

平成 2 7 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

原子炉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

成果報告書

平成 2 8 年 3 月

国立大学法人 東北大学

本報告書は、文部科学省エネルギー対策特別会計委託事業による委託業務として、国立大学法人 東北大学が実施した平成24 - 27年度「原子炉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」の成果を取りまとめたものです。

目次

1 .	はじめに	1-1
2 .	業務計画	
2.1	全体計画	2-1
2.2	平成 2 7 年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-2
3 .	業務の実施内容及び成果	
	(1)材料選定と材料劣化試験	
3.1	材料供給 1	3.1-1
3.2	材料供給 2	3.2-1
3.3	腐食試験	3.3-1
3.3.1	目的	3.3-1
3.3.2	試験方法	3.3-1
3.3.3	試験結果及び考察	3.3-4
3.3.4	腐食試験材の提供	3.3-6
3.3.5	まとめ	3.3-6
3.4	水素化試験	3.4-1
3.4.1	目的	3.4-1
3.4.2	試験方法	3.4-1
3.4.3	試験結果及び考察	3.4-2
3.4.4	水素化試験材の提供	3.4-2
3.4.5	まとめ	3.4-2
	(2)劣化材料の機械的性質評価	
3.5	引張試験およびナノ硬度試験	3.5-1
3.5.1	目的	3.5-1
3.5.2	実験方法	3.5-2
3.5.3	結果と考察	3.5-3
3.5.4	まとめ	3.5-7
3.5.5	今後の展望	3.5-8
3.6	高温クリープ試験 1	3.6-1
3.6.1	Background and purpose	3.6-1
3.6.2	Experimental	3.6-2
3.6.3	Results	3.6-3
3.6.4	Discussion	3.6-6
3.6.5	Summary and future plan	3.6-9

3.7	高温クリープ試験 2	3.7-1
3.7.1	背景と目的	3.7-1
3.7.2	実験方法	3.7-1
3.7.3	実験結果	3.7-1
3.7.4	考察	3.7-2
3.7.5	まとめ	3.7-3
3.8	中子拡管試験	3.8-1
3.8.1	燃料の炉内挙動と被覆管との相互作用に関する調査	3.8.1
3.8.2	改良型中子拡管法 (A-EDC 法) の開発	3.8-32
3.8.3	水素化 Zr 合金への適用	3.8.99
3.9	多軸応力機械試験	3.9-1
3.9.1	目的	3.9-1
3.9.2	光学顕微鏡用引張試験装置の導入 (H24)	3.9-1
3.9.3	試験片形状に関する予備検討 (H24-H25)	3.9-2
3.9.4	その場観察試験の準備 (H25)	3.9-8
3.9.5	試験体系および試験片形状の検討 (H26)	3.9-11
3.9.6	試験手法の確立および適用 (H27)	3.9-16
3.9.7	まとめ	3.9-20
(3)劣化材料のミクロ組織観察試験		
3.10	SEM/EBSD 観察	3.10-1
3.10.1	背景と目的	3.10-1
3.10.2	実験方法	3.10-1
3.10.3	結果と考察	3.10-2
3.10.4	まとめと次年度計画	3.10-4
3.11	TEM 観察	3.11-1
3.11.1	背景及び目的	3.11-1
3.11.2	腐食材の組織観察	3.11-3
3.11.3	結晶回転と転位密度の関係調査	3.11-10
3.11.4	結論	3.11-14
(4)イオン照射試験		
3.12	He 注入試験 1	3.12-1
3.12.1	目的	3.12-1
3.12.2	サイクロトロン加速器	3.12-1
3.12.3	エネルギーディグレーダ構成	3.12-1
3.12.4	真空度測定装置	3.12-2
3.12.5	イオン注入温度測定装置	3.12-3

3.12.6	イオン注入計測システム	3.12-4
3.12.7	試験片	3.12-4
3.12.8	He 注入試験	3.12-4
3.12.9	試験片の輸送	3.12-5
3.12.10	まとめ	3.12-5
3.13	He 注入試験 2	3.13-1
3.13.1	背景と目的	3.13-1
3.13.2	実験方法	3.13-1
3.13.3	実験結果	3.13-1
3.13.4	考察	3.13-2
3.13.5	まとめ	3.13-2
3.14	高エネルギーイオン照射試験	3.14-1
3.14.1	目的	3.14-1
3.14.2	実験方法	3.14-1
3.14.3	結果と考察	3.14-3
3.14.4	まとめ	3.14-7
3.14.5	次年度計画	3.14-7
3.15	中エネルギーイオン照射試験	3.15-1
3.15.1	緒言	3.15-1
3.15.2	使用した加速器の構成	3.15-2
3.15.3	中エネルギーイオン照射試験	3.15-4
3.15.4	中エネルギーイオン照射材の局所変形挙動の評価	3.15-8
3.15.5	イオン加速器連結顕微鏡法の開発	3.15-13
3.15.6	ジルコニウム合金系新型燃料被覆管模擬材の照射特性その場観察	3.15-19
3.15.7	結言	3.15-22
3.16	委員会	3.16-1
4 .	結言	4-1
4.1	平成 27 年度事業のまとめ	4-1
4.2	全体のまとめ	4-3
4.2.1	目標	4-3
4.2.2	事業推進の具体的方法	4-3
4.2.3	事業進捗の総括	4-5
4.2.4	研究成果	4-9
4.2.5	結論	4-10
4.2.6	今後の展望	4-11
5 .	付録	

- 5.1 研究検討委員会 資料
- 5.2 学会 発表資料
- 6 . 発表実績リスト

表一覧

表 2.1	年度別全体計画	2-6
表 2.2	月別年間計画	2-7
表 3.1.1(1)	各試験へ供給した材料 (受取材、H24 年度)	3.1-2
表 3.1.1(2)	各試験へ供給した材料 (受取材、H25 年度)	3.1-3
表 3.1.1(3)	各試験へ供給した材料 (受取材、H26 年度)	3.1-4
表 3.1.1(4)	各試験へ供給した材料 (受取材、H27 年度)	3.1-5
表 3.1.2(1)	各試験へ供給した材料 (腐食/水素化試験後、H24 年度)	3.1-6
表 3.1.2(2)	各試験へ供給した材料 (腐食/水素化試験後、H25 年度)	3.1-7
表 3.1.2(3)	各試験へ供給した材料 (水素化試験後、H26 年度)	3.1-8
表 3.1.2(4)	各試験へ供給した材料 (水素化試験後、H27 年度)	3.1-9
表 3.1.2(5)	各試験へ供給した材料 (水素化試験後、H27 年度)	3.1-10
表 3.3.1	腐食試験における継続腐食材の内訳	3.3-7
表 3.3.2	腐食試験における腐食増量測定結果(H24 年度)	3.3-8
表 3.3.3	腐食試験における腐食増量測定結果(H25 年度)	3.3-9
表 3.3.4	腐食試験における腐食増量測定結果(H26 年度)	3.3-10
表 3.3.5	腐食試験における腐食増量測定結果(H27 年度)	3.3-11
表 3.3.6	腐食試験における水素濃度測定結果(H24-27 年度)	3.3-12
表 3.3.7	腐食試験 (高温水蒸気) における腐食増量および水素濃度測定結果	3.3-13
表 3.4.1	水素化試験における水素分析結果 (H24)	3.4-3
表 3.4.2	水素化試験における水素分析結果 (H25)	3.4-4
表 3.4.3	水素化試験における水素分析結果 (H26)	3.4-4
表 3.4.4	水素化試験における水素分析結果 (H27)	3.4-5
表 3.4.5	水素化試験における水素分析結果 (H27)	3.4-6
表 3.5.1	供試材の化学組成 (at.%)	3.5-9
表 3.5.2	純 Zr、Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材の引張特性(σ_s UTS UTS r_p)	3.5-13
表 3.7.1	高温クリープ試験結果	3.7-5
表 3.8.1	CABRI 炉実験結果	3.8-23
表 3.8.2	A-EDC 近似による機械強度比較	3.8-85
表 3.8.3	中子圧縮試験近似による機械強度比較	3.8-89
表 3.8.4	A-EDC 試験による Zry-4 周方向機械強度	3.8-92
表 3.8.5	くびれの数と破断ひずみ	3.8-93
表 3.8.6	破断ひずみから算出したひずみ比	3.8-94
表 3.8.7	軸方向破断ひずみ	3.8-94
表 3.8.8	Zry-4 周方向機械強度	3.8-96

表 3.8.9	周方向及び軸方向破断ひずみの算出 (ひずみ速度 0.01 のとき)	3.8-96
表 3.8.10	Crystal structure information and morphology features of different types of hydrides	3.8-103
表 3.9.1	塑性異方性を考慮した降伏応力比	3.9-6
表 3.9.2	解析ケース	3.9-7
表 3.10.1	粒径およびひずみ指標の平均値	3.10-6
表 3.11.1	APT で導出した J3 の金属母相と酸化被膜 (亜酸化物 Zr ₃₀ 、Zr ₂₀ 、Zr ₀ と安定酸化物 Zr ₀₂) の組成	3.11-20
表 3.11.2	hcp-Zr、m-ZrO ₂ 、bcc-Nb 及び Nb 酸化物の結晶学的データと電子密度	3.11-36
表 3.12.1	真空度測定装置仕様	3.12-7
表 3.12.2	イオン注入温度測定装置仕様	3.12-7
表 3.12.3	イオン注入計測システム仕様	3.12-7
表 3.12.4	12Cr-ODS 鋼の化学組成	3.12-7
表 3.13-1	12Cr-ODS 鋼の化学組成	3.13-3
表 3.13-2	He 注入試料の放射性同位元素核種と数量 (登録時 1 枚あたり, kBq)	3.13-3
表 3.14.1	供試材の化学組成 (at.%)	3.14-9
表 3.14.2	照射した TD および RD 材の引張特性	3.14-9
表 3.15-1	1.7MV タンデトロンの運転性能	3.15-3
表 3.15-2	BL5 で中エネルギーイオン照射した試料一覧	3.15-6

図一覧

図 2.1	研究の概略	2.3
図 3.3.1	腐食試験（実機冷却材模擬水）用循環式オートクレーブ装置の系統概略図と 外観	3.3-14
図 3.3.2	循環式オートクレーブ腐食試験装置による腐食試験における温度履歴の概念 図	3.3-15
図 3.3.3	腐食試験（高温水蒸気）用高温酸化試験装置の系統概略図と外観	3.3-15
図 3.3.4	循環式オートクレーブ腐食試験後の外観状況例（受取材、H24 年度）	3.3-16
図 3.3.5	循環式オートクレーブ腐食試験後の外観状況例（受取材、H25 年度）	3.3-17
図 3.3.6	循環式オートクレーブ腐食試験後の外観状況例（受取材、H26 年度）	3.3-18
図 3.3.7	循環式オートクレーブ腐食試験後の外観状況例（受取材、H27 年度）	3.3-19
図 3.3.8	循環式オートクレーブ腐食試験による腐食増量の経時変化（継続腐食材（受取 材））	3.3-20
図 3.3.9	循環式オートクレーブ腐食試験による腐食増量と水素濃度測定結果の関係	3.3-20
図 3.3.10	循環式オートクレーブ腐食試験後の横断面金相観察写真	3.3-21
図 3.3.11	循環式オートクレーブ腐食試験後の横断面金相観察写真	3.3-22
図 3.3.12	循環式オートクレーブ腐食試験後の横断面金相観察写真	3.3-23
図 3.3.13	循環式オートクレーブ腐食試験後の横断面金相観察写真	3.3-24
図 3.3.14	腐食試験（高温水蒸気）における試料温度測定結果の例	3.3-25
図 3.3.15	腐食試験（高温水蒸気）後の外観状況例（試験条件：1,000 × 約 60sec、 H24 年度）	3.3-25
図 3.3.16	腐食試験（高温水蒸気）後の外観状況例（試験条件：1,200 × 約 60sec、 H25 年度）	3.3-26
図 3.3.17	腐食試験（高温水蒸気）後の外観状況例（試験条件：1,250 × 約 60sec）	3.3-26
図 3.3.18	腐食増量および試料中水素量の酸化温度依存性	3.3-27
図 3.3.19	腐食試験（高温水蒸気）後の横断面金相観察写真	3.3-28
図 3.3.20	腐食試験（高温水蒸気）後の横断面金相観察写真	3.3-29
図 3.3.21	腐食試験（高温水蒸気）後の横断面金相観察写真	3.3-30
図 3.4.1	水素化試験装置の系統概略図と外観	3.4-7
図 3.4.2	水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真	3.4-8
図 3.4.3	水素化試験 熱処理後の被覆管試料横断面金相観察写真	3.4-9
図 3.4.4	水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真（H26）	3.4-10
図 3.4.5	水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真（H27）	3.4-11

図 3.4.6	水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真 (H27)	3.4-12
図 3.4.7	水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真 (H27)	3.4-13
図 3.4.8	水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真 (H27)	3.4-14
図 3.5.1	平板状引張試験片の作製方法	3.5-10
図 3.5.2	Zr-2.5Nb の単軸引張中断材の XRD による転位密度の評価方法	3.5-10
図 3.5.3	Zr-2.5Nb 材の ϵ 解析によって求めた各すべり系の活性化頻度	3.5-11
図 3.5.4	中断材の EBSD 観察試料用試料の外観写真	3.5-11
図 3.5.5	再結晶化熱処理した純 Zr と Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材の IPF 像と TEM 写真	3.5-12
図 3.5.6	純 Zr、Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材の室温下における応力-ひずみ曲線	3.5-13
図 3.5.7	n の Nb 析出物による転位運動の阻害影響依存性	3.5-14
図 3.5.8	Zr-2.5Nb 材の引張変形中断材の外観写真と、その σ - ϵ 曲線	3.5-14
図 3.5.9	Zr-2.5Nb の単軸引張試験中断材の IPF 像	3.5-15
図 3.5.10	Zr-2.5Nb の単軸引張中断材における (a) 結晶粒径と (b) 結晶配向性のひずみ依存性	3.5-15
図 3.5.11	Zr-2.5Nb 引張試験中断材の (a) 熱処理まま材、(b) $\epsilon = 1.5\%$ 、(c) $\epsilon = 3\%$ 、(d) $\epsilon = 6\%$ 、(e) $\epsilon = 7.5\%$ 、(f) $\epsilon = 16\%$ 材の KAM 像と、(g) その分布	3.5-16
図 3.5.12	Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材の KAM のピーク値のひずみ依存性	3.5-17
図 3.5.13	Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材の EBSD の KAM 値から評価した転位密度 (EBSD) のひずみ依存性	3.5-17
図 3.5.14	Zr-1.8Nb における各引張試験中断材の X 線プロファイル	3.5-18
図 3.5.15	Zr-1.8Nb 引張試験中断材の Zr (002) ピーク	3.5-18
図 3.5.16	Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb における各引張試験中断材の Williamson-Hall プロット	3.5-19
図 3.5.17	Williamson-Hall 法から求められた各引張試験中断材における近似直線の傾き	3.5-19
図 3.5.18	Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材における XRD によって評価した転位密度 (XRD) のひずみ依存性	3.5-20
図 3.5.19	A-EDC 試験片における XRD の測定方法の概略図	3.5-20
図 3.5.20	Zr-2.5Nb の A-EDC 試験中断材の Williamson-Hall プロット	3.5-21
図 3.5.21	Williamson-Hall 法から求められた Zr-2.5Nb の A-EDC 試験中断材における近似直線の傾き	3.5-21
図 3.5.22	XRD によって評価した Zr-2.5Nb の A-EDC 試験中断材における転位密度 (XRD) のひずみ依存性	3.5-22
図 3.6.1	Creep deformation map of 12Cr-ODS-IMR steel obtained by March 2015.	3.6-11

- ☒ 3.6.2 (a) The geometric information of creep specimens, and (b) the size of the SSJ-type specimen. 3.6-11
- ☒ 3.6.3 M-100 type creep tester used in this program. 3.6-12
- ☒ 3.6.4 (a) EBSD inverse pole figure (IPF) map and (b) corresponding kernel average misorientation (KAM) map of 12Cr-ODS-IMR steel. 3.6-13
- ☒ 3.6.5 EPMA elemental mapping of coarse particles in 12Cr-ODS-IMR steel: (a) SEI image, (b) Ti, (c) C and (d) O mapping. 3.6-14
- ☒ 3.6.6 TEM micrographs of 12Cr-ODS-IMR steel: (a) low magnification image showing the dislocation gathered region and dislocation free region, (b) high magnification image showing the interaction between nano-sized particles and dislocation, and (c) high magnification image showing the morphology and distribution of nano-sized Y₂TiO₅ particles. 3.6-15
- ☒ 3.6.7 Strain-time curves of creep tests at 973 K. 3.6-16
- ☒ 3.6.8 The dependence of time-to-rupture on applied stress crept at 973 K. 3.6-16
- ☒ 3.6.9 Minimum creep rate-normalized stress curves tested at 973 K. 3.6-17
- ☒ 3.6.10 Fracture morphologies (cross section) of 12Cr-ODS-IMR steel after creep test under 90 MPa (left) and 180 MPa (right) at 973 K. 3.6-17
- ☒ 3.6.11 Surface morphologies near the fracture in specimens crept under 90 MPa (left) and 180 MPa (right) applied stress at 973 K. 3.6-18
- ☒ 3.6.12 Strain-time creep curves of as-received and He-irradiated specimens tests at 973 K. 3.6-19
- ☒ 3.6.13 The dependence of time-to-rupture on applied stress crept at 973 K for both as-received (Unirrd) and He irradiated specimens. 3.6-19
- ☒ 3.6.14 Minimum creep rate-normalized stress of 12Cr-ODS-IMR steel specimens tested at 973 K for both as-received (Unirrd) and He irradiated specimens. 3.6-20
- ☒ 3.6.15 Schematic of the creep mechanism transformation in 12Cr-ODS-IMR steel. 3.6-20
- ☒ 3.6.16 Comparison of creep rates at 973 K of present 12Cr-ODS-IMR steel and some similar ODS Fe-Cr alloys. 3.6-21
- ☒ 3.6.17 TEM micrographs on the (a) 14Cr-ODS after He-implantation to 1700 appm at 923 K and (b) PM2000 alloy after 2500 appm-He at 773 K 3.6-22
- ☒ 3.6.17 Larson-Miller (L-M) parameter plot for 12Cr-ODS-IMR steel. 3.6-22
- ☒ 3.6.18 Effect of He irradiation on the Larson-Miller (L-M) parameter for 12Cr-ODS-IMR steel.

		3.6-23
図 3.7-1	NIMS クリープ試験機と性能一覧	3.7-6
図 3.7-2	高温クリープ試験用試料固定治具	3.7-7
図 3.7-3	高温クリープにおける応力と破断時間の両対数プロット	3.7-8
図 3.7-4	高温クリープにおけるヤング率で規格化した応力とクリープ速度の両対数プロット	3.7-9
図 3.7-5	各温度応力にてクリープ破断した試料の SEM 破面写真	3.7-10
図 3.7-6	973K, 120MPa でクリープ破断した He 注入試料の共役破面の SEM 観察結果	3.7-10
図 3.7-7	973K, 120MPa クリープ試験前と試験後の試料表面 SEM 観察結果	3.7-11
図 3.7-8	He 未注入試料の同一視野における SEM, EBSD, AFM 測定結果	3.7-12
図 3.7-9	100appm He 注入試料の同一視野における SEM, EBSD, AFM 測定結果	3.7-13
図 3.8.1	燃焼度に伴う格子定数の変化	3.8-14
図 3.8.2	焼しまりとスウェリングの重なり	3.8-14
図 3.8.3	UO ₂ ペレットに発生する典型的な割れパターン	3.8-14
図 3.8.3	ペレット内部温度分布によるつづみ型変形	3.8-15
図 3.8.4	各元素の熱中性子の反応断面積	3.8-15
図 3.8.5	hcp 構造のすべりと双晶の系	3.8-16
図 3.8.6	ビルガー式圧延法	3.8-16
図 3.8.7	結晶方位と Q 値の関係	3.8-17
図 3.8.8	ジルカロイ被覆管の集合組織	3.8-17
図 3.8.9	ジルコニウムの結晶構造	3.8-18
図 3.8.10	圧延材と再結晶材の集合組織	3.8-18
図 3.8.11	Zry-2(左)、Zry-4(右)の機械強度の照射量依存性	3.8-19
図 3.8.12	未照射材及び照射材 Zry-2 被覆管の降伏曲線	3.8-19
図 3.8.13	照射成長の模式図	3.8-20
図 3.8.14	Zry-2 被覆管(左)と Zry-4 被覆管(右)の伸びの挙動	3.8-20
図 3.8.15	照射成長挙動と転位の相関	3.8-20
図 3.8.16	被覆管における水素化物の析出方向(応力なし)	3.8-21
図 3.8.17	Zry-4(水素濃度 300 ppm)の水素化物の配向と応力の関係	3.8-21
図 3.8.18	Zr-H 二元系状態図	3.8-21
図 3.8.19	BWR 制御棒落下事故における出力と燃料温度の過渡変化	3.8-22
図 3.8.20	RIA 時の燃料棒温度分布	3.8-22
図 3.8.21	NSRR と CABRI における平均フープひずみ とひずみ比($z /$)	3.8-22
図 3.8.22	応力状態	3.8-23

図 3.8.23	リング引張試験の例	3.8-24
図 3.8.24	リング引張試験の有限要素解析	3.8-24
図 3.8.25	試験片形状	3.8-24
図 3.8.26	平面ひずみ引張試験の概要図	3.8-25
図 3.8.27	平面ひずみ引張試験の有限要素解析の結果	3.8-25
図 3.8.28	バースト試験の模式図	3.8-25
図 3.8.29	リング引張試験とバースト試験における機械的特性の比較	3.8-26
図 3.8.30	OEB 模式図	3.8-26
図 3.8.31	リング圧縮試験の模式図	3.8-26
図 3.8.31	リング圧縮試験の模式図	3.8-27
図 3.8.32	リング圧縮試験の評価	3.8-27
図 3.8.33	リング圧縮試験応力状態解析結果	3.8-27
図 3.8.34	EMF 試験の模式図	3.8-28
図 3.8.35	EMF 試験の試験後外観	3.8-28
図 3.8.36	EDC 試験模式図	3.8-28
図 3.8.37	EDC 試験の FEM 結果 (ひずみ比と応力状態)	3.8-29
図 3.8.37	A-EDC 試験法概念	3.8-30
図 3.8.38	Cu の中子を用いた高さ 1mm の被覆管リング試料 (Cu_1mm 材) の A-EDC 試験によるひずみ比 (左図) 及び応力比 (右図)。中子 - 被覆管間の摩擦係数 $\mu = 0.05$ 。OD、MD、ID はそれぞれ被覆管の内壁面、中間部、外壁面	3.8-30
図 3.8.39	各試験の応力状態とひずみ比の比較	3.8-31
図 3.8.40	室温における各水素濃度における破壊時の Zry-2 平板の RD、TD のひずみ量	3.8-31
図 3.8.41	各材料の高さ 8 mm の試料における荷重-変位曲線	3.8-54
図 3.8.42	各材質、中子高さにおける変形後の外観	3.8-54
図 3.8.43	各材質の荷重-直径変位曲線	3.8-55
図 3.8.44	破断部近傍の SEM 像	3.8-55
図 3.8.45	改良 EDC 試験における被覆管、中子の変形形状	3.8-56
図 3.8.46	摩擦低減処理時、未処理時における Cu_1 mm の荷重変位曲線	3.8-56
図 3.8.47	くびれ数の破断フープひずみ依存性	3.8-57
図 3.8.48	摩擦低減処理時と未処理時の破断部 径方向、周方向からの SEM 像	3.8-57
図 3.8.49	摩擦低減処理時の破断部 軸方向からの SEM 像	3.8-58
図 3.8.50	従来手法の中子作製手順	3.8-58
図 3.8.51	従来手法で作製した中子側面	3.8-59
図 3.8.52	新手法の中子製作手順	3.8-59
図 3.8.53	新手法で作製した中子側面	3.8-60

図 3.8.54	中子圧縮試験炉内外観及び試験体系	3.8-60
図 3.8.55	圧縮試験機の加圧版に用いられる球座の例	3.8-61
図 3.8.56	治具 2	3.8-61
図 3.8.57	測定領域とモード	3.8-61
図 3.8.58	測定モードの概要 (a)外径 (b)段差	3.8-62
図 3.8.59	中子圧縮試験最大外径部における周方向ひずみ速度	3.8-62
図 3.8.60	新手法で作製した中子の形状変化	3.8-62
図 3.8.61	熱処理を施した中子の形状変化	3.8-63
図 3.8.62	銅中子の荷重変位曲線一部	3.8-63
図 3.8.63	試料固定方法の模式図	3.8-64
図 3.8.64	リング試料固定位置を調整する治具 3	3.8-64
図 3.8.65	リング試料設置の様子	3.8-64
図 3.8.66	レーザー変位計モニター図	3.8-65
図 3.8.67	A-EDC 試験における測定領域とモード	3.8-65
図 3.8.68	A-EDC 試験最大外径部における周方向ひずみ速度	3.8-66
図 3.8.69	従来手法で作製した中子圧縮試験結果 (N=5)	3.8-66
図 3.8.70	新手法で作製した中子圧縮試験結果 (N=5)	3.8-67
図 3.8.71	作製方法の違う中子圧縮試験結果の比較	3.8-67
図 3.8.72	新手法で作製した中子の形状変化	3.8-68
図 3.8.73	新手法で作製した中子を用いた A-EDC 試験	3.8-68
図 3.8.74	作製方法の異なる中子の圧縮試験結果比較	3.8-68
図 3.8.75	熱処理を施した中子の変形形状	3.8-69
図 3.8.76	熱処理を施した中子を用いた A-EDC 試験	3.8-69
図 3.8.77	数値解析モデル、(a)二次元軸対称モデル、(b)回転モデル	3.8-69
図 3.8.78	測定箇所	3.8-70
図 3.8.79	リング試料断面部の各方向の応力分布。中子と管の摩擦係数 0 と 1 の場合。	3.8-70
図 3.8.80	応力状態、ひずみ比に及ぼす摩擦の効果	3.8-71
図 3.8.81	A-EDC 試験と中子圧縮試験の荷重 - 高さ変位曲線比較	3.8-71
図 3.8.82	補正前の荷重 - 高さ変位曲線	3.8-72
図 3.8.83	補正前の荷重 - 高さ変位曲線立ち上がり点近傍	3.8-72
図 3.8.84	補正後の荷重 - 高さ変位曲線立ち上がり点近傍	3.8-73
図 3.8.85	補正前の両試料固定点近傍	3.8-73
図 3.8.86	補正後の両試料固定点近傍	3.8-74
図 3.8.87	荷重 - 高さ変位曲線から抽出した仕事	3.8-74
図 3.8.88	仕事の計算手法	3.8-75

図 3.8.89	あるプロット間の高さ変位と周方向ひずみの関係	3.8-75
図 3.8.90	応力 - ひずみ曲線中の仕事計算手法	3.8-76
図 3.8.91	レーザー変位計による測定誤差	3.8-76
図 3.8.92	周方向応力 - 周方向ひずみ曲線	3.8-77
図 3.8.93	周方向応力 - 周方向ひずみ曲線 (データ非選択)	3.8-77
図 3.8.94	立ち上がり点近傍補正	3.8-78
図 3.8.95	A-EDC 試験における高さ変位 - 直径変位曲線	3.8-78
図 3.8.91	直径変位増加始点近傍	3.8-79
図 3.8.92	A-EDC 試験における高さ変位 - 直径変位曲線	3.8-79
図 3.8.93	レーザー変形による測定誤差のデータへの影響	3.8-80
図 3.8.94	近似曲線による補正	3.8-80
図 3.8.95	A-EDC 試験における荷重 - 高さ変位曲線	3.8-81
図 3.8.96	中子圧縮試験における荷重 - 高さ変位曲線	3.8-81
図 3.8.96	A-EDC 試験と中子圧縮試験の荷重 - 高さ変位曲線比較	3.8-82
図 3.8.97	両試料固定点近傍の補正方法	3.8-82
図 3.8.98	A-EDC 試験と中子圧縮試験の荷重 - 高さ変位曲線比較 (補正後)	3.8-83
図 3.8.99	荷重 - 高さ変位曲線から抽出した仕事	3.8-83
図 3.8.100	新手法で導出した周方向応力 - 周方向ひずみ曲線	3.8-84
図 3.8.101	A-EDC 荷重 - 高さ変位曲線近似の比較	3.8-84
図 3.8.102	A-EDC 近似による周方向応力 - 周方向ひずみ曲線比較	3.8-85
図 3.8.103	中子圧縮試験荷重 - 高さ変位曲線近似の比較	3.8-86
図 3.8.104	中子圧縮試験近似による周方向応力 - 周方向ひずみ曲線比較	3.8-86
図 3.8.105	試験中に生じる摩擦箇所の模式図	3.8-87
図 3.8.106	従来型、改良型の応力状態、ひずみ比の比較	3.8-87
図 3.8.107	各水素量における破壊時のひずみ量	3.8-88
図 3.8.108	単軸引張から等二軸引張の補正曲線	3.8-88
図 3.8.109	実機環境下へ適用方法の模式図	3.8-89
図 3.8.108	A-EDC 試験で導出した周方向応力 - 周方向ひずみ曲線 (N=5)	3.8-90
図 3.8.109	A-EDC 試験による Zry-4 周方向ヤング率のばらつき (N=5)	3.8-90
図 3.8.110	A-EDC 試験による Zry-4 周方向 0.2%耐力のばらつき (N=5)	3.8-91
図 3.8.111	A-EDC 試験による Zry-4 周方向最大引張強度のばらつき (N=5)	3.8-91
図 3.8.112	A-EDC 試験による Zry-4 周方向破断ひずみのばらつき (N=5)	3.8-92
図 3.8.113	くびれ 1 (左: レーザー顕微鏡写真、右: 軸方向高さ分布、Test 2)	3.8-93
図 3.8.114	くびれ 2 (左: レーザー顕微鏡写真、右: 軸方向高さ分布、Test 2)	3.8-93
図 3.8.115	くびれの数と破断ひずみの関係	3.8-94
図 3.8.116	軸方向破断ひずみにおける理論値と実験値比較	3.8-95

図 3.8.117	軸方向破断ひずみ理論値からのずれとくびれ数との関係	3.8-95
図 3.8.118	破断ひずみの周方向ひずみ速度依存性	3.8-97
図 3.8.119	Zry-2 平板の RD、TD の破断ひずみ量	3.8-97
図 3.8.120	機械試験ごとの周方向及び軸方向破断ひずみ	3.8-98
図 3.8.121	周方向機械試験による Zry-4 の破断ひずみ	3.8-98
図 3.8.122	Schematic of hydrogen-charging experimental instrument	3.8-102
図 3.8.123	Optical microscope observation of hydrides in different samples (a) 20 ppm; (b) 200 ppm; (c) 500 ppm; (d) 1000 ppm; (e) 2000 ppm; (f) illustration of observed region	3.8-102
図 3.8.124	SEM observation of hydrides at 1000× magnification. (a) 20 ppm; (b) 200 ppm; (c) 500 ppm; (d) 1000 ppm; (e) 2000 ppm	3.8-103
図 3.8.125	Morphology of (a) needle-shaped and (b) plate-shaped hydrides	3.8-104
図 3.8.126	load-height displacement and load-hoop strain (OD) curves obtained through A-EDC experiment. The cross marks means fracture occurred at corresponding hoop strain (OD). OD represents the maximum of outer diameter.	3.8-104
図 3.8.127	Strain rate in hoop direction (OD) for Cu pellet and hydrided samples in A-EDC experiment	3.8-105
図 3.8.128	OM overall observation of fractured ring-shaped sample after A-EDC experiment	3.8-105
図 3.8.129	Observation of fracture morphology by SEM. The sample contained 1000 ppm hydrogen. (a) and (b) represented two fractured surfaces; (c) and (d) were partially enlarged figures	3.8-106
図 3.8.130	Observation of hydrided sample (1000 ppm). (a) outer surface; (b) inner surface	3.8-106
図 3.8.131	SEM observation of RD-CD plane. The right figure is a schematic drawing of crack propagation during A-EDC experiment	3.8-107
図 3.9.1	光学顕微鏡用引張試験装置の外観状況	3.9-21
図 3.9.2	切欠付引張試験片	3.9-22
図 3.9.3	切欠付引張試験片の引張試験機への装着状況	3.9-23
図 3.9.4	切欠付引張試験片の引張試験後、切欠部（または破断部）状況	3.9-24
図 3.9.5	切欠付引張試験片の破断部における断面減少率測定結果	3.9-24
図 3.9.6	FEM 解析モデル	3.9-25
図 3.9.7	FEM 解析結果（Mises 相当応力の分布）	3.9-26
図 3.9.8	FEM 解析による径方向（丸棒）または板幅方向（板材）の応力成分分布と試験片破断状況の比較	3.9-27

図 3.9.9	切欠き付リング引張試験片 (Zry4 受取材)	3.9-28
図 3.9.10	切欠付リング引張試験片の引張試験機への装着状況と引張用固定治具	3.9-29
図 3.9.11	切欠付リング引張試験片の破断部における断面減少率測定結果と試験片形状の関係	3.9-30
図 3.9.12	FEM 解析モデル	3.9-31
図 3.9.13	応力-歪関係	3.9-31
図 3.9.14	FEM 解析境界条件	3.9-32
図 3.9.15	FEM 解析荷重条件と着目要素	3.9-32
図 3.9.16	着目要素位置での変形に伴う真歪量の比較	3.9-33
図 3.9.17	その場観察試験用切欠き付リング試験片と試験状況	3.9-34
図 3.9.18	光学顕微鏡用引張試験装置でのその場観察試験結果 (Zr-2.5Nb-400ppm)	3.9-35
図 3.9.19	光学顕微鏡用引張試験装置での予備試験結果後金相観察写真	3.9-36
図 3.9.20	その場観察試験用切欠き付リング試験片切欠き部拡大写真 (試験前)	3.9-36
図 3.9.21	その場観察試験における荷重-変位曲線とその場観察写真記録時点	3.9-37
図 3.9.22	その場観察試験における変形量測定結果	3.9-37
図 3.9.23	その場観察試験における金相観察写真	3.9-38
図 3.9.24	その場観察試験後金相観察写真	3.9-39
図 3.9.25	金相観察面から僅かに研磨 (~0.1 mm) した面での観察写真	3.9-39
図 3.9.26	試験炉での反応度事故試験時応力/歪の解析結果 (左図) と破損限界歪への水素濃度と応力状態の影響 (右図)	3.9-40
図 3.9.27	H26 年度多軸応力機械試験の試験体系の模式図	3.9-41
図 3.9.28	試験治具による試験片固定状況	3.9-41
図 3.9.29	切欠き半径影響確認に用いた試験片の試験前外観例	3.9-42
図 3.9.30	切欠き深さ影響確認に用いた試験片の試験前外観例	3.9-43
図 3.9.31	切欠き深さ影響確認に用いた試験片の試験前外観例	3.9-43
図 3.9.32	本試験で用いたひずみ分布測定手法	3.9-44
図 3.9.33	試験後の試験片外観状況 (切欠き半径影響確認試験)	3.9-45
図 3.9.34	荷重-変位線図 (切欠き半径影響確認試験)	3.9-46
図 3.9.35	断面減少率と切欠き半径の関係	3.9-46
図 3.9.36	ひずみ分布測定結果	3.9-47
図 3.9.37	試験後の試験片外観状況 (切欠き深さ影響確認試験)	3.9-48
図 3.9.38	断面減少率と切欠き深さの関係	3.9-49
図 3.9.39	試験後の試験片外観状況 (リガメント幅影響確認試験)	3.9-49
図 3.9.40	断面減少率とリガメント幅の関係	3.9-50
図 3.9.41	断面減少率と水素濃度の関係	3.9-50

図 3.9.42	水素吸収材を用いた試験後試料の横断面金相観察	3.9-51
図 3.9.43	解析モデル	3.9-52
図 3.9.44	FEM 解析境界条件	3.9-52
図 3.9.45	荷重条件	3.9-53
図 3.9.46	有限要素解析による応力分布評価例 (R=0.05mm、D=0.25mm、W=0.3mm)	3.9-54
図 3.9.47	解析によるひずみ評価と試験データの比較	3.9-55
図 3.9.48	軸/周応力比と切欠き半径の関係	3.9-56
図 3.9.49	ひずみ比と応力比の関係	3.9-56
図 3.9.50	H27 年度多軸応力機械試験の試験体系の模式図	3.9-57
図 3.9.51	試験治具による試験片固定状況	3.9-57
図 3.9.52	断面減少率と試験片寸法の関係	3.9-58
図 3.9.53	試験前外観状況の例	3.9-59
図 3.9.54	試験片の変形過程	3.9-60
図 3.9.55	荷重-変位線図	3.9-61
図 3.9.56	試験後試験片の外観状況の例	3.9-62
図 3.9.57	クラック発生直前における平面ひずみ試験片のひずみ分布測定結果	3.9-63
図 3.9.58	クラック発生直前における中間試験片のひずみ分布測定結果	3.9-64
図 3.9.59	ひずみ比と応力比の関係	3.9-65
図 3.9.60	多軸応力度の変化と破壊ひずみの関係 (受取材)	3.9-66
図 3.9.61	多軸応力度の変化と破壊ひずみの関係 (受取材、水素化材、高温酸化材)	3.9-67
図 3.9.62	平面ひずみ試験片の解析モデル	3.9-68
図 3.9.63	単軸試験片の解析モデル	3.9-69
図 3.9.64	最大荷重時の応力分布	3.9-70
図 3.9.65	ひずみ比と応力比の関係	3.9-71
図 3.10.1	EBSD 観察における試料調整	3.10-7
図 3.10.2	EBSD 法による結晶方位決定の流れ	3.10-7
図 3.10.3	GOS 値と塑性ひずみ量の比較 (平成 26 年度報告書、再掲)	3.10-8
図 3.10.4	EBSD 法によるひずみ指標の評価手法 (a)KAM (b)GOS	3.10-8
図 3.10.5	AEDC 試験材の EBSD 観察結果 ひずみ量 16 %	3.10-9
図 3.10.6	AEDC 試験材の EBSD 観察結果 ひずみ量 21 %	3.10-10
図 3.10.7	粒径分布 (直径換算)	3.10-11
図 3.10.8	KAM 分布	3.10-12
図 3.10.9	GOS 面積割合分布	3.10-13
図 3.10.10	GOS 値と塑性ひずみ量の比較	3.10-13
図 3.10.11	8500 時間腐食材の EBSD 観察結果	3.10-14

図 3.10.12	1000 ppm 水素化 AEDC 試験材の EBSD 観察結果	3.10-16
図 3.10.13	破断部近傍の EDS 観察結果 (a)滑らかな破断面	3.10-17
図 3.10.14	予想される混在破面の形成の流れ	3.10-19
図 3.10.15	Zry-2 の室温における真応力 - 真ひずみ関係	3.10-19
図 3.10.16	FEM 計算例 (a)計算モデル (b)Mises 応力分布 (c)塑性ひずみ分布	3.10-20
図 3.11.1	J1 受領材の三次元原子マップ	3.11-19
図 3.11.2	J2 受領材の EDS マップと三次元原子マップ	3.11-19
図 3.11.3	J3 受領材の EDS マップと三次元原子マップ	3.11-20
図 3.11.4	ZIRLO の金属母相 - 酸化被膜界面の Wei らの APT 分析結果	3.11-21
図 3.11.5	J3 腐食材の三次元原子マップ (その 1)	3.11-21
図 3.11.6	J3 腐食材の三次元原子マップ (その 2)	3.11-22
図 3.11.7	J3 腐食材の三次元原子マップ (その 3)	3.11-22
図 3.11.8	Lin らが分析したアモルファス Nb 析出物の EELS スペクトラム	3.11-23
図 3.11.9	Kim らの HR-TEM 分析結果と Nb 析出物のふるまいの模式図	3.11-23
図 3.11.10	Yao らの HR-TEM 分析結果と Nb 析出物の酸化プロセスの模式図	3.11-24
図 3.11.11	Sakamoto と Une らの STEM と EDS 分析結果	3.11-25
図 3.11.12	Perez らの Zr-Nb-O 擬二元系計算状態図	3.11-25
図 3.11.13	本研究で使用した FIB (東大東海村キャンパスの Hitachi FB2000)	3.11-26
図 3.11.14	本研究で主に使用した TEM (東北大大洗の JEOL ARM200F)	3.11-26
図 3.11.15	表面酸化被膜の STEM 像 (a) 3,500 時間 (b) 13,000 時間	3.11-27
図 3.11.16	酸化被膜及び隣接する金属母相における Nb 析出物のサイズ分布 (3,500 時間)	3.11-28
図 3.11.17	酸化被膜及び隣接する金属母相における Nb 析出物のサイズ分布 (8,500 時間)	3.11-29
図 3.11.18	酸化被膜及び隣接する金属母相における Nb 析出物のサイズ分布 (13,000 時間)	3.11-30
図 3.11.19	表面酸化被膜の EDS マップ	3.11-31
図 3.11.20	EDS における Nb-L 線のピークオーバーラップ	3.11-32
図 3.11.21	Nb-L マップにおける Nb 析出物の視認性と試料厚さの関係	3.11-33
図 3.11.22	Nb-L 線と Nb-K 線の比較	3.11-34
図 3.11.23	特性 X 線の強度プロファイル	3.11-35
図 3.11.24	Nb-O 二元系平衡状態図	3.11-36
図 3.11.25	酸化に伴う電子密度と原子密度の変化	3.11-37
図 3.11.26	界面近傍の (STEM で識別できる) 析出物の結晶構造解析	3.11-38
図 3.11.27	bct-NbO ₂ の回折図形	3.11-39
図 3.11.28	t-NbO ₂ の回折図形	3.11-40

図 3.11.29	界面から離れた (STEM で識別困難な) 析出物 (その 1)	3.11-41
図 3.11.30	界面から離れた (STEM で識別困難な) 析出物 (その 2)	3.11-42
図 3.11.31	界面から離れた (STEM で識別困難な) 析出物 (その 3)	3.11-42
図 3.11.32	腐食試験の結果	3.11-43
図 3.11.33	転位と結晶回転 (回位) の関係	3.11-43
図 3.11.34	小傾角粒界における粒界転位の間隔と粒界傾斜角の関係	3.11-44
図 3.11.35	結晶粒内に分散した転位の概念図	3.11-44
図 3.11.36	同じ場所を TEM と EBSD で分析した例	3.11-45
図 3.11.37	転位の間隔を転位の密度に換算する手法の概念図	3.11-45
図 3.11.38	転位密度と転位の間隔の関係、及び、Read の式から導出した転位の間隔と傾斜角の関係	3.11-46
図 3.12.1	サイクロトロン加速器ビームライン概略図	3.12-8
図 3.12.2	AVF サイクロトロン加速器本体	3.12-8
図 3.12.3	回転式エネルギーディグレーダ	3.12-9
図 3.12.4	エネルギーディグレーダの模式図	3.12-9
図 3.12.5	粒子の飛程の加速電圧依存性	3.12-10
図 3.12.6	SRIM による計算結果の一例	3.12-10
図 3.12.7	Al 箔で減衰した 粒子の材料中での飛程	3.12-10
図 3.12.8	He イオンの注入分布	3.12-11
図 3.12.9	エネルギーディグレーダ使用時の深さ方向への He 注入量分布	3.12-11
図 3.12.10	真空度測定装置の各構成部品	3.12-12
図 3.12.11	真空度測定装置設置後外観図	3.12-12
図 3.12.12	イオン注入温度測定装置の各構成部品	3.12-13
図 3.12.13	イオン注入温度測定装置設置後の外観図	3.12-14
図 3.12.14	イオン注入温度測定制御 PC の設置	3.12-14
図 3.12.15	試料表面温度分布の測定例	3.12-14
図 3.12.16	イオン注入計測システムの各構成部品	3.12-15
図 3.12.17	イオン注入計測システム設置後外観図	3.12-16
図 3.12.18	イオン注入計測システム制御 PC の設置	3.12-16
図 3.12.19	SS-J 型微小引張試験片	3.12-17
図 3.12.20	研磨琢磨機	3.12-17
図 3.12.21	照射ステージ	3.12-18
図 3.12.22	照射ステージ設置プレート	3.12-18
図 3.12.23	制御室からの遠隔コントロール	3.12-19
図 3.12.24	He 注入時の照射ステージ温度の有限要素解析結果の一例	3.12-19
図 3.12.25	ビーム電流値の He 注入試験中における時間推移の計測結果の一例	3.12-20

図 3.12.26	真空度の He 注入試験中における時間推移の計測結果の一例	3.12-20
図 3.12.27	試験片温度の He 注入試験中における時間推移の計測結果の一例	3.12-20
図 3.12.28	He 注入後の試験片表面写真の一例	3.12-21
図 3.12.29	鉛容器	3.12-21
図 3.12.30	L 型容器の外観	3.12-22
図 3.12.31	L 型容器の中身	3.12-22
図 3.13-1	放射線管理区域内の NIMS サイクロトロン加速器と He 注入試験装置	3.13-4
図 3.13-2	He 注入試験用試料形状	3.13-5
図 3.13-3	He 注入試験用試料組織写真	3.13-5
図 3.13-4	He 注入試験用試料の装着	3.13-6
図 3.13-5	He 注入試験模式図と He イオンビーム形状	3.13-7
図 3.13-6	試料のダメージプロファイルと He 注入分布	3.13-8
図 3.14.1	平板引張試験片の作製方法	3.14-10
図 3.5.2	平板引張試験片への高エネルギーイオン照射実験体系	3.14-10
図 3.14.3	(a)エネルギーデグレーダーの設計図と、(b) SRIM コードを使用して計算した、当照射条件で試験した際に生じる Zr 組織に導入される損傷量の深さ依存性	3.14-11
図 3.14.4	平板引張試験片用の照射ステージの設計図	3.14-12
図 3.14.5	平板引張試験片への照射試験中の温度履歴	3.14-12
図 3.14.6	管状試験片への高エネルギーイオン照射実験体系	3.14-13
図 3.14.7	(a)管状試験片への高エネルギーイオン照射のための照射ステージの外観写真と、(b)その設計図	3.14-13
図 3.14.8	平板引張試験片の微細組織特徴	3.14-14
図 3.14.9	平板引張試験片への照射試験中の照射量の推移と温度履歴	3.14-14
図 3.14.10	照射した TD および RD 材の応力-ひずみ曲線	3.14-15
図 3.14.11	0.2%耐力の照射量依存性	3.14-15
図 3.14.15	最大引張応力の照射量依存性	3.14-16
図 3.14.16	加工硬化指数の応力依存性	3.14-16
図 3.14.17	加工硬化率の照射量依存性	3.14-17
図 3.14.18	平成 26 年度に実施した照射材の形状ならびに外観写真	3.14-17
図 3.14.19	平 26 年度に実施した照射試験の(a)温度履歴と、(b)照射試験後の外観写真	3.14-18
図 3.14.20	平成 27 年度に実施した(a)改良型の照射ステージの外観写真と、(b)試料写真およびその形状.	3.14-18
図 3.14.21	平成 27 年度に実施した照射試験の温度履歴	3.14-19
図 3.14.22	平成 27 年度に実施した照射試験におけるビームヒーティングのビーム電流量依存性	3.14-19

図 3.14.23	平成 27 年度に実施した照射試験における照射前後の試験片形状	3.14-20
図 3.15-1	東大 HIT の 1.7MV タンデトロン	3.15-3
図 3.15-2	BL5 用照射ステージ	3.15-5
図 3.15-3	BL5 用加熱システム	3.15-5
図 3.15-4	電子線加熱用の絶縁碍子の外観	3.15-5
図 3.15-5	鉄イオン (2.8MeV) によるはじき出し損傷量の評価 .	3.15-7
図 3.15-6	照射試験における試料温度履歴 (SSJ 照射時)	3.15-7
図 3.15-7	Zr-1.8Nb 合金(未照射材、中エネルギーイオン照射材)の引張特性	3.15-10
図 3.15-8	光学顕微鏡を用いた変形挙動の照射影響比較	3.15-10
図 3.15-9	原子間力顕微鏡を用いた変形挙動の照射影響比較	3.15-11
図 3.15-10	原子間力顕微鏡を用いた 4 照射材の表面段差測定	dpa 3.15-11
図 3.15-11	試料表面の走査電子顕微鏡写真	3.15-12
図 3.15-12	結晶方位差(GOS)の比較	3.15-12
図 3.15-13	その場観察ビームラインの概要	3.15-16
図 3.15-14	その場観察ビームラインの外観	3.15-16
図 3.15-15	ビームラインと電子顕微鏡の接合部の外観	3.15-17
図 3.15-16	照射領域を確認するために使用したカプトンフォイルの一部	3.15-18
図 3.15-17	試料位置におけるビームプロファイル	3.15-18
図 3.15-18	Fe(2MeV)照射された Zr 薄膜 (100 nm)のはじき出し損傷量分布	3.15-19
図 3.15-19	Zr-1.8Nb 合金の照射その場観察結果	3.15-20
図 3.15-20	Zr-1.8Nb 合金の照射その場観察結果	3.15-21

略語一覧

AFM: Atomic Force Microscope (原子間力顕微鏡)

CP: Cross section Polisher (クロスセクションポリッシャー)

EBS: Electron BackScattering Diffraction pattern (電子線後方散乱回折法)

FE-SEM: Field Emission Scanning Electron Microscope (電界放出型電子顕微鏡)

GOS: Grain Orientation Spread (結晶粒方位分散)

IPF: Inverse Pole Figure (逆極点図)

IQ: Image Quality (イメージクオリティ)

KAM: Kernel Average Misorientation (局所方位差)

SEM: Scanning Electron Microscope (走査型電子顕微鏡)

概要

【研究の必要性】

原子炉燃料では、燃料ペレットと被覆管（ないし被覆材）の2つの物理障壁による放射性物質閉じ込めがプラント健全性確保の要となる。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放射性物質を閉じ込める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いて劣化が進行しても機械強度は十分であり破断や貫通欠陥に至らないことが要求される。また原子炉事故では高温水蒸気腐食と水素化の進展により被覆管内圧上昇、燃料-被覆管機械的相互作用が過剰となり燃料破損に至ったものと考えられる。この事象に対する燃料の燃焼度、すなわち劣化の影響は不明であり、いつまで炉心が持ち堪えることができるかを示すことができなかった。今後のシビアアクシデント・マネジメントの中では燃料被覆管の裕度について明確に示す必要がある。

これらの要求に対して燃料被覆管に関する知見は必ずしも十分ではない。これは、規制要求として、通常使用および異常過渡の条件においては貫通性損傷が生じないことの実力を示すことが求められていて、また想定事故事象に対する破損限界範囲から燃料の使用制限を決めてきた経緯があるからである。換言すれば、想定を超えた事象に対する安全性や裕度の記述は不明確である。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開発する必要がある。

【目的】

そこで本研究では以下を目的とした。軽水炉および高速増殖炉の燃料被覆管を対象とし、(1)腐食、水素化、He蓄積、照射脆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する。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、劣化のミクロ機構を明らかにする。そしてこれらを総合して、(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。

【業務の成果】

本研究は四年計画事業の最終年度に当たり、次世代軽水炉燃料被覆管および高速増殖炉燃料被覆管候補材料である、Zr-Nb合金（J合金）ならびに酸化物分散強化鋼（12Cr-ODS鋼）を対象として材料劣化を腐食、水素化、イオン照射により模擬し、燃料被覆管に特徴的な多軸応力場を模擬する手法を開発し、機械強度（クリープ強度）と微細組織観察を組み合わせた劣化メカニズム解明を行った。

(1)材料選定と材料劣化試験

本事業で対象とする材料をこのタスクから供給し、また腐食と水素化試験を実施した。腐食試験では PWR 実機冷却材模擬水および事故時挙動を模擬した高温水蒸気雰囲気を含む

環境下で腐食試験を実施し腐食時間を 13000 時間程度まで伸長した。腐食材の腐食量ならびに吸収水素量を測定し、金相観察試験を実施した。水素化試験では最大 1800ppm 程度の水素化試験を実施した。水素化材の吸収水素量を測定し、金相観察試験を実施した。

(2)劣化材料の機械的性質評価

高温クリープ試験を実施した。ODS 鋼を対象として変形および破壊機構領域図を作成するために、973 K、真空中でクリープ試験を実施した。この時の負荷応力は 120-200 MPa とし、クリープ速度は Galofaro のクリープ式により求めた。負荷応力 200 MPa の試料に対して走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて破面観察を行い破壊機構の推定を行った。

改良型中子拡管試験の開発を行った。中子や被覆管試料の形状や材質などを最適化し、また有限要素解析から応力分布に関する情報を取得し、ほぼ純粋な周方向応力による変形を確認した。これを実機条件に適用するための換算法について検討を行った。光学顕微鏡内引張試験装置によるその場観察試験を実施し、有限要素法解析を実施し、試料形状の最適化を行った。

(3)劣化材料のミクロ組織観察試験

腐食材、水素化材、機械試験材等に対し SEM/EBSD 観察および TEM 観察を行った。EBSD 観察組織と破断材のひずみ量との相関をとるための指標を探索し、IQ、KAM、GAM、GOS 等の種々の可視化手法を検討した結果、IQ 以外は指標となりえるが、観察条件に左右されにくく再現性に優れる GOS が指標として適切と評価した。また水素化材の破断に対する水素化物の形状や粒径の影響について TEM や EBSD を用いて調査し、ミクロなクラック形成との関連について定性的な情報を得た。TEM 観察では腐食材の観察を重点的に行った。腐食材を観察した結果、そのデータを解釈するために、無垢材を再観察する必要が生じたため、これも併せて行った。腐食材の試料は J 合金 (J3) であり、PWR 環境を模擬した水中 (360 、18.7 MPa、2.2 ppm Li / 500 ppm B) で 3500 時間腐食させたものである。無垢材の観察は 3 種類の J 合金 (J1、J2、J3) の全てについて行った。

(4)イオン照射試験

高速増殖炉に特有な He 脆化を模擬するためにイオン注入試験を行った。サイクロトロン加速器を用い、エネルギーディグレーダ等の照射条件を最適化した。数十 ppm 程度の He 注入材を作製した。そしてクリープ試験を実施し粒界破壊を確認した。また、高エネルギーイオン照射試験として Zr-Nb 合金に対して数 dpa までの照射試験を行った。勝者試料を機械試験等が実施可能な施設に移送した。

上記の高エネルギーイオン照射試験では加速器の特性として得られるビーム強度が低く、現実的な範囲では 10dpa 程度に限界があるため、高損傷量領域をカバーするために中エネルギーイオン照射試験を行った。タンデトロン加速器を用いて単純な高温イオン照射実験を行うと共に、当事業の特徴として加速器ビームラインを電子顕微鏡に接続し、イオン照射その場観察を可能とすることに成功した。これは世界的に見て最高エネルギーのイオン照射を可能とする装置である。本システムを用いた実験は平成 26 年度以降に本格化する。

(5)委員会

これらの研究成果について議論し、広く意見を聞きながら研究を進めるため、委員会を開催し、有益な議論ならびに指導を得た。

これらの成果は、国内外の会議や論文として広く報告されている。詳細なリストは様式21に記す。この概要では件数について記載する。

発表 合計 89 件

国内学会発表 63 件（内、口頭発表 37 件、ポスター発表 26 件）

国際学会発表 26 件（内、招待講演 2 件、口頭発表 15 件、ポスター発表 9 件）

論文 合計 22 件

ジャーナル 21 件、査読付プロシーディングス 1 件

（内、発刊済 19 件、発刊予定 3 件）

1. はじめに

【研究の必要性】

原子炉燃料では、燃料ペレットと被覆管（ないし被覆材）の2つの物理障壁による放射性物質閉じ込めがプラント健全性確保の要となる。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放射性物質を閉じ込める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いて劣化が進行しても機械強度は十分であり破断や貫通欠陥に至らないことが要求される。

また今回の福島第一原子力発電所における原子炉事故では、長時間にわたる全電源喪失という想定を超えた事態に至り、その結果長時間にわたり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に至ったものと考えられる。通常、原子炉内には燃焼度の異なる、すなわち劣化状況の異なる燃料が混在しているが、材料劣化が今回のような事故時にどのように影響するかは不明であり、炉心のモニタリングの術が無かったこととも相まって、いつまで炉心が持ち堪えることができるかを示すことができなかった。今後のシビアアクシデント・マネジメントの中で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と考えられる。

これらの要求に対して燃料被覆管に関する知見は必ずしも十分ではない。これは、規制要求として、通常使用および異常過渡の条件においては貫通性損傷が生じないことの実力を示すことが求められていて、また事故も同様で想定事象における破損限界の実力を示すことで燃料の使用制限を決めてきた経緯があるからである。換言すれば、規制で想定した範囲内において「止める、冷やす、閉じ込める」の安全の大原則を達成できることを実証することが求められていて、科学的説明性は必ずしも要求されていないことを意味している。しかし、想定を外れた事象、例えば予期しない燃料リークのような事象が発生した場合、または今回の事故のように工学的想定を超えるような事象が発生した場合には、何をもって安全性を表現できるかが明確ではなく、また事象に至る過程や条件が多様であり規定は困難である。そのため事象を素過程に分解してイベントツリーを構成し定性的定量的に事象進展を説明することが有効と考えられるがあまり例がない。

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。

【目標】

そこで本研究では、軽水炉および高速増殖炉の燃料被覆管を対象として、(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する。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、劣化のミクロ機構を明らかにする。そしてこれらを総合して、(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。

2. 業務計画

2.1 全体計画

図 2.1 に本研究の構成を示す。軽水炉では腐食、水素化、照射損傷、また高速炉では照射損傷と核反応 He の蓄積が、それぞれの環境での代表的材料劣化事象であり、これら事象の進行に対して FP ガス蓄積による内圧上昇や燃料-被覆管機械的相互作用に伴う機械力や変位が重畳する。従ってこのような劣化と負荷に対応した環境劣化試験、機械強度試験およびマイクロ分析試験を実施する。

タスク 1：材料選定と劣化モード

まず、現行の軽水炉用燃料被覆管材料（ジルカロイ 2 または 4）を対象として腐食試験、水素化試験、イオン照射試験を実施する。当該材料では多くの知見の蓄積があり、耐力や破断伸びの中性子照射量依存性[1-1]等、炉内挙動が既知であることから本事業で採用する試験法の妥当性評価に用いる。また比較材として改良被覆管材や次世代被覆管材(Zr-Nb 合金)を用いる。特に Zr-Nb 合金については平成 21-23 年度に実施したイニシアティブ事業[1-2]において実機適用性に優れた材料であるとの結論を得ており、これの確証を更に深める試験となる。

これらの通常時健全性に対応した試験に加えて、本研究では事故時挙動模擬試験として、上記の劣化試料を高温水蒸気雰囲気中に曝し腐食速度を計測する試験を実施する。

また、高速増殖炉用燃料被覆管材料としては日本の知見蓄積がされている Cr と Ni を富化したステンレス鋼（PNC316 等）や酸化物分散型ステンレス鋼（ODS 鋼）を用いる。これらの材料は 400～700 の温度域にて、原型炉で 130GWd/t（照射量換算で 115dpa）、実証炉では 250GWd/t（同、250dpa）までの照射により健全性を保持することが要求されている[1-3,1-4]。これを模擬したイオン照射および He 注入試験により劣化を評価する。

