

課題名	表面・界面効果を考慮した溶融燃料中の揮発性核分裂生成物の挙動評価		
参画機関	大阪大学、福井大学		
事業規模	期間	平成24～26年度	総額
			88百万円

### 【研究代表者】

黒崎 健

大阪大学 准教授

(環境・エネルギー工学専攻)



### 【研究概要】

シビアアクシデント時における溶融燃料からの核分裂生成物 (FP) の放出挙動の本質を理解するためには、燃料表面あるいは燃料と異相との界面における FP の化学形態を正確に評価することが最優先課題であると考えています。なぜなら、物質の表面・界面近傍においては、系全体の自由エネルギーに対して表面及び界面における過剰エネルギーの寄与が相対的に大きくなり、通常バルクスケールとは異なる相状態を示すようになるからです。本研究では、代表的な揮発性 FP 化学種であるヨウ化セシウム (CsI) 液相が、固体燃料である二酸化ウラン ( $UO_2$ ) 上で接触角がほぼゼロという極めて良好な濡れ性を示すことを見出しました。また、この高い濡れ性に起因して、CsI 液相の蒸気圧が、 $UO_2$  固相表面の影響を受けることで、通常バルク状態と比べて最大で約二割にまで小さくなる可能性があることを示しました。これほどの影響の大きさは、当初の想定以上のものであり、かつ、このような現象の発見は、国内はもとより世界的に見ても前例はありません。本研究は、物質の熱力学量に及ぼす表面・界面効果を定量的に評価した世界で初めての成果であり、これは、原子力分野のみならず、表面・界面における物質の諸特性の理解・制御及びそれらを利用した材料創製といった幅広い材料科学分野全般に対して、大きな波及効果を及ぼすものだと考えています。

### 【その後の取り組み】

現在は、CsI と  $UO_2$  の組み合わせのみならず、広くセシウムハライドと蛍石型固体に対象を広げ、固体上での液体の濡れ性と、それが液体化学種の蒸発・移行挙動に及ぼす影響を、系統的に調べています。つい最近の研究では、塩化セシウムや臭化セシウムの液相が、 $UO_2$  や二酸化セリウム、イットリア安定化ジルコニア上で、CsI と同様に良好な濡れ性を示すことを見出しています。また、これら液相が、多結晶体の粒界を経路として、数十  $\mu m$  にわたって固体内部にまで浸透することも確認しています。

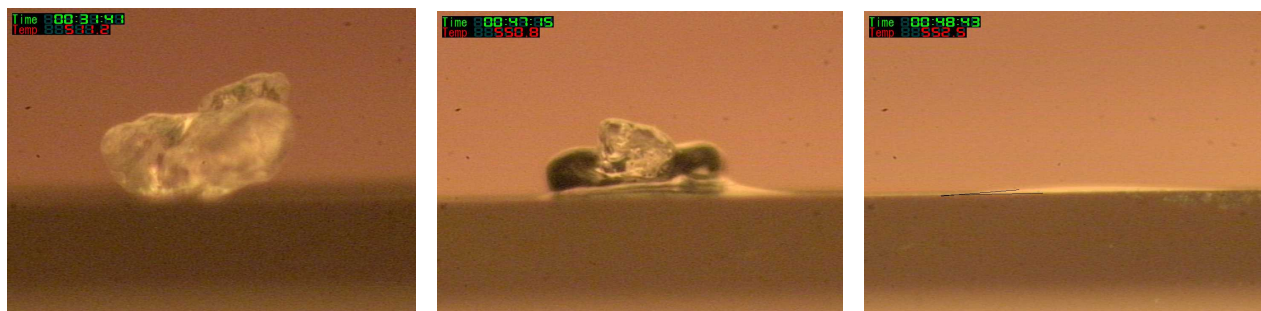


図1 固体  $UO_2$  上での CsI の溶融挙動（静滴法試験結果）

$UO_2$  ペレット上に設置した CsI 固体が溶融することで濡れ広がっていく様子が確認できます。（写真左→右。）最終的な接触角はほぼゼロ度となります。この接触角の値から、 $UO_2$  固体と CsI 液体間の固液界面エネルギーは、 $0.69 \text{ Jm}^{-2}$  と算出されました。この数値を使って、表面・界面エネルギーを考慮した化学平衡計算を行いました。結果は、次の図となります。

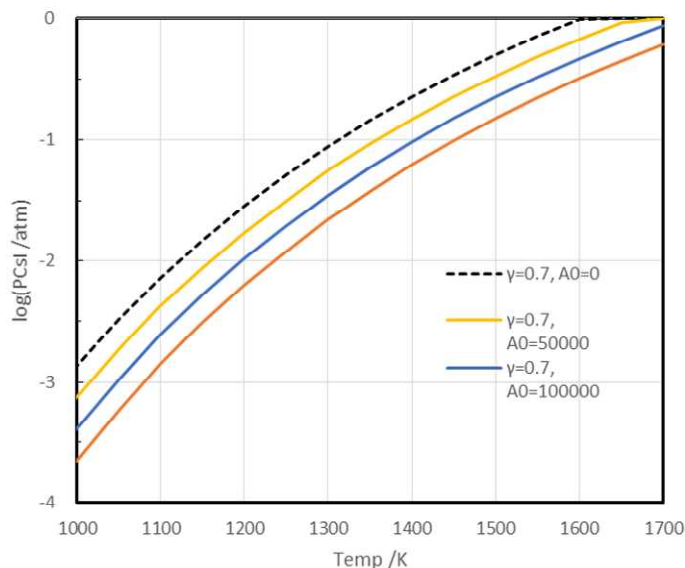


図2 CsI 液体/ $UO_2$  固体の界面効果を考慮した CsI 蒸気圧曲線  
 （点線：表面・界面効果を考慮しない場合の結果、実践：表面・界面効果を考慮した場合の結果）

$UO_2$  固体表面から CsI 液体が蒸発する際、 $UO_2$  固体と CsI 液体間の界面効果によって、CsI の蒸気圧が通常バルク状態と比べて最大で約二割にまで低減する、つまり、蒸発しにくくなることを見出しました。これだけの蒸気圧の低下は、沸点に置き換えると約 300 K の増加に相当します。

代表的な特許、論文受賞など	<p>【出願特許】 該当なし。</p> <p>【発表論文等】 該当なし。 現在、「Ultra-high wettability of liquid caesium iodine with solid uranium dioxide」と題した論文を投稿中。</p> <p>【受賞】 該当なし。</p>
---------------	---