

MCCIにより生成したジルコンを用いた燃料デブリの生成環境の解析

(1) MCCI 時の温度、組成によるジルコン生成への影響

Analysis of environments of fuel debris formation with zircon generated by MCCI

(1) Effect of temperature and composition on zircon generated by MCCI

*北垣 徹¹, 堀江 憲路², 竹原 真美², 大貫 敏彦^{1,3}

¹ 日本原子力研究開発機構, ² 国立極地研究所, ³ 東京工業大学

福島第一原子力発電所 (1F) 事故時の熔融燃料とコンクリートの相互作用 (MCCI) で生成した $ZrSiO_4$ (ジルコン) を用いた、MCCI により生成する熔融プールの環境条件の推移を解析する手法の開発の一環として、種々の条件下で U を含まない模擬 MCCI 生成物を作製し、ジルコンの生成状態を確認した。

キーワード : 福島第一原子力発電所事故, 燃料デブリ, ジルコン, 結晶成長, MCCI

1. 緒言

MCCI により生成する熔融プール中において、ジルコンは地質環境と同様に、熔融プールの温度に応じて Ti、酸素分圧に応じて Ce 等を取り込み結晶成長すると推定しており、本特性を用いて、MCCI 生成物中のジルコンに含まれる Ti や Ce 等の濃度分布から、1F 事故時の熔融プール中の温度や酸素分圧の推移を解析する手法を開発している。本研究の一環として、ここでは 1F の MCCI 条件を想定した U 以外の炉心材料及びコンクリート材料組成の下、加熱温度、 SiO_2 に対する ZrO_2 の割合 (ZrO_2 / SiO_2) をパラメータとして模擬 MCCI 生成物を作製、生成相や微細組織を確認し、これらによるジルコン生成への影響を確認した。

2. 実験方法

1F の MCCI 生成物の組成を想定した U 以外の炉心材料及びコンクリート材料組成の下、加熱雰囲気を大気雰囲気とし、1000~1500°C までの間の 100°C 毎の温度条件で 5 時間程度ずつ加熱、 ZrO_2 / SiO_2 を物質比で 1/20、1/5、1/2 とした原料粉末を用いて模擬 MCCI 生成物を作製した後、作製した試料の樹脂埋め・切断・鏡面研磨を行った。また、生成相の特定のため、SEM/EDS を用いて鏡面研磨した試料断面の微細組織観察や生成相の元素組成分析を行うとともに、粉末 X 線回折装置を用いた結晶構造解析を実施した。

3. 実験結果及び考察

1000~1200°C で加熱した試料に有意な熔融は認められず、1300~1500°C で加熱した試料は有意に熔融し、右下図に示す様にジルコン結晶の生成を確認した。熱力学平衡計算により推定した本実験の組成のコンクリート相の固相温度は 1160°C であったことから、1200°C 以下ではコンクリート相の熔融が限られるか、熔融しなかったと考えられる。1300~1500°C の温度域において、温度により異なる生成相を確認したが、ジルコン生成への影響については確認されなかった。1300~1500°C で加熱し、 ZrO_2 / SiO_2 が 1/20 の試料中で確認されたジルコンは、高 ZrO_2 濃度条件と比べて結晶の角は丸く、結晶同士の固着具合が大きい傾向にあった。また、ジルコン中には ZrO_2 の結晶粒が含まれ、 ZrO_2 / SiO_2 が 1/20、1/5 の試料では、確認された ZrO_2 はすべてジルコン中に含まれていたことから、ジルコンは ZrO_2 を結晶核として成長したと考える。ジルコン中に含まれる Al、Ca、Fe の含有割合と、温度や ZrO_2 / SiO_2 の相関は確認されなかった。

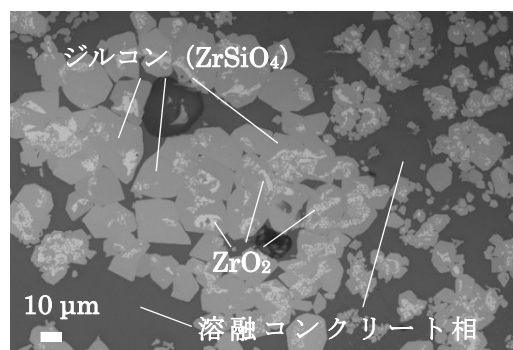


図 模擬 MCCI 生成物断面の反射電子像 ($ZrO_2 / SiO_2 = 1/5$ 、大気雰囲気、1400°C、5 時間加熱)

*Toru Kitagaki¹, Kenji Horie², Mami Takehara² and Toshihiko Ohnuki^{1,3}

¹Japan Atomic Energy Agency, ²National Institute of Polar Research, ³Tokyo Institute of Technology