

燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発

(32) 廃棄物処分における燃料デブリの安定性研究-(U, Zr, Ca)O_x 試料の溶解挙動

Development of ultramicro analysis technology for fuel debris analysis

(32) Study of fuel debris stability for geological disposal – Behavior of (U, Zr, Ca)O_x dissolution*出光 一哉¹, 稲垣 八穂広², 有馬 立身², 小無 健司¹, 永井 康介¹, 樋口 徹³, 大内 敦³, 三浦 祐典³¹東北大学・金研, ²九州大学・工, ³NFD

誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS/MS) は、燃料デブリを効率的かつ高精度に分析する手法として期待されている。本研究では、模擬燃料デブリとして(U, Zr, Ca)O_x 試料を用いてマイクロチャンネル流水試験を行うことで、燃料デブリの保管から処分に至る過程での安定性 (浸出特性) を調査することを目的としている。

キーワード：模擬燃料デブリ、規格化浸出速度、(U, Zr, Ca)O_x

1. 緒言

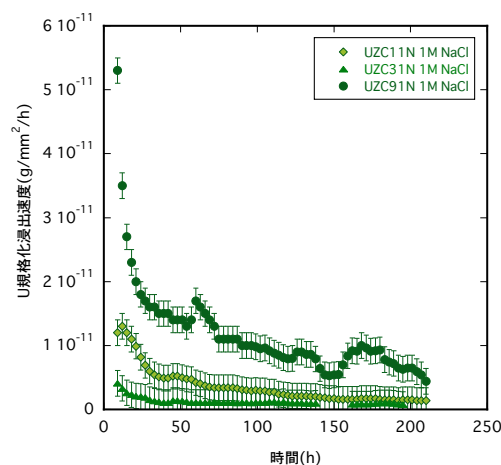
福島第一原子力発電所の廃炉において、燃料デブリを取り出し処理、処分することが課題である。上記の作業を迅速にかつ安全に行うには、燃料デブリの性状を正確に把握することが重要である。そこで、本研究では模擬燃料デブリである(U, Zr, Ca)O_x 試料について、液性一定条件での測定が可能なマイクロチャンネル流水試験を行うことで、環境条件に存在する溶液に対する燃料デブリの保管から処分に至る化学的耐久性を調査することを目的としている。

2. 実験方法

試料はNFDにて作製された(U, Zr, Ca)O_x 試料 (U:Zr:Ca=9:0.85:0.15, 3:0.85:0.15, 1:0.85:0.15 モル比)、反応溶液は1 M NaCl 溶液及び超純水を用いた。マイクロチャンネル流水試験法において試料と反応溶液を接触させ、それぞれの試験で約3時間毎に接触液をサンプリングし、試料から溶出したUの元素濃度をICP-MSによって測定することで、試料の安定性を評価した。

3. 結果

本試験で用いた(U, Zr, Ca)O_x 試料はすべて立方晶単相であり、昨年の報告で用いたカルシウムを含まない試料がこの相と正方晶ジルコニア相から構成されていたこととは異なる。1M NaCl 溶液に対する試験結果を右図に示す。図よりUに対する規格化浸出速度は $10^{-12} \sim 10^{-11}$ g/mm²/h オーダーであり、Zr 比率が高い試料ほど小さくなった。今回の試料は全て空隙率が小さく、以前の試料よりも浸出速度が小さい。浸出試験前後の表面観察では、小径粒および縁部分からの溶解が確認された。また、1 M NaCl 溶液に対する浸出速度は、すべての試料で純水よりも小さくなった。これは、以前実施した(U, Zr)O_x 試料と同様で、(Ce, Fe)O_x とは逆の傾向であり、塩成分とウラン酸化物が試料表面に保護膜を作る可能性を示している。



謝辞

令和2年度、3年度、4年度、5年度 日本原子力研究開発機構 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業「燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発」の成果の一部を含む。

*Kazuya Idemitsu¹, Yaohiro Inagaki², Tatsumi Arima², Kenji Konashi¹, Yasuyoshi Nagai¹, Toru Higuchi³, Atsushi Ouchi³, Yusuke Miura³

¹Tohoku University, ²Kyushu University, ³NFD