

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01918

研究課題名(和文)核分裂生成物の固体核燃料に対するぬれ性と放出挙動

研究課題名(英文)Wettability and release behaviour of fission products on solid nuclear fuels

研究代表者

黒崎 健 (Kurosaki, Ken)

京都大学・複合原子力科学研究所・教授

研究者番号：90304021

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：固体核燃料と液体核分裂生成物(FP)化学種間のぬれ性に着目し、UO₂をはじめとする蛍石型結晶構造を持つ固体とCsIをはじめとする各種セシウムハライド間のぬれ性評価試験ならびに模擬燃料からのFP放出試験を通じて、ぬれ性と燃料からのFP放出挙動の関係を明らかにすることを目的とした。本研究において、固体酸化物の結晶方位、結晶構造、表面粗さ、および液体セシウムハライドの融体構造、結合様式等をパラメータとして、固液間のぬれ性を総合的に検証した。本研究で得られた全ての結果をもとに、ぬれ性の効果を新たに追加した新しいFP放出挙動モデルを構築・提案した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

1F事故以降、事故の原因究明や発電所を安定化させることを目的として、様々な基礎研究が行われているが、それらの中でも、高揮発性のFPであるCsとIの燃料からの放出挙動を評価することは優先度の高い重要な課題とされている。ところが、公開されているデータのばらつきは大きく、燃料からのFP放出挙動には多くの不確かさが残されている。本研究の着目点であるぬれ性とFP放出挙動を結びつけることができれば、多くの不確かさが残されているFP放出挙動の解明の一助となり、FP放出のソースターム評価や原子炉事故時の放射性物質の放出抑制技術の確立につながる。

研究成果の概要(英文)：Focusing on the wettability between solid nuclear fuels and liquid fission product (FP) chemical species, the objective is to clarify the relationship between wettability and FP release behaviour from fuels through wettability evaluation tests between solids with fluorite-type crystal structures such as UO₂ and various Cs halides such as CsI and FP release tests from simulated fuels. The objective of this study was to clarify the relationship between wettability and fission product release behaviour from fuels.

In this study, the wettability between solid and liquid was comprehensively verified using parameters such as the crystal orientation, crystal structure and surface roughness of the solid oxide, and the melt structure and bonding mode of the liquid caesium halides. Based on all the results obtained in this study, a new fission product (FP) release behaviour model was developed and proposed with the newly added effect of wettability.

研究分野：原子力工学

キーワード：核燃料 ぬれ性 核分裂生成物

1. 研究開始当初の背景

平成 23 年 3 月の福島第一原子力発電所 (1F) 事故において、核分裂生成物 (FP) である放射性セシウム (Cs) と放射性ヨウ素 (I) が環境中に放出され、Cs による周辺環境汚染と I による公衆被ばくを引き起こした。このため、シビアアクシデント時における燃料からの Cs と I の放出挙動を知ることは、現在多数実施されている 1F 関連研究の中でも、最も優先度の高い課題とされている。しかしながら、公開されているデータのばらつきは大きく、とりわけ FP の化学形態や燃料からの放出挙動には多くの不確かさが残されている。

2. 研究の目的

このような背景のもと、我々が実施した先行研究において、液体のヨウ化セシウム (CsI) が固体核燃料である二酸化ウラン (UO₂) に対して接触角ゼロ度で極めて良好にぬれ広がること、ならびに、UO₂ 固体内部深くまで液体 CsI が容易に浸透することを見出した [Kurosaki, K. *et al. Sci. Rep. Article number: 11449 (2017).*]. 固液間のぬれ性は、固体から液体を引きはがすのに必要なエネルギーと密接に関係している。このため、固体 UO₂ と液体 CsI 間のぬれ性が高いことは、固体 UO₂ 表面から液体 CsI を引きはがすのに必要なエネルギーが大きい、すなわち燃料から Cs や I が放出しにくくなることを定性的に示している。しかしながら、いまだこの関係を明確化した研究はなく、また、現時点で、固体 UO₂ と液体 CsI 間の良好なぬれ性の発生メカニズムはわかっていない。

