第 11 回（平成 27 年度）日本原子力学会関西支部「若手研究者による研究発表会」発表要旨

氏名　　所属
竹野佑　　京都大学工学研究科

発表題目

中性子照射した模擬燃料デブリからのウランおよび FP の溶出挙動

(英訳)

Leaching behavior of uranium and FPs in simulated fuel debris to seawater

発表要旨

１．緒言

福島第一原発事故において炉心が溶融して生成した燃料デブリが一次冷却水や注入水（海水を含む）と接触し、FP等を含む高放射能汚染水となった。汚染水および処理水の放射能分析では採取場所によって核種の種類･濃度が異なることが明らかになりつつあるが、処理･処分方法の検討には、更なるデータの蓄積とともに、それらの溶出挙動の理解が不可欠である。本報告では、模擬燃料デブリとしてUO_2-ZrO_2固溶体を用いた海水への溶出実験について、前回の約160日間の浸漬試験[1]で検出できなかったヨウ素やネプツニウムを含む短半減期核種に着目し、溶出率の評価および海水中での化学状態を検討した。

２．実験

U/Zrモル比を90/10、50/50および10/90と変えたUO_2-ZrO_2擬二元系酸化物を、表1に示す雰囲気において1473Kで加熱処理し、固溶体とした後、京大原子炉で熱中性子照射（6.7×10^{15} n･cm^{-2}）した。約2週間後、γ線核種をGe半導体検出器で分析し、インベントリを評価した。この粉末状の酸化物試料を、PP製容器に入れた無ろ過実海水50ml（南相馬市小高区海岸にて採取）に浸漬し、室温で静置した。所定の期間毎に上澄み5mLを孔径0.45μmおよび3kDaのフィルタで固液分離し、ろ液を蒸発濃縮後、試料中のγ線核種を定量し、核種の溶出率を評価した。なお、ウランはICP-MSにより定量した。

表 1 浸漬実験に用いた模擬デブリ試料

#	初期組成	mol%	雰囲気(+Ar)
1	UO_2-ZrO_2	90:10	10%H_2
2		50:50	
3		10:90	
4	UO_2-ZrO_2	90:10	2%O_2
5		50:50	
6		10:90	
7	UO_2	-	10%H_2
8			2%O_2

３．結果と考察

浸漬液中にはアルカリ土類金属(Ba-140) や４価金属(Zr-95)など複数種のFP、およびウランやPu-239の親核種であるNp-239などのアクチニド元素が確認され、多くの核種の浸漬試料からの溶出率は時間とともに増加する傾向が見られた。酸化処理した試料の溶出率は還元処理したそれらよりも高く、U/Zrモル比が90/10および50/50試料にはU_3O_8相が見られたが、ZrO_2が過剰となる10/90試料ではウランの酸化が抑制されており、試料の相状態が核種の溶出率に影響することが分かった。また、今回の2週間浸漬試料に溶出した核種にはろ過孔径依存性は見られなかったが、前回の160日間浸漬試料ではZr-95およびRu-103の一部は3kDaフィルタでろ別されており、コロイド態の形成には時間影響がある可能性が示唆された。

本研究は、科学研究費(基盤研究(S)24226021)の一環として実施した。ここに記して謝意を表す。

[1]竹野ら,H15,2014年春の年会

□総論　□放射線工学と加速器・ビーム科学　□核分裂工学 ■核燃料サイクルと材料　□核融合工学　□保健物理と環境科学　□その他（　　）	「分類項目」コード番号*		
	404-2		