

東京電力福島第一発電所事故におけるセシウムの化学挙動に関する検討

(8) ステンレス鋼の水蒸気酸化に伴う Si の挙動

Investigation of in-reactor cesium chemical behavior in TEPCO's

Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident

(8) Behavior of Si in oxide layer on stainless steel

鄭 立春¹, 細井 一矢¹, *植田 滋¹, 高 旭¹, 北村 信也¹, 小林 能直², 逢坂 正彦^{3,4}¹東北大学, ²東京工業大学, ³日本原子力研究開発機構, ⁴国際廃炉研究開発機構

福島第一原子力発電所の事故により生成した不溶性 Cs 含有粒子の Si 供給源は明らかになっていない。炉内の構造材料および制御棒に用いられているステンレス鋼は Si を含有するため、その供給源となる可能性がある。本研究では、1200°C水蒸気含有雰囲気中で生成したステンレス鋼酸化相および Si の挙動を観察し、Si の気相への移行挙動について考察した。

キーワード：ステンレス鋼、シリコン、酸化物

1. 緒言 シビアアクシデント下において原子炉内ではフィッションプロダクトである Cs が発生し、SiO₂ を含む不溶性放射性酸化物が生成したことが知られている。原子炉内の構造材として Si を多く含むステンレス鋼が用いられていることから、複合酸化物中の SiO₂ の供給源である可能性がある。そこで本研究では、高温で水蒸気酸化されたステンレス鋼の酸化相組織及び Si の分布と存在状態に対する酸化条件の影響を調査することを目的とし、実験を行った。

2. 実験方法 厚さ約 2mm の 1.0wt%Si を含有する SUS304 試料を、縦型管状電気抵抗炉を用いて加熱し反応させた。予め炉の温度を 1000~1300°Cの任意の温度に保ち、試料を 60~180min 等温保持した。雰囲気は H₂/H₂O/Ar 混合ガスを用いて制御した。SEM-EDS 及び (FE-)EPMA を用いて酸化相組織と Si の分布と酸化状態を観察した。

3. ステンレス鋼の酸化挙動 Fig. 1 に、1200°Cの H₂O/Ar 雰囲気中で 60min 加熱した試料断面を示す。組成の異なる酸化相が二層形成されており、表面側に Fe 系酸化物のみからなる外部酸化相が形成し、金属相と接している内部酸化相は Fe-Cr 系酸化物や Ni-Fe 系金属相、及び Si 系酸化物からなることがわかった。また、金属相中には酸化相との界面付近に SiO₂ が析出した。加熱時間が 60, 90min の結果において、酸化相中の Si は Fe₂SiO₄ として存在し、加熱時間が長くなるにつれ、SiO₂ へと酸化された。一方、H₂/H₂O/Ar 混合ガス条件では酸化相は Cr 系酸化物の薄い単相を形成し、酸化の様子が全く異なった。この時 Si は酸化相と金属相との界面付近の金属相中に SiO₂ の状態で析出していることがわかった。

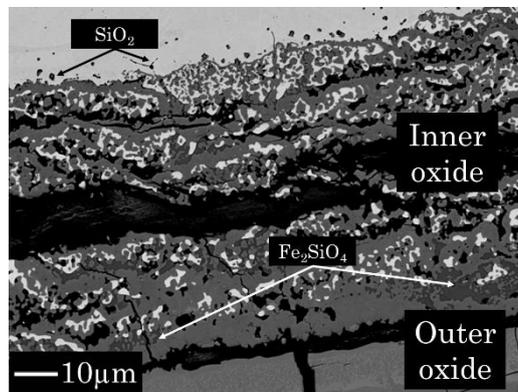


Fig.1 Cross section of sample oxidized in H₂O/Ar atmosphere for 60min

4. 結論 加熱条件によって酸化相中の Si の状態と分布が全く異なることがわかった。酸化相中の Si の状態は主に SiO₂ であるが、水蒸気を含む雰囲気条件下では、酸化相中の Si は一時的に Fe₂SiO₄ として存在することが明らかになった。

—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)」の一部として実施した。

参考文献[1] Masao KIKUCHI, Sanyo Technical Report Vol.21 (2014) No.1

*Shigeru Ueda¹, Zheng Lichun¹, Kazuya Hosoi¹, Gao Xu¹, Shin-ya Kitamura¹, Yoshinao Kobayashi² and Masahiko Osaka^{3,4}

¹Tohoku Univ., ²Tokyo Institute of Technology, ³JAEA, ⁴IRID