

# 5 価ウラン-鉄酸化物の水中での 溶解挙動と経年変化特性に関する考察

Dissolution behavior and aging characteristics  
of pentavalent uranium-iron oxides in water

○頓名龍太郎、小林大志、佐々木隆之  
工学研究科 原子核工学専攻

Ryutaro Tonna, Taishi Kobayashi, Takayuki Sasaki  
Department of Nuclear Engineering

U-Fe oxides containing pentavalent U were prepared by the reaction of magnetite with  $U_3O_8$  and characterized by XRD. The prepared sample was immersed in aqueous solutions. The concentrations of U and Fe and the solid state after immersion were measured and investigated. Based on the obtained results, the dissolution mechanism and aging characteristics of pentavalent uranium-iron oxides were discussed.

## 1. 序説

東日本大震災に伴う津波により、東京電力福島第一原子力発電所（以下、1F）1～3号機では全電源喪失状態となり、非常用炉心冷却装置および冷却水循環系が動作不能となった。高温状態の  $UO_2$  溶融燃料は、ジルコニウム合金製の燃料被覆管、ステンレス（SUS304）製の原子炉構造材と高温で反応したと考えられている。さらに、1, 3号機では水素爆発により炉内に大気が混入したとされ、デブリ性状は、炉内の雰囲気、温度、材料の組合せにより異なると考えられる。これまで、炉内で生成した燃料デブリ取り出しに向けた1F炉内の観察が進められ、遠隔操作により得られた炉内の映像から、冷却水中に燃料デブリと思しき物質が確認されている。事故から10年以上が経過し、デブリ相表面の酸化や構成成分の溶解など経年変化が起きていると考えられ、今後数十年かかるとされる燃料デブリの取り出し、および長期保管、処理処分を安全かつ着実に進めるための工程を見通すには、炉内で生成した燃料デブリの水中での化学的安定性、溶解メカニズムの知見に基づく経年変化特性を把握することが重要である。

当研究室ではこれまで様々な模擬燃料デブリを調製し、浸漬実験により核種の溶解挙動について検討を試みてきた。燃料デブリの一つである合金系デブリの多くの試料は、U, Zr, Feの各金属酸化物相、(U, Zr) $O_2$ 相、 $UFeO_4$ 相など<sup>[1,2]</sup>、種々の固相から成る混合物であることが確認された。一般に種の溶解挙動は固相により大きく異なることが知られているが、模擬燃料デブリ浸漬実験では試料（相状態）の違いに基づく溶解挙動の顕著な傾向は確認されず、1Fデブリの溶解メカニズムおよび経年変化特性の理解にはデブリの構成固相成分毎の溶解挙動を一つずつ明らかにする必要性が指摘された。

これまで1Fデブリ中で生成が予想されたU, Zr, Feの各金属酸化物相、U, Zr固溶体相の水への溶解挙動は検討がなされてきたが<sup>[3,4]</sup>、合金系デブリの中での存在が指摘されている $UFeO_4$ は検討されていない。一般にU固相の水中での安定性および溶解挙動は、Uの固相中での酸化数に大きく依存することが知られており、水中で安定して存在する4価および6価U固相の溶解挙動については多くの知見が蓄積されている<sup>[3,4]</sup>。一方、5価Uイオンは水中で極めて不安定で、6価Uへの酸化、高濃度条件下における不均化反応の可能性<sup>[5]</sup>など、5価U化合物の水への溶解挙動は未解明の点が多い。そのため固相中のUの価数が5価との報告がある $UFeO_4$ <sup>[1,6]</sup>は水中で他のU固相とは異なる挙動を示す可能性がある。

