

1-13 微細な燃料デブリは水中でどう変化するか — 過酸化水素やホウ酸の化学的影響を調べる —

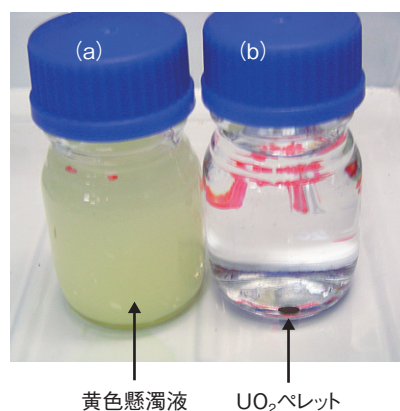


図 1-29 (a) 過酸化ウラン四水和物の黄色懸濁液と (b) 純水に浸漬した UO₂ ペレットの観察像
(a) は 10 重量% 過酸化水素水に浸漬した UO₂ ペレットから生成した過酸化ウラン四水和物の黄色懸濁液、(b) は純水に同期間浸漬した UO₂ ペレットの観察像です。UO₂ ペレットも、粉末と同様に過酸化水素により全量酸化されました。

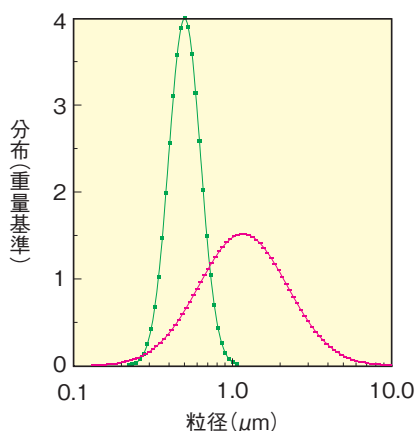


図 1-30 黄色懸濁液中の過酸化ウラン四水和物の粒度分布
---線は生成した過酸化ウラン四水和物 (pH5.6), ---線は塩酸を加えた後 (pH2.8) の粒度分布です。液の酸性度が強くなって、粒子が凝集して粒度が大きくなることは、粒子がコロイド的性質を持つことを示します。

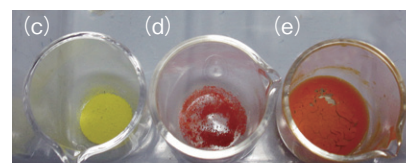


図 1-31 三酸化ウラン水和物の観察像 (c) 三酸化ウラン二水和物 (UO₃ · 2H₂O), (d) 三酸化ウラン一水和物 (UO₃ · H₂O), (e) 無水三酸化ウラン (UO₃) の観察像です。UO₃ · 2H₂O は、UO₃ の吸湿によって生成しますが、300 °C でも完全に脱水せずに UO₃ · H₂O になります。

東京電力福島第一原子力発電所事故では、高温になった燃料が被覆管や構造材とともに溶融し、一部は冷却水中に落下したと予想されます。このような急冷条件では、燃料デブリは細粒化する可能性があり、さらに酸化などで細粒化は一層進むとされています。また、燃料デブリ取出し作業の際の切削などでも微細な粉末が発生します。しかし、水中で細粒になった場合の化学的挙動はこれまで明らかにされていませんでした。

燃料デブリを冷却水中に長期間浸漬した際の化学変化と微細化の現象を検討するため、燃料デブリ成分を模擬した UO₂ を、純水、海水成分の NaCl 水溶液 (26wt%)、水の放射線分解で生成する過酸化水素水 (10wt%)、制御棒由来及び臨界防止のため添加するホウ酸水溶液 (1.64wt%) にそれぞれ浸漬し、50 °C で 1 ヶ月間静置しました。その結果、化学的变化には過酸化水素水が最も影響し、図 1-29 に示すように、全量の UO₂ が酸化して、過酸化ウラン四水和物 (UO₄ · 4H₂O) を含む黄色懸濁液が生成しました。図 1-30 に示すように、この懸濁液中の粒子の粒径は 1 μm 以下と微細で、コロイド的性質を示すことが分かりました。一方、ほかの水溶液中では

UO₂ の化学変化や微細化がほとんど起こりませんでした。

次に、赤外吸収法により浸漬物とホウ酸との化学結合性を調べました。その結果から、ホウ酸成分はデブリ取出し時にほとんど付随しないことが予想されます。さらに加熱温度や湿度による水和水変化について調べた結果、過酸化ウラン四水和物は、300 °C での加熱処理で水和水を失って橙色の三酸化ウラン (UO₃) になるものの、UO₃ は室温での吸湿により容易に水和水を持つことが分かりました (図 1-31)。

以上のように、微細な燃料デブリについて、中性子吸収材であるホウ酸との化学的親和性が低く、中性子減速材である水と結合しやすい性質があることが分かりました。なお、収納保管時等の未臨界評価は、燃料デブリに付随するホウ酸は考慮しないなど、保守的に行う予定となっています。

本研究は、原子力機構が国際廃炉研究開発機構の組合員として実施した経済産業省資源エネルギー庁からの受託事業「平成 25 年度発電用原子炉等廃炉・安全技術基盤整備事業」及び平成 25 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金」補助事業の成果の一部を含みます。

●参考文献

Otobe, H. et al., Corrosion of Uranium and Plutonium Dioxides in Aqueous Solutions, Proceedings of 2014 Nuclear Plant Chemistry Conference (NPC 2014), Sapporo, Japan, 2014, paper 10173, 11p., in USB Flash Drive.