尚、供試材は ODS 鋼については製造し、他の鋼は購入する。Zr 系材料は三菱原子燃料(株)より入手することとした。腐食試験と水素化試験はニュークリア・デベロップメント(株)にて実施する。イオン照射試験は、He 注入試験を東北大（長谷川 G）および物材機構、中エネルギーイオン照射試験は東大にて実施し、事故時挙動模擬試験および高エネルギー重イオン照射試験は東北大(阿部 G)にて実施する。

タスク 2：劣化の評価（マクロ試験）

本項目ではタスク 1 で環境劣化させた材料に対して以下の機械試験を実施する。以下の試験項目は東北大(阿部 G)にて実施する。

- (a) 引張試験およびナノ硬度試験により、一般的な材料特性を把握する。ジルカロイに関しては豊富な既往研究データとの比較により本手法の妥当性を評価する。これを基準とし他の材料の性能を評価する。
- (b) 通常運転以上の温度域における高温クリープ試験から変形機構図を作成し、通常条件における劣化挙動、異常/事故条件における破損挙動を評価する。この時、被覆管形状と異方性のある応力負荷と材料の劣化の度合いを考慮に入れて整理することで、事故時挙動をより明確にすることができる。
- (c) 内圧上昇や PCMI、FCMI をより正確に表現するために、中子拡管法を用いて周方向応力負荷

条件でのクリープ試験により材料の脆化を評価する。中子拡管法でこれまでに指摘されている、実機との応力条件の違い（多軸条件、または応力支配か歪支配か）を考慮に入れて当該手法を改良した新しい手法を提案する。

タスク 3：劣化の評価（ミクロ組織観察）

本項目ではタスク 1 で環境劣化させた材料、およびタスク 2 で機械試験を施した材料に対して以下の観察 / 分析試験を実施する。

- (a) 試料縦横断面および機械試験後の破面を SEM/EBSD 法を用いて観察する。そして腐食被膜、水素化物、He バブルに起因した割れの起点などを観察し、被覆管集合組織等との組織学的関係および結晶学的関係を明らかにする。本項目は阪大が担当する。
- (b) 試料縦横断面および機械試験後の破面を光学顕微鏡法および透過電子顕微鏡法も用いて観察する。そして腐食被膜、水素化物、He バブルなどを観察し、被覆管集合組織等との組織学的関係および結晶学的関係を明らかにする。本項目は東北大(阿部 G)が担当する。

タスク 4：ミクロ組織形成

本項目では、中エネルギー加速器を用いてタスク 1 の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する。材料としては、無垢材だけでなく、劣化の進んだ被覆管の照射効果を模擬するため水素化材、He 注入材に対する照射試験も実施する。本項目は東大および東北大(阿部 G)で担当する。

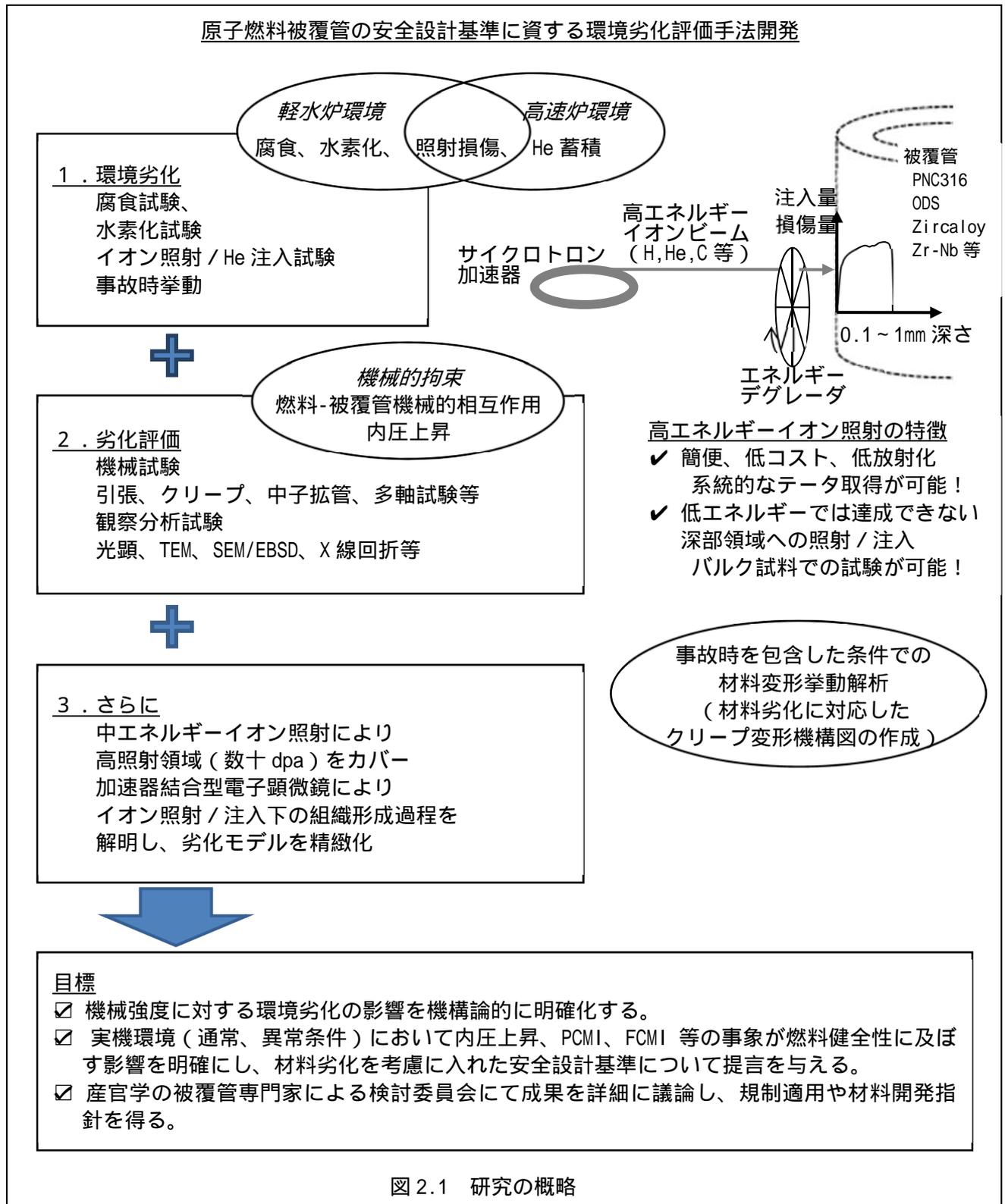
- (a) イオン照射試験を実施し、照射試料をタスク 3 に供する。広範囲の温度域、照射領域にわたって組織形成過程を詳細に記述するべく照射マトリックスを大きくとる。そしてタスク 1 ~ 3 の試験と合わせ劣化の機構論を構築する。
- (b) 中エネルギー加速器を電子顕微鏡に接続させ、イオン照射その場観察実験を実施する。そして母相や析出粒子、水素化物や He バブル等の組織の照射下安定性を明らかにする。これにより組織形成の動的過程を詳細に記述し、劣化モデルを精緻化する。

タスク 5：研究検討委員会

上記タスクの成果を統合し、機構論の検討と実機適用を視野に入れた工学的評価を実施する。また、本研究グループのみにとどめず、関連研究者、開発担当者、電力、規制担当者等を本事業の外部評価委員として招へいし、単に研究進捗を評価するだけでなく、燃料開発及び規制に対する本事業成果の適用性について検討し、より合理性のある開発基準と規制の考え方についての議論を進める。この議論の内容は、研究代表者が参画する燃料ロードマップ関連委員会等へも報告し、より高い視点からの意見を受け、議論を進める。本タスクは、代表者が H21-23 年に実施した原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ事業[1-2]においてその有効性が強く認識されており、本提案においても引き続き開催することとした。

燃料被覆管材料に関し、これまでの実炉照射による実力ベースでの健全性説明に加えて、機構論に基づいた科学的説明を行うために以下の目標を掲げる。すなわち、腐食、水素化、イオン照射により環境劣化材を作製し、事故時挙動を含めた機械試験により管の強度や変形/破壊挙動と様相を明らかにする。現行材に対する試験結果を既往研究データと対比させ、当該試験

の妥当性を検証する。そして改良材や次期材に対し同様の試験を行い十分な性能を確認するとともに、安全裕度を示す。これらの挙動は詳細な観察分析やその場観察等を駆使し機構モデルを構築する。燃料専門家から構成される検討委員会にて多角的視点から成果を検討し規制や開発に反映可能な知見としてまとめる。以上をまとめ、表 1-1 に全体計画を示す。



2.2 平成 27 年度業務計画

業務計画を以下に示す。また表 1-2 に業務計画を示す。

(1) 材料選定と材料劣化試験

材料供給 1 (再委託先：NDC)

平成 26 年度に引き続き本業務にて使用する材料を供給する。材料はジルカロイ 4 および Zr-Nb 合金 (以下、Zr 系材料) とする。

材料供給 2

平成 25 年度に引き続き本業務にて使用する材料を供給する。材料は 12Cr-ODS 鋼 (以下、ODS 鋼) とする。

腐食試験 (再委託先：NDC)

平成 26 年度に引き続き実機冷却材模擬水および事故時挙動を模擬した高温水蒸気雰囲気を含む環境下で腐食試験を実施する。腐食材の腐食量ならびに吸収水素量を測定し、また金相観察試験を実施する。腐食材を(2)および(3)に供給する。

水素化試験 (再委託先：NDC)

最大 1800ppm 程度の水素化試験を実施する。水素化材の吸収水素量を測定し、また金相観察試験を実施する。水素化材を(2)および(3)に供給する。

(2) 劣化材料の機械的性質評価

引張試験およびナノ硬度試験

Zr 系材料、ODS 鋼、腐食材、水素化材に対し、ガス置換型高温炉付き材料強度試験システム(リース)、引張試験機 (既存) および超微小硬度計 (既存) を用いて室温引張試験およびナノ硬度試験を実施する。引張試験により破断した材料を(3) に供給する。

高温クリープ試験 1

微小試験片用高温高真空クリープ試験機 (平成 24 年度導入) 引張試験装置 (既存)、ガス置換型クリープ試験装置 (既存) を用いクリープ試験を実施する。

高温クリープ試験 2 (再委託先：NIMS)

NIMS で作製された He 注入材について、NIMS 照射後クリープ試験装置を用いてクリープ破断試験を実施する。

中子拡管試験

ガス置換型高温炉付き材料強度試験システム(リース)を用い、平成 26 年度までに開発した改良型中子拡管試験を実施し、有限要素解析と比較検討する。Zr 系被覆管無垢材および水素化材、腐食材に対し同試験を実施する。

多軸応力機械試験 (再委託先：NDC)

平成 26 年度までに開発した手法を踏まえた多軸応力機械試験を実施し、有限要素解析と比較検討する。Zr 系被覆管無垢材および水素化材に対し同試験を実施する。

(3) 劣化材料のミクロ組織観察試験

SEM/EBSD 観察 (再委託先：大阪大学)

平成 26 年度に引き続き無垢材、腐食材、水素化材、機械試験材に対し、走査型電子顕微

鏡/電子線後方散乱回折装置(SEM/EBSD) (既存) を用いて観察試験を実施する。計算機 (HP Z840 Workstation) を導入し材料中のひずみを評価する。一部の試験は東北大学金属材料研究所量子エネルギー材料科学国際研究センターの管理区域内に設置されている SEM/EBSD を用いる。

TEM 観察

無垢材、腐食材、水素化材を観察用試料に適宜加工し、光学顕微鏡 (既存) および TEM (リース) を用いた観察試験を実施する。イメージングプレートシステムを導入し、電子回折像の詳細解析を行う。

(4)イオン照射試験

He 注入試験 1

機械研磨装置を用いて、He 注入試験用の ODS 鋼製引張試験片の表面研磨を実施する。この ODS 鋼製引張試験片に対して、東北大学サイクロトロン加速器 (既存) を用いて He 注入試験を実施する。注入量は数十 appm () オーダーとする。照射試料は(2)および(3)に供する。(appm とは物質の原子濃度を表す単位である。)

高エネルギーイオン照射試験

東北大学サイクロトロン加速器 (既存) および高エネルギー重イオン照射チャンバー (平成 24 年度導入) を用いて、高エネルギーイオン照射試験を実施する。平成 26 年度に導入した TEM ディスク試料用照射ステージおよび管状試料用照射ステージを用いた照射試験を実施する。照射試料は(2)および(3)に供する。

中エネルギーイオン照射試験 (再委託先: 東京大学)

平成 26 年度までに設置したイオンビーム照射下組織その場観察ライン装置の真空排気系を更新し、電子顕微鏡内に設置した試料に対し照射実験を行う。照射した試料の電子顕微鏡観察実験を行う。また、イオン照射材を作製する。照射試料は(2)および(3)に供する。一部の試料は集束イオンビーム加工装置 (既存) を用いて断面観察試料を作製し、(3) TEM 観察へ供する。

(5)研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、広く意見を聴きながら研究を進めるため委員会を開催する。

表 2.1 年度別全体計画

業務項目	年度	平成24年度	平成25年度	平成26年度	平成27年度
(1) 材料選定と材料劣化試験 ①材料供給1 (NDC) ②材料供給2			Zr系材料の入手、試料加工、供給 Fe系材料の作製、試料加工、供給		
			腐食試験と腐食材の分析、供給 (中腐食量) 水素化試験と水素化材の分析、供給 (中水素化量) (高水素化量)		
			装置導入	技術開発 (1) および(4)①②③より供給を受けた材料の機械試験	
			装置導入	技術開発 (1) および(4)①②③より供給を受けた材料の機械試験	
(2) 劣化材料の機械的性質評価 ①引張試験およびナノ硬度試験 ②高温クリープ試験 ③中子拡散試験 ④多軸応力機械試験 (NDC)			装置導入	技術開発 (1) ①③④および(4)③より供給を受けた材料の機械試験	
			装置導入	技術開発 (1) より供給を受けた材料の機械試験	
			機器整備	(1) および(2)①②より供給を受けた材料の組織観察/分析試験	
			機器整備	(1)、(2)①②および(4)より供給を受けた材料の組織観察試験	
(3) 劣化材料のミクロ組織観察試験 ①SEM/EBSD観察 (大阪大学) ②TEM観察			技術開発	He注入 (低注入量) (中注入量) (高注入量)	
			技術開発	He注入 (低注入量) (中注入量) (高注入量)	
			技術開発	イオン照射 (低照射量) (中照射量) (高照射量)	
			技術開発	イオン照射試験、およびその場観察試験 (無垢材) (水素化材)	
(4) イオン照射試験 ①He注入試験1 ②He注入試験2 (NIMS) ③高エネルギーイオン照射試験 ④中エネルギーイオン照射試験 (東京大学) (5) 委員会			委員会	委員会	委員会
			まとめ	まとめ	まとめ
			△	△	△
			△	△	△
			△	△	△

表 2.2 月別年間計画

区分	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
(1)材料選定と材料劣化試験												
材料供給 1 (NDC)	←————→											
材料供給 2	←————→											
腐食試験 (NDC)	←————→											
水素化試験 (NDC)	←————→											
(2)劣化材料の機械的性質評価												
引張試験およびナノ硬度試験	←————→											
高温クリープ試験 1	←————→											
高温クリープ試験 2 (NIMS)	←————→											
中子拡管試験	←————→											
多軸応力機械試験 (NDC)	←————→											
(3)劣化材料のミクロ組織観察試験												
SEM/EBSD 観察 (大阪大学)	←————→											
TEM 観察	←————→											
(4)イオン照射試験												
He 注入試験 1	←————→											
高エネルギーイオン照射試験	←————→											
中エネルギーイオン照射試験 (東京大学)	←————→											
(5)研究推進									←————→			

3. 業務の実施内容及び成果

3.1 材料供給 1 (H24～H27)

3.1.1 目的

本業務にて使用する材料を「腐食試験」および「水素化試験」、「劣化材料の機械的性質評価」および「劣化材料のマイクロ組織観察試験」に供給する。材料は、ジルカロイ 4 (以下、Zry4) および Zr-Nb 合金とする。

3.1.2 材料

本事業では、H21-23 年度文部科学省原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ事業において腐食および水素化試験を実施し、実機適用性に優れていることが直接的に示された次世代軽水炉燃料被覆管材料である Zr-Nb 合金を引き続き対象とすることとした。

H24～27 年度にかけて、同材料の受取材を入手するとともに、引き続き腐食および水素化試験を実施し、材料供給を行った。また、機械的性質評価（多軸応力機械試験）に対しても、同様に材料供給を行った。

対象とした材料の仕様は下記のとおりである。

- Zr-1.8Nb
- Zr-1.6Nb-0.1Cr
- Zr-2.5Nb
- Zry4 (従来材料として参照用)

3.1.3 材料の供給

入手した受取材（被覆管）を下記寸法に加工し、NDC で実施した「腐食試験」、「水素化試験」および「多軸応力機械試験」に用いた。

- 腐食試験（実機冷却材模擬水中）：約 100 mm 長
- 腐食試験（高温水蒸気中）：約 10mm～約 30 mm 長
- 水素化試験：約 150mm～450 mm 長
- 多軸応力機械試験：約 1mm～約 500 mm 長

表 3.1.1 に NDC で実施した各試験に供給した材料（受取材）をまとめる。また、表 3.1.2 に示す通り、腐食材および水素化材については、「劣化材料の機械的性質評価」および「劣化材料のマイクロ組織観察試験」の他タスク実施機関に供給した。

3.1.4 まとめ

Zr 系材料について、実施計画に従い、本業務にて使用する材料を「腐食試験」および「水素化試験」、「劣化材料の機械的性質評価」および「劣化材料のマイクロ組織観察試験」に供給した。

表 3.1.1(1) 各試験へ供給した材料（受取材、H24 年度）

(1) 腐食試験：実機冷却材模擬水中（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	本数
Zr-1.8Nb	100 mm	10 本
Zr-1.6Nb-0.1Cr	100 mm	10 本
Zr-2.5Nb	100 mm	10 本
Zry4	100 mm	10 本

(2) 腐食試験：高温水蒸気中（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	本数
Zr-1.8Nb	10 mm	適宜
Zr-1.6Nb-0.1Cr	10 mm	適宜
Zr-2.5Nb	10 mm	適宜
Zry4	10 mm	適宜

(3) 水素化試験（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	本数
Zr-1.8Nb	300 mm	適宜
Zr-1.6Nb-0.1Cr	300 mm	適宜
Zr-2.5Nb	300 mm	適宜
Zry4	300 mm	適宜

表 3.1.1(2) 各試験へ供給した材料（受取材、H25 年度）

(1) 腐食試験：高温水蒸気中（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	本数
Zr-1.8Nb	10 mm	適宜
Zr-1.6Nb-0.1Cr	10 mm	適宜
Zr-2.5Nb	10 mm	適宜
Zry4	10 mm	適宜

(2) 水素化試験（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	本数
Zr-1.8Nb	300 mm	適宜
Zr-1.6Nb-0.1Cr	300 mm	適宜
Zr-2.5Nb	300 mm	適宜
Zry4	300 mm	適宜

(3) 多軸応力機械試験（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	本数
Zr-2.5Nb	500 mm	1 本
Zry4	500 mm	1 本

表 3.1.1(3) 各試験へ供給した材料（受取材、H26 年度）

(1) 腐食試験：高温水蒸気中（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	員数
Zr-1.8Nb	約 30 mm	適宜
Zr-1.6Nb-0.1Cr	約 30 mm	適宜
Zr-2.5Nb	約 30 mm	適宜
Zry4	約 30 mm	適宜

(2) 水素化試験（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	員数
Zry4	約 300 mm	適宜

(3) 多軸応力機械試験（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	員数
Zry4	約 1 mm	適宜

表 3.1.1(4) 各試験へ供給した材料（受取材、H27 年度）

(4) 腐食試験：高温水蒸気中（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	員数
Zry4	約 30 mm	適宜

(5) 水素化試験（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	員数
Zr-1.8Nb	約 150 mm～約 450mm	適宜
Zr-2.5Nb	約 150 mm～約 450mm	適宜

(6) 多軸応力機械試験（実施：NDC）

材料	供給材料：受取材	
	試料長さ	員数
Zry4	約 1 mm～約 3mm	適宜

表 3. 1. 2(1) 各試験へ供給した材料（腐食/水素化試験後、H24 年度）

(1) 劣化材料の機械的性質評価（実施：東北大学）

材料	処理条件	供給材料：受取材	
		試料長さ	本数
Zr-1. 8Nb	高温水蒸気中（1000℃×約 60sec）	10 mm	1 本
	水素化（平均水素濃度 739ppm）	90 mm	2 本
	水素化+熱処理（ " 528ppm）	90 mm	2 本
Zr-1. 6Nb-0. 1Cr	高温水蒸気中（1000℃×約 60sec）	10 mm	1 本
	水素化（平均水素濃度 756ppm）	90 mm	2 本
	水素化+熱処理（ " 507ppm）	90 mm	2 本
Zr-2. 5Nb	高温水蒸気中（1000℃×約 60sec）	10 mm	1 本
	水素化（平均水素濃度 808ppm）	90 mm	2 本
	水素化+熱処理（ " 528ppm）	90 mm	2 本
Zry4	高温水蒸気中（1000℃×約 60sec）	10 mm	1 本
	水素化（平均水素濃度 710ppm）	90 mm	2 本
	水素化+熱処理（ " 484ppm）	90 mm	2 本

(2) 劣化材料のミクロ組織観察試験（実施：大阪大学）

材料	処理条件	供給材料：受取材	
		試料長さ	本数
Zr-1. 8Nb	高温水蒸気中（1000℃×約 60sec）	10 mm	1 本
	水素化（平均水素濃度 739ppm）	5 mm	2 本
	水素化+熱処理（ " 528ppm）	5 mm	2 本
Zr-1. 6Nb-0. 1Cr	高温水蒸気中（1000℃×約 60sec）	10 mm	1 本
	水素化（平均水素濃度 756ppm）	5 mm	2 本
	水素化+熱処理（ " 507ppm）	5 mm	2 本
Zr-2. 5Nb	高温水蒸気中（1000℃×約 60sec）	10 mm	1 本
	水素化（平均水素濃度 808ppm）	5 mm	2 本
	水素化+熱処理（ " 528ppm）	5 mm	2 本
Zry4	高温水蒸気中（1000℃×約 60sec）	10 mm	1 本
	水素化（平均水素濃度 710ppm）	5 mm	2 本
	水素化+熱処理（ " 484ppm）	5 mm	2 本

表 3. 1. 2 (2) 各試験へ供給した材料（腐食/水素化試験後、H25 年度）

材料	仕様	供給材料		供給目的 (供給先)
		試料長さ	数量	
Zr-2. 5Nb	水素化試験後 (平均水素濃度 958ppm)	200 mm	1 本	多軸応力機械試験 (NDC)
	水素化試験後 (平均水素濃度 410ppm)	200 mm	1 本	多軸応力機械試験 (NDC)
	多軸応力機械試験後 (受取材 : J305-3)	5 mm	1 ケ	ミクロ組織観察 (大阪大学)
	多軸応力機械試験後 (平均水素濃度 958ppm 材 : HJ305-3-2)	5 mm	1 ケ	ミクロ組織観察 (大阪大学)
Zry4	水素化試験後 (平均水素濃度 1053ppm)	200 mm	1 本	多軸応力機械試験 (NDC)
	水素化試験後 (平均水素濃度 425ppm)	200 mm	1 本	多軸応力機械試験 (NDC)
	腐食試験（実機冷却材模擬水）後 (7000h、126. 5mg/dm ² : Z-7) 腐食試験片端部より 5~10 mm位置	5 mm	1 ケ	ミクロ組織観察 (大阪大学)

表 3.1.2(3) 各試験へ供給した材料（水素化試験後、H26 年度）

材料	仕様	供給材料		供給先
		試料長さ	数量	
Zry4	水素化試験後 （平均水素濃度 112ppm）	約 300 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 （平均水素濃度 405ppm）	約 300 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 （平均水素濃度 741ppm）	約 300 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 （目標水素濃度 112ppm）	約 1 mm	2 本	NDC （多軸応力機械試験）
	水素化試験後 （目標水素濃度 405ppm）	約 1 mm	2 本	NDC （多軸応力機械試験）
	水素化試験後 （目標水素濃度 741ppm）	約 1 mm	2 本	NDC （多軸応力機械試験）

表 3. 1. 2(4) 各試験へ供給した材料（水素化試験後、H27 年度）

材料	仕様	供給材料		供給先
		試料長さ	数量	
Zr-1. 8Nb	水素化試験後 (平均水素濃度 197ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 524ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 814ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 1012ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 1231ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 1446ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 2085ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学

表 3. 1. 2(5) 各試験へ供給した材料（水素化試験後、H27 年度）

材料	仕様	供給材料		供給先
		試料長さ	数量	
Zr-2. 5Nb	水素化試験後 (平均水素濃度 94ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 196ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 514ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 753ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 1024ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 1206ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 1532ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学
	水素化試験後 (平均水素濃度 1910ppm)	約 50 mm	2 本	東北大学

材料	仕様	供給材料		供給先
		試料長さ	数量	
Zry4	水素化試験後 (平均水素濃度 214ppm)	約 50 mm	1 本	NDC (多軸応力機械試験)
	水素化試験後 (平均水素濃度 598ppm)	約 50 mm	1 本	NDC (多軸応力機械試験)
	高温水蒸気中腐食後 (1200°C × 約 60sec)	約 30 mm	1 本	NDC (多軸応力機械試験)

3.2 材料供給 2

本研究では、次世代原子力発電用燃料被覆管候補材である酸化物分散強化 (ODS) 鋼を対象材料のひとつとして用いた。この鋼材の化学組成は表 3-2-1 に示すとおりであり、主にクロム (Cr) を含み、微細な酸化イットリウム (Y_2O_3) を分散させ、高温強度の機械的特性向上を図った合金で、株式会社コベルコ科研において、図 3.2.1 に示す工程で作製された。当該材料は平成 24 年度に作製したが、その製造工程を再掲する。

$Fe-12Cr-2W-0.3Ti-0.26Y_2O_3$ [wt. %] (Fe:鉄、W:タングステン、Ti:チタン) の組成比になるよう金属合金粉末を配合し、粉末の酸化を防ぐために超高純度アルゴンガス (Ar) 雰囲気中で、アトライターボールミルでメカニカルアロイング (MA) を行った。そして、加工用カプセル内に MA 処理した粉末を充填し、カプセルごと熱間押し出し、熱間鍛造、1 次熱処理を行った。その後、切削加工でカプセルを除去した後、冷間圧延により厚さ 6 mm の板材に成形し、1323 K、1 時間の最終熱処理を行った。最終的に得られた ODS 鋼では、金属粉末配合時の目標成分とほぼ同等の化学組成を有していることを確認した (表 3.2.1 参照)。そして Y_2O_3 を 0.25 wt.% 含んだ鋼の作製に成功した。各元素の成分分析方法は、炭素 (C)、硫黄 (S) は燃焼-赤外線吸収法、シリコン (Si)、リン (P) は吸光光度法、マンガン (Mn)、Cr、W、Ti、イットリウム (Y) は ICP 発光分光分析法、酸素 (O)、窒素 (N)、Ar では不活性ガス融解法である。

ここで得られた ODS 鋼板より、機械試験及び照射試験に供するため、放電加工機を用いて、図 3.2.2 に示す SSJ 試験片に加工し、その後、試料表面を耐水研磨紙で研磨した。試験片のゲージ部は、厚さ 0.5 mm、幅 1.2 mm、長さ 5 mm、全長は 16 mm、肩部の幅は 4 mm、厚さは 0.5 mm となっており、試験片は平板状である。また、一般的に ODS 鋼の粒径は、概ね数 μm であることから、ゲージ部厚さ及び長さそれぞれ、100 個以上の結晶粒を含み、SSJ 試験片のような微小試験片でバルクの機械強度を測定する条件となっている。本試料の詳細な組織観察は 3.10 節に記述する。今年度は、平成 24 年度同様、周方向の変形条件を模擬するために、試験荷重軸を圧延方向と垂直とした。

そして、以下に示す試験に材料を支給した。

- (1) 引張試験及び硬さ試験 (3.5 節)
- (2) 高温クリープ試験 (3.6 節)
- (3) 組織観察 (3.10 節)
- (4) ヘリウム注入試験 (3.12 節、3.13 節)

表 3.2.1 ODS 鋼の化学組成

[wt. %]	C	Si	Mn	P	S	Cr
	0.033	0.06	0.06	<0.005	0.006	12
	W	Ti	Y	O	N	Ar
	1.9	0.31	0.20	0.12	0.008	0.006

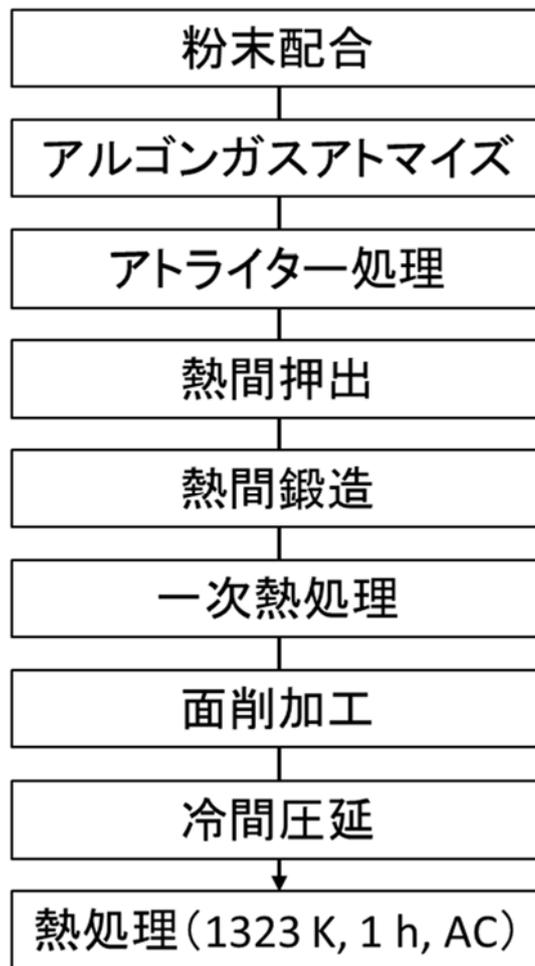


図 3.2.1 ODS 鋼板の製造工程

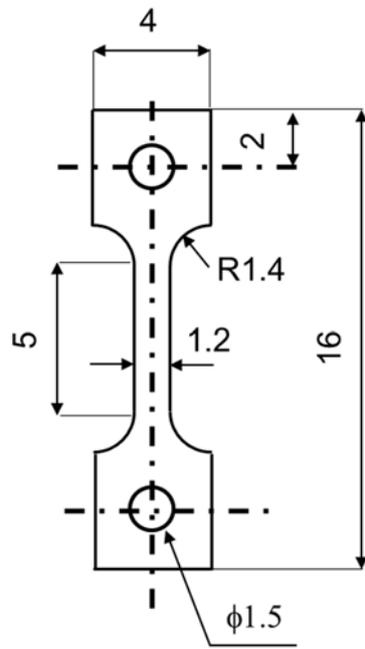


图 3.2.2 SSJ 試験片寸法 (单位: mm)

3.3 腐食試験 (H24-H27)

3.3.1 目的

軽水炉での燃料被覆管の材料劣化を模擬する方法の一つとして、実機冷却材模擬水および事故時挙動を模擬した高温水蒸気雰囲気を含む環境下で腐食試験を実施する。得られる腐食材の腐食量ならびに吸収水素量を測定し、また金相観察試験を実施する。また、得られた腐食材の一部を「劣化材料の機械的性質評価」および「劣化材料のマイクロ組織観察試験」に供給する。

3.3.2 試験方法

(1) 腐食試験 (実機冷却材模擬水)

実機冷却材水質を模擬した高温水中での循環式オートクレーブ腐食試験装置を用いた腐食試験により、供試材を所定時間、所定温度で腐食させ、腐食材を得た。

①試験装置

循環式オートクレーブ腐食試験装置の系統概略図および外観を図 3.3.1 に示す。

②試験条件

1) 試験温度及び圧力

PWR燃料被覆管表面温度に近く、かつ非沸騰条件となる360℃、18.7MPa以上（飽和圧力）とした。

2) 水質

現行水質の代表的かつ従来知見を参照可能な条件である、純水+2.2ppmLi/500ppmBとした。

3) 試験時間

循環式オートクレーブ腐食試験装置立ち上げ後の試験温度での保持時間 500h～1000h 程度を 1 サイクルとして、1 サイクル経過毎に、供試材をオートクレーブから取出し、後述の試験後確認、測定を実施した。

試験時間と循環式オートクレーブ腐食試験装置運転履歴の関係の概念図を図3.3.2 に示す。

4) 運転記録

循環式オートクレーブ腐食試験装置運転中に試験環境を確認した。

確認項目は以下の通りとした。

- ・ 温度、圧力、流量、溶存水素／酸素濃度

③供試材

供試材の組成は、以下の4種類である。

- Zr-1.8Nb
- Zr-1.6Nb-0.1Cr
- Zr-2.5Nb
- Zry4

また、各材料ともに、以下の2種類の素性の試料を試験に供した。

- 受取材：本事業「材料供給1」にて準備し、本事業を開始したH24年度から試験に提供された材料。被覆管長さ100mm。
- 継続腐食材：先行試験¹にて腐食試験に供された材料。被覆管長さ50mm。

継続腐食材の腐食試験条件は、今回と同一であり、先行試験にて延べ4,500h腐食された材料である。先行試験での試料の初期状態として、受取材と水素予吸収材があり、内訳を表3.3.1に示す。

(2)腐食試験（高温水蒸気）

事故時を模擬した高温水蒸気中での腐食試験により、供試材を所定時間、所定温度で腐食させ、腐食材を得た。

①試験装置

高温水蒸気中での腐食試験は、高温酸化試験装置を用いて実施した。系統の概略図および装置外観を図3.3.3に示す。

②試験条件

1)試験温度、試験時間および圧力

軽水炉の非常用炉心冷却系（ECCS）指針では、被覆管温度は1,200℃以下、全酸化量は酸化前肉厚の15%以下と規定されており、H24年度の試験では、(1)に記した実機冷却材模擬水中での腐食試験により得られる腐食材との比較を容易とするため、高温水蒸気中での腐食量の目標を実機冷却材模擬水中での腐食試験並の腐食量（腐食前肉厚の1～2%程度）とし、1,000℃×60secを試験条件として設定した。H25年度は、劣化事象への温度の影響を確認するための試料を作製するため、1200℃を試験温度とし、保持時間はH24年度と同じ60secを設定した。H26年度は、H25年度と同様に、温度の影響を確認する観点から、1250℃×60secとした。H27年度は、別途NDCで実施した多軸応力

¹ 平成21-23年度文部科学省原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ事業「先進燃料被覆管材料の水素化および照射効果の解明に関する研究（腐食試験および水素吸収試験）」

機械試験への試料供給を目的とし、Zry4を代表材料として用い、代表条件として、ECCS指針上限である1200℃×60 secの条件で試験を行った。

圧力は、通常の高温酸化試験と同様に大気圧とした。

2) 水質

純水を使用し、水蒸気発生装置により、電気炉内に水蒸気を導入した。

③ 供試材

供試材は、「材料供給1」にて準備、提供された以下の4種類の組成の被覆管（長さ約10 mm）、受取材である。

- Zr-1.8Nb
- Zr-1.6Nb-0.1Cr
- Zr-2.5Nb
- Zry4

なお、H27年度においては、別途NDCで実施した多軸応力機械試験への試料供給を目的とし、多軸応力機械試験で用いたZry4の受取材および水素吸収材との比較の観点から、Zry4のみを対象とした。

(3) 試験後確認、測定

実機冷却材水質を模擬した高温水中での循環式オートクレーブ腐食試験装置を用いた腐食試験により、供試材を所定時間、所定温度で腐食させた後、オートクレーブから取出された試料、または、高温水蒸気中での腐食試験後、電気炉から取り出し放冷された試料について、以下の確認および測定を実施した。

① 外観観察

代表試料について、試験後の外観状況の写真撮影を実施した。

② 重量測定

試料全数について、腐食に伴う重量増加量（以下、腐食増量と呼ぶ）を測定した。

③ 水素分析

腐食試験後の代表試料について、試料端部を含まない位置から数 mm 長さを切り出し、水素分析装置により試料中の水素濃度を測定した。

④ 金相観察

腐食試験後の代表試料について、数 mm 長さを切り出し、被覆管横断面のマクロな状態を金相観察により確認した。

3.3.3 試験結果及び考察

(1) 腐食試験（実機冷却材模擬水）

① 運転実績

H24～H27 年度にかけて、以下の累積時間となる腐食試験を実施した。

- ・ 受取材： 初期～11,900h（約 500h あるいは約 1,000h 毎に取出し、確認）。
- ・ 継続腐食材（受取材および水素予吸収材）： 4,500h～16,400h（同上）。

循環式オートクレーブ装置運転中に記録された温度、圧力、流量、溶存酸素濃度および溶存水素濃度の経時変化は、いずれの運転期間においても、腐食試験中の各設定条件および水質条件の目標値に対してほぼ一定に保たれており、特に異常は認められず、問題無く試験が実施されたことを確認した。

② 試験後外観状況

腐食試験後の試料の外観状況の例を図 3.3.4～図 3.3.7 に示す。写真から観察されるように、いずれの試料においても、試験後の試料表面はほぼ一様な酸化膜で覆われており、酸化膜剥れや特異部が無い状態であることが確認された。

③ 腐食増量および水素濃度

1) 受取材

H24～H27 年度の各年度終了時点における腐食増量測定結果を表 3.3.2～表 3.3.5 に示す。

2) 継続腐食材

H24～H27 年度の各年度終了時点における腐食増量測定結果を表 3.3.2～表 3.3.5 に示す。また、表 3.3.6 に各年度の水素濃度測定結果をまとめて示す。H27 年度に測定した 15500h 経過時点で、Zr-Nb 合金の腐食増量は Zry4 の 60%程度、水素濃度は Zry4 の半分以下となっており、Zr-Nb 合金の優れた耐食性および耐水素吸収特性が確認できる。

得られた腐食増量の経時変化を継続腐食材（受取材）について先行試験²および昨年度までの結果とともに図 3.3.8 に示す。また、得られた腐食増量と水素濃度測定結果の関係を図 3.3.9 に示す。

④ 金相観察

光学顕微鏡を用いて、継続腐食材（受取材）試料の横断面の金相観察を行った。結果を図 3.3.10～図 3.3.13 に示す。いずれの管種においても、観察面のエッチング処理に

² 平成 21-23 年度文部科学省原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ事業「先進燃料被覆管材料の水素化および照射効果の解明に関する研究（腐食試験および水素吸収試験）」

より黒色筋状に見える水素化物がほぼ一様に分布しており、腐食時間の経過に伴い、水素化物の発達状況が確認された。Zr-Nb 合金においては、腐食時間の経過に伴い形成される水素化物の密度が Zry4 よりも小さく、金相観察からも Zr-Nb 合金の優れた耐水素吸収特性が確認された。

(2) 腐食試験（高温水蒸気）

① 腐食試験中温度測定

図 3.3.14 に腐食試験（高温水蒸気）中の試料温度測定結果の代表例を示す。試料の温度は、予備試験を実施した後、本試験において、重量測定用試料と同時に装荷する温度モニター用試料の温度により、試料の温度履歴を確認する方法を用いた。各試験における温度は良く一致しており、再現性良く試験が行われたことが確認できる。

② 試験後外観状況

腐食試験後の試料の外観状況を図 3.3.15～図 3.3.17 に示す。写真から観察されるように、いずれの試料においても、試験後の試料表面はほぼ一様な酸化膜で覆われており、酸化膜剥れや特異部が無い状態であり、腐食試験（実機冷却材模擬水）による外観と大きな差はなく、類似していることが確認された。

③ 腐食増量および水素濃度

表 3.3.7 に腐食増量および水素濃度の測定結果を示す。表中に示した ECR については、昨年度までの試験と同様に下式[3.3.1]を用いて実測 ΔW より算出した。

$$ECR = 87.8\Delta W/h$$

ここで、

ΔW : 腐食増量、 g/cm^2

ECR : %

h : 被覆管肉厚、cm

図 3.3.18 に高温水蒸気中腐食試験における腐食増量および試料中水素量と酸化温度の関係を示す。同図に示すように、腐食増量は酸化温度の増大とともに増大しており、材料間の相違は明確ではない。一方、試料中水素量については、一部の試料において昨年度までに実施した 1000℃、1200℃条件に比べ 1250℃条件では増大しているかのような傾向が見られた。しかし、現状では試験数が少なく、1200℃を超える条件での腐食に関する知見は十分ではないことから、本データだけで 1200℃以上の高温酸化特性を評価することは難しく、今後試験を継続し、知見を拡充する必要がある。

④金相観察

腐食試験後試料の横断面の金相観察を行った結果を図 3.3.19～図 3.3.21 に示す。いずれの管種においても、内外表面における酸化膜形成、また、酸化膜の内側において酸素安定化 α 相(Zr₂O₃において Zr-Nb 合金より明確)および針状の先 β 相が確認でき、試験温度の増大に伴って、酸化膜厚さおよび酸素安定化 α 相の厚さが増大していることが分かる。高温組織形成状況の Zr-Nb 合金間における相違は本観察レベルの倍率では明確ではなく、水素化物の析出状況についても、水素濃度が低いこともあり、明確には認められない。

3.3.4 腐食試験材の提供

上述の通り、H24 年度から H27 年度にかけて、実機冷却材模擬水および高温水蒸気雰囲気における腐食試験を実施した。3.1 節にて述べた通り、これらの腐食試験材の一部は他タスクへ提供され、「劣化材料の機械的性質評価」および「劣化材料のマイクロ組織観察試験」において適宜使用された。

3.3.5 まとめ

腐食試験（実機冷却材模擬水および高温水蒸気）を実施することにより、対象とした試料の腐食挙動および水素吸収挙動に関するデータを取得するとともに、他タスクへ提供するための腐食材を製作し、腐食試験に関する予定の作業を完了した。

表 3.3.1 腐食試験（実機冷却材模擬水）における継続腐食材の内訳

寸法	初期装荷状態	腐食時間	オートクレーブ (注)	Zr-1.8Nb		Zr-1.6Nb-0.1Cr		Zr-2.5Nb		Zry4		
				試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	
50mm	受取	4500h	No.1	1-37	56.0	2-37	57.4	3-38	54.9	Z-16	74.6	
				1-38	56.0	2-38	58.1	3-39	53.9	Z-17	74.3	
				1-39	56.3	2-39	58.8	3-40	54.6	Z-18	75.3	
				1-40	55.3	2-40	58.4	3-41	54.2	Z-19	73.9	
				1-41	55.6	2-41	59.2	3-42	54.6	Z-20	74.6	
				1-42	55.6	2-42	59.2	3-43	54.6	Z-21	74.3	
				1-43	57.0	2-43	56.7	3-44	54.9	Z-22	74.6	
		4500h	No.2	1-23	49.7	2-23	50.8	3-23	47.9	Z-7	82.8	
				1-24	50.0	2-24	50.4	3-24	49.0			
							3-25	50.1				
			No.2	1-44	52.4	2-44	54.2	3-45	49.6			
				1-45	51.1	2-45	52.8	3-46	49.3			
		水素予吸収 200ppm	4500h	No.1	H1-2	55.0	H2-2	57.4	H3-2	54.9	HZ-2	83.2
				No.2	H1-3	56.0	H2-3	57.1	H3-3	51.8	HZ-3	89.5
	水素予吸収 500ppm	4500h	No.1	H1-5	58.8	H2-5	57.4	H3-5	58.5	HZ-5	96.5	
			No.2	H1-6	72.9	H2-6	59.5	H3-6	57.1	HZ-6	113.8	

(注) オートクレーブNo.1,2は配管を直列に接続。
 同じ条件で制御しているが、僅かな条件のばらつきで ΔW に差が生じたと推定している。
 (温度差3°Cで ΔW は~1割程度の差となる。)

参考) $\Delta W/15$ ~酸化膜厚さ(μm)

表 3.3.2 腐食試験（実機冷却材模擬水）における腐食増量測定結果（H24 年度）

寸法	初期装荷状態	腐食時間	オートクレーブ (注)	Zr-1.8Nb		Zr-1.6Nb-0.1Cr		Zr-2.5Nb		Zry4		
				試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	
100mm	受取	500h	No.1	J1-L1	20.4	J2-L1	19.9	J3-L1	20.2	Z-L1	18.8	
				J1-L2	19.7	J2-L2	20.0	J3-L2	20.0	Z-L2	19.0	
				J1-L3	20.0	J2-L3	20.2	J3-L3	24.8	Z-L3	18.8	
				J1-L4	19.9	J2-L4	20.6	J3-L4	21.3	Z-L4	18.8	
				J1-L5*	19.7	J2-L5*	20.9	J3-L5*	20.0	Z-L5*	18.8	
		500h	No.2	J1-L6	20.4	J2-L6	20.2	J3-L6	20.7	Z-L6	19.7	
				J1-L7	20.4	J2-L7	20.2	J3-L7	20.6	Z-L7	20.0	
				J1-L8	20.2	J2-L8	20.2	J3-L8	20.4	Z-L8	19.7	
				J1-L9	20.4	J2-L9	21.6	J3-L9	20.4	Z-L9	19.5	
				J1-L10	20.2	J2-L10	22.2	J3-L10	20.2	Z-L10	19.7	
50mm	受取	5000h	No.1	1-37	57.8	2-37	59.5	3-38	57.0	Z-16	78.1	
				1-38	57.7	2-38	59.9	3-39	55.3	Z-17	77.5	
				1-39	57.7	2-39	60.2	3-40	56.3	Z-18	78.5	
				1-40	57.0	2-40	60.2	3-41	56.0	Z-19	77.5	
				1-41	57.0	2-41	60.6	3-42	56.3	Z-20	78.2	
				1-42	57.4	2-42	61.3	3-43	56.3	Z-21	78.1	
				1-43*	58.4	2-43*	58.5	3-44*	56.3	Z-22*	77.8	
		5000h	No.2	1-23	50.4	2-23	51.8	3-23	49.0	Z-7	86.3	
				1-24	50.4	2-24	51.8	3-24	50.0			
							3-25	51.1				
			No.2	1-44	53.2	2-44	55.7	3-45	50.7			
				1-45	52.5	2-45	53.9	3-46	50.7			
		水素予吸収 200ppm	5000h	No.1	H1-2	57.5	H2-2	60.2	H3-2	57.1	HZ-2	90.9
				No.2	H1-3	66.2	H2-3	66.2	H3-3	53.9	HZ-3	100.7
		水素予吸収 500ppm	5000h	No.1	H1-5	60.9	H2-5	60.2	H3-5	60.6	HZ-5	105.3
				No.2	H1-6	75.3	H2-6	66.9	H3-6	62.7	HZ-6	123.0

* : 水素分析、金相に使用。

(注) オートクレーブNo.1,2は配管を直列に接続。
 同じ条件で制御しているが、僅かな条件のばらつきで ΔW に差が生じたと推定している。
 (温度差3°Cで ΔW は~1割程度の差となる。)

表 3.3.3 腐食試験（実機冷却材模擬水）における腐食増量測定結果（H25 年度）

寸法	初期装荷状態	腐食時間	オートクレーブ (注)	Zr-1.8Nb		Zr-1.6Nb-0.1Cr		Zr-2.5Nb		Zry4		
				試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	
100mm	受取	4000h	No.1	J1-L1	45.0	J2-L1	47.2	J3-L1	45.4	Z-L1	56.0	
				J1-L2	44.7	J2-L2	47.0	J3-L2	44.8	Z-L2	56.0	
				J1-L3	45.2	J2-L3	46.4	J3-L3	43.1	Z-L3	55.7	
				J1-L4	44.7	J2-L4	46.1	J3-L4	45.7	Z-L4	55.8	
				J1-L5*	46.8	J2-L5*	48.9	J3-L5*	47.8	Z-L5*	56.4	
		4000h	No.2	J1-L6	41.1	J2-L6	41.5	J3-L6	41.8	Z-L6	59.7	
				J1-L7	41.3	J2-L7	41.5	J3-L7	41.5	Z-L7	59.8	
				J1-L8	41.1	J2-L8	41.8	J3-L8	41.5	Z-L8	60.6	
				J1-L9	41.1	J2-L9	42.2	J3-L9	41.5	Z-L9	59.6	
				J1-L10	41.3	J2-L10	41.1	J3-L10	41.7	Z-L10	59.6	
50mm	受取	8500h	No.1	1-37	90.9	2-37	88.0	3-38	86.6	Z-16	128.5	
				1-38	90.8	2-38	88.0	3-39	85.5	Z-17	126.8	
				1-39	90.5	2-39	89.1	3-40	85.2	Z-18	128.1	
				1-40	90.1	2-40	91.9	3-41	83.8	Z-19	125.3	
				1-41	90.1	2-41	90.5	3-42	83.8	Z-20	126.0	
				1-42	90.5	2-42	89.4	3-43	81.0	Z-21	127.1	
				1-43*	91.4	2-43*	88.6	3-44*	81.7	Z-22*	126.6	
		8500h	No.2	1-23	86.4	2-23	85.7	3-23	83.2	Z-7	(7000hにて 大塚大へ)	
				1-24	85.6	2-24	87.4	3-24	86.0			
			No.2					3-25	86.0			
		1-44		87.3	2-44	90.2	3-45	84.8				
				1-45	85.9	2-45	87.7	3-46	84.8			
		水素予吸収 200ppm	8500h	No.1	H1-2	90.3	H2-2	92.7	H3-2	82.4	HZ-2	144.5
				No.2	H1-3	93.4	H2-3	92.3	H3-3	92.3	HZ-3	157.1
		水素予吸収 500ppm	8500h	No.1	H1-5	94.8	H2-5	89.5	H3-5	88.4	HZ-5	169.4
				No.2	H1-6	112.3	H2-6	97.5	H3-6	97.2	HZ-6	197.7

* : 水素分析、金相に使用。

(注) オートクレーブNo.1,2は配管を直列に接続。
 同じ条件で制御しているが、僅かな条件のばらつきで ΔW に差が生じたと推定している。
 (温度差3°Cで ΔW は~1割程度の差となる。)

参考) $\Delta W/15$ ~酸化膜厚さ(μm)

表 3.3.4 腐食試験（実機冷却材模擬水）における腐食増量測定結果（H26 年度）

寸法	初期装荷状態	腐食時間	オートクレーブ* (注)	Zr-1.8Nb		Zr-1.6Nb-0.1Cr		Zr-2.5Nb		Zry4	
				試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²	試料No.	ΔW mg/dm ²
100mm	受取	8500h	No.1	J1-L1	80.5	J2-L1	82.4	J3-L1	79.2	Z-L1	119.3
				J1-L2	80.6	J2-L2	82.4	J3-L2	78.3	Z-L2	119.4
				J1-L3	80.9	J2-L3	82.6	J3-L3	72.3	Z-L3	119.0
				J1-L4	80.9	J2-L4	82.4	J3-L4	78.5	Z-L4	120.0
				J1-L5	82.1	J2-L5	82.8	J3-L5	78.6	Z-L5	120.0
		8500h	No.2	J1-L6	81.2	J2-L6	82.2	J3-L6	82.4	Z-L6	140.2
				J1-L7	81.4	J2-L7	82.1	J3-L7	82.1	Z-L7	140.3
				J1-L8	81.2	J2-L8	82.2	J3-L8	82.3	Z-L8	141.0
				J1-L9	81.4	J2-L9	82.8	J3-L9	82.3	Z-L9	139.8
				J1-L10	81.4	J2-L10	82.8	J3-L10	82.2	Z-L10	140.5
50mm	受取	13000h	No.1	1-37	122.6	2-37	121.5	3-38	111.9	Z-16	188.0
				1-38	123.2	2-38	122.2	3-39	109.1	Z-17	184.9
				1-39	122.8	2-39	122.9	3-40	110.2	Z-18	188.0
				1-40	121.5	2-40	123.6	3-41	109.8	Z-19	184.5
				1-41	120.4	2-41	125.0	3-42	113.3	Z-20	186.6
				1-42	12000hで 金相/水素分析	2-42	12000hで 金相/水素分析	3-43	12000hで 金相/水素分析	Z-21	12000hで 金相/水素分析
		13000h	No.2	1-23	113.1	2-23	121.3	3-23	106.4		
				1-24	115.2	2-24	123.0	3-24	120.2		
								3-25	116.3		
				1-44	114.8	2-44	125.4	3-45	106.6		
			1-45	109.1	2-45	120.1	3-46	105.6			
	水素予吸収 200ppm	13000h	No.1	H1-2	126.6	H2-2	126.5	H3-2	117.3	HZ-2	210.0
			No.2	H1-3	129.0	H2-3	126.8	H3-3	129.0	HZ-3	233.9
	水素予吸収 500ppm	13000h	No.1	H1-5	131.7	H2-5	126.4	H3-5	120.5	HZ-5	249.7
			No.2	H1-6	146.1	H2-6	132.4	H3-6	130.7	HZ-6	291.8

(注) オートクレーブNo.1,2は配管を直列に接続。
 同じ条件で制御しているが、僅かな条件のばらつきで ΔW に差が生じたと推定している。
 (温度差3°Cで ΔW は~1割程度の差となる。)

参考) $\Delta W/15$ ~酸化膜厚さ(μm)

表 3.3.5 腐食試験（実機冷却材模擬水）における腐食増量測定結果（H27 年度）

寸法	初期装荷状態	腐食時間	オートクレーブ (注)	Zr-1.8Nb		Zr-1.6Nb-0.1Cr		Zr-2.5Nb		Zry4	
				試料No.	△W mg/dm ²	試料No.	△W mg/dm ²	試料No.	△W mg/dm ²	試料No.	△W mg/dm ²
100mm	受取	11900h	No.1	J1-L1	99.6	J2-L1	100.7	J3-L1	98.0	Z-L1	172.2
				J1-L2	100.0	J2-L2	101.0	J3-L2	97.3	Z-L2	172.6
				J1-L3	101.1	J2-L3	101.4	J3-L3	8500hで 金相/水素分析	Z-L3	171.9
				J1-L4	100.5	J2-L4	101.0	J3-L4	97.9	Z-L4	173.0
				J1-L5	99.3	J2-L5	100.6	J3-L5	99.0	Z-L5	173.0
		11900h	No.2	J1-L6	120.0	J2-L6	121.9	J3-L6	116.6	Z-L6	236.0
				J1-L7	121.6	J2-L7	122.5	J3-L7	114.9	Z-L7	236.1
				J1-L8	120.6	J2-L8	122.7	J3-L8	116.1	Z-L8	238.1
				J1-L9	121.2	J2-L9	122.8	J3-L9	117.3	Z-L9	235.4
				J1-L10	121.9	J2-L10	123.7	J3-L10	117.9	Z-L10	235.9
50mm	受取	16400h	No.1	1-37	145.4	2-37	145.8	3-38	142.5	Z-16	242.5
				1-38	146.8	2-38	146.5	3-39	140.8	Z-17	239.1
				1-39	146.4	2-39	147.5	3-40	142.3	Z-18	243.6
				1-40	145.1	2-40	148.6	3-41	140.8	Z-19	237.7
				1-41	144.3	2-41	148.2	3-42	13000hで 金相/水素分析	Z-20	14200hで 金相/水素分析
				1-42	12000hで 金相/水素分析	2-42	12000hで 金相/水素分析	3-43	12000hで 金相/水素分析	Z-21	12000hで 金相/水素分析
		16400h	No.2	1-23	159.0	2-23	154.4	3-23	146.9		
				1-24	158.6	2-24	161.1	3-24	157.2		
				1-44	159.8	2-44	165.2	3-45	149.6		
				1-45	156.7	2-45	160.2	3-46	147.8		
	水素予吸収 200ppm	16400h	No.1	H1-2	152.3	H2-2	157.1	H3-2	147.2	HZ-2	267.1
			No.2	H1-3	172.3	H2-3	170.9	H3-3	164.2	HZ-3	332.8
	水素予吸収 500ppm	16400h	No.1	H1-5	161.3	H2-5	155.0	H3-5	148.6	HZ-5	317.6
			No.2	H1-6	183.7	H2-6	176.0	H3-6	171.9	HZ-6	396.2

(注) オートクレーブNo.1,2は配管を直列に接続。
 同じ条件で制御しているが、僅かな条件のばらつきで△Wに差が生じたと推定している。
 (温度差3℃で△Wは～1割程度の差となる。)

参考) △W/15～酸化膜厚さ(μm)

表 3.3.6 腐食試験（実機冷却材模擬水）における水素濃度測定結果（H24-27 年度）

年度	腐食時間	Zr-1.8Nb		Zr-1.6Nb-0.1Cr		Zr-2.5Nb		Zry4	
		試料No.	水素濃度 ppm	試料No.	水素濃度 ppm	試料No.	水素濃度 ppm	試料No.	水素濃度 ppm
H24年度	5000h	1-43	49	2-43	42	3-44	45	Z-22	94
H25年度	8500h	1-43	92	2-43	87	3-44	91	Z-22	184
H26年度	12000h	1-42	97	2-42	132	3-43	100	Z-21	257
H27年度	15500h	1-42	129	2-43	110	3-44	120	Z-22	331

表 3.3.7 腐食試験（高温水蒸気）における腐食増量および水素濃度測定結果

年度	材質	試料 番号	等温酸化条件		全長 (mm)	ΔW (mg/cm ²)	水素濃度 (ppm)	(参考) ECR* (%)
			温度(°C)	時間(sec)				
H24	Zr-1.8Nb	J1-H05	1000	62	10	1.6	14	2.5
		J1-H06			10	1.6	-	2.4
		J1-H07			10	1.5	-	2.3
	Zr-1.6Nb -0.1Cr	J2-H08	1000	64	10	1.5	10	2.4
		J2-H09			10	1.5	-	2.3
		J2-H10			10	1.4	-	2.2
	Zr-2.5Nb	J3-H05	1000	65	10	1.6	14	2.5
		J3-H06			10	1.6	-	2.4
		J3-H07			10	1.5	-	2.3
	Zry4	Z-H08	1000	69	10	1.9	6	3
Z-H09		10			1.9	-	2.9	
Z-H10		10			1.8	-	2.7	
H25	Zr-1.8Nb	J1-H08	1200	60	10	5.9	20**	9.0
		J1-H09			10	5.2		8.0
	Zr-1.6Nb -0.1Cr	J2-H011	1200	60	10	5.7	13**	8.7
		J2-H012			10	5.0		7.8
	Zr-2.5Nb	J3-H08	1200	60	10	5.9	15**	9.0
		J3-H09			10	5.2		8.0
	Zry4	Z-H011	1200	60	10	5.6	17**	8.6
		Z-H012			10	5.2		8.0
H26	Zr-1.8Nb	J1-2	1250	60	30	6.7	23	10.3
	Zr-1.6Nb -0.1Cr	J2-2	1250	60	30	6.5	37	10.0
	Zr-2.5Nb	J3-2	1250	60	30	6.6	41	10.2
	Zry4	Zry-4-2	1250	60	30	6.4	49	9.8
H27	Zry4	Z-1	1200	60	30	5.7	-	8.8
		Z-2	1200	60	30	5.6	-	8.6

