

原子燃料被覆管の安全設計基準に資する 環境劣化評価手法に関する研究開発

(受託者) 国立大学法人東北大学

(研究代表者) 阿部弘亨 金属材料研究所

(再委託先) 国立大学法人東京大学、国立大学法人大阪大学、独立行政法人物質・材料研究開発機構、ニュークリア・デベロップメント株式会社

(研究開発期間) 平成 24 年度～27 年度

1. 研究開発の背景とねらい

原子燃料は燃料ペレットと被覆管の2つの物理障壁により放射性物質を閉じ込め、プラント健全性確保の要として機能する。このうち被覆管については通常運転時及び異常過渡時において機能が維持されることが求められ、すなわち炉内環境における腐食、水素化、照射、He 蓄積等の劣化事象が進行しても十分な機械強度を保ち、破断や貫通欠陥に至らないことが要求される。

福島第一原子力発電所事故では、長時間にわたる全電源喪失の結果、高温水蒸気腐食と水素化が進展し、被覆管内圧上昇、燃料-被覆管機械的相互作用が過剰となり燃料破損、熔融に至ったと考えられる。しかし原子炉内に装荷されていた燃焼度の異なる燃料の事故時挙動は不明であり、安全裕度を示すことができなかった。今後のアクシデント・マネジメントに対しては事故時の燃料被覆管の裕度について明確に示す必要がある。しかしこれらの要求に対して燃料被覆管に関する知見は十分ではない。

さらに管形状を有する被覆管の場合、管成形時の圧延処理等による集合組織の形成、管長手方向の応力や歪、さらに被覆管内圧上昇や燃料-被覆管機械的相互作用による周方向応力など、組織や機械的作用に異方性がある。そのため適切な試験法を選択する必要があるが、これまで実施されてきたリング引張試験等の手法は応力分布に実機条件に適合しないことが指摘されており、適切な手法の開発が求められている。

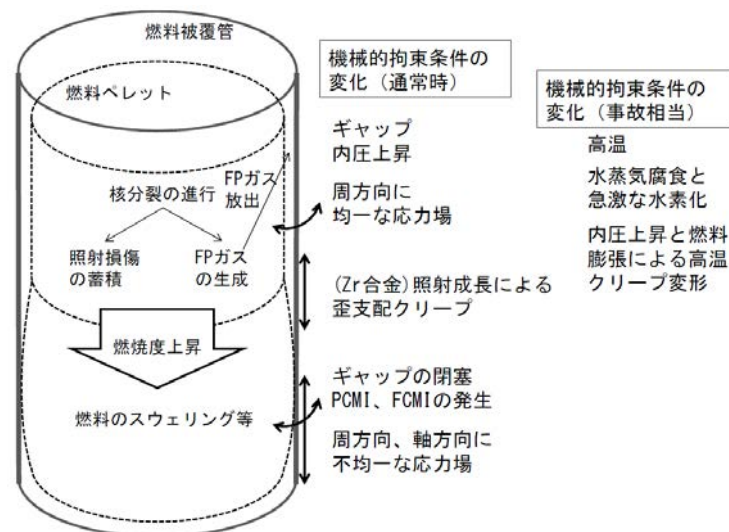


図 1. 燃料被覆管の劣化と負荷の整理

そこで本事業では、軽水炉および高速増殖炉の燃料被覆管を対象として、劣化と負荷を図 1 に示すように整理し、(1)腐食、水素化、He 蓄積、照射脆化などの炉内劣化を模擬した環境劣化試験を実施し、(2)定常条件および異常過渡条件における機械強度の劣化量依存性として整理し、さらに(3)微細組織観察/分析および組織形成観察試験を行い、劣化のマイクロ機構を明らかにする。これらを総合して、(4)材料健全性維持に必要な使用限界に関する情報を抽出することとした。

本研究の到達点や発展について図 2 に示す。原子力工学分野において安全の科学的説明性の向上がうたわれているが、燃料被覆管の場合にはこれを説明するための適切な試験方法が存在しなかったこともあり難しい課題であった。本研究ではこの問題点を解決する試験手法を開発した。

