

# 燃料デブリ中の微量核種の効率的な分析を実現

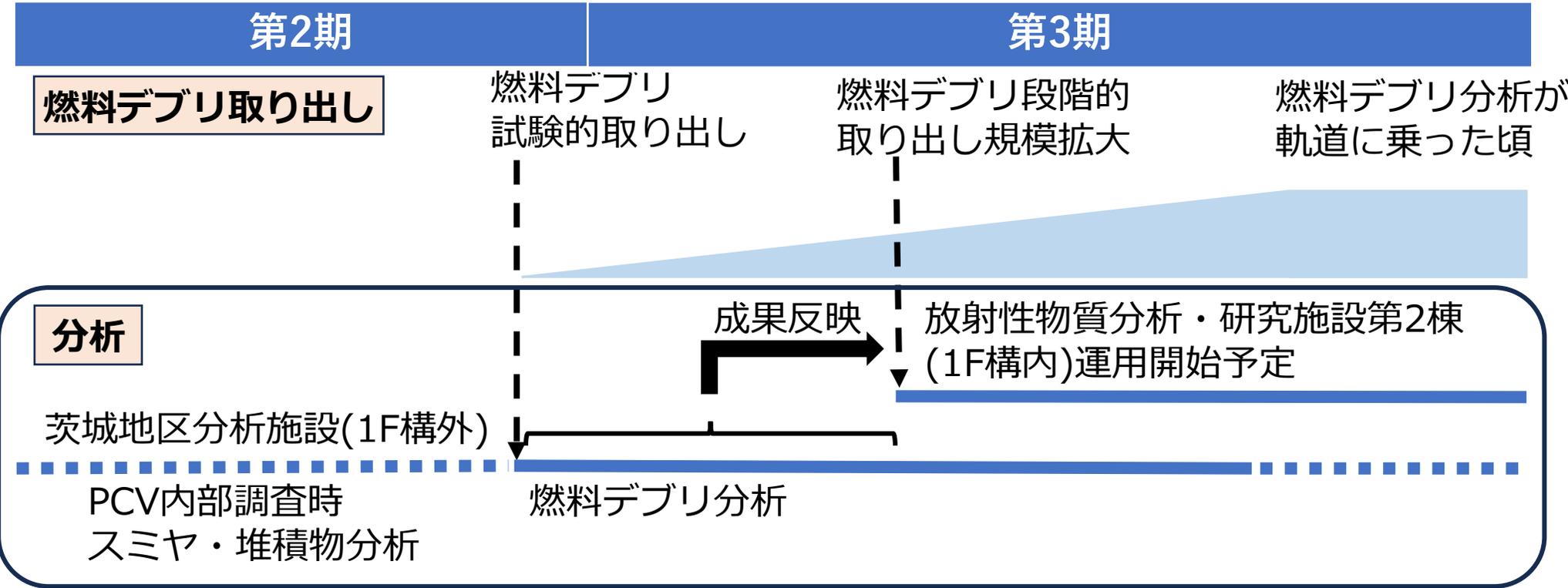
## 風間 裕行

廃炉環境国際共同研究センター(CLADS)

