

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 (13) 模擬デブリからの FP 核種の溶出挙動評価

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

(13) Leaching behavior of FPs from the simulated debris

*佐々木隆之¹, 頓名龍太郎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, ²東北大, ³JAEA

合成したウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリを水に浸漬し、模擬デブリからの核分裂生成物(FPs)およびウランの溶出率を測定し、安定性評価を行った。また、溶出後の核種の溶存状態について評価した。

キーワード: 燃料デブリ, 核分裂生成物, 溶出挙動

1. 緒言

福島第一原発炉内では、SUS 配管や圧力容器等の構造材と溶融した燃料や被覆管成分が高温で反応し、合金相を含む燃料デブリが形成されたとみられる。本報告では、 UO_2 -Zr-SUS 系等の模擬デブリを、熱中性子照射により核分裂生成させる照射法、および、非放射性元素を添加する添加法¹⁾により合成し、これを経年変化処理として水浸漬した試験の結果を報告する。浸漬による模擬デブリの構造変化の有無や、模擬デブリに含まれる FPs や U の溶出率を測定し、ここから模擬デブリの化学的安定性評価を行った。核種のコロイド生成について評価するため、ろ過フィルタ孔径依存性やサイズ排除クロマトグラフィ(LC)と ICP-MS 法を組み合わせた粒径分布解析を実施した。

2. 実験

UO_2 と SUS304 粉末および Zr 金属粉末をモル比 ($\text{U}:\text{Fe}+\text{Cr}+\text{N}:\text{Zr}$) が 1:1:1 または 1:1:0 となるよう混合し、Ar 雰囲気 [試料名略号 G] または 2% O_2 雰囲気 [O] で、1200°C [2] および 1600°C [6] で x 時間 [x; 1-8] 加熱し模擬デブリを合成した。これを過塩素酸 Na 水や海水に一定期間浸漬、FPs および U の溶出率を評価した。さらに、nm~数百 nm の孔径を有する限外ろ過フィルタやサイズ排除クロマトグラフィ用カラムにより上澄み(液相)をろ過し、ろ液に含まれる元素濃度を ICP-MS により測定、コロイド生成の有無を確認した。

3. 結果と考察

本プロジェクトで調製した試料の多くは様々な酸化物相や金属相の混合物であるものの、溶出率等のデータを系統的に蓄積することができた。熱力学的解釈等によるより定量的な議論には、単相試料の調製やその溶解挙動について更なる検討が必要である。以下、成果例として添加法試料 [C] の結果を示す。 UO_2 と SUS304 粉末および Zr 金属の混合粉末 [A] を Ar 雰囲気 1200°C で加熱した試料(試料名 CAG2x)の UO_2 相は加熱前後で格子定数に変化はなく、Zr、SUS 成分との顕著な反応は確認されなかった。2% O_2 雰囲気 1200°C で加熱したとき(CAO2x)は、 UO_2 相の酸化が進行し、水浸漬した際のウランの溶解が明らかに促進された。一方、Ar 雰囲気または 2% O_2 雰囲気 1600°C で加熱した試料(CAG6x, CAO6x)では Zr(IV)の UO_2 相への固溶が進行し、Zr を含まない UO_2 -SUS 系 [S] 模擬デブリ(CSG6x)よりウランの溶解が抑制された。Eu も同様に溶解が抑制され、一部液相で Eu コロイド生成が示唆された(限外ろ過)。一方、Cs, Sr は固相状態によらずその殆どが溶解した。限外ろ過法の結果は、Cs, Sr は水とイオンとしての溶存を示唆したが、LC-ICP-MS 法では、Sr が疑似コロイドを生成している可能性も示唆された。

1) 2021 年日本原子力学会春の年会, 3I12, 佐々木ら。

【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。

*Takayuki Sasaki¹, Ryutaro Tonna¹, Taishi Kobayashi¹, Daisuke Akiyama², Akira Kirishima², Nobuaki Sato², Masayuki Watanabe³, Yuta Kumagai³, Ryoji Kusaka³, ¹ Kyoto Univ., ²Tohoku Univ., ³JAEA.