UO_2 および Fe-Zr 融体と CsOH 蒸気との化学的相互作用

Chemical interaction of CsOH vapor with UO_2 and Fe-Zr melts

*中島 邦久[1]，高野公秀[1]

[1]JAEA

1F では、相当量の Cs が炉内にまだ残っていると推定されているため、炉心領域で想定される Cs 蒸気と UO_2 あるいは Fe-Zr 融体との化学的な相互作用の有無を調べた。その結果、Cs_2UO_4 や Cs_2ZrO_3 の生成が確認され、燃料から放出された Cs が UO_2 燃料や Fe-Zr 融体と化学的な相互作用により付着する可能性があることが分かった。

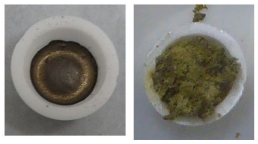
キーワード：セシウム、ウラン、ジルコニウム、化学吸着

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所（1F）では、シビアアクシデント解析コードを用いた解析[1]や汚染水からの逆解析[2]の結果などから相当量のセシウム（Cs）が炉内にまだ残っていると推定されている。一方、Cs はウラン（U）やジルコニウム（Zr）と安定な化合物を形成することから、化学的な相互作用により燃料から放出された Cs が再び UO_2 燃料や Zr が用いられている被覆管などに付着する可能性がある。そこで、これまで着目していなかった炉心領域でのこのような Cs の付着（以下、化学吸着）挙動解明のため、水酸化セシウム（CsOH）蒸気と UO_2 あるいは鉄（Fe）と Zr との共晶反応によって生成する Fe-Zr 融体との化学吸着実験を実施することにした。

実験前　約1273 K　約873 K

(a)UO_2ペレット



実験前　約1273 K

(b)Fe-Zr融体

図 1　化学吸着実験前後試料の外観

2. 実験方法

UO_2 の化学吸着実験では、アルゴン（Ar）-水素（H_2）-水蒸気（H_2O）雰囲気下、約 923 K で CsOH を上流側で蒸発させ、下流側の約 1273K および約 873 K の領域に密度が理論密度の約 95%の UO_2 ペレットを設置し、3 時間加熱した。一方、Fe-Zr 融体の化学吸着実験では、Ar-H_2 雰囲気下、約 1073 K で CsOH を上流側で蒸発させ、下流側の約 1273 K の領域に、あらかじめモル比 Zr：Fe＝5：1 の割合の Zr スポンジ（Nilaco, 99.6%）と Fe シート（Nilaco, 99.99%）を 1373K で溶融させて調製した Fe-Zr 融体を設置し、1 時間加熱した。加熱後試料の Cs 化合物の同定には、X 線回折（XRD）装置を用いた。

3. 結果

化学吸着実験前後試料の外観及び XRD パターンを、それぞれ、図 1 及び図 2 に示す。UO_2 ペレットについては、特に、低温側の試料で Cs が多く吸着し、Cs 化合物である Cs_2UO_4 が同定された。一方、Fe-Zr 融体については、還元雰囲気であったにもかかわらず、Cs 化合物である Cs_2ZrO_3 が同定され、外観からも大きな体積変化が起こることが分かった。したがって、1F の炉心領域でも Cs が溶け残った UO_2 燃料や Fe-Zr 融体に化学吸着し、炉外に放出されずに留まっている可能性があることが分かった。

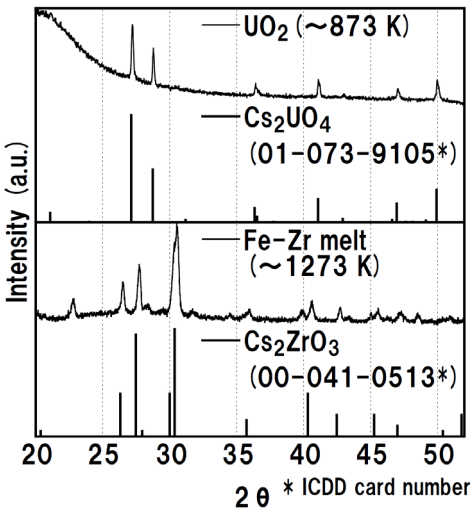


図 2 化学吸着実験後 UO_2 ペレット（～873 K）及び Fe-Zr 融体（～1273 K）の XRD パターン

参考文献

[1] 例えば L.E. Herranz, et al., Nucl. Eng. Des., 369, 110849 (2020). [2] A. Shibata, et al., J. Nucl. Sci. Technol., 53, 1933 (2016).

* Kunihisa Nakajima[1], Masahide Takano[1]　[1]JAEA.