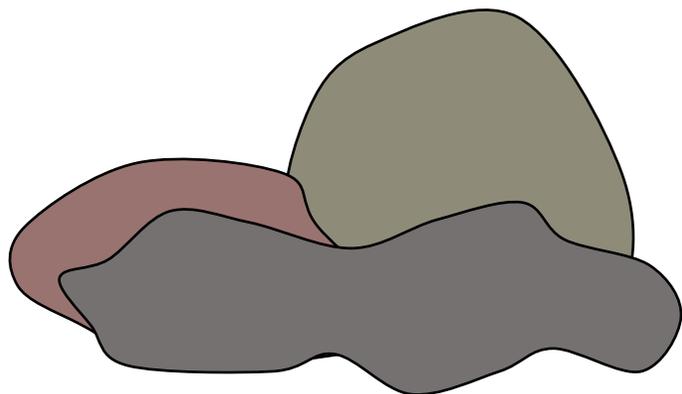
燃料デブリ研究ディビジョン 燃料デブリ取扱技術開発グループ

本報告は、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」の成果を含みます。

・中長期ロードマップ

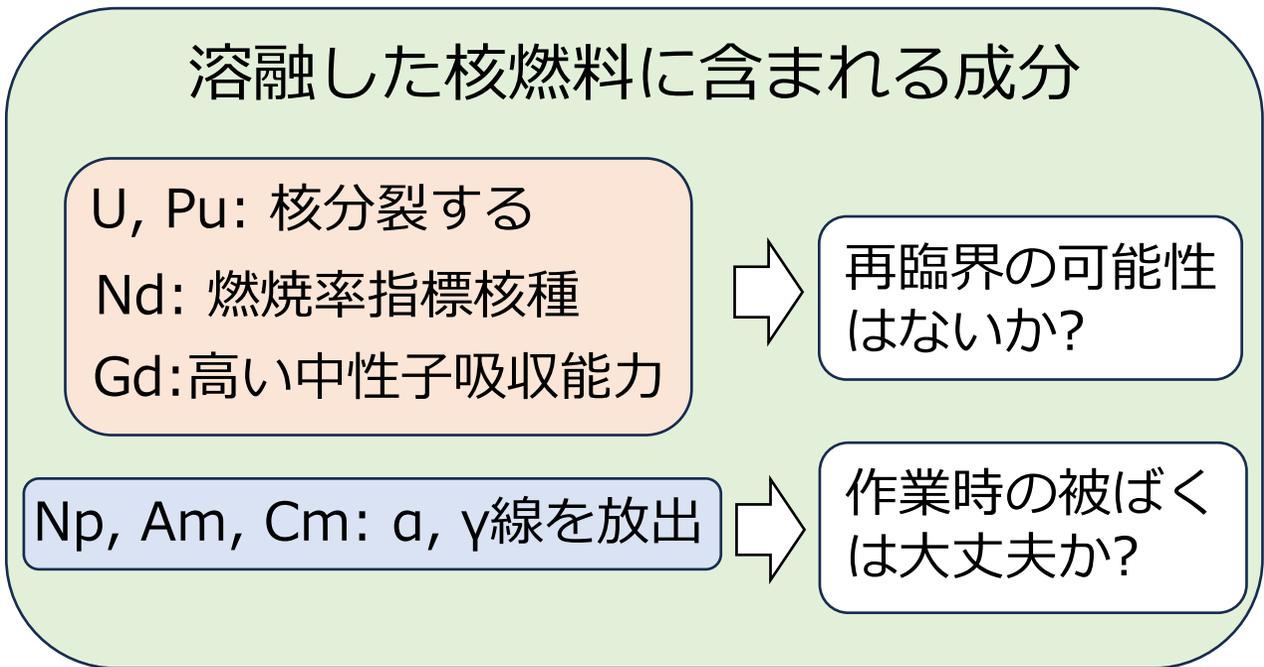


- ・燃料デブリの安全な取り出し、保管のために分析は不可欠
- ・試験的～段階的取り出しにおいて、微量の燃料デブリの分析を実施
- ・燃料デブリ中の微量核種を効率的に分析する手法の確立が重要

