

## 環境水中のウラン化学種安定性の評価によるセメント系材料閉込効果の定量化検討

## Quantitative evaluation of stabilization of hybridization between uranium species and cement-based materials in environmental water

\*山村 朝雄<sup>1</sup>, 高橋 晃<sup>1</sup>, 白崎 謙次<sup>1</sup>, 永井 満家<sup>1</sup>, 新堀 雄一<sup>2</sup>, 千田 太詩<sup>2</sup><sup>1</sup>東北大学金属材料研究所<sup>2</sup>東北大学工学研究科

## 抄録

福島第一原子力発電所の廃止措置では、放射性廃棄物のセメントによる閉じ込め機能がどのように機能するかについて、格納容器底部の燃料デブリとセメントの相互作用の海水や多様な酸化還元雰囲気の下での検討が必要である。本検討では、既存の熱力学データに基づいてセメント系材料CSHとウランとの相互作用を評価する。

キーワード：熱力学計算、ウラン化学種、セメント系材料

## 1. 緒言

福島第一原子力発電所の事故進展解析の結果に基づく熱力学平衡計算により、燃料デブリの各相の生成量評価が行われ、燃料棒領域ではU-Zr-O系、下部支持板付近ではU-Zr-O-Fe系であるが、両者とも酸化物とともに金属系があり、例えば下部支持板付近ではFe<sub>2</sub>(Zr,U)の存在が推定されている。[1] このような酸化性から還元性まで含む燃料デブリがセメント系材料と海水を含む水中で接触した場合の生成化学種の評価は、廃止措置において必要である。

セメント系材料CSHは、代表的組成としてCa/Si = 0.8のSi<sub>5</sub>Ca<sub>4</sub>O<sub>22</sub>H<sub>16</sub> (調和融解ゲル)、Ca/Si = 1.1のSi<sub>10</sub>Ca<sub>11</sub>O<sub>53</sub>H<sub>44</sub>、Ca/Si = 1.8のSi<sub>5</sub>Ca<sub>9</sub>O<sub>37</sub>H<sub>36</sub>があるが、Ca/Si > 0.8のCSHは、水と接触する環境下ではCaが溶出しCa/Si = 0.8まで変化する特性がある。本発表では、既存の熱力学データに基づいて高塩濃度、高アルカリ領域、多様な酸化還元雰囲気におけるウランの化学種を整理し、セメント系材料の安定性を評価した結果を報告する。評価の高精度化をめざすため、標準の熱力学データベースソフトFactSage (熱力学データベースはFactPS, FThelg) を利用するとともに、最新のデータベースの値を含めた。[2, 3]

計算結果の一例として、[CaO]=[SiO<sub>2</sub>]=10<sup>-2</sup> Mの条件での酸化、中間、還元条件でのpHに対する各物質の濃度についてNaCl無し (Fig. 1) と[NaCl]=1 M (Fig. 2) を示す。固相としては、塩基性領域で酸化条件でCaUO<sub>4</sub>、還元条件でUO<sub>2</sub>が主要な生成物となる。評価結果は、ウラン濃度、CSH系濃度により大きく変化するものの、冠水条件を形成する塩濃度により平衡相・化学種の濃度が変化する。この評価を高濃度条件に展開し、CSH系との共存状態に関する評価結果を報告する。

## 参考文献

[1] 鷲谷忠博, RID における福島第一原子力発電所廃炉に関わる技術開発(3) デブリ性状把握に係る技術開発, 日本原子力学会 2014年秋の大会

[2] Ingmar Grenthe, et al., Chemical Thermodynamics 1, Chemical Thermodynamics of Uranium, North-Holland, 1992

[3] IUPAC Academic Software, The IUPAC Stability Constants Database, Academic Software, 2008

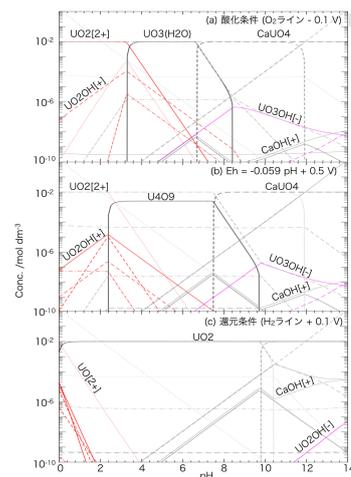


Fig. 1: [U]=10<sup>-2</sup> M、NaClを含まない体系に対する、pHに対する各物質の濃度

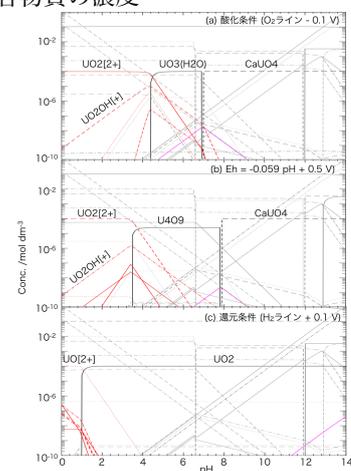


Fig. 2: [U]=10<sup>-4</sup> M、NaClを含む体系に対する、pHに対する各物質の濃度

\*T. Yamamura<sup>1</sup>, A. Takahashi<sup>1</sup>, K. Shirasaki<sup>1</sup>, M. Nagai<sup>1</sup>, Y. Niibori<sup>2</sup> and T. Chida<sup>2</sup><sup>1</sup>Laboratory of Alpha-Emitters IMR, Tohoku Univ., <sup>2</sup>School of Engineering, Tohoku Univ.