

# 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

## (6) デブリ中のカルシウムとケイ酸のアクチノイド溶出への影響

Basic study on actinide leaching and waste management of MCCI debris

(6) The effect of calcium and silica in the debris on the actinide leaching

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

<sup>1</sup>東北大学多元物質科学研究所, <sup>2</sup>京都大学大学院工学研究科

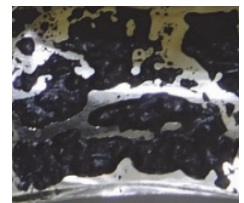
被覆管材料のジルコニウム、セメント構成成分であるカルシウムおよびケイ酸を、アクチノイドトレーサを添加した二酸化ウランと混合し、酸化または還元雰囲気中で熱処理を行い、模擬 MCCI デブリを調製した。これを海水または純水に浸漬し、アクチノイド核種の溶出挙動を調べた。

**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、冷却機能の喪失により燃料が溶融し被覆管のジルコロイアや構造材のコンクリート等と反応し、燃料デブリが形成された。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)、核分裂生成物の一部が汚染水に溶出したと考えられている。炉内には種々のデブリが存在していると考えられているが、溶融状態の燃料とコンクリートが反応して形成されたデブリは MCCI (Molten Core-Concrete Interaction) デブリと呼ばれ、相当量が存在しているとみられる。本研究では MCCI デブリに含まれているアクチノイドの化学的安定性を評価するために、MA トレーサを添加した  $UO_2$  を  $ZrO_2$ 、 $CaCO_3$  および  $SiO_2$  と混合し、熱処理により模擬 MCCI 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、MA 核種の溶出挙動を評価した。

**2. 実験**  $^{237}Np$ ,  $^{241}Am$  および  $^{152}Eu$  トレーサを添加した  $UO_2$  と  $ZrO_2$ 、セメント構成成分( $CaCO_3$ ,  $SiO_2$ )を、当モル比( $UO_2: ZrO_2:CaCO_3:SiO_2=1:1:1:1$ )になるように秤量し、磨砕・混合した。これを酸化雰囲気(2%  $O_2$ )または還元雰囲気(10%  $H_2$ )下で、1200 °C または 1600 °C で1時間加熱処理を行い、模擬 MCCI デブリを調製した。この模擬デブリを人工海水または純水に固液比 4 g/L で浸漬し、溶出試験を行った。溶出試験後、試料を孔径 0.45  $\mu m$  のフィルタを用いて固液分離し、液相部分を硝酸により希釈して  $\gamma$ 線スペクトロメトリを実施し  $^{152}Eu$  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  $^{238}U$ ,  $^{237}Np$  および  $^{241}Am$  の溶出率を求めた。

**3. 結果と考察** 熱処理後の模擬 MCCI デブリの XRD パターンから、1200 °C 酸化雰囲気では、 $UO_2$  固溶体と  $U_3O_8$ ,  $CaUO_4$  の存在が確認され、1600 °C 酸化雰囲気では  $UO_2$  固溶体に加え、写真に示すようなガラス光沢が確認された。これを SEM-EDX で観察したところ、 $(Ca_zZr_yU_{(1-y-z)})O_{2+x}$  といった固溶体が  $SiO_2$  から成るシリカガラスに覆われていることが分かった。また、1600 °C 還元雰囲気では、 $UO_2$  固溶体と  $ZrO_2$  と  $Ca$  の固溶体が確認されたがガラス光沢は見られなかった。これらの試料を用いた溶出試験では、アクチノイドの溶出率は最大で 0.2 % 程度と極めて低い値となった。熱処理温度 1200 °C、酸化雰囲気中で調製したデブリでは  $UO_2$  の一部が溶解性の高い  $U_3O_8$  へと酸化されたため、含まれるアクチノイドの溶出率が還元雰囲気中のデブリと比べ高い値となった。一方、1600 °C で調製したデブリでは逆の傾向が見られ、酸化雰囲気試料からの溶出率は還元雰囲気試料に比べ低い値となった。これは酸化雰囲気下では、ガラス化した  $SiO_2$  によって  $UO_2$  固溶体が被覆されるが、還元雰囲気下ではガラス化が起らなかったためと考えられる。



(写真) 1600 °C、酸化雰囲気中で調製した模擬 MCCI デブリ

**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。

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

<sup>1</sup>IMRAM Tohoku Univ., <sup>2</sup> Dept of Nuclear Engineering, Kyoto Univ.