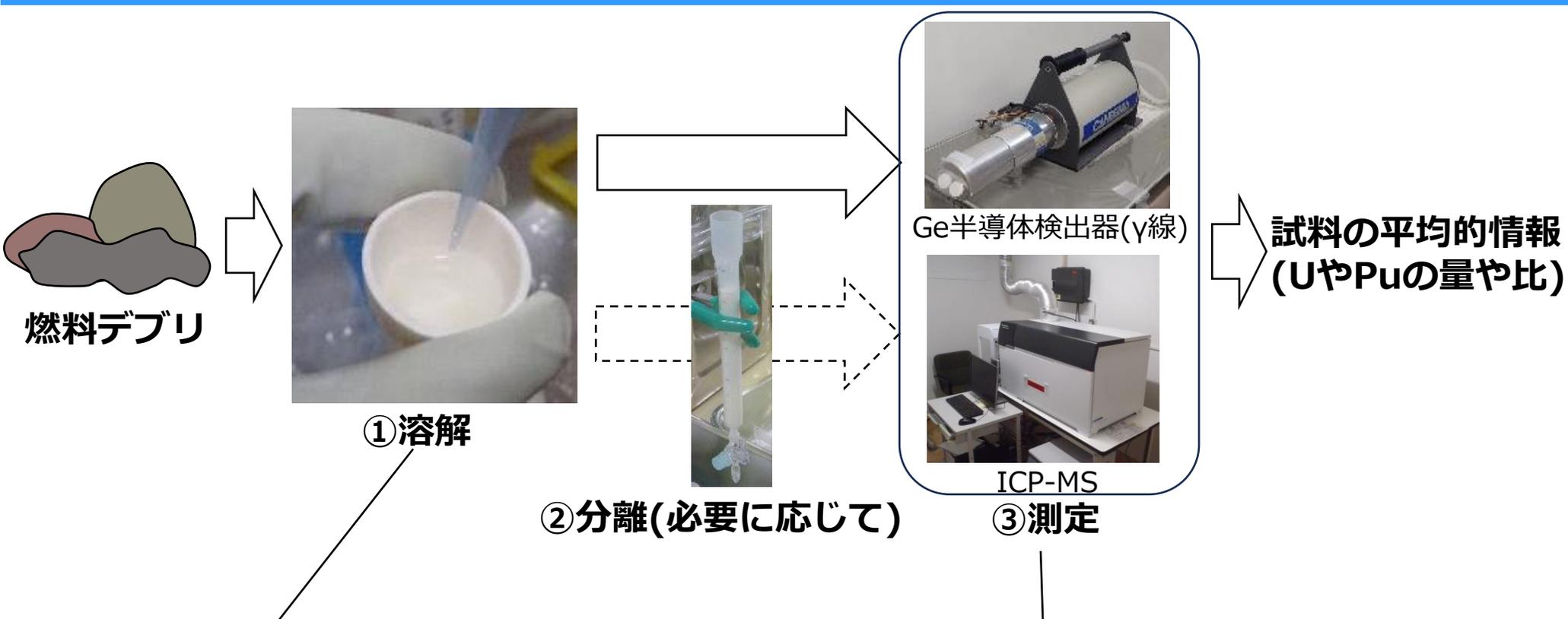


**燃料デブリ**

溶融した核燃料、被覆管、原子炉構造材、コンクリートなどから構成



燃料デブリの安全な取り出し、処理、保管に向けて、特にU、Pu、Np、Am、Cmといったアクチノイドの量や比を明らかにすることが必要



- 試料の溶解性が未知
- 溶け残りがあると、分析作業ステップが増える

可能な限り全て溶かしたい

- 放射線計測：労力と時間がかかる
- 質量分析：質量数の等しい同位体(同重体)が測定を妨害

可能な限り効率的に測定したい

未知の物質であることから様々な可能性を考えた技術開発が必要

アルカリ融解法: 試料を融剤と混合し、加熱溶融により溶けやすい状態に転換

➤ 実験条件

融剤:  $\text{Na}_2\text{O}_2$

試料量: 模擬燃料デブリ 0.1 g, 融剤 1 g

融解条件: 650 °C, 1時間

融解生成物を 6 M硝酸で溶解

➤ 模擬燃料デブリ

- 核燃料成分、被覆管成分、原子炉構造材、核分裂生成物成分、コンクリート成分を考慮
- 核燃料含有比や焼結条件をパラメータとして多様な試料を作製

融解前      融解後      ろ過後のろ紙 (溶け残りなし)

U:Zr=9:1、1400 °C、1分間-100 % $\text{H}_2$ 雰囲気で焼結した(U,Zr) $\text{O}_2$ 試料の溶解挙動。

融解前      融解後      ろ過後のろ紙 (溶け残りなし)

U:Zr=1:1、1700 °C、3時間-100 % $\text{H}_2$ 雰囲気で焼結した(U,Zr) $\text{O}_2$ 試料の溶解挙動。

融解前      融解後      ろ過後のろ紙 (溶け残りなし)

Ce $\text{O}_2$ 、Zircaloy-2、B $_4$ C、CsI、SUS304、Nd $_2$ O $_3$ 、Gd $_2$ O $_3$ を含む試料の溶解挙動。

融解前      融解後      ろ過後のろ紙 (溶け残りなし)

UO $_2$ 、ZrO $_2$ 、Fe $_3$ O $_4$ 、Nd $_2$ O $_3$ 、Gd $_2$ O $_3$ 、SiO $_2$ を1350 °C、10分間-5 % $\text{H}_2$ 中で焼結した試料の溶解挙動。

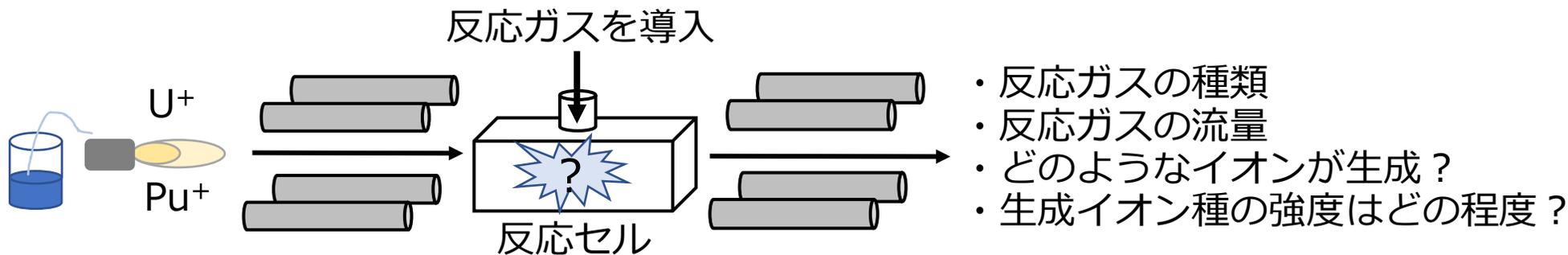
- 多様な試料性状に対応可能なアルカリ融解条件を確認
- 本法により、溶け残りがある場合の更なる溶解処理や固相分析が不要となる

