

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礎研究

(8) MCCI デブリのガラス固化に関する予察的検討

Basic Study on actinide leaching and waste management of MCCI debris

(8) Study on vitrification of MCCI debris

*児玉雄二¹, 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

¹京大院・工、²東北大多元研

燃料成分として UO_2 、コンクリート成分として CaO および SiO_2 、燃料被覆管の酸化物として ZrO_2 を用い、これらを所定の比率で高温加熱処理した模擬 MCCI デブリを調製した。さらに、得られた模擬デブリにガラス主成分としての SiO_2 、 B_2O_3 、 Na_2O を加えて大気雰囲気下で高温加熱処理したガラス固化試料を調製した。これに中性子照射して核分裂生成物 (FP) を生成し、水に浸漬した際の核種の溶出挙動を評価した。

キーワード: MCCI デブリ、ガラス固化、核分裂生成物、溶出挙動

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所事故において、炉心溶融に至った燃料の一部は格納容器下のコンクリート等と接触し、MCCI (Molten Core Concrete Interaction) デブリが形成されたと考えられている。同デブリはコンクリート構成元素を含むことから、健全な二酸化ウランと比して水への溶解性が高くなる可能性が懸念されるため、最適な処理・処分方法について様々な角度から検討する必要がある。再処理プロセスで生じる高レベル放射性廃液の安定化技術であるガラス固化は、種々の放射性核種の地下水への溶出を抑制する効果があり、燃料デブリの処理法としても検討に値すると考えられる。そこで本研究では、模擬 MCCI デブリ (以下、模擬デブリ) を調製し、ガラス固化した際の核種の水への溶解性について、幾つかの事例検討を行った。

2. 実験

模擬デブリは、例えば UO_2 、 CaO 、 SiO_2 の混合物を酸化雰囲気 (2% O_2)、 1200°C で加熱し、 CaUO_4 (cubic+trigonal) を得た。得られた模擬デブリにガラス成分 (SiO_2 、 B_2O_3 、 Na_2O) を 95wt% (GC05) および 85wt% (GC15) の含有率で乳鉢を用いて磨砕混合したものをアルミナ坩堝に入れて、大気雰囲気下で 4 時間、 1200°C で加熱した。炉冷後、目視および XRD よりガラス固化の進行を確認した。さらに京大複合研にて試料を熱中性子照射し、 γ 線スペクトル法により生成核インベントリを測定した後、中性 pH の水溶液にガラス固化試料を浸漬した。なお比較のために、ガラス固化していない(未処理)試料も用いた。所定時間(t)振とうの後、浸漬液の一部を孔径 $0.45\mu\text{m}$ のメンブランフィルタでろ過した。U 濃度を ICP-MS で測定するとともに、蒸発乾固して点線源とした試料の放射能 $A_M(t)$ を測定した。得られた結果から、 $r_M(t) = A_M(t) / A_{iM}$ の関係に基づいて核種 M の溶出率 $r_M(t)$ [1] を算出し、さらに U の溶出率 r_U で規格化した (以下、ウラン規格化溶出率 R_M)。

3. 結果と考察

結果の一例として、ガラス固化試料における模擬デブリの含有率が 5wt% (GC05)、15wt% (GC15) および未処理試料の外観および R_M を Fig.1 に示す。外観から、MCCI デブリとガラス成分との溶解反応の結果、生成物の性状は未処理のそれとは異なることが分かった。また、ガラス固化試料の R_M 値は、未処理試料よりも 1 桁程度低下した。マトリクスウランの溶出に対して FP 核種の溶出抑制が示唆された。このことから MCCI デブリのガラス固化処理が FP 核種の溶出抑制に有効であると期待される。発表当日は、他の模擬デブリ試料の結果と共に核種のウラン規格化溶出率についてさらに言及し、固相の状態との関連についても議論する予定である。

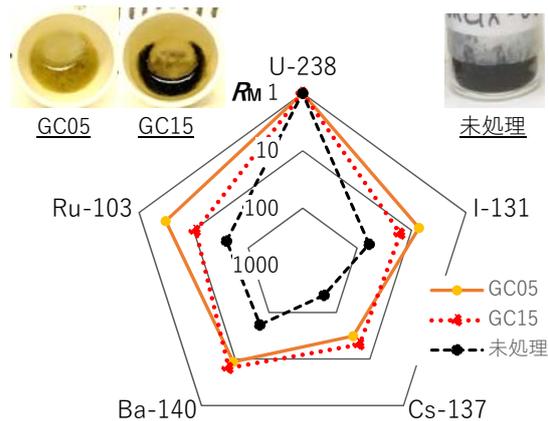


Fig. 1 ガラス化処理後の外観とウラン規格化溶出率 $R_M(t)$ ($t = 4$ 週間)

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礎研究」の助成を受けて実施したものです。

参考文献: [1] T. Sasaki, Y. Takeno, T. Kobayashi, A. Kirishima, N. Sato, Leaching behavior of gamma-emitting fission products and Np from neutron-irradiated UO_2 - ZrO_2 solid solutions in non-filtered surface seawater. J. Nucl. Sci. Technol., 3 (2016) 303-311.

*Yuji Kodama¹, Takayuki Sasaki¹, Taishi Kobayashi¹, Daisuke Akiyama², Akira Kirishima² and Nobuaki Sato²

¹Kyoto Univ., ²Tohoku Univ.