そこで、本研究では、固体核燃料と液体 FP 化学種間の「ぬれ性」に着目し、ぬれ性と燃料からの FP 放出挙動の関係を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

UO₂ ならびにその模擬物質である二酸化セリウム (CeO₂) およびイットリア安定化ジルコニア (YSZ) と各種セシウムハライド (CsI, CsBr, CsCl) を対象として、固液間のぬれ性を実験的に評価する。評価手法としては、静滴法を採用する。静滴法では、電気炉内で、固体基板上で種々の物質を熔融させ、その時の液滴の形状やぬれ角を直接観察する。核燃料物質に対してこれを可能とする装置は、世界で唯一、福井大学のみを設置されており、本研究ではこれを活用する。加えて、ぬれ性に大きな影響を及ぼす固液間の界面状態と化学反応の有無を評価するために、北海道大学で、CeO₂ 系と YSZ 系を対象として、TEM を用いて、界面近傍の極微構造を観察・評価する。

4. 研究成果

(1) 各種セシウムハライドの各種酸化物に対するぬれ性の評価

UO₂、CeO₂、二酸化チタン (TiO₂)、YSZ、酸化マグネシウム (MgO) の多結晶ならびに種々の方位の YSZ 単結晶を固体基板とし、その上で CsI、CsBr、CsCl を熔融させることで、固液間のぬれ性を直接観測した。その結果、UO₂ と同じ蛍石型の結晶構造をとる YSZ や、ルチル型の結晶構造をとる TiO₂ の表面においても、液体セシウムハライドが極めて良好に濡れ広がることが明らかとなった。一方で、MgO 表面においては、いずれの液体セシウムハライドも固体表面に対して一定の接触角を保持し、良好に濡れ広がらないことが明らかになった。UO₂、YSZ、TiO₂

は非化学量論性を有する一方で、 MgO は金属と酸素の比が固定された化学量論性の酸化物である。このことから、我々は、固体表面に形成される酸素欠陥が、液体セシウムハライドの特異な濡れ挙動に影響を与えているものと推察している。以上の結果をもとに、固体表面の種々の状態（酸素欠陥、凹凸、粒界の有無等）とぬれ性の間の相関を定量的に評価することができた。

(2) ヨウ素酸セシウムの UO_2 多結晶固体表面での挙動評価

CsI の酸化物であり、酸化物固体表面からは酸素を取り込みにくいと想定されるヨウ素酸セシウム (CsIO_3) の UO_2 多結晶固体表面と $\text{YSZ}(111)$ 面での挙動を調査した。その結果、液体 CsIO_3 が UO_2 多結晶表面と $\text{YSZ}(111)$ 面のいずれの固体表面においても、接触角がほぼ 0° という極めて良好な濡れ性を示すことが明らかになった。さらに、液体 CsIO_3 が UO_2 多結晶に接触すると、表面で Cs のみが限定的に UO_2 と反応し、 I は UO_2 多結晶表面に吸着されるという特殊な挙動を示すことが明らかとなった。このことは、燃料内でとりうる化学種によっては、原子力シビアアクシデント時に燃料から Cs と I が別々に放出される可能性を示唆している。これらの結果をもとに、ぬれ性のみならず科学的反応性の両面から、熔融燃料からの核分裂生成物の蒸発挙動を議論することができた。

(3) 熔融セシウムテルライドの UO_2 多結晶固体表面との相互作用

UO_2 多結晶固体表面における熔融セシウムテルライド (Cs_2Te) の挙動を実験的に直接検証した。その結果、液体 Cs_2Te は UO_2 を U 単体にまで還元するほどの強い還元剤として作用することが明らかとなった。また、熔融した Cs_2Te は UO_2 多結晶内部で $\text{Cs}\cdot\text{Te}\cdot\text{O}$ 系化合物をとして存在する可能性が示唆された。熔融した FPs 化学種が UO_2 を還元するという知見はこれまでに一切報告されておらず本研究により初めて明らかになった。今後、 $\text{Cs}\cdot\text{Te}\cdot\text{O}$ 系化合物の性質に関する知見が拡充されることで、原子力過酷事故時における揮発性核分裂生成物の移行挙動がより詳しく評価されると考えている。