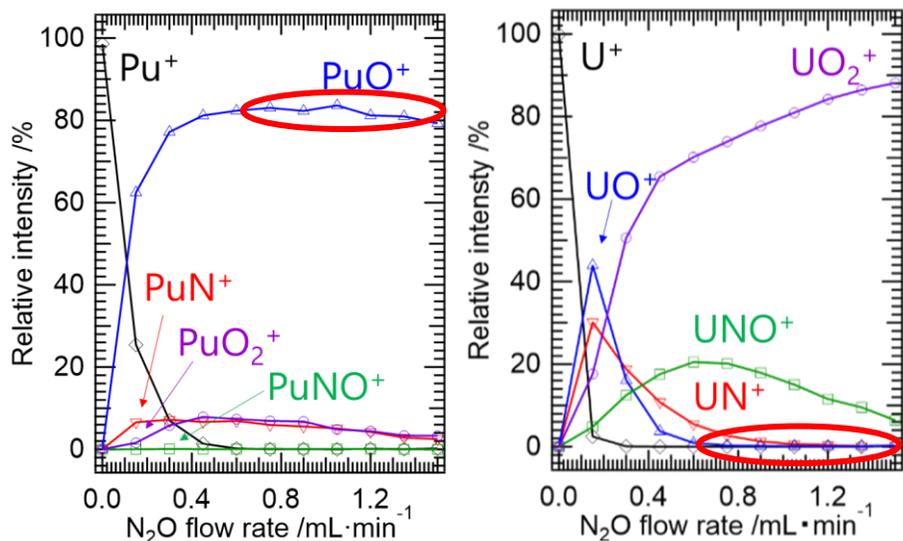
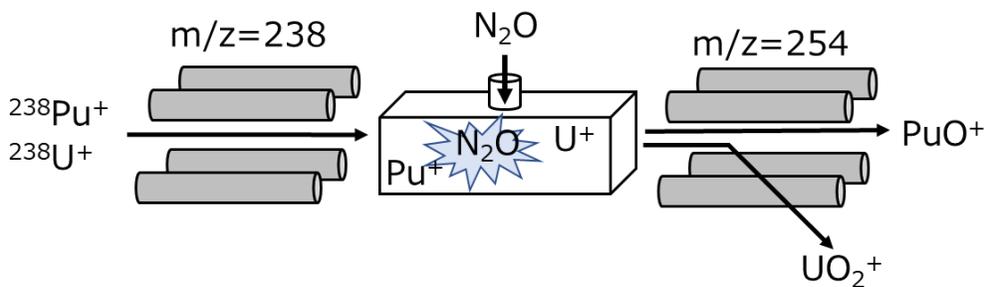
- 質量分析法が有効
- U, Pu, Np, Am, Cmは半減期が長い
  - 燃焼率指標核種( $^{148}\text{Nd}$ 等)及び中性子毒物( $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{157}\text{Gd}$ )は安定同位体

質量分析の課題：質量数の等しい同位体(同重体)が測定を妨害

$^{238}\text{U}/^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Pu}/^{242}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}/^{243}\text{Cm}$   
 $^{148}\text{Nd}/^{148}\text{Sm}$ ,  $^{155}\text{Gd}/^{155}\text{Eu}$

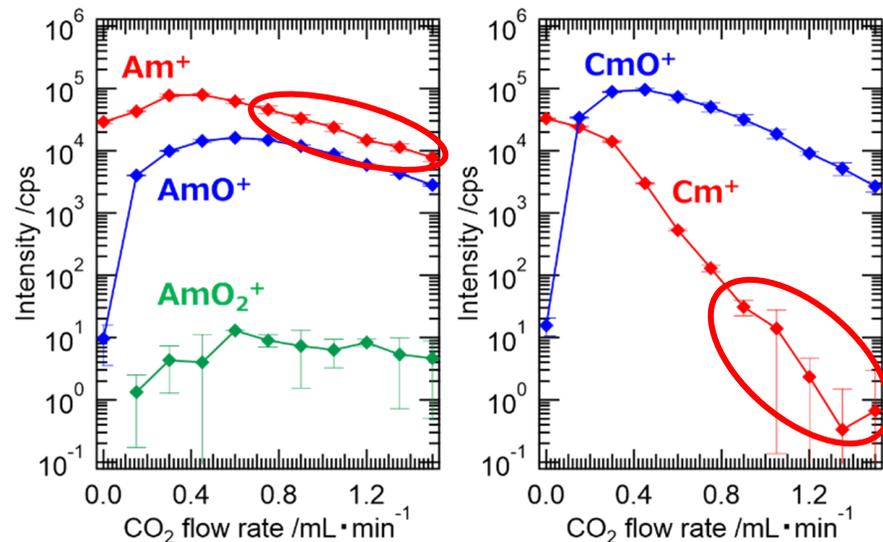
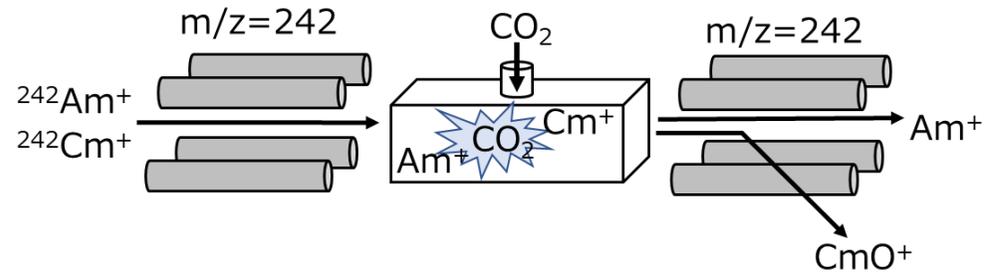
- 装置内核種分別が可能な高感度質量分析法であるICP-MS/MSを用いた手法が有効。
- 測定条件(反応ガスの種類や流量等)を明らかにする必要がある。





