

MCCI デブリからのアクチノイド溶出機構および処理プロセスに関する基盤研究

(7) UO_2 と ZrO_2 及びステンレスの相関係

Basic study on actinide leaching and waste management of MCCI debris

(7) Phase relationship among UO_2 , ZrO_2 and stainless steel

*秋山 大輔¹, 秋山 栄徳¹, 桐島 陽¹, 佐々木 隆之², 佐藤 修彰¹

¹東北大学多元物質科学研究所, ²京都大学大学院工学研究科

MCCI デブリは燃料(UO_2)と被覆管(ZrO_2)及び構造材(ステンレス)を含む溶融物とコンクリートの反応により生成する。MCCI デブリの性状を把握するためには、コンクリートと反応する溶融物の性状を把握する必要があるため、 UO_2 と ZrO_2 及びステンレスを混合し、酸化または還元雰囲気で加熱処理をしてその相関係を評価した。

キーワード : MCCI 燃料デブリ, 相解析, 高温挙動

1. 緒言 福島第一原発事故では、LOCA により炉心温度が上昇し、炉心溶融により燃料および被覆管等構造材を含む燃料デブリが生成したと考えられている。原子炉内では事故直後の冷却に用いられた海水や、水素爆発により導入された空気と核燃料が反応した可能性も考えられ、TMI 事故時のデブリとは様相が異なると予想される。本研究では二酸化ウラン(UO_2)燃料との反応物として被覆管の主成分 Zr の酸化物である ZrO_2 に加え、ステンレス構造材(SUS304)及びその主成分 Fe , Cr の高温における相関係について酸化、あるいは還元雰囲気における XRD 測定及び SEM-EDX 分析により調べ、燃料デブリの性状について検討した。

2. 実験 UO_2 は金属 U を空気中 800°C において酸化処理して得た U_3O_8 を水素中 1000°C にて還元して調製した。得られた UO_2 とステンレス構造材成分についてモル比 1:1 になるようにそれぞれ摩砕・混合した後、石英ボートもしくはアルミナボートに所定量秤量した。その後電気炉の石英反応管もしくはアルミナ反応管内にボートをセットし還元雰囲気および酸化雰囲気下で加熱処理を行った。還元雰囲気では反応管内を真空排気・ $\text{Ar}+10\%\text{H}_2$ ガス置換、昇温後 $1200, 1400^\circ\text{C}$ にて加熱処理を行い、酸化雰囲気では反応管内を真空排気・ Ar 置換後、 $1200, 1400^\circ\text{C}$ まで昇温した後 $\text{Ar}+2\sim 20\%\text{O}_2$ ガス中で 2 時間加熱処理を行った。加熱処理後の試料について粉末 XRD 法により相解析し、SEM による観察および EDX による元素マッピングを行った。

3. 結果と考察 還元雰囲気における加熱処理前後で UO_2 と ZrO_2 , SUS304, Fe , Cr の反応は見られなかった。一方、酸化雰囲気では 1200°C において UO_2 と SUS304 または Cr が反応して $\text{U}(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})\text{O}_4$ 、 UCrO_4 の生成が確認された。 1400°C では 1200°C で反応しなかった UO_2 と Fe との反応による UFeO_4 の存在が新たに確認された。また、 ZrO_2 共存下においても UO_2 と SUS304 の反応に影響はなかった。また、酸素濃度を 2% から 20% まで変化させて UO_2 、 ZrO_2 、SUS304 を 1400°C で 2 時間加熱処理を行った結果、酸素濃度の増加とともに $\text{U}(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})\text{O}_4$ の XRD のピークが成長した。このことは、酸素分圧の増加による UO_2 の酸化促進が、 $\text{U}(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})\text{O}_4$ の生成に寄与していると解釈される。また、 UO_2 -SUS304 系において酸化雰囲気 1200°C で加熱処理した試料を SEM-EDX 分析した結果においても原子数比から $\text{U}(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})\text{O}_4$ 及び $(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})_3\text{O}_4$ とみられる相が生成していることを確認した。

謝辞 本研究は、JSPS 科研費(JP16H02447)「MCCI デブリからのアクチノイド溶出機構および処理プロセスに関する基盤研究」の助成を受けて実施したものです。

Daisuke Akiyama^{*1}, Hidenori Akiyama¹, Akira Kirishima¹, Takayuki Sasaki² and Nobuaki Sato¹

¹IMRAM, Tohoku Univ., ²Dept of Nuclear Engineering, Kyoto Univ.