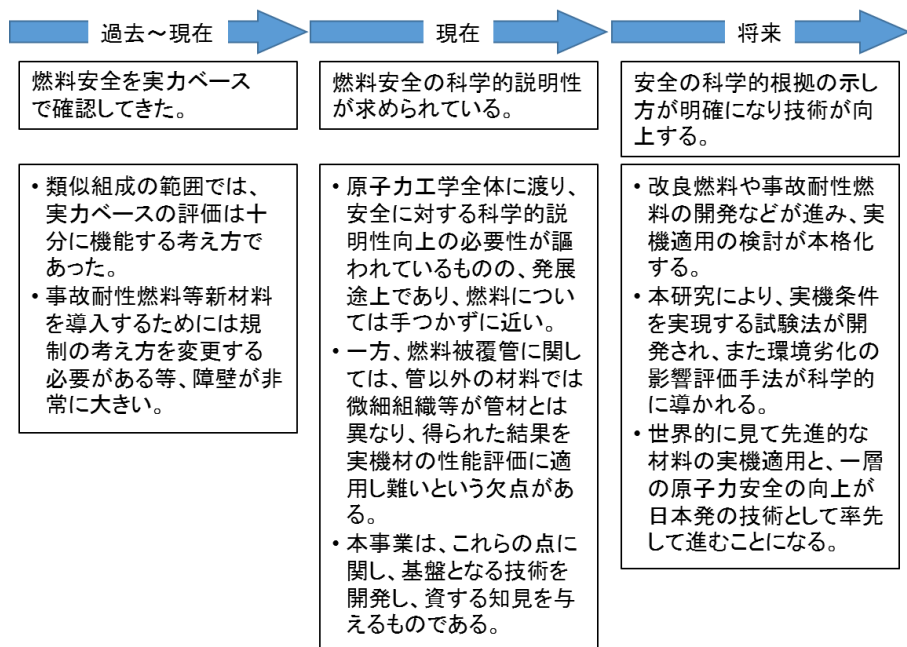


図2. 研究の到達点と発展

さらに改良燃料や事故耐性燃料など、材料開発が現在精力的に進められている。これらの実機適用に当たっては、科学的説明性が必須であることから、本研究で開発する試験手法や、環境劣化の影響評価手法が重要な役割を

担うことになる。このように、本事業は、将来的な原子力安全の一層の向上を達成する日本発信の技術、世界をリードする知見となることを目指している。尚、本事業では、科研費等による基礎研究や、原子力基礎基盤戦略研究イニシアチブによる劣化機構解明研究の成果を踏まえ、発展形として環境劣化を加味した被覆管強度評価手法の開発を行っている。この成果は現行のジルコニウム合金に限定されず広く種々の材料への適用が可能であり、本事業終了の時にはフィージビリティ・スタディに研究フェーズを移行させたいと強く希望している。その際には改良燃料や事故耐性燃料の評価手法としても活用が見込まれ、さらに原子燃料に限定されず、管形状を有する材料を用いる発電プラントや化学プラント、石油パイプラインなど幅広い応用が見込まれる。

以下に本事業の成果の一部を記述する。

2. 研究開発成果

2-1. 材料

本研究では、次世代軽水炉、現行軽水炉、高速増殖炉を対象炉型とし、これらに使用されている、または候補材料とされている材料を研究対象とする。具体的には Zr-Nb 合金 (J 合金; Zr-1.8Nb、Zr-1.6Nb-0.1Cr、Zr-2.5Nb)、ジルカロイ-4、および酸化物分散強化鋼 (Fe-12Cr-2W-0.3Ti-0.26Y₂O₃ [wt.%]、以下 ODS 鋼) である。

2-2. 劣化試験 (腐食、水素化)

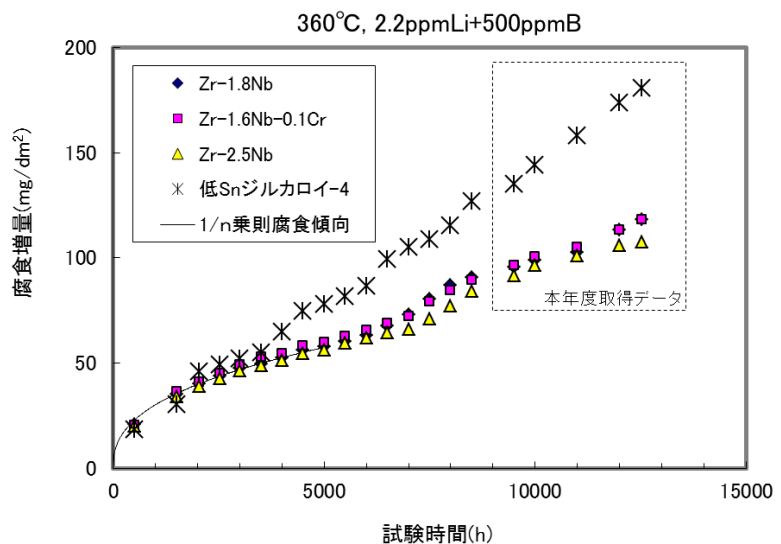


図3. 実機冷却材模擬水中の腐食試験結果

高燃焼度燃料における腐食状態を模擬した腐食材を得るべく、実機冷却材模擬水中での循環式オートクレーブ腐食試験を実施中である。これまで、図3に示すようにPWR実機冷却材模擬水条件として温度360℃、水質2.2ppmLi+500ppmB添加水を用いて腐食データを取得した。また、図4に水素化物の形成の様相を断面金相組織として示す。Zr-Nb合金はジルカロイと比較して耐食性と耐水素化に優れた特性を有することが分かった。