*: ECR=87.8・ ΔW /h・100

** : 同時装荷サンプルについての分析結果

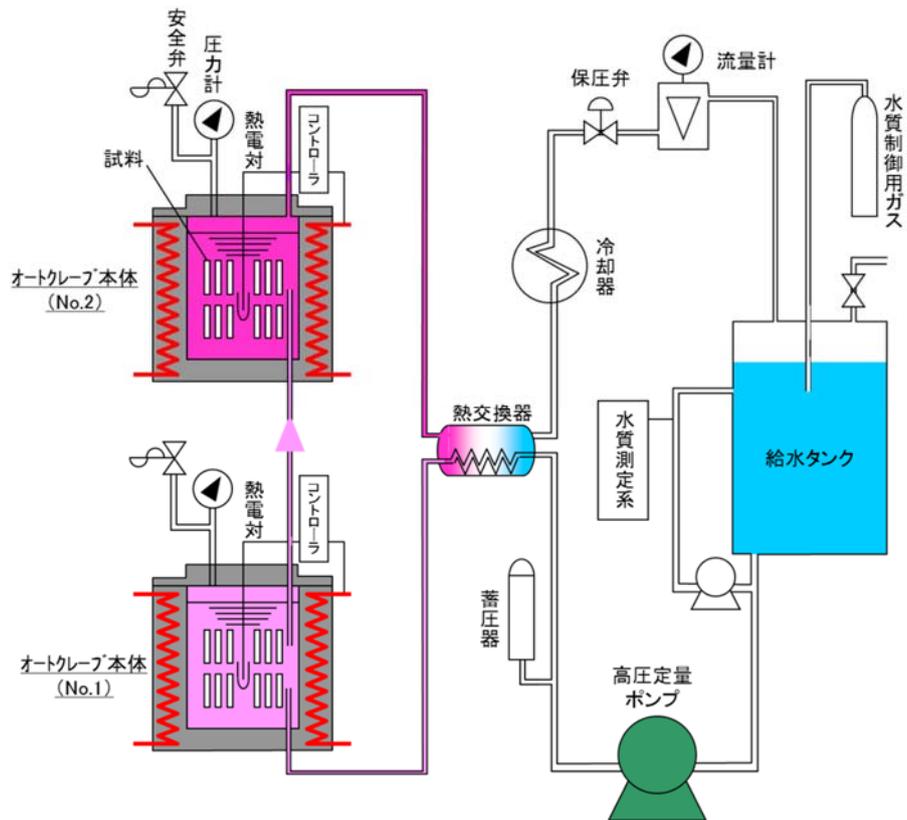


図 3. 3. 1 腐食試験（実機冷却材模擬水）用循環式オートクレーブ装置の系統概略図と外観

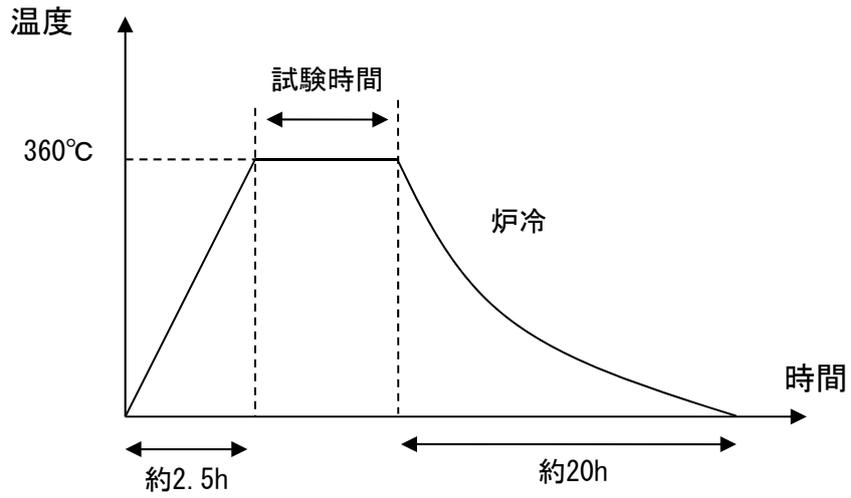


図 3.3.2 循環式オートクレーブ腐食試験装置による腐食試験における温度履歴の概念図

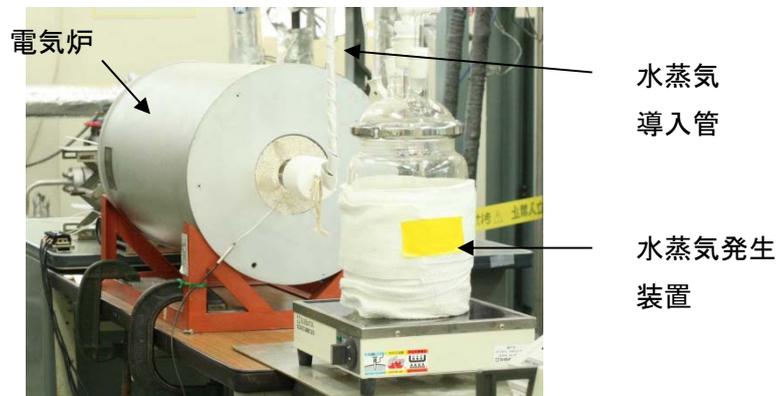
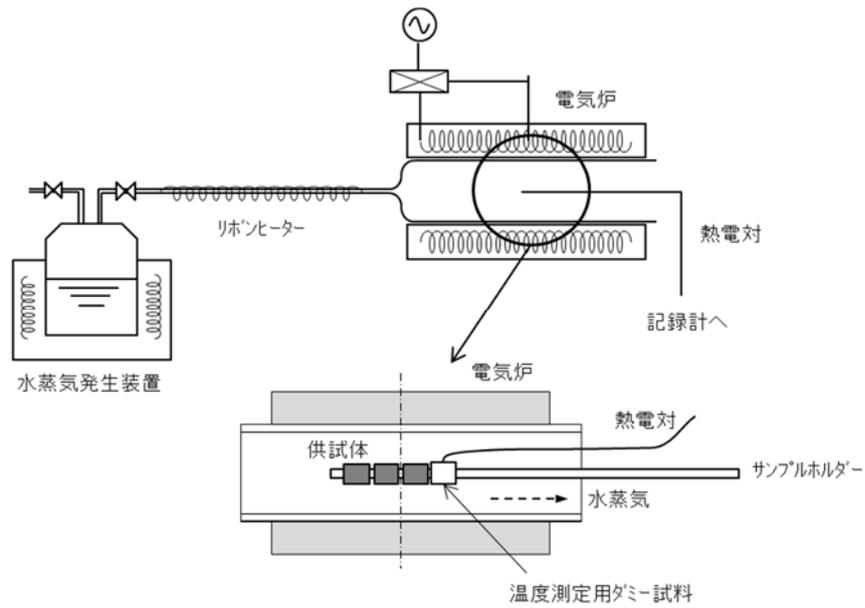
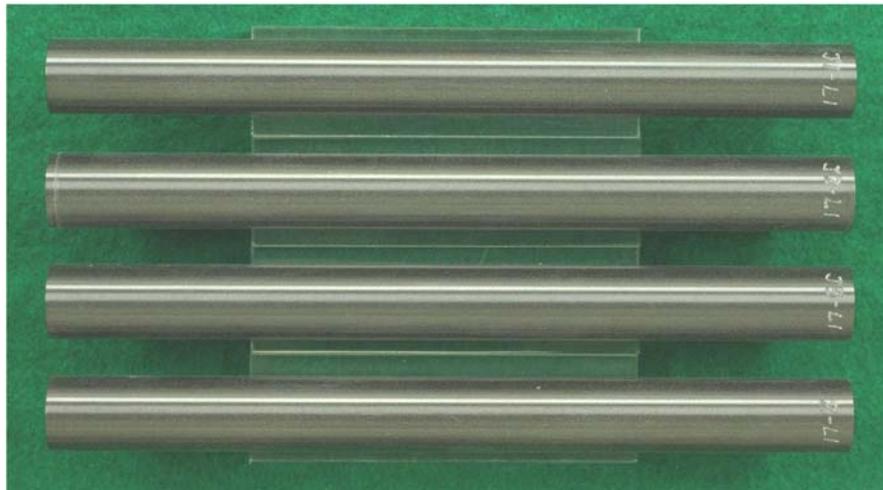
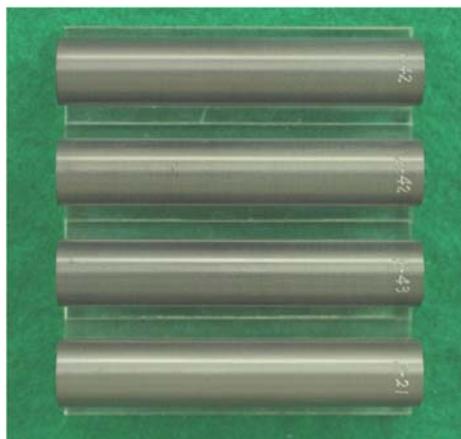


図 3.3.3 腐食試験（高温水蒸気）用高温酸化試験装置の系統概略図と外観



(a) 受取材：試験時間 500h 経過後



(b) 継続腐食材（受取材）：試験時間 5,000h 経過後

(注) 各写真において、次の順番で各材料を並べている。

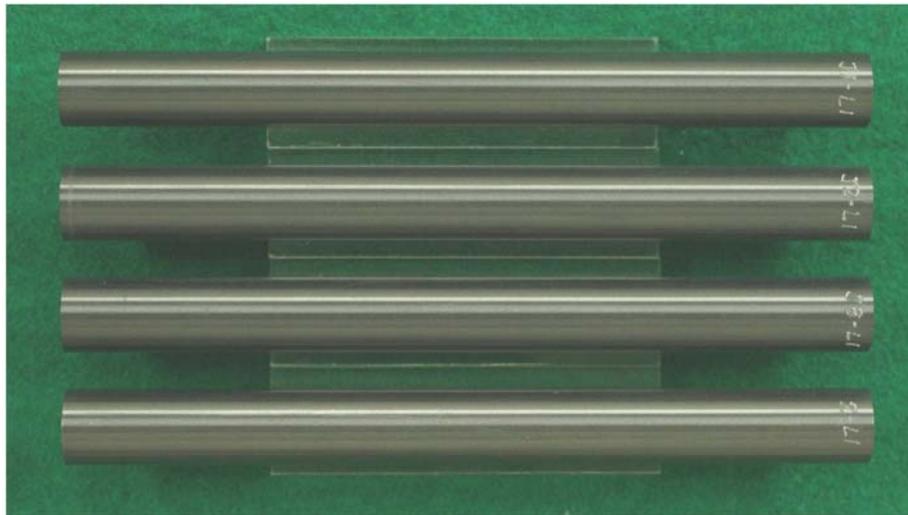
最上段：Zr-1.8Nb

上から 2 段目：Zr-1.6Nb-0.1Cr

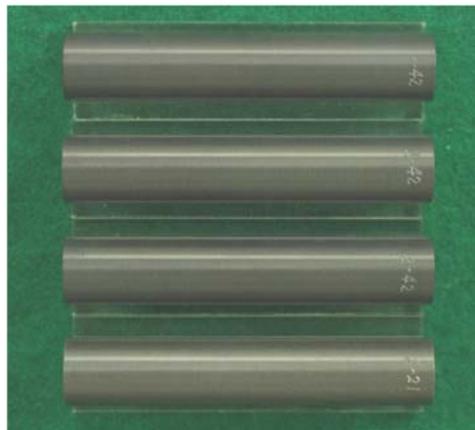
上から 3 段目：Zr-2.5Nb

最下段：Zry4

図 3.3.4 循環式オートクレーブ腐食試験後の外観状況例（受取材、H24 年度）



(a) 受取材：試験時間 4,000h 経過後



(b) 継続腐食材：試験時間 8,500h 経過後

(注) 各写真において、次の順番で各材料を並べている。

最上段：Zr-1.8Nb

上から 2 段目：Zr-1.6Nb-0.1Cr

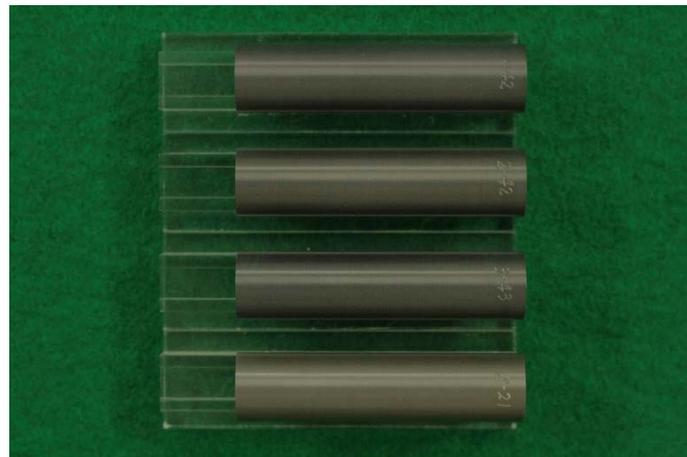
上から 3 段目：Zr-2.5Nb

最下段：Zry4

図 3.3.5 循環式オートクレーブ腐食試験後の外観状況例（受取材、H25 年度）



(a) 受取材：試験時間 8,500h 経過後



(b) 継続腐食材：試験時間 13,000h 経過後

(注) 各写真において、次の順番で各材料を並べている。

最上段：Zr-1.8Nb

上から 2 段目：Zr-1.6Nb-0.1Cr

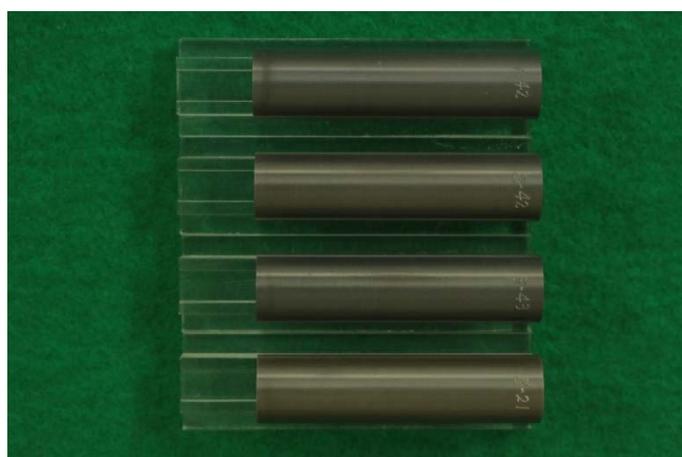
上から 3 段目：Zr-2.5Nb

最下段：Zry4

図 3.3.6 循環式オートクレーブ腐食試験後の外観状況例（受取材、H26 年度）



(a) 受取材：試験時間 11, 900h 経過後



(b) 継続腐食材：試験時間 16, 400h 経過後

(注) 各写真において、次の順番で各材料を並べている。

最上段：Zr-1.8Nb

上から 2 段目：Zr-1.6Nb-0.1Cr

上から 3 段目：Zr-2.5Nb

最下段：Zry4

図 3.3.7 循環式オートクレーブ腐食試験後の外観状況例（受取材、H27 年度）

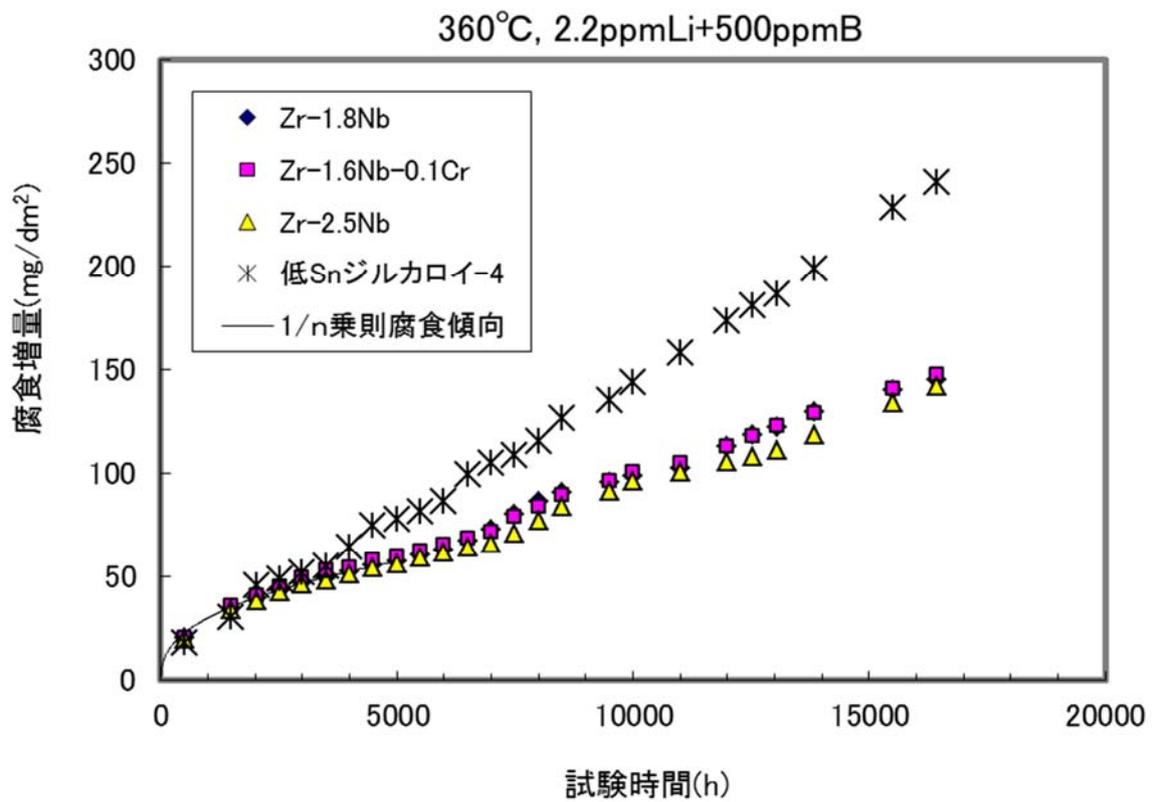


図 3.3.8 循環式オートクレーブ腐食試験による腐食増量の経時変化（継続腐食材（受取材））

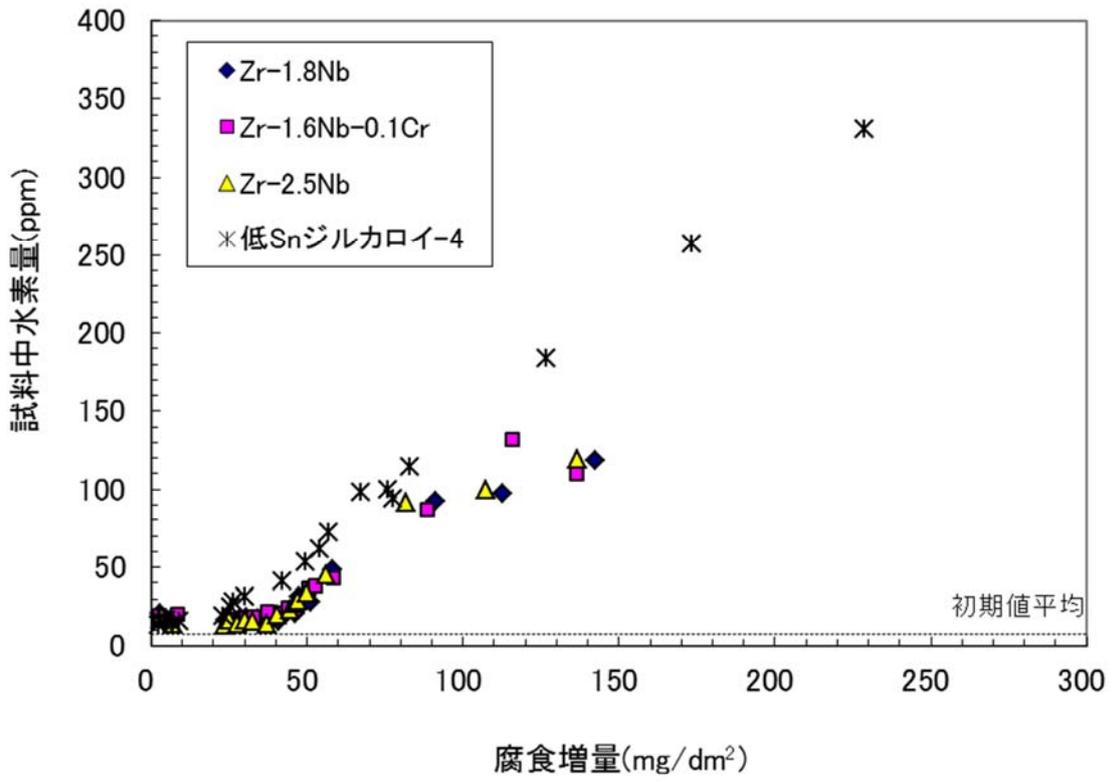


図 3.3.9 循環式オートクレーブ腐食試験による腐食増量と水素濃度測定結果の関係

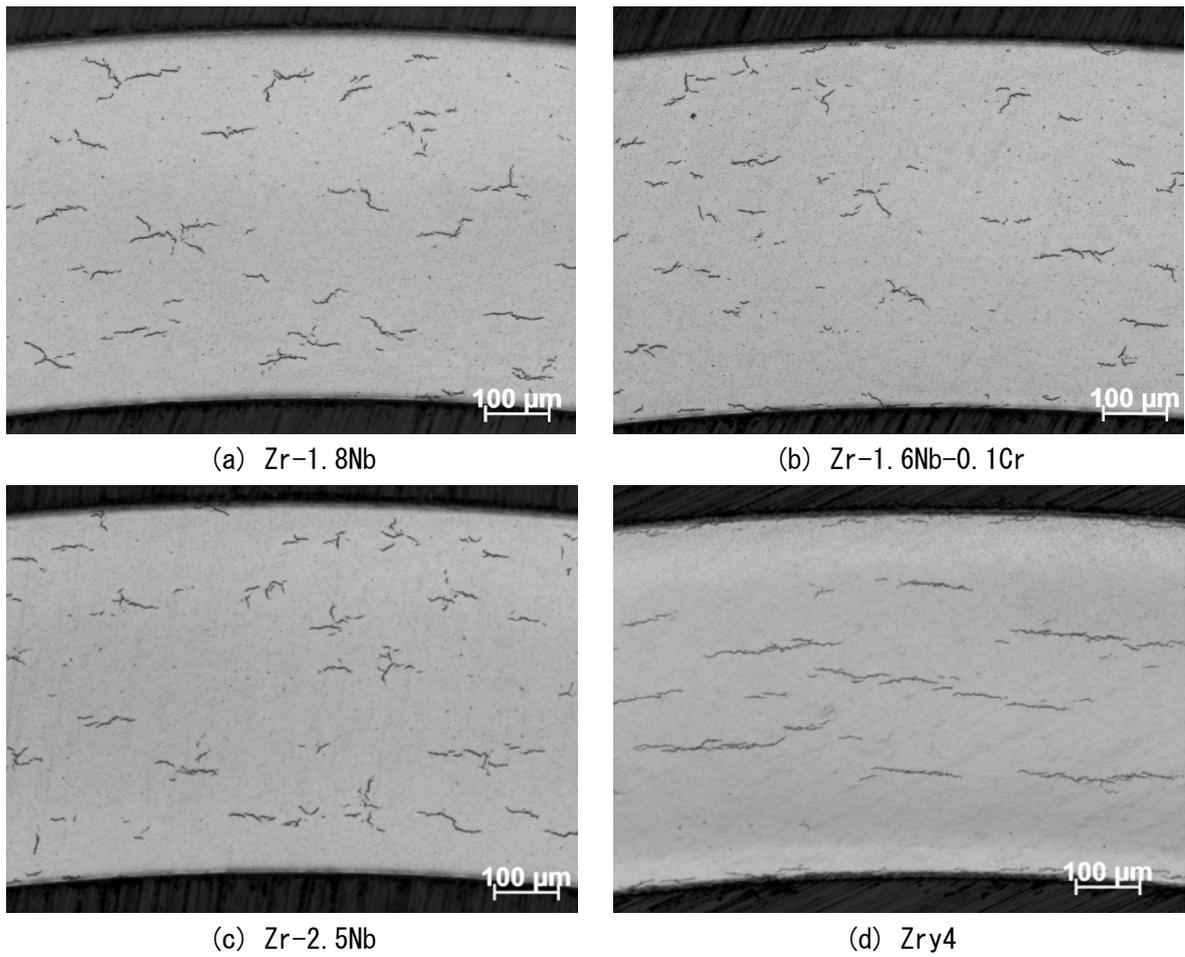
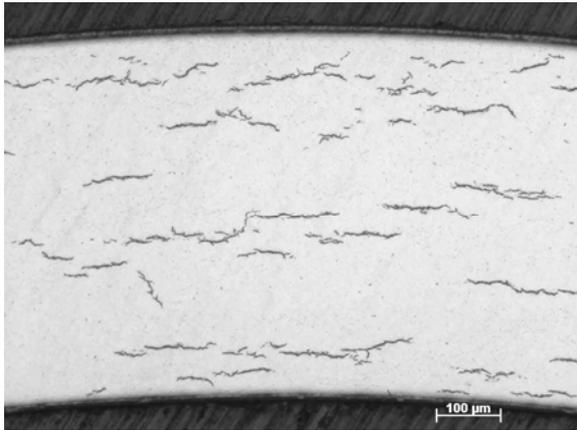
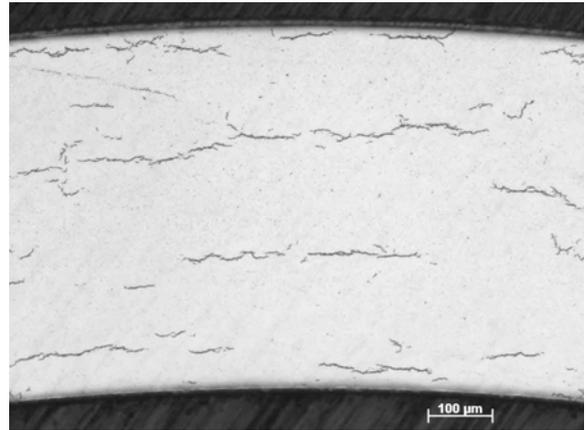


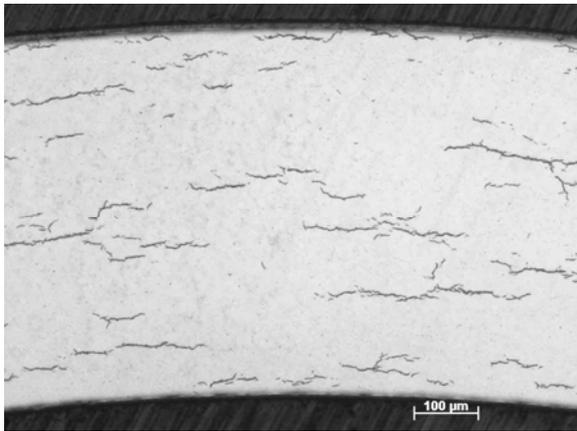
図 3.3.10 循環式オートクレーブ腐食試験後の横断面金相観察写真
(継続腐食材 (受取材) : 試験時間 5,000h 経過後、H24 年度)



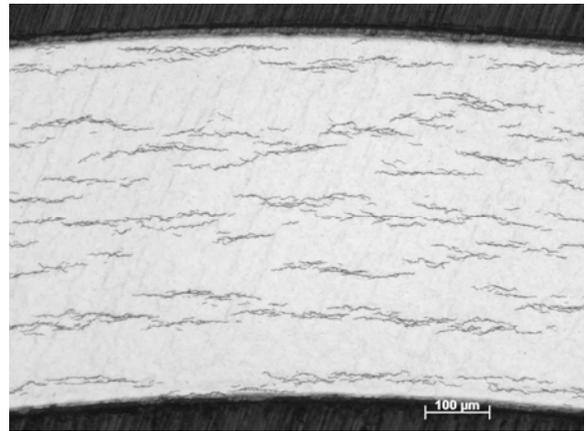
(a) Zr-1.8Nb



(b) Zr-1.6Nb-0.1Cr

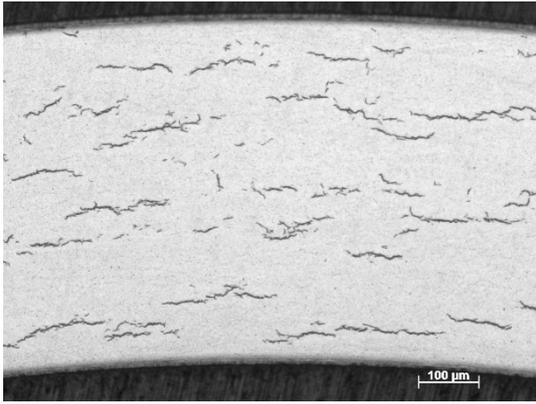


(c) Zr-2.5Nb

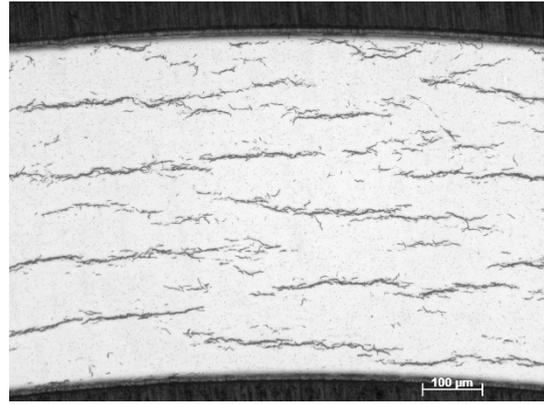


(d) Zry4

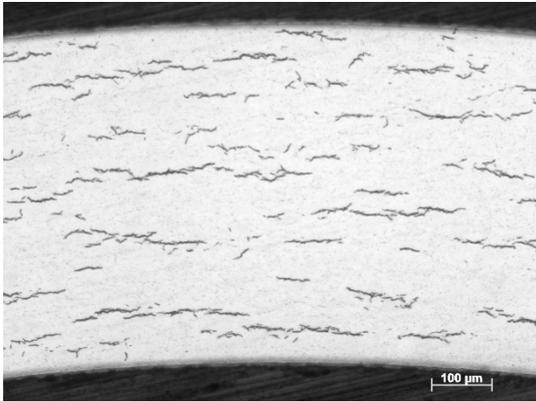
図 3.3.11 循環式オートクレーブ腐食試験後の横断面金相観察写真
(継続腐食材(受取材) : 試験時間 8,500h 経過後、H25 年度)



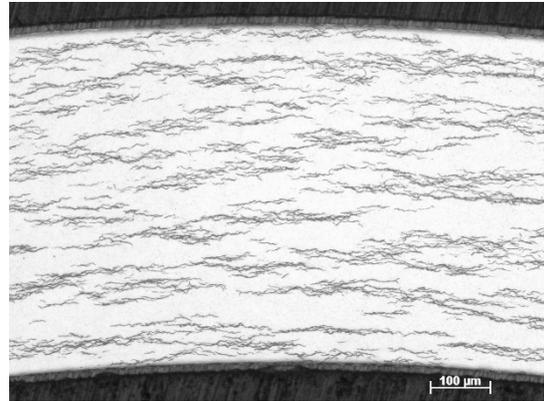
(a) Zr-1.8Nb



(b) Zr-1.6Nb-0.1Cr

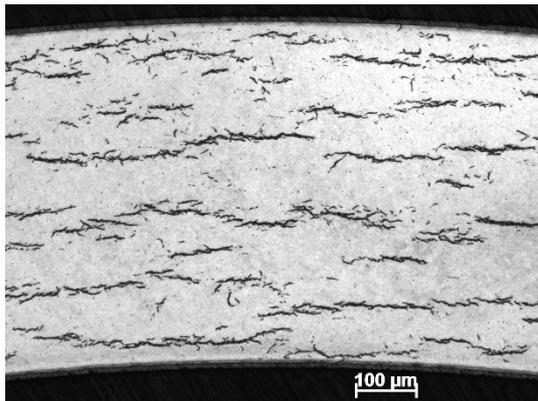


(c) Zr-2.5Nb

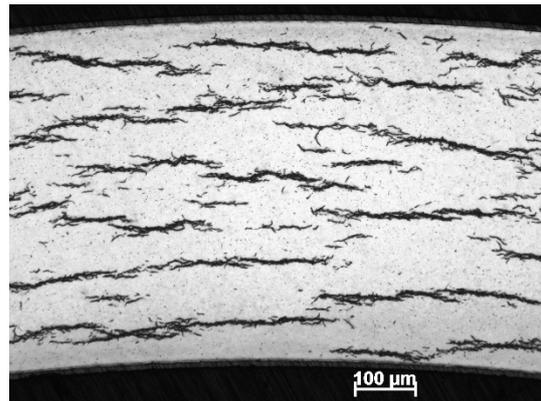


(d) Zry4

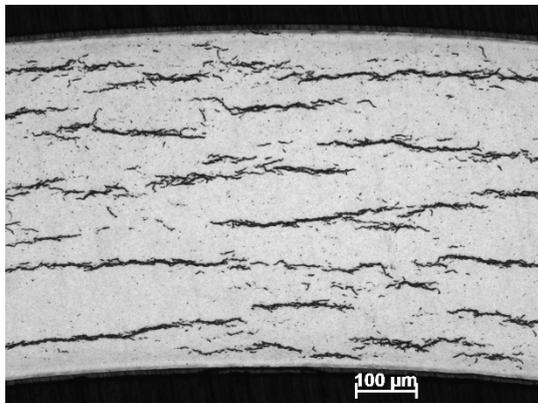
図 3.3.12 循環式オートクレーブ腐食試験後の横断面金相観察写真
(継続腐食材(受取材) : 試験時間 12,000h 経過後、H26 年度)



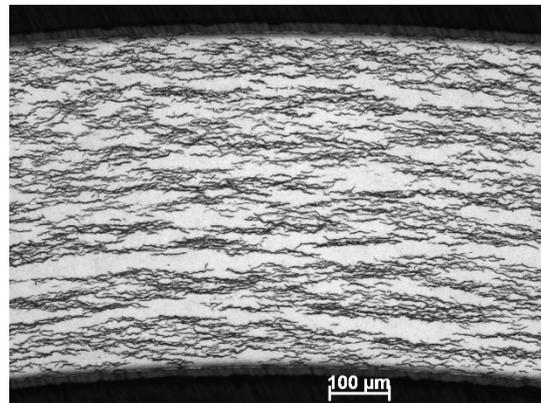
(a) Zr-1.8Nb



(b) Zr-1.6Nb-0.1Cr



(c) Zr-2.5Nb



(d) Zry4

図 3.3.13 循環式オートクレーブ腐食試験後の横断面金相観察写真
(継続腐食材(受取材) : 試験時間 16,400h 経過後、H27 年度)

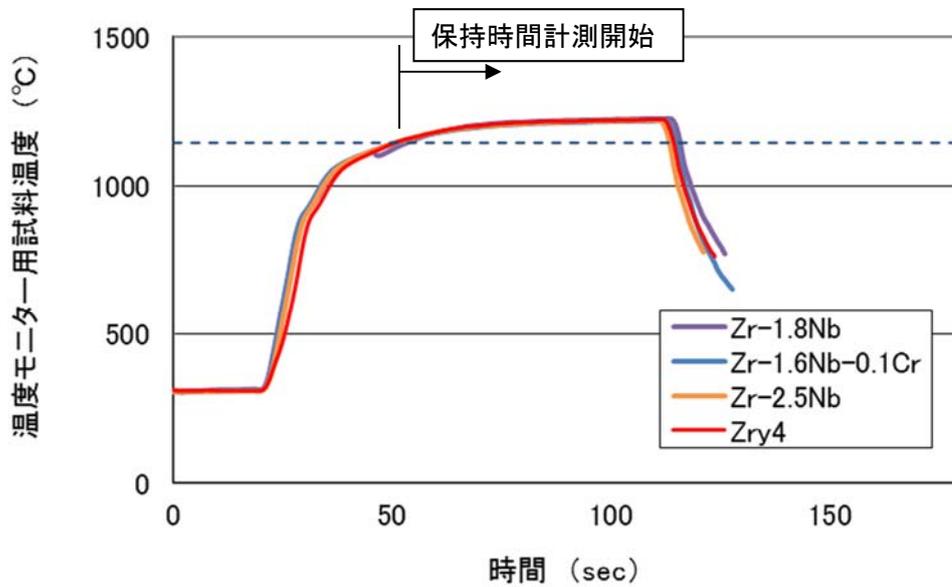


図 3.3.14 腐食試験（高温水蒸気）における試料温度測定結果の例
 （試験条件：1, 250°C × 約 60sec）

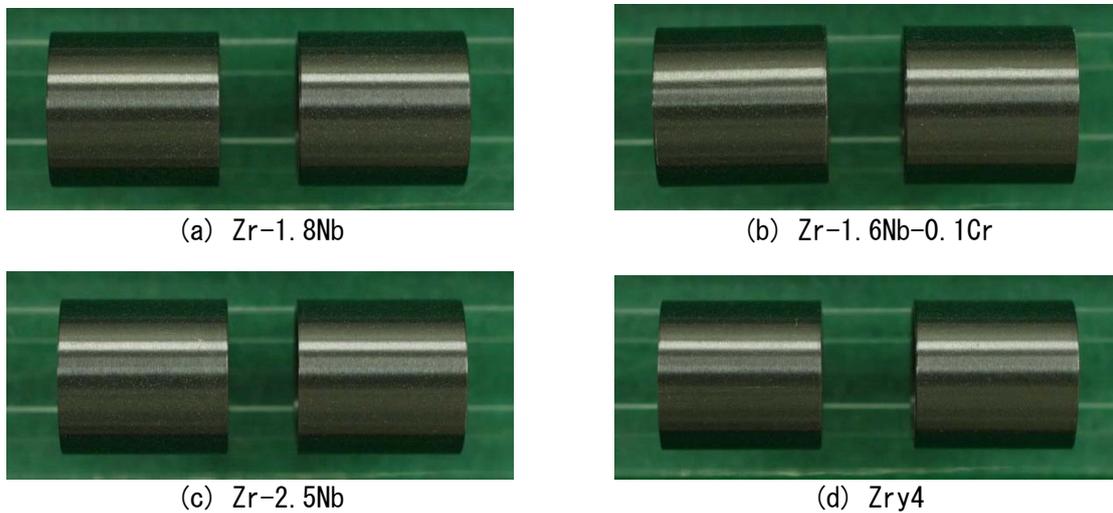


図 3.3.15 腐食試験（高温水蒸気）後の外観状況例（試験条件：1, 000°C × 約 60sec、H24 年度）

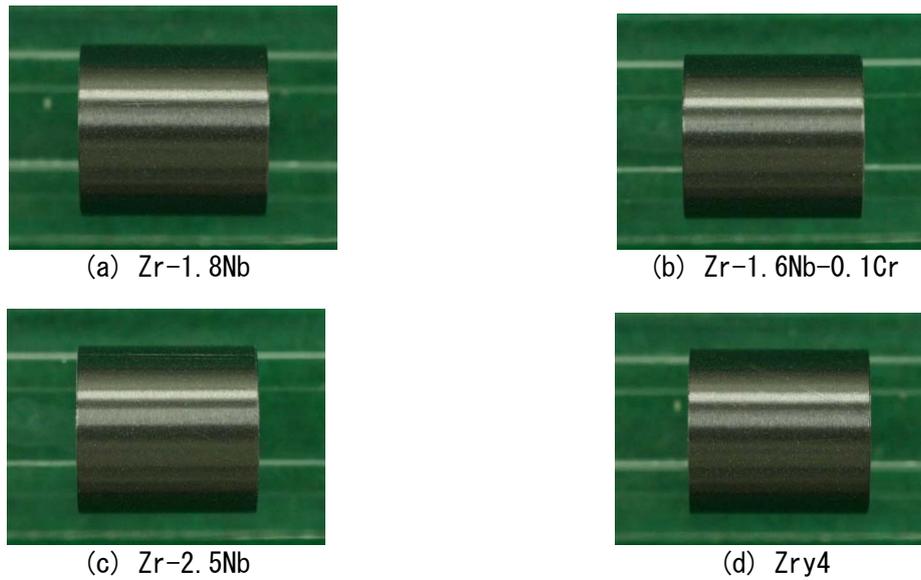
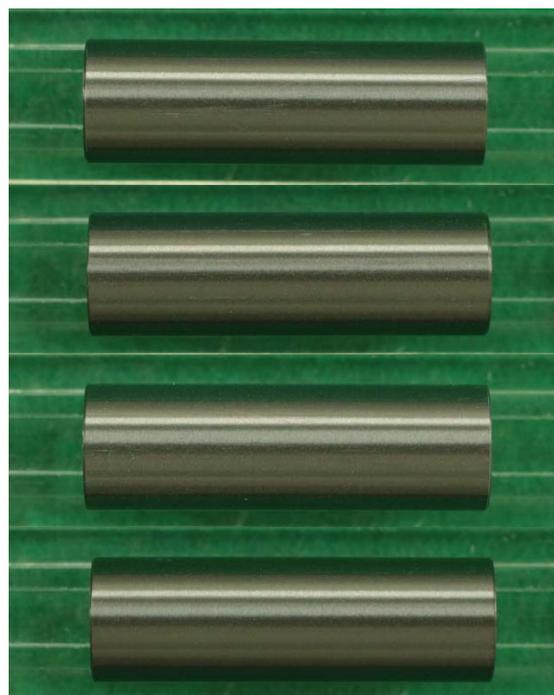
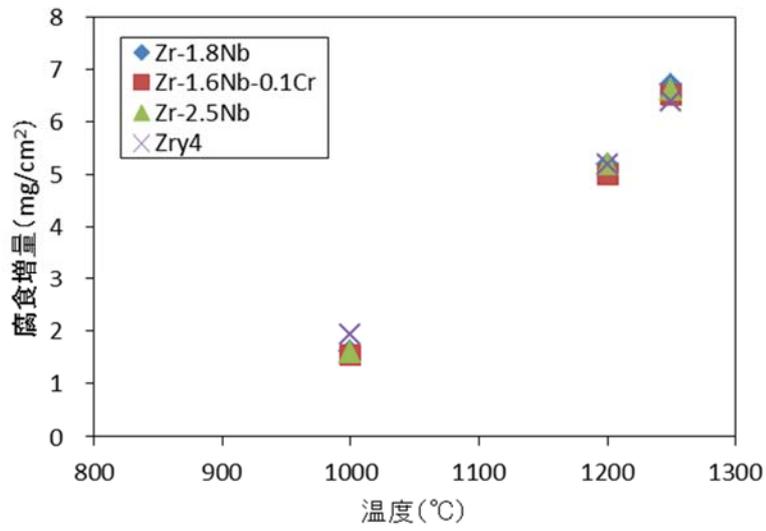


図 3.3.16 腐食試験（高温水蒸気）後の外観状況例（試験条件：1,200°C×約60sec、H25年度）

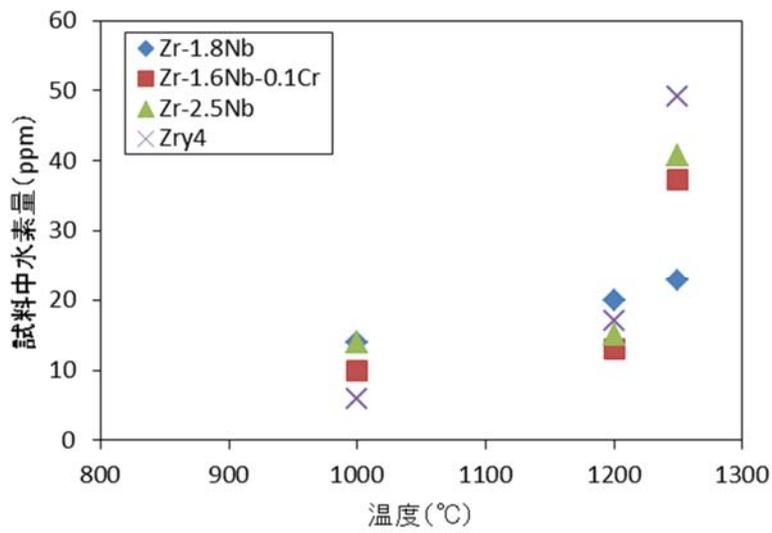


上段：Zr-1.8Nb
 上から2段目：Zr-1.6Nb-0.1Cr
 上から3段目：Zr-2.5Nb
 最下段：Zry4

図 3.3.17 腐食試験（高温水蒸気）後の外観状況例
 （試験条件：1,250°C×約60sec）

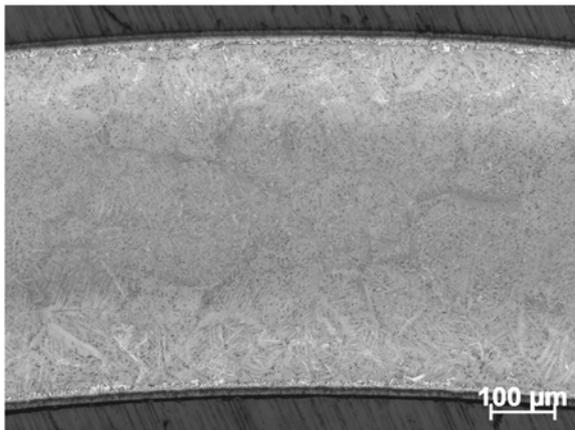


(a) 腐食増量の酸化温度依存性

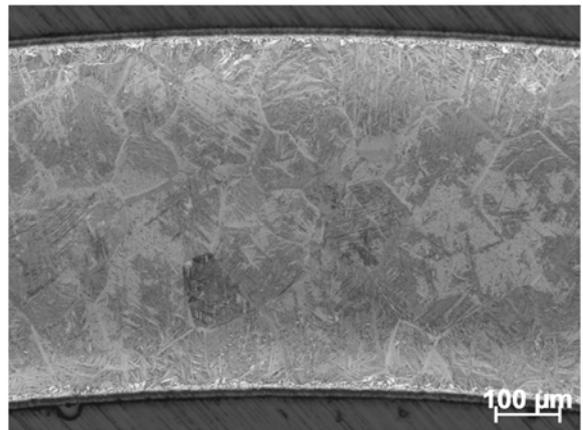


(b) 試料中水素量の酸化温度依存性

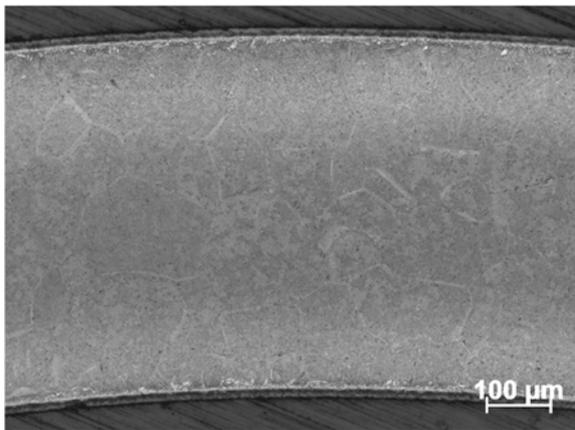
図 3.3.18 腐食増量および試料中水素量の酸化温度依存性



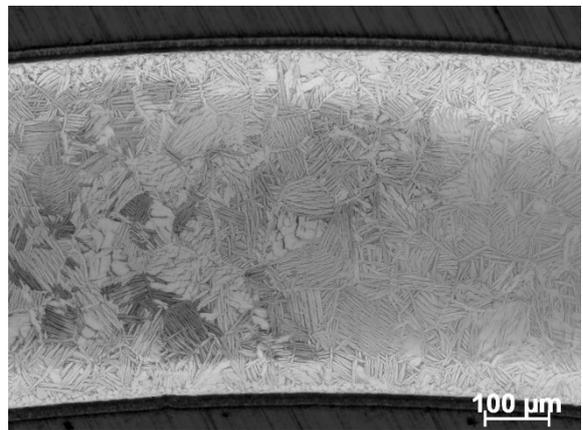
(a) Zr-1.8Nb



(b) Zr-1.6Nb-0.1Cr

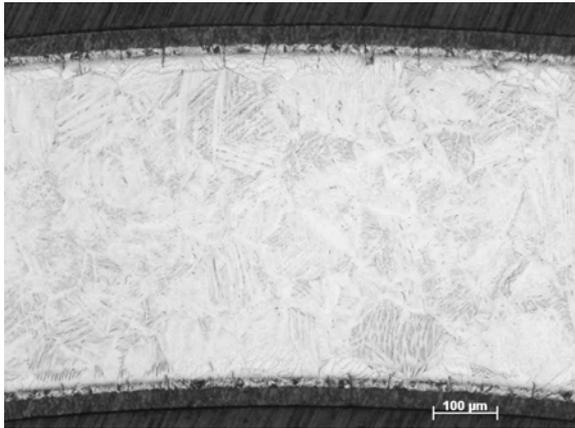


(c) Zr-2.5Nb

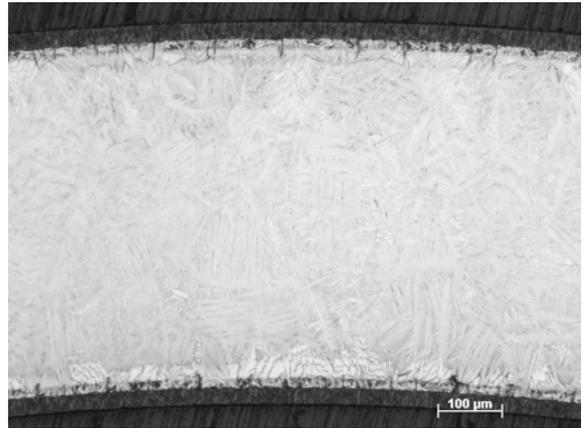


(d) Zry4

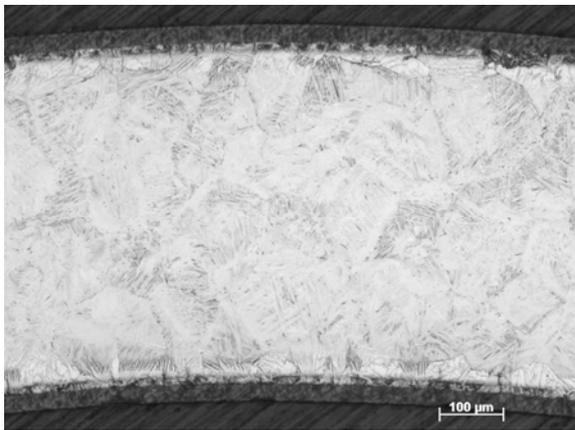
図 3.3.19 腐食試験（高温水蒸気）後の横断面金相観察写真
（試験条件：1,000°C×約60sec、H24年度）



(a) Zr-1.8Nb



(b) Zr-1.6Nb-0.1Cr



(c) Zr-2.5Nb



(d) Zry4

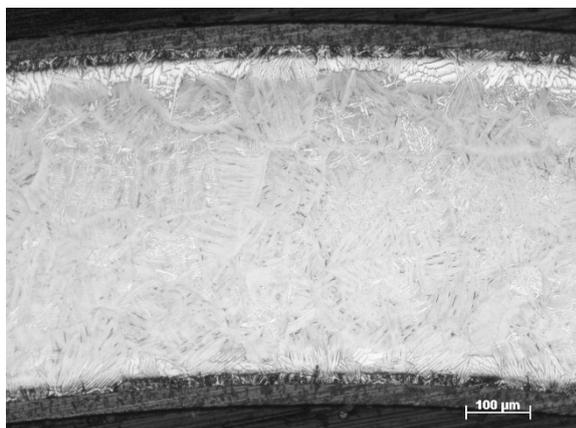
図 3.3.20 腐食試験（高温水蒸気）後の横断面金相観察写真
（試験条件：1,200°C×約60sec、H25年度）



(a) Zr-1.8Nb



(b) Zr-1.6Nb-0.1Cr



(c) Zr-2.5Nb



(d) Zry4

図 3.3.21 腐食試験（高温水蒸気）後の横断面金相観察写真
（試験条件：1,250°C×約60sec、H26年度）

3.4 水素化試験 (H24~H27)

3.4.1 目的

軽水炉での燃料被覆管の材料劣化を模擬する方法の一つとして、アルゴン+水素混合ガス中での水素化試験を実施する。最大 1800ppm 程度の水素濃度を目標として水素化試験を実施し、得られる水素化材の吸収水素量を測定するとともに金相観察試験を実施する。

また、得られた水素化材を「劣化材料の機械的性質評価」および「劣化材料のマイクロ組織観察試験」に供給する。

3.4.2 試験方法

(1) 水素化試験

①試験装置

試験装置の系統概略図および外観を図 3.4.1 に示す。本試験では、電気炉内の反応管内を真空引きした後にアルゴン+水素混合ガスを封入し、大気圧条件下にて所定温度・所定時間保持する気体吸収法により、試料に水素を吸収させた。

②試験条件および試験手順

以下の試験手順にて水素化試験を実施した。

- 1) 電気炉反応管内に試料をセットし、真空引きした後、精製器により下記純度に精製したアルゴンおよび水素ガスを、アルゴン：水素=10：1の割合で反応管内に封入し、圧力を約0.25atm. Gに調整した。
 - ・アルゴンガス（純度99.999%）
 - ・水素ガス（純度99.99999%）
- 2) 電気炉を所定温度（280~450℃程度）まで加熱し、当該温度にて5min~15h程度で保持した。
- 3) 温度保持終了後、炉冷（冷却速度100℃/h程度）により室温まで冷却した。

なお、H24年度においては、水素化試験後の金相観察により、水素化物が表面に近い領域に偏析している傾向が確認されたため、肉厚方向への水素化物分布の平坦化を目的に水素化後熱処理を水素化試験装置と同様な装置を用いて、以下の条件にて実施した。

- ・ 保持条件：550℃×60h
- ・ 昇降温速度：5℃/min、-1℃/min
- ・ 雰囲気：アルゴンガス気流中、0.5ℓ/min

③供試材

「材料供給1」にて準備、提供された長さ 150~450 mmの被覆管材を使用した。供試材の組成は、以下の4種類である。

- ・ Zr-1.8Nb

- Zr-1.6Nb-0.1Cr
- Zr-2.5Nb
- Zry4

(2) 試験後確認、測定

①水素分析

水素化試験後の試料について、長さ数mmの分析用試料を切り出し、水素分析装置により試料中の水素濃度を測定した。

②金相観察

水素分析を実施した箇所隣接位置より数 mm 長さを切り出し、被覆管横断面のマクロ組織を金相観察により確認した。

3.4.3 試験結果及び考察

水素化試験後の試料について水素分析を実施した結果を表 3.4.1～表 3.4.5 に示す。また、水素化試験後試料の代表例の横断面金相観察結果を図 3.4.2～図 3.4.8 に示す。同図に示すように、水素濃度の増大に伴って周方向に筋状に見える水素化物が成長し、次第に微細な水素化物の析出を伴って網目状に発達することにより、密度が増大する傾向が確認できる。また、比較的高濃度の試料においては、内外表面近傍に水素化物が集積した領域（偏析層）が確認された。

3.4.4 水素化試験材の提供

上記のとおり、Zry4 を用いた水素化材を製作し、他のタスクに提供することとした。表 3.4.1～表 3.4.5 に試料の提供先を併せて示した。

3.4.5 まとめ

水素化試験を実施し、目標とした水素濃度の水素化材を得るとともに、その一部を他のタスクに提供し、水素化試験に関する予定の作業を完了した。

表 3.4.1 水素化試験における水素分析結果 (H24)

【水素化】

試料 No.	水素化条件			水素分析結果(ppm)				他タスクへ提供	
	温度 (°C)	時間 (h)	Ar:H ₂	-100mm 付近	0mm 付近	+100mm 付近	ave.	東北大学	大阪大学
J1-1-2	360	7	10:1	821	609	787	739	90mm × 2	5mmL × 2 (0mm付近)
J1-1-3	360	7	10:1	901	-	818	860	水素化後熱処理へ	
J2-1-2	360	5.5	10:1	846	638	785	756	90mm × 2	5mmL × 2 (0mm付近)
J2-1-3	360	5.5	10:1	799	-	805	802	水素化後熱処理へ	
J3-1-2	360	5.5	10:1	905	615	905	808	90mm × 2	5mmL × 2 (0mm付近)
J3-1-3	360	5	10:1	891	-	771	831	水素化後熱処理へ	
Z-1-2	360	6	10:1	823	616	691	710	90mm × 2	5mmL × 2 (0mm付近)
Z-1-3	360	6.25	10:1	819	-	777	798	水素化後熱処理へ	

【水素化→熱処理】: Arガス中

試料 No.	熱処理条件				水素分析結果(ppm)				他タスクへ提供	
	昇温速度 (°C/min)	温度 (°C)	保持時間 (h)	降温速度 (°C/min)	-100mm 付近	0mm 付近	+100mm 付近	ave.	東北大学	大阪大学
J1-1-3	5	550	60	1	-	528	-	528	-100~-10mm: (U) +10~+100mm: (L)	5mmL × 2 (0mm付近)
J2-1-3	5	550	60	1	-	507	-	507	-100~-10mm: (U) +10~+100mm: (L)	5mmL × 2 (0mm付近)
J3-1-3	5	550	60	1	-	528	-	528	-100~-10mm: (U) +10~+100mm: (L)	5mmL × 2 (0mm付近)
Z-1-3	5	550	60	1	-	484	-	484	-100~-10mm: (U) +10~+100mm: (L)	5mmL × 2 (0mm付近)

注記) 組成と試料 No. の関係は以下のとおり。

- Zr-1.8Nb 試料 No. J1-1-n
- Zr-1.6Nb-0.1Cr 試料 No. J2-1-n
- Zr-2.5Nb 試料 No. J3-1-n
- Zry4 試料 No. Z-1-n

表 3.4.2 水素化試験における水素分析結果 (H25)

sample No.	H ₂ 吸収条件				試料両端部の水素濃度(ppm)			分析後 試料長さ (mm)	備考
	温度 (°C)	時間 (h)	Ar (ℓ/min)	H ₂ (mℓ/min)	-100mm 付近	+100mm 付近	ave.		
J3-2-11	360	8.5	0.5	10	1527	1388	1458	200	
J3-1-5	360	5	0.2	20	913	1003	958	200	多軸応力機械試験へ (1000ppm材)
J3-2-22	300	6	0.5	10	519	300	410	200	多軸応力機械試験へ (400ppm材)
Z-1-5	380	5.5	0.5	10	1104	1001	1053	200	多軸応力機械試験へ (1000ppm材)
Z-3-25	280	15	0.5	5	485	365	425	200	多軸応力機械試験へ (400ppm材)

注記) 組成と試料 No. の関係は以下のとおり。

- Zr-2.5Nb 試料 No. J3-m-n
- Zry4 試料 No. Z-m-n

表 3.4.3 水素化試験における水素分析結果 (H26)

sample No.	H ₂ 吸収条件				試料両端部の水素濃度(ppm)			分析後*1 試料長さ (mm)	備考
	温度 (°C)	時間 (min)	Ar (ℓ/min)	H ₂ (mℓ/min)	端部A	端部B	ave.		
Z-100-1	450	5	1	20	78	125	102	300	東北大/NDCへ提供
Z-100-2	400	30	0.4	20	71	171	121	300	東北大/NDCへ提供
Z-400-1	340	60	0.4	11	385	338	362	300	東北大/NDCへ提供
Z-400-2	360	60	0.4	11	515	381	448	300	東北大/NDCへ提供
Z-800-1	400	85	0.4	19	810	727	768	300	東北大/NDCへ提供
Z-800-2	400	85	0.4	19	719	707	713	300	東北大/NDCへ提供