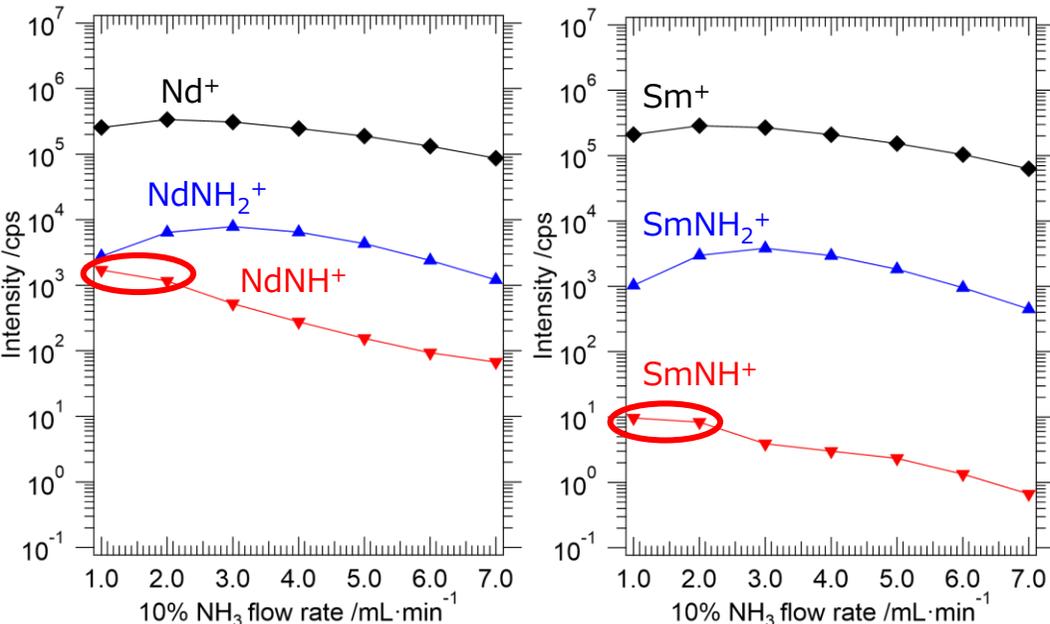
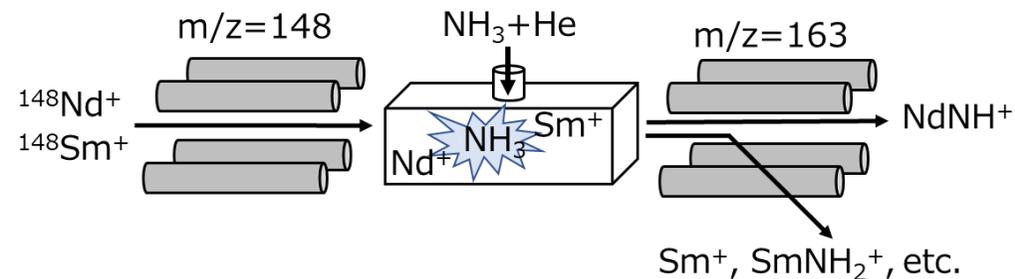
N<sub>2</sub>O流量に対するPu, Uイオン種の検出強度変化。

**PuとUの同重体を分別できる**



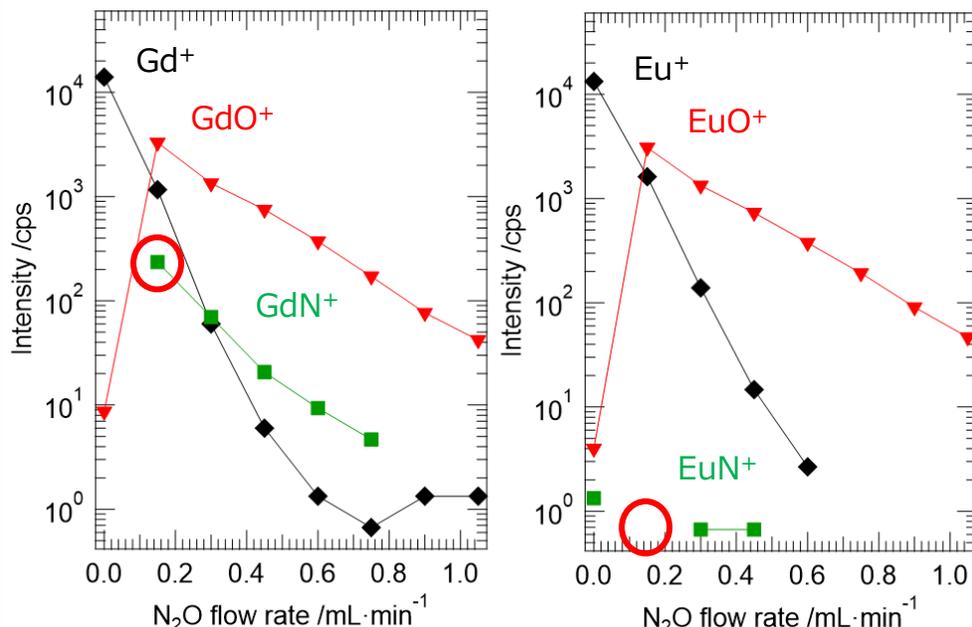
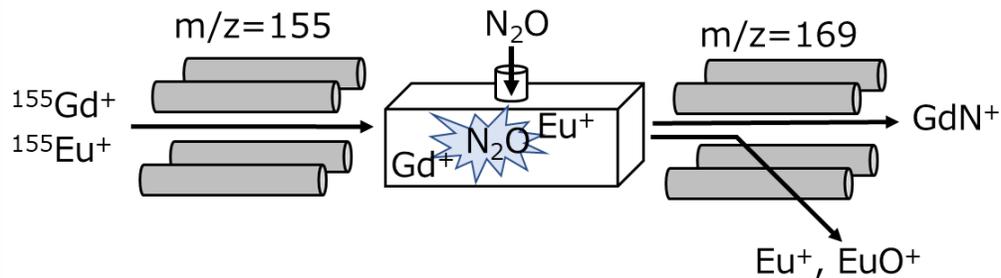
CO<sub>2</sub>流量に対するAm, Cmイオン種の検出強度変化。

