

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 (現、東京大学)

(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

(研究期間) 平成 24 年度～27 年度

1. 研究の背景とねらい

原子燃料は燃料ペレットと被覆管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、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、通常運転時及び異常過渡時における閉じ込め機能の維持が求められる。

被覆管の場合、管成形時の圧延処理等による集合組織、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、組織と機械的負荷に特有の異方性がある。そのため適切な試験法を選択する必要があるが、既存の手法は応力状態の変化などの不具合が指摘されており、適切な手法の開発が求められている。

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)機械強度の劣化量依存性として整理し、(3)微細組織観察/分析および組織形成観察試験を行い、劣化のミ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。

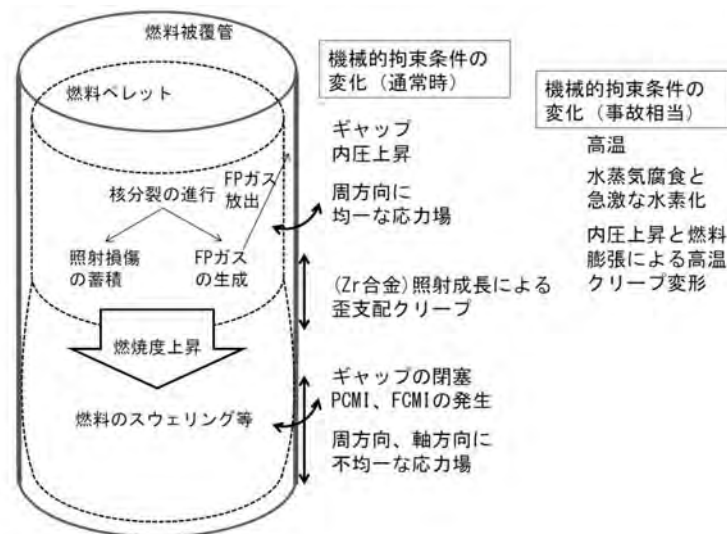


図1. 燃料被覆管の劣化と負荷の整理

2. これまでの研究成果

(1) 被覆管強度評価のための新しい機械試験法の開発

既往の中子拡管 (EDC) 試験には応力分布の実機模擬性や試料サイズなど複数の不具合があり、これを克服し実機被覆管の PCMI 応力分布を適切に表現し、かつ照射試料への適応を見越した試料体積の減少を図った改良型 EDC (A-EDC) 試験の開発を行った (図2)。

PWR 原子燃料被覆管程度をリング状に切り出し A-EDC 試験の最適条件を決定した。Cu 中子、リング幅 1mm において、かつ中子-被覆管間の摩擦係数が小さい場合、試料中には比較的均一な応力分布が表れ、有限要素解析によりその応力状態は破断に至るまでの歪域で従来型よりも安定した単軸引張状態 (周方向単純引張) となることを示し (図2) 周方向の応力ひずみ曲線の取得に初めて成功した (図3)。これは、ジルコニウム合金のような加工異方性を有する材料では大変重要なことで、これまで EDC やリング試験などで指摘されていた試験中の応力状態の変遷が無い、理

想的な試験方法であることを証明した。さらに A-EDC 試験から得られたひずみ値から、実炉環境へ適用させるための補正手法を提案した。既往研究と多軸応力試験と合わせ、A-EDC 試験データの事故時の応力状態（平面ひずみ引張条件から等二軸引張条件）への相関法を確立し、環境劣化材へ適用した。また金属中子の採用により 300 程度までの高温 A-EDC 試験が可能であることを確認した。この手法は、原子燃料にとどまらず様々なエネルギープラント、化学プラント、パイプライン、動力機関などに応用が可能な汎用性の高いものである。

