

合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究
(5) ウラン-ステンレス鋼系模擬燃料デブリからの核種溶出挙動評価－照射法と添加法

Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

(5) Leaching behavior of nuclides from simulated fuel debris in the UO₂-SS system - Irradiation or addition method

*佐々木隆之¹, 児玉 雄二¹, 小林 大志¹, 秋山 大輔², 桐島 陽², 佐藤 修彰²,

渡邊 雅之³, 熊谷 友多³, 日下 良二³

¹京大院・工, ²東北大多元研, ³JAEA

抄録：ウラン-ステンレス鋼系模擬燃料デブリを調製した。試料中の FP は、熱中性子照射による U 核分裂または非放射性元素の添加により導入し、人工海水や純水に浸漬した。照射法と添加法により導入した FP のインベントリに対する溶出率を評価し、その溶解挙動の解釈を試みた。

キーワード：合金デブリ，核分裂生成物，溶出挙動，照射法，添加法

1. 緒言 東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故で生じた燃料デブリは水と接触した状況にあり、デブリ表面での固液反応に伴う核種の溶出が進行している。またその取出しまでに時間を要することから、性状の経年変化を見通すための基礎知見の蓄積が不可欠であるが、特に合金相を含むデブリに関する知見は殆どない。本研究では同デブリからの水への溶出挙動について検討するため、二つの方法により合金系模擬デブリ試料を調製し、既往研究¹と同様に FP 核種の溶出挙動について検討した；1) 照射法：模擬デブリを熱中性子照射し FP を導入、2) 添加法：試料に予め FP を模擬した非放射性元素 (Co1d FP) を添加、する方法である。FP と U の溶出を関連付けて溶出挙動を比較・評価し、浸漬液性や相状態に基づいてその挙動の解釈を試みた。

2. 実験 UO₂ と SUS304 ステンレス鋼 (SUS) 等の粉末混合物を酸化的雰囲気下で加熱 (2% O₂ + 98% Ar, 1200℃, 4h) して模擬デブリを調製し、粉末 X 線回折法により固相を同定した (表 1)。主な FP は、¹³⁷Cs, ¹³¹I, ¹⁴⁰Ba, ¹⁴⁷Nd, ¹⁰³Ru, ⁹⁵Zr (照射法)、Cs, Sr, Eu (添加法) であり、液相 (0.1M NaClO₄, 純水, 人工海水) 浸漬前後の核種濃度を γ 線スペクトロメトリおよび ICP-MS で定量することで、核種 M の溶出率 r_M (試料中の初期量に対する溶出量) を r_U で除したウラン規格化溶出率 R_M で評価した。

表 1 調製した主な固相試料

試料#	初期組成	加熱後のU主固相
X0	UO ₂	U ₃ O ₈
Z0	UO ₂ +ZrO ₂ (U:Zr=1:1)	U ₃ O ₈ , U _{1-y} Zr _y O _{2+x}
S0	UO ₂ +SUS (U:Fe=1:1)	U ₃ O ₈ , UCr (Fe) O ₄
F0	UO ₂ +Fe (U:Fe=1:1)	U ₃ O ₈
C0	UO ₂ +Cr (U:Cr=1:1)	U ₃ O ₈ , UCrO ₄

3. 結果と考察

試料#X0, #Z0 および #S0 では、照射法、添加法ともに浸漬直後は Cs が U より優先的に溶出 ($R_{Cs} \approx 10^3$) し、その後 R_{Cs} 値は時間とともに低下した。固相表面にある易溶性核種は浸漬後直ちに溶出するが、その後は U 溶解が律速反応となることが示唆された。2 価の Ba, Sr は Cs と同様に U より優先的に溶出する一方で、3 価 Nd, Eu は U との調和溶解の傾向が強いことが分かった。またその時 r_U は純水 < 過塩素酸 Na 溶液 < 海水の順であり、浸漬液に含まれる陰イオンの錯生成などの影響が見られた。このとき R_{Cs} や R_{Sr} は純水 > 過塩素酸 Na 溶液 > 海水である一方、 R_{Eu} は純水 < 過塩素酸 Na, 海水、とイオンの価数により異なる傾向を示した。発表では、照射法および添加法で得られた固相試料からの核種の溶出挙動について、固相中での存在状態や、液相における化学状態と関連付けて報告する予定である。

【謝辞】 本研究は、日本原子力研究開発機構・廃炉国際共同研究センターの「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の一部として実施した。

References : [1] 坂本, 佐々木ら, 1004, 原子力学会 2018 年春の年会.

*Takayuki Sasaki¹, Yuji Kodama¹, Taishi Kobayashi¹, Daisuke Akiyama², Akira Kirishima², Nobuaki Sato², Masayuki Watanabe³, Yuta Kumagai³, Ryoji Kusaka³; ¹ Kyoto Univ., ² Tohoku Univ., ³ Japan Atomic Energy Agency.