

シビアアクシデント時の原子炉内におけるセシウム分布・性状の予測

(4) Cs 化学吸着生成物の水への溶解性

Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident

(4) Dissolution properties of Cs-chemisorbed compounds in water

*井元 純平¹, 中島 邦久¹, 三輪 周平¹¹ 日本原子力研究開発機構

原子炉内での Cs の溶出挙動に資する Cs 化学吸着生成物の水への溶解度データの拡充を目的に、これまでに化学吸着再現実験で生成が確認されている Cs 化合物の溶解度測定を行った。その結果、Cs の溶解性の大きさは $Cs_2Si_2O_5 / CsFeO_2 > Cs_2Si_4O_9 > CsFeSiO_4$ の順となることが分かった。

キーワード：化学吸着、セシウム、溶解度

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) の廃炉において Cs の炉内分布を把握することは重要である。1F では廃炉が長期間に渡ることから、炉内に存在する Cs 化合物は水相を介した移行が起こり、Cs の再分布が起こる可能性がある。Cs 再分布を評価するためには、Cs 化合物の水への溶出挙動に関する知見が必要であり、これは除染の観点からも重要である。Cs の一部は炉内構造材であるステンレス鋼との化学吸着により Cs-Fe-Si-O、Cs-Si-O、Cs-Fe-O のような化合物を形成し、安定に存在している可能性がある[1-2]。しかし、Cs 化学吸着生成物の水への溶出挙動に関するデータは非常に限られている。そこで本研究では Cs の溶出挙動に資する Cs 化学吸着生成物の水への溶解度データの拡充を目的に、これまでに化学吸着再現実験[1-2]で生成が確認された CsFeSiO₄、Cs₂Si₂O₅、Cs₂Si₄O₉、CsFeO₂ の標準試料を作製し、OECD テストガイドライン[3]に準ずる方法で溶解度測定を行った。

2. 実験方法

標準試料合成用の出発物質として CsFeO₂ は CsOH・H₂O と α-FeOOH の元素比が Cs:Fe=1:1、また Cs₂Si₂O₅、Cs₂Si₄O₉、CsFeSiO₄ は CsCO₃、SiO₂、Fe₂O₃ を Cs:Si=1:1、Cs:Si=1:2、Cs:Fe:Si=1.4:1:1 となるように不活性雰囲気グローブボックス内で混合した。これらの混合粉末を「成形→加熱 (673 K~1273 K) →粉碎・混合」の工程を単相の試料が得られるまで繰り返すことで標準試料を作製した。

密栓可能な 3 つの容器に予想される溶解度の約 5 倍の試料を純水にそれぞれ量り入れ、303 K 一定で振とうを開始した。4 日間の振とうの後、容器のうちの 1 つを 293 K で 24 時間平衡化を行った。24 時間平衡化後、この容器を 293 K で遠心分離した上澄み液を採取し、ICP-MS または ICP-AES にて元素分析を行った。他の 2 つの容器は、303 K でそれぞれ 5 日間および 6 日間振とうを行った後に、293 K で同様の操作を行った。

3. 結果及び考察

表 1 に各 Cs 化合物から水へ溶出した元素濃度を分析した結果を示す。Cs₂Si₂O₅ 以外の Cs 化合物は Cs が他の元素よりも優先的に溶出しており、CsFeSiO₄、Cs₂Si₄O₉ は溶出の数日間オーダーでの時間依存性があることも分かった。Cs₂Si₂O₅ 及び CsFeO₂ は時間依存性がない結果となっているが、今回の試験では Cs が全溶解したため、未飽和の値を示している。今回の試験では正確な溶解度の決定には至らなかったが、Cs の溶解性の大きさは $Cs_2Si_2O_5 / CsFeO_2 > Cs_2Si_4O_9 > CsFeSiO_4$ の順となることが分かった。一方、炉内における主要な Cs 化合物と考えられている CsOH、CsI、Cs₂MoO₄ の溶解度 (g/100 g 水) はそれぞれ 386 (288 K) [4]、78.6 (293 K) [5]、204 (291 K) [5]であり、今回の測定とは単位が異なるため単純には比較できないが CsFeSiO₄、Cs₂Si₄O₉ の Cs の水への溶解性は、これら主要な Cs 化合物と比較して大幅に低くなることが分かった。

参考文献

[1] M. Kobata et al., J. Nucl. Mater., 498, 387-394 (2018) [2] E. Suzuki et al., Proceedings of FDR2019, FDR2019-1068. [3] OECD, OECD Guideline for the Testing of Chemicals - Water Solubility, 1-8 (1995). [4] J. A. Dean, Lange's Handbook of Chemistry, Fifteenth Edition (1999). [5] 日本化学会, 化学便覧 (基礎編) 改訂 4 版, 丸善 (1993).

*Junpei Imoto¹, Kunihisa Nakajima¹ and Shuhei Miwa¹

¹Japan Atomic Energy Agency

表 1 各 Cs 化合物から溶出した元素濃度

試料	元素	濃度 (mg/L)		
		4日	5日	6日
Cs ₂ Si ₂ O ₅	Cs	230603	231471	229566
	Si	47393	46626	46946
CsFeSiO ₄	Cs	96.4	110	121
	Fe	1.63	2.85	1.50
	Si	7.17	8.78	8.74
Cs ₂ Si ₄ O ₉	Cs	688	708	788
	Si	123	133	147
CsFeO ₂	Cs	2601	2415	2491
	Fe	5.97	6.09	7.43