

# 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

## (10) ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬燃料デブリからの核種溶出挙動評価—照射法と添加法

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

(10) Leaching behavior of nuclides from simulated fuel debris in the UO<sub>2</sub>-Zr-SS system - Irradiation or addition method

\*佐々木隆之<sup>1</sup>, 頓名龍太郎<sup>1</sup>, 小林大志<sup>1</sup>, 秋山大輔<sup>2</sup>, 桐島 陽<sup>2</sup>, 佐藤修彰<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>京大, <sup>2</sup>東北大, <sup>3</sup>JAEA

ステンレスおよびZrを含む模擬燃料デブリを調製した。試料中のFPは、熱中性子照射によるU核分裂または非放射性元素の添加により導入し、人工海水や純水等に浸漬した。両法により導入したFPの溶解挙動、その解釈について報告する。

**キーワード**: 合金デブリ, 核分裂生成物, 溶出挙動, 照射法, 添加法

**1. 緒言** SAにおける燃料熔融時に、ジルカロイ被覆管およびステンレス構造材と高温で反応する場合、合金相を含む燃料デブリの形成が想定されるが、水との接触による経年劣化評価のために、ウラン固相の安定性ならびに核種の溶出挙動を検討した事例はほとんど無い。本プロジェクトを含む過去の検討では、模擬燃料デブリに熱中性子照射してFPを導入し、試験を行ってきた。しかし照射法では対象元素に制限があり、また半減期により長期浸漬試験が困難であることから、非放射性元素を模擬デブリ調製時に添加する方法を試みてきた[1]。本研究では、合金相を含む模擬燃料デブリ(U-Zr-SUS)に両手法を適用し、溶出した核種の溶出率を評価するとともに、固相状態との関係について考察した。

**2. 実験** UO<sub>2</sub>, SUS304 ステンレス鋼(SUS)および金属Zrの粉末をモル比(U:Fe+Cr+Ni:Zr)が1:1:1となるように秤量し、摩砕混合した。なお添加法ではさらに非放射性のCs, Sr, Eu化合物を少量加えた。これを管状電気炉に入れて、Arまたは2% O<sub>2</sub>雰囲気、1200°Cおよび1600°Cで所定時間加熱し、模擬デブリを合成し、結晶構造を粉末X線回折(XRD)により評価した。添加法では、加熱調製時にCold FPの一部が揮発するため、試料の一部を酸溶解し、インベントリを補正した。照射法では京大原子炉で熱中性子照射し、FPを生成させた。これらを純水、0.1M NaClO<sub>4</sub>、海水に浸漬し、浸漬前後のFP核種Mの濃度をγ線スペクトロメトリ、UをICP-MSで定量し、初期インベントリに対する溶出量比(ウランの溶出割合で規格化した溶出率R<sub>M</sub>)を評価した。

**3. 結果と考察** 図1に添加法試料の浸漬結果の一例(R<sub>Cs</sub>)を示す。U-Zr-SUS(図中CA)の相状態は8h加熱において、UO<sub>2</sub>とSUSによるUFe(Cr)O<sub>4</sub>(=X)を生成したが、金属ZrはZrO<sub>2</sub>となり混合物となった。24時間の短期浸漬によるlogR<sub>Cs</sub>は液性によらず2~3の範囲で顕著な差は観察されず、CsがX固相から優先的に溶出した。海水のR<sub>Cs</sub>は他よりやや低く、海水成分とUの錯生成により、U溶出が促進されたためと推察される。一方、より短時間の加熱およびZrを含まない系(図中CS)では、様々なU酸化物が生成したが、R<sub>Cs</sub>に大きな差は見られなかった。

**【謝辞】** 本研究は、JAEA-CLADS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。

**References**: [1] 佐々木ら, 2B14, 原子力学会2020年春の年会.

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

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

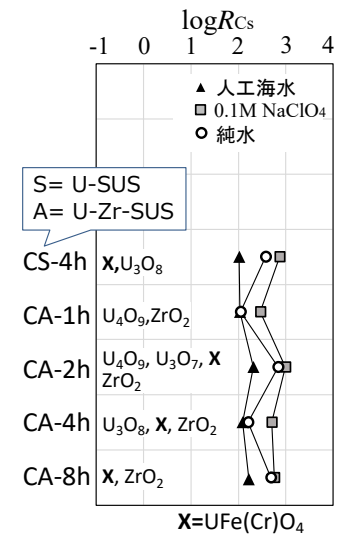


図1: UO<sub>2</sub>にZr, SUS添加して調製した(2%O<sub>2</sub>, 1200°C, 1~8時間加熱)のR<sub>Cs</sub>(浸漬液3種)