

## 福島第一原発事故において発生した燃料デブリの処理・処分のための ウラン、ジルコニウム酸化物及びホウ素の局所構造解析

XAFS analyses of the uranium and zirconium mixed oxides and boron for waste management of the fuel debris occurred by the Fukushima Daiichi NPP accident.

\*上原章寛<sup>1,2)</sup>、秋山大輔<sup>3)</sup>、沼子千弥<sup>4)</sup>、武田志乃<sup>1)</sup>、池田篤史<sup>5)</sup>、  
寺田靖子<sup>6)</sup>、新田清文<sup>6)</sup>、伊奈稔哲<sup>6)</sup>、桐島陽<sup>3)</sup>、佐藤修彰<sup>3)</sup>

<sup>1)</sup> 量研機構、<sup>2)</sup> 京都大学、<sup>3)</sup> 東北大学、<sup>4)</sup> 千葉大学、<sup>5)</sup> HZDR、<sup>6)</sup> JASRI

1200 – 1600 °Cの温度領域においてウラン、ジルコニウム酸化物及び炭化ホウ素を酸化及び還元雰囲気において熱処理したのち、粉末 X 線回折及び X 吸収微細構造によって反応生成物の局所構造及び相状態を解析した。

キーワード：燃料デブリ、ウラン、ジルコニウム、ホウ素、XRD、XAFS

### 1. 緒言

福島第一原発の炉心では、核燃料である二酸化ウランと被覆管の主成分であるジルコニウムや構造材の主成分である鉄・クロムが冷却材喪失事故により超高温となった炉心内部での溶融や、また、落下により下部コンクリート等と反応して様々な種類および組成の燃料デブリが炉内に存在している。当研究グループでは、高温における酸化ウラン-酸化ジルコニウム  $UO_2-ZrO_2$  擬二元系の相関係や、制御材、構造材成分との高温反応を調べてきた。本研究では、 $UO_2$  と  $ZrO_2$  に加えて炭化ホウ素  $B_4C$  を共存させ、1200 から 1600°Cの温度条件にて処理された試料について、粉末 X 線回折 (XRD) 及び X 吸収微細構造 (XAFS) 解析を行うことにより、相関係や溶解・溶出挙動に関する知見を得た。また炉心溶融における反応環境を模擬するために、酸素あるいは水素ガスを用いた酸化あるいは還元雰囲気条件下における反応性の違いについても検討した。

### 2. 実験

試料は、 $UO_2-B_4C$  あるいは  $UO_2-B_4C-ZrO_2$  を等モル比に混合した試料を電気炉内に装荷し、1200°Cから 1600°Cの温度範囲内において10%水素あるいは2% 酸素ガスを1時間通気して反応させることによって調製した。反応後の試料について XRD にて相状態を解析した。XAFS 測定は大型放射光施設 SPring-8 内 BL01B1 において行った。本試料のうち U については  $U_{L_{III}}$ -edge (17.166 keV)、Zr については Zr K-edge (17.998 keV) をステップスキャンで同時に行った。それぞれの元素について XAFS スペクトルの主成分分析を実施し、各種反応条件下における生成物を定量的に見積もった。

### 3. 結果と考察

$UO_2$  及び  $B_4C$  を酸化及び還元雰囲気下で処理した試料について解析した。還元雰囲気下では、1200°Cから 1500°Cへ上昇するに伴い  $UB_4$  の生成量が増加し、1500°Cではおおよそ 60%の生成率であることが分かった。一方、酸化雰囲気下では 1200°Cから 1300°Cでは  $B_4C$  が酸素と反応し  $B_2O_3$  を生じるため、 $UB_4$  の生成は確認できなかったが、1400°C以上では、還元雰囲気下とほぼ同量の  $UB_4$  が生成した。

$UO_2$  及び  $B_4C$  に  $ZrO_2$  が共存すると、共存しない場合とは全く異なる結果を得た。 $UO_2$  は、酸化及び還元雰囲気いずれの条件においても全く反応しなかった一方、 $ZrO_2$  と  $B_4C$  の反応性が極めて高いことが示唆された。還元雰囲気下では、加熱温度の上昇とともに  $ZrB_2$  の生成量が増加し 1400°Cにおいてほぼ定量的に生成した。酸化雰囲気下では、加熱温度の上昇とともに  $ZrB_2$  の生成量は増加するものの、生成率は還元雰囲気下でのその半分であった。これは、 $B_4C$  が酸素と反応し  $B_2O_3$  を生じたためであると考えられる。今後の燃料デブリ取り出しにおいては、このような知見が不可欠であり、炉内の内部状況や、放射性核種の移行挙動、デブリの処理・処分方策の検討に寄与できるものと期待される。

\*Akihiro Uehara<sup>1,2)</sup>, Daisuke Akiyama<sup>3)</sup>, Chiya Numako<sup>4)</sup>, Shino Takeda<sup>1)</sup>, Atsushi Ikeda<sup>5)</sup>, Yasuko Terada<sup>6)</sup>, Kiyofumi Nitta<sup>6)</sup>, Toshiaki Ina<sup>6)</sup>, Akira Kirishima<sup>3)</sup>, Nobuaki Sato<sup>3)</sup>,

<sup>1)</sup> National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, <sup>2)</sup> Kyoto Univ., <sup>3)</sup> Tohoku Univ., <sup>4)</sup> Chiba Univ., <sup>5)</sup> Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, <sup>6)</sup> Japan Synchrotron Radiation Research Institute