一方で、反応度投入事象などの事故時の応力状態を表現するために多軸応力負荷試験を実施した。ここでは切り欠きを有する管状試料に対して光学顕微鏡内引張試験装置により試料変形のその場観察試験を実施した。切り欠きを有する試料を用い多軸応力負荷条件での試験を行った。これにより多軸応力負荷により変形が進行しやすくなり破断応力が下がることが示され、有限要素解析から多軸応力条件を評価した。本試験に供したジルカロイ 4 管材試料の破壊ひずみの多軸応力度依存性は、受取材、水素吸収材ともに、既往研究と概ね一致していた。ただし、平面ひずみ状態に近づくと、従来データに比べてやや延性が低下する傾向も確認された。データ拡充により本傾向について確認し、熱処理条件や集合組織の影響等についても確認していくこと等が課題となる。

（２）Zr-Nb 合金の腐食と水素化

Zr 合金の炉外試験としては世界的に見ても最長の 16,400 時間にわたる腐食試験を実施し、PWR 炉水環境における Zr-Nb 合金の腐食がジルカロイ 4 合金と比較して大変良好で、2/3 程度の腐食率であることを見出した。またジルカロイ合金で観察される腐食の Break Away 現象が抑制され

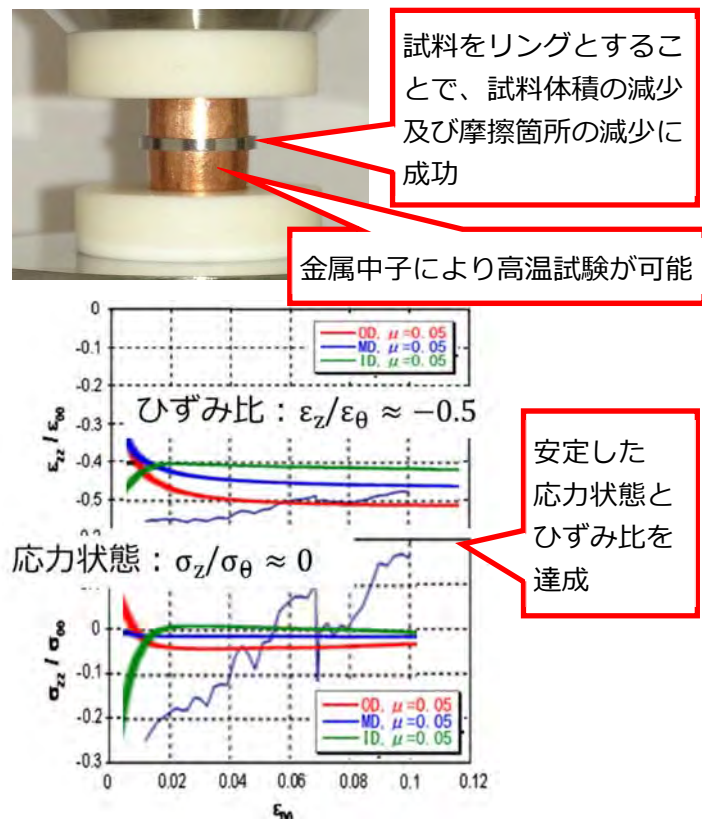


図 2 . 改良型中子拡管（A-EDC）試験の概要

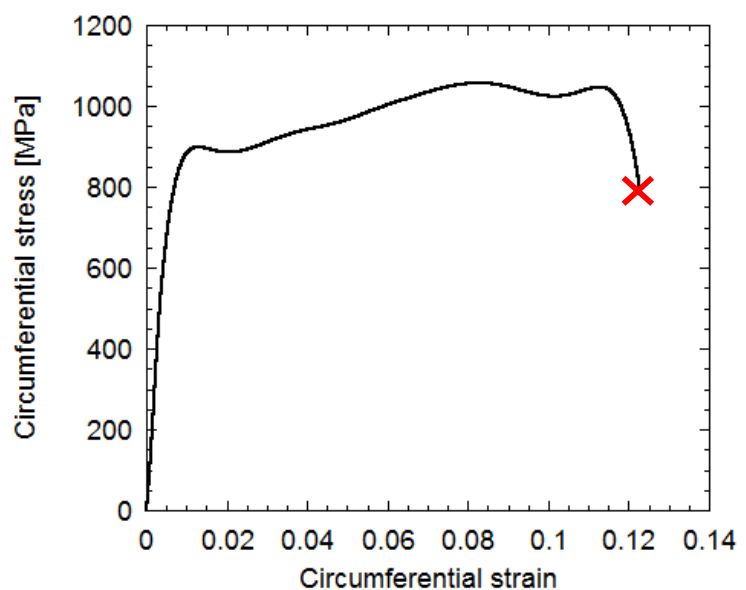


図 3 .A-EDC 試験により取得した Zry-4 被覆管の周方向応力ひずみ曲線

8000 時間程度から出現していることを見出した。また、腐食に伴う水素吸入率もジルカロイ合金が線形的に増加するのに対して、Zr-Nb 合金では 120ppm 程度で頭打ち傾向にあり 1/3 程度であることを明らかにした。これらにより、炉外 16,400 時間の長時間腐食による水素化は、Zr-Nb 合金はジルカロイの 1/4 以下であることを明らかにした。これにより Zr-Nb 被覆管の性能を確認した。

