

核分裂生成物化学挙動の解明に向けた基礎基盤研究

(1) 熔融制御棒ブレード中に生成するホウ素化合物の酸化及び蒸発挙動評価

Fundamental Research on Fission Product Chemistry

(1) Evaluation of oxidation and vaporization behavior of Boron compound formed in molten control rod blade

*井元 純平¹、Di Lemma Fidelma Giulia¹、三輪 周平¹、高野 公秀¹、逢坂 正彦¹

¹ 日本原子力研究開発機構

軽水炉シビアアクシデント時に BWR 制御棒ブレードが熔融・崩落することで生成される Fe-B 系化合物からのホウ素の放出挙動を実験的に評価した。Fe-B 系化合物の酸化速度は、B₄C よりも低くなり、Fe-B 系化合物からのホウ素蒸発抑制効果を B₄C との比較により実証した。

キーワード：制御棒、ホウ素、ホウ化鉄、ホウ化ジルコニウム、酸化挙動

1. 緒言

軽水炉シビアアクシデント (SA) 時のソースターム評価精度向上や福島第一原発炉内の核分裂生成物 (FP) 挙動評価のための基礎知見の拡充に資するため、セシウム (Cs) やヨウ素 (I) 等の放出移行に影響を与える FP の化学挙動を評価し、モデル化するための基礎基盤研究を実施している。Cs や I は、BWR 制御材ホウ素 (B) と反応して CsBO₂ やガス状 I が生成する[1]こと等により移行挙動が変化するため、B の放出移行挙動を把握することが重要である。BWR 制御棒ブレードは、SA 時にはステンレス鋼製の被覆管等との共晶反応により燃料集合体に先行して熔融・崩落し、チャンネルボックス等のジルカロイとも反応して(Fe,Cr,Ni)B、ZrB₂等の多種多様な B 化合物を含む熔融体を形成すると言われている[2]。熔融体からの B 放出速度の評価には、現状 B₄C からの放出速度より求めた既存の放出モデルが使用されているため、不確かさが大きい。そこで、熔融体の代表的な組成の一つである Fe-B 系化合物からの B の放出挙動を明らかにするために、Fe-B 系化合物を調製し、熱分析により酸化及び蒸発挙動を実験的に調べた。

2. 実験方法

化学組成の異なる FeB、Fe₂B 焼結体を調製し、ガス吸着法による表面積測定結果と熱分析による重量変化結果をもとに酸化・蒸発挙動を調べた。焼結体は、FeB 及び Fe₂B の各々の粉末を約 450 MPa で成形し、4%H₂-Ar ガスフロー中で、それぞれ 1473 K および 1273 K で 3 時間焼結することにより調製した。熱重量・示唆熱分析 (TG-DTA) は、保持温度を 1173 K ~ 1373 K とし、保持温度に到達した後に Ar ガス雰囲気から露点約 70°C の水蒸気雰囲気へ切り替えることで実施した。試験中は酸化による重量増加と蒸発による重量減少が同時に生じるため、水蒸気雰囲気切り換え時点の重量を基準として初期の重量増加は酸化のみに起因すると仮定して酸化速度を算出した。この際、表面積の変化は無いとした。

3. 結果および結論

図 1 に算出した FeB 及び Fe₂B 焼結体と B₄C 焼結体及び粉末[3]の比表面積と酸化速度を示す。FeB 及び Fe₂B 焼結体の酸化速度はほぼ同じであり、B₄C の酸化速度に比べ、数桁低いことが分かった。Fe-B 系化合物からの B の放出は、表面に形成された B₂O₃ や Fe-B-O 系化合物のうち、B₄C と同様に液相の B₂O₃ が水蒸気と反応して蒸発することにより生じる可能性を以前報告している[4]。本実験結果は、FeB や Fe₂B では液相 B₂O₃ の生成速度が低くなることを示している。すなわち、熔融体中の安定な Fe-B-O 系化合物生成[4]のほか、液相 B₂O₃ の生成抑制による B 蒸発抑制効果により、現状の B₄C による放出モデルより B 放出速度が低下する可能性を確認した。今後、上記の SA 解析評価への取り込みについて、検討を進める。

参考文献

[1] S. Miwa, et al., PNE, 92 (2016) 254、[2] M. Steinbrück et al., FZKA 6980, 2004、[3] M. Steinbrück et al., FZKA 6979, 2004、[4] Di Lemma ら、原子力学会 2016 秋 2B17

*Junpei Imoto¹, Fidelma Giulia Di Lemma¹, Shuhei Miwa¹, Masahide Takano¹, Masahiko Osaka¹

¹Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

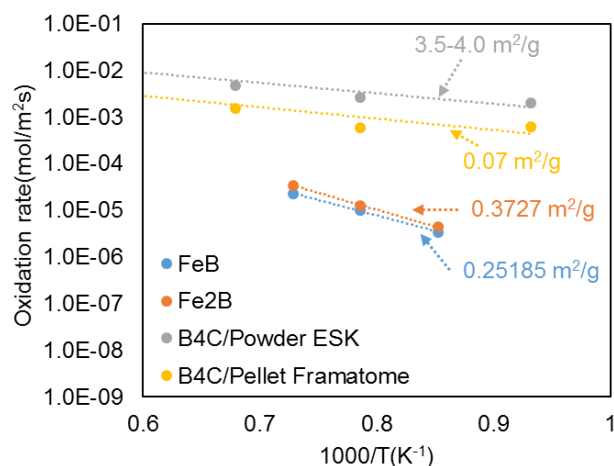


図 1 B₄C と Fe-B 系化合物の酸化速度の比較