*1 各試料よりNDCで実施した多軸応力機械試験のために数mm程度を採取した後の長さ

注記) 組成と試料 No. の関係は以下のとおり。

- Zry4 試料 No. Z-m-n

表 3.4.4 水素化試験における水素分析結果 (H27)

sample No.	H ₂ 吸収条件				試料両端部の水素濃度(ppm)			分析後*1 試料長さ (mm)	備考
	温度 (°C)	時間 (min)	Ar (ℓ/min)	H ₂ (mℓ/min)	端部A	端部B	ave.		
J1-200-1	420	15	0.5	20	192	202	197	50	東北大へ提供
J1-200-2	420	15	0.5	20	202	192	197	50	東北大へ提供
J1-500-1	420	40	0.5	20	533	546	540	50	東北大へ提供
J1-500-2	420	40	0.5	20	546	470	508	50	東北大へ提供
J1-800-1	420	30	0.5	20	812	853	832	50	東北大へ提供
J1-800-2	420	30	0.4	25	790	801	795	50	東北大へ提供
J1-1000-1	420	40	0.4	25	937	1021	979	50	東北大へ提供
J1-1000-2	420	40	0.4	25	1021	1069	1045	50	東北大へ提供
J1-1200-1	420	50	0.5	20	1181	1276	1228	50	東北大へ提供
J1-1200-2	420	42	0.4	25	1203	1264	1234	50	東北大へ提供
J1-1500-1	420	50	0.7	20	1515	1442	1479	50	東北大へ提供
J1-1500-2	420	70	0.4	25	1396	1432	1414	50	東北大へ提供
J1-2000-1	420	70	0.5	20	2092	2239	2165	50	東北大へ提供
J1-2000-2	420	60	0.4	25	1963	2048	2005	50	東北大へ提供

注記) 組成と試料 No. の関係は以下のとおり。

- ・ Zr-1.8Nb 試料 No. J1-m-n

表 3. 4. 5 水素化試験における水素分析結果 (H27)

sample No.	H ₂ 吸収条件				試料両端部の水素濃度(ppm)			分析後*1 試料長さ (mm)	備考
	温度 (°C)	時間 (min)	Ar (ℓ/min)	H ₂ (mℓ/min)	端部A	端部B	ave.		
J3-100-1	400	60	0.4	20	100	98	99	50	東北大へ提供
J3-100-2	400	60	0.4	20	91	87	89	50	東北大へ提供
J3-200-1	420	13	0.5	20	201	197	199	50	東北大へ提供
J3-200-2	420	13	0.5	20	197	189	193	50	東北大へ提供
J3-500-1	400	33	0.4	20	534	475	505	50	東北大へ提供
J3-500-2	400	22	0.45	20	586	461	524	50	東北大へ提供
J3-800-1	400	40	0.4	20	856	739	798	50	東北大へ提供
J3-800-2	400	35	0.4	25	733	682	708	50	東北大へ提供
J3-1000-1	400	40	0.4	20	1041	985	1013	50	東北大へ提供
J3-1000-2	400	60	0.4	20	1100	972	1036	50	東北大へ提供
J3-1200-1	400	90	0.4	20	1315	1144	1230	50	東北大へ提供
J3-1200-2	400	60	0.4	20	1265	1100	1182	50	東北大へ提供
J3-1500-1	400	70	0.4	20	1490	1546	1518	50	東北大へ提供
J3-1500-2	400	70	0.4	20	1546	1547	1546	50	東北大へ提供
J3-2000-1	420	98	0.4	25	1846	1938	1892	50	東北大へ提供
J3-2000-2	420	98	0.4	25	1938	1920	1929	50	東北大へ提供

注記) 組成と試料 No. の関係は以下のとおり。

- Zr-2. 5Nb 試料 No. J3-m-n

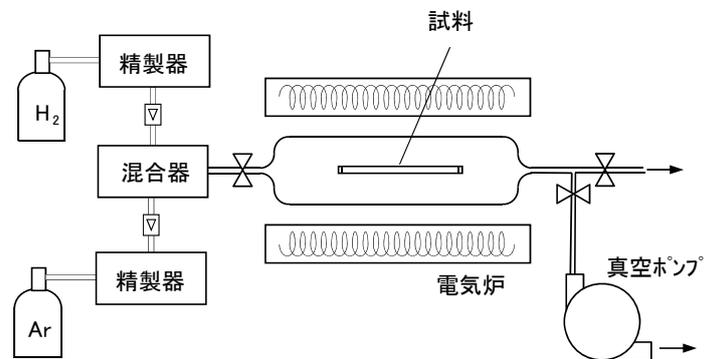
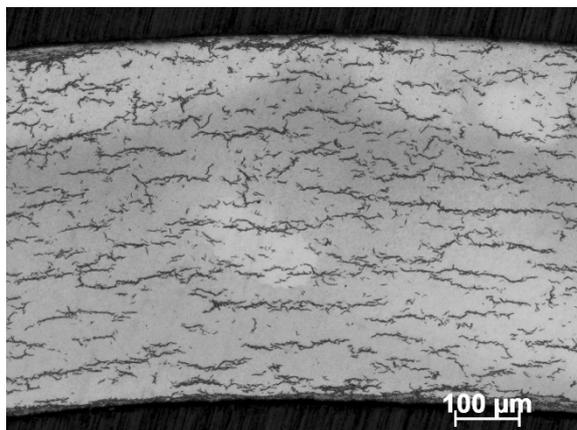
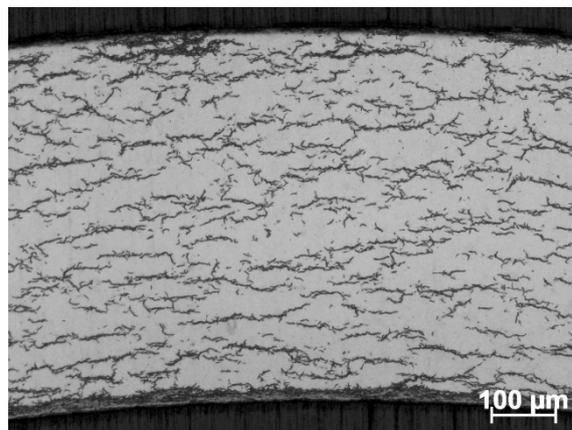


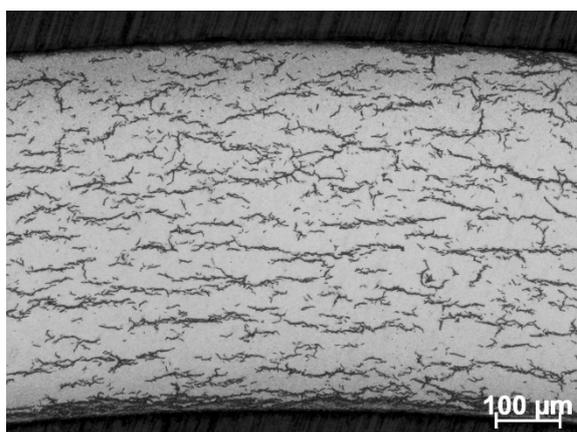
図 3.4.1 水素化試験装置の系統概略図と外観



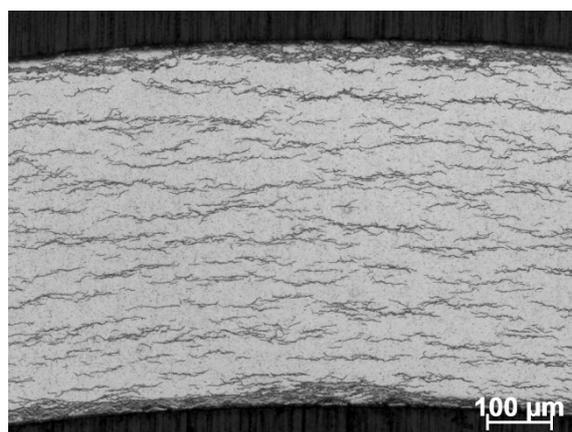
(a) Zr-1.8Nb



(b) Zr-1.6Nb-0.1Cr

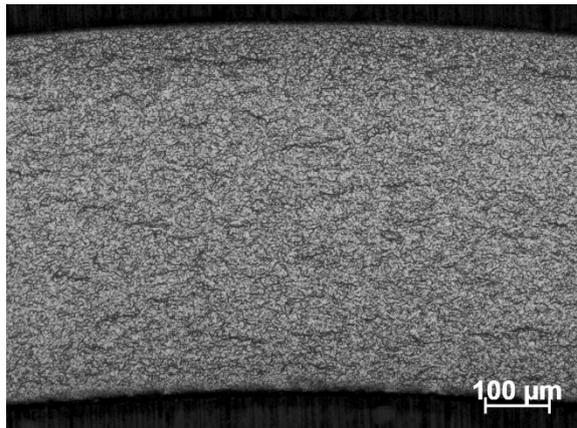


(c) Zr-2.5Nb

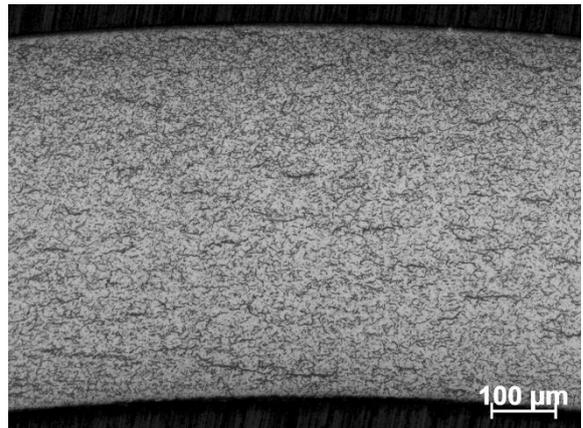


(d) Zry4

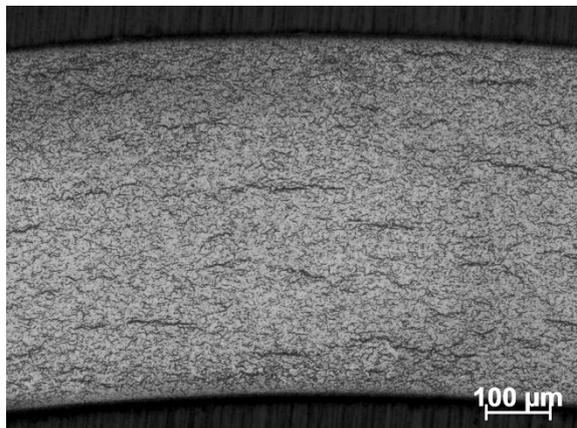
図 3.4.2 水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真
(目標水素濃度：約 800ppm、H24)



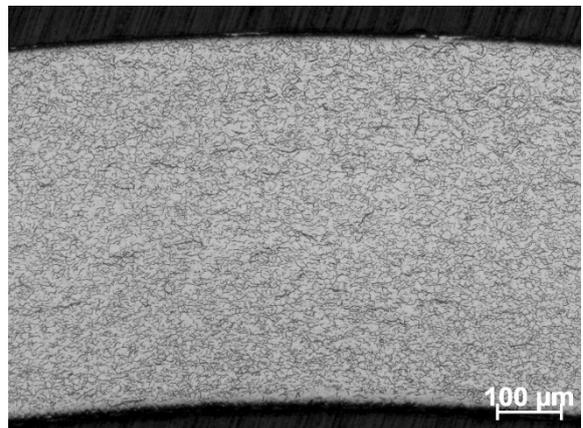
(a) Zr-1.8Nb



(b) Zr-1.6Nb-0.1Cr

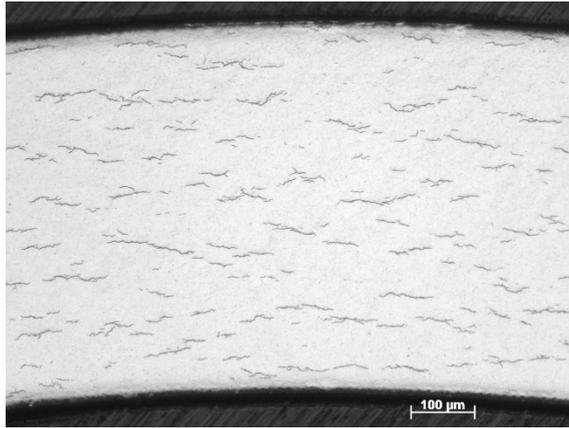


(c) Zr-2.5Nb

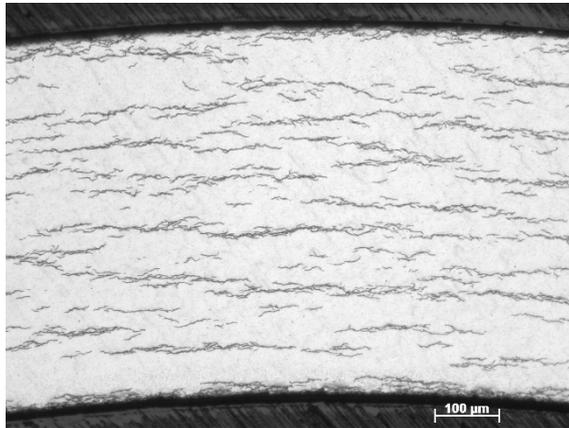


(d) Zry4

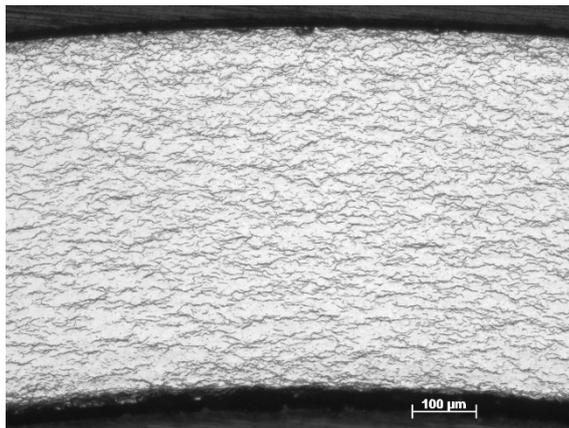
図 3.4.3 水素化試験→熱処理後の被覆管試料横断面金相観察写真
(熱処理後水素分析値：約 500ppm、H24)



(a) 試料番号 Z-100-1 (水素分析値 : 102ppm (試料両端平均))

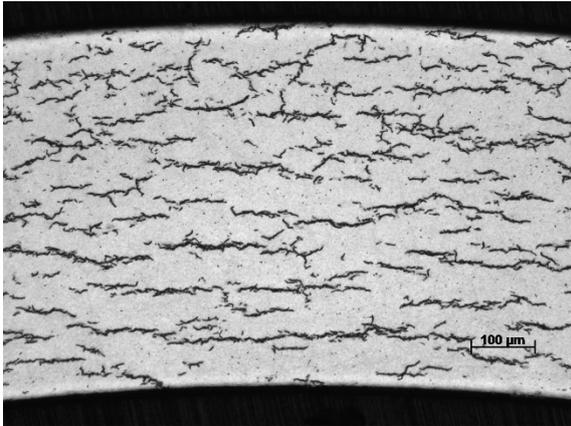


(b) 試料番号 Z-400-1 (水素分析値 : 362ppm (試料両端平均))

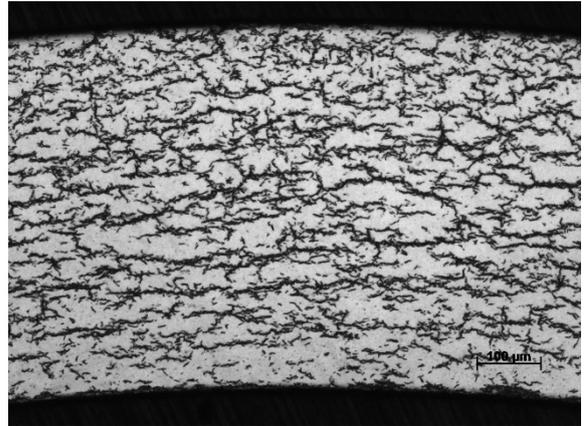


(c) 試料番号 Z-800-2 (水素分析値 : 713ppm (試料両端平均))

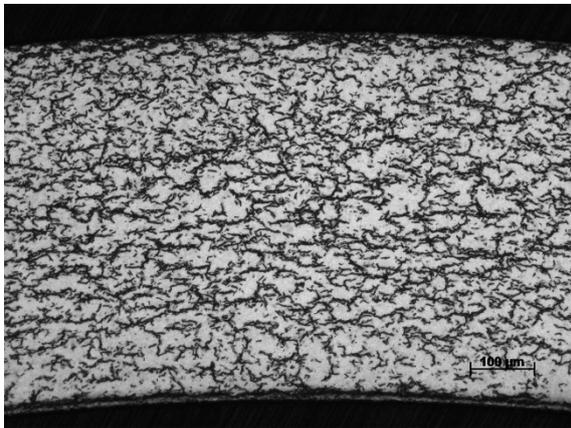
図 3.4.4 水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真 (H26)



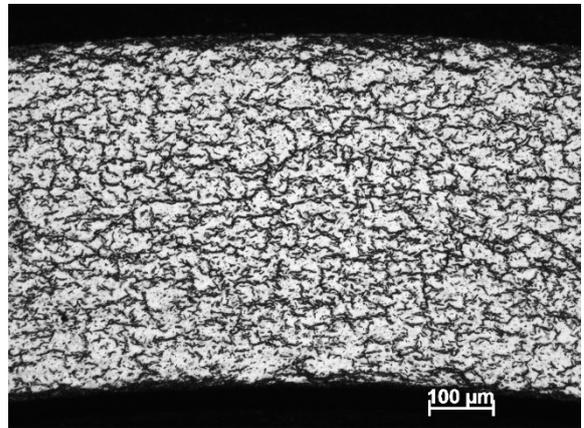
(a) J1-200-1 (試料両端平均 : 197ppm)



(b) J1-500-2 (試料両端平均 : 508ppm)

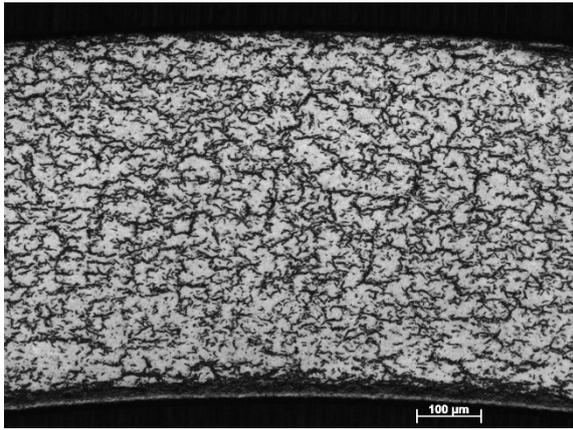


(c) J1-800-1 (試料両端平均 : 832ppm)

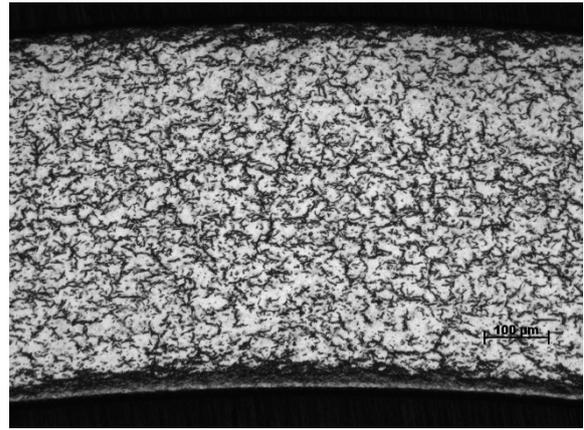


(d) J1-1000-2 (試料両端平均 : 1045ppm)

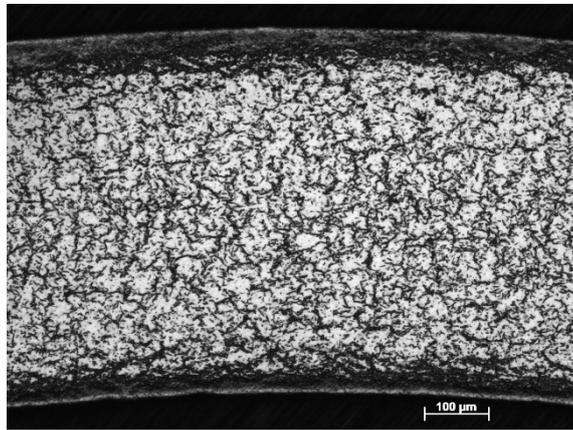
図 3. 4. 5 水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真 (H27)



(a) J1-1200-1 (試料両端平均 : 1228ppm)

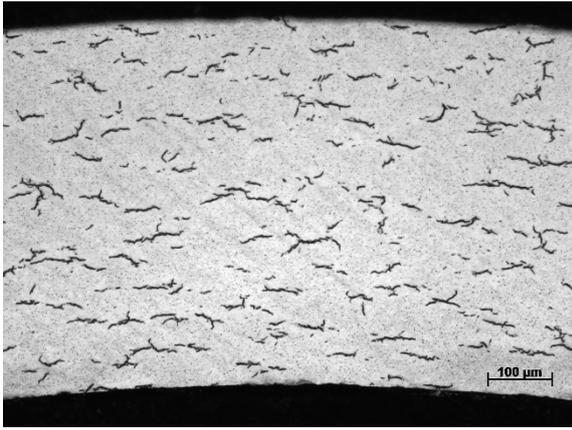


(b) J1-1500-1 (試料両端平均 : 1479ppm)

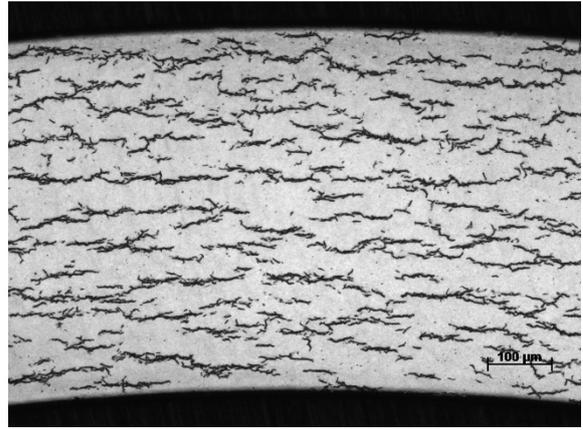


(c) J1-2000-1 (試料両端平均 : 2165ppm)

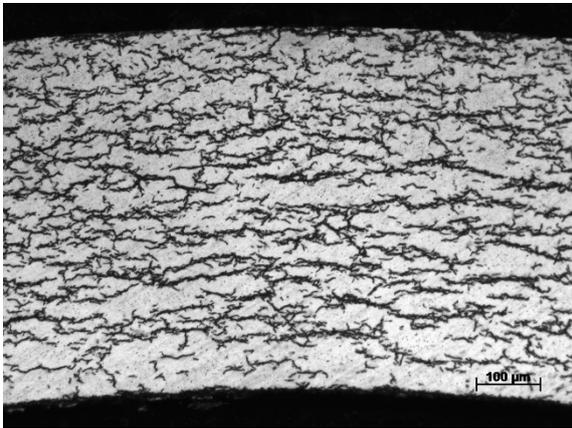
図 3.4.6 水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真 (H27)



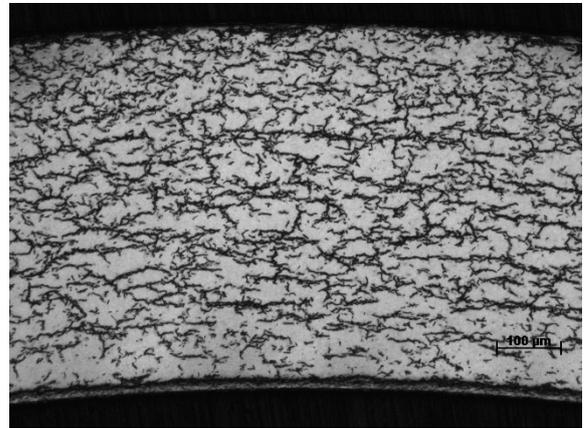
(a) J3-100-1 (試料両端平均 : 99ppm)



(b) J3-200-2 (試料両端平均 : 193ppm)

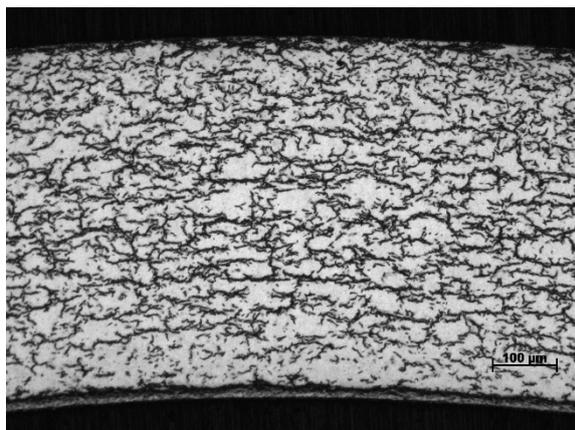


(c) J3-500-1 (試料両端平均 : 505ppm)

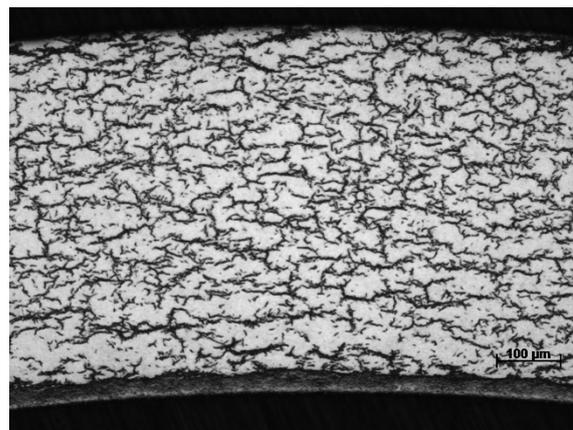


(d) J3-800-1 (試料両端平均 : 798ppm)

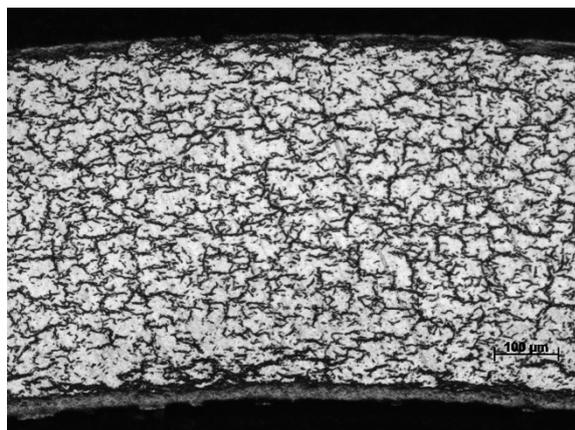
図 3.4.7 水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真 (H27)



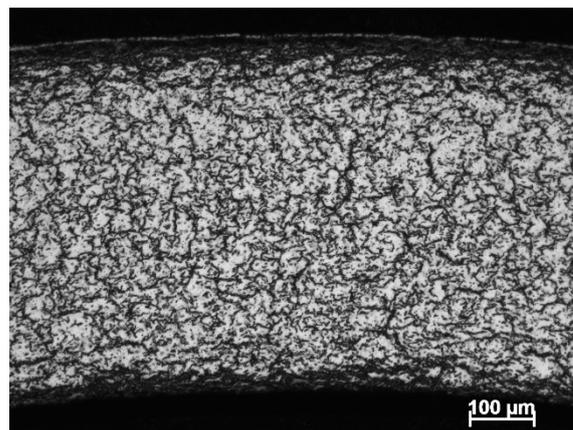
(a) J3-1000-1 (試料両端平均 : 1013ppm)



(b) J3-1200-1 (試料両端平均 : 1230ppm)



(c) J3-1500-1 (試料両端平均 : 1518ppm)



(d) J3-2000-2 (試料両端平均 : 1929ppm)

図 3.4.8 水素化試験後の被覆管試料横断面金相観察写真 (H27)

3.5 引張試験およびナノ硬度試験

3.5.1 目的

低燃焼度時における軽水炉の燃料被覆管材料は、燃料から放出される FP ガスによって管の周方向に一軸の引張応力（平面ひずみ状態）条件の荷重が付加されるが、高燃焼度化に伴うペレットとの機械的相互作用（PCMI）により、不均一な二軸応力条件へと変化する [3.5.1]。さらに、原子炉内において材料は高温、腐食、水素化、照射に曝され、これらによる機械特性の劣化が生じる。このように、当該材は応力状態が連続、段階的に変化し、さらに、著しい特性劣化が生じる極限環境下において材料の健全性を担保する必要がある。そのため、本国では、材料の使用限界に対し高い安全性マージンを設けているのだが、ここで使用されている安全率の材料学的意味は必ずしも明確ではなく、また、先行研究において実施した次世代型の燃料被覆管材料の Zr-1.8Nb 系合金（J1 合金）の照射強度特性評価では [3.5.2]、高照射量を被った試験片において、弾性変形直後にネッキングを起し破断に至る、いわゆる、転位チャネリングによって破壊した材料においても、この 1% 基準を満たすことを明らかにした。この結果は、1% 基準の材料学的意味の明確化、すなわち、Zr 基合金の変形や破壊概念の再評価の必要性を示唆する重要知見である。

一般的な材料強度試験方法は、引張試験（平板、丸棒、リング）や、バースト試験、中子拡管（EDC）試験等であるが、この中で、実機環境下における応力付加条件を模擬できる試験法は確立していない。そこで、申請者の所属する研究グループでは改良型中子拡管試験法（A-EDC）を開発した [3.5.3]。詳細は 3.8 章に示すが、中子に金属を用い、それを圧縮変形させることで、リング状試験片の周方向に単軸引張応力を付与し、低燃焼時の燃料被覆管への応力付加条件を模擬した強度試験を実施できる。また、当試験法は従来法に比べ試験片体積を減じ、（管状からリング状に変更）さらに、中子に金属を用いることで、再現性の向上、試験温度範囲の拡大、照射材への適応性が良い等の優れた特徴を有している。このように、A-EDC は管の強度評価手法として高いポテンシャルを有しているが、A-EDC によって得られた応力-ひずみ曲線（ 曲線）が、引張試験で得られる種々の機械特性に比べ～20% 過大値であること。また、亀裂の伝播方向が実機材と異なることが分かっており [3.5.4]、未だ改善の余地が残されている。

これらより、1% 基準の次世代材の適応に関しては、科学的根拠に基づいた数値設定が必要であり、材料の変形や破壊描像を再認識する必要があると言える。また、A-EDC は適応性の高い管の強度評価手法であるが、その高度化に向けた残された課題もある。これらより、本章では、1 軸の引張試験ならびに A-EDC 試験によって導入された転位組織発達挙動を比較することで、組織学的観点から Zr 基材料の変形・破壊描像を整理し、さらに、A-EDC による転位組織制御開発を通じた当試験の高度化を行う。具体的な研究の内容は以下の通りである。

始めに、引張試験において管の周方向への応力付加時の転位発達組織を比較する。これまでに、降伏強度と微細組織との関係は、多くの既往研究で相関が確認されているものの、加工硬化域における組織と強度との関係は知見が乏しい。特に、1% 基準の材料学的な意味の解明には、加工硬化域における組織と強度との相関が重要であり、この解決に向けた評価を実施する。また、転位組織の詳細な評価手法は X 線回折（XRD）と電子線後方散乱回折法（EBSD）の 2 種の評価手法を使用し、ここで得られた  の定性・定量比較を通し、単軸引張、A-EDC 試験下における微細組織発達

を明らかにする。

3.5.2 実験方法

3.5.2.1 試験片作製方法

図 3.5.1 に試料作製方法を示す。本章では、供試材として純 Zr と Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材を使用しており、これらの化学組成を表 3.5.1 に示す。なお、Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb はスタートマテリアルとして管状形状の J1 および J3 材であり、純 Zr は市販グレードのものを使用した。これらの試料は、図 3.5.1 に示したような冷間圧延（冷間圧延率は Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb で約 50%、純 Zr で約 80%）ならびに再結晶化処理（熱処理条件は Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb で 853 K for 24 hr / 炉冷 (F.C.)、純 Zr では 753 K for 24 hr / F.C.) を施し、平板状に成形した。この平板片から、引張方向と圧延方向が平行となるようにして、打ち抜き加工によって試験片 (SSJ タイプ形状 : 16 x 4 x 0.38 mm) を作製し、引張試験に供した。

引張試験は平成 24 年度に納品した島津製作所製の AG-Xplus を使用し、室温 (298 K) において、ひずみ速度を 10^{-3} s^{-1} で実施した。なお、ひずみはレーザー変位計によって測定しており、試験片の肩部を保持し、荷重を付加した。また、試験片は打ち抜き加工によって導入された不均一な加工組織を除去する目的から、試料表面ならびに側面部を #800 の耐水研磨紙によって研磨し、表面に均一な加工組織を導入した。また、A-EDC 試験は、阿部らによって最適化された条件によって実施した [3.5.3]。

3.5.2.2 微細組織評価方法

引張試験中の変形組織評価指標である転位密度 () は XRD による Williamson-Hall 法によって評価した [3.5.5]。この方法では、X 線プロファイルの広がり (結晶子サイズ ($D_{Crystal}$)) と内部ひずみ () から、以下のように定式化される。

$$\frac{B \cos \theta}{\lambda} = \frac{0.9}{D_{Crystal}} + 2\varepsilon \frac{\sin \theta}{\lambda} \dots \text{(式 3.5.1)}$$

ここで、 B 、 θ 、 λ はそれぞれ、ピークの広がり (半値全幅 : FWHM)、回折角、X 線の波長 (本研究では、X 線源として Cu-K を使用したことから、 $\lambda = 0.15418 \text{ nm}^{-1}$) である。これらより、図 3.5.2(a) に示したように、Y 軸を $B \cos \theta / \lambda$ 、X 軸を $\sin \theta / \lambda$ でプロットし、その時の近似直線の傾きないし Y 切片から ひずみ ε が評価できる。また、 D は ε と以下の関係式によって説明できると考えられている。

$$\rho_{XRD} = 14.4 \frac{\varepsilon^2}{b^2} \dots \text{(式 3.5.2)}$$

ここで、 b はバーガースベクトルである。当該材料中では $\langle a \rangle$ 、 $\langle c \rangle$ 、 $\langle c+a \rangle$ タイプの転位が存在するため、3 種類の b が存在する。このため、上式を使用するためには、当該材料の適当な b を選定する必要があり、本研究では、臨界分解せん断応力 (σ_{CR}) による各すべり系の活性化頻度を評価することで、各々のすべり系の活性化頻度を決定した。以下にその手順を示す。

σ_{CR} は臨界分解応力 (σ_{CR}) とシュミット因子 ($\cos \phi \cdot \cos \lambda$) によって、以下の式で表現さ

れる。

$$\tau_{CR} = \frac{\sigma_{CR}}{\cos\varphi\cos\lambda} \quad \cdot \cdot \cdot (\text{式 3.5.3})$$

この時、シュミット因子は EBSD 解析によって求めることができ、また、 σ_{CR} は文献値を参照することで、各応力条件下におけるすべり系の活性化頻度として表現できる。なお、本研究で対象としたすべり系は Basal ($\sigma_{CR, Ba}$)、Basal ($\sigma_{CR, Pr}$)、Basal ($\sigma_{CR, Py}$) の 3 種であり、これらの臨界分解せん断応力はそれぞれ、440、110、248 MPa を使用した [3.5.6-3.5.9]。なお、上記の 3 種のすべり系以外に変形相晶変形が考えられるが、本研究条件下において、相晶変形が生じないことを実験的に確認しており(詳細は口述する)この解析から除外した。これらより、一例として、Zr-2.5Nb 材の各応力条件下におけるすべり系の活性化頻度を図 3.5.3 にまとめて示す。ここで、図 3.5.3(a) は、各すべり系の活性化頻度分布を示したものであるが、当研究条件下において活動するすべり系は Prismatic タイプのみであることを確認した。さらに、図 3.5.3(b) に示したように、各応力条件下における Prismatic 転位中の <a>、<c>、<c+a> 成分の比率の評価から、活動する転位の大部分は、<a>型転位であることが確認され、さらに、<c>や<c+a>型の活性化頻度は応力条件の増加に伴い増加することが分かった。

また、引張変形中の結晶粒径や結晶配向性、シュミット因子を評価するため EBSD を行った。使用した機器は JEOL 社製の JSM-7001F であり、加速電圧 30 kV において、ステップサイズ 150 nm で EBSD 分析を行った。試料は、引張変形後に試料表面を #2000 の耐水研磨紙で研磨後、試験片の平行部の中央に電解研磨を施したものを分析に供した。その試料の概観写真を図 3.5.4 に示す。また、XRD は試験片のつかみ部ならびに肩部を高速切断機によって切断し、試験片の平行部のみをバフ研磨によって鏡面仕上げ、その後、Rigaku 社製の Ultima- を使用し、加速電圧 40 kV において、30-110 deg. の範囲内を、ステップサイズ 0.002 deg. で評価した。そして、得られた X 線プロファイルから各ピークの Bragg 角ならびに FWHM を評価し、これらの結果は ないし の評価に供した。なお、A-EDC によって変形を付与した試料でも同様に、A-EDC 試験後に試料表面を鏡面に仕上げた後、引張試験片と同様手法によって種々のひずみを付与した試料における X 線プロファイルを得た。

3.5.3 結果と考察

3.5.3.1 単軸引張試験片の微細組織特徴

再結晶化熱処理した純 Zr と Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材の逆極点図(IPF)と透過型電子顕微鏡(TEM) 写真を図 3.5.5 に示す。IPF において、図の長手方向は圧延方向である。これらより、IPF 像より紙面と垂直方向に (0001) 面が多く観察され、当該材料特有の圧延、再結晶化組織を呈していた。なお、純 Zr では、他の Zr-1.8Nb や Zr-2.5Nb に比べ高い結晶配向性を有していることが確認された。一般に、燃料被覆管の製造過程において施されるピルガー圧延では、その圧延率の増加に伴って (0001) の結晶が ND 方向(紙面方向)に配向することが知られている [3.5.10]。これより、純 Zr では他材料に比べ高い冷間圧延率(80%)を施していることから、これが高い結晶配向性に影響していると考えられる。また、切片法によって測定した純 Zr と Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材の結

晶粒径はそれぞれ、3.84、2.99、3.51 μm であり、圧延ないし再結晶化処理条件を制御することで、各々の試料で同様の結晶粒径を有した試験片の作製に成功した。また、TEM 写真解析より、Zr-1.8Nb ならびに Zr-2.5Nb 材において微細な γ -Nb 析出物が確認された。これら析出物の平均サイズ (d_{AVE}) は Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb において、それぞれ、49、55 nm 程度であり、また、数密度 (N_{PPT}) はそれぞれ、 6.9 、 $9.7 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ であり、Nb 添加濃度の増加に伴い γ -Nb 析出物体積 ($V_{PPT} = d_{AVE} \times N_{PPT}$) が増加した。

3.5.3.2 単軸引張試験

図 3.5.6 に純 Zr と Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材の応力-ひずみ (-) 曲線を示し、また、種々の引張特性を表 3.5.2 にまとめて示す。0.2% 耐力 ($\sigma_{0.2}$) ならびに最大引張応力 (σ_{UTS}) は Nb 添加に伴い増加したが、均一伸び (ϵ_{UTS})、破断伸び (ϵ_{rp}) の Nb 添加依存性は確認されなかった。また、図 3.5.5 に示した Nb 析出物の TEM 写真解析より、Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材におけるオロワン型の析出強化量 (σ_{PPT}) は、析出物による転位運動の障害係数 (k) として 0.85 を使用することで [3.5.11]、それぞれ、108、136 MPa と見積もられた。なお、Nb 添加に伴う $\sigma_{0.2}$ の変化 ($\Delta \sigma_{0.2}$) は、それぞれ 99.4、143.8 MPa であり、この変化は、Nb 析出物による強化によって程度良く説明できることが分かった。さらに、真応力-真ひずみ曲線から見積もった、加工硬化指数 (n) は、純 Zr、Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材でそれぞれ、0.31、0.28、0.30 であり、Nb 添加に伴い線形的に増加することを確認した。なお、図 3.5.7 に n の Nb 析出物の数密度 (N_{PPT}) とサイズ (d_{AVE}) の積の平方根 ($\sqrt{N_{PPT}d_{AVE}}$) で整理した結果を示す。ここで、 $\sqrt{N_{PPT}d_{AVE}}$ はオロワン型の析出物強化の式におけるパラメタであり、すなわち、析出物による転位運動の障害影響を表している。これらより、測定点が過少であるため、系統的变化の評価は困難であるが、析出物による転位運動の障害影響の増加に伴い n が増加することが分かった。さらに、これらの 2 点から、直線近似した際の直線の傾き、 γ 切片はそれぞれ、 8.4×10^{-4} 、1.553 と見積もられた。ここで、純 Zr における n は 0.155 であり、この近似直線が当該材料の n を程度よく説明出来る見通しを得た。なお、この直線の傾きと組織学的関係については、不明確であり、今後の研究課題である。

3.5.3.3 単軸引張試験下における微細組織発達

3.5.3.3.1 結晶粒径、結晶配向性

このように、Nb 添加に伴う機械特性変化が明らかとなった。これまでに、本研究グループでは、Zr-1.8Nb 合金に対して高エネルギーイオン照射した試料の室温における σ - ϵ 曲線結果より、照射量の増加に伴い種々の引張強度特性が増加し、一方で、伸び特性が減少することを明らかにした [3.5.2]。また、3.0 dpa 以上では、弾性域の線形加工後に急な軟化を示す、いわゆる転位チャネリングによって、材料が破壊することを確認した [3.5.12-3.5.13]。これは、照射に伴って材料中に多くの照射欠陥が蓄積するが、これらの照射欠陥は材料中において分散強化型の因子として作用し、強度特性の向上に作用する。しかし、あるしきい応力以上に達すると、転位が照射欠陥をクライム運動ないしせん断変形するようになり、これらのすべり運動が一斉に生じ、急激な応力低下を生じさせていると説明される [3.5.14]。さらに、オロワン型の微細析出物分散強化やホールペッチの関係に代表されるような強度と組織の関係については、これまでに多くの研究報

告が存在しているが、加工硬化域における種々の特性 (n や加工硬化率 () 等) と組織との関係は十分に明らかになっていないのが現状である。これらより、照射材で確認された転位チャネリング現象については、その発生機構を定性的には説明できるが、その定量関係については分かっていない。また、上述のように、当該材料は集合組織を有しており、変形中に活動する転位は、変形方向に強く依存する。そのため、転位チャネリングは種々のすべり系と転位運動阻害因子との作用頻度にも依存する可能性が考えられる。これらより、本研究では、照射材で確認された転位チャネリング現象を微細組織変化と相関づけて明らかにするため、非照射材を用いた引張変形中のすべり系の同定、ならびに転位密度変化を評価した。

図 3.5.8 に Zr-2.5Nb 材の引張変形中断材の外観写真と、それらの σ - ϵ 曲線をまとめて示す。本研究ではひずみ制御によって種々の中断材を作製しており、公称ひずみが 0 から 16 % まで変化させた (公称ひずみ 16 % は σ_{UTS} に相当する)。図 3.5.9 に Zr-2.5Nb 材の中断材の IPF 像を示す。なお、引張変形量は各図の左肩部に記しており、図の長手方向は引張方向と一致する。引張変形を付与することで、結晶粒内で面指数の連続的な変化が確認された。これは、転位がすることで、結晶の階位が生じるためである。また、図 3.5.10 に (a) 結晶粒径変化ないし結晶配向性のひずみ依存性を示した。結晶粒径は切片法によって評価した結果であるが、粒径は変形量に依存せず 3.7 μm であった。一般に、金属に変形を付与することで転位が活動するのだが、これらは、次第に絡まり合い、セル状組織へと変化する [3.5.15]。このセル状組織の界面は転位の集積によって小傾角の粒界を形成するため、結晶粒界像から同定されると考えられるが、本結果では確認されなかった。この詳細に関しては不明であるが、EBSD によるセル組織の評価では、分析間隔にも強く依存することから、更なる EBSD 解析ないし TEM 観察を通し、評価を進める予定である。また、(b) に示した Keams parameter は結晶配向性を示す指標であり、(0001) が紙面と X 方向 (TD)、Y 方向 (RD)、垂直方向 (ND) にどのように分布しているかを表現することが出来る [3.5.16]。これより、結晶配向性についてもひずみ依存性は確認されないことが分かった。

3.5.3.3.2 EBSD

図 3.5.11 に Zr-2.5Nb 材の中断材の (a-f) Kernel Average Misorientation (KAM) 図と (g) その分布のひずみ依存性の結果を示す。KAM は分析間隔の隣り合うピクセルとの結晶方位差を定量的に示した結果であり、本研究では、これを赤色のカラースケールで示した (KAM のスケールバーは 0-3 deg. であり、これらは図の下に示した)。これらより、KAM 値はひずみ付与に伴い増加したが、その蓄積挙動は組織全体に渡って均一に増加する傾向にあった。また、未変形材の KAM 分布は高角側にテールを有したユニモーダル分布を有しており、これに変形を付与することで、ピーク位置が高角側に移動し、また、FWHM が増加することが分かった。KAM 分布と微細組織との相関に関しては完全に理解されていないものの、本研究では、KAM のピーク値およびその半値幅 (FWHM) を指標とし、そのひずみ依存性を評価した。その結果を図 3.5.12 に示す。プロットがピーク位置であり、エラーバーは FWHM を示している。どちらの試料においても KAM のピーク値はひずみ付与に伴い増加したが、0.8 deg. 程度で飽和する傾向にあった。また、KAM のピーク値の増加傾向は、Zr-1.8Nb 材では、ひずみ付与に伴い緩やかに増加したのに対し、Zr-2.5Nb 材ではひずみが 0-3% の間で急激な増加を示した後、飽和することが分かった。

既往研究結果に依れば、EBSD で求められる幾何学的に必要な転位密度 (ρ_{EBSD}) は KAM のピーク値 (θ_{KAM}) と分析間隔 ($D = 150 \text{ nm}$) ならびに b を用いて、以下の関係式によって説明できる [3.5.17]。

$$\rho_{EBSD} = \frac{\alpha \theta_{KAM}}{Dd}$$

ここで、 α は定数である。一般に、 α は結晶構造や転位種 (刃状とらせん転位) に依存することが知られている。例えば、bcc で刃状転位であれば、 $\alpha = 1$ あり、また、らせん転位では $\alpha = 2$ が用いられる [3.5.18]。hcp における α 定数については分かっていないものの、本研究では 0.81 を使用した。これらより、EBSD 解析によって得られた転位密度 (ρ_{EBSD}) のひずみ依存性を図 3.5.13 に示す。Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材の熱処理ままにおける ρ_{EBSD} は、それぞれ、 1.22 、 $1.23 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ であったが、ひずみ付加に伴い増加した。また、両試料とも、 $\approx 2.0 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ で飽和する傾向を示した。

3.5.3.3.2 XRD

図 3.5.14 に Zr-1.8Nb における各引張試験中断材の X 線プロファイルを示す。当該材料中では、Zr(002)、(101)、(102)、(103)、(004)、(104)、(114)、(105) の面から回折が確認された、これらのピークを利用し、Williamson-Hall 法による内部ひずみ評価を行った。なお、図 3.5.15 には、Zr-1.8Nb における Zr(002) 回折ピーク形状のひずみ依存性を示した。熱処理まま材 ($\epsilon = 0$) におけるピーク形状は、低角側にややテールを有した形状であり、ここにひずみを付与することで、高角側にテールを有した形状へと変化することが分かった。ここで、ピーク形状の広がり基準となる面間隔からの差分を示すパラメタであり、また、高角と低角側での広がり、それぞれ結晶格子の圧縮と膨張を意味する。つまり、当該材料では、引張変形によるひずみ付与に伴い結晶格子を圧縮するような内部ひずみが増加することが分かった。

図 3.5.16 に Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb における各引張試験中断材の Williamson-Hall プロットを示す。なお、近似直線の Y 切片 (結晶子サイズ) は、EBSD によって評価された結晶粒径と等しくなるように、近似式を調整した。これらより、両試料ともひずみ付与に伴い近似曲線の傾きが増加することが分かった。また、図 3.5.17 には Williamson-Hall 法から求められた各引張試験中断材における近似直線の傾きを示した。また、Zr-1.8Nb では、近似直線の傾きはひずみ付与に伴い線形的な増加を示したのに対し、他方、Zr-2.5Nb では、ひずみが 0-0.03 の範囲において直線の傾きに大きな変化は見られなかったが、ひずみが 0.03-0.06 の範囲で急激に増加し、その後、飽和した。これらより、XRD から評価した中断材の転位密度 (ρ_{XRD}) のひずみ依存性を図 3.5.18 に示す。Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材の熱処理まま材における ρ_{XRD} は、それぞれ、 0.96 、 $0.84 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ であり、ひずみ付加に伴い増加した。また、両試料とも、 $\approx 2.2 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ で飽和する傾向にあった。これより、 ρ_{XRD} は ρ_{EBSD} とよい一致を示すことが明らかとなり、また、この結果は転位の蓄積挙動に対して顕著な Nb 添加影響は確認されないことを示唆する結果である。

なお、既往研究結果によれば、Unger らは Zircaloy-2 の単軸引張試験その場 XRD 観察結果から [3.5.19]、15% ひずみを付与した試料の転位密度は $\approx 1.2 \times 10^{16} \text{ m}^{-2}$ と報告しており、本研究と大きな差異が生じていた。これは、供試材の化学組成影響ならびに分析方法の違いが作用していると考えられるが、本研究の実験結果の妥当性検証を目的とした異なる分析方法による再評価は、

今後の研究課題であると考えられる。

3.5.3.4 A-EDC 試験下における微細組織発達

A-EDC 試験片における XRD の測定方法の概略図を図 3.5.19 に示す。図示したように、A-EDC 試験片では Ring (管状試料の輪切りした際の面) と Surface (管状試料の表面) の 2 方向からの XRD 分析を実施し、その時の転位密度の違いを評価した。また、この 2 方向で評価した Zr-2.5Nb における各 A-EDC 試験中断材の Williamson-Hall プロットを図 3.5.20 に示す。本研究では、ひずみが 1、3、8、16% の計 4 種の中断材を作製しており、また、近似曲線の Y 切片は結晶粒径と同一となるように近似式を調整した。Surface を評価した結果 (Surface) では、1% ひずみ材の近似直線の傾きが受入まま材より小さいが、概ね、ひずみ付与の増加に伴い増加する傾向にあった。また、Ring を評価した結果 (Ring) では、ひずみ付与に伴い単調に近似直線の傾きが増加した。これより、Zr-2.5Nb 材における Williamson-Hall 法から求められた各引張試験中断材の近似直線の傾きを図 3.5.21 に示す。Surface では、直線の傾きはひずみ付与に伴い線形的な増加を示したのに対し、Ring では、ひずみが 0-0.03 の範囲内で急激な増加を示し、その後は緩やかに増加する傾向にあった。これらより、同一試験片であるのに関わらず、確認される内部ひずみについては測定方位による違いが確認された。この機構については明確ではないが、ただし、Surface と Ring での内部ひずみの差異は <math><0.1\%</math> であったことから、大部分の要因は測定誤差に由来したものであると推測される。

XRD によって評価した Zr-2.5Nb 材における転位密度 (ρ_{XRD}) のひずみ依存性を図 3.5.22 に示す。なお、プロットは Ring と Surface 方向から評価した際の平均値である。これらより、受入まま材における転位密度 $7.9 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ であり、ひずみ付与に伴い増加した。とりわけ、ひずみが 0-0.03 の範囲内に急激な増加を示し、その後は、緩やかな増加ないし飽和傾向にあった。なお、ひずみが 0.16 における転位密度は $1.7 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ であった。A-EDC 試験では管の周方向への単軸の引張試験であるのに対し、本研究で実施した平板の引張試験では、引張方向が圧延方向と平行となる条件において試験を実施した。これは、管状試料の軸方向への引張試験を模擬したものであるが、引張方向に由来した転位組織の蓄積挙動は、図 3.5.18 ならびに 3.5.22 に示したように、平板単軸引張では、ひずみ付与にともない比較的緩やかに増加したのに対し、A-EDC 試験では、ひずみが 0-0.03 の範囲で急激に増加し、その後は飽和傾向にあることが分かった。これは、図 3.5.3 に示したように、 ρ_{CR} による各すべり系の活性化頻度の解析結果より、単軸引張において活動するすべり系は $\langle a \rangle$ タイプであるが、一方で、A-EDC 試験では、 $\langle a \rangle$ 、 $\langle c \rangle$ 、 $\langle c+a \rangle$ のすべり系の活性化割合は、それぞれ 30 % 程度であった。このため、A-EDC 試験下では多くのすべり系が一斉に活動することで、転位のタングルが生じやすくなり、その結果、低ひずみ範囲において急激な転位密度の増加を生じたと考察される。

3.5.4 まとめ

本章では、Zr-Nb 系合金の機械特性と微細組織を相関つけて理解することを目的とし、冷間圧延と再結晶化処理によって作製した平板状試験片の引張試験、ならびに A-EDC 試験片を実施し、各

試験下で生じる微細組織変化を EBSD や XRD 分析によって評価した。得られた知見は以下の通りである。

- (1) 平板状の単軸引張試験の微細組織観察ならびに引張試験を通し、Nb 添加に伴う $\sigma_{0.2}$ の増加が Nb 析出物の析出強化によって程度良く説明できた。さらに、 n と析出物による転位運動との阻害効果との定量関係を見出した。
- (2) Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材の単軸引張変形中の 評価より、ひずみ付与に伴い は増加したが、これの顕著な Nb 添加影響は生じないことを明らかにした。
- (3) 一方で、Zr-2.5Nb において、A-EDC 試験下における 評価より、引張方向が変化することで転位の蓄積頻度（挙動）が変化し、この機構として、活動するすべり系の種類が作用していることを示唆した。

3.5.5 今後の展望

3.5.5.1 加工硬化域における機械特性と微細組織との相関

図 3.5.7 に示したように、当該材料において加工硬化指数(n)と Nb 析出物による転位運動との阻害影響には正の相関が確認され、これらの相関係数として 8.4×10^{-4} を得た。しかしながら、この持つ材料学的な意味について未だ明確でないことから、更なる文献調査ならびに追加実験を通し、この解明を試みる。

また、図 3.5.13 ならびに 3.5.14 に示したように、単軸引張条件下において、転位密度はひずみ付加に伴い増加したが、Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材における転位の集積ないし蓄積挙動に違いは確認されなかった。一方で、マクロな機械試験結果では、加工硬化指数は Nb 添加に伴い増加した。一般に、加工硬化域における硬化は転位の絡まり合いによる強化（転位強化）によって説明できることから、今後は本研究で得られた転位密度の再評価ないし誤差評価を進めるとともに、Fe 基等の異なる結晶構造の金属における評価を通し、一般化された機構へと発展させる。

3.14.5.2 再結晶集合組織と強度異方性

上述のように、当該材料は圧延と再結晶処理が施され、最終の機械特性ないし微細組織が決まる。このような組織では機械強度の異方性が生じることから、燃料被覆管材料は、材料が曝される環境を十分に考慮し、その特性を評価する必要がある。また、A-EDC 試験では管の周方向への引張試験であるのに対し、本研究の単軸引張試験では、引張方向が圧延方向と平行となる条件において試験を実施した。これは、管状試料の軸方向への引張試験を模擬したもので、対一の比較は未だ達成されていない。そのため、今後は、引張方向が圧延方向と垂直となるような条件での試験を実施し、加工硬化指数や転位組織発達の集合組織影響また、単軸引張と A-EDC 試験下における変形組織の違いを評価する。

参考文献

- [3.5.1] J. Desquines et.al., JNM 412 (2011) 250-267.
- [3.5.2] H. Yang, K. Kano et al., AZW(2015)
- [3.5.3] H. Abe, et al., JNST, 52 (2015) 1232-1239.
- [3.5.4] D. Kunii, S. Kano et al., AZW (2015)
- [3.5.5] G. K. Williamson et.al., Acta Mater., 1 (1953) 22-31.
- [3.5.6] M. Knezevic et.al., Acta Mater., 88(2015)55-73.
- [3.5.7] I.J. Beyerlein et.al, Int. J. Plasticity, 24(2008)867-895.
- [3.5.8] P. A. TURNER et.al., Acta Mater., 42 (1994)4143-4153.
- [3.5.9] T.B. Britton et.al., Proc. R. Soc. A, 471(2015)20140881.
- [3.5.10] 日本機械学会, ジルコニウム合金ハンドブック, 日刊工業新聞社 (1997).
- [3.5.11] Y. Matsukawa, H.L. Yang et.al., Acta Mater., 102 (2016) 323-332.
- [3.5.12] F. Onimus, I. Monnet et.al., JNM 328 (2004) 165-179.
- [3.5.13] T.S. Byun, N. Hashimoto, Nucl.Eng. Tech., 38 (2006) 619-638.
- [3.5.14] K. Frarrel, T.S. Byun, N. Hashimoto, JNM 335 (2004) 471-486.
- [3.5.15] T.S. Bailey, JNM 3 (1962) 300-310.
- [3.5.16] J.J. Keams, JNM 299 (2001)171-174.
- [3.5.17] M. Calcagnotto et.al., Mater. Sci. Eng. A , 527 (2010)2738-2746.
- [3.5.18] M. Calcagnotto, et.al., Sci. Eng. A, 527 (2010) 2738-2746.
- [3.5.19] Unger et.al., Acta Mater., 55(2007)1117-1127.