1800ppm 程度までの水素化材料の作製を行い、また改良型中子拡管 (A-EDC) 試験のための試料を作製した。水素化材のエッチング組織観察を実施し、原子炉内条件を再現する試験条件として確立した。同等の水素濃度で Zr-2.5Nb と Zry4 を比較した場合、横断面内に黒色筋状の水素化物がほぼ周方向に分布している状況が確認されたが、最終焼鈍温度条件が再結晶焼鈍である Zr-2.5Nb の水素化物が、応力除去焼鈍が採用されている Zry4 に比べ、若干、周方向に延びる長さが短い傾向にあった。また、Zr-Nb 合金では水素濃度に応じた水素化物の表面近傍での偏析を観察し、さらに水素化の挙動に対する Nb 効果を確認した。

(3) ミクロ組織観察による環境劣化評価

Zr 合金の強度劣化を支配する大きな微視的要因は水素化と水素化物の配向状態である。しかし、強度低下と水素化物を含む微細組織の相関性は明らかではない。そこで SEM/EBSD 法により、Zry-4 と Zr-Nb 合金の腐食材、水素化材、高温酸化材について SEM/EBSD 観察を行い、被覆管材の特性として重要な酸化膜中のクラック、集合組織、水素化物の癖面関係を評価した。また、強い集合組織とそれに依存する水素化物分布をもつ被覆管材に対し、EBSD 観察は簡便に広範囲領域の配向性、粒径、粒界、水素化物の癖面関係などを評価できる有用な手法であることを確認した。水素化材を含む Zr-Nb 合金引張試験材のひずみ量評価を行った。複数の歪解析手法を比較検討し指標性に優れた GOS 法を選択した。そして鉄系材料 (既往研究) と同様に、GOS 値などの結晶方位差から得られたひずみ指標から局所的なひずみ量を評価する相関式を構築した。

本事業において、磁性材料の観察を可能とする改良型の透過電子顕微鏡 (TEM) を導入した。Zr 合金の強度と組織の相関から、Nb による強化機構が析出強化とマルテンサイト変態に起因した微細粒化であることを突き止めた。さらに新材料開発として中性子吸収断面積の小さな Mo を添加元素として用いるアイデアを得て、Zr-Nb-Mo 合金を作製し Zr-Nb 二元合金と比較して高性能であることを微細組織と強度の両面から明らかにし、より高性能な合金の開発に成功した。

