

福島第一原子力発電所で採取された固形分を含む滞留水の α 核種分析

(5) 3号機滞留水中のPu, Amの存在状態の推定

α -emitting nuclides analysis of the stagnant water including sediments in Fukushima Daiichi NPS

(5) Estimation of Pu and Am behavior in the stagnant water of Unit #3 reactor

*二田 郁子^{1,2}, 比内 浩^{1,2}, 北脇 慎一^{1,2}, 駒 義和^{1,2}

¹JAEA, ²IRID

福島第一原子力発電所(1F)の3号機原子炉建屋にて採取された滞留水について、孔径10~0.02 μm のフィルタで順にろ過し、それぞれ放射能分析を実施した。大部分のPu, Amは固形分に存在し、わずかにろ液からも検出された。このPu, Amの存在状態について、ろ液のpH及び酸化還元電位の測定値、並びにイオン交換試験をもとに推定した。

キーワード：福島第一原子力発電所，滞留水， α 核種，放射能分析

1. 緒言

1Fの原子炉建屋の滞留水から比較的高い α 核種濃度が検出され、 α 核種を除去する設備の設計を進めるために α 核種の存在状態の把握が必要である^[1]。3号機原子炉建屋の格納容器に隣接する主蒸気隔離弁(MSIV)室では、格納容器内の汚染水が漏洩して滞留している。底部に堆積する固形分(スラッジ)を含む滞留水試料の放射能等を分析し、Pu, Amの化学状態を考察した。

2. 分析

滞留水試料30 mLを孔径10, 1, 0.1, 0.02 μm のフィルタで順にろ過し、各フィルタの回収物(スラッジ)と0.02 μm ろ過のろ液を回収した。フィルタ回収物は、硝酸及び過酸化水素の混合溶液で加熱溶解し、この溶解液と0.02 μm ろ過のろ液についてPu, Am分析を行った。また、電極法にてろ液のpH及び酸化還元電位を測定した。さらに、ろ液については、陽イオン交換樹脂(DOWEX 50W8, Na⁺型)または陰イオン交換樹脂(DOWEX 1X8, Cl⁻型)とバッチ式で接触させるイオン交換試験を行った。19時間接触後にろ液を回収し、接触前後のろ液のPu, Am分析を行い、濃度を比較した。

3. 結果と考察

スラッジとろ液のPu, Am分析の結果、滞留水試料に対する濃度はPu-238が 6.9×10^2 Bq/mL, Am-241が 4.4×10^2 Bq/mLであり、ろ液にはそれぞれ 1.9×10^{-1} Bq/mL, 1.6×10^{-1} Bq/mLが検出された。スラッジ(4.0×10^{-4} g/mL)にPuとAmが優先的に移行していることが明らかとなった。ろ液のpH及び酸化還元電位は、それぞれ6.7, 533 mV(SHE, at 25°C)であり、滞留水は中性で酸化雰囲気をもつことが分かった。純水や海水中におけるアクチノイドの化学形態のpH, 酸化還元電位依存性^[2]と比較すると、PuはIV価またはV価, AmはIII価で存在しうる領域に相当した。

ろ液のイオン交換試験において、Pu, Amともに、陰イオン交換樹脂との接触後に濃度の減少はなかったが、陽イオン交換樹脂と接触するとPuは接触前の0.4%以下に減少し、Amは検出下限値未満となった(図1)。これらのことから、滞留水中において、スラッジに吸着・付着しない溶解状態のPu, Amがわずかに存在し、また、それらが陽イオンであることが示唆された。Pu(IV)の加水分解反応における溶解度積 $K_{sp} = -56$ ^[3]を用いると、ろ液中のPu濃度は可溶性[Pu^{4+}]に比べて大きく、Puの溶存状態として、より溶解性の高いPu(V)O₂⁺の存在、滞留水中に共存する陰イオン種との錯体形成や放射線等による影響を考慮する必要がある。

※本件は、経済産業省/令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金及び令和4年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金に基づく「固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発」に係る補助事業の成果の一部である。

参考文献

[1] 東京電力, 「滞留水処理等の進捗状況について」, 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第106回), 2022年9月29日.

[2] Choppin, Actinide speciation in the environment, J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 273, No. 3, 695-703, 2007.

[3] Choppin, Actinide Behaviour in Neutral Media, Nuclear Site Remediation, Chapter 4, 48-62, 2001.

*Ayako Nitta^{1,2}, Hiroshi Hinai^{1,2}, Shinichi Kitawaki^{1,2} and Yoshikazu Koma^{1,2}

¹ Japan Atomic Energy Agency, ² International Research Institute for Nuclear Decommissioning

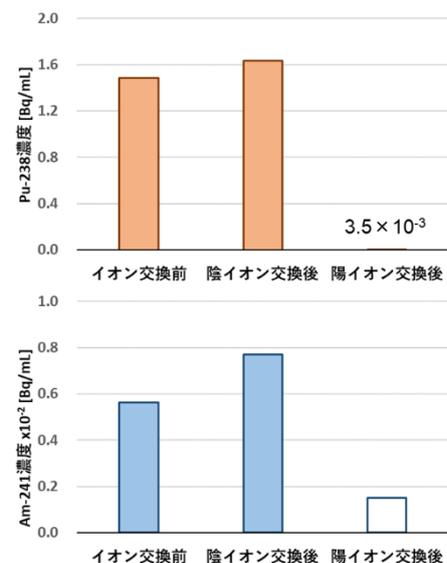


図1 イオン交換樹脂との接触前後のろ液のPu, Am濃度

*白抜きは検出下限値未満を示す