表 3.5.1 供試材の化学組成 (at.%)

	Zr	Nb	O
Pure Zr	Bal.	-	-
Zr-1.8Nb	Bal.	1.8	0.1
Zr-2.5Nb	Bal.	2.5	0.1

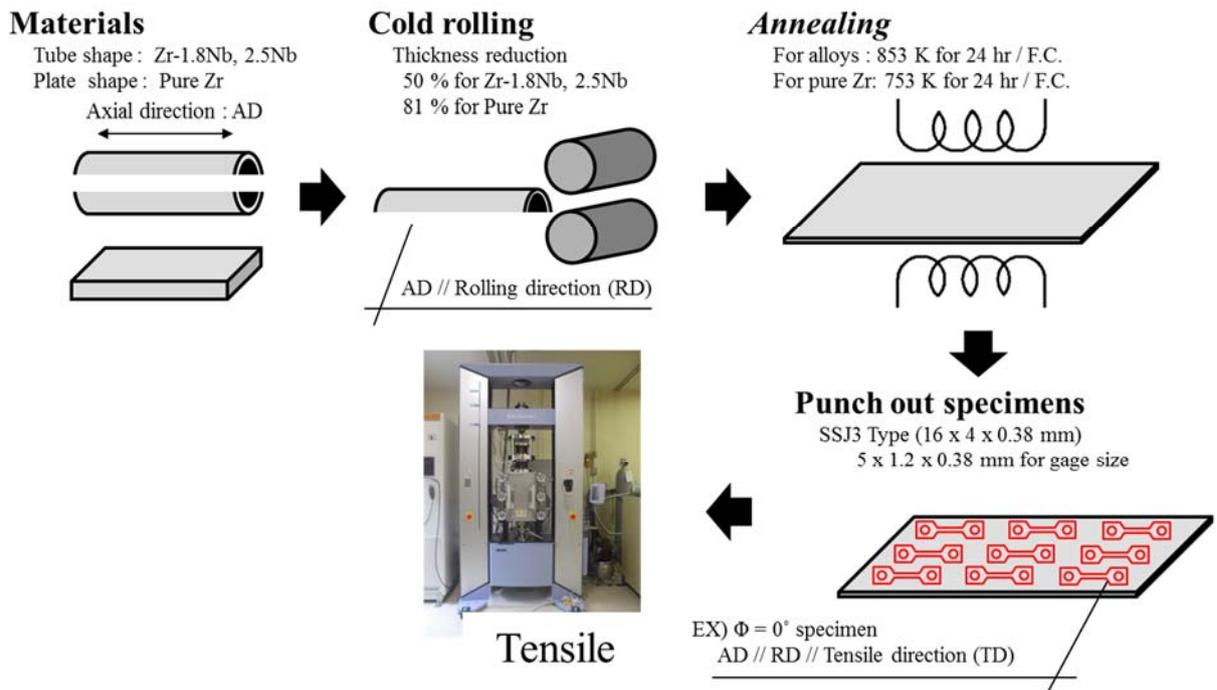


図 3.5.1 平板状引張試験片の作製方法

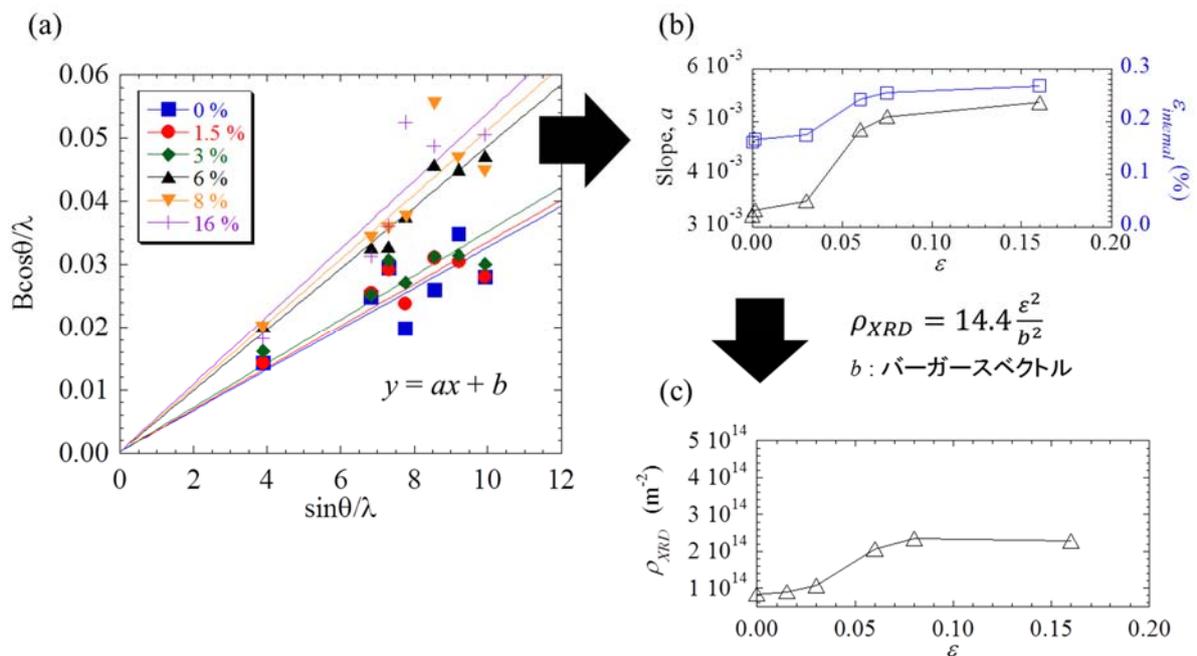


図 3.5.2 Zr-2.5Nb の単軸引張中断材の XRD による転位密度の評価方法. (a) Williamson-Hall プロット. (b) Williamson-Hall プロットから求めた近似直線の傾きと内部ひずみの関係. (c) XRD によって求めた転位密度.

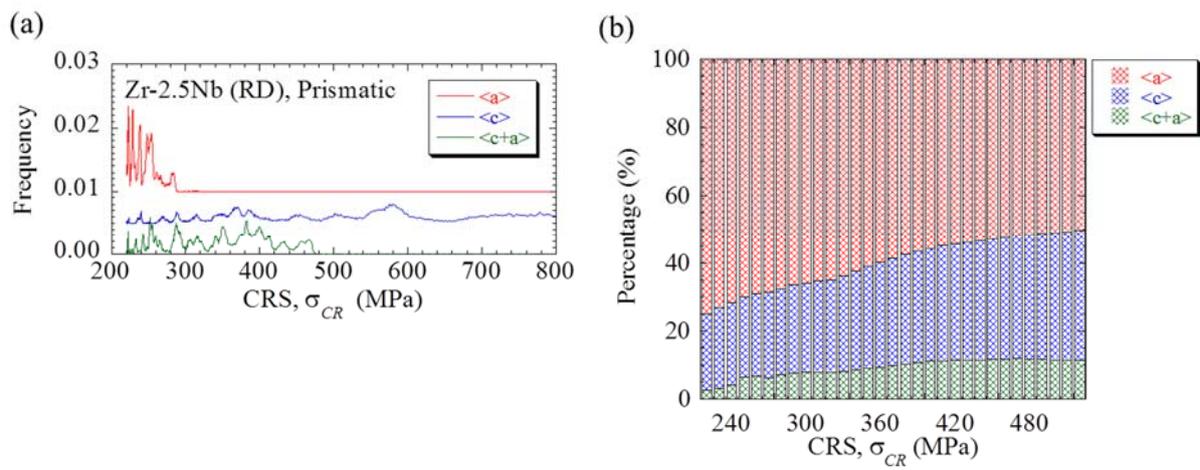


図 3.5.3 Zr-2.5Nb 材の σ_{CR} 解析によって求めた各すべり系の活性化頻度. (a) 各すべり系の活性化頻度分布. (b) 各応力条件下における活性化割合.

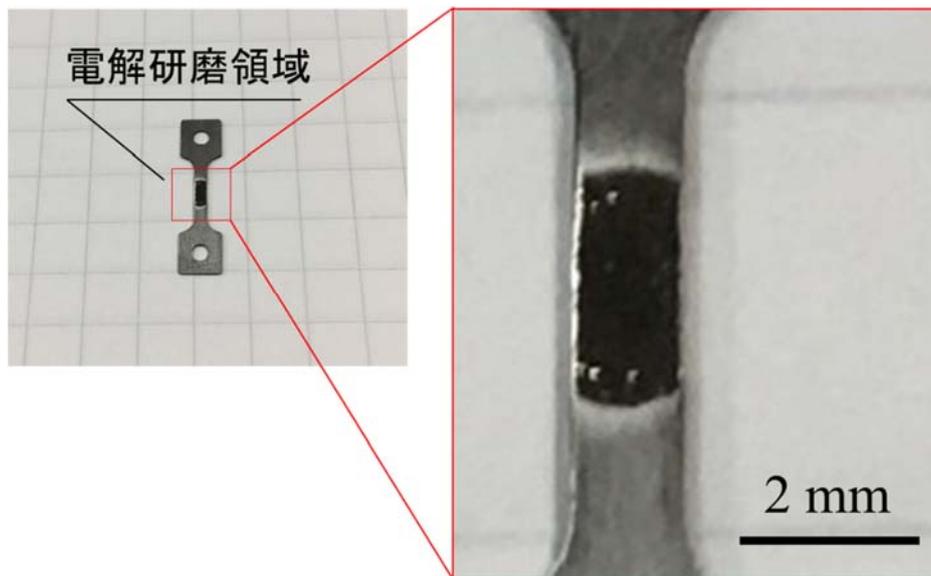
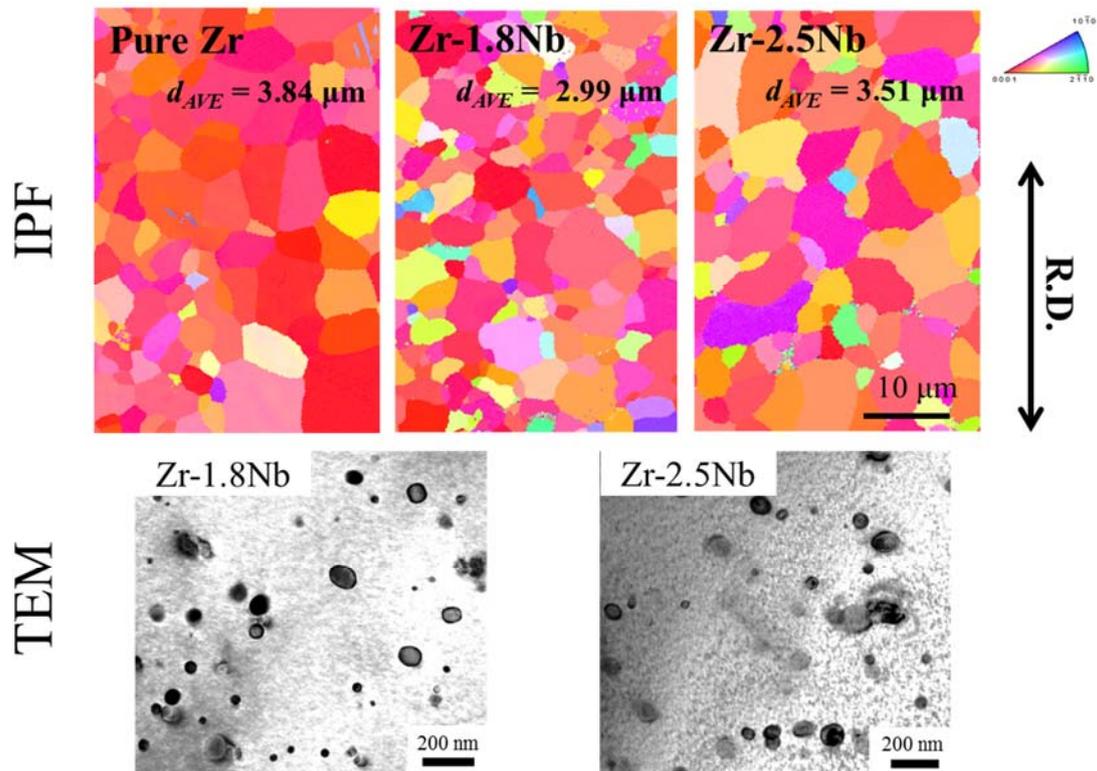


図 3.5.4 中断材の EBSD 観察試料用試料の外観写真



$$d_{AVE} = 49 \text{ nm} / N_{PPT} = 6.9 \times 10^{19} \text{ m}^{-3} \quad d_{AVE} = 55 \text{ nm} / N_{PPT} = 9.7 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$$

図 3.5.5 再結晶化熱処理した純 Zr と Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材の IPF 像と TEM 写真。IPF 像における長手方向は圧延ないし引張方向と平行であり、切片法によって評価した結晶粒径は図の右肩部に示した。また、TEM 像から評価した Nb 析出物 (d_{AVE}) のサイズと数密度 (N_{PPT}) は図下部に示した。

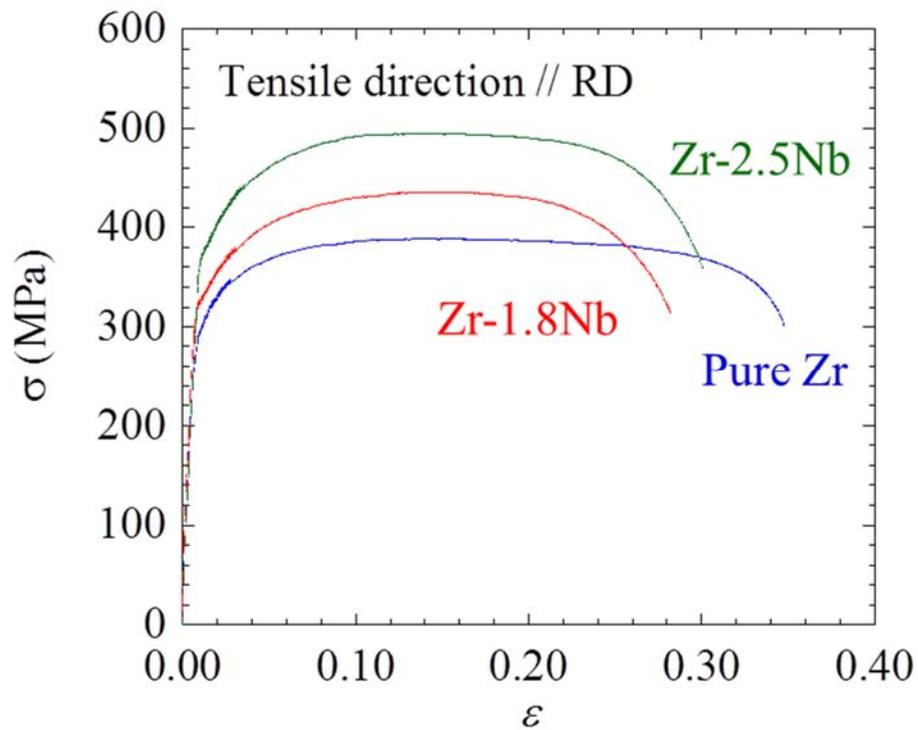


図 3.5.6 純 Zr、Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材の室温下における応力-ひずみ曲線。引張方向は圧延方向と平行となるように試験しており、ひずみ速度は 10^{-3} s^{-1} にて実施した

表 3.5.2 純 Zr、Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb 材の引張特性 ($\sigma_{0.2}$, σ_{UTS} , ϵ_{UTS} , ϵ_{rp})。また、TEM 解析によって得られた Nb 析出物による析出強化量 (σ_{PPT}) も一緒に示した。

	$\sigma_{0.2}$ (MPa)	σ_{UTS} (MPa)	ϵ_{UTS}	ϵ_{rp}	n	σ_{PPT} (MPa)
Pure Zr	227.1	349.6	0.17	0.31	0.155	-
Zr-1.8Nb	336.5	453.0	0.15	0.28	0.169	108
Zr-2.5Nb	370.9	492.6	0.16	0.30	0.173	136

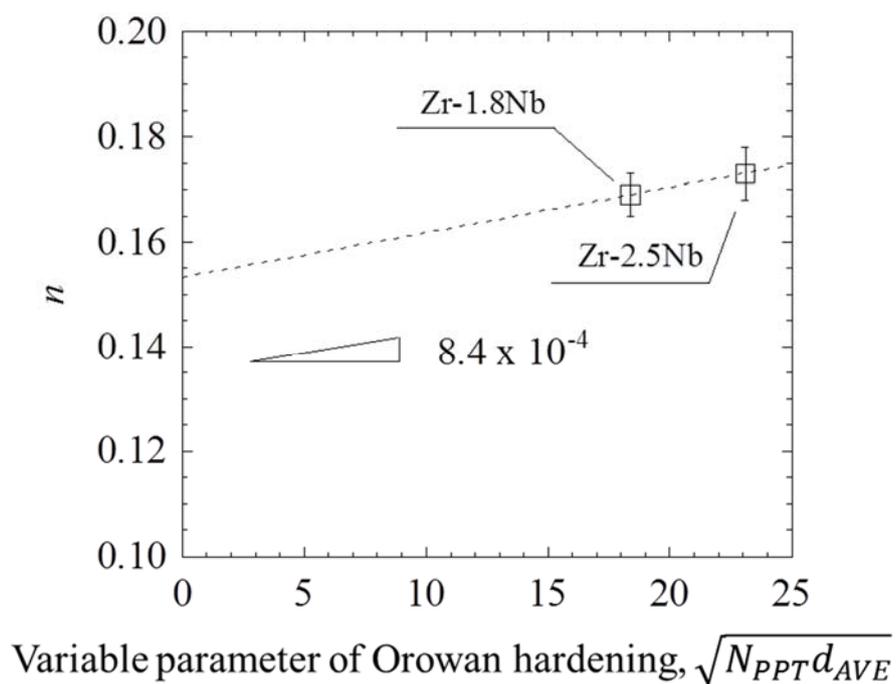


図 3.5.7 n の Nb 析出物による転位運動の阻害影響依存性

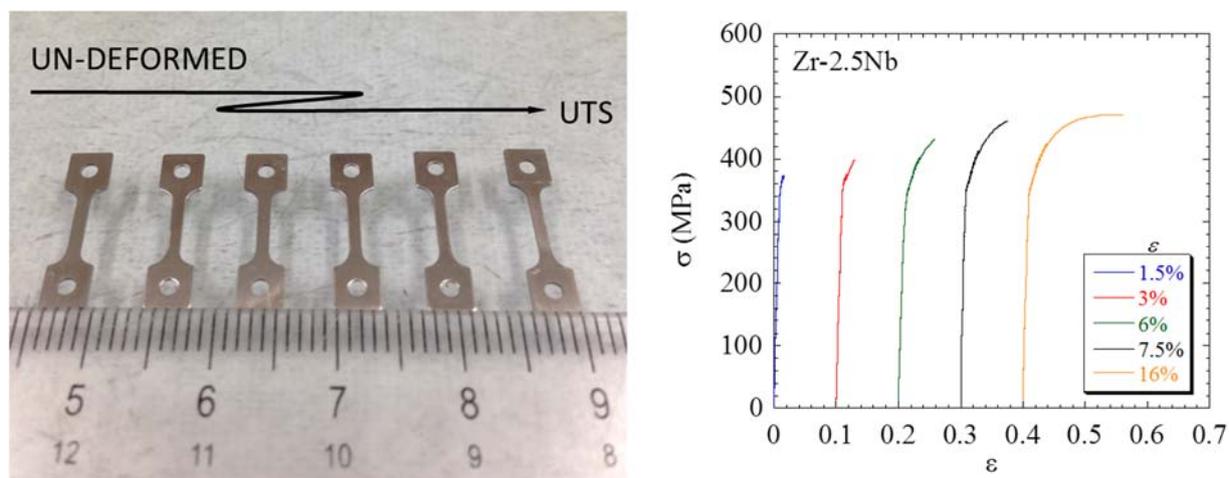


図 3.5.8 Zr-2.5Nb 材の引張変形中断材の外観写真と、その σ - ϵ 曲線

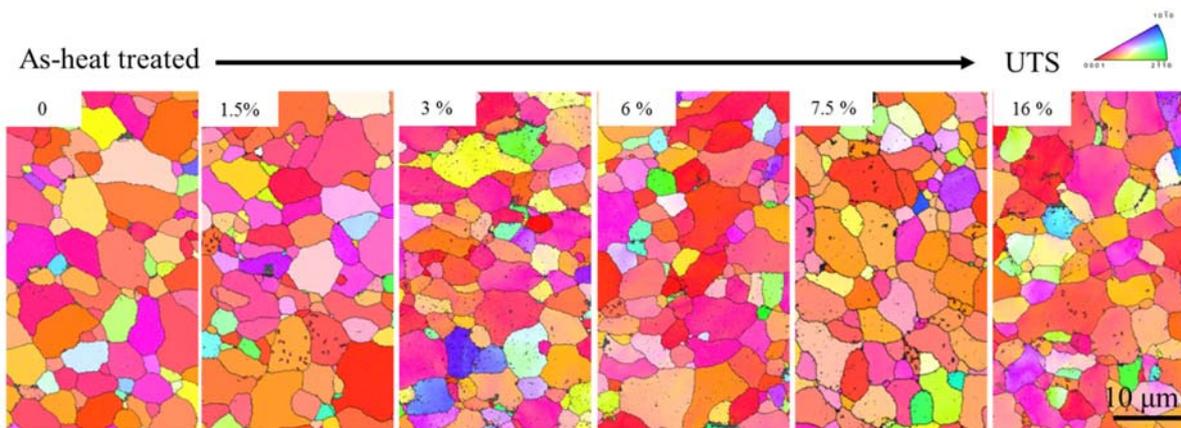


図 3.5.9 Zr-2.5Nb の単軸引張試験中断材の IPF 像．引張変形で付与したひずみは図の左肩部に示した．

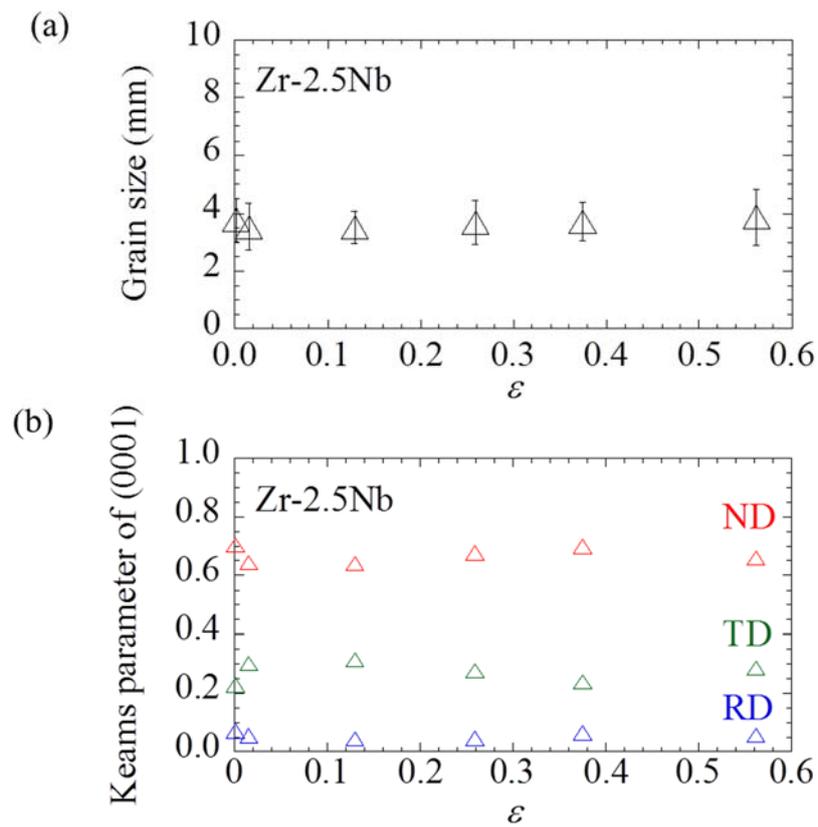


図 3.5.10 Zr-2.5Nb の単軸引張中断材における (a) 結晶粒径と (b) 結晶配向性のひずみ依存性．結晶粒径は切片法によって評価した結果であり、平均値ならびにその標準偏差をプロットした．

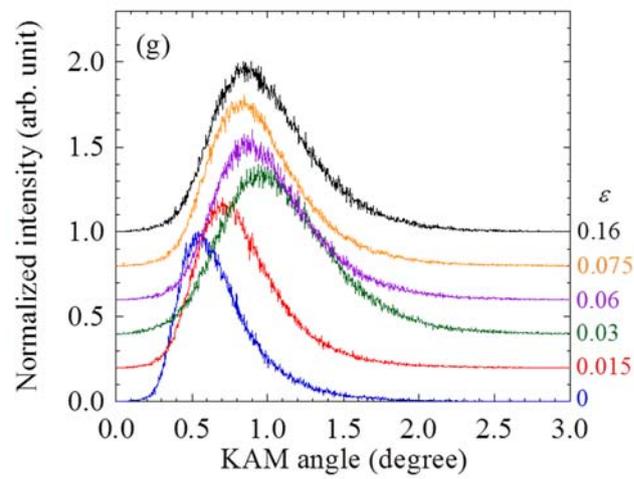
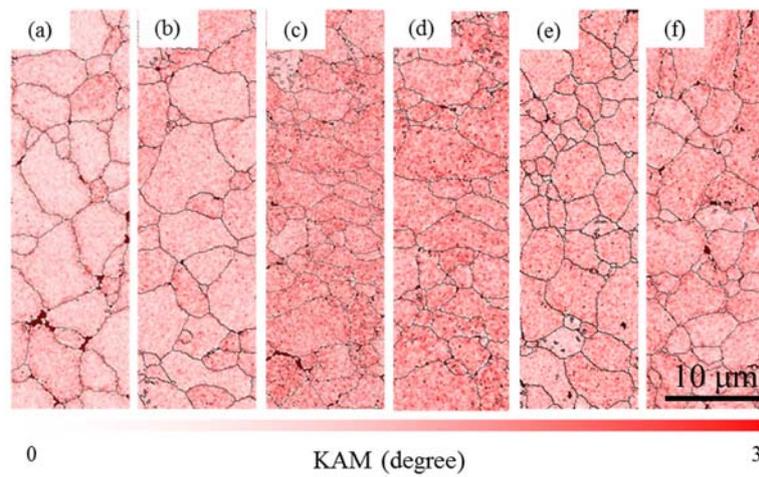


図 3.5.11 Zr-2.5Nb 引張試験中断材の(a) 熱処理まま材、(b) $\epsilon = 1.5\%$ 、(c) $\epsilon = 3\%$ 、(d) $\epsilon = 6\%$ 、(e) $\epsilon = 7.5\%$ 、(f) $\epsilon = 16\%$ 材の KAM 像と、(g) その分布. KAM 値のスケールは 0-3 deg. であり、赤色のカラースケールで示した.

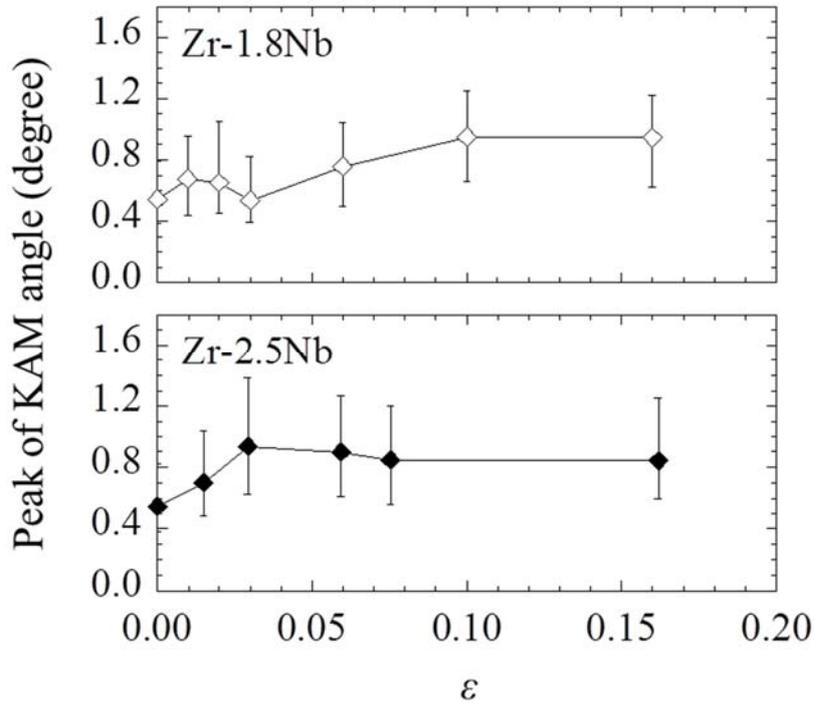


図 3.5.12 Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材の KAM のピーク値のひずみ依存性. エラーバーは KAM 値分布の FWHM を示す.

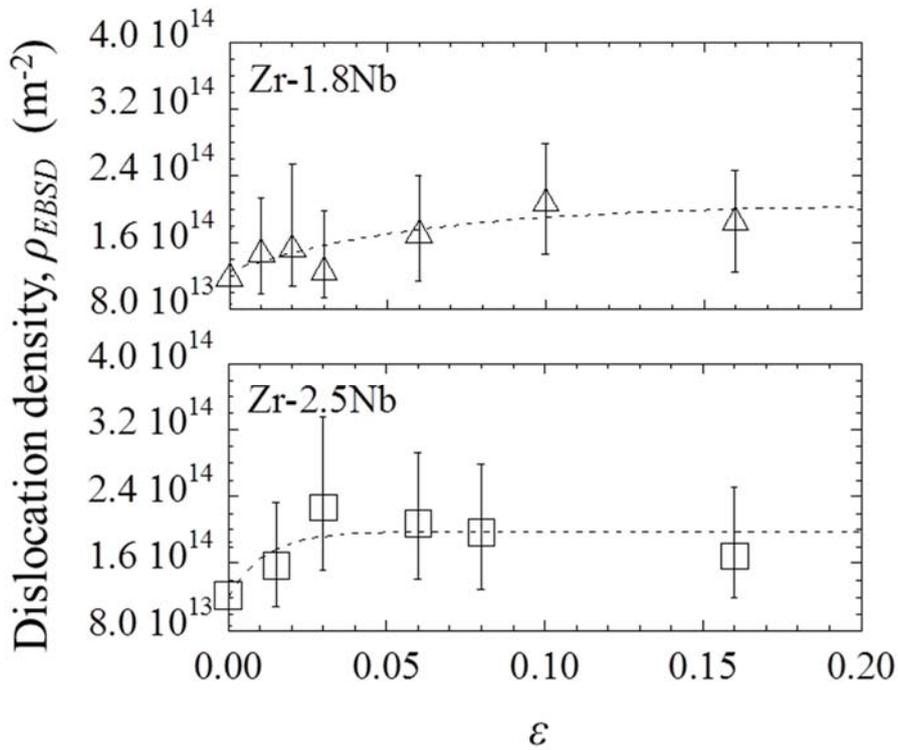


図 3.5.13 Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材の EBSD の KAM 値から評価した転位密度(ρ_{EBSD})のひずみ依存性

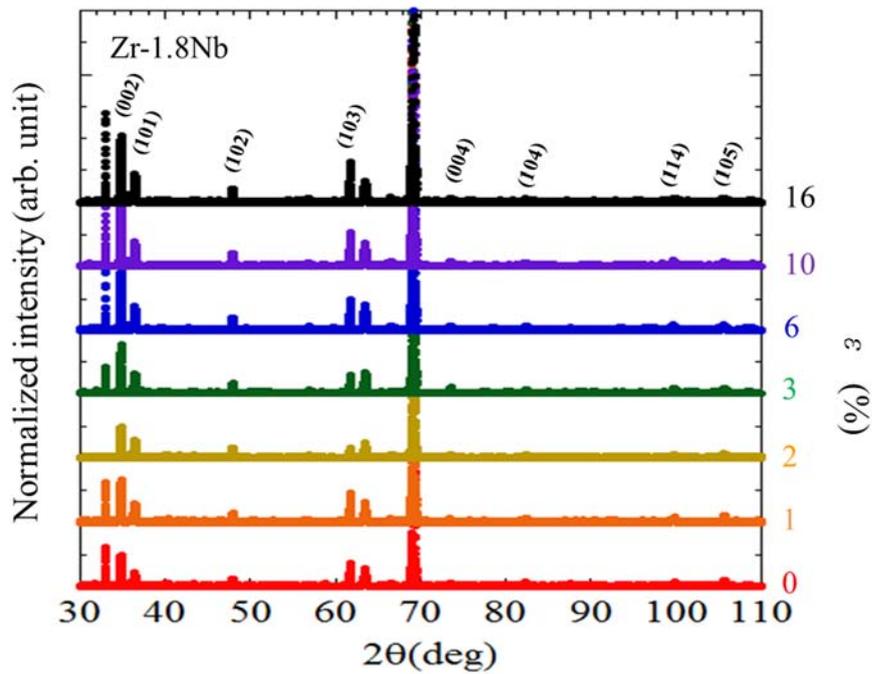


図 3.5.14 Zr-1.8Nb における各引張試験中断材の X 線プロファイル. 各ピークの反射面の指数も図示した. なお、70 deg. 近傍にあるピークは Si (110) 結晶からの回折であり、このピークを利用して反射角（ブラック角）の補正を行った.

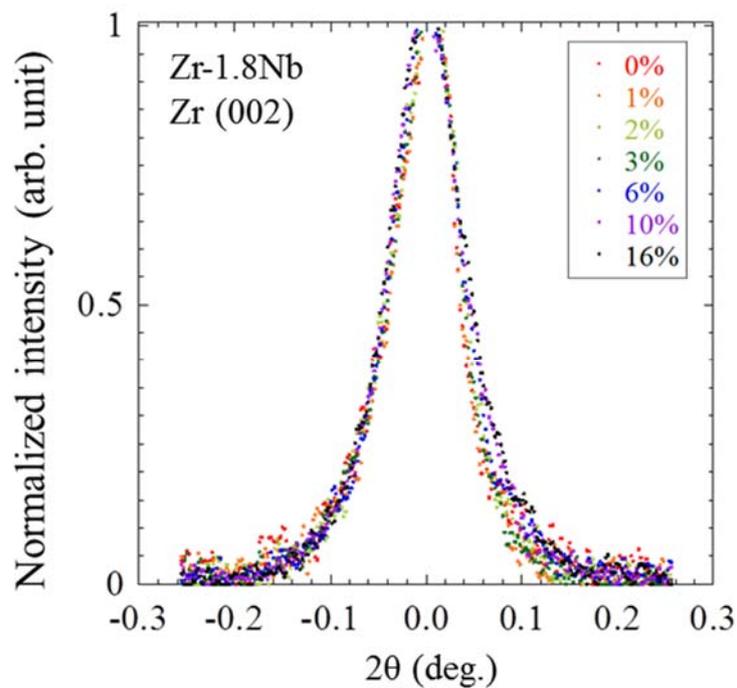


図 3.5.15 Zr-1.8Nb 引張試験中断材の Zr(002) ピーク. ピーク形状の広がり进行评估するため、規格化したピーク位置とした.

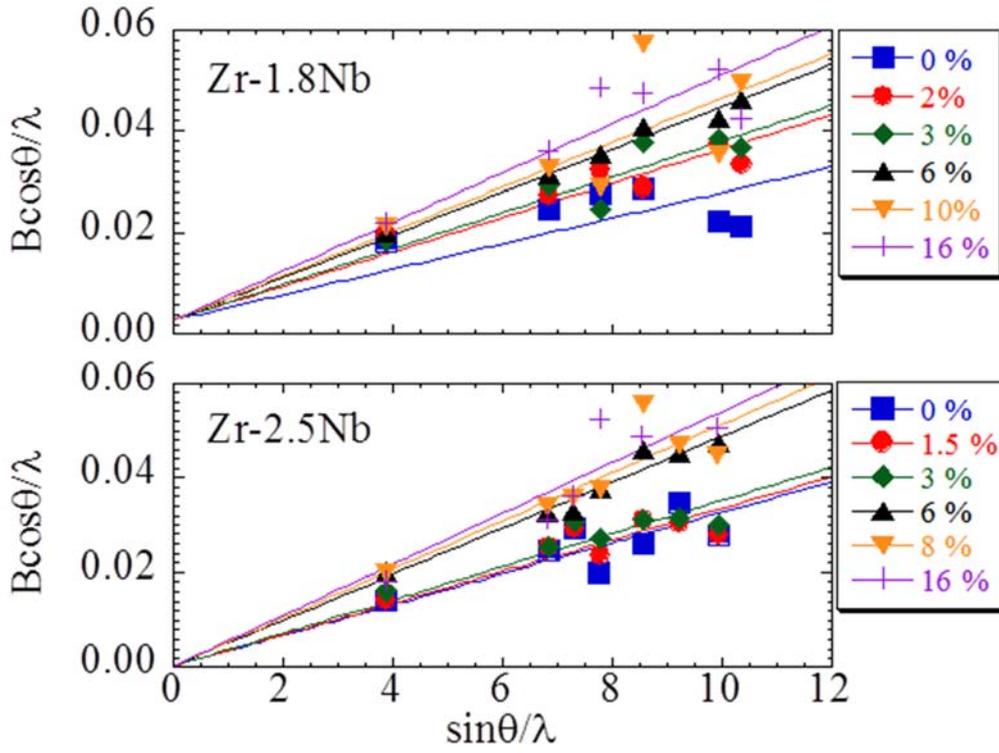


図 3.5.16 Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb における各引張試験中断材の Williamson-Hall プロット

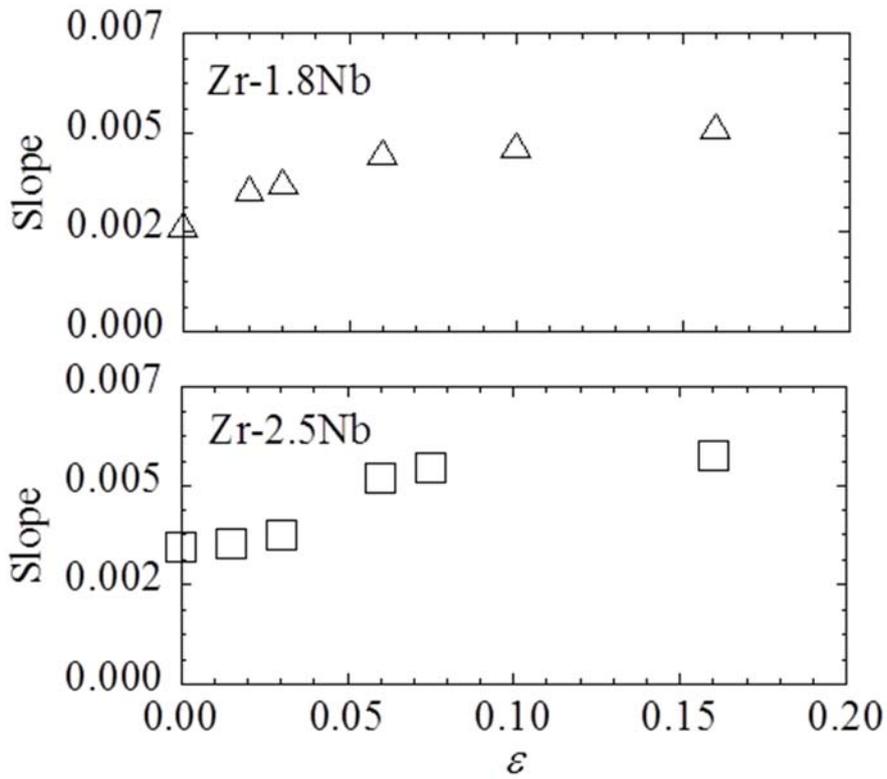


図 3.5.17 Williamson-Hall 法から求められた各引張試験中断材における近似直線の傾き

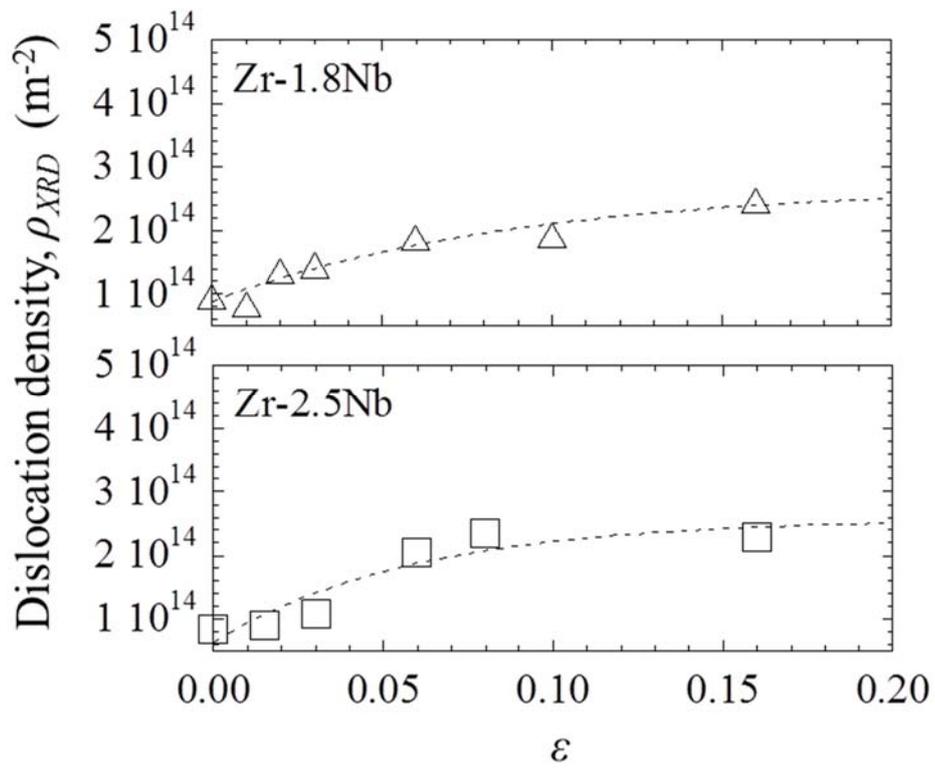


図 3.5.18 Zr-1.8Nb と Zr-2.5Nb 材における XRD によって評価した転位密度 (ρ_{XRD}) のひずみ依存性

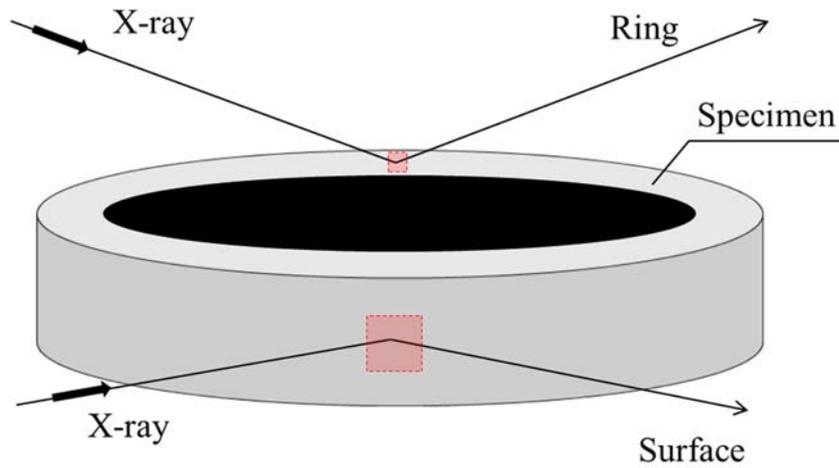


図 3.5.19 A-EDC 試験片における XRD の測定方法の概略図

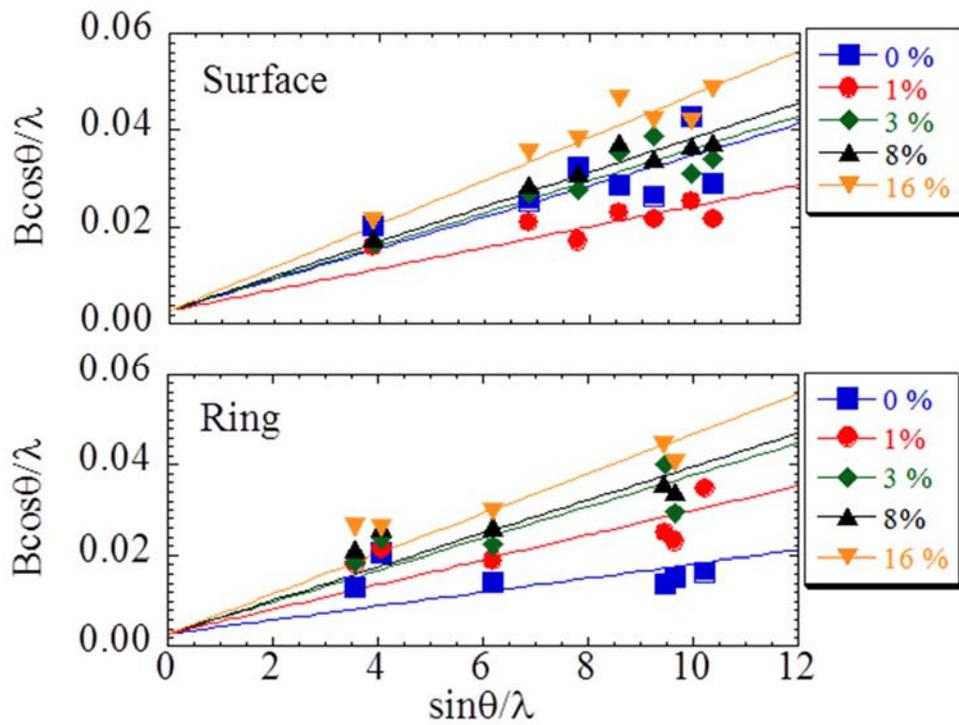


図 3.5.20 Zr-2.5Nb の A-EDC 試験中断材の Williamson-Hall プロット

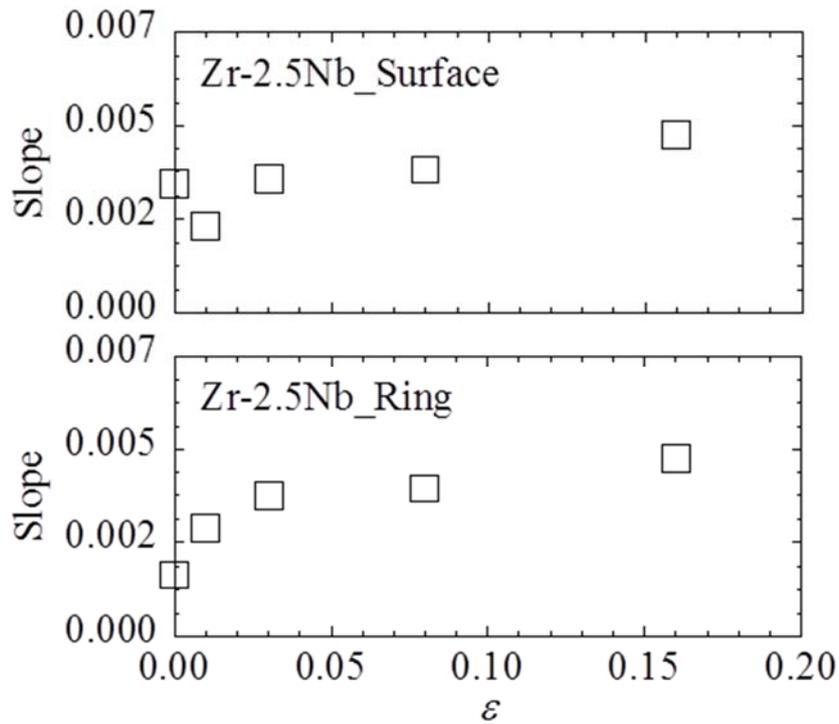


図 3.5.21 Williamson-Hall 法から求められた Zr-2.5Nb の A-EDC 試験中断材における近似直線の傾き

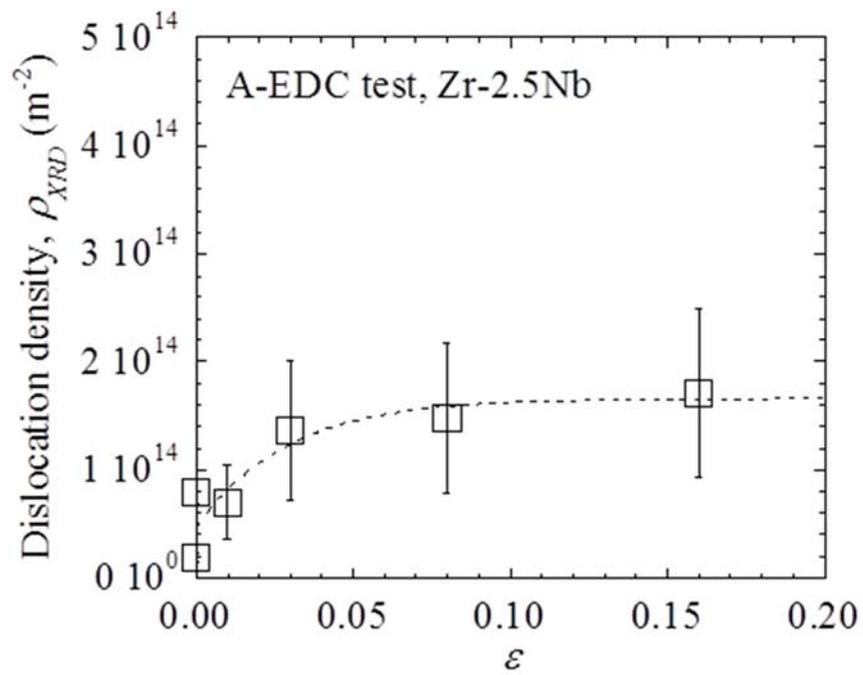


図 3.5.22 XRD によって評価した Zr-2.5Nb の A-EDC 試験中断材における転位密度 (ρ_{XRD}) のひずみ依存性. プロットは Ring と Surface 方向から評価結果の平均値を示しており、また、エラーバーは最大と最小値を示した.

3.6 高温クリープ試験 1

3.6.1 背景と目的

酸化物分散強化(ODS)鋼は、高速増殖炉燃料被覆管材料の候補材として、また核融合炉実証炉の第一壁ブランケット材料として低放射化フェライトマルテンサイト(RAFM)鋼の代替候補材料として有望視されている。その理由としては、当該鋼が高温材料として実績のある Fe-Cr 鋼母相に nm サイズの酸化物微粒子を分散させ、より優れた高温強度、高温クリープ強度を達成することに成功したことにある[3.6.1-3.6.3]。それゆえ、これまでに我々の研究グループの成果を含め、当該鋼のクリープ試験研究が多数なされてきた[3.6.4-3.6.8]。そして 800 程度での優れた耐クリープ変形特性[3.6.5]や耐照射性[3.6.9]などが明らかになってきている。しかしながら ODS 鋼のクリープ変形機構や微細組織との関係は十分には理解が進んでいない。

本研究事業では、高速増殖炉や核融合炉環境条件における ODS 鋼のクリープ変形機構図を取得するために温度 500 から 700 、応力 120 ~ 560 MPa の領域でのクリープ試験を行ってきた。最終年度の本年度報告として、鉄のクリープ変形機構図を参照して作成した ODS 鋼のクリープ変形機構図を図 3.6.1 に示す。鉄ではべき乗則に従う領域(オレンジ色のハッチング個所を含む領域)と比較して、酸化物微粒子分散によりべき乗則域が大きく高応力側に移行していることが分かった。このことは ODS 鋼の高温材料としての実用化により現実味があることを示唆している。しかし、金属材料にとってはもう一つの重要なクリープ変形機構である拡散クリープについては、実験条件の範囲内では観察することができなかった。今後の試験域の拡張が強く望まれる。

一方、中性子照射環境下における懸念事項の一つに He 効果がある。これは Ni や Fe 等の元素の(n,)反応などの核変換によって生成された He が空孔やバブルに捕獲されバブルを形成することを原因とした脆化効果である[3.6.10]。この現象は高温 He 脆性(HTHE)と呼ばれ Ni 基合金やオーステナイト系ステンレス鋼においてクリープ寿命の大幅な減少の報告[3.6.11]があることから重要である。また He 注入による ODS 鋼のスウェリングと脆化の報告もあり、クリープ特性への影響が懸念される。

上記の背景を踏まえ本節においては、これまでの試験を継続し、また一方で、比較的応力条件での試験を実施し変形機構図を拡張するとともに、拡散クリープ域の検出を狙う。また、He 注入材のクリープ試験を実施する。

3.6.2 実験方法

3.6.2.1 材料

当節では 12Cr-ODS-IMR 鋼を対象とした。組成等の詳細情報は 3.2 節を参考のこと。

当該鋼からクリーブ試験片を切り出した。試料形状は小型試験片 SSJ タイプとし、そのサイズは L16 mm (L:長さ) × W4 mm (W:幅) × T0.25-0.3 mm (T:厚さ)であり、ゲージ部のサイズは L5 mm (L) × W1.2 mm (W) × T0.25-0.3 mm (T)である。ODS 鋼はその組織の異方性に強い特徴があることからその設定は重要であり、本研究では元のバルク材の長手方向 (TD) が引張軸になるように設定した。試料の形状を図 3.6.2 に示す。試料表面は耐水研磨紙を用いて #800、#1200、#2000 の順に研磨し、その後アルミナ粉末 (粒径 3 μm および 1 μm)、コロイダルシリカを用いて鏡面仕上げした。

3.6.2.2 クリーブ試験

使用したクリーブ試験機は島津製作所 M-100 試験機 (図 3.6.3) である。本試験機は微小試験片を用いた試験用に設計されている。すべての試験は真空度 10^{-5} Pa 以下で実施した。試料は非照射試料と He 注入試料の二種類である。He 注入材は本事業の別タスクから供せられた。東北大学のサイクロトロン加速器を用い、50 MeV He²⁺イオンを 300 にて照射し、試料手前のデグレータによりイオンのエネルギーを減じ、試料中に均等に He を注入した。詳細は 3.12 節に記述されている。

3.6.2.3 微細組織観察

試料の観察は EBSD、EPMA、TEM を用いて行った。EBSD と EPMA については前述の表面処理を行った試料に対し、FE-SEM に付設の機器を使用して分析した。このとき入射電子の加速電圧は 15kV とした。TEM 観察は日本電子 JEM-2100 を用い、加速電圧は 200kV とした。TEM 試料作製の最終電解研磨条件は、過塩素酸 5% + メタノール 95% 溶液、液温 -20 とした。クリーブ破断した試料の破面観察には W 電子銃を有する conventional な SEM を用いた。

3.6.3 結果

3.6.3.1 微細組織分析

無垢材の EBSD 分析結果の一例として逆極点図 (IPF map) および kernel average misorientation (KAM) map を図 3.6.4 に示す。前者からは結晶粒の形態とその結晶学的方位が分かる。組織観察結果から二種類の結晶粒の存在が分かった。一つは残留歪が大きく粒径 1 μm 程度以下の微細結晶粒であり、もう一つは結晶粒径が 10 μm 強の粗大粒である。平均粒径は約 $5 \pm 1 \mu\text{m}$ 程度であった。全ての結晶粒は材料の圧延方向 (TD) に伸長していた。TD 方向は ODS 鋼の熱間押出加工方向と一致する。IPF マップでは圧延集合組織の結晶学的情報を取得可能である。良く知られているように被覆管集合組

織は試料表面に対して結晶の[001]と[111]が傾斜して分布している。図 3.6.4(b)に示す KAM マップでは材料内部の歪の多寡が示されている。図に示されるように ODS 鋼は加工に伴う蓄積エネルギーの大きな材料であり、高転位密度であることが示唆される。また KAM マップは場所により濃淡の差が大きく、歪の蓄積が不均一であることも分かった。

ODS 鋼では酸化物微粒子の析出挙動が重要である。図 3.6.5 は 12Cr-ODS-IMR 鋼を SEM と EPMA により観察、分析した表面組織を示す。(a)から粗大化した析出物が高コントラスト物体として観察されるとともに、それらが並んで分布していることが分かった。粒径分布は大体 100nm から 500nm 超であり、その平均サイズは $273 \pm 48\text{nm}$ であった。以降、粗大化析出物と呼ぶ。(b)から(d)に示す Ti、C および O の元素マッピングから、粗大化析出物ではこれらの元素が濃化しており $\text{TiC}_x\text{O}_{1-x}$ 化合物であると考えられる。過去の研究事例からも同じ析出物が X 線回折により同定されている[3.6.8]。

図 3.6.6(a)は TEM 低倍像であり、結晶粒によって転位密度が大きく異なる様相が観察された。これは当該 ODS 鋼では焼鈍状態が不十分であることを示している。また結晶粒は特定の方向に伸長していた。EBSD 観察からも同様のことが言える。図 3.6.6(b)は酸化物微粒子と転位が相互作用した組織を示す。転位は粒子に強くピン止めされており、運動が阻害されている。このような分散した酸化物微粒子による転位のトラップが当該 ODS 鋼の強度の一因であり、また $1323\text{K} \times 1$ 時間の焼鈍によっても再結晶化が進まないことの原因であると考えられる。(c)からおおよそ 1000 個程度の酸化物微粒子について測定し、12Cr-ODS-IMR 鋼中の酸化物微粒子のサイズは $2\text{nm} \sim 10\text{nm}$ と評価した。また、その平均サイズは $3.7 \pm 1\text{nm}$ であり、その密度は $8.5 \pm 2.0 \times 10^{22}/\text{m}^3$ であった。高分解能電子顕微鏡観察[3.6.8]から、当該鋼中の酸化物微粒子は Y_2TiO_5 相と同定され、本研究でも確認された。またこれ以外にも $\text{Y}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ [3.6.12, 3.6.13]や YTiO_3 [3.6.14]の報告がある。

3.6.3.2 クリープ試験結果(受入まま材)

図 3.6.7 に 973K におけるクリープ試験結果の例としてひずみ-時間曲線を示す。図 3.6.8 は、各試験結果をクリープ破断時間の応力依存性として示している。ここで、120MPa 試験は破断に至る前に試験を終了している。ODF 鋼の典型的なクリープ変形破断挙動は以下の通りにまとめられる。クリープ変形初期(一般に遷移クリープまたは一次クリープと呼ばれる)にはひずみの急激な上昇がみられた。定常クリープ(二次クリープ)域ではクリープ変形が比較的非常にゆっくりと進行し、そのひずみ速度はほぼコンスタントであった。そして、加速クリープ(三次クリープ)域では、一般的

にはひずみ速度の急激な上昇がみられるが、ODS 鋼ではそれがほぼ観察されず破断に至った。負荷応力の低下に伴いクリーブ破断寿命は有意に伸長した。例えば応力 200MPa では寿命が 2h であったのに対して、90MPa では 1000h 以上に上昇した。加えて、クリーブ破断ひずみは全ての条件において小さく、約 2% であった。これは引張試験の結果と整合しており、当該鋼の最終加工工程における残留歪が完全には除去しきれていないことに起因するものと考えられる。

定常クリーブ速度はクリーブ変形のメカニズムに密接に関連する。本試験結果を図 3.6.9 にまとめた。ここで横軸はヤング率(E)で規格化した負荷応力()を示す。尚、E は下式(3.6.1)[3.6.15]により求めた。

$$E = 225.4 - 0.1380T + 5.701 \times 10^{-4} T^2 - 1.245 \times 10^{-6} T^3 + 6.954 \times 10^{-10} T^4 \quad (3.6.1)$$

ここで T は絶対温度である。この結果 673、773、873、973K におけるヤング率はそれぞれ 199、187、169、148GPa と評価された。定常クリーブ速度はべき乗則(Norton creep 則) [3.6.16]に従う。

$$\dot{\epsilon}_{min} = A \sigma^n \quad (3.6.2)$$

ここで、 $\dot{\epsilon}_{min}$ は定常クリーブ速度であり、実験データである。A は定数、n はべき乗指数でありクリーブ変形機構に関連する。式(3.6.2)に基づき n 値を図 3.6.9 から求めた。負荷応力が 120MPa よりも高い領域では n 値は約 15 であった。これは転位クリーブが支配的な機構として働いていることを示唆する。ODS 鋼の n 値は、他の一般的な高温材料(典型的に $n=3 \sim 5$ 程度)よりも高いのが特徴である。一方で、120MPa よりも低い負荷応力域では n 値は約 1 であった。これは、この領域では拡散クリーブ機構が働くことを示唆している。つまり、973K においては 100 ~ 120MPa を境にクリーブ変形機構が変化していることがわかった。

図 3.6.10 および 3.6.11 に、973 K にて応力 90MPa および 180MPa にてクリーブ破断した試料の SEM 像を示す。図 3.6.10 は破面であり、両者の様相に大きな差異があることが分かった。180MPa 試験片は粗い様相の破面を示し、貫粒型破壊モードであることが示唆された。一方、90MPa 試験片破面は比較的滑らかな様相であった。両者とも粗粒において優先的に破壊が進行しており、180MPa 試験片で顕著であった。また両試料ともにディンプル破面が観察されており、ODS 鋼の破壊は延性破壊と脆性破壊が混合したものであることが確認された。

図 3.6.11 に破面近傍の表面形態を示す。延性破壊の特徴であるネッキングはほぼ観察されず、破面は応力負荷方向にほぼ垂直であった。このような変形と破壊の結果として定常クリーブ速度が低く、かつ加速クリーブ域がほとんど無いクリーブ曲線が得られたと考えられる。また微細なクラックが多数生成されており、高応力材でより顕