2-3. 劣化試験（イオン照射）

東北大学サイクロトロン RI センターおよびNIMSにおいてイオン照射試験とHe注入試験を実施した。高エネルギーイオン照射のために新規にチャンバーを導入し、現時点で最大約5dpa程度の照射試料を作製した。Heイオン注入では100appmHe注入材を作製した。これらの試験結果の一例を図5に示す。これはSSJ引張試験片に対して140MeV C⁴⁺イオン照射を行ったもので、エネルギーデグレダを用いることにより、試料中にほぼ均一に横軸に示される照射量の損傷を導入し、室温にて引張試験を行ったものである。照射による降伏応力(YS)、最大引張強度(UTS)の上昇と、破断ひずみ(EL)の低下が観察された。これらのデータを既往研究と比較すると、CANDU炉で中性子照射したZr-2.5Nbと比較して同等のUTS低下、また軽水炉照射したジルカロイ4と比較して有意な照射硬化量の低下が観察され、優れた照射特性を有することが分かった。

タンデム型イオン加速器をTEMに連結したイオン照射その場TEM観察実験装置を開発し、加速器結合型TEMとしては世界最高のエネルギーのイオン照射を可能とした。現在、イオン照射その場観察実験を行っており、ジルコニウム合金中の損傷蓄積過程に関する知見を取得している。

中エネルギー加速器を利用して、サイクロトロン照射では達成できない数十dpa程度までの高温イオン照射試験を実施し、高照射量領域までのマイクロ組織変化を観察する。使用予定の照射チャンバーにおいて、軽水炉環境を模擬した温度領域(300℃

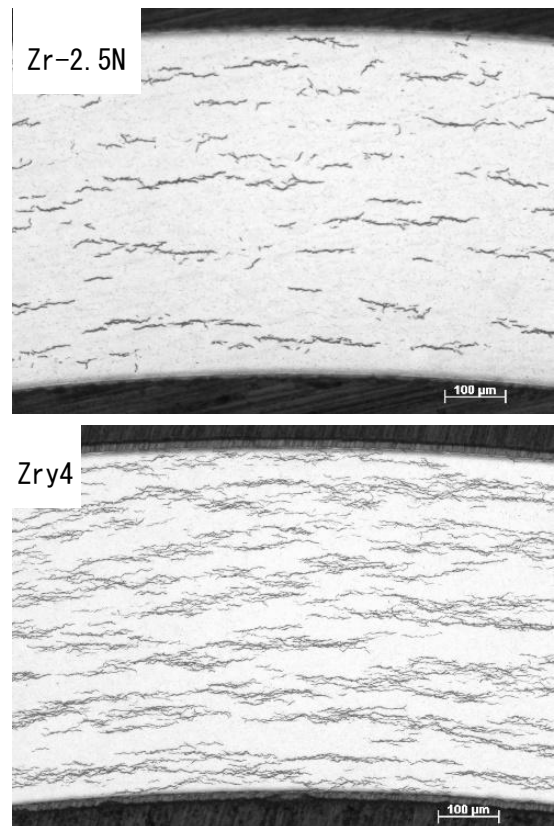


図4. 12000時間腐食試験材の金相組織写真

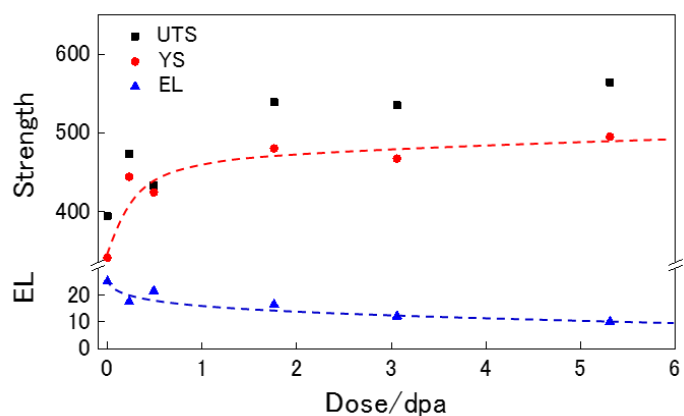


図5. 140MeV C⁴⁺イオン照射したZr-1.8Nb合金の引張試験結果

～) で精緻に温度制御しながら照射試験が実施可能であることを確認した。

2-4. 高温クリープ試験

高温クリープ試験装置は 10^{-6} Torr 台の真空雰囲気中で最高 800°Cでの試験が可能で、リニア可変差動トランスを設置し高精度の変位測定を実現した。未照射材の ODS 鋼の 773、873、973 K におけるクリープ試験結果を図 6 に示す。参考文献と同等の結果であった。ただし高温低応力条件においてやや破断寿命が短核なる傾向が見られた。また、応力指数は 11 であり、他の ODS 鋼の応力指数の文献値 (11~20) と同等であった。