最先端機器である収差補正型走査型透過電子顕微鏡を用い、腐食材の詳細な分析を行った。図 4 に示す

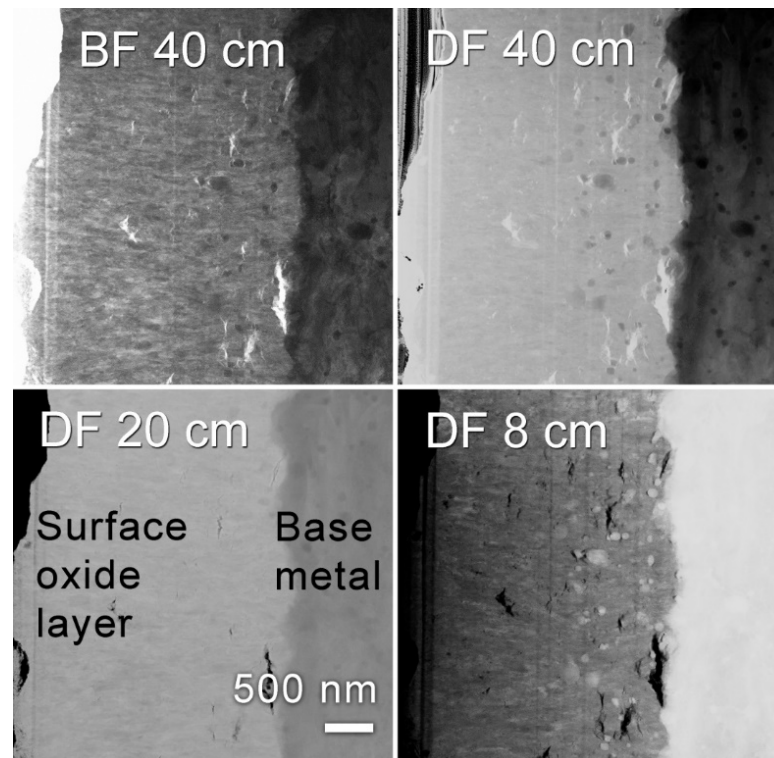


図 4 . 3500 時間腐食材の STEM 観察組織

ように Zr-Nb 合金の腐食のメカニズムとして Zr 母相の酸化に対して Nb 析出物の遅れ酸化が関与していることを明らかにした。

(4) 照射その場観察装置の開発

イオン照射下の組織発達その場観察装置として、透過電子顕微鏡(TEM)とタンデトロン加速器を結合させた新しい加速器結合型電子顕微鏡を構築した。本装置は、加速器と分析マグネット、およびビームライン、TEM から構成される。TEM は所定の角度からのイオンビームを導入するために試料室と集束レンズの間を 100mm かさ上げし、これに合わせて TEM のレンズ制御系を再設計するという改造を施している。そして、イオンビームが電子顕微鏡内に到達することを確認した。これにより世界的に見て最高エネルギーのイオンビーム照射が可能なその場観察装置を構築することに成功した。Au を模擬材料として既往研究と同等の組織変化をその場観察し性能を確認した。

Zr-Nb 合金の照射下組織発達過程をその場観察した。そして 0.4 dpa 程度までのはじき出し損傷に対して、 β -Nb 析出物は安定であることを確認した。これは耐食性への照射影響が小さいことを示唆するものと思われる。

3. 今後の展望

原子力工学分野のロードマップなど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せず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。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た。この成果は現行の Zr 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、本事業終了後はフィージビリティ研究へのフェーズ移行を希望している。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。

4. 参考文献

当事業の研究成果は積極的に外部発表した。論文発表は 22 件(内、発刊済 19 本、印刷中 3 本、査読付きプロシーディングス 1 本を含む)である。Acta Materialia、Scripta Materialia、Journal of Nuclear Materials などの材料や原子力関係の一流誌に掲載されている。学会や国際会議における発表は 89 件あり、その内訳は国際会議招待講演 2 件、国際会議口頭発表 15 件、国内会議口頭発表 37 件、国際会議ポスター発表 9 件、国内会議ポスター発表 26 件であり、優秀ポスター賞 2 件を受賞した。