

燃料デブリ中のプルトニウムとガドリニウムの化学形態

Chemical states of plutonium and gadolinium in fuel debris

*渡部 志保¹, 石井 大翔¹, 大石 佑治¹, 牟田 浩明¹, 黒崎 健^{1,2,3}

¹大阪大学, ²福井大学, ³JST さきがけ

酸化状況下にある燃料デブリの模擬物質として、(U, Zr, Ce)O₂と(U, Zr, Gd)O₂を作製した。ここで、CeはPuの模擬元素である。この模擬物質を高温大気中で酸化した際のCeとGdの化学形態を評価した。

キーワード：燃料デブリ，酸化，プルトニウム，ガドリニウム

1. 緒言

福島第一原子力発電所事故では、炉心溶融により燃料デブリが生成された。廃炉に向けた取り組みとして、燃料デブリの特性把握は重要である。とりわけ、燃料デブリの主成分である(U, Zr)O₂酸化物相中に含まれると考えられるGdとPuは、再臨界と内部被爆にそれぞれ影響を及ぼす。また、燃料デブリは酸化雰囲気中に晒されている可能性があるが、その際にGdとPuがどういった化学形態で存在しているのかは完全に解明されていない。そこで本研究では、燃料デブリの主成分である(U, Zr)O₂にGdとCeを添加した模擬燃料デブリを作製し、酸化雰囲気下で熱処理を施した際のGdとPuの化学形態を明らかにすることを目的とした。本研究では、CeをPuの代替物質として用いた。

2. 実験方法

作製した試料の組成は(U_{0.9}Zr_{0.1})O₂と(U_{0.85}Zr_{0.1}RE_{0.05})O₂とした。UO₂、ZrO₂、CeO₂、Gd₂O₃の粉末を秤量し、コールドプレスで成形後に、Ar雰囲気下、1600℃で10時間反応・焼結した。その後、800℃、2時間、空气中で酸化した。得られた試料を粉砕し、粉末X線回析(X-ray Diffraction: XRD)により試料の相状態を同定した。電界放射型走査型電子顕微鏡(Field Emission-Scanning Electron Microscope: FE-SEM)による組織観察と、エネルギー分散型X線分光法(Energy Dispersive X-ray spectrometry: EDX)による元素分析を行った。

3. 結果と考察

図1に、作製した試料の酸化試験前後の粉末XRDパターンを示す。Ceを添加した模擬燃料デブリは、酸化試験によって蛍石型結晶構造を有するUO₂相からU₃O₈相へと変化した。一方、Gdを添加した模擬燃料デブリは、酸化試験によってUO₂相からUO₂相とU₃O₈相の二相に分離した。SEM-EDX分析の結果から、酸化試験の前後どちらの場合においても、CeとGdは試料中に均一に固溶していることが確認された。Ce添加とGd添加の試料の相状態の違いに関する詳細は、当日報告する。

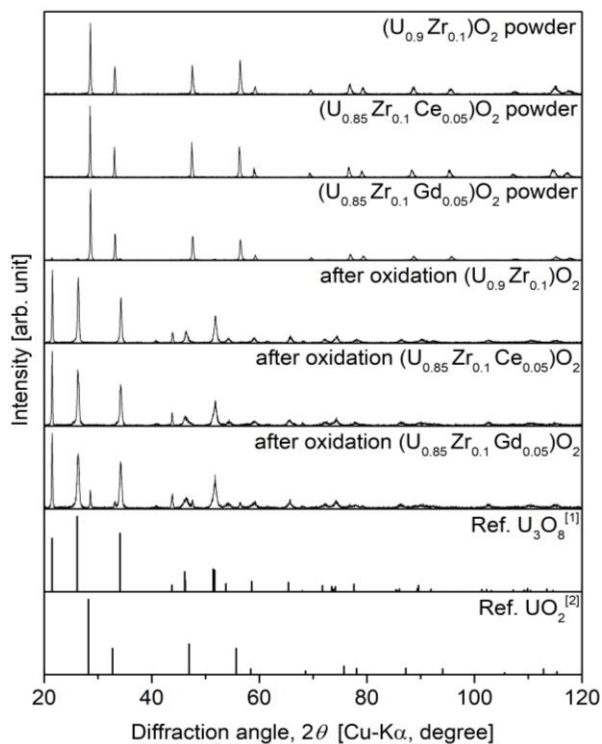


図1 作製した試料の酸化試験前後の粉末XRDパターン

参考文献

[1] B. Wasserstein, Nature London, **174**, 1004, 1954.

[2] S. Siegel, Acta Crystallographica, **8**, 617, 1955.

*Shiho Watanabe¹, Hiroto Ishii¹, Yuji Ohishi¹, Hiroaki Muta¹, Ken Kurosaki^{1,2,3}

¹Osaka University, ²University of Fukui, ³JST PRESTO.