**AmとCmの同重体を分別できる**



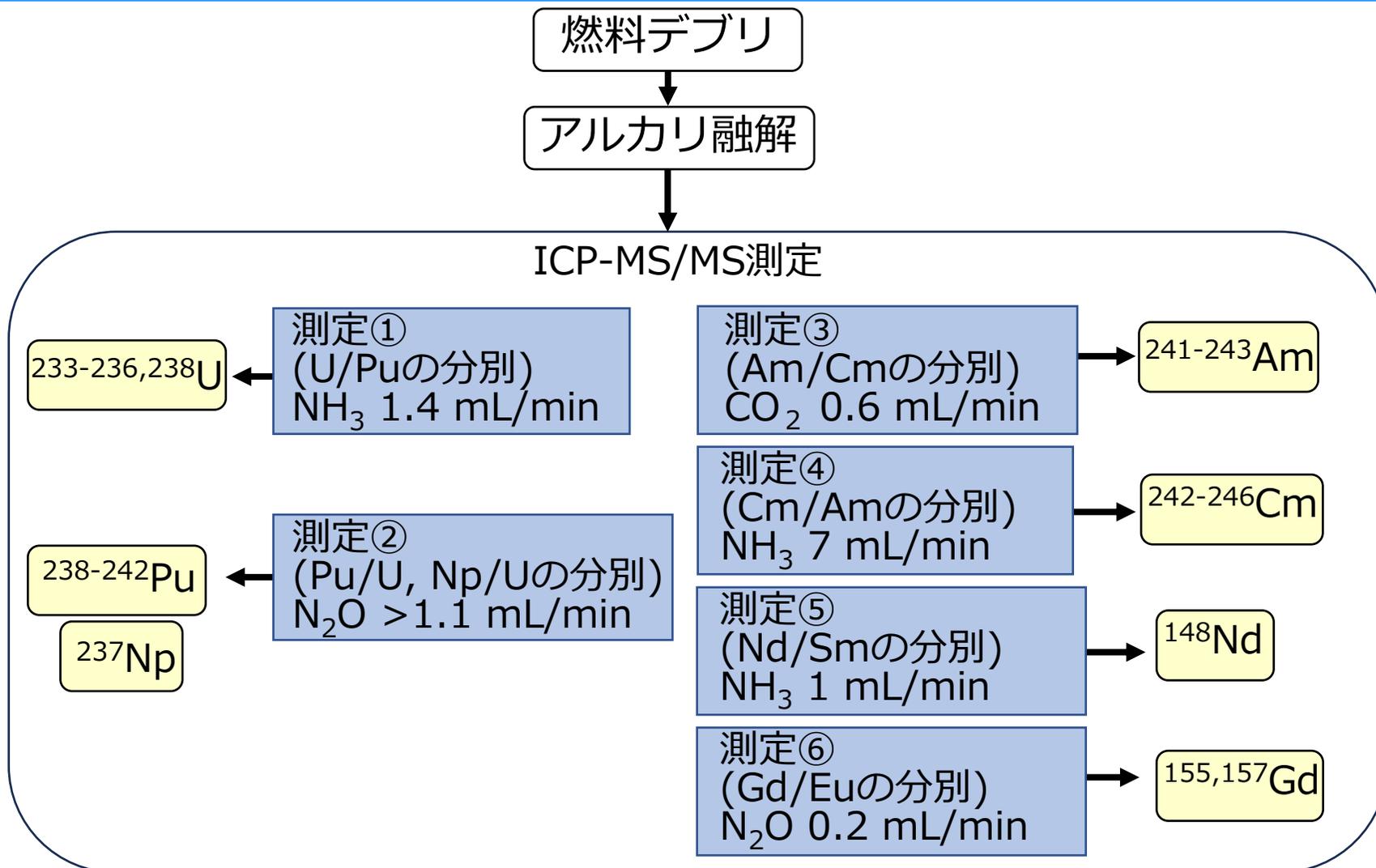
$\text{NH}_3$ 流量に対するNd, Smイオン種の検出強度変化.

