

CaUO₄ の還元雰囲気での溶解挙動

Dissolution behavior of CaUO₄ under reducing condition

*加藤 雄斗¹, 小林 大志¹, 佐々木 隆之¹

¹京大

1F 事故燃料デブリとして生成の可能性が示唆されている CaUO₄ について、還元雰囲気下での水への溶解挙動を評価するため、NaCl 水溶液を用いた浸漬実験を行った。U と Ca の溶解濃度、液性、固相状態をもとに熱力学的な考察を行った。

キーワード：MCCI 燃料デブリ, 溶解挙動, 還元雰囲気

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故においては、溶融 UO₂ 燃料と格納容器底部のコンクリート成分との相互作用により MCCI (Molten Core Concrete Interaction) デブリが形成したと考えられている。MCCI デブリは、他の組成の燃料デブリ同様に深地層への処分が検討される可能性が高いが、還元雰囲気下の地下水シナリオに基づく安全評価を行う上での溶解挙動の知見に乏しいのが現状である。これまで、模擬 MCCI デブリ合成実験^[1]により CaUO₄, Ca₃UO₆ といった Ca-U(VI)-O 三元酸化物は確認されているものの、各単相に関する溶解挙動の検討はない。本研究では、電気炉を用いて調製した CaUO₄ 単相を還元雰囲気下で水に浸漬し、浸漬前後の固相状態を評価するとともに、U, Ca 濃度をもとに溶解挙動の熱力学的な解釈を試みた。

2. 実験

モル比 1:1 に秤量した UO₂ と CaCO₃ を摩砕混合し、管状電気炉で 2% O₂+Ar 雰囲気の下、1200°C で 4 時間加熱して CaUO₄ を調製した。得られた CaUO₄ 固相を 0.1 M NaCl, 0.01 M Na₂S₂O₄, pH 7~11 の水溶液に室温、Ar 雰囲気のグローブボックス内で浸漬した。定期的に浸漬液を分取して限外ろ過 (10kDa) し、ろ液の U および Ca の濃度を ICP-MS で測定した。また浸漬前後の固相の XRD 測定を行った。

3. 結果と考察

XRD 測定により、合成した試料が CaUO₄ 単相であることを確認した。また、浸漬 40 日後の固相は、CaUO₄ のピークパターンからの低角側へのシフトが観察され、CaUO₄ が CaUO_{4-x} に還元されたと考えられる。浸漬後 25, 40 日の U および Ca 濃度を図 1 に示す。U 濃度は pH 6.5 でやや高く、それ以上の pH でほぼ一定である。一方、Ca 濃度は高く、Ca と U は一見調和溶解と認められない。ここで、図 1 に示すように 4 価 UO₂(am) を U の溶解度制限固相と仮定すれば U 濃度を解釈できる。すなわち U は CaUO_{4-x} から Ca と調和溶解した後、再沈殿等により濃度減少したと考えられる。なお、pH 6.5 での高い U 濃度については、溶解平衡の確認のため、更なる長期浸漬を通じた検討が必要である。

参考文献 [1] T. Sasaki et al, J. Nucl. Sci. Technol., 56 (2019) 1092.

【謝辞】本研究の一部は JSPS 科研費 20H02665 の助成を受けたものです。

*Yuto Kato¹, Taishi Kobayashi¹, Takayuki Sasaki¹

¹Kyoto Univ.

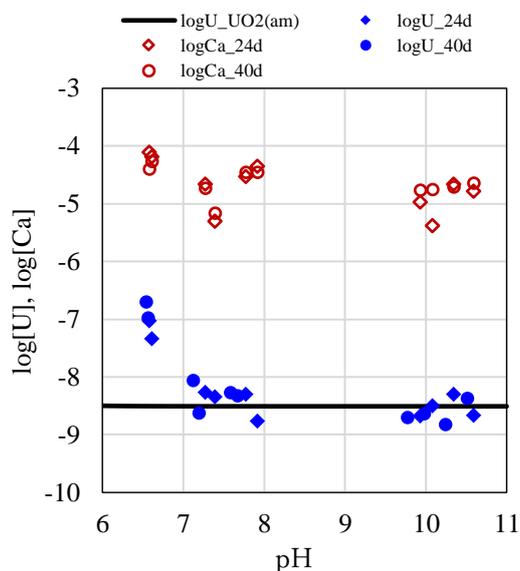


図1 液相U,Ca濃度(ろ過後)