著であった。この結果は、拡散クリープ機構域では転位の蓄積が遅いことを示している。

3.6.3.3 クリ - プ試験結果 (He 注入材)

図 3.6.12 に受入まま材と He 注入材に対する 973K におけるクリープ曲線を示す。実験条件範囲内では He 注入効果は顕著ではなかった。図 3.6.13 には 973K におけるクリープ破断時間の応力依存性を示している。受入まま材と比較して、データ点が左にシフトしていた。これは、He 注入により破断時間が若干短くなったことに対応する。また定常クリープ速度の $\dot{\epsilon}/E$ 依存性を両対数プロットとして図 3.6.14 に示す。He 注入により定常クリープ速度が上昇することが分かった。前節同様に(3.6.2)式のべき乗則を適用して n 値を求めると 15.2 であった。これは受入まま材と比較して若干高い。

このように、He 注入効果は破断時間の短時間化とクリープ速度と n 値の上昇に寄与することが分かった。

3.6.4 考察

3.6.4.1 変形機構図

12Cr-ODS-IMR 鋼のクリープ変形機構図を、純鉄の図を修正する形で図 3.6.1 に示す。べき乗則域と拡散クリープ域を確認することができた。当該鋼のクリープ変形機構図の概略を図 3.6.15 に示す。転位クリープと拡散クリープの境界を 100-120 MPa、973K と定めることができた。これはしきい値"threshold behavior"[3.6.8, 3.6.17]で説明される。これはクリープ変形速度があるしきい値以下では著しく低下するというものである。この現象は十分には理解されていないが、当該鋼では転位とナノ粒子との相互作用により転位運動を阻害する力が強いことに起因していると考えられる。また、応力指数 n 値による機構の決定には更なる実験的検証が求められ[3.6.18]、TEM 内その場観察などが今後必要と思われる。

図 3.6.16 は 973K におけるクリープ速度を、当該鋼と他の Fe-Cr 系 ODS 鋼とを比較して示したものである。当該鋼のクリープ変形挙動は、120MPa 以上の負荷応力域では Fe-13%Cr ODS 鋼、ODS EUROFER および FAC 鋼と同程度であった。耐クリープ特性は 14YWT 鋼が他者よりも優れており、これは低温での加工強化により微細粒化が達成できていることによる。尚、120MPa 以下の負荷応力域の既往研究は数少ない。これは正確なひずみ測定の実験的な困難さに起因すると考えられる。120MPa 以下の負荷応力域では n 値は約 1 であり、最も小さく、これは拡散クリープが主要メカニズムであることを指している。

総じて 12Cr-ODS-IMR 鋼の優れたクリープ特性が明らかになった。これは製造工程における部分的再結晶化が関与するものと思われる [3.6.8]。しかし一方で、破断ひずみは非常に小さく材料改善の余地がある。この視点から当該鋼の熱処理に関する研究を進めている。

3.6.4.2 12Cr-ODS-IMR steel 鋼のクリープ特性に及ぼす He 照射効果

照射下においては、照射欠陥の核形成と成長、核変換による He の蓄積とバブル (キャビティ) の形成等の現象が生じ、結果、クリープ寿命等の材料の機械的性質が劣化する。その一例として AISI 316SS 鋼の 1023K でのクリープ試験によると、100appm 程度の He 注入によりクリープ寿命が 2 桁ほど低下するという報告がある [3.6.19]。これに対して 12Cr-ODS-IMR 鋼では図 3.6.13 にみられるように He 注入効果は比較的マイルドであった。図 3.6.17 は (a) 923K にて 1700appm He 注入した 14Cr-ODS 鋼の TEM 組織観察結果であり、(b) は 773K にて 2500appm He 注入した PM2000 鋼のデータを示す [3.6.20]。図 3.6.17(a) では、サイズ 2~11nm の He バブル (キャビティ) が密度約 $3 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ 生成されていることが分かる。一方で (b) ではサイズは 3~17nm であった。この明瞭な差異は、分散ナノ粒子のサイズや密度等に影響されると考えられる。14Cr-ODS 鋼中の分散ナノ粒子のサイズは約 4.8nm でその密度は約 $4.5 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ であった。一方で PM2000 鋼では約 28nm、約 $5.1 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$ であった [3.6.20]。それ故、相対的に小さなナノ粒子を高密度に分散させることによって He バブルの生成と成長を抑制可能であることが分かった。その機構としては以下の二点が考えられる。まず分散ナノ粒子がバブル核形成サイトとして機能する。そして、バブルがナノ粒子によってトラップされていることから、バブル同士の合体、成長を強く抑制する。これに対して、本研究対象の 12Cr-ODS-IMR 鋼は、サイズ約 3.7nm、数密度約 $8.5 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ であり、上記で参照した二種の鋼よりもサイズはより小さく、密度は高い。このことから He バブルの形成の一層の抑制が図られていると想定され、図 3.6.13 に観察された実験結果が説明される。

3.6.4.3 ラーソンミラー (Larson-Miller) 係数

ラーソンミラー (Larson-Miller) 係数 (P) はクリープ寿命を評価するうえで用いられる経験則であり、次式で表される [3.6.21]。

$$P = T (C + \log t_r) \quad (3.6.3)$$

ここで T は絶対温度、 t_r は破断時間 (hours) であり、定数 C は過去事例から 30 とした [3.6.22]。本式に基づいて実験データを図 3.6.17 にプロットした。実験温度範囲は

773 ~ 973 K であり、負荷応力は 90 ~ 560 MPa である。同図のデータは線形関係を示し、これによりクリープ寿命を評価することが可能となった。クリープ寿命は以下の式で表される。

$$t_r = 10 \wedge [16.2 * (783 -) / T] - 30 \quad (3.6.4).$$

L-M 係数に対する He 照射効果について図 3.6.18 に示す。同図には 35appm He 注入データを付加した。973K の He 注入では L-M 係数が若干減少し、クリープ寿命が短時間化していることが分かった。しかしデータ量が不足していることもあり、定量的な議論には微視組織観察や照射温度影響などの追加の実験が必要である。

3.6.5 まとめ

(1) 本事業において 12Cr-ODS-IMR 鋼を作製し、非常に複雑かつ微細な組織を有する材料であることを確認した。微細組織としては粗大粒 (>10 μm) と微細粒 (<1 μm) に大別される。これらの結晶粒は熱間押出方向に伸長しているという特徴を有していた。そしてこれらの結晶粒中には比較的粗大な TiC_xO_{1-x} 粒子 (サイズ >100nm) と Y_2TiO_5 ナノ粒子 (2 ~ 10nm) 等が分散していた。

(2) 当該鋼に高速炉条件に近い領域でクリープ試験を行い、変形機構図を作成した。そして、純鉄と比較して、べき乗則領域がより高応力側にシフトしており、酸化物ナノ粒子によるクリープ変形を著しく抑制していることが分かった。温度 973K において印可応力 120MPa 以下では、べき乗則領域が拡散クリープ領域に移行することが分かった。

(3) サイクロトロン加速器により 35appm-He 注入を行った試料に対してクリープ試験を実施し、未注入材と比較して破断時間が短くなり、クリープ速度が高くなることを見出した。破断面の観察により He バブル(キャビティ)の形成が著しく抑制されており、当該鋼が高温 He 脆性に対して良い耐性を示すことを確認した。

(4) ラーソンミラー(Larson-Miller)係数により当該鋼のクリープ変形特性を整理し、他鋼種と比較した。これにより、実験範囲は高速炉条件での長時間クリープ変形を模擬するのに十分であることを確認した。そしてクリープ寿命を求める式を構築した。

$$t_r = 10 \wedge [16.2 * (783 -) / T] - 30$$

ただし、この式は He 注入材には適用できない。その原因としては He 注入影響が十分に整理し尽くされていないことが原因と考えられる。

(5) 将来計画として、He 影響の一層の明確化が挙げられる。すなわち、

- i. He 注入材に対して本事業で採用した温度よりも、低温および高温においてクリープ試験を行うことで、変形機構図をより正確に描くことができる。

- ii. He 注入量の関数として変形機構図を描くことにより、材料劣化指標に対応させたクリープ変形挙動を明らかにすることができる。
- iii. 上記の条件で試験した試料の組織観察により、ODS 鋼の He 脆化のメカニズムを明らかにすることができる。

References

- [3.6.1] T. Muroga, M. Gasparotto, S.J. Zinkle, Overview of materials research for fusion reactors, *Fusion Eng. Des.* 61&62 (2002) 13-25.
- [3.6.2] Y.F. Li, T. Nagasaka, T. Muroga, A. Kimura, S. Ukai, High-temperature mechanical properties and microstructure of 9Cr oxide dispersion strengthened steel compared with RAFMs, *Fusion Eng.Des.*86 (2011) 2495-2499.
- [3.6.3] S. Ukai, T. Kaito, S. Ohtsuka, T. Narita, M. Fujiwara, Production and properties of nano-scale oxide dispersion strengthened (ODS) 9Cr martensitic steel claddings, *ISIJ Int.* 43 (2003) 2038-2045.
- [3.6.4] D.G. Morris, M.A. Munoz-Morris, Creep behavior of iron-aluminium-chromium intermetallics strengthened by nano-sized oxide particles, *Mater. Sci. Eng. A*: 607 (2014) 376-382.
- [3.6.5] T. Hayashi, P.M. Sarosi, J.H. Schneibel, M.J. Mills, Creep response and deformation processes in nanocluster-strengthened ferritic steels, *Acta Mater.* 56 (2008) 1407-1416.
- [3.6.6] J.H. Schneibel, C.T. Liu, M.K. Miller, M.J. Mills, P. Sarosi, M. Heilmaier, D. Sturm, Ultrafine-grained nanocluster-strengthened alloys with unusually high creep strength, *Scr. Mater.*, 61 (2009) 793-796.
- [3.6.7] J.H. Schneibel, M. Heilmaier, W. Blum, G. Hasemann, T. Shanmugasundaram, Temperature dependence of the strength of fine- and ultrafine-grained materials, *Acta Mater.*, 59 (2011) 1300-1308.
- [3.6.8] Yanfen Li, Jingjie Shen, FengLi, HuiLongYang, Sho Kano, Yoshi Matsukawa, Yuhki Satoh, Haiying Fu, Hiroaki Abe, Takeo Muroga, Effects of fabrication processing on the microstructure and mechanical properties of oxide dispersion strengthening steels, *Mater. Sci. Eng. A*, 654 (2016) 203-212.
- [3.6.9] M.K. Miller, E.A. Kenik, K.F. Russell, L. Heatherly, D.T. Hoelzer, P.J. Maziasz, Atom probe tomography of nanoscale particles in ODS ferritic alloys, *Mater. Sci. Eng. A*, 353 (2003) 140-145.

- [3.6.10] H. Trinkaus, B.N. Singh, Helium accumulation in metals during irradiation - where do we stand? *J. Nucl. Mater.* 323 (2003) 229-242.
- [3.6.11] H. Schroeder, W. Kesternich, H. Ullmaier, Helium effects on the creep and fatigue resistance of austenitic stainless steels at high temperatures, *Nucl. Eng. Des. Fusion* 2 (1985) 65-69.
- [3.6.12] D.T. Hoelzer, J. Bentley, M.A. Sokolov, D.T. Hoelzer, M.K. Miller, et al., Influence of particle dispersions on the high-temperature strength of ferritic alloys, *J. Nucl. Mater.* 367-370 (2007) 166-172.
- [3.6.13] D. Bhattacharyya, P. Dickerson, G.R. Odette, S.A. Maloy, A. Misra, et al., On the structure and chemistry of complex oxide nanostructures in nanostructured ferritic alloy U14YWT, *Philos. Mag.* 92 (2012) 2089-2107.
- [3.6.14] P. Unifantowicz, T. Płocinski, C.A. Williams, R. Schaublin, N. Baluc, Structure of complex oxide nanoparticles in a Fe-14Cr-2W-0.3Ti-0.3Y₂O₃ ODS RAF steel, *J. Nucl. Mater.* 442 (2013) S158-S163
- [3.6.15] JNC TN9400 2001-108, The design and evaluation report about ODS ferritic steels, 2001, Japan. (In Japanese).
- [3.6.16] F.H. Noron, *The Creep of Steel at High Temperature*, Mc Graw Hill Publishing, Co. Ltd., USA, 1929.
- [3.6.17] R.W. Evans, J.A. Preston, B. Wilshire, Creep and creep fracture of an oxide-dispersion-strengthened 13% chromium ferritic steel, *Mater. Sci. Eng. A* 167 (1993), 65-72.
- [3.6.18] M.C. Brandes, L. Kovarik, M.K. Miller, G.S. Daehn, M.J. Mills, Creep behavior and deformation mechanisms in a nanocluster strengthened ferritic steel, *Acta Mater.* 60 (2012) 1827-1839.
- [3.6.19] H. Schroeder, W. Kesternich, H. Ullmaier, Helium effects on the creep and fatigue resistance of austenitic stainless steels at high temperatures, *Nucl. Eng. Des. /Fusion* 2 (1985) 65-95.
- [3.6.20] J. Chen, P. Jung, T. Rebac, F. Duval, T. Sauvage, Y. de Carlan, M.F. Barthe, Helium effects on creep properties of Fe-14CrWTi ODS steel at 650°C, *J. Nucl. Mater.* 453 (2014) 253-258.
- [3.6.21] F.R. Larson and James Miller, A Time-Temperature Relationship for Rupture and Creep Stresses, *Trans. ASTM*, 74, (1952) 765-775.
- [3.6.22] R. Lindau, A. Möslang, M. Schirra, Thermal and mechanical behaviour of

the reduced- activation ferritic-martensitic steel EUROFER, Fusion Eng. Des. 61-62 (2002) 659-664.

Figures:

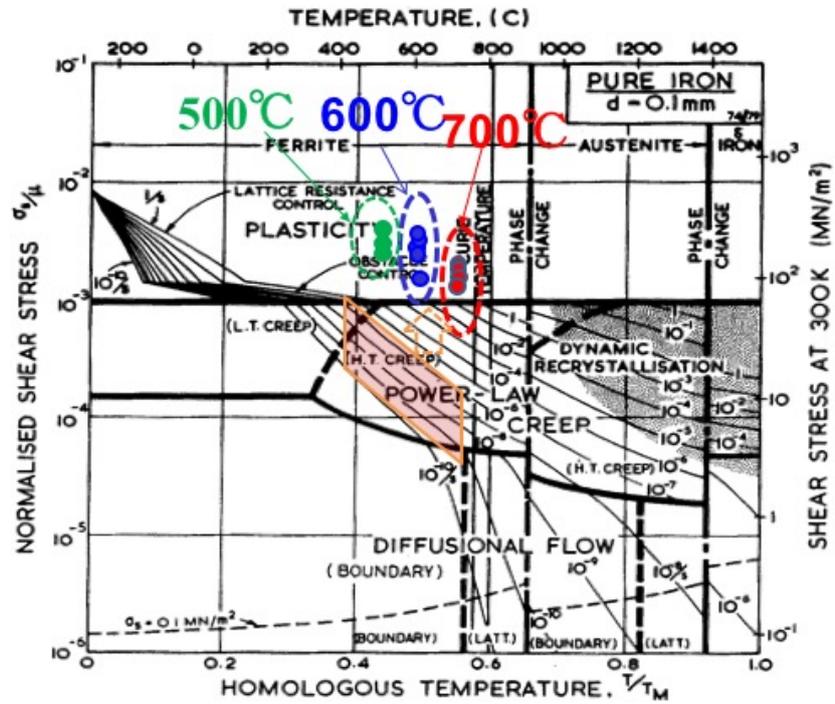


Fig.3.6.1 Creep deformation map of 12Cr-ODS-IMR steel obtained by March 2015.

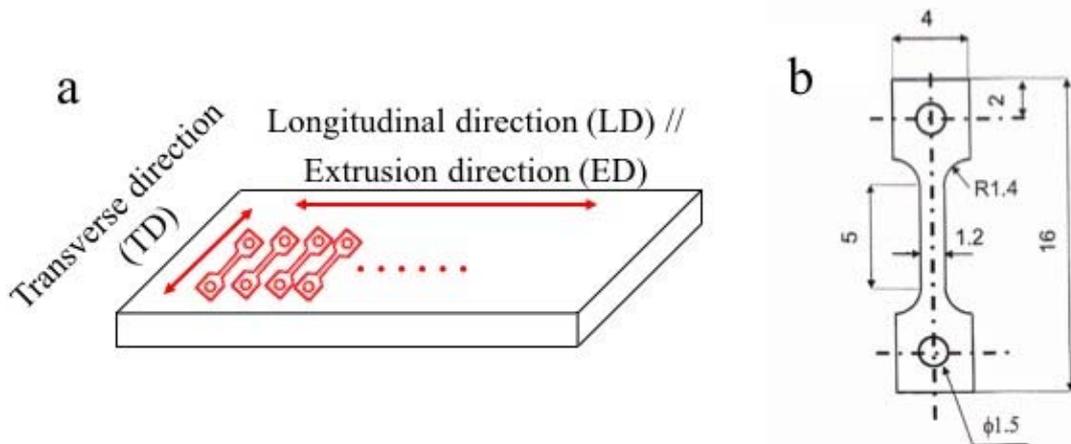


Fig. 3.6.2 (a) The geometric information of creep specimens, and (b) the size of the SSJ-type specimen.



Fig. 3.6.3 M-100 type creep tester used in this program.

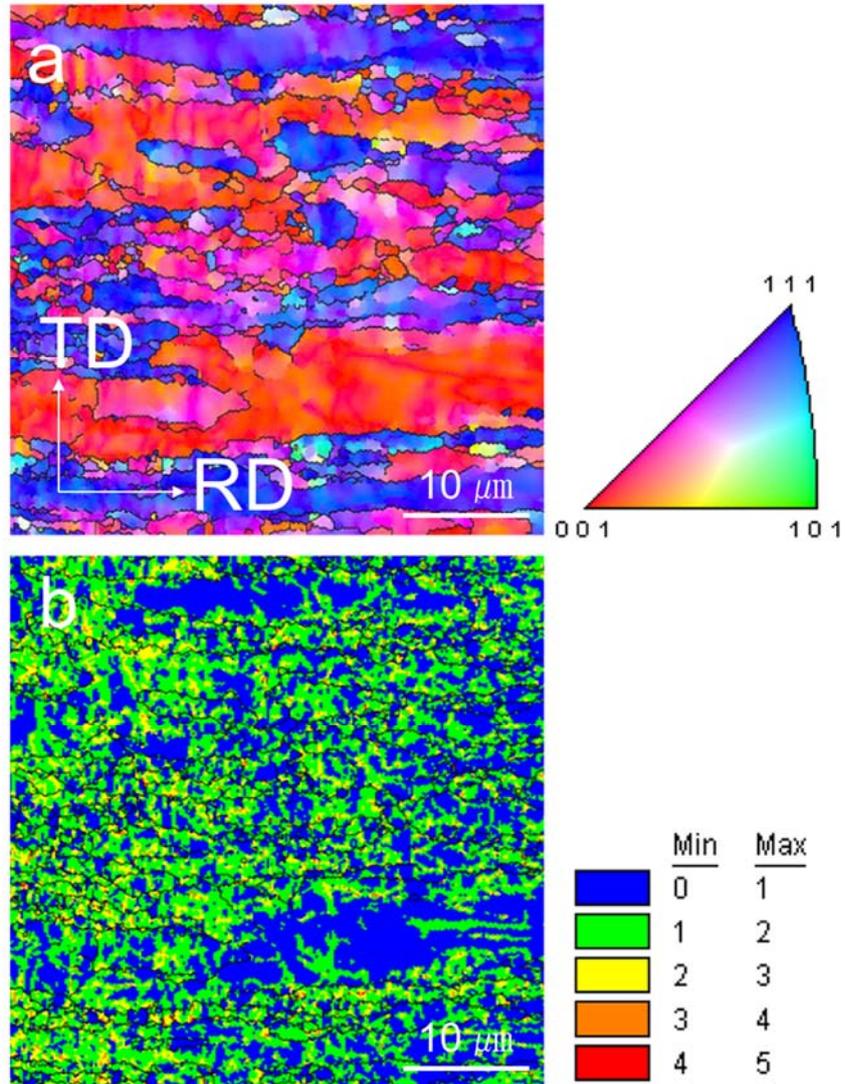


Fig. 3.6.4 (a) EBSD inverse pole figure (IPF) map and (b) corresponding kernel average misorientation (KAM) map of 12Cr-ODS-IMR steel.

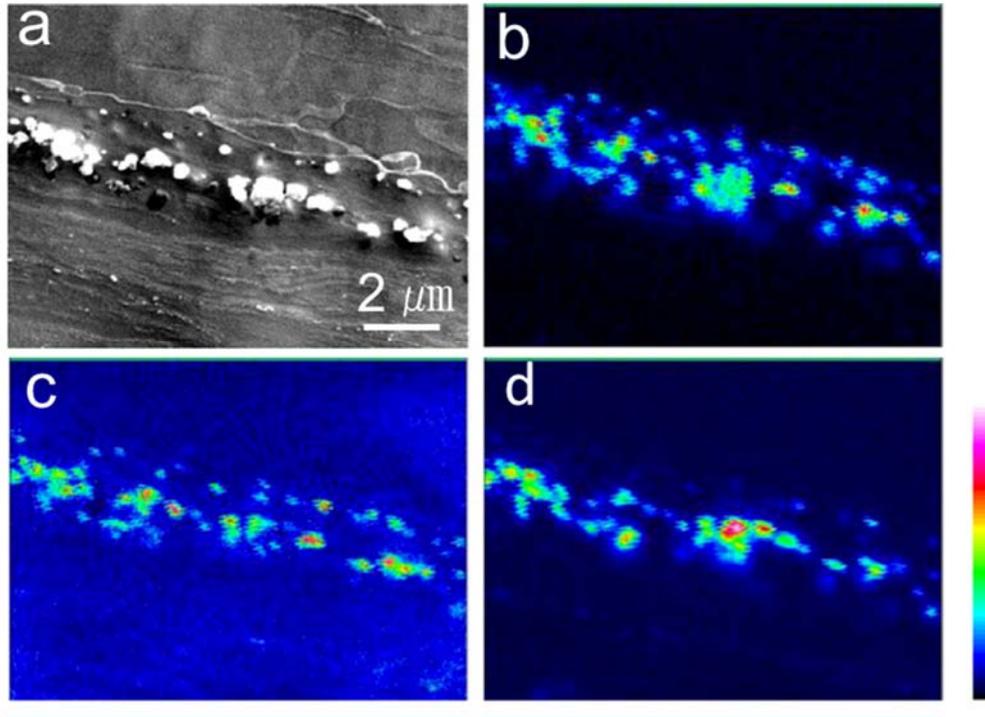


Fig. 3.6.5 EPMA elemental mapping of coarse particles in 12Cr-ODS-IMR steel: (a) SEI image, (b) Ti, (c) C and (d) O mapping.

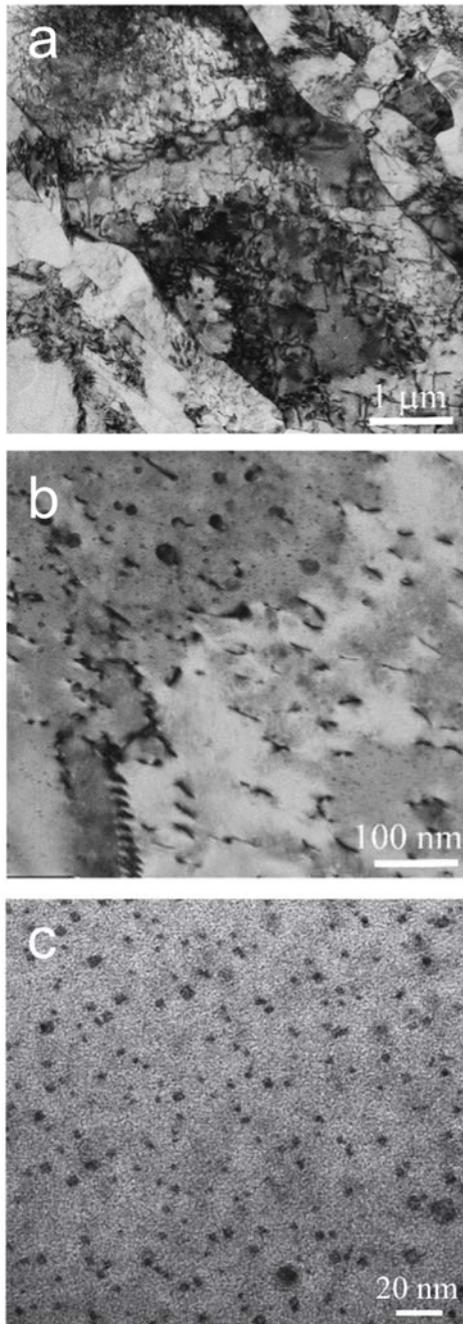


Fig. 3.6.6 TEM micrographs of 12Cr-ODS-IMR steel: (a) low magnification image showing the dislocation gathered region and dislocation free region, (b) high magnification image showing the interaction between nano-sized particles and dislocation, and (c) high magnification image showing the morphology and distribution of nano-sized Y_2TiO_5 particles.

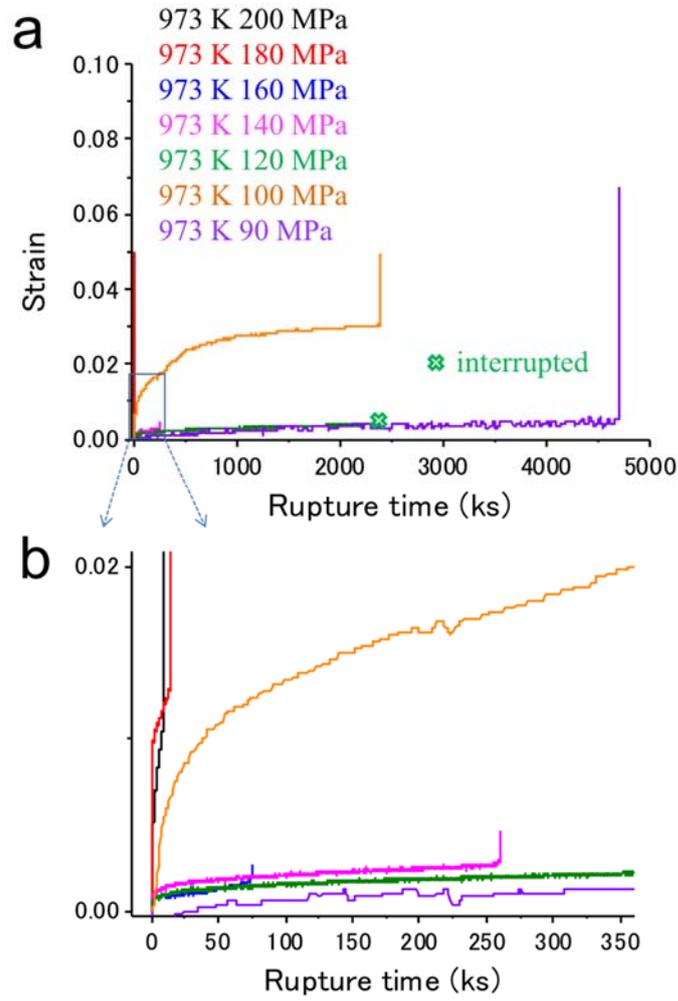


Fig. 3.6.7 Strain-time curves of creep tests at 973 K.

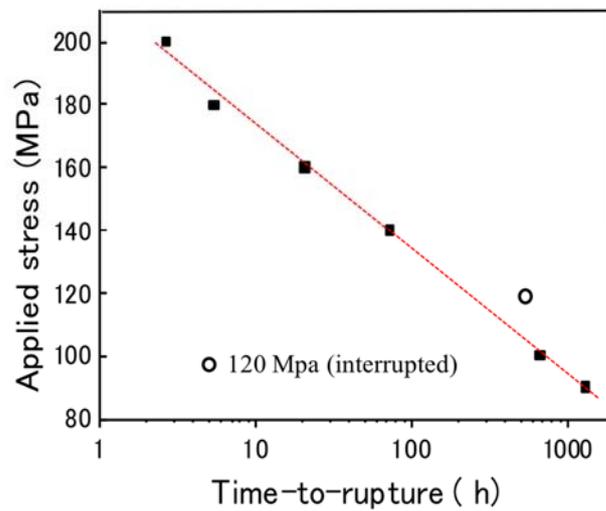


Fig. 3.6. 8 The dependence of time-to-rupture on applied stress crept at 973 K.

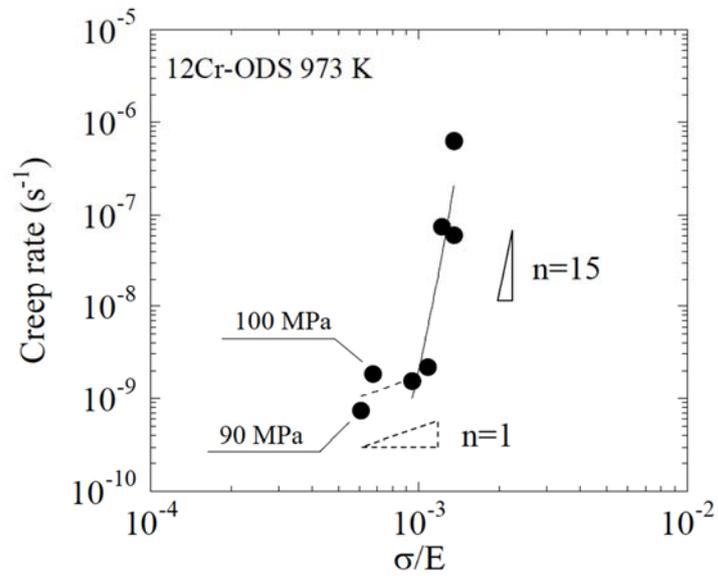


Fig. 3.6.9 Minimum creep rate-normalized stress curves tested at 973 K.

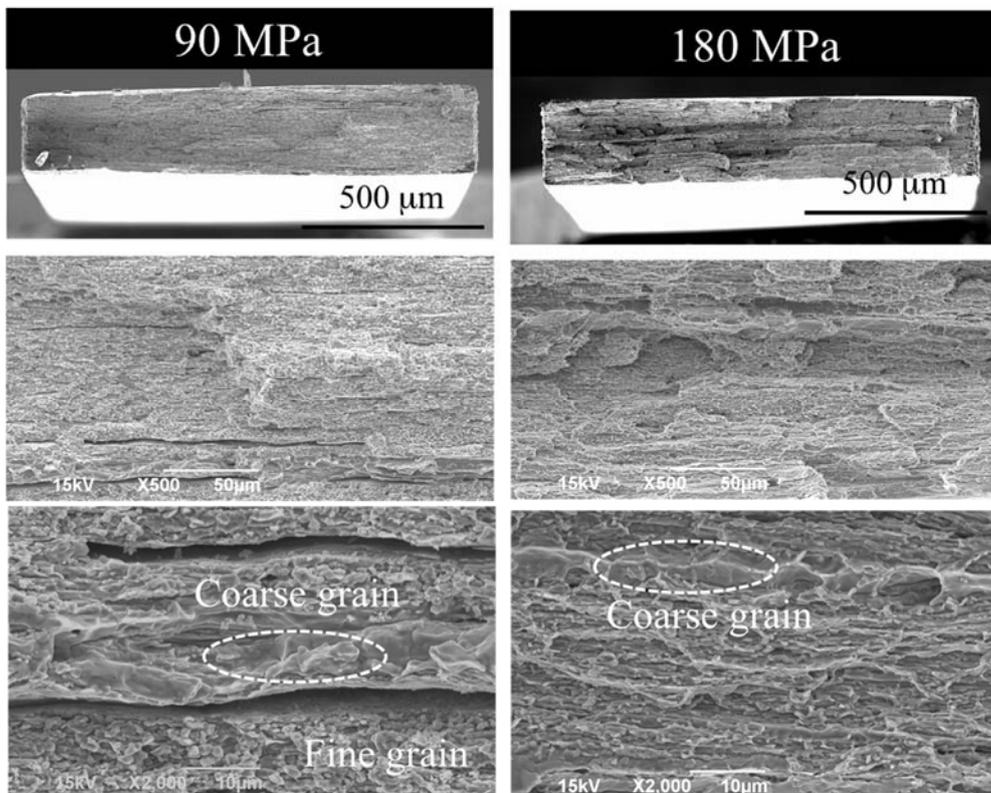


Fig. 3.6.10 Fracture morphologies (cross section) of 12Cr-ODS-IMR steel after creep test under 90 MPa (left) and 180 MPa (right) at 973 K.

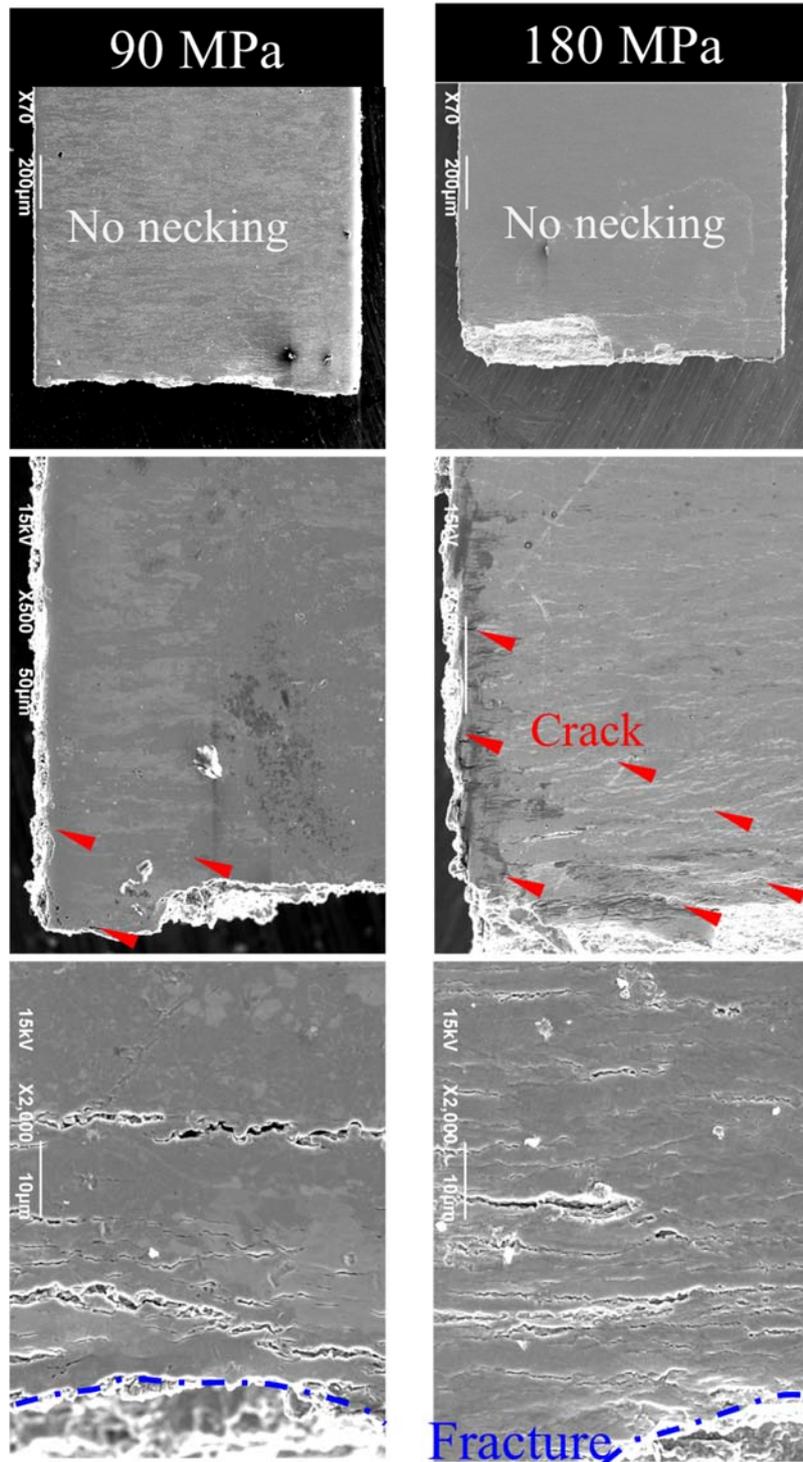


Fig. 3.6.11 Surface morphologies near the fracture in specimens crept under 90 MPa (left) and 180 MPa (right) applied stress at 973 K.

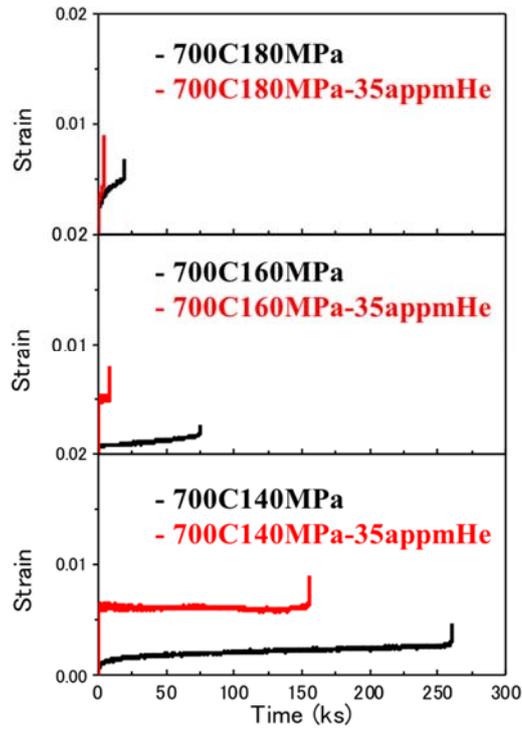


Fig. 3.6.12 Strain-time creep curves of as-received and He-irradiated specimens tests at 973 K.

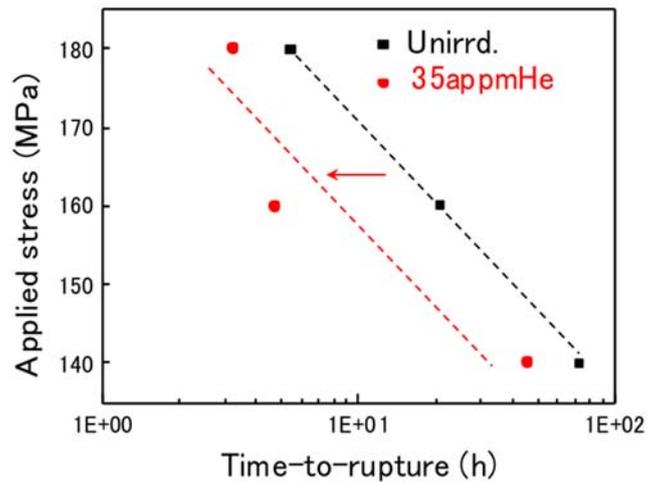


Fig. 3.6.13 The dependence of time-to-rupture on applied stress crept at 973 K for both as-received (Unirrd) and He irradiated specimens.

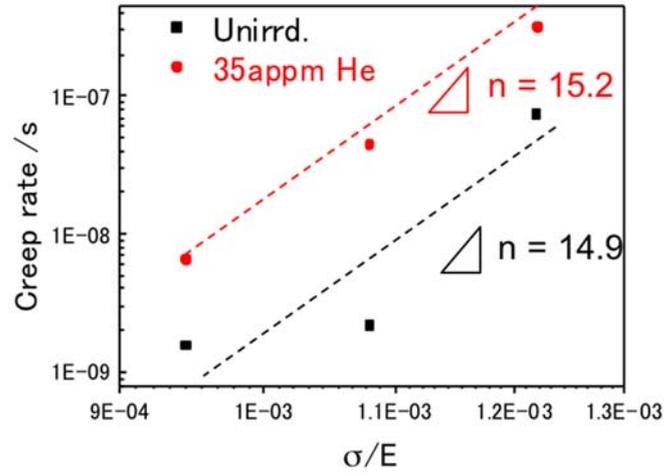


Fig. 3.6.14 Minimum creep rate-normalized stress of 12Cr-ODS-IMR steel specimens tested at 973 K for both as-received (Unirrd) and He irradiated specimens.

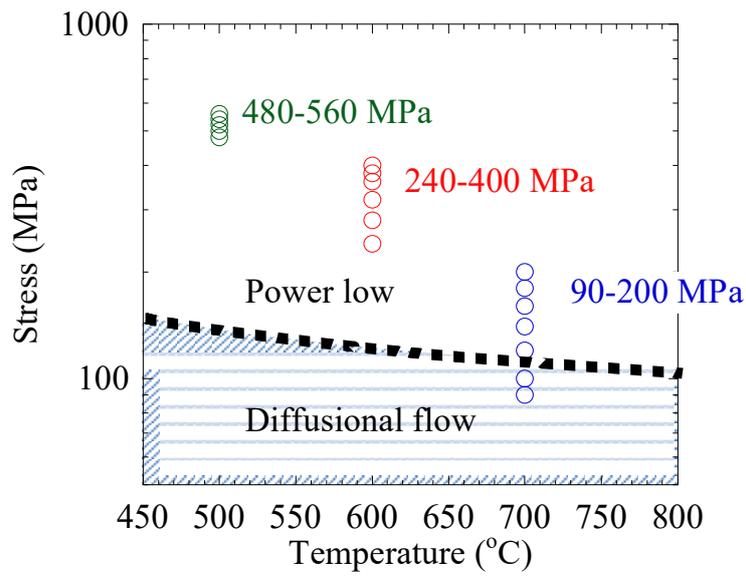


Fig. 3.6.15 Schematic of the creep mechanism transformation in 12Cr-ODS-IMR steel.

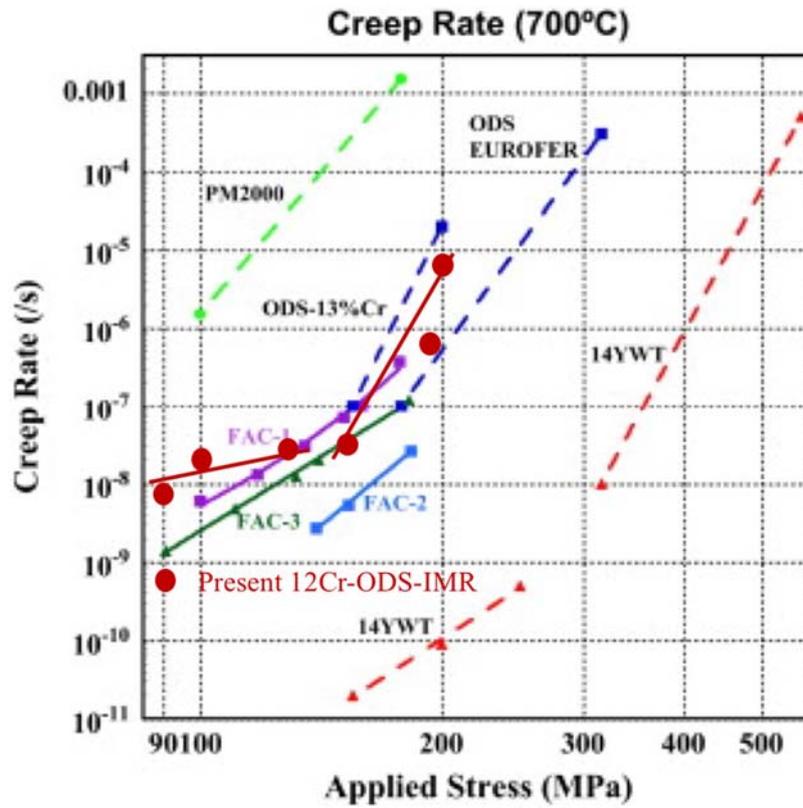


Fig. 3.6.16 Comparison of creep rates at 973 K of present 12Cr-ODS-IMR steel and some similar ODS Fe-Cr alloys [3.6.4]. The chemical composition of FAC-1, FAC-2 and FAC-3 is Fe-40Al-1Y₂O₃, Fe-39Al-10Cr-1Y₂O₃ and Fe-33Al-8Cr-1Y₂O₃, respectively [3.6.4]. And that of 14YWT is Fe-14Cr-3W(0.4Ti)-0.25 Y₂O₃ [3.6.18].

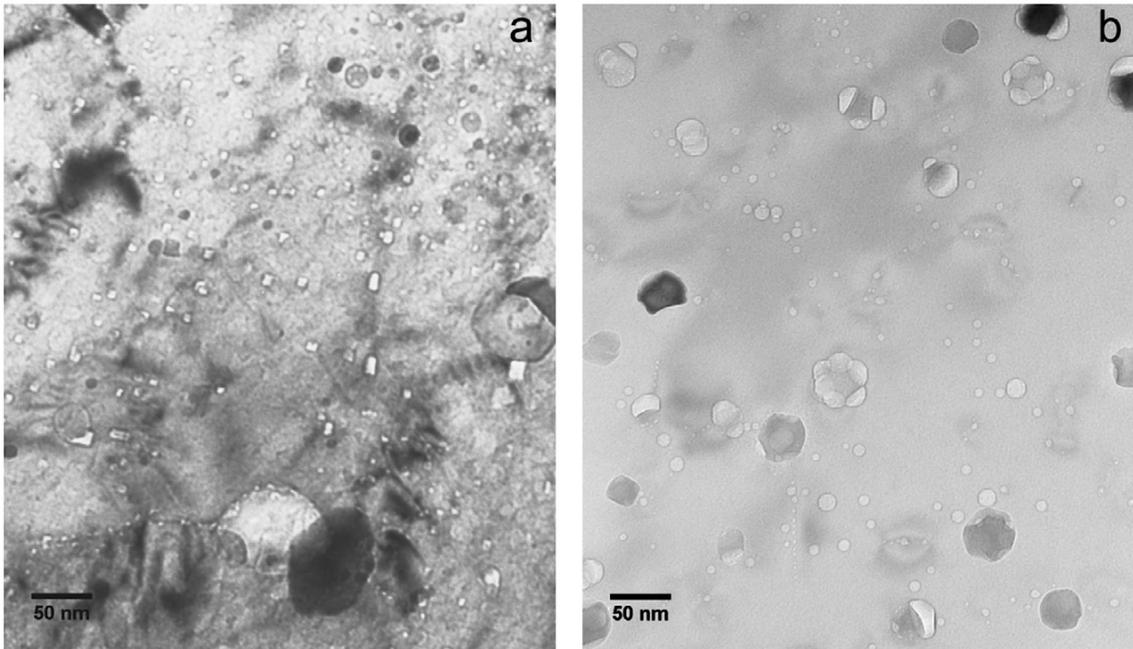


Fig. 3.6.17 TEM micrographs on the (a) 14Cr-ODS after He-implantation to 1700 appm at 923 K and (b) PM2000 alloy after 2500 appm-He at 773 K [3.6.20].

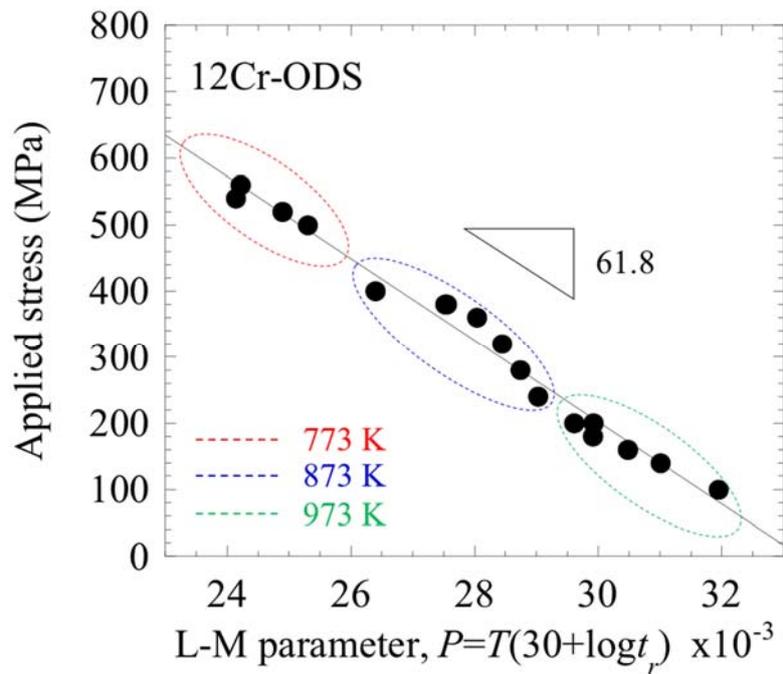


Fig. 3.6.17 Larson-Miller (L-M) parameter plot for 12Cr-ODS-IMR steel.

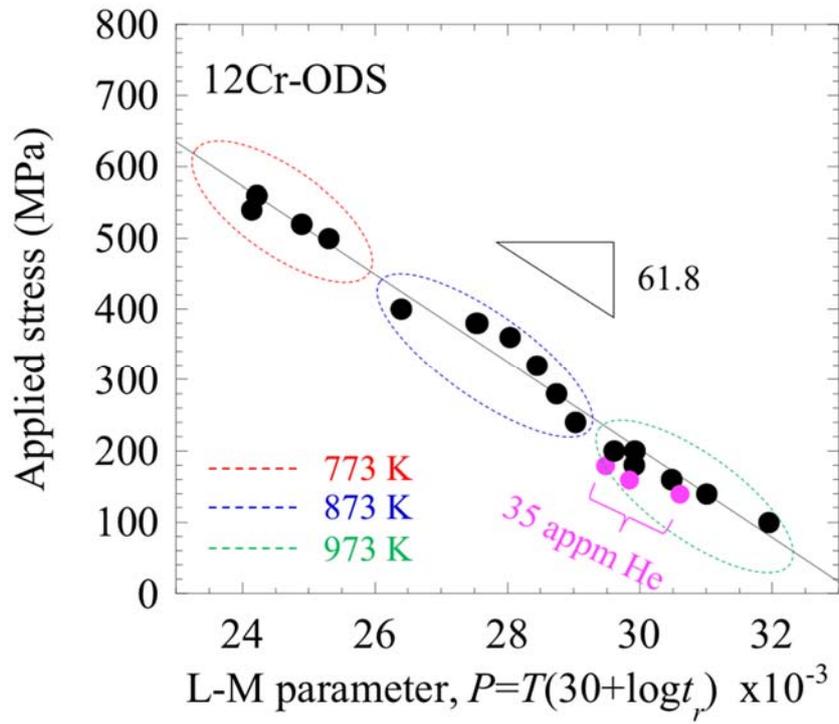


Fig. 3.618 Effect of He irradiation on the Larson-Miller (L-M) parameter for 12Cr-ODS-IMR steel.

3.7 高温クリープ試験 2 （再委託先：物質・材料研究機構）（H25～H27）

3.7.1 背景と目的

12Cr-ODS 鋼は、次世代軽水炉燃料被覆管材料の候補材料として、腐食、水素脆化、照射脆化への耐性に優れた材料であるが、実機相当の材料劣化に機械的負荷が重畳した条件下において、被覆管材料としての健全性に及ぼす定量的な知識は不足している。本業務では、イオン照射により He 注入された 12Cr-ODS 鋼について、773～973K での高温クリープ試験を実施し、微細組織観察および分析から、高温クリープ挙動における He 影響を検証することを目的とする。

3.7.2 実験方法

供試材は東北大より供給され、NIMS において 0.167mm 厚まで研磨後に 30appm の He 注入された 12Cr-ODS 鋼 SS-J 試料が用いられた（詳細は 3.13 He 注入試験 2 を参照のこと）。高温クリープ試験には NIMS 放射線管理区域内に設置されたクリープ試験機（図 3.7.1 参照）が用いられた。SS-J 試料を固定する高温クリープ試験用治具（図 3.7.2 参照）は、本業務を実施するために製作された。試験条件は、973K において 120, 140, 160 および 180MPa, 873K では、300 および 360MPa, 773K では、500, 540 および 560MPa であった。参照試験として、He 未注入試料についても同様の条件で試験を行った。クリープ破断した試料については、SEM による破面観察を実施した。

さらに、試料表面を鏡面に研磨した 0.167mm 厚の 12Cr-ODS 鋼 SS-J 試料に 100appm の He 注入した試料（詳細は 3.13 He 注入試験 2 を参照のこと）について、973K において 120MPa の 30 時間のクリープ試験を実施後に引張破断させ、破断部近傍の試料表面の SEM, EBSD ならびに AFM 解析を行った。参照試験として、He 未注入試料についても同様の条件でクリープ試験後に引張破断させ、破断部近傍の試料表面の SEM, EBSD ならびに AFM 解析を行った。

3.7.3 実験結果

He 注入試料および He 未注入試料に対して 773～973K で実施された高温クリープ試験の結果について、各試料のクリープ破断時間、クリープ速度を表 3.7.1 に示す。なお、He 未注入試料の 973K, 120MPa の高温クリープ試験では、クリープ試験が 1700 時間を超えたため試験を中断した。また、He 未注入試料の 873K, 360MPa の試験、および He 注入試料の 773K, 500MPa の試験については、いずれも装置トラブルのためデータが得られなかった。表 3.7.1 に示すように、各応力におけるクリープ破断時間は He 未注入試料に比べて He 注入試料で短縮した。図 3.7.3 に He 注入試料および He 未注入試料について、973, 873 および 773K におけるクリープ破断時間と応力の両対数プロットを示す。873K では明らかでないが、973, 773K では両試料ともデータプロットは直線上に乗っていることがわかる。図 3.7.4 に He 注入試料および He 未注入試料について、973, 873 および 773K におけるヤング率で規格化した応力とクリープ速度の両対数プロットを示す。ここで 12Cr-ODS 鋼のヤング率は旧核燃料サイクル開発機構報告書[7.1]の値から引用し、973, 873 および 773K でそれぞれ 148.1, 169.0 および 186.8 Gpa の値を採用した。両対数プロットの傾きから得

られるクリープ応力指数 n は、973 および 773K でそれぞれ 12~16, 36~48 となり、He 注入試料と He 未注入試料で明確な違いは見られなかった。

高温クリープ試験によって破断したすべての試料について SEM による破面観察を実施した。He 注入試料および He 未注入試料について、973K にて 140MPa、873K にて 300MPa および 773K にて 520MPa の高温クリープ試験によってそれぞれ破断した試料の SEM 破面観察の結果を図 3.7.5 に示す。本事業で実施したすべての高温クリープ試験において破断試料の破面は、ディンプルやティアリッジ、擬へき開で構成される破面形態を示した。破面形態は、より高温側および低応力側で擬へき開の割合が大きくなる傾向を示したが、同温度同応力条件では He 注入試料と He 未注入試料で破面形態に明確な違いは確認できなかった。図 3.7.6 に He 注入試料について、973K にて 120MPa の高温クリープ試験によって破断した試料の SEM による共役破面観察の結果を示す。粗大な擬へき開破面が共役破面それぞれに観察され、それらの擬へき開破面の凹凸が対応していることから、クリープ破壊は粗大粒内のへき開割れが関与していることが示唆された。

次に、試料表面を鏡面に研磨した 100appm He 注入試料および He 未注入試料について、973K において 120MPa のクリープ試験を 30 時間実施し、その後に引張破断させた。He 注入試料および He 未注入試料について、試験前と後の表面 SEM 写真を図 3.7.7 に示す。クリープ試験前では He 注入試料と未注入試料で表面微細組織に違いは見られないものの、試験後では、He 注入試料において試料表面にポイド状のコントラストを伴うクラックが多数観察された。図 3.7.8 に He 未注入試料において同一視野で SEM, EBSD, AFM 測定を実施した結果を示す。EBSD による結晶粒界方位差解析の結果から、粗大粒と微細粒の結晶粒界は特定の対応粒界 (9, 11, 19) の割合が大きかった。また、クラックは微細粒間の粒界を伝播したのち、粗大粒の領域に達しており、AFM 解析から、粗大粒内のクラック伝播において特定面の粒内すべりを伴うことが示唆された。図 3.7.9 に 100appm He 注入試料において同一視野で SEM, EBSD, AFM 測定を実施した結果を示す。SEM 観察の結果から、試料表面クラックにはバブル状のコントラストが多数確認され、EBSD 解析の結果から、それらのクラックは粗大粒の粒界クラックであることがわかった。さらに、AFM 解析の結果から、粒界クラック伝播において粒界すべりが発生していることが示唆された。

3.7.4 考察

一般にクリープ試験における応力指数 n は、粒界すべりに代表される拡散型クリープが主導する場合は 1 に近い値、粒内の転位運動による粒内すべりを伴う転位型クリープの場合には 3 以上の値を示すことが知られている。鶴飼[7.2]は、ODS 鋼では、転位型クリープにおいて転位運動は結晶粒内に高密度に分散する Y_2O_3 粒子との相互作用に支配されるため、クリープ試験条件によっては、応力指数は 40 程度の非常に高い値をとりうることを指摘する一方、微細粒子間の粒界すべりがクリープ挙動に関与する場合は 10 程度の値になると報告している。また、973K における ODS 鋼の応力指数に関するその他の文献値についても 11~20 程度[7.3, 7.4]と報告されている。本業務では、図 3.7.4 に示すように、He 注入試料および未注入試料とも、973K において応力指数は 12~16 となり、文献値と一致した。このことから、本業務における高温クリープ試験の信頼性は高いと判断される。また、

773K において応力指数値が 36~48 となったことは、同温度においてクリープ挙動における粒界すべりの関与が小さくなったことを示唆するものと考えられる。表 3.7.1 に示すように、He 注入試料では未注入試料に比べて、同温度同応力条件でクリープ破断寿命が短縮するが、図 3.7.4 に示すように、各温度において両試料で応力指数の値に変化は見られなかった。これは、He 注入がクリープ挙動のうち、定常クリープにおける転位すべりや粒界すべりそのものの機構に関与せず、加速クリープにおけるクラック発生や伝播の過程のみを促進したことを示唆している。図 3.7.5 に示すように、各温度におけるクリープ破断試料の破面形態においても He 注入の影響を確認することはできなかった。破面形態は、延性破壊において見られるディンプル、脆性破壊において見られるティアリッジや擬へき開破面が混在する混合破壊の様相を呈しているが、より高温側で低応力側では破面形態において擬へき開の割合が高くなることから、破壊形式はより脆性的になることがわかる。本業務におけるクリープ試験において最も高温低応力条件である 973K、120MPa では、図 3.7.6 に示すように、粗大粒内の擬へき開割れがクリープ破断に関与すると考えられる。

He 注入の影響は、クリープ試験における応力指数や、クリープ破断試料の破断面で確認できなかったものの、クリープ試験後の破断部近傍の試料表面に He 注入の影響が確認されている。図 3.7.7 に示すように、100appm の He 注入した試料について 973K、120MPa にてクリープ試験後に破断した試料では、He 未注入試料に比べて試料表面のクラックにポイド状のコントラストが多数観察された。次に、He 未注入試料についてそれぞれ同一視野で SEM、EBSD、AFM 解析を行った結果、図 3.7.8 に示すように、粗大粒の粒界は特定の対応粒界（9, 11, 19）の割合が高く、粗大粒粒界で発生・伝播したクラックは粗大粒内に伝播する際に粗大粒内で大規模な粒内すべりを伴うことがわかった。鵜飼ら[7.5]によれば、ODS 鋼において、9, 11, 19 の対応粒界では粒界すべりが発生しやすく、クリープ挙動に影響を与えることを報告している。従って、粗大粒粒界では粒界すべりによるクラック発生・伝播が起こりやすいと考えられる。さらに、He 注入試料についてそれぞれ同一視野で SEM、EBSD、AFM 解析を行った結果、図 3.7.9 に示すように、粗大粒粒界に発生したクラックにポイド状のコントラストが観察され、それらの粒界では粒界すべりの発生も確認された。これらのことから、He 注入の影響として、He 注入によって粗大粒粒界に発生した He バブルが、粒界すべりによるクラックの発生ならびに粒界クラックの伝播を促進したため、クリープ破断寿命の短縮を引き起こしたと考えられる。

本業務では、高温側で低応力のクリープ試験条件は、973K、120MPa までであったが、さらに高温側、もしくはさらに低応力側では、粒界すべり主導の拡散クリープ型のクリープ挙動を示す可能性が高い。特に粗大粒粒界における粒界すべりが最も懸念される。ODS 鋼の実機への適合性を見極める上でも今後さらなる広範囲の試験データの蓄積が必要であるう。

3.7.5 まとめ

本業務では、供試材を 12CrODS 鋼とし、30appm の He 注入試料ならびに He 未注入試料について、973K において 120, 140, 160 および 180MPa, 873K では、300 および 360MPa, 773K では、500, 540 および 560MPa でクリープ試験を実施した。また、100appm の He 注入

試料ならびに He 未注入試料について、973K において 120MPa の 30 時間のクリープ試験を実施後に引張破断させ、破断部近傍の試料表面の SEM, EBSD ならびに AFM 解析を行った。以上の試験および解析により以下の結論が得られた。

- (1) すべてのクリープ試験条件において He 注入によりクリープ破断寿命が短縮したが、クリープ試験における応力指数について、He 注入による影響は見られなかった
- (2) すべてのクリープ試験条件においてクリープ破断した試料の破面は、延性破壊と脆性破壊が混在する混合破壊の様相を呈し、より高温低応力側の試験条件では破面形態がより脆性的になった
- (3) 粗大粒の粒界は特定の対応粒界 (9, 11, 19) の割合が高く、粗大粒粒界で発生・伝播したクラックは粗大粒内に伝播する際に粗大粒内で大規模な粒内すべりを伴うことがわかった。
- (4) He 注入試料におけるクリープ破断寿命短縮の原因として、粗大粒粒界に発生した He バブルが、粒界すべりによるクラックの発生ならびに粒界クラックの伝播を促進したためと考えられる

参考文献

- [7.1] 皆藤威二、水田俊治、上羽智之、大塚智史、鷓飼重治, 「ODSフェライト鋼被覆管の材料強度基準」, JNC TN9400 2005-015 (2005).
- [7.2] 鷓飼重治, 「ODSフェライト - マルテンサイト鋼被覆管の組織制御技術開発」, サイクル機構技報 No.7 (2000).
- [7.3] C. Zakine, C. Prioul and D. Francois, "Creep behavior of ODS steels", Materials Science and Engineering A, Vol. 219, No.1-2 (1996) 102-108.
- [7.4] Y. Sugino, S. Ukai, B. Leng, N. Oono, S. Hayashi, T. Kaioto and S. Ohtsuka, Materials Transactions, Vol.53, No.10 (2012) 1753-1757.
- [7.5] S. Ukai, T. Okuda, M. Fujiwara, T. Kobayashi, S. Mizuta and H. Nakashima, "Characterization of High Temperature Creep Properties in Recrystallized 12Cr-ODS Ferritic Steel Claddings", J. Nucl. Sci. Technol. Vol.39, No.8, pp.872-879 (2002).

