1F 炉内状況推定のための(U, Zr)O₂ の結晶構造及び微細組織への冷却速度影響試験

(4) Fe、Cr を含む U 含有粒子の冷却速度推定の試み

Relation of Cooling Rate to Crystal Structure and Microstructure of (U, Zr)O₂

(4) Estimation of the Cooling Rate of U-Zr-Fe-Cr-O Particle

*遠藤 洋一¹, 坂本 寛¹, 大内 敦¹, 横山 博紀¹, 溝上 暢人², 平井 睦²

¹NFD, ²東電 HD

U-Zr-Fe-Cr-O 系模擬デブリを異なる冷却速度で冷却し、冷却後の微細組織観察を行った結果、U-Zr-O 相と Cr-Fe-O 相の相分離組織の間隔を利用することで U-Zr-Fe-Cr-O 系の粒子やデブリの冷却速度が推定できる可能性を見出した。

キーワード：福島第一原子力発電所，冷却速度，U-Zr-Fe-Cr-O 系，相分離，拡散係数

1. 緒言

これまで冷却速度と(U, Zr)O₂の結晶構造、微細組織の関係の把握に取り組んできたが、Fe、Cr を含む U-Zr-Fe-Cr-O の 5 元系においても、冷却時の条件の影響を受けた組織を有していると考えられる粒子が見つかっている^[1]。図に示す 2 号機原子炉建屋オペレーティングフロア養生シート領域 30 (以下、2u オペフロ養生シート領域 30) の粒子は、U-Zr-O 相と Cr-Fe-O 相で構成されており、U-Zr-Fe-Cr-O 系溶融体が冷却過程で相分離した粒子と考えられ、析出物サイズが冷却速度に依存する可能性が示唆される。そこで、異なる冷却速度で冷却した U-Zr-Fe-Cr-O 系模擬デブリの微細組織観察を行って、冷却速度を推定する手法を探索した。

2. 手法

2u オペフロ養生シート領域 30 の粒子の組成となるように UO₂、ZrO₂、FeO、Cr₂O₃ の混合粉末を YSZ りつぽ内、Ar (G2) 気流下で完全溶融する 1900 °C において 10 分加熱後、急冷 (冷却速度：1900 から 1200 °C までおよそ 700 °C/分) または徐冷 (冷却速度：5 °C/分) して、断面の SEM/EDS 観察・分析を実施した。

3. 結果

図に採取粒子、模擬デブリの微細組織を比較している。いずれも U-Zr-O 相と Cr-Fe-O 相が入り組んだ相分離組織が観察されたが、その間隔には大きな差があり、2u オペフロ養生シート領域 30 の粒子が最も短く 0.1 μm 程度、急冷した模擬デブリで 1 μm 程度、徐冷した模擬デブリで 10 μm 程度であった。完全溶融し

2u オペフロ養生シート領域30の粒子のTEM像^[1]

本試験で製作した模擬デブリのBSE像

急冷 (700 °C/min 程度) 徐冷 (5°C/min)

図 採取粒子、模擬デブリの微細組織の比較

ている 1900 °C から固相割合が 50% を超えると予測される 1750 °C までに析出物が成長し、析出物の成長は構成元素の平均拡散距離に従うと仮定すると、模擬デブリの観察結果から拡散係数は 10⁻⁹ cm²/s 程度と見積もられた。評価した拡散係数を用いると、2u オペフロ養生シート領域 30 の粒子の冷却速度は約 10³ °C/s と推定され、高温安定相の(U,Zr)O₂ 粒子が観察されている結果と整合した。

参考文献

[1] 1～3 号機格納容器内部調査関連サンプル等の分析結果、2020 年 11 月 26 日 東京電力ホールディングス株式会社

*Yoichi Endo¹, Kan Sakamoto¹, Atsushi Ouchi¹, Hiroki Yokoyama¹, Masato Mizokami², and Mutsumi Hirai²

¹NFD, ²TEPCO HD