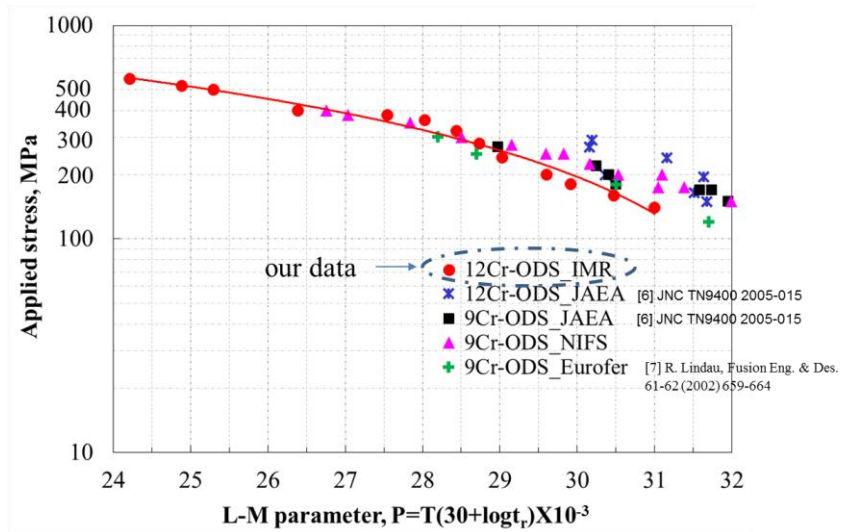


図 6. 高温クリープ試験で取得した破断寿命

2-5. 改良型中子拡管 (A-EDC) 試験

本事業で発案、開発した改良型中子拡管 (A-EDC) 試験 (図 7) について、破断までの大変形領域においても純粋な周方向変形挙動を示し、PCMI 等による被覆管変形に関する情報を取得する手段として優れていることをこれまでで示してきた。昨年度は、A-EDC 試験結果から、周方向の応力ひずみ曲線を取得する手法を開発し、図 8 を得ることに成功した。このために、試験の再現性を更に向上させること、試験データ処理による誤差発生を極小化すること、などの技術を開発した。これにより、被覆管材料のような加工集合組織を有する系において、より正確に破断を評価できるようになった。例えば、周方向の降伏応力は図 8 から約 900MPa 程度と評価され、軸方向のそれとは異なるが、他の試験データと比較も含めて妥当な結果であることを確認した。

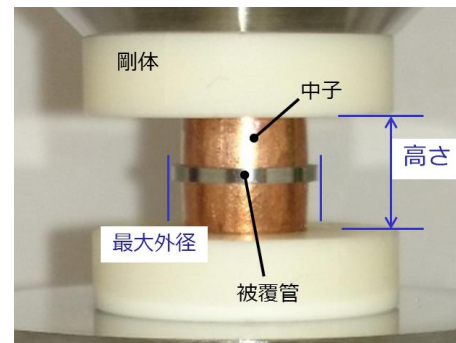


図 7. A-EDC 試験概観

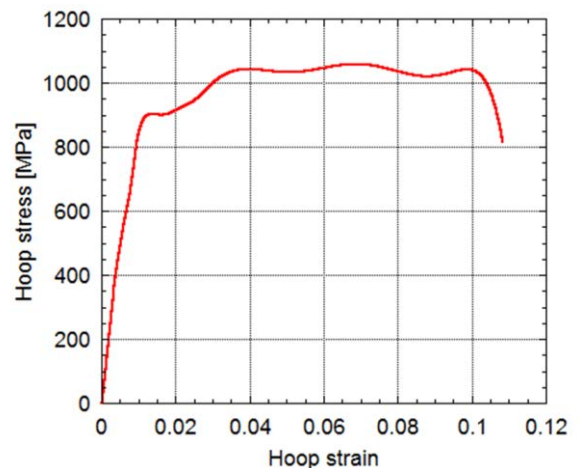


図 8. A-EDC 試験により取得したフープ方向 (周方向) 応力ひずみ曲線

3. まとめと今後の展望

本事業では、上記の研究成果以外にも、多軸応力試験、水素化材および腐食材組織観察試験、中エネルギーイオン照射試験等を、実施している。成果は研究検討委員会において外部有識者の意見を踏まえ検討を進めており、進捗は順調である。

これらの成果は数多く発表されており、平成 24-26 年度の成果は学会発表 37 件 (内、国際会議 7 件)、学術論文 12 件にまとめられている。