

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

ウラン及びジルコニウム酸化物の局所構造解析

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

*上原章寛¹⁾、秋山大輔²⁾、沼子千弥³⁾、武田志乃⁴⁾、池田篤史⁵⁾、
寺田靖子⁶⁾、新田清文⁶⁾、伊奈稔哲⁶⁾、桐島陽²⁾、佐藤修彰²⁾
¹⁾京都大学、²⁾東北大学、³⁾千葉大学、⁴⁾量研機構、⁵⁾HZDR、⁶⁾JASRI

1200 – 1600 °Cの温度領域においてウラン及びジルコニウム酸化物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：デブリ、ウランジルコニウム、XRD、XAFS

1. 緒言

福島第一原発事故から 6 年半が経過し、今後は廃止措置に向けた廃炉対策が必要とされている。特に、炉内に発生した燃料デブリの取出しにおいては、崩壊熱除去のための冷温停止処理状態にあるデブリ中の放射性核種の評価が不可欠である。特に、溶融した炉心が燃料や被覆管など炉心構成材料、さらには圧力容器から落下し、コンクリート等とも反応して、様々な種類および組成の燃料デブリが存在している。当研究グループではこれまで、高温における酸化ウラン-酸化ジルコニウム $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 擬二元系の相関係や、制御材、構造材との高温反応を調べてきた。本研究では、高温条件下にて組成の異なる UO_2 と ZrO_2 の混合物を反応させて調製した $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 擬二元系を対象として、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、それぞれの試料を酸化及び還元雰囲気下において反応させた試料についても検討する。

2. 実験

試料は、 UO_2 のみあるいは混合比の異なる UO_2 及び ZrO_2 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水素あるいは酸素ガスを通気して反応させることによって作成した。反応後は粉末 X 線回折 (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。測定は基本的には透過モードで実施したが、U と Zr の組成比が大きな試料については多素子 SSD を用いた蛍光法と透過法の同時計測を行った。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。

3. 結果と考察

UO_2 及び ZrO_2 を酸素及び水素雰囲気下で処理した試料について測定した。水素雰囲気下では 1200°C から 1600°C の温度範囲内において UO_2 のままであった。酸素雰囲気下では 1200°C では八酸化三ウラン U_3O_8 が生成した。1300 – 1400°C においては、X 線吸収端近傍構造 (XANES) の主成分分析の解析及び X 線回折結果より、 U_3O_8 の生成とともに U(V) と Zr の混合酸化物である $\text{U}_2\text{Zr}_5\text{O}_{15}$ の生成も示唆した。1600°C において、 U_3O_8 生成量が減少して再び UO_2 が生成していくとともに、 UO_2 の結晶性が低下していくことが分かった。 UO_2 に対して ZrO_2 の添加量が多いとき、 UO_2 と ZrO_2 が固溶体を生成するため、 ZrO_2 の添加量が少ないときの試料に比べて U_3O_8 の生成量が抑制された。一方、 ZrO_2 については、 UO_2 の共存により単斜系から正方晶系へ変化していることが分かった。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・処分方策の検討に大いに寄与できるものと期待される。

*Akihiro Uehara¹, Daisuke Akiyama², Chiya Numako³, Shino Takeda⁴, Atsushi Ikeda⁵, Yasuko Terada⁶, Kiyofumi Nitta⁶, Toshiaki Ina⁶, Akira Kirishima², Nobuaki Sato²
(¹Research Reactor Institute, Kyoto Univ., ²Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku Univ., ³Graduate School, Chiba Univ., ⁴National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, ⁵Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, ⁶Japan Synchrotron Radiation Research Institute)