

燃料デブリの性状把握 (28'A)

(3) 二酸化物模擬デブリ相状態への少量固溶元素の影響

Characterization of Fuel Debris (28'A)

(3) Influence of Minor Additives on the Phase Relationships of (U,Zr)O₂ Simulated Fuel Debris

*高野 公秀, 小野澤 淳, 須藤 彩子

IRID (原子力機構)

燃料デブリの性状把握を目的とし、酸化物デブリの主成分である(U,Zr)O₂に希土類、Fe、Caの酸化物を少量固溶させた模擬デブリを作製して、相、酸化状態、微小硬さへの影響を調べた。

キーワード：福島第一原子力発電所事故, 燃料デブリ, 性状把握, 相関係, 微小硬さ

1. 緒言 福島第一原子力発電所の燃料デブリ取出しに向けた性状把握研究として、これまで酸化物デブリの主成分である(U,Zr)O₂の性状を調べて来たが、ここでは、より実際に近い系として、希土類(可燃性毒物及びFP)、Fe(ステンレス鋼由来)、Ca(海水塩及びコンクリート由来)の酸化物を少量固溶させた模擬デブリ試料を作製し、これら固溶元素による性状(相・組織、酸化挙動、微小硬さ)への影響を調べた。

2. 実験方法 徐冷条件で冷えた酸化物デブリの模擬として、UO₂、ZrO₂、RE (Gd₂O₃、Nd₂O₃)、Fe₂O₃、CaOの各粉末を種々の組成で混合・粉砕・成型し、Ar気流中1600～1700℃で焼結して定比組成近傍の(U,Zr,RE,Fe,Ca)O₂焼結体を得た。これらを酸素分圧1×10⁻³ atm、1400℃(UO_{2.20}条件)又は1000℃(U₃O₈₋₂条件)で長時間焼鈍し、生成相、組織、微小硬さの変化をX線回折、SEM/EDX、マイクロビッカース硬度計でそれぞれ調べた。一方、急冷条件を模擬するため、混合物成形体を集光加熱により熔融した状態から、光源を遮断することで急速に固化し、断面の性状を上記徐冷条件の試料及びTMI-2デブリと比較検討した。

3. 結果 まず、既存知見の少ないUO₂及びUリッチの立方晶(U,Zr)O₂へのFeの固溶度を調べた結果、定比組成近傍ではFe(II)として2 mol%弱、UO_{2.2}となる超化学量論組成条件ではFe(III)として4 mol%弱であることを明らかにした。(U,Zr)O₂へのFe酸化物の固溶の影響として、Uリッチの立方晶とZrリッチの正方晶が微細に入り混じった二相分離組織が形成されやすいことであり、同じく徐冷条件であったと推測されるTMI-2デブリの熔融プール部とよく似た微細組織が観察された(図1写真c及びd)。希土類固溶の影響として、U₃O₈-ZrO₂系固溶体あるいは斜方晶のU(V)-Zr-O系酸化物が生じる酸化条件化でも、立方晶の(U,Zr,RE)O_{2+x}超化学量論組成二酸化物が安定に存在する温度領域が低温側に広がることがわかった。CaO固溶の影響は、定比組成近傍あるいは亜化学量論組成条件において、正方晶のZrリッチ(U,Zr)O₂が立方晶に安定化され、UリッチとZrリッチの二相の立方晶が共存することである。(U,Zr)O₂の超化学量論組成への酸化と、希土類、Fe、Ca酸化物の固溶は、全般的に硬さが増す方向に作用することがわかった。

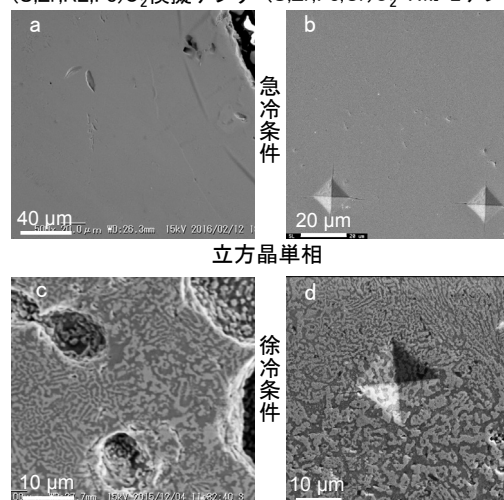
熔融状態から急冷により固化した(U,Zr,RE,Fe)O₂は、図1写真aに示すように立方晶単相組織であり、同じく急冷条件であったと推測されるTMI-2デブリの上部クラスト(写真b)と似た組織である。写真aとbに見られる立方晶単相組織の微小硬さは12～14.5 GPaであるのに対し、写真cとdに見られる二相が微細に入り混じった組織では8～11 GPaと硬さが低い傾向にある。

4. 結論 希土類、Fe、Ca酸化物の(U,Zr)O₂への固溶による相状態、酸化挙動、硬さへの影響を明らかにするとともに、模擬デブリとTMI-2デブリとで、冷却条件と組織・硬さの相関関係に共通の傾向があることを確認した。

本件は、IRIDが補助事業者として実施した平成26年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリの性状把握)」に係わる補助事業の成果の一部を取りまとめたものである。

*Masahide Takano, Atsushi Onozawa and Ayako Sudo
IRID (JAEA)

(U,Zr,RE,Fe)O₂模擬デブリ (U,Zr,Fe,Cr)O₂ TMI-2デブリ



Uリッチ立方晶+Zrリッチ正方晶の微細入り混じり

図1 模擬デブリとTMI-2デブリの組織の比較