

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

(9) ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリの 顕微ラマン分光分析

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

(9) Raman microscopic analysis of simulated fuel debris in the UO₂-Zr-SS system

*日下 良二¹, 熊谷 友多¹, 渡邊 雅之¹, 秋山 大輔², 桐島 陽², 佐藤 修彰², 佐々木 隆之³

¹JAEA, ²東北大学, ³京都大学

ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリの過酸化水素水への浸漬試験の結果、ウランの溶出挙動から模擬デブリ表面の変質が示唆された。本研究では、顕微ラマン分光法によりその変質相成分の特定を行うと共に、変質相成分の空間分布状況を調べた。

キーワード：燃料デブリ、表面反応変化、顕微ラマン分光

1. 緒言 燃料デブリは 1F 炉内で水との接触により経年変化すると考えられる。経年変化した燃料デブリの化学状態は燃料デブリの安定性と関わっており、燃料デブリの取り出しや保管、さらには、処理・処分をするための重要な情報になると考えられる。最近我々は、ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリと水の放射線分解で生成した過酸化水素(H₂O₂)との反応を調べるため、模擬デブリの過酸化水素水への浸漬試験を行った。その結果、ウランの溶出挙動から模擬デブリ表面の変質が示唆された。本研究では、浸漬によるデブリ表面の化学的な状態変化を顕微ラマン分光法を用いて特定した。また、模擬デブリ変質相の表面付近に於ける存在分布を調べた。

2. 実験 ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリは、二酸化ウラン (UO₂) 粉末とステンレス鋼 (SUS304) 粉末、及び金属ジルコニウム (Zr) 粉末を管状電気炉に入れて Ar または 2% O₂ 雰囲気 で 1200°C または 1600°C で 1 時間加熱して合成した。模擬デブリ粉末 0.2 g を 7 mmφ のペレット状に圧縮成形し、過酸化水素水(150 μM)に 25°C で 30 日間浸漬した。浸漬した試料を室温で乾燥させた後、顕微ラマン分光測定 (レーザー波長:532nm, 0.5 mW, JASCO, NRS-4500) した。

3. 結果と考察 過酸化水素水への浸漬を行った模擬デブリペレットの表面を顕微ラマン測定した結果、~820 cm⁻¹ と ~865 cm⁻¹ に強い信号強度を持つ鋭いバンドが観測された (図 1)。これらは過酸化ウラニル [(UO₂)(O₂)(H₂O)_n] が示す特徴的なラマン信号であり¹、浸漬によって模擬デブリの表面に過酸化ウラニルが変質相として生成したと結論づけた。この過酸化ウラニルは、模擬デブリペレットの表面全体を覆っており、その層の厚さは μm オーダーであった。また、模擬デブリペレット深部においては、ペレット表面では観測されていない、アモルファス状の過酸化ウラニルと考えられる変質相が観測された。

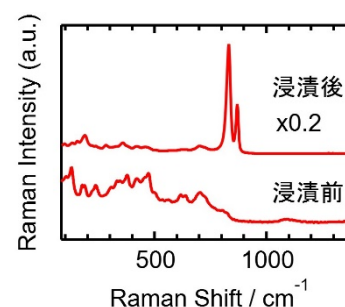


図 1 : UO₂-Zr-SUS 模擬デブリ (2% O₂ 雰囲気、1200°C 加熱で合成) の浸漬前後のラマンスペクトル

【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。

参考文献： [1] R. Kusaka, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, in print (2021).

* Ryoji Kusaka¹, Yuta Kumagai¹, Masayuki Watanabe¹, Daisuke Akiyama², Akira Kirishima², Nobuaki Sato², Takayuki Sasaki³

¹JAEA, ²Tohoku Univ., ³Kyoto Univ.