

# 合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究

## (7) ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリの安定性評価

Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

(7) Stability of simulated fuel debris in the  $\text{UO}_2$ -Zr-SS system

\* 桐島 陽<sup>1</sup>, 秋山大輔<sup>1</sup>, 佐藤修彰<sup>1</sup>, 佐々木隆之<sup>2</sup>, 渡邊雅之<sup>3</sup>, 熊谷友多<sup>3</sup>, 日下良二<sup>3</sup>

<sup>1</sup>東北大, <sup>2</sup>京大, <sup>3</sup>JAEA

福島第一原発事故では、構造材と溶融した燃料が高温で反応し合金相を含む燃料デブリが形成されたとみられる。本発表では、ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼から成る模擬デブリの合成と、これを純水や海水に一定期間浸漬した試験結果について報告する。

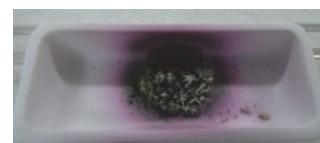
**キーワード:** 燃料デブリ, 福島第一原子力発電所事故, 合金デブリ, アクチノイド

### 1. 緒言

福島第一原発炉内では、SUS 配管や圧力容器等の構造材と溶融した燃料や被覆管成分が高温で反応し、合金相を含む燃料デブリが形成されたとみられる。本研究プロジェクトでは、 $\text{UO}_2$ -SUS 系や  $\text{UO}_2$ -Zr( $\text{ZrO}_2$ )-SUS 系の模擬デブリを高温熱処理により合成し、構造解析や状態分析を行い、構造的および化学的安定性を評価している。本報告では  $\text{UO}_2$ -Zr-SUS 模擬デブリ合成と、経年変化処理としての純水や海水への浸漬試験の結果を報告する。この試験では浸漬による模擬デブリの構造の変化の有無や、模擬デブリに含まれる U, Np, Am の溶出率を測定し、ここから安定性評価を行った。

### 2. 実験

<sup>237</sup>Np および <sup>241</sup>Am の MA トレーサーを添加した  $\text{UO}_2$  と SUS304 粉末および Zr 金属粉末をモル比(U:Fe+Cr+Ni:Zr) が 1:1:1 となるように秤量し、摩砕混合した。これを管状電気炉に入れて、Ar 雰囲気または 2%  $\text{O}_2$  雰囲気、1200°C, 1600°C, および 1700°C で 1 時間加熱し模擬デブリを合成した。この模擬デブリを純水および海水に一定期間浸漬し、<sup>238</sup>U, <sup>237</sup>Np, <sup>241</sup>Am の溶出率を  $\alpha$  スペクトロメトリで評価した。また、浸漬前後の模擬デブリの結晶構造を粉末 X 線回折(XRD)により評価した。



(写真)  $\text{UO}_2$ -Zr-SUS 模擬デブリ (1600°C, Ar 雰囲気)

### 3. 結果と考察

合成した模擬デブリの結晶構造を XRD で調べたところ、Ar 雰囲気加熱試料では  $\text{UO}_2$  が  $\text{UO}_{2+x}$  へ、Zr が  $\text{ZrO}_2$  へ酸化されていた。一方、2%  $\text{O}_2$  雰囲気加熱試料では、 $\text{UO}_2$  が 1200°C で  $\text{U}_3\text{O}_8$  に酸化され一部は  $\text{UFe}(\text{Cr})\text{O}_4$  となっていた。1600-1700°C では Zr との固溶体相  $\text{U}(\text{Zr})\text{O}_{2+x}$  が形成された。また正方晶  $\text{ZrO}_2$  に U の固溶した t-Zr(U) $\text{O}_2$  相も確認された。2%  $\text{O}_2$  雰囲気 1600°C 加熱で合成した模擬デブリを海水と純水にそれぞれ 30 日間浸漬したところ、浸漬前後の XRD パターンに有意な差は観察されず、主要相である  $\text{U}(\text{Zr})\text{O}_{2+x}$  および t-Zr(U) $\text{O}_2$  は水中浸漬に対して安定であることが分かった。この浸漬試験でのアクチノイド核種の溶出率は、いずれの核種も 0.08% 以下と低い値であった(図 1)。また、U, Np については海水浸漬と純水浸漬の間で溶出率に顕著な差は見られなかった。

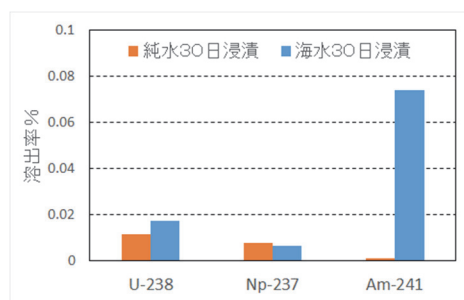


図 1:  $\text{UO}_2$ -Zr-SUS 模擬デブリからの核種溶出率

**【謝辞】** 本研究は、日本原子力研究開発機構・廃炉国際共同研究センターの「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の一部として実施した。

\*Akira Kirishima<sup>1</sup>, Daisuke Akiyama<sup>1</sup>, Nobuaki Sato<sup>1</sup>, Takayuki Sasaki<sup>2</sup>, Masayuki Watanabe<sup>3</sup>, Yuta Kumagai<sup>3</sup>, Ryoji Kusaka<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Tohoku Univ., <sup>2</sup>Kyoto Univ., <sup>3</sup>JAEA,