(4) ぬれ性の効果を考慮した FP 放出挙動モデルの構築

UO_2 、 CeO_2 、 YSZ の結晶方位、結晶構造、表面粗さ、 CsI 、 CsBr 、 CsCl の融体構造、結合様式、さらには固体ならびに液体の表面エネルギー、固液界面エネルギー等をパラメータとして、固液間のぬれ性を総合的に検証した。これらの結果をもとに、 FP 化学種の蒸発、拡散、移行といった従来からある FP 放出モデルに、ぬれ性の効果を新たに追加した新しい FP 放出挙動モデルを構築・提案した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 石井大翔, 村上幸弘, 大石佑治, 牟田浩明, 宇埜正美, 黒崎健	4. 巻 18
2. 論文標題 液体セシウムハライドの酸化物単結晶表面に対する濡れ性	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本原子力学会和文論文誌	6. 最初と最後の頁 1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3327/taesj.J18.002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 石井大翔, 大石佑治, 牟田浩明, 宇埜正美, 黒崎健	4. 巻 19
2. 論文標題 液体CsI03のU02多結晶固体表面との相互作用	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本原子力学会和文論文誌	6. 最初と最後の頁 147-151
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3327/taesj.J19.017	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Hiroto Ishii, Ken Kurosaki, Yukihiro Murakami, Yuji Ohishi, Hiroaki. Muta, Masayoshi Uno, Shinsuke Yamanaka	4. 巻 55
2. 論文標題 Wettability of liquid cesium iodine and boron oxide on yttria-stabilized zirconia	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Science and Technology	6. 最初と最後の頁 838-842
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00223131.2018.1439413	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Hiroto Ishii, Yuji Ohishi, Hiroaki Muta, Masayoshi Uno, Ken Kurosaki
2. 発表標題 Wettability of liquid CsI on metal-oxide polycrystalline surfaces
3. 学会等名 International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroto Ishii, Yuji Ohishi, Hiroaki Muta, Masayoshi Uno, Ken Kurosaki
2. 発表標題 Wettability of liquid phase caesium compounds against metal oxides including UO ₂ and ThO ₂
3. 学会等名 The Minerals, Metals and Materials Society 2020 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石井大翔, 大石佑治, 牟田浩明, 宇埜正美, 黒崎健
2. 発表標題 液体ヨウ化セシウムの酸化物多結晶固体表面 に対する濡れ性
3. 学会等名 日本原子力学会 2019 年秋の大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石井大翔, 大石佑治, 牟田浩明, 鈴木恵理子, 中島邦久, 三輪周平, 逢坂正彦, 宇埜正美, 黒崎健
2. 発表標題 SUS316 固体表面における液体 CsI の濡れ性
3. 学会等名 日本原子力学会 2020 年春の年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Hiroto Ishii, Yuji Ohishi, Hiroaki Muta, Masayoshi Uno, Ken Kurosaki
2. 発表標題 Wettability of liquid-state caesium halides (CsCl, CsBr, CsI) on single crystalline oxides (YSZ, TiO ₂ , MgO)
3. 学会等名 The Nuclear Materials Conference 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石井大翔, 大石佑治, 牟田浩明, 宇埜正美, 黒崎健
2. 発表標題 液体CsIの酸化物固体表面に対する濡れ挙動の評価
3. 学会等名 次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス(NDEC3)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	宇埜 正美 (Uno Masayoshi) (00232885)	福井大学・附属国際原子力工学研究所・教授 (13401)	
研究 分担者	橋本 直幸 (Hashimoto Naoyuki) (50443974)	北海道大学・工学研究院・教授 (10101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------