

処分環境下におけるジルカロイの腐食の活性化エネルギー

Activation energy of Zircaloy corrosion under disposal conditions

*桜木 智史¹, 加藤 修², 吉田 誠司², 建石 剛³

¹原環センター, ²神戸製鋼所, ³コベルコ科研

地層処分後の燃料被覆管の腐食挙動を評価するため、処分環境を模擬した溶液中でジルカロイ 4 の腐食によって生成する水素量を 30 から 80℃の温度範囲で測定した。放物線則に基づく腐食速度定数とそのアレニウスプロットから求めた腐食の活性化エネルギーは 84.4 ± 8.4 kJ/mol であった。

キーワード：TRU 廃棄物、地層処分、ジルカロイ、腐食、活性化エネルギー

1. 緒言

使用済みの燃料を再処理した際に発生する被覆管は TRU 廃棄物として地層処分される予定であり、処分後の安全評価において核種や水素ガス発生観点から、ジルカロイの腐食挙動が重要である。原子炉内の温度領域 (260℃から 400℃) では、ジルカロイの腐食増量の 3 乗は時間に比例することが知られているが ($dW^3=k_p t$) [1]、より低温である処分環境では放物線則である可能性が示唆されている[2]。本報告では、ジルカロイ 4 の腐食速度定数を、ガスフロー法による連続的な水素発生量から測定し、30 から 80℃の温度範囲におけるアレニウスプロットから腐食の活性化エネルギーを求めた。

2. 実験

ジルカロイ 4 を所定のサイズ・厚さに加工し、表面研磨した。金属容器内をテフロンコーティングし、ジルカロイを NaOH 水溶液 (pH 12.5) に浸漬させた。容器内にアルゴンをキャリアガスとして通気させ、キャリアガス中の水素濃度を 90 日間連続的に測定した。

3. 結果と考察

水素発生量の経時変化はおおむね放物線則に従った。Zr + 2H₂O = ZrO₂ + 4H の反応を仮定することで、水素量から腐食増量 dW (g/m²) を算出し、放物線則の腐食速度定数 k_p ($dW^2=k_p t$, t =腐食時間) を求めた。図 1 に k_p と温度の逆数との関係を示す。アレニウスプロットは良い直線性を示し、その傾きから活性化エネルギー E_a ($k_p=A\exp(E_a/RT)$) は 84.4 ± 8.4 kJ/mol と求められた。これは原子炉運転温度での 3 乗則の E_a (113 kJ/mol [1]) より小さい。以上より、酸化膜の成長していない腐食初期 (遷移点まで) については、処分環境温度での腐食は炉内腐食に比べると比較的単純な物質移行プロセス (拡散律速) で説明できることが示唆された。

※本発表は経済産業省資源エネルギー庁からの委託事業であ

る平成 28 年度「地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発」の成果の一部である。

参考文献

[1] Hilner E., Zirconium in the Nuclear Industry, 3rd Int. Symp., ASTM STP 1977; 633: 211-235.

[2] Sakuragi et al., Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 2013; 1518: 173-178.

*Tomofumi Sakuragi¹, Osamu Kato² Satoshi Yoshida² and Tsuyoshi Tateishi³

¹Radioactive Waste Management Funding and Research Center, ²Kobe Steel, Ltd., ³Kobelco Research Institute, Inc.

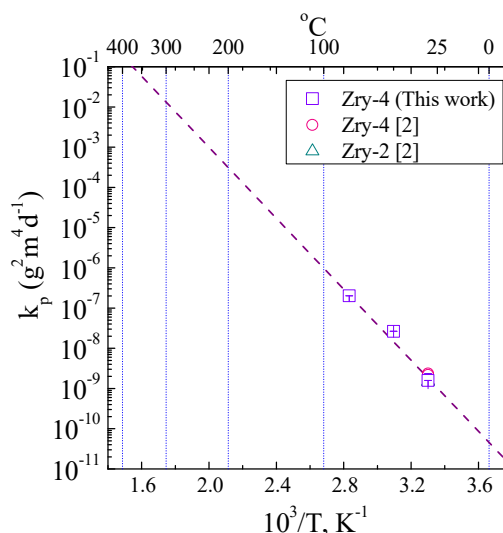


図 1 水素測定で得られたジルカロイの腐食速度定数のアレニウスプロット