**NdとSmの同重体を分別できる**



$\text{N}_2\text{O}$ 流量に対するGd, Euイオン種の検出強度変化.

**GdとEuの同重体を分別できる**

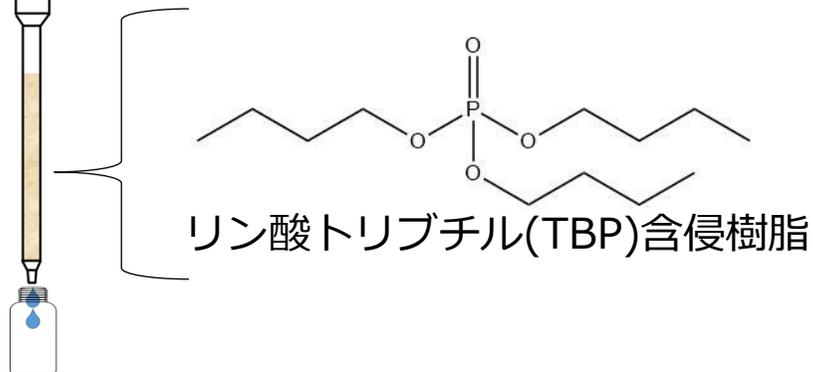


**アクチノイド核種とNd, Gdを一括で分析ができる**

## 様々な試料条件に対応可能なように、分析オプションとして化学分離法を開発

溶液中の酸化数の違いを利用して分離

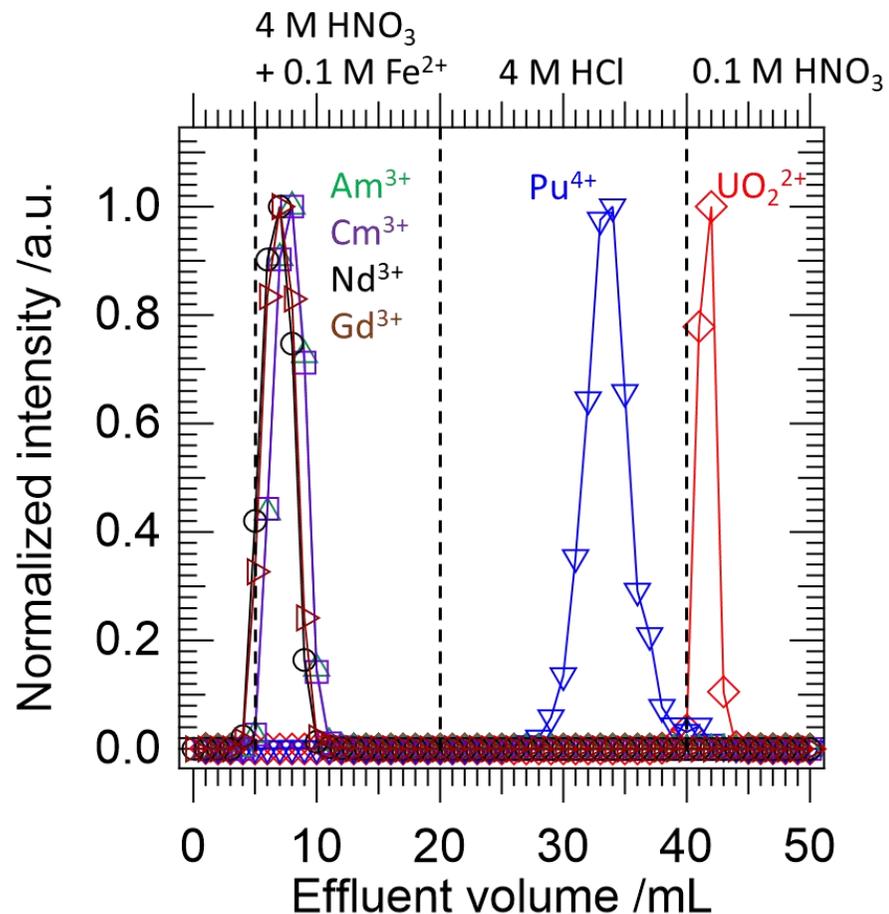
調製後の硝酸溶液中の状態  
 $UO_2^{2+}$ ,  $Pu^{4+}$ ,  $Am^{3+}$ ,  $Cm^{3+}$ ,  $Nd^{3+}$ ,  $Gd^{3+}$



