

表面・界面効果を考慮した熔融燃料中の揮発性核分裂生成物の挙動評価 (2) イットリア安定化ジルコニアと CsI の相互作用ならびに CsI の熔融状態観察

Behavior characterization of volatile fission products in meltdown nuclear fuels by a method in consideration of surface and interface effects

(2) Observation of molten CsI behavior on yttria-stabilized zirconia

*石井大翔¹, 黒崎健^{1,2}, 村上幸弘³, 大石佑治¹, 牟田浩明¹, 宇埜正美³, 山中伸介^{1,3}

¹大阪大学大学院工学研究科, ²JST さきがけ, ³福井大学附属国際原子力工学研究所

ヨウ化セシウム (CsI) の熱化学特性に及ぼす表面・界面効果を検討することを最終目的として、今回は、イットリア安定化ジルコニア (YSZ) 上で熔融した CsI の濡れ性を評価した。

キーワード: 濡れ性, イットリア安定化ジルコニア, ヨウ化セシウム

1. 緒言, 実験方法

主要な揮発性核分裂生成物であるセシウム (Cs) とヨウ素 (I) の燃料からの放出挙動を明らかにすることは、シビアアクシデント時のソースターム評価の精度向上に貢献する。これまでの研究で、ヨウ化セシウム (CsI) が二酸化ウラン (UO₂) 多結晶の表面で熔融する際、極めて良好に濡れ広がることが確認されている^[1]。この現象は、CsI や UO₂ の表面エネルギー及び両者間の界面エネルギーの大小関係によって引き起こされている。我々は、固体表面や異相との界面における過剰エネルギーが、CsI の熱化学的特性、ひいては燃料からの放出挙動に影響を与える可能性があると考えている。本研究では、固体の表面エネルギーが CsI の熔融挙動、濡れ性に与える影響を評価することを目的として、面方位の異なるイットリア安定化ジルコニア (YSZ) の単結晶 (面方位は、(100)と(111)) 上で CsI を熔融させ、その挙動を直接観察することとした。さらに、CsI の他に、表面張力の値が CsI と近い B₂O₃ についても同様の試験を実施した。

実験方法の概要は、以下の通りである。アルゴン雰囲気下、20 [°C/min]の昇温速度で CsI と B₂O₃ をそれぞれ YSZ(100)と(111)上で加熱、熔融させた。熔融させた CsI と B₂O₃ 液相の YSZ(100)、(111) 上での接触角を測定することで、濡れ性を検証した。表面エネルギーが熔融物性に与える影響を定性的に評価することを目的として、Young の式 ($\gamma_{sv} = \gamma_{lv} \cos \theta + \gamma_{sl}$, γ_{sv} :基板の表面エネルギー, γ_{lv} :融体の表面張力, γ_{sl} :界面エネルギー, θ :接触角) を用いて熔融物と基板の間に作用する界面エネルギーを算出した。これに加えて、CsI と B₂O₃ との熔融挙動の違いを融体構造から考察した。

2. 結果, 考察

YSZ 単結晶上で CsI と B₂O₃ を熔融させた際に得られた液相の概観写真を図 1 に示す。CsI は熔融後、YSZ 単結晶上で直ちに濡れ広がった。YSZ(100)と(111)との接触角は、それぞれ、1.5°、0.8°と測定された。CsI はイオン結合性の結晶であり、熔融した際はイオン融体となる。高い濡れ性の理由の一つに、熔融時に表面エネルギーが最小となるように、原子の再配置が起こる構造緩和^[2]が起きたことが挙げられる。一方、B₂O₃ を熔融させた際には、CsI のように濡れ広がることはなかった。また、図 1 から確認できるように、YSZ(100)との接触角が(111)と比べて小さくなった。B₂O₃ は、熔融後も固体状態の構造をある程度保持することが報告されており^[3]、このような融体構造の差が、CsI と B₂O₃ で濡れ性が大きく異なった理由の一つだろうと考えている。本研究は、文部科学省原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブにより実施された「表面・界面効果を考慮した熔融燃料中の揮発性核分裂生成物の挙動評価」の成果を含みます。

参考文献

[1] 黒崎健, JST, 文部科学省原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ, 240404, <http://www.jst.go.jp/nuclear/research/240404.html>.

[2] 田中敏弘, ふえらむ, Vol.15, No. 1, P.24-29 (2010). [3] M. Miyake *et al.*, J. Chem. Soc., Faraday Trans. 1, 80, 1925-1931 (1984).

*Hiroto Ishii¹, Ken Kurosaki^{1,2}, Yukihiro Murakami³, Yuji Ohishi¹, Hiroaki Muta¹, Masayoshi Uno³ and Shinsuke Yamanaka^{1,3}

¹Osaka University, ²JST PRESTO, ³University of Fukui

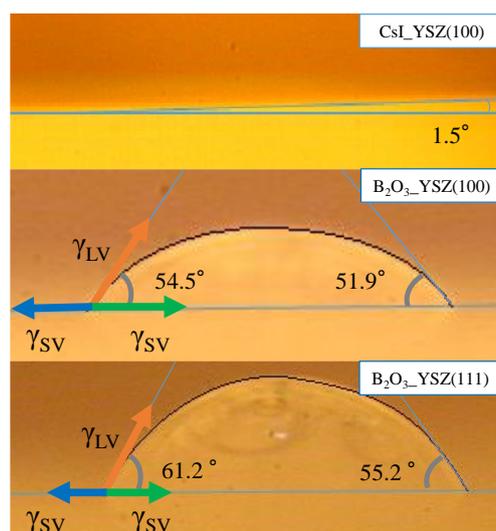


図 1 YSZ 単結晶上で熔融させた CsI と B₂O₃ の外観写真