表 3.7.1 高温クリープ試験結果

Temperature (K)	He-condition	sample no.	Stress (MPa)	Time to rupture (s)	Creep rate (1/s)
973	He-injected (30 appm)	9C09	180	15840	2.44E-07
		9C10	160	49687	4.70E-08
		9C11	140	636960	5.20E-09
		9C12	120	3108960	8.64E-10
	no He	9C17	180	23880	1.61E-07
		9C20	160	86780	3.73E-08
		9C22	140	1668882	7.17E-09
		9C21	120	> 6436800	< 8.36E-10
873	He-injected (30 appm)	9C26	360	41619	5.08E-08
		9C29	300	766380	7.40E-09
	no He	9C42	360	-	-
		9C44	300	2102640	2.00E-09
773	He-injected (30 appm)	9C16	560	40440	1.97E-07
		9C14	520	358690	8.07E-09
		9C13	500	-	-
	no He	9C19	560	75820	1.66E-07
		9C24	520	564810	7.93E-09
		9C18	500	1904082	2.69E-09

unfractured



1) NIMS クリープ試験機

1. Machine Type

- ・Electro-Mechanically Controlled
- ・With Feedback System

2. Temp. Meas. & Control

- ・Test Range : 573 K - 1073 K
- ・Uniformity : < 2 K
- ・Accuracy of Meas. : ± 2 K
- ・Accuracy of Cont. : ± 1 K

3. Load Meas. & Control

- ・Max. Value : 50 kg
- ・Accuracy of Meas. : ± 20 - 75 g
- ・Accuracy of Cont. : ± 20 - 75 g

4. Extensometer System

- ・Max. Value : 20 mm
- ・Accuracy : 3 μm
- ・Sensitivity : 1 μm

5. Vacuum System

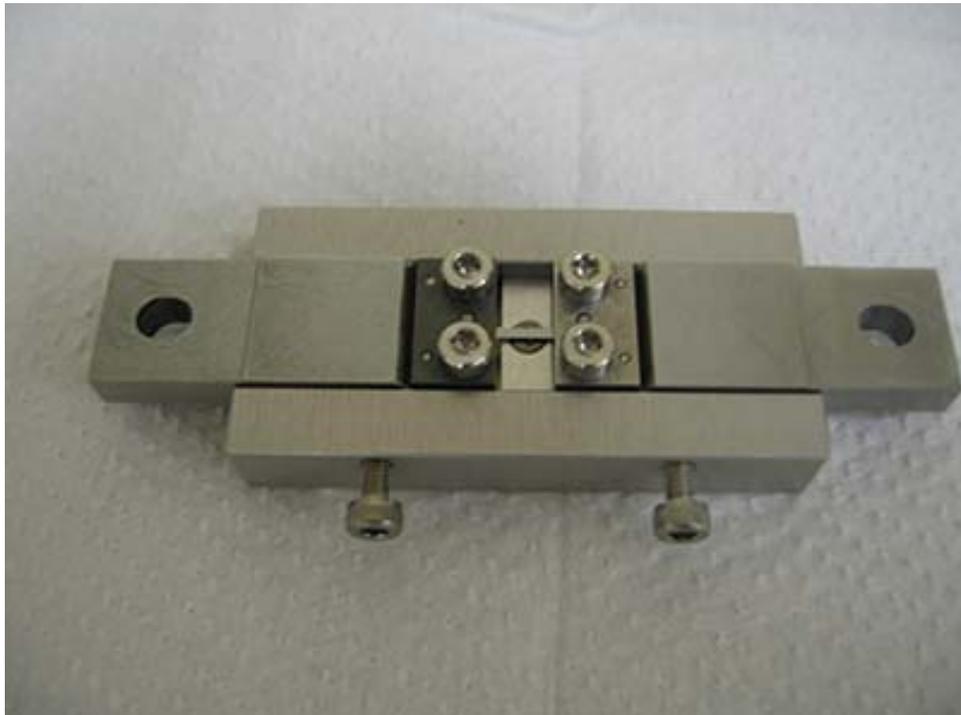
- ・Vacuum : ≤ 1 × 10⁻⁴ Pa

2) クリープ試験機の性能一覧

図 3.7.1 NIMS クリープ試験機と性能一覧



1) 高温クリープ試験用試料固定治具本体



2) 高温クリープ試験用試料固定治具使用時

図 3.7.2 高温クリープ試験用試料固定治具

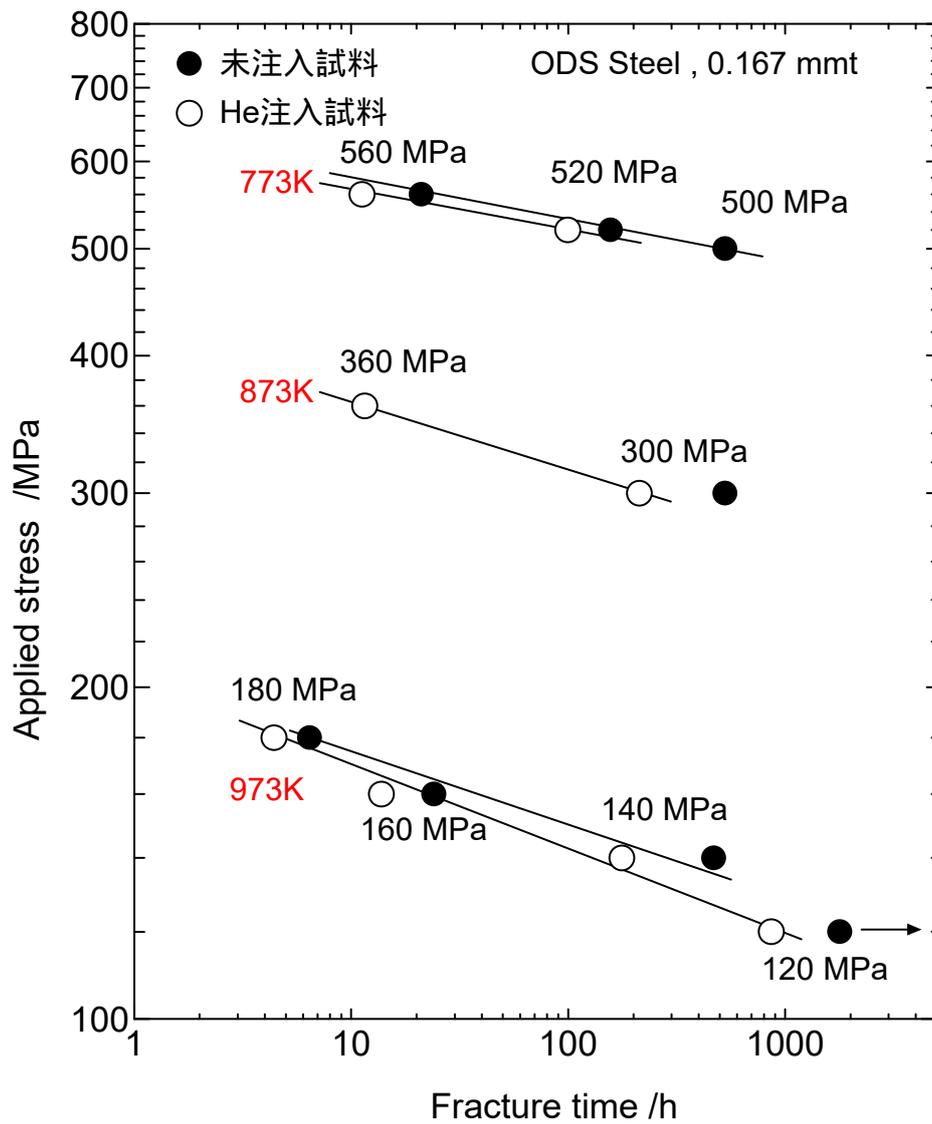
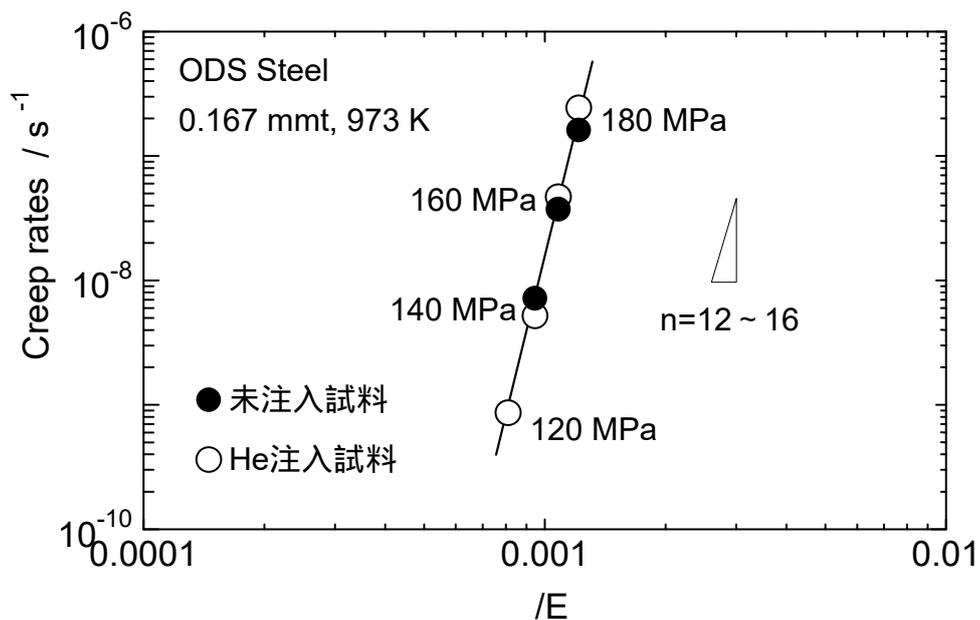
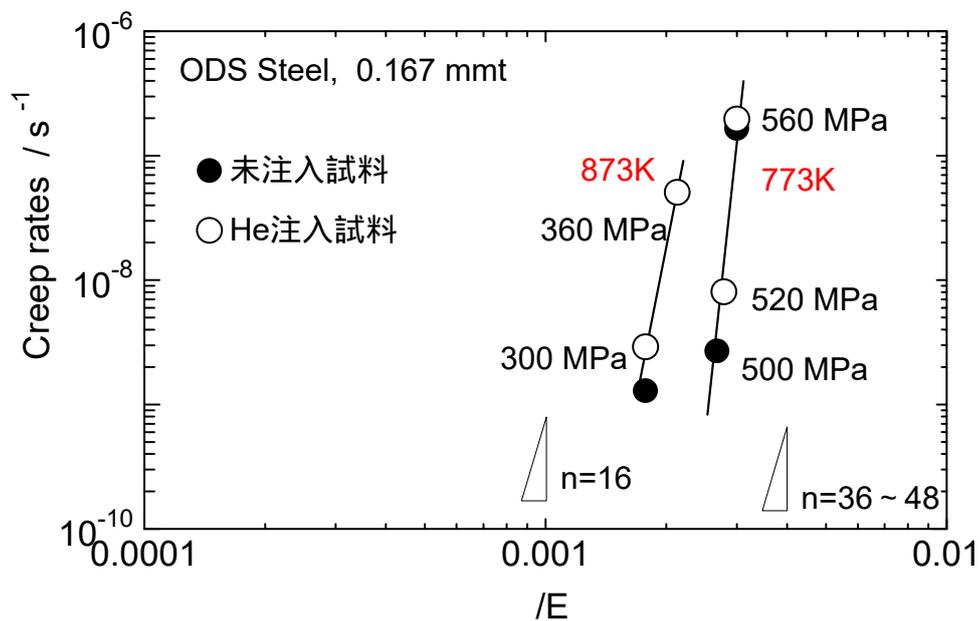


図 3.7.3 高温クリープにおける応力と破断時間の両対数プロット



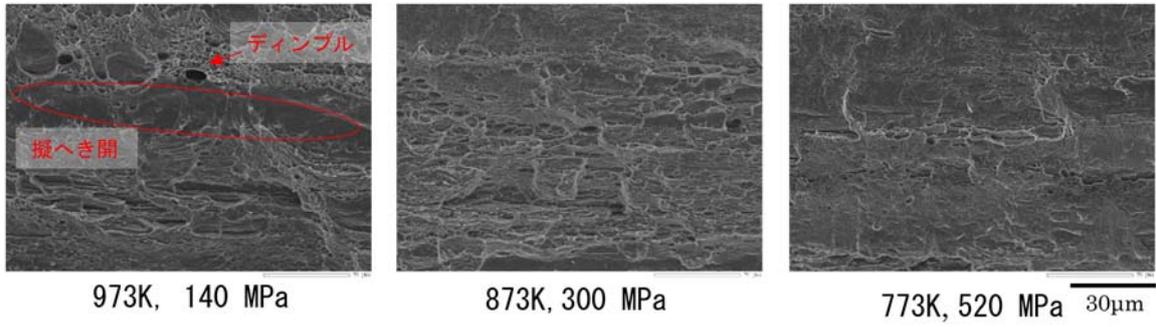
1) 973Kでのヤング率で規格化した応力と
クリープ速度の両対数プロット



2) 873K, 773Kでのヤング率で規格化した応力と
クリープ速度の両対数プロット

図 3.7.4 高温クリープにおけるヤング率で規格化した応力と
クリープ速度の両対数プロット

30appm He注入試料



He未注入試料

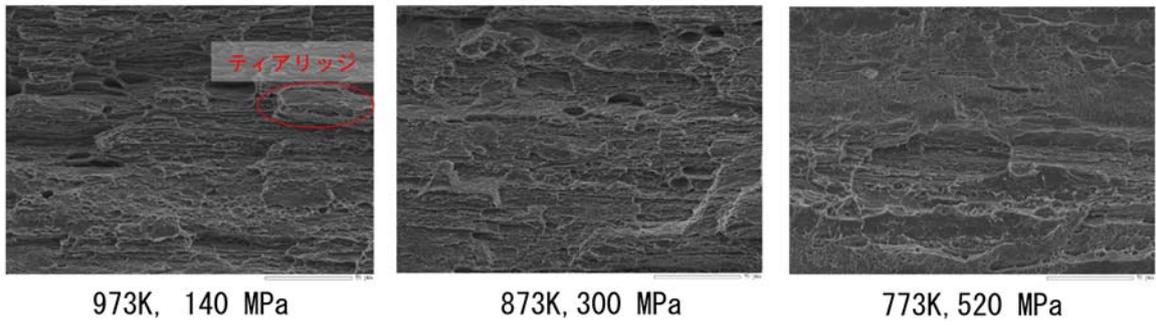


図 3.7.5 各温度・応力にてクリープ破断した試料のSEM 破面写真

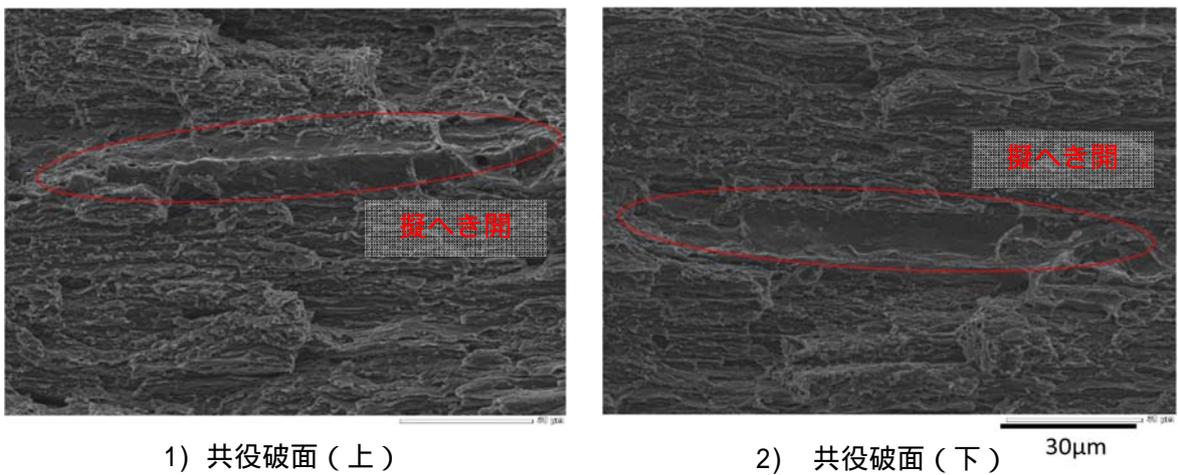
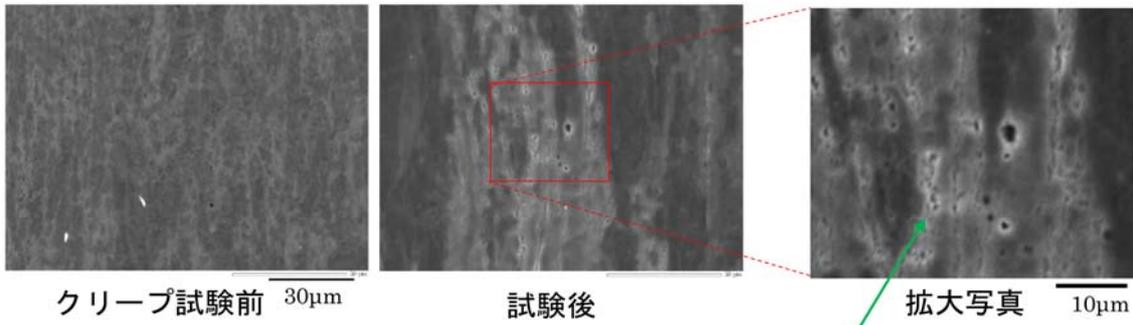


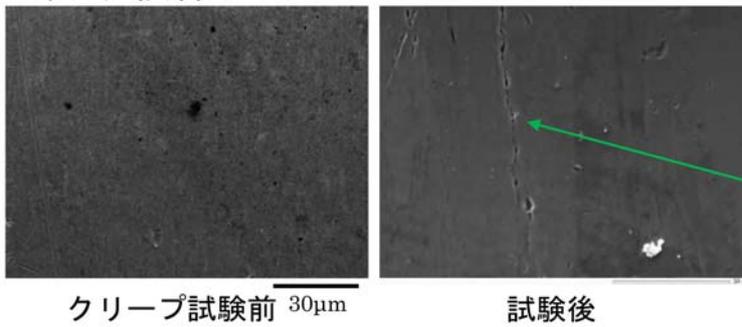
図 3.7.6 973K, 120MPa でクリープ破断した He 注入試料の
共役破面の SEM 観察結果

100 appm He注入試料



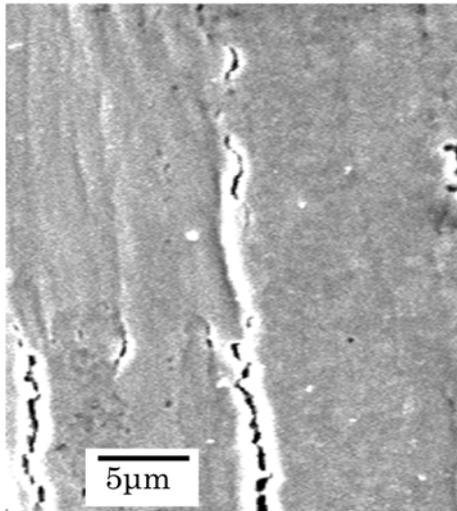
○クラックに多数のバブル状のコントラストが見られる

He未注入試料

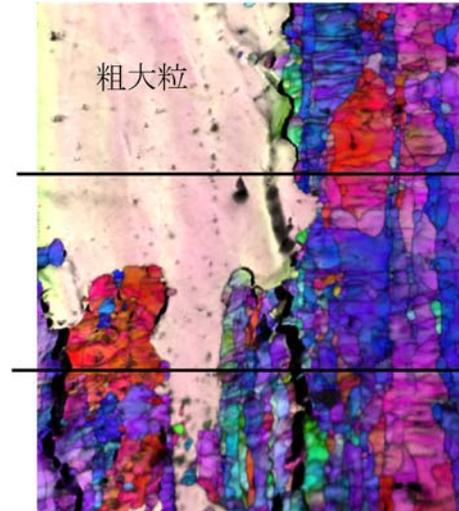


○クラックにおけるバブル状のコントラストは少ない

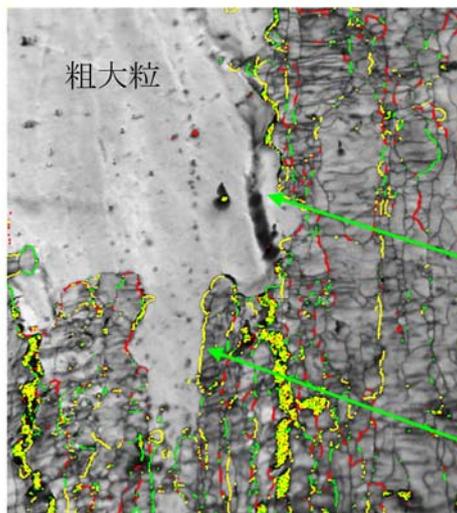
図 3.7.7 973K, 120MPa クリープ試験前と試験後の試料表面 SEM 観察結果



1) 試料表面観察 (SEM)



5μm 2) EBSD測定

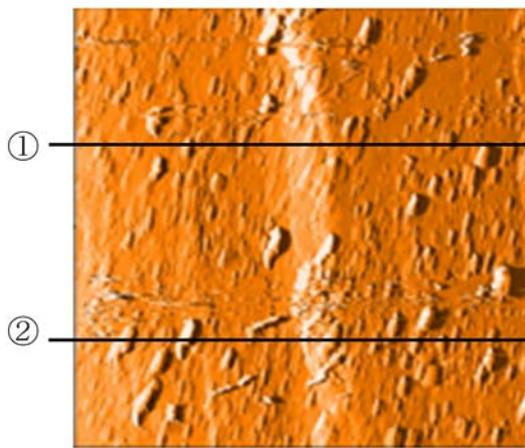


- $\Sigma 19$ ($26.5 \pm 3^\circ$)
- $\Sigma 9$ ($38.9 \pm 3^\circ$)
- $\Sigma 11$ ($50.5 \pm 3^\circ$)

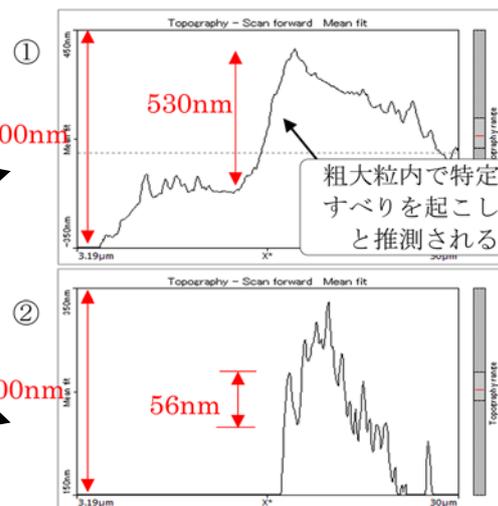
○粗大粒内のクラック伝播には特定の粒内すべりを伴う

○粗大粒の周囲は特定の対応粒界 ($\Sigma 9, 11, 19$) の割合が高い

3) EBSD解析 (結晶粒界方位差分析)

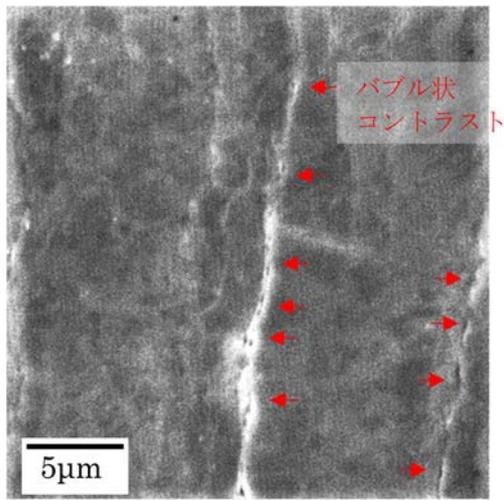


5μm 4) AFM測定

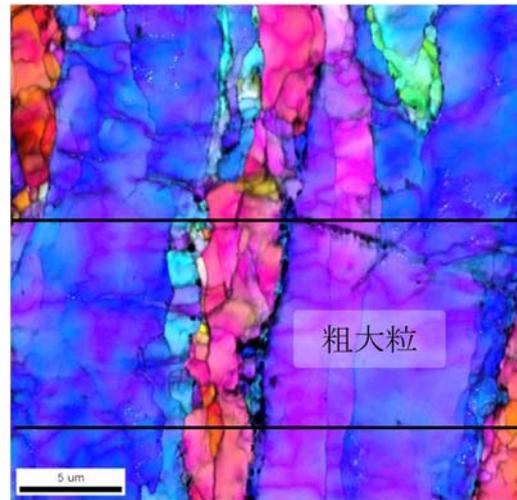


5) AFM解析 (表面段差分析)

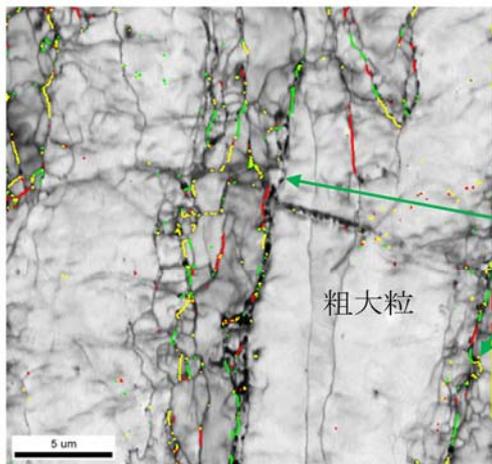
図 3.7.8 He 未注入試料の同一視野における SEM, EBSD, AFM 測定結果



1) 試料表面写真 (SEM)



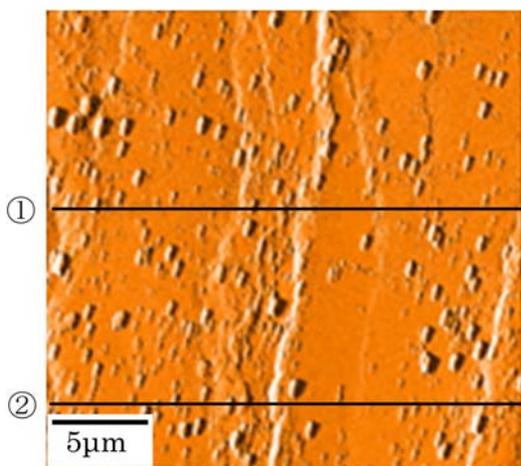
2) EBSD測定



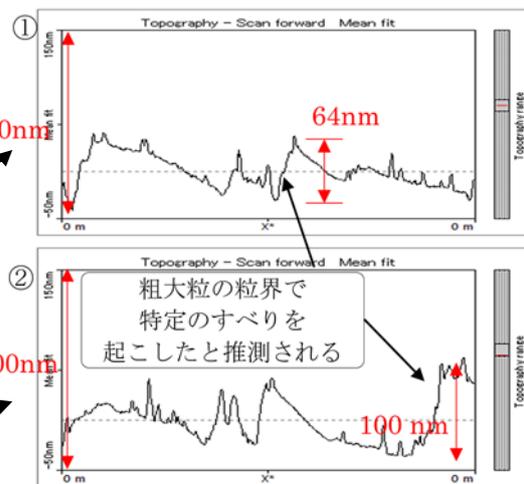
3) EBSD解析 (結晶粒界方位差分析)

- $\Sigma 19$ ($26.5 \pm 3^\circ$)
- $\Sigma 9$ ($38.9 \pm 3^\circ$)
- $\Sigma 11$ ($50.5 \pm 3^\circ$)

- 粗大粒の粒界クラックにバブル上のコントラストが存在する
- 粒界クラックは特定の粒界すべりを伴う



4) AFM測定



5) AFM解析 (表面段差分析)

図 3.7.9 100ppm He 注入試料の同一視野における SEM, EBSD, AFM 測定結果

3.8 中子拡管試験

3.8.1 燃料の炉内挙動と被覆管との相互作用に関する調査

3.8.1.1 燃料のふるまい

軽水炉燃料として用いられる酸化ウラン燃料の特徴と炉内挙動は以下のようにまとめられる。まずその長所としては、適度な加工性を有し、融点が高く高温まで相転移がなく、熱膨張係数が比較的小さく、結晶は等方的で、化学的に極めて安定であり、水、空気、水素、酸素、二酸化炭素雰囲気、オーステナイト系ステンレス鋼、被覆管との共存性に優れるといったことが挙げられる。しかし熱伝導度が低いという性質があり、発生した熱を伝えるという点では不利である。

また燃料ペレットは円柱状（直径8～10 mm、長さ約10 mm）の UO_2 焼結体である。この内部には核分裂生成物（FP）の保持機能があり、燃焼度の増加と共にFPが蓄積し、熱伝導率は低下する。燃料ペレットは高温下で中性子照射を受けた結果、焼きしまり、熱膨張、FPガスの生成と放出、スウェリングなどの変化が生じる。さらに、燃焼の進行とともに燃料ペレットの形態や組織が変化し、燃料の照射挙動に影響を及ぼす。

このような燃料ペレットの体積変化は燃料被覆管との機械的相互作用の原因となり、燃料の炉内挙動に大きく影響する。

・焼きしまり

焼きしまりは燃焼度10 GWd/tまでの低燃焼度で観察され、中性子照射によりペレットが収縮する現象である。焼きしまりが起こると軸方向のギャップが増すので、冷却水圧力の高いPWRでは被覆管が押しつぶされる現象が1972年米国やスイスで発見された。この現象はその後PWR燃料棒の内圧を高めることや、焼きしまりを起こさぬようペレット製造法を改良することによって解決した[3.8.1, 3.8.2]。

・スウェリング

燃料ペレットは炉内使用中にスウェリングを生じる。その原因としては照射欠陥の効果とFPガスの効果に大別される。

照射により、燃料中に格子間原子や空孔のような格子欠陥が生成するが、これらの蓄積は UO_2 の格子定数の変化に反映される。図3.8.1 [3.8.3]は商用炉で照射された燃料ペレットの外周領域あるいは試験炉で照射された試料の格子定数変化についてまとめられたものである。格子定数は燃焼度と共にほぼ直線的に増加し、約40～50 GWd/t以上で飽和する傾向にある。格子定数の増加に伴うペレットの体積増加、即ちスウェリングは50 GWd/t以上の高燃焼度においても0.4%程度であり、FPガススウェリングと比べ小さい（図3.8.2）。

一方、FPは燃焼度の増加とともにペレット内に蓄積する。希ガスあるいはガス状のFP（Xe、Krなど）は当初ペレット内に蓄積され粒内気泡と粒界気泡として析出し、粒界等を経路としてペレット外へ放出される。燃料棒内のギャップに蓄積したFPガスは、内圧上昇、ギャップ熱伝導度低下、燃料温度上昇を引き起こす。そしてこの温度上昇によりFPガスの放出、そしてさらなる燃料温度上昇というサーマルフィードバック効果が生じる。また燃料温度上昇はペレットの熱膨張やペレット被覆管機械的相互作用（PCMI）など、燃料挙動に大きな影響を与える[3.8.4]。一方、ペレット内のFPガスは1～数 μm 程度の気泡（バブル）を形成してペレットの

スウェリングに寄与し、PCMI を増大させる。また、I、Cs などの揮発性 FP は化学的に活性で、高温で移動しやすくギャップなどの低温部に蓄積する。特にヨウ素はペレット 被覆管化学的相互作用 (PCCI) により応力腐食割れ (SCC) を引き起こす。

- ・ リストラクチャリング

UO₂ ペレットには燃焼の進行とともにペレットの割れとリロケーション等が生じ、ペレットの形態や組織が変化する。これを総称してリストラクチャリングと呼ぶ。このほかに、照射欠陥の蓄積に起因した高燃焼度組織の形成も広い意味ではリストラクチャリングという。

- ・ ペレットの割れとリロケーション

照射中、UO₂ ペレットは核分裂により発熱するが熱伝導率は高くないことから、ペレット内には大きな温度分布が生じる。これにより生じる熱応力によりペレットに割れが発生する。ペレットの表面が破壊応力に達するに必要な線出力は約 33 W/cm と評価されており、ペレットは照射開始と同時に割れ、その割れ数は線出力とともに増加する [3.8.5]。図 3.8.3(a) [3.8.5] に UO₂ ペレットに発生する割れの様子を示す。ペレット中心温度が 1,800 の場合、温度勾配に沿った気孔の移動によって柱状晶領域が形成される。一旦ペレットに発生した割れは、1,250 ~ 1,500 以上の高温領域では消滅 (ヒーリング) する。割れが消滅した領域でも、出力下降時に UO₂ の熱収縮による引張応力が発生し再度ペレットに周方向の割れが発生する。

照射初期に割れたペレットの破片は、被覆管とペレットのギャップ部へ移動し、リロケーションが起こる。ペレット内に生じた割れ空間は、被覆管とペレットのギャップ部が詰まることによって相殺される。被覆管と燃料の間には 200 μm 前後のギャップが設けられるが、約 40 MWd/kgUO₂ 付近で閉じ、燃料と被覆管が接触し PCMI が生じる。このときペレットは図 3.8.3(b) に示すようなつづみ型に変形するため、PCMI はペレットの端部で最大となり、各ペレットの端面相当位置ごとに、局所的に変形させる (リッジング)。このリッジングを防ぎ、ペレットと被覆管との相互作用を軽減するため、ペレット端面を小さく面取り (チャンファ) し、更に軸方向の体積増加の逃げの余裕空間として、ペレット両端面に皿状の凹み (ディッシュ) をつけるなどの改善が行われている。このように、ペレットと被覆管のギャップの変化は、UO₂ ペレットの温度や PCI に大きな影響を与える因子となる [3.8.6]。

- ・ 高燃焼度組織 (HBS またはリム組織) [3.8.6]

平均燃焼度が 35 ~ 40 GWd/t 以上で燃料ペレットにおいて特異な高燃焼度組織が形成される。その特徴は、結晶粒の細粒化と粗大化気泡の形成であり、サブ μm から μm サイズの粗大化した気泡がペレット外表面ほど高濃度に分布する。これは、燃料ペレット外表面近傍で ²³⁸U の熱外中性子共鳴吸収による ²³⁹Pu の局所的蓄積と、その結果、局所燃焼度がその部位で高くなることに起因する。そして、HBS 組織形成により、FP ガス放出の増加、ペレットスウェリングの増加、熱伝導率低下による燃料温度の増加が引き起こされる。

- ・ ペレットと被覆管のボンディング [3.8.6]

UO₂ と Zr 合金は両立性が優れているが、燃焼度及び線出力の高い領域ではこの両者が FP 沈着物を介して癒着 (ボンディング) したり、また特に高燃焼度ではジルカロイ被覆管内面の ZrO₂ と UO₂ の拡散層が生成し強固なボンディングを生じたりする。前者では、高燃焼度の燃料から高

温でFP（特にCs）がギャップに放出され、これを介してジルカロイとUO₂が接着し、ZrおよびUの相互拡散により反応層が形成されると考えられている。尚、この癒着相については相反する見解がある。一つは、癒着により被覆管とペレットの摩擦係数が増大しPCMIが強まるという考えであり、もう一つは、Cs-U-O-Zr系で最も安定なCs₂UO₄の機械的性質に関する研究ではこの化合物は粘塑性を有し、PCMIを緩和するものと期待される。後者については、燃焼度の増加に伴うギャップの閉塞により強く接触し、高温照射等の影響により接合すると考えられている。

現在までにボンディング層の形成が原因とされた燃料破損の報告はない。しかしボンディング層がUO₂ペレットと被覆管を化学的に強固に結合させていることから、高燃焼度における燃料挙動への影響を考える必要がある。

3.8.1.2 燃料被覆管材料（Zr合金）の特性[3.8.7,3.8.8]

・物性

燃料被覆管には燃料と放射性物質を閉じ込める機能が要求され、加工性、耐熱性、耐食性、耐水素化、十分な機械強度などが求められ、中性子経済を健全に保つために熱中性子吸収断面積の小さい物質であることが必要である。これらの条件に概ね満たす材料として、ジルコニウム(Zr)合金が採用されている。

Zrは原子番号40の元素で、融点約1850℃であり、図3.8.4に示すように熱中性子吸収断面積が0.18 barnであり、例えばステンレス鋼の約3.5 barnと比較して熱中性子の損失が少ない[3.8.9]。結晶構造は常温で稠密六方構造(hcp)の相を有し、862℃以上で相に変態し体心立方構造(bcc)となる。軽水炉条件ではhcp構造であり変形に寄与するすべり系と双晶系は相対的に少ない。図3.8.5にhcp構造のすべり系と双晶系を示す。すべり系としては{01 $\bar{1}$ 0}[$\bar{2}$ 110]の柱面すべりが知られており、高温においてはまれに(0002)[$\bar{2}$ 110]が起こるといわれている。応力が(0002)方向に対して平行な場合、主すべり系は作用することが出来ないため、代わりに双晶変形が生じる。この時の双晶系は引張応力下で{01 $\bar{1}$ 2}[0 $\bar{1}$ 11]が、圧縮応力下では[$\bar{1}$ 2 $\bar{1}$ 2][$\bar{1}$ 2 $\bar{1}$ 3]がそれぞれ作用する。一般に引張応力下では室温以上ではすべり変形が主に作用するが、圧縮応力下では双晶変形が優勢である。

・被覆管の製造工程

Zrの精錬法や製造工程の詳細については参考文献[3.8.4, 3.8.6,3.8.7, 3.8.10]を参照するとして、本稿ではA-EDCに関する重要な個所について述べる。

Zr合金(ジルカロイ)を管状に加工するために、現在ではピルガー式冷間圧延法(図3.8.6)が用いられている。この手法は上下一対のロールダイスが管を圧下しつつ、回転往復運動をするため、従来の引き抜き法に比べ表面摩擦が小さい。また大きい加工度が得られ、高い表面健全性と寸法精度を要求する燃料被覆管にとって適した加工法である[3.8.7]。

この圧延加工により集合組織が形成される。ジルカロイは冷間加工される温度域において六方晶であり、すべり系が限定され、加工後結晶方向が特定の方向に配向される特性があり、これを集合組織という。ジルカロイの集合組織は加工度（断面積減少率）とQ値(肉厚減少率/直径減少

率)に依存する。

$$Q = \left(\frac{t_0 - t}{t_0} \right) / \left(\frac{d_0 - d}{d_0} \right)$$

t_0 :加工前の肉厚、 t :加工後の肉厚

d_0 :加工前の直径、 d :加工後の直径 (3.8.1)

図 3.8.7 に結晶方位と Q 値の関係を示す。Q が 1 以上であれば c 軸は径方向を向く傾向があり、1 以下であれば c 軸は周方向を向く傾向がある。図 3.8.8 にジルカロイ被覆管の集合組織を示す。図に示すように、Zry-2、Zry-4 とともに(0002)面が半径方向から管周方向に約 30° 傾きを持ち(例: 図 3.8.9)、 $\{10\bar{1}0\}$ 面においては Zry-4 が圧延方向に強いピークを示す。一方、Zry-2 ではピークが円周方向へスプリットした組織である。これは Zry-2 が最終焼鈍で再結晶化処理(580 程度)を施しているためであり、この焼鈍に伴い六方晶が c 軸を中心に回転したことに起因する。図 3.8.10 に Zr の圧延後、再結晶焼鈍後の集合組織の変化を示す[3.8.11]。表から、圧延方向が $(10\bar{1}0)$ から $(11\bar{2}0)$ へ変化するように c 軸に 30° 回転していることがわかる。Zry-4 は歪取り焼鈍(450-480 程度)のため、圧延材と集合組織にマクロな差異は無い。

集合組織はジルカロイの水素化物析出方位と応力腐食割れ特性に影響を与える。水素化物は六方晶の c 軸と垂直な面に析出する盤上の析出物であり、脆い水素化物が被覆管の径方向に析出すると被覆管の延性を著しく低下させる。従って、c 軸を径方向へ向けることで水素化物を周方向に析出させることができ、被覆管の機械的特性を担保できる。また、ウラン燃料の核分より生成される気体であるヨウ素(1)は腐食に寄与しているとされ、被覆管内面で SCC を生じさせる要因となっているが、c 軸方向には進展しにくい特性があるため、同様に集合組織の c 軸を径方向に集積させた方が有利である。

・被覆管の劣化挙動(照射特性)

高速中性子との衝突により材料中の原子が格子位置からはじき出され、格子欠陥が形成される。それらは転位ループやボイドなどの微細組織を形成し機械特性を変化させる。具体的に、強度は増加するものの、被覆管の延性が低下する。図 3.8.11 に Zry-2、Zry-4 の機械強度の照射量依存性を示す[3.8.12, 3.8.13]。強度は高速中性子照射量 $1 \times 10^{25} \text{n/m}^2 (E > 1 \text{ MeV})$ まで急激に上昇し、その後飽和傾向を示すことが分かる。

また照射により、本来被覆管が有している異方性が小さくなり、殆ど等方的にふるまうことが報告されている[3.8.13]。図 3.8.12 に未照射材及び照射材 Zry-2 被覆管に対し、内圧破裂試験を行った時の降伏曲線である。照射前には異方性を有していたが、照射後は等方性材料に対するミーゼスの理論曲線と一致しており、ほぼ等方的にふるまっていることが確認された。Zry-2 を構成する α -Zr は六方晶であり、変形計が柱面すべりに限られているため、未照射材では異方性を示す。しかし、照射により導入された欠陥により、この変形系の臨界せん断応力値が他の面の変形系の値と同等になり、等方性材料の降伏曲線に近づいたものと考えられる。照射はクリープ変形にも影響を及ぼす。照射中は熱により生じるクリープに加え、照射中にのみ生じる照射クリープが存在し、変形がより顕著となる。

被覆管は、応力無負荷の状態でも照射に伴い形状が変化する。これを照射成長といい、高速中性子照射によって六方晶の c 軸方向に縮まり、a 軸方向に伸びる(図 3.8.13)[3.8.12]。被覆管の

c軸は径方向を向いているため、照射により管厚は減少し、直径および全長は増加する。照射成長に影響する因子として、高速中性子照射量、照射温度、集合組織などが挙げられる。図 3.8.14 に BWR で使用された Zry-2 被覆管、PWR で使用された Zry-4 被覆管の伸びの挙動を示す [3.8.12, 3.8.14]。図 3.8.15 に照射成長挙動と転位の相関を示す。中性子照射初期(中性子照射量 4×10^{25} n/m² 以下)において、Zr 結晶の柱面にバーガスベクトル $1/3(11\bar{2}0)$ の a 成分転位の照射欠陥が生じる [1.7]。この欠陥は強度の照射硬化に寄与していると考えられている。高速中性子の照射量が 4×10^{25} n/m² を超えると、a 成分転位が発達する一方で、底面上にバーガスベクトル $1/6(20\bar{2}3)$ の c 成分転位の照射欠陥が生じ、この欠陥が照射成長に関連されていると考えられており [3.8.15 ~ 3.8.18]、以下のモデルが提案されている。中性子照射により形成された空孔及び格子間原子が蓄積及び集合することにより欠陥集合体を形成する。そのとき、六方晶の柱面状に格子間原子型転位ループおよび空孔型転位ループ [3.8.18] が形成する。格子間原子型 a 型転位ループにより a 軸方向にひずみを発生させ、伸びる [3.8.19]。これらの転位ループの形成が飽和することにより成長量は定常になる。また、高照射量におけるブレイクアウェイ現象は柱面上の格子間原子型転位ループが発達することにより発生する。この時、同時に空孔型転位ループが底面に形成し、転位密度と照射成長の挙動が同じこと [3.8.20] から格子間原子型転位ループの発達に関連していることが示唆されている。

・被覆管の劣化挙動（耐食性と耐水素化）

軽水炉内の燃料被覆管は高温高压の冷却水と腐食反応を起こし、表面が酸化膜で覆われる。この時の反応は以下で表される。



この腐食は照射、水質、温度、時間などの環境的要因と、組織、組成、製造条件といった材料的要因に依存して進行する。ジルコニウム合金の酸化膜の性状は、膜全体が均一ではなく、軽水側ではポーラスであり、下地金属と酸化ジルコニウム界面近傍に、溶液の浸透しない緻密な層が存在することが確認されており、この緻密な層が耐食性にとって重要であるとされている [3.8.6]。

酸化に伴う重量増加は Zry-2、Zry-4 に関しては初期段階では 1/3 乗則に従う [3.8.21]。これは腐食機構が拡散現象に加え、表面反応等の過程も考慮する必要性を示唆している。腐食量が約 30 mg/dm² (酸化膜厚 2 μm) 以上になると線形則に従うようになり、これを Breakaway という。この遷移点から、同様に 1/3 乗則に従った腐食が新たに始まる [3.8.22]。腐食初期には酸化膜は安定な m 相(単斜相)が形成されており、体積量の増加(1.56 倍)から酸化膜内には圧縮応力生じる [3.8.23]。1150 °C まで安定である m 相であるが、酸化量が増加に伴う圧縮応力も増加により応力誘起相変態が起こり、m 相よりも体積の小さい t 相(正方晶)が生じる [3.8.24, 3.8.25]。この時、酸化膜には亀裂が生じ、新しい金属層が露出することで Breakaway が生じると考えられている。

Zr 合金は一般には水素吸収材として知られており、炉内においても腐食反応や放射線分解で発生した水素の一部を吸収する。そして運転中に吸収された水素が、運転停止後の降温に伴う固溶限の低下のため Zr 水素化物として析出する。この水素化物 -ZrH_x は、無応力下で母材 -Zr との間で

$$\begin{aligned}
 &(0001)\alpha - Zr // \{111\}\delta - ZrH_x \\
 &(101\bar{7})\alpha - Zr // \{111\}\delta - ZrH_x \\
 &(101\bar{1})\alpha - Zr // \{110\}\delta - ZrH_x
 \end{aligned}
 \tag{3.8.3}$$

の関係を持つことが確認されている[3.8.26~3.8.28]。この中において

$$(0001)\alpha - Zr // \{111\}\delta - ZrH_x
 \tag{3.8.4}$$

が最も析出が生じやすく、全体の8-9割を占める。六方晶であるZrのc軸は径方向に配向されるため、水素化物は図3.8.16の様に管周方向に配向される。

しかし、実際の炉内環境で、被覆管はFPガス、PCMIなどに起因した周方向への外部応力に曝されており、この応力と、その時の温度がある閾値を超えると、水素化物は応力を緩和するように引張方向に垂直な面に析出する性質を示す(図3.8.17)[3.8.29]。即ち、被覆管の径方向に配向する。この現象を水素化物の応力再配向(Stress-reorientation)という。この現象は特に中間貯蔵中に顕著になると予想されている。この時の被覆管温度は約300℃であり、水素の固溶限は約60 wt.ppmである(図3.8.18)[3.8.30]。そのため、水素が材料中に60 wt.ppm以上存在している場合、残りの水素は周方向へ析出する。固溶した60 wt.ppmは閾応力以上の応力が負荷されていると、300℃から冷却される間に径方向に析出が始まる。冷却される際の温度を再配向温度と呼び、閾応力は再配向温度の上昇に伴い減少する傾向を示す[3.8.31~3.8.33]。径方向へ析出した脆い水素化物は亀裂の進展を促すため、被覆管の脆化の度合いは水素化物の配向性に強く影響される[3.8.33]。

水素化物の析出箇所は水素濃度、溶体化処理温度からの冷却速度、そして結晶粒組織に依存する[3.8.34]。冷却速度に関して水素化物は主に遅い冷却速度条件では結晶粒間に析出する傾向にあり、冷却速度が上昇するに伴い結晶粒間、結晶粒内に析出する。結晶粒組織に関して、微細で伸びた結晶粒を持ちひずみ取り処理を行った材料では伸びた結晶粒に沿って粒間に水素化物が析出する傾向があり、一方で再結晶化処理した数μmの等軸晶を持つ材料では結晶粒間、結晶粒内で析出する傾向がある。

・被覆管に作用する応力の整理

原子炉の運転モードは、通常運転、運転時の異常な過渡変化、事故の3つに大別される。前項までは、燃料ペレットと燃料被覆管に関してそれぞれ特徴及び通常運転時の挙動について詳述してきた。本稿では運転状況を時系列的に追い、その挙動を燃料ペレットと燃料被覆管を併せて考えてまとめる。

通常運転時のうち運転初期(~10 MWd/tU)には、中性子照射によりペレットの焼きしまりが生じ、体積減少を引き起こす。ペレットの高密度化(理論密度の95%以上)とHe予加圧の燃料棒を採用することで、上記問題は解決されている。ペレット内の温度分布に起因した熱応力のためペレットに亀裂が生じ燃料ペレットは鼓型に変形し、前述のリロケーションが起こり、これがUO₂ペレットの温度やPCIに大きな影響を与える因子となる。そして燃焼度の増加に伴い、FPガスが放出され、ペレットのスウェリングが生じ、その結果、内圧上昇やPCMIが作用する。

原子炉運転時の異常な過渡変化では、原子炉施設の寿命期間中に予想される機器の単一の故障もしくは誤動作又は運転員の単一の誤操作、及びこれらと類似の頻度で発生すると予想される外乱によって生ずる異常な状態に一時的に至る事象のことを指す[3.8.35]。このとき燃料及び原子

炉冷却材圧力バウンダリの破損は起こらないが、放置されると炉心あるいは原子炉冷却材圧力バウンダリに損傷をもたらす可能性がある。原子炉施設の構築物、系統及び機器には通常運転時の変動状態のみならず、この異常過渡状態においても安全性を確保することが要求されている。想定事象は3つ大別される。すなわち、炉心内の反応度または出力分布の異常な変化、炉心内の熱発生または熱除去の異常な変化、原子炉冷却材圧力または原子炉冷却材保有量の異常な変化である。

事故は「運転時の異常な過渡変化」を超える異常な事態であって、発生した場合は原子炉施設からの放射性物質の放出の可能性があり、原子炉施設からの安全性を評価する観点から想定する必要がある事象を指す。軽水炉の設計想定事故事象としては、反応度事故(RIA)および冷却材喪失事故(LOCA)がある。

(1) 反応度事故(Reactivity-Initiated Accident; RIA)

原子炉内において、制御棒の急な移動により炉心に短時間で大きな異常反応度が印加されると、原子炉の出力は急上昇する。このとき、印加された反応度が1ドル以上の場合を反応度事故(RIA)と呼び、原子炉は即発臨界以上の状態になり、出力暴走が発生する。図3.8.19にBWR制御棒落下事象における出力と燃料温度の過渡変化を示す[3.8.6]。軽水炉における有意な暴走出力の発生時間は普通 $10^{-1} \sim 10^{-2}$ 秒程度である。このため事象発生直後は燃料ペレットからの熱流出は殆どなく、発熱は断熱的に蓄積されるため(図3.8.20)、燃料ペレット内の温度分布は発熱分布(=瞬間的な局所燃焼度)となり、僅かではあるがペレット外周部に高く、中心部に低い、凹型の温度分布となる[3.8.6]。従って、ペレットの形状は樽状になると考えられる。この暴走出力中のペレットの保有する最大エンタルピー、すなわち断熱条件での燃料ペレットの発熱量(積算熱量)がその後の燃料棒の挙動を決定する。瞬間的な暴走出力が終わると燃料の発熱は非常に小さくなり被覆管への熱流出によりペレットは外側から冷却される。

この事象は次の二つのプロセスを経て燃料破損につながる。燃焼の進んだ燃料において、RIA条件下による燃料の加熱により燃料ペレットは急速に熱膨張し、被覆管と接触する。そして被覆管が押し広げられるような大きな周方向応力が発生する。この時点での燃料ペレットから被覆管への熱伝達は顕著でなく、被覆管は比較的低温状態(冷却材と同じ約300)であるため、脆化の進行が顕著であれば被覆管に軸方向に割れが発生する可能性がある。これをPCMI破損という。PCMIにより破損しなかった場合、その後被覆管表面で沸騰遷移が起こり、液体より伝導性の低い蒸気に覆われることで、被覆管温度が急上昇する可能性がある。この時、大量のFPガスが被覆管とペレット間のギャップ部およびプレナム中に放出され、燃料棒内圧がシステム圧力を上回るような状態になれば、高温によって軟らかくなった被覆管は膨れ(バルーニング)を開始し、場合によっては破裂に至る。これを高温破裂破損という。

RIAに関しては実験的、計算学的手法で様々な研究がなされている。実験的な手法としては、フランスのCABRI炉[3.8.35~3.8.39]や、日本の原子炉安全性研究炉(Nuclear Safety Research Reactor; NSRR)[3.8.35, 3.8.40, 3.8.41]での研究がある。図3.8.21 [3.8.42]にこの二者の実験結果をひずみ比として整理して示す。対応するひずみ比と応力の状態を図3.8.22に示す。NSRRでは、被覆管温度の上昇により核沸騰から膜沸騰に遷移し、断熱状態が相対的に長時間となりFPガスのキャップへの放出が促進され内圧が上昇したことにより、平面ひずみ引張状態を達成している。一方CABRIでは、280 のNa冷却材を用いていることから、冷却材への熱伝達が効率よく行

われ、等二軸引張状態が達成されている。以上のことからRIA中にPCMIが生じた時、周方向応力が被覆管中で最大要素となるが、実際は軸引張にも作用した二軸応力状態で変形を起こす。被覆管において軸方向の応力を σ_{zz} 、周方向の応力を $\sigma_{\theta\theta}$ としたとき、RIA時におけるPCMIではおよそ $\sigma_{zz} / \sigma_{\theta\theta} = 0.5 \sim 1.0$ の二軸応力状態を持つ。この応力状態は多くの研究で適用されている単軸引張経路と大きく異なるものであり、RIA条件下での正確な変形、破壊挙動を知る上で重要な要素である。また、この時の燃料の変形挙動を表3.8.1 [3.8.35, 3.8.38]にまとめた。樽型変形は燃焼度の高い燃料で観察され、一方で鼓型のまま変形しジジングを起こしているものも報告されている。

(2) 冷却材喪失事故(LOCA) [3.8.6, 3.8.43]

軽水炉において、その圧力境界である主冷却系配管などの破損や、弁が開いたままになって冷却材が流出し続け、通常の給水系では原子炉内の冷却材の量を維持できない事態を冷却材喪失事故(LOCA)と呼ぶ。このとき非常用炉心冷却系(ECCS)が働き低温の水を注入するが、燃料が高温にある間著しく酸化すると被覆管は脆くなり、ECCSの熱衝撃により被覆管が破断する可能性がある。被覆管の破断を防止するためにLOCAの安全基準が設けられており、最高温度1200以下、酸化膜厚が管厚の15%以下となるように使用が制限されている。この基準内では、被覆管にはある程度の延性が残っているので、被覆管の破損は起こらず、冷却可能な燃料集合体の形状を維持できる[3.8.43]。運転中の劣化(腐食、水素吸収、照射損傷など)が急冷時の耐破損特性に及ぼす影響も調査されており[3.8.44]、劣化を加味しても上記の基準でも破損が生じていないことから、現行の指針の保守性が確認されている。

3.8.1.3 被覆管の機械強度の評価

前述のように、燃料被覆管は原子炉の安全確保の要であり、過酷な環境下で十分な機械強度が要求される。今後の燃料高度化に向け更に高いレベルが要求されると予想されるが、そもそも管状試料の機械特性を評価することそれ自体が非常に難しいという問題がある。

管状試料の機械強度の評価手法は今まで実に様々な方法が考案されており、それぞれメリット、デメリットがある。本項目では従来からよく使用されてきた手法から、新規の機械試験法についてレビューする。その中でも特にPCMIを模擬できるとされるEDC試験について詳述し、それをもとにして本事業で開発した改良型EDC試験について述べる。

・リング引張試験

リング引張試験では、一般に実施されている板状材料の引張試験と同様の方法で試験結果を評価でき、さらにホットラボにおける試験が容易であることや一度の試験で必要とする試料が少量で済むため、多くの試験が実施可能であるなど様々な利点を有している[3.8.45, 3.8.46]。周方向荷重による被覆管の変形の再現させるためや、試験治具とリング試験片との間に生じる摩擦の影響を低減させるために様々な試験方法が改良されてきた(図3.8.23)。(a)は従来のリング引張試験の試験片を示している。図からわかるようにリング試験片の曲率を持った部分を直線状に変形させる曲げモーメントが発生するため、周方向荷重による被覆管の変形を再現できなかった。なおかつ、変形範囲が不明で伸びを定量的に判断できなかった。(b)では、従来型と同様の