吸着： $UO_2^{2+}$ ,  $Pu^{4+}$

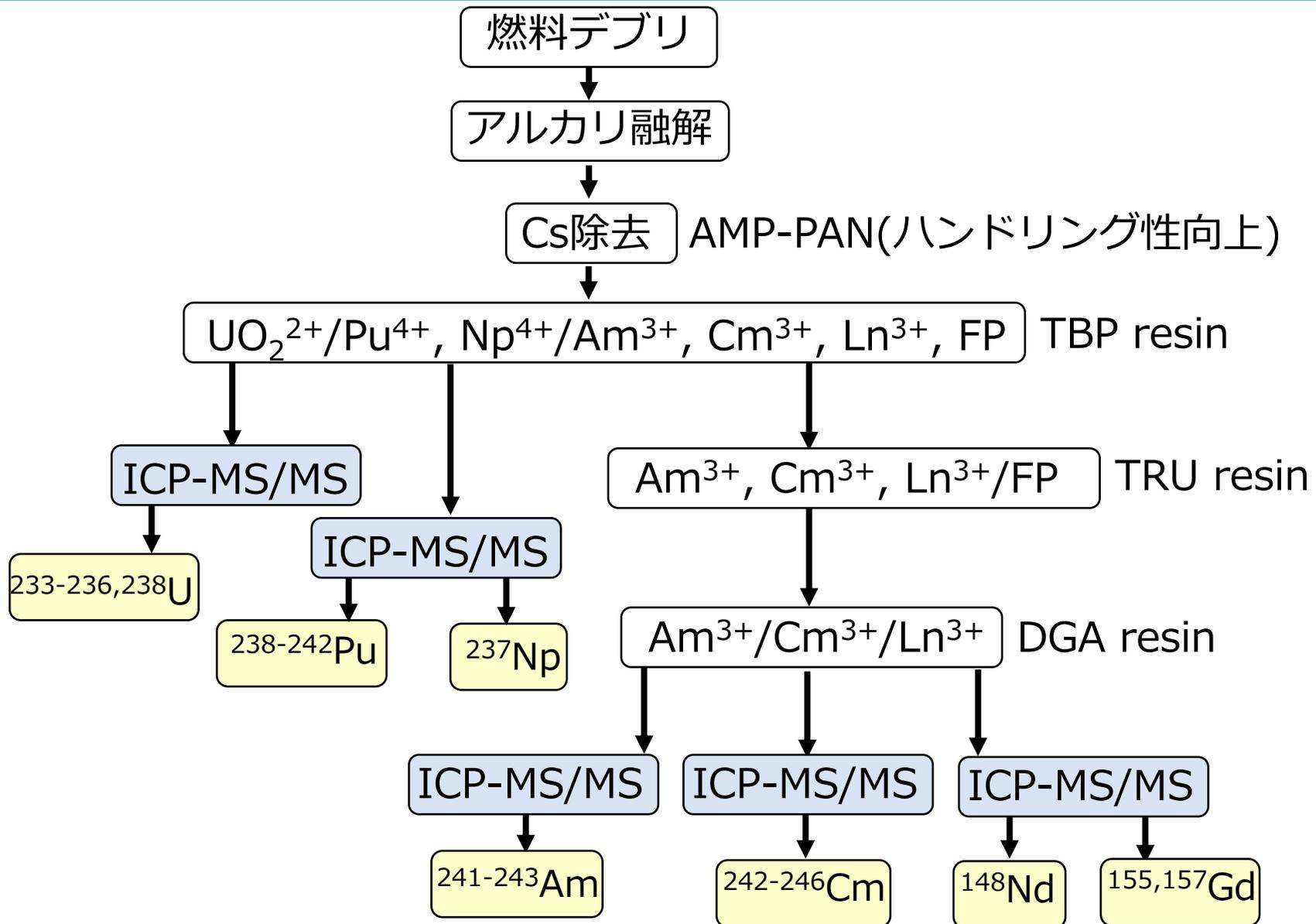


吸着しない： $Am^{3+}$ ,  $Cm^{3+}$ ,  $Nd^{3+}$ ,  $Gd^{3+}$  etc.



TBP樹脂によるアクチノイドの溶離曲線.

制御棒成分(B)、アルカリ融剤成分(Na)、核分裂生成物成分が含まれる溶液試料に対し、アクチノイドの化学分離ができる。



化学分離+ICP-MS/MSによるアクチノイド高確度分析ができる。

- 燃料デブリの化学分析手法開発として、試料溶解条件、ICP-MS/MSを導入した核種分析フロー、核種分離による分析オプションを提案した。

## 今後の予定

- 照射済燃料を模擬デブリに想定して、実証実験を実施中(JAEA大洗研)  
精度を含めた分析性能評価
- 1F燃料デブリへの適用、大熊分析・研究センター第2棟の分析手法へ反映



JAEA大洗研での核燃料を用いた実験の様子



照射済み燃料を模擬燃料デブリとした際の溶解試験の経過

## 魅力/やりがい

- 廃炉に伴う燃料デブリの分析には化学的知見(分析化学、分離化学、錯体化学等)が必要。
- 燃料デブリ分析に適した方法を開発し、将来的に燃料デブリ分析に適用されるところに魅力がある。

## 意気込み

- 専門性を活かした研究開発に加え、燃料デブリ分析現場でのスペシャリストになります。