

東京電力福島第一発電所事故におけるセシウムの化学的挙動に関する検討

(5) 気相中凝固プロセスによる不溶性 Cs 粒子の生成試験

Investigation of in-reactor cesium chemical behavior

in TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident

(5) Simulation Study on Cs-bearing formation with vaporized Si and Cs

*鈴木晶大¹、伊東賢一²、西岡俊一郎^{3,4}、逢坂正彦^{3,4}

¹NFD、²東京電力 HD、³原子力機構、⁴IRID

高温で蒸発させた Cs と Si を、高温水蒸気気相中で反応・凝固させることにより、Cs, Si を含む数ミクロンの球形粒子が生成することがわかった。これにより、環境で確認された不溶性セシウム粒子（タイプ A 球状粒子）が高温気相中の反応・凝固プロセスによって生成する可能性を検証した。

キーワード：不溶性セシウム粒子、エアロゾル成長、気相中反応凝固プロセス、Si 蒸気、Cs 蒸気

1. 緒言

環境中にて発見された不溶性セシウム粒子のうち、数ミクロンサイズの球形粒子という特徴をもつ粒子（タイプ A 球状粒子）は、ガラス質の内部まで Cs が侵入した形態を持っており[1]、福島第一発電所内の高温過程で生成したと考えられる。また、ほぼ真球に近いことから、高温気相中で液相ミストを形成・成長し、壁面や底面に触れることなく凝固したものと考えられる。本研究では、1F2 号機 RPV 内における気相中凝固プロセスによってタイプ A 球状粒子が生成する可能性について、模擬試験による検証を行った。

2. 気相中反応凝固試験

1500～1700℃の水蒸気含有雰囲気中にて Cs 材(炭酸セシウム)及び Si 材(石英)から蒸発させたセシウムとシリコンを、十分な体積を持つ気相中で成長・凝固させ、生成したエアロゾルを粘着テープで回収し SEM-EDS 観察を行った。

雰囲気と Cs 材/Si 材比を変えて試験を行ったところいずれの条件でも Cs を含有した Si-O 粒子が生成したが、 H_2+H_2O (露点 10℃)雰囲気下では球形のものがほとんど生じなかったのに対し、 $Ar+H_2O$ (露点 30℃)ではすべて真球に近い球形粒子(図 1)となり、水蒸気雰囲気下で選択的に蒸発する $Si(OH)_4$ が球形粒子を生成する可能性が高い。また、 $Ar+H_2O$ 下で生成する球形粒子の Cs 比と粒径の関係を図 2 に示す。生成した粒子に含まれる Cs 比が大きいほど粒径が大きくなっており、これは Cs 含有によるガラスの低融点化により、凝固するまでの成長時間が長くなったことに起因すると考えられる。また、一定の Cs 添加割合においては、生成する球形粒子の粒径が 1 ミクロン程度に集中することがわかった。

以上により、タイプ A 球状粒子が高温気相中の反応・凝固プロセスによって生成する可能性を検証するとともに、事故進展中の粒子生成タイミング及び生成収量についての知見を得た。

参考文献 [1] N. Yamaguchi, et al., Sci. Rep. DOI: 10.1038/srep20548, 2016

謝辞 本研究は、経済産業省「平成 27 年度補正予算廃炉・汚染水対策事業費補助金(総合的な炉内状況把握の高度化)」の研究の一部を含む。

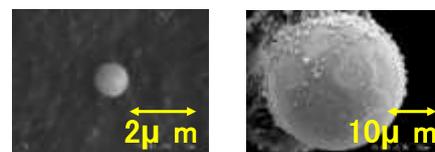


図 1 模擬試験で生成した粒子

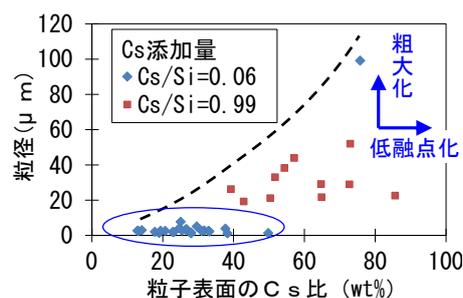


図 2 粒子の Cs 比と粒径の関係

* Akihiro Suzuki¹, Kenichi Ito², Shunichiro Nishioka^{3,4}, Masahiko Osaka^{3,4} (1.NFD, 2.TEPCO, 3.JAEA, 4.IRID)