1600℃)で模擬燃料デブリを調製した。生成固相の相関係を XRD 法により決定した。京大原子炉での熱中性子照射により、試料に FP 核種 M (M=¹⁴¹Ce, ¹³¹I, ¹⁰³Ru, ¹⁴⁰Ba, ¹³⁷Cs, ⁹⁵Zr)を生成させ、NaClO₄ 水溶液(pH=7, I=0.1)に浸漬した。所定時間後、孔径 0.45 μ m のフィルタで固液分離し、蒸発乾固した液相試料の γ 線スペクトロメトリーにより、核種の溶出率 r_M およびウランの r_U で規格化した溶出率 R_M を求めた。

3. 結果と考察

3-1. UO₂-CaCO₃-SiO₂ 系 1200℃加熱において、還元雰囲気では UO₂ と Ca₂SiO₄ 等の混合物となったが、酸化雰囲気では U-Ca-O 三元系酸化物になり、Ca/U 組成比の増加に伴い支配化合物は CaUO₄(cubic, trigonal), Ca₃UO₆ へと変化した。還元混合物試料の r_{Cs} や r_I は、セメント成分を含まない UO₂ からのそれと比較して約 1 桁高く、固相表面近傍のセメント成分の溶出が易溶性 FP の溶出促進に寄与したと考えられる。また、セメント成分の有無に依らず Zr(IV)は検出されず、溶解性の低い UO₂ 構造中で安定であると推察される。酸化試料では、CaUO₄ が支配的な Ca/U 組成比の低い試料において R_M は概ね 1 より大きく、多くの FP 核種が U より優先的に溶出した。一方、セメント成分の増加に伴い液相の pH が上昇し、その際 Ba 等の多価核種の R_M が低下したことから、核種のセメント成分との再沈殿等による濃度低下の可能性が示唆された。

3-2. UO₂-ZrO₂-B₄C 系 還元雰囲気では、1200℃で加熱した試料および Zr/U=1 の試料は UO₂ が支配種であったが、1400 および 1600℃加熱試料では UB₄ が支配種となった。これらの試料の r_U , r_B は UO₂ のそれらより高く、UB₄ の溶解を伴うと、FP 核種の R_M が調和溶解に近づく傾向を示した。一方、酸化雰囲気では、1200℃加熱試料の r_M は高く、加熱温度の上昇とともに低下した。このことは生成するホウ素化合物等により、核種の溶出が抑制された可能性が考えられる。

謝辞 本研究は、JSPS 科研費(JP16H02447)「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」の助成を受けて実施したものです。

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

¹Dept of Nuclear Engineering, Kyoto Univ., ²IMRAM, Tohoku Univ.