

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

(14) 模擬デブリからの MA 核種の溶出挙動評価および全体まとめ

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

(14) Leaching behavior of actinides from the simulated debris and project summary

*桐島 陽¹, 秋山 大輔¹, 佐藤 修彰¹, 佐々木 隆之², 渡邊 雅之³, 熊谷 友多³, 日下 良二³
¹東北大, ²京大, 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純水や海水に一定期間浸漬後、模擬デブリからの U, Np, Am の溶出率を測定して安定性評価を行った。また、シリーズ発表を行ったプロジェクト全体のまとめを説明する。

キーワード: 燃料デブリ, マイナーアクチノイド, 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熔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、 $\text{UO}_2\text{-Zr-SUS}$ 系等の模擬デブリを高温熱処理により合成し、これを経年変化処理として純水や海水への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の変化の有無や、模擬デブリに含まれる U, Np, Am 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。加えて、プロジェクトで得られた成果の全体像についてもまとめて紹介する。

2. 実験

^{237}Np および ^{241}Am の MA トレーサーを添加した UO_2 と SUS304 粉末および Zr 金属粉末をモル比(U : Fe+Cr+Ni : Zr) が 1:1:1 または 1:1:0 となるように秤量し、摩砕混合した。これを管状電気炉に入れて、Ar(6N)雰囲気または 2% O_2 雰囲気中で、1200℃、1600℃および 1700℃で加熱し模擬デブリを合成した。この模擬デブリを純水および海水に一定期間浸漬し、 ^{238}U , ^{237}Np , ^{241}Am の溶出率を α スペクトロメトリで評価した。また、浸漬前後の模擬デブリの結晶構造を粉末 X 線回折(XRD)により評価し比較した。



写真：模擬デブリ($\text{UO}_2\text{-Zr-SUS}$, 1700℃, in 2% O_2)

3. 結果と考察

最長で 400 日間の浸漬試験を行い、浸漬前後の模擬デブリの XRD パターンを比較したところ顕著な変化は観察されず、この模擬デブリの主要な結晶相は水中で化学的に安定であることが分かった。また、模擬デブリ原料として Zr 金属が含まれる場合、2% O_2 雰囲気 1600℃でみかけの相平衡状態まで加熱を行っても U_3O_8 相があらわれず、 UO_2 固溶体相が安定に存在した。こ

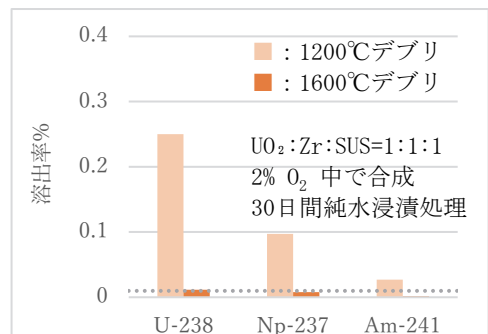


図1 合成温度の異なる模擬デブリからの核種溶出率比較

の結果、 $\text{UO}_2\text{-Zr-SUS}$ 系模擬デブリからのアクチノイド溶出は $\text{UO}_2\text{-SUS}$ 系に比べ抑制された。さらに、 $\text{UO}_2\text{-Zr-SUS}$ 系では 1600℃で合成を行った場合、Zr(IV)の立方晶 UO_2 への固溶がより進行し、この結果、図1に示すように 1200℃で合成した模擬デブリに比べてアクチノイドの溶出が顕著に抑制されることが分かった。このほか、 $\text{UO}_2(\text{s.s.})$ 固溶体の格子定数と各核種の溶出率の相関傾向についても報告を行う。

【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。

* Akira Kirishima¹, Daisuke Akiyama¹, Nobuaki Sato¹, Takayuki Sasaki², Masayuki Watanabe³, Yuta Kumagai³, Ryoji Kusaka³

¹Tohoku Univ., ²Kyoto Univ., ³JAEA,