

## UO<sub>2</sub>-Zr-ステンレス系化合物の溶解挙動

Dissolution behavior of UO<sub>2</sub>-Zr-stainless steel system samples

\*頓名龍太郎<sup>1</sup>, 小林大志<sup>1</sup>, 佐々木隆之<sup>1</sup>

<sup>1</sup>京大

UO<sub>2</sub>, Zr, ステンレスを初期組成とする化合物および同化合物中に生成が確認されたウラン固相の単相を調製し、水への浸漬試験を実施した。溶解量を評価し、UO<sub>2</sub>-Zr-ステンレス系化合物の溶解挙動を種々の単相 U 固相の溶解挙動と関連付けて考察した。

キーワード：溶解挙動, UO<sub>2</sub>-Zr-ステンレス系, 有機酸

### 1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故では UO<sub>2</sub> 燃料とジルカロイ被覆管、ステンレス(SS)製の原子炉構造材が高温で反応し燃料デブリを形成した。事故後の炉内の燃料デブリが水に接触している様子が確認されており、燃料デブリの溶解など水との様々な反応が進行していると考えられる。1F 廃炉措置を安全に進めていく上で、燃料デブリの水への溶解挙動に関する基礎的理解は必要不可欠である。これまで UO<sub>2</sub>, Zr, および SS の混合粉末を用いて、様々な温度や雰囲気で模擬燃料デブリを加熱調製し、その固相状態と水への溶解挙動について検討した[1]。調製した試料は合金相や酸化物相など複数成分の混合系であり、ウランの溶解はその固相組成に強く依存することが示唆された。しかし混合系試料の溶解反応は総じて単純ではなく、各成分の寄与を明らかにするには、単相毎の評価がその一助となることから、模擬燃料デブリ中で確認された UO<sub>2</sub>, (U,Zr)O<sub>2</sub> 等の単相の溶解挙動を検討した。例えば、(U,Zr)O<sub>2</sub> においては、Zr が固相表面で二次固相を形成することで U の溶解抑制に寄与したことを報告した[2]。本研究ではこうした単相試料の溶解挙動の知見をもとに、混合系試料である模擬燃料デブリの溶解挙動について考察を試みた。

### 2. 実験

UO<sub>2</sub>, Zr, SUS304 の混合粉末を 1200-1600°C で不活性ガス雰囲気(1ppm O<sub>2</sub>+Ar)もしくは酸化雰囲気(2% + O<sub>2</sub>)で 8 時間加熱し UO<sub>2</sub>-Zr-SS 系化合物（模擬燃料デブリ）を合成した。XRD 等による固相状態、さらに浸漬試験を実施した。核種との錯生成により溶解を促進するため、ジカルボン酸のマロン酸 (mal ; HOOC-CH<sub>2</sub>-COOH) を添加し、pH 7, イオン強度 0.5 M (NaClO<sub>4</sub>系) とした。また湿式沈殿法により調製した異なる Zr 分率の単相 U<sub>1-y</sub>Zr<sub>y</sub>O<sub>2</sub> (y = 0 - 0.1) を同条件で浸漬した。所定期間浸漬後、分取液を 3kDa フィルターで限外ろ過したのち、ICP-MS により核種濃度を定量した。

### 3. 結果と考察

不活性ガス雰囲気 1200°C で加熱合成した化合物試料中の U 主固相は UO<sub>2</sub> であり、U の酸化や他元素の固溶は確認されなかった。また Fe-Zr 合金相が確認された。一方、不活性ガス雰囲気 1600°C で加熱合成した試料中には Fe-Zr 合金相に加え、(U,Zr)O<sub>2</sub> 相の生成が確認された。単相の UO<sub>2</sub>, (U,Zr)O<sub>2</sub> 浸漬時の U 濃度はマロン酸濃度に比例して増加し、マロン酸が U と錯体を形成し、U 溶解度を増加させることが分かった。低マロン酸濃度条件では UO<sub>2</sub>, (U,Zr)O<sub>2</sub> の U 濃度が一致したが、高マロン酸濃度条件では (U,Zr)O<sub>2</sub> の U 濃度は UO<sub>2</sub> に比べ低く、Zr 二次固相による溶解抑制が起きた。同様の傾向は混合系試料でも確認され (U,Zr)O<sub>2</sub> を主固相とする試料からの U の溶解は UO<sub>2</sub> を主固相とする試料に比べ低かった。

【謝辞】 本研究は JSPS 科研費 23KJ1187, 24K01403 の助成を受けたものです。

References : [1] R. Tonna ら, Nucl. Eng. Technol. **55**, 4 (2023) [2] R. Tonna ら, 原子力学会 2023 年秋の年会, 1D05

\*Ryutarō Tonna<sup>1</sup>, Taishi Kobayashi<sup>1</sup>, Takayuki Sasaki<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Kyoto Univ.