

## 空気/水蒸気混合雰囲気中での被覆管高温酸化挙動に関する研究

Study on high temperature oxidation behavior of cladding in air/steam mixture

\*根本 義之<sup>1</sup>, 加治 芳行<sup>1</sup>,

<sup>1</sup>JAEA

使用済燃料プール(SFP)での冷却水の水位低下や冷却水喪失に起因する事故で想定される、燃料被覆管の高温酸化について、酸化層の詳細な組織観察等に基づき、空気と水蒸気が混合した雰囲気中において、乾燥空気中よりも酸化速度が速くなる原因の検討を行った。

**キーワード**：使用済み燃料プール、燃料被覆管、酸化、事故、安全性

**1. 緒言** ジルコニウム合金製の燃料被覆管は SFP 事故において、空気中、水蒸気中、もしくは空気と水蒸気の混合雰囲気中において、高温で酸化することが想定される。被覆管の酸化は炉内等で想定される水蒸気中よりも、SFP 事故等で想定される空気中の環境において、より速く進むことが知られているが、一方、これまでの発表者らの研究[1]により、被覆管の酸化は乾燥空気中に比較して、空気と水蒸気が混合した雰囲気中において、より速く進む場合があることが示された。本研究ではその原因について検討した。

**2. 試験方法** 20mm 長のジルカロイ 4 (Zry4)被覆管試料を用いた 800°Cでの酸化試験を、空気と水蒸気の混合比を変化させた雰囲気中で、熱天秤を用いて行った。酸化試験後の試料について、走査電子顕微鏡(SEM)による表面観察、酸化層断面の光学顕微鏡観察、レーザー・ラマン分光法による組成分析等を行った。

**3. 結果と考察** 被覆管の酸化が水蒸気中よりも乾燥空気中で速くなる原理は、被覆管表面に酸化の初期に生成した緻密な酸化層に、ある時点で割れが生じ、その割れの内部での酸素欠乏に基づく ZrN 相の生成と Zr の再酸化が繰り返し生じ、局所的に多孔質な酸化層の生成が急激に進むことであると考えられている[2]。本研究においては、空気と水蒸気の混合雰囲気中での被覆管の酸化について詳細を検討し、乾燥空気中での場合と比較した。図 1 に一例として、環境中の酸素原子のモル量が空気由来のものと水蒸気由来のもので 50%ずつになるよう調整した環境中で、800°C、60min の酸化試験を行った。その時の Zry4 試料の表面の SEM 写真及び、表面近傍の断面での光学顕微鏡写真を示す。酸化層表面の割れ及び多孔質な酸化層生成は、乾燥空気中での場合の様に局所的ではなく、全面に見られた。ラマン分光の結果、多孔質な酸化層は単斜晶の ZrO<sub>2</sub> であり、合金と酸化層の界面近傍全体に点在して見られた析出物は ZrN であった。この結果から、空気と水蒸気の混合雰囲気中での酸化が、乾燥空気中よりも速くなる原因は、多孔質な酸化層の生成が局所的でなく、より広い範囲で生じたことであると考えられる。このことには、酸化の初期に合金表面に生成する酸化層の違いが関係している可能性が考えられる。講演では空気と水蒸気の混合比を変化させた環境中で、より短時間の酸化試験を行った試料の酸化層の詳細な観察結果等も紹介し、空気と水蒸気を混合した環境中で、乾燥空気中よりも速く酸化が進む原因について詳細を議論する。

本研究は、経済産業省の「平成 29 年度原子力の安全性向上に資する共通基盤整備のための技術開発事業（重大事故解析手法の高度化）」にて得られた成果の一部を含む。

### 参考文献

[1] Y. Nemoto, et al., “Influence of the Air/Steam Mixing Ratio in Atmosphere on Zirconium Cladding Oxidation in Spent Fuel Pool Accident Condition”, Proc. WRFPM 2017, (2017) A-193.

[2] O. Coindreau, et al., “Air oxidation of Zircaloy-4 in the 600–1000C temperature range: Modeling for ASTEC code application”, J. Nucl. Mater., 405, (2010) pp.207–215.

\*Yoshiyuki Nemoto<sup>1</sup>, Yoshiyuki Kaji<sup>1</sup>,

<sup>1</sup>JAEA

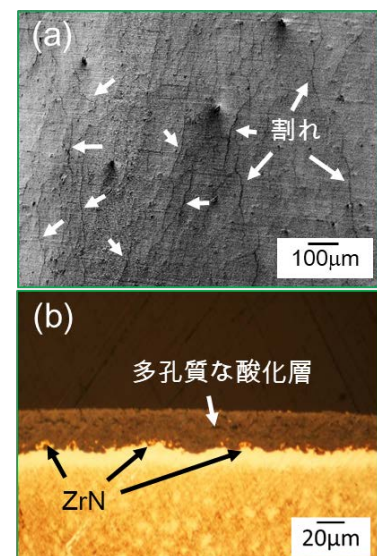


図1 空気 50%、水蒸気 50%の環境中で 800°C、60min の酸化試験を行った Zry4 試料。(a) 表面の SEM 写真、(b) 断面の光学顕微鏡写真。