

シビアアクシデント時の原子炉内におけるセシウム分布・性状の予測 (3) Cs 化学吸着生成物の化学形態評価

Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident

(3) Chemical forms of Cs chemisorbed products

*鈴木 恵理子^{1,2}, 中島 邦久¹, 三輪 周平¹, 逢坂 正彦¹, 橋本 直幸², 磯部 繁人², 岡 弘²

¹JAEA, ²北海道大学

原子炉内の構造材に化学吸着したセシウム (Cs) の性状評価に資するために、過去に実施したステンレス鋼への Cs 化学吸着実験、熱力学データの整備及び熱力学平衡計算の結果を取り纏めるとともに、微細組織観察による酸化層内部の化学形態の調査を実施し、温度条件及び酸化層内の位置ごとの Cs 化学吸着生成物の化学形態を評価した。その結果、873~973 K では Cs-Fe-O 系、973~1273 K では Cs-Fe-Si-O 系、1073~1273 K では Cs-Si-O 系といった異なる化合物が生成することが分かった。

キーワード: セシウム化学吸着, ステンレス鋼, ECUME

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) 事故時の原子炉圧力容器内の Cs 性状のより正確な評価のためには、原子炉内構造材への Cs 化学吸着により生成した Cs 化合物の化学形態に係る知見が重要となる。過去の米国での研究では、構造材である 304 ステンレス鋼 (SUS304) への Cs 化学吸着により、1030~1270 K で Cs-Si-O 系化合物 ($\text{Cs}_2\text{Si}_4\text{O}_9$ や $\text{Cs}_2\text{Si}_2\text{O}_5$) が生成する可能性が報告されている[1]。しかしながら、温度条件が限定されており、また、化学形態の同定には至っていなかった。本研究では、軽水炉シビアアクシデント時に想定される条件下で化学吸着した Cs の化学形態の把握を目的として、過去に実施した 873~1273 K における SUS304 への Cs 化学吸着実験結果[2-3]、及び Cs 化学吸着実験で新たに明らかとなった Cs 化学吸着生成物の熱力学データを用いた熱力学平衡計算の結果[4]を取り纏めるとともに、これまで不明であった酸化層内部の化学形態を微細組織観察を行うことで調査し、各温度条件及び酸化層内の位置における化学形態を評価した。

2. 実験方法

Cs 化学吸着実験では、873、973、1073、1273 K で 3 時間、Ar-5% H_2 -5% H_2O 雰囲気下で SUS304 へ CsOH 蒸気を反応させ、SEM/EDS、XRD、HAXPES 等を用いて Cs 化学吸着生成物の化学形態を分析した[3]。さらに本件では、TEM/EDS を用いて酸化層内部の Cs 化学吸着生成物の化学形態を分析した。また、Cs 化学吸着実験で明らかとなった化学形態のうち、熱力学データが未知であった Cs 化学吸着生成物について、第一原理計算により熱力学データを整備した[4]。整備した熱力学データを用いた熱力学平衡計算結果を基に、各温度条件において、安定となる Cs 化学吸着生成物の化学形態を評価した。

3. 結果

反応後の分析の結果、SUS304 に数十 μm 厚さの酸化層が形成され、酸化層表面付近から内部にかけて Cs が分布することが分かった。図 1 に、各温度条件及び酸化層内の位置における Cs 化学吸着生成物の化学形態を示す。Cs 化学吸着実験の結果、873~973 K では Cs-Fe-O 系、973~1273 K では Cs-Fe-Si-O 系、1073~1273 K では Cs-Si-O 系化合物が生成することが分かった。熱力学平衡計算の結果においても、約 1023 K 以下では CsFeO_2 が、約 1053 K 以上では CsFeSiO_4 が安定な化合物であることが分かった。これらの結果から、1F 原子炉内で想定される温度条件において化学吸着した Cs は、原子炉内の温度条件及び酸化層内の位置によって異なる化学形態を持つ可能性があることが示された。

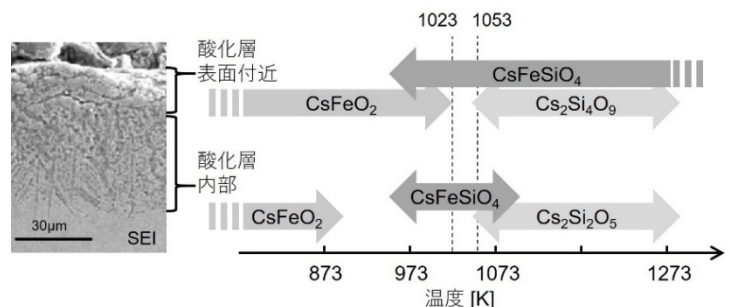


図 1 各温度条件における Cs 化学吸着生成物の化学形態

参考文献

[1] R. M. Elrick et al., NUREG/CR-3197 vol.1, SAND83-0395 (1984). [2] M. Kobata, et al., J. Nucl. Mater., 498, 387-394 (2018). [3] S. Nishioka, et al., J. Nucl. Sci. Technol., 56, 988-995 (2019). [4] F. Miradji, et al., Proc. of ERMSAR2019, 047 (2019).

*Eriko Suzuki^{1,2}, Kunihisa Nakajima¹, Shuhei Miwa¹, Masahiko Osaka¹, Naoyuki Hashimoto², Shigehito Isobe² and Hiroshi Oka²

¹JAEA, ²Hokkaido Univ.