引張方向であるが、ゲージ部を作製することで変形領域を限定している。最近の研究でも利用されているが[3.8.47]、ゲージ部に曲げモーメントが発生している。引張方法についても検討がなされており、(c)に示されるように3ピースマンドレルを用いて引っ張る方法と(d)に示すようにゲージ部を引張治具(ハーフマンドレル)の頂部にセットして引っ張る方法である。これらは結局、(d)のゲージ部に摩擦を低減させるためのテフロンテープを挟む方法が最適であると示された。更に(d)のモデルを用い、周方向の荷重が作用した場合についての有限要素解析が北野らによって実施された。その結果を図3.8.24に示す。半径方向分布については平行部中央で内外差があり、内面側のひずみが大きくなっている。しかしながらその差は非常に小さいものであった。また平行部中央では軸方向にも若干のひずみ分布が生じており、中心でひずみが大きくなっている。ゲージ部においてひずみの分布は複雑であり、どのひずみ領域で破断が開始するか把握しにくい。

・平面ひずみ引張試験 (PST 試験)

平面ひずみ引張試験は Link et al.によって提案され、ゲージサイズを最適化しつつジルカロイ被覆管試料に適応されてきた[3.8.48]。図3.8.25に試験片の形状を示す。この試験片を用い図3.8.26に示すように、リング内部に"D"の形をしたマンドレルを、その弧の中心が試料のゲージ部に来るように2つ入れる。このとき、マンドレルと試料の接触面に、摩擦を低減するためにテフロンテープを挟んでいる。また、ゲージ部に刻み目を入れることによってひずみを測定している。平面ひずみ引張試験の有限要素解析も行われており[3.8.49]、図3.8.27に示す実験結果と解析結果双方から、この試験法による変形経路はゲージ中心から1/3の領域において平面ひずみ引張をとることが分かった。この領域は延性材料で作られた試料において破断が始まる領域であるため、平面ひずみに近い条件での破断を再現できると期待されている。

・バースト試験

バースト試験法は図3.8.28のように、圧縮した空気圧、水圧、あるいは油圧を管内部に送り管を破裂させる試験法でひずみ限界の確認のための標準的な負荷方法である[3.8.50]。被覆管に生じる周方向応力は以下の式から求められる。 p は内圧、 D は平均直径、 t は管厚である。

$$\sigma_{\theta} = \frac{pD}{2t} \quad (3.8.5)$$

管軸引張方向(σ_z)とフープ応力(σ_{θ})の比が1:2であり、高ひずみ速度を与えることが容易であるため、FPガスによる内圧や、RIAによるPCMIを模擬する上で有利とされる。

しかし、同試験法では膨れなどの変位と内圧との関係が得られないため、試験結果から異常過渡時や事故時の被覆管の変形過程を予測することはできない。更に、実炉燃料を用いた照射試験を考えた場合、バースト試験では長い試料(150-160 mm)を必要とするため、燃料ペレットの除去が容易でなく、試料調整が困難という欠点もある。また、試料体積が大きいということは放射性廃棄物の増加が懸念され、かつ、水素濃度の軸分布変化が大きい被覆管では一様な材料が得られない可能性もある[3.8.51]。加えて、二軸応力下であるから、円周方向破断ひずみはリング引張

試験などの単軸引張試験と比較すると小さい値となり、最大応力値も過大に評価されるため(図 3.8.29[3.8.52])、挙動解析コードの入力値として必要な単軸応力下での応力 - ひずみ関係(構成方程式)を直接的に求めることは困難である[3.8.53]。

- ・オープンエンドバースト(Open End Burst; OEB)試験[3.8.53]

OEB試験はリング引張り試験と同様に円周方向単軸引張り応力状態が作用し、また内圧を作用させるのでリング引張試験とは異なり摩擦力がなく、かつリング試験片のような巨視的なゆがみも生じない。さらに内圧負荷なので高いひずみ速度での荷重負荷が容易である利点がある。OEB試験の模式図を図 3.8.30 に示す。本試験では被覆管の両端内部に O-リングが挿入され、中子によって O-リングが被覆管内面に圧迫されることにより、一方の端栓から導入された加圧媒体は密閉される。加圧媒体により被覆管の周方向応力は発生するが、被覆管両端に作用する内圧による力は装置の基盤が支えている。被覆管は O-リングに接触しているだけなので、管の長手方向には内圧による引張り応力は発生しないことから、周方向単軸の引張応力状態になる。試料長さは 45 mm であり、試料体積は比較的大きい。

- ・リング圧縮試験[3.8.33, 3.8.54] [2.37]

リング圧縮試験は図 3.8.31(a)(b)に示すようにリング状の試料を剛体にはさみ、押しつぶすことにより変形を与える試験法である。被覆管材を 8 mm の高さに切り取ったものを試験片として使用しているため、比較的少量の試料で済むことも特徴である。図 3.8.32[3.8.33]に示すように、試験結果は荷重と剛体の変形量(クロスヘッド移動量)により評価され、降伏応力と破断ひずみを求めることが出来る。

更に Busser らは、リング圧縮試験の三次元有限要素解析を Cast3m ソフトで実施した。その結果を図 3.8.33[3.8.56]に示す。平面ひずみ状態を示す領域を青色で分布したものであるが、最も曲げ変形が大きくなる部分において、広く $\sigma_z/\sigma_\theta \cong 0.5$ の平面ひずみ引張状態が広がっていることがわかる[3.8.55]。しかし、試験片肉厚の中央から外側にかけては引張応力が作用しているが、中心から内部にかけて圧縮応力が作用するため、発生する応力、ひずみは肉厚方向に正の値から負の値まで大きく分布するような負荷状態での結果を得ることになる。さらにこれらの応力、ひずみは曲げによりごくわずかな箇所が発生したものであり、実際の原子炉内での応力を模擬できているとは言えない。

- ・Electromagnetic forming (EMF) 試験

EMF 試験は EDF(Electricité de France)のもと開発された試験法で、 5 s^{-1} と高いひずみ速度での変形を付与することが出来る[3.8.56]。図 3.8.34 に EMF 試験の模式図を示す。被覆管試験片の内部に銅管製の駆動体(Copper driver)と、更にその内部に銅製のソレノイドを配置している。この試験法では、銅ソレノイドに大きなパルス電流をかけることで磁場が変化し、銅管駆動体に誘導電流がかかる。すると銅は外側に向かう力を受け、拡管される。これにより被覆管に変形が付与される。直接被覆管を変形させず銅ドライバーを介入させるのは、この成形法が電気

伝導率の良い物質にのみ効果的であり、伝導度の低い Zr はこの変形法は適していないためである。

被覆管の外側は、一部に楕円形の穴をあけたダイにより覆われている。これは試験片に二軸ひずみを与えるためであり、従来のリング引張試験やリング引張試験よりも良いひずみ比を与えることが出来る。このダイはベリリウム銅製であり、非常に高い強度を持つ。結果として、楕円形の穴部に位置する被覆管のみが穴に沿うように変形する。

試験後の試験片外観を図 3.8.35 に示す。ダイにあけられた楕円径の穴のサイズは 5×4 mm である。この試験では破断ひずみ値を測定するために、被覆管外表面に格子を刻むが、その格子にそって破壊が発生し亀裂が進展していることがわかる。このように格子が破断の発端になりうるため、実験結果が正確な破断ひずみ値を与えているとは限らない。

・中子拡管 (Expansion Due to Compression; EDC) 試験

RIA による PCMI が引き起こす被覆管の破壊は、フープ引張荷重下で軸方向への亀裂の伝播により起こる。試験片形状が原因で、リング引張試験等によるフープ引張試験で形成される破面はこの破壊モードを模擬することが難しい。そのため、実際の荷重条件と破断モード条件下での材料の損傷と破壊を調査するため、EDC 試験が開発された[3.8.57~3.8.65]。開発の方針として、適切な応力状態と破壊挙動、RIA 試験に似た破壊を与えること、小さな試料で試験が可能であること(20 mm)、RIA と同等のひずみ速度であること、広い温度範囲での試験を可能にする等が挙げられる。図 3.8.36 に EDC 試験の模式図を示す。図のようにピストンで被覆管内に設置された円柱状のペレットを圧縮し径方向へ拡張することで被覆管に荷重を与え、周方向応力を作用させる機械試験法である。Grigoriev らは中子として柔らかいポリマーのテフロンを採用している。被覆管の直径とピストンに作用する力は連続的に記録され、周方向破断ひずみは周全体の長さの増減から決められた。この試験法の利点として、被覆管が中子との機械的相互作用によって変形するため、実炉環境で生じる PCMI を模擬することができること、周方向に均一な変形を加えることができることが挙げられる。

また Desquines らは EDC 試験の応力状態、ひずみ比を有限要素解析 (FEM) を用いて評価した [3.8.49]。図 3.8.37 に結果を示す。FEM により被覆管の厚さ全体でフープひずみがほぼ一様であることがわかる。また、ひずみ比はほぼ一定で、約-0.5 を示している。応力状態 (σ_z / σ_θ) は σ_z / σ_θ が増加するにつれて増加傾向を示すがおおよそ 0 に近い値をとる。よって EDC 試験中の応力比とひずみ比は下式のように表され、部分的ながら単軸引張条件を示す。

$$\frac{\varepsilon_z}{\varepsilon_\theta} \approx -0.5 \quad \frac{\sigma_z}{\sigma_\theta} \approx 0 \quad (3.8.6)$$

・改良型中子拡管試験 (Advances-EDC; A-EDC)

EDC 試験において、従来の試験法では試料長さが 20 mm と比較的大きく、イオン照射などでビームを絞る場合には照射する体積量が大きすぎる。また誘導放射能の減少も必須である。従って EDC 試験の試料には更なる体積の減少が望まれる。また、中子にテフロン(融点: 約 300)を用いていることから、高温下での試験環境に適していない。実機環境下において、燃料被覆管は通

常運転時で約 300 、異常過渡や事故時では更に上昇する。当事業ではこういった EDC 試験の弱点を改善するべく、EDC 試験をもとに改良型中子拡管 (A-EDC) 試験の開発を行った[3.8.66, 3.8.67]。図 3.8.38(a)に A-EDC 試験の概念図を示す。従来型 EDC 試験を踏まえ改良した結果、以下のような特徴がある。まず、中子に金属を使用し、これにより高温試験にも適用できるよう改善した。また、被覆管試料をリング状に変更することで試料体積を大幅に減少させ、照射材を用いた試験も容易とした。同時に摩擦箇所の低減も達成した。A-EDC 試験の最適化の結果、中子試料に銅を用い、中子高さは 8 mm、リング高さが 1 mm の試験体系が優れているという結論に至った。

また、最適化された試験体系を有限要素解析によって解析し、被覆管試料の応力比やひずみ比を求めた[3.8.66, 3.8.67]。中子 - 被覆管間の摩擦係数を $\mu = 0.05$ としたとき、応力比 $\cong 0.5$ 、ひずみ比 $\cong 0$ に収束していき、安定した周方向単軸引張条件を満足していることがわかった(図 3.8.38(b))。Desquines らにより求められた図 3.8.37 と比較しても、安定した値を示していることがわかる。

・上記の機械試験の比較

Desquines らは周方向に応力を作用させる様々な試験法と実炉の応力状態を比較した[3.8.49]。図 3.8.39 に比較結果を示す。横軸を $\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta}$ 、縦軸を $\varepsilon_{zz}/\varepsilon_{\theta\theta}$ としているが、この表記法は、試料に対し、ある応力(σ_{zz} と $\sigma_{\theta\theta}$)を与えたときに、あるひずみ(ε_{zz} と $\varepsilon_{\theta\theta}$)が生じたことを一つの図中に示すことができる。ただし、被覆管は管厚が薄く平面応力状態として扱えることから、径方向応力 σ_r は無視できるものとする。図中赤色の曲線は、管状試料における応力とひずみの理想的な関係を示した理論曲線である。応力を実験的に求めることのできない RIA などはひずみ比から応力状態を予測することができる。図から、EDC 試験は比較的理論曲線状に乗っているが、RIA などの実炉環境下での応力状態と大きく異なることがわかる。前述のバースト試験でも触れたが、応力状態が異なると機械的特性を過大、あるいは過小評価する可能性がある。

・理論曲線の導出[3.8.49]

平面応力状態である被覆管の応力テンソルは以下のように表される。

$$\bar{\sigma} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{\theta\theta} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \quad (3.8.7)$$

流れ則(物質が降伏した後の応力と塑性ひずみ増分 $\dot{\varepsilon}^p$ の関係)のもと、被覆管の変形を考える。偏差応力によって $\dot{\varepsilon}^p$ が生じるため、以下の比例関係が得られる。

$$\dot{\varepsilon}^p = \lambda \cdot dev(\bar{\sigma}) \quad (3.8.8)$$

ここで、 λ は定数、偏差応力 $dev(\bar{\sigma})$ は各垂直応力から平均垂直応力を減じたものである。平均垂直応力は各成分の垂直応力の平均値で表されるので被覆管の偏差応力テンソルは以下のように表される

$$dev(\bar{\sigma}) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{\theta\theta} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix} - \frac{\lambda}{3} \begin{pmatrix} \sigma_{\theta\theta} + \sigma_{zz} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{\theta\theta} + \sigma_{zz} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{\theta\theta} + \sigma_{zz} \end{pmatrix} \quad (3.8.9)$$

従って、各垂直成分の塑性ひずみ増分は以下ようになる。

$$\begin{pmatrix} \dot{\varepsilon}_{rr}^p & 0 & 0 \\ 0 & \dot{\varepsilon}_{\theta\theta}^p & 0 \\ 0 & 0 & \dot{\varepsilon}_{zz}^p \end{pmatrix} = \frac{\lambda}{3} \begin{pmatrix} -\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{zz} & 0 & 0 \\ 0 & 2\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{zz} & 0 \\ 0 & 0 & 2\sigma_{zz} - \sigma_{\theta\theta} \end{pmatrix} \quad (3.8.10)$$

ここで、単位時間あたりに線形的に負荷されると仮定すると以下の式が求められる。

$$\frac{\varepsilon_{zz}}{\varepsilon_{\theta\theta}} = \frac{2 \frac{\sigma_{zz}}{\sigma_{\theta\theta}} - 1}{2 - \frac{\sigma_{zz}}{\sigma_{\theta\theta}}} \quad (3.8.11)$$

上式が管状試料の応力状態、ひずみ比の理論曲線となる。

・ 応力状態の破断ひずみへの影響

Yunchang と Koss は水素化した Zry-2 平板に対し、パンチ試験に単軸引張試験を組み合わせた複軸応力条件で試験を行い、破壊条件の変化について報告した[3.8.42]。図 3.8.40 に各水素濃度における破壊時の圧延方向 (RD)、その垂直方向 (TD) のひずみ量を示す。図中 ε_1 、 ε_2 はそれぞれ被覆管における周方向ひずみ、軸方向ひずみに対応している。 ε_1 を低下させながら試験条件のひずみ比を変化させると、破断ひずみは線形的に変化することがわかる。つまり単軸引張から平面ひずみ引張、等二軸引張へと応力状態を変化させると破断ひずみは低下する。

3.8.1.4 本節の目的

上記の研究調査を踏まえ、本節の目的として、A-EDC 試験の開発と改良について過去 4 年間の研究をまとめる。

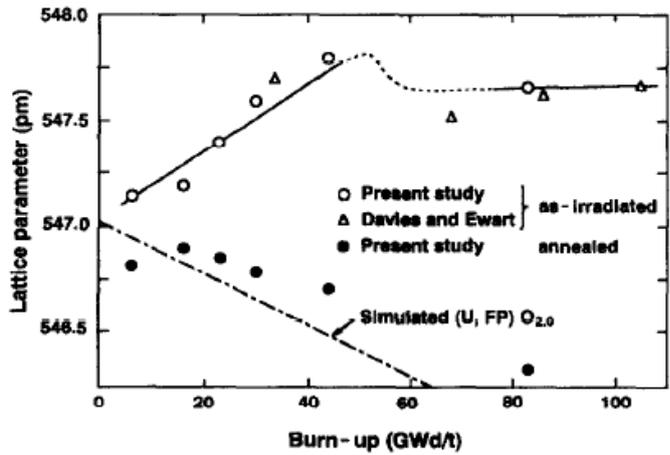
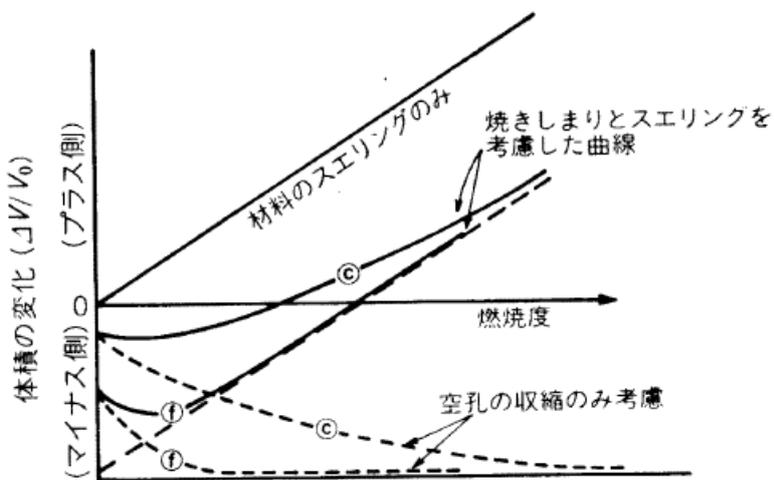


図 3.8.1 燃焼度に伴う格子定数の変化



(注) ①: 微細空孔を持ったペレット
 ②: 粗い空孔を持ったペレット

図 3.8.2 焼きしまりとスウェリングの重なり

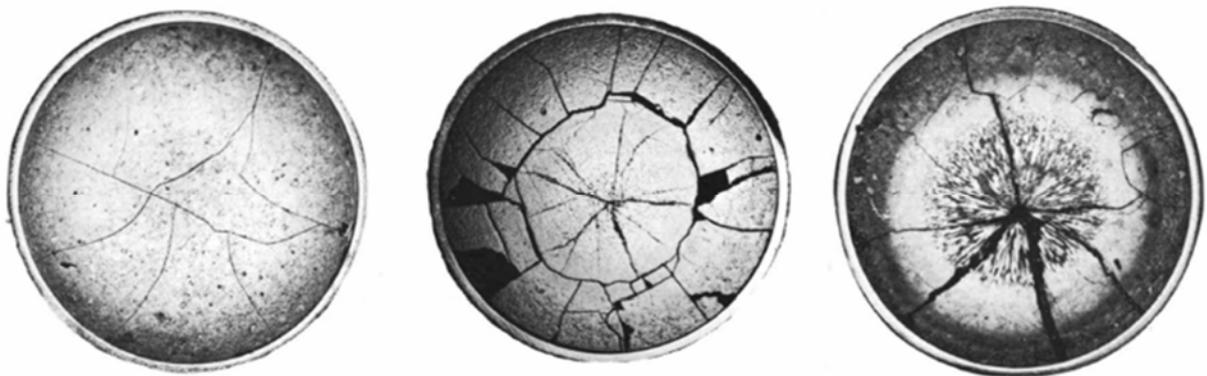


図 3.8.3(a) UO_2 ペレットに発生する典型的な割れパターン
 左から中心温度がそれぞれ 1,000、1,400、1,800

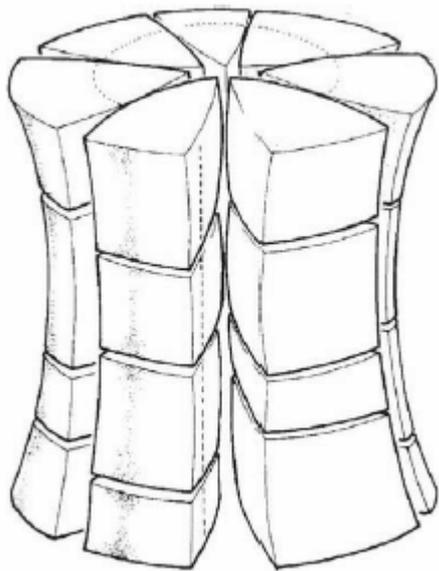


図 3.8.3(b) ペレット内部温度分布によるつづみ型変形
(被覆管による拘束下)

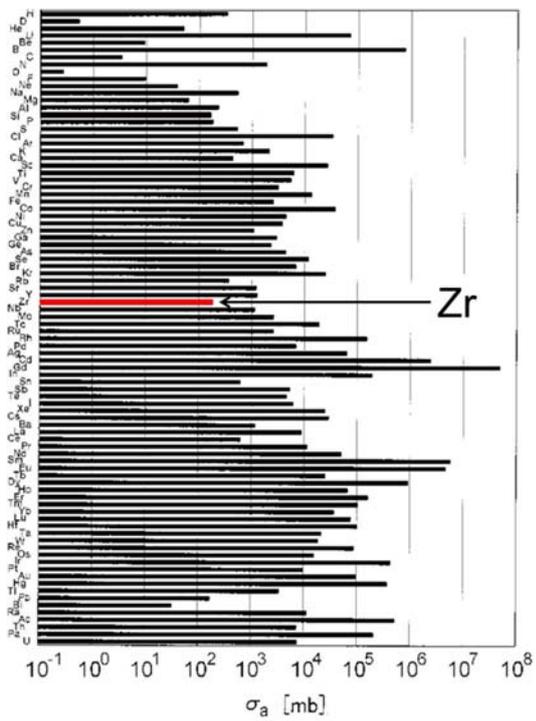


図 3.8.4 各元素の熱中性子の反応断面積

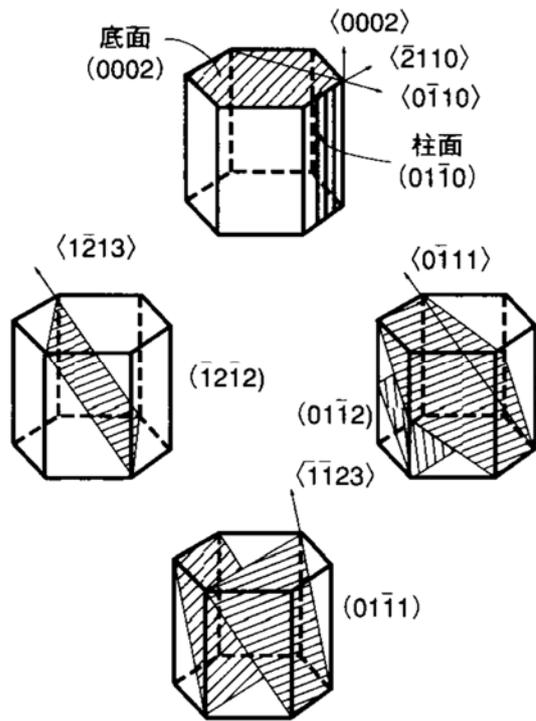


図 3.8.5 hcp 構造のすべりと双晶の系

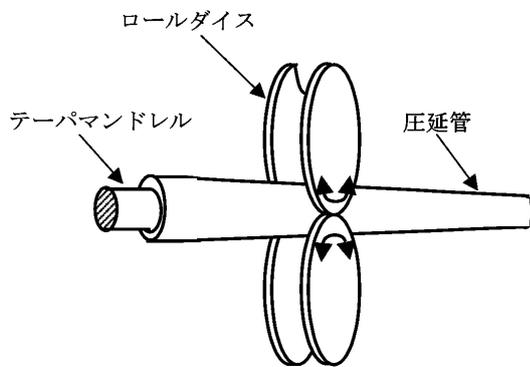


図 3.8.6 ピルガー式圧延法

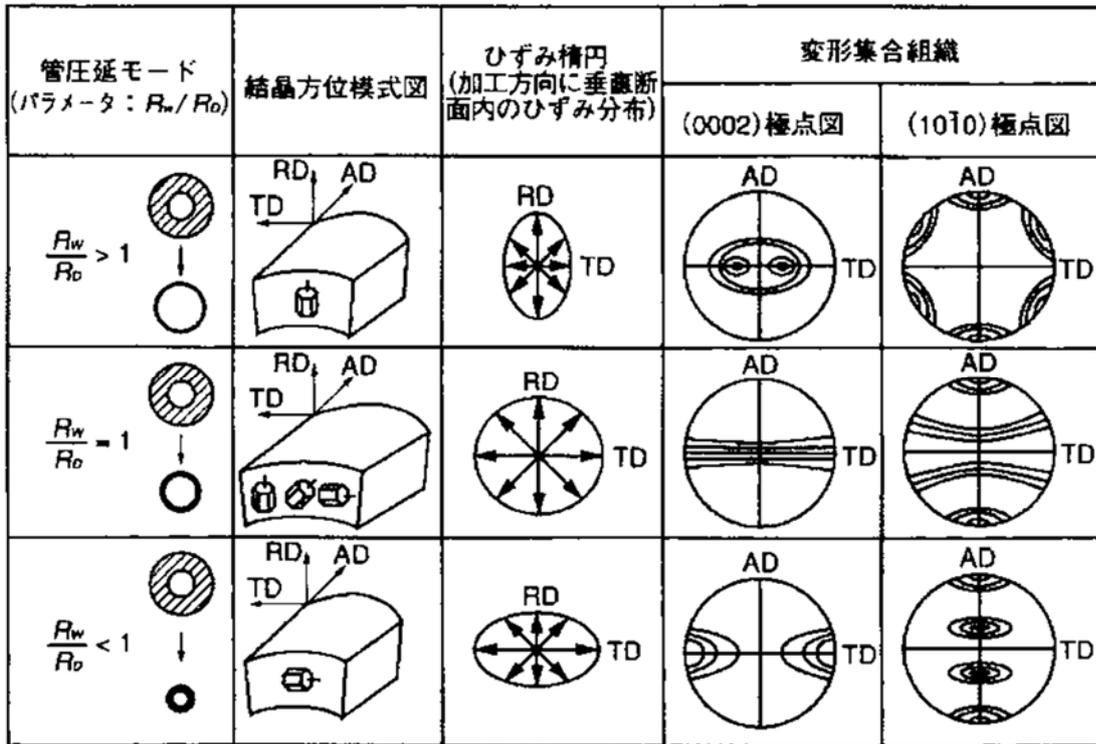


図 3.8.7 結晶方位と Q 値の関係

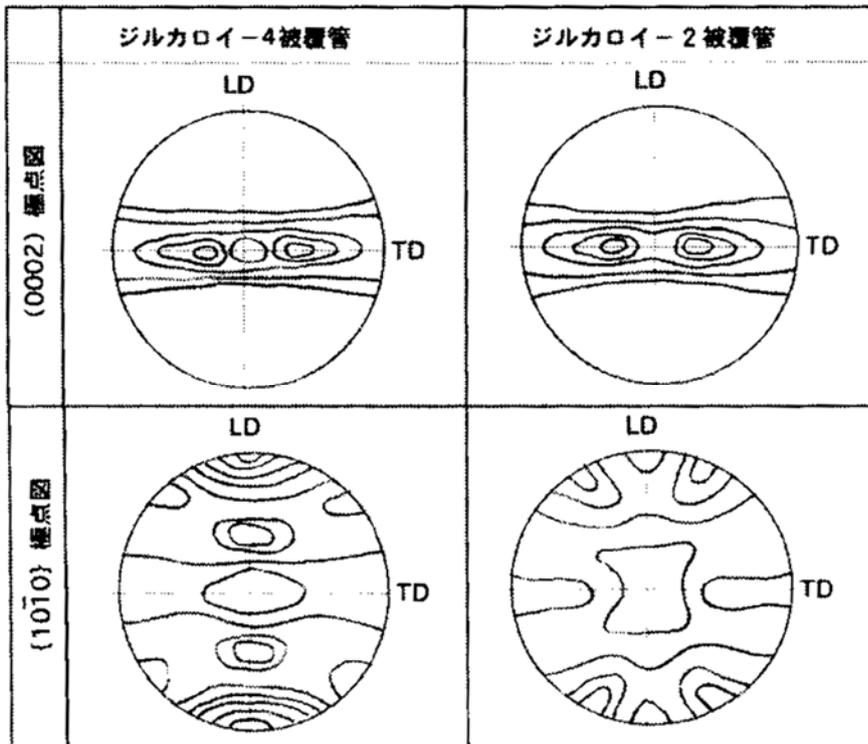


図 3.8.8 ジルカロイ被覆管の集合組織

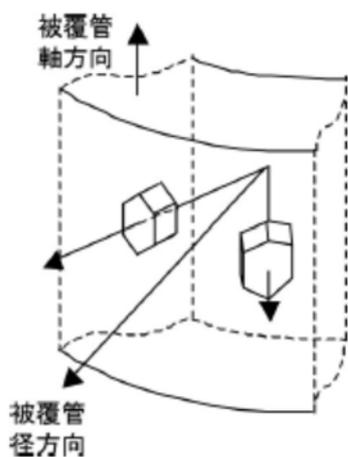


図 3.8.9 ジルコニウムの結晶構造

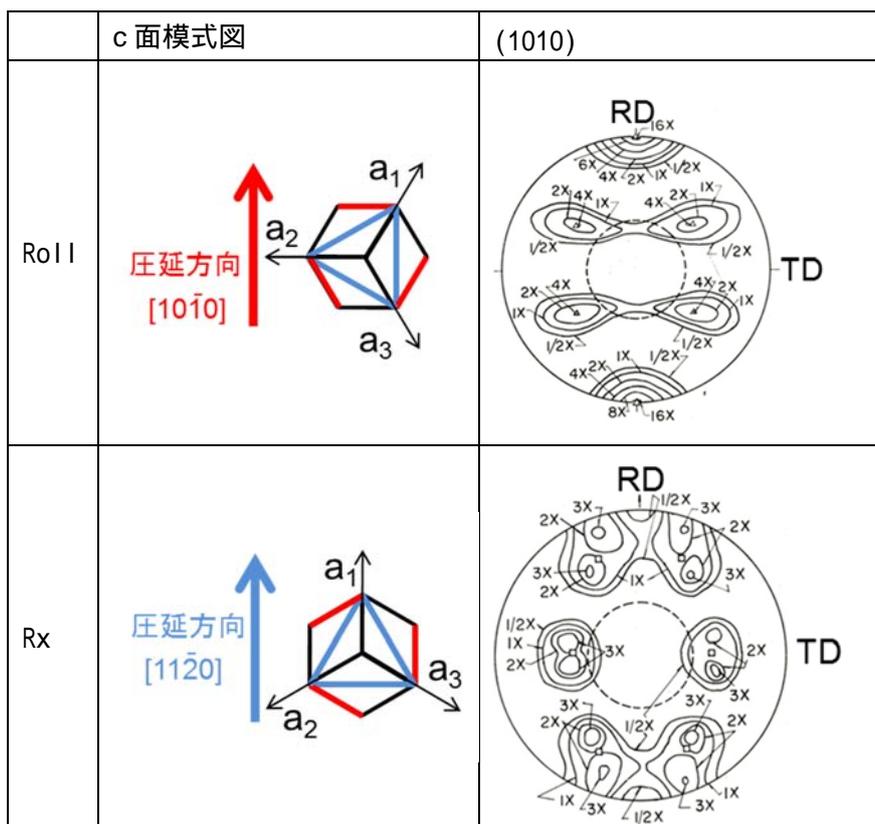


図 3.8.10 圧延材と再結晶材の集合組織

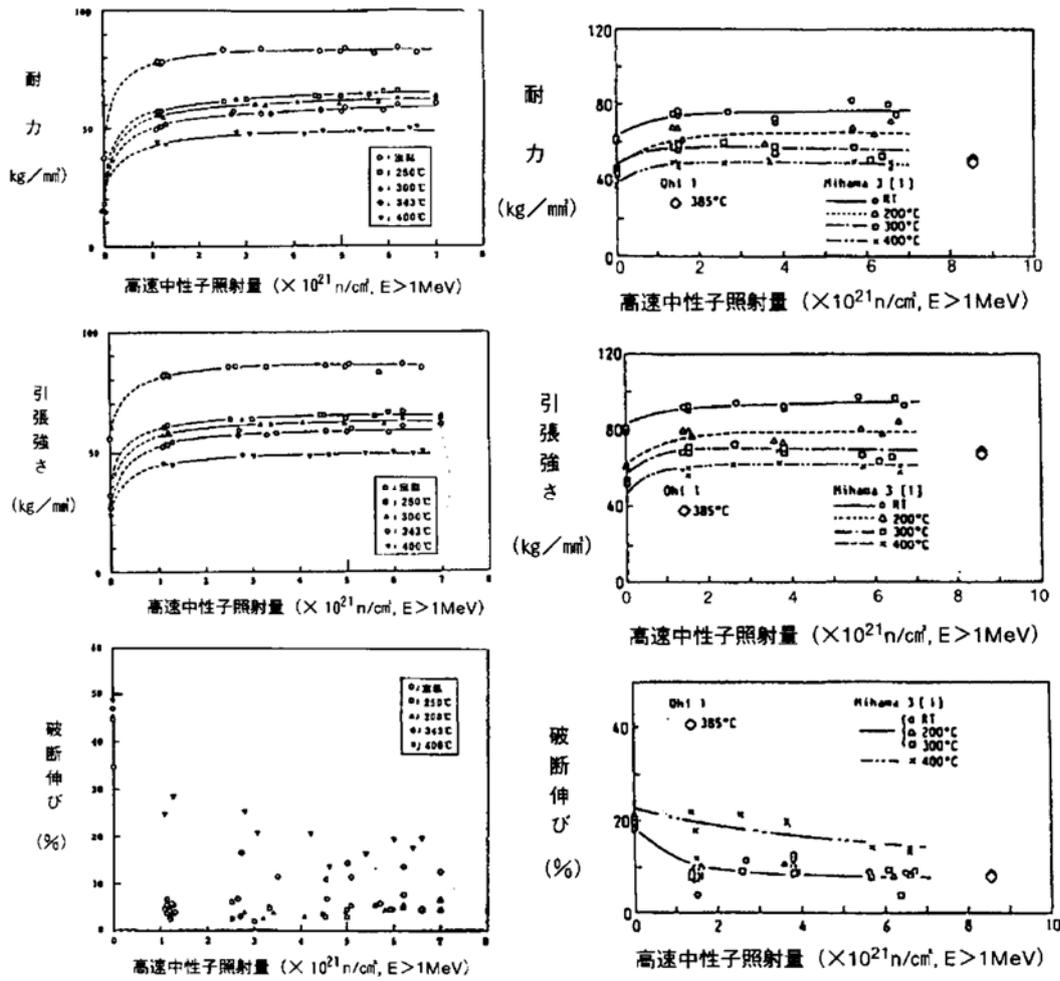


図 3.8.11 Zry-2(左)、Zry-4(右)の機械強度の照射量依存性

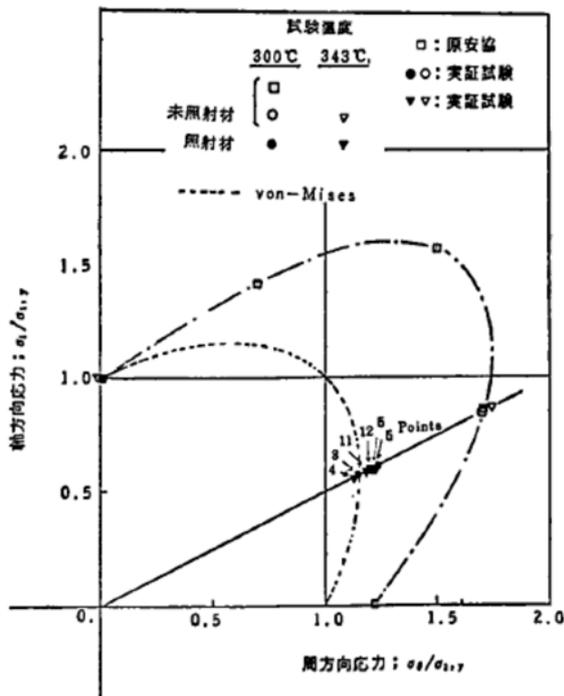


図 3.8.12 未照射材及び照射材 Zry-2 被覆管の降伏曲線

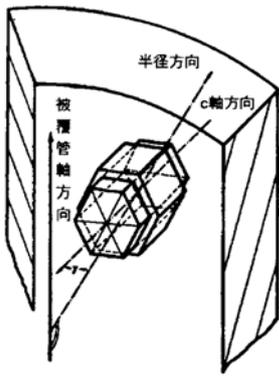


図 3.8.13 照射成長の模式図

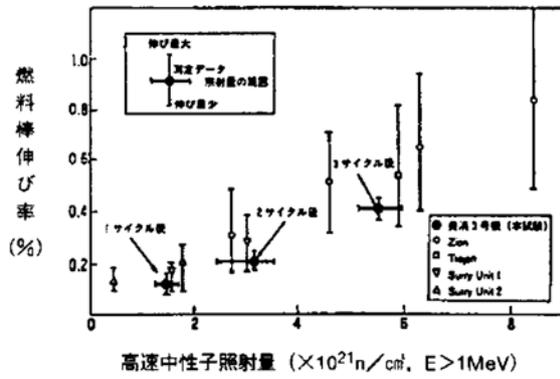
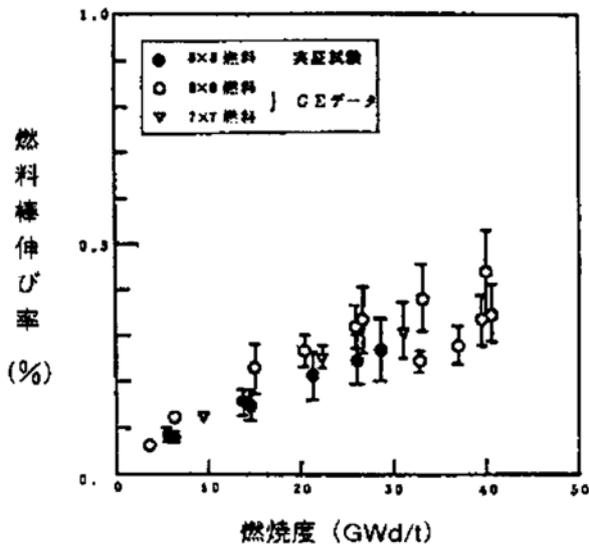
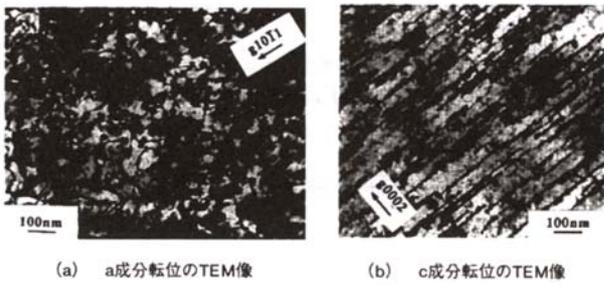
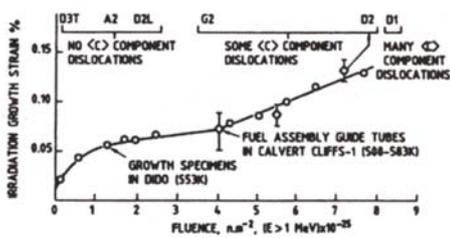


図 3.8.14 Zry-2 被覆管(左)と Zry-4 被覆管(右)の伸びの挙動



(a) a成分転位のTEM像 (b) c成分転位のTEM像



(c) 照射成長のブレイクアウェイ現象

図 3.8.15 照射成長挙動と転位の相関

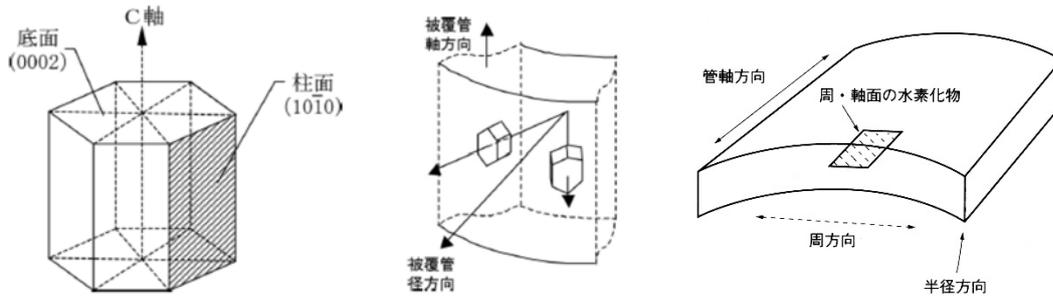


図 3.8.16 被覆管における水素化物の析出方向(応力なし)

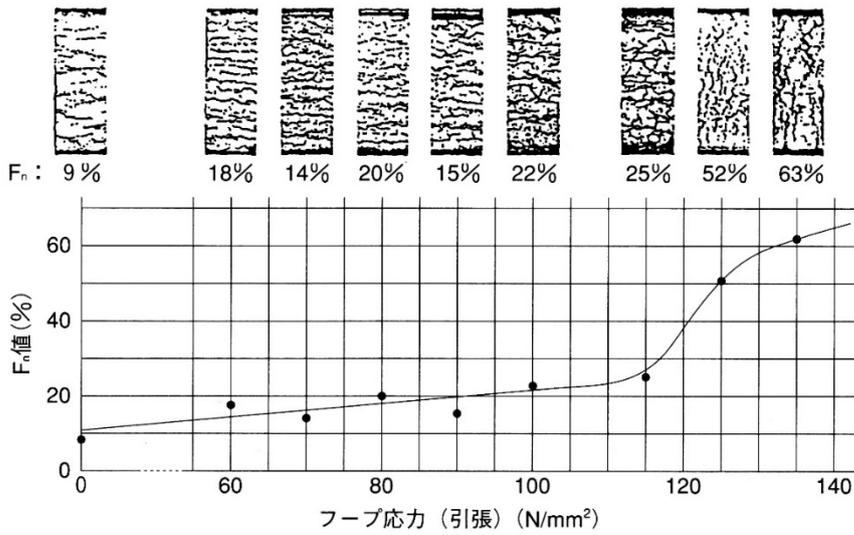


図 3.8.17 Zry-4(水素濃度 300 ppm)の水素化物の配向と応力の関係

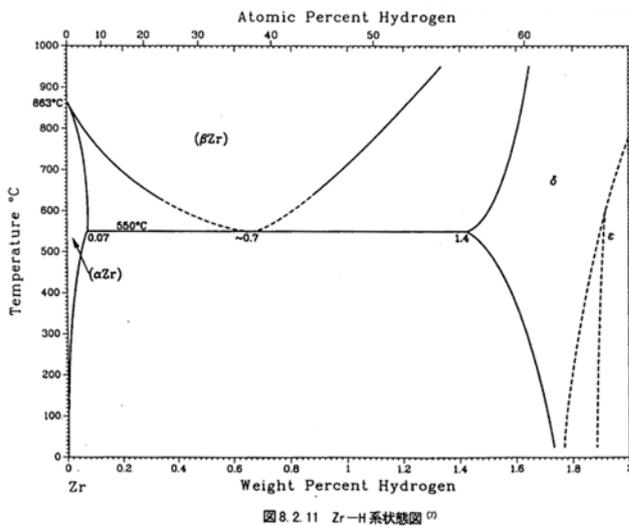


図 8.2.11 Zr-H 系状態図の

図 3.8.18 Zr-H 二元系状態図

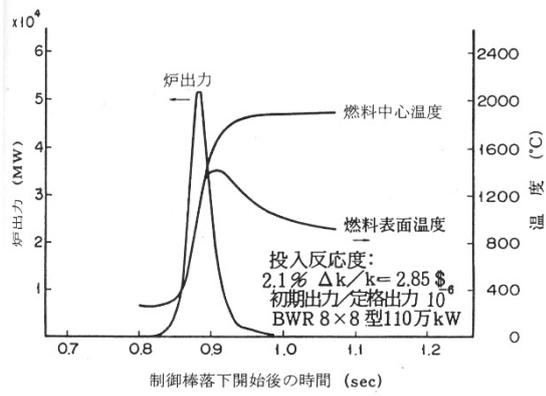


図3.8.19 BWR制御棒落下事故における出力と燃料温度の過渡変化

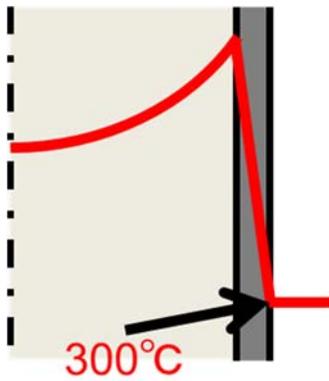


図3.8.20 RIA時の燃料棒温度分布

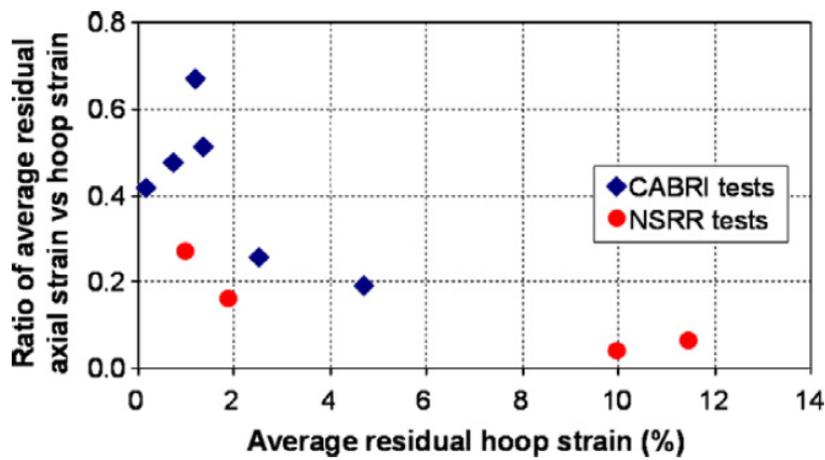


図3.8.21 NSRRとCABRIにおける平均フープひずみ とひずみ比($\epsilon_z / \epsilon_\theta$)

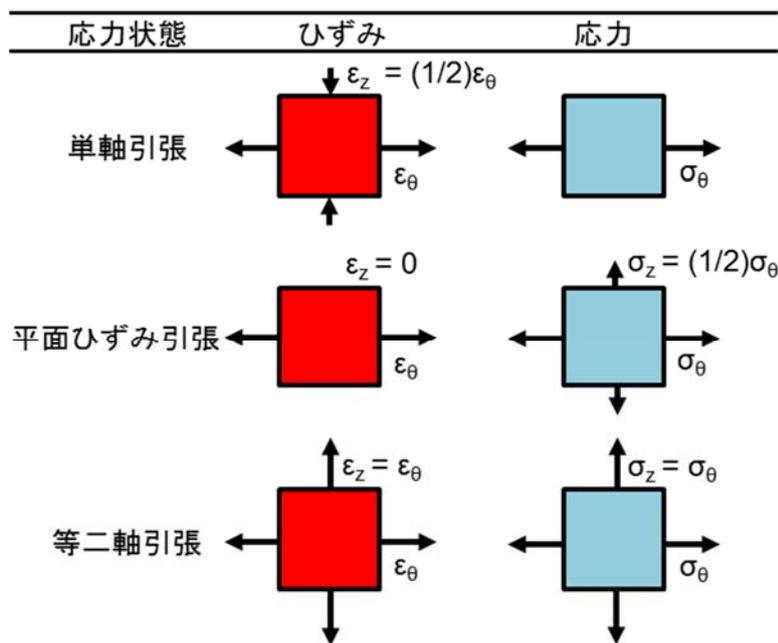


図3.8.22 応力状態

表3.8.1 CABRI炉実験結果

	REP-Na2	REP-Na3	REP-Na4	REP-Na5	REP-Na6	REP-Na9
Fuel	UO ₂				MOX	
材料	BR3	Low Sn Zry-4	Zry-4		Low Sn Zry-4	
燃焼度, MWd/kgU	低	中	高		中	低
腐食, μm	4	40	80	20	40	10
リム, μm	-	100	200	200	-	-
サイクル数	?	4	5	5	3	2
スパン	-	5	5	2	-	-
パルス幅, ms	9.5		64	9	~35	~40
Peak fuel enthalpy, cal/g	209	125	96	115	145	200
Maximum mean Hoop strain, %	3.5	2.1	0.37	1.11	3.1	7.2
形状						

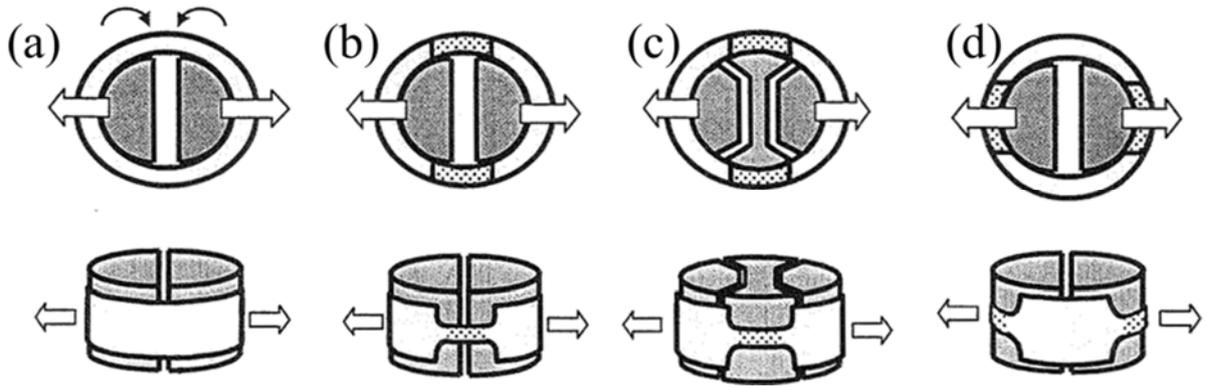


図 3.8.23 リング引張試験の例

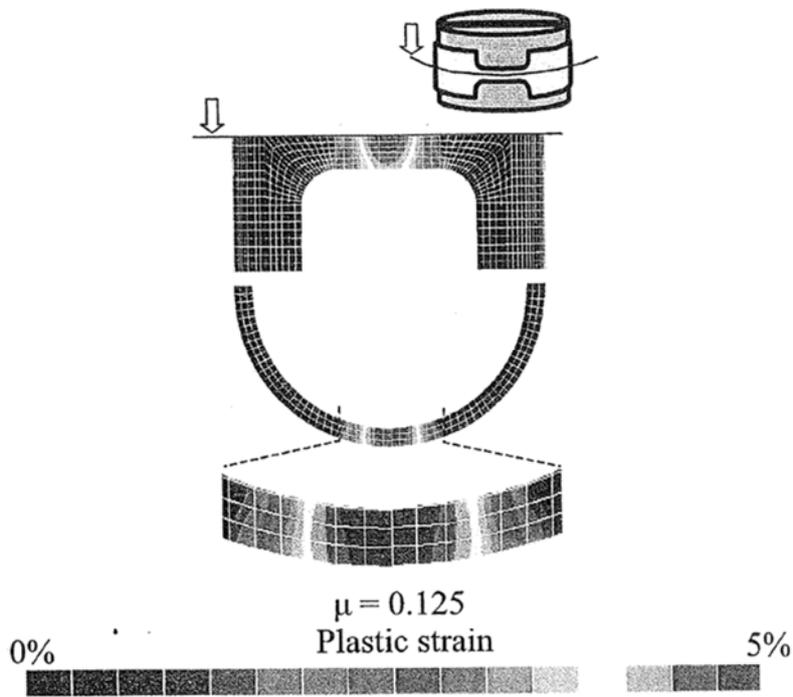


図 3.8.24 リング引張試験の有限要素解析

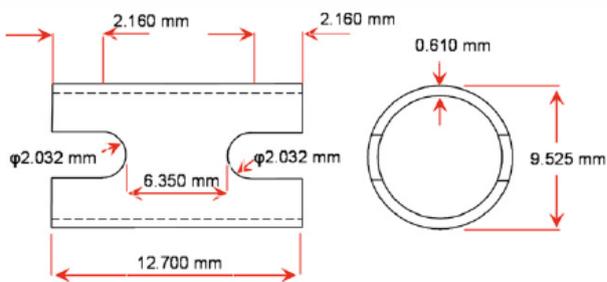


図 3.8.25 試験片形状

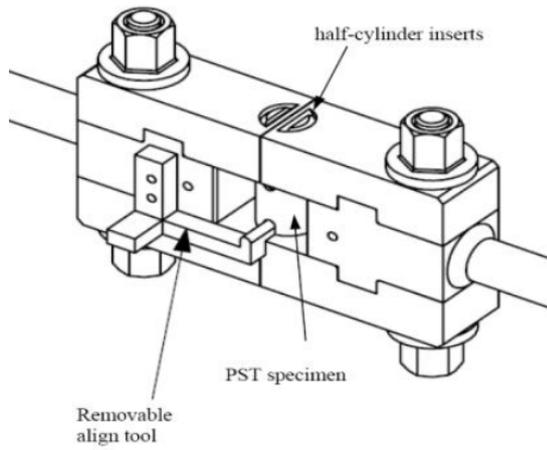


図 3.8.26 平面ひずみ引張試験の概要図

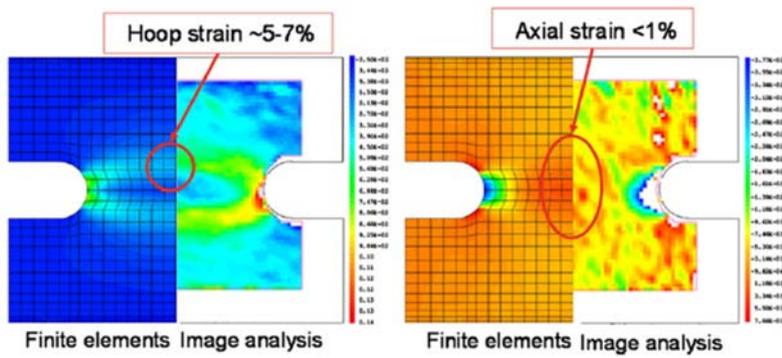


図 3.8.27 平面ひずみ引張試験の有限要素解析の結果

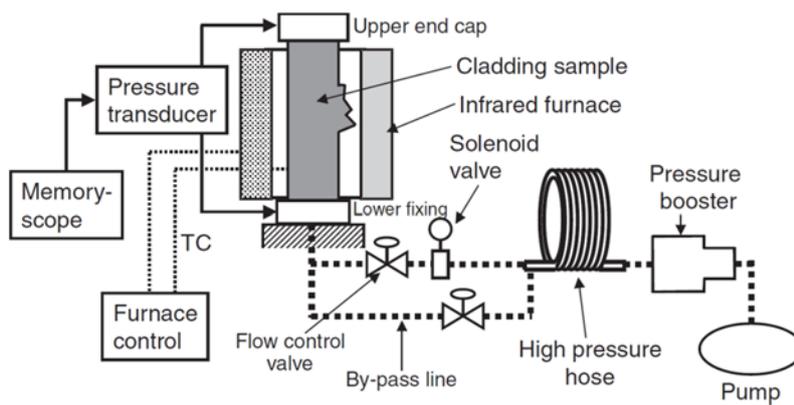


図 3.8.28 バースト試験の模式図

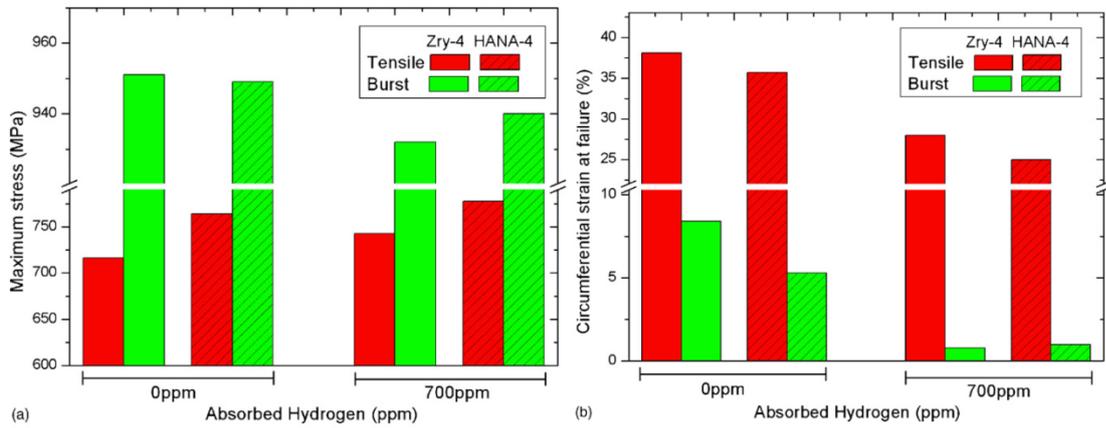


図 3.8.29 リング引張試験とバースト試験における機械的特性の比較

$\sigma_a(\text{axial stress})=0$
 $\sigma_t(\text{hoop stress})=p(r/t)$
 $\epsilon_t(\text{hoop strain})=\Delta d/d_0$
 p : pressure
 r : tube radius
 t : tube thickness
 Δd : diametral increment
 d_0 : tube initial diameter

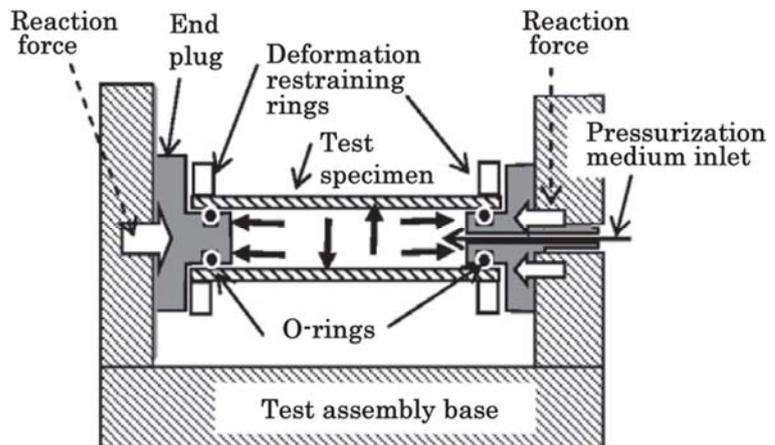


図 3.8.30 OEB 模式図

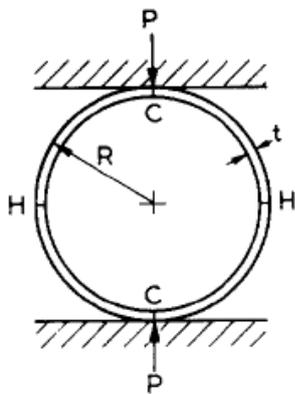


図 3.8.31(a) リング圧縮試験の模式図

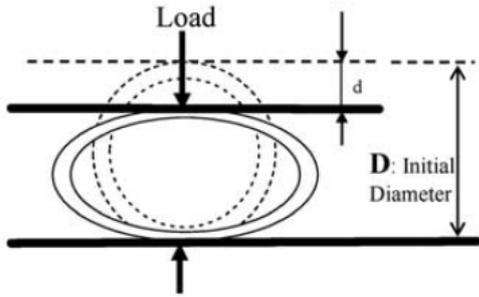


図 3.8.31(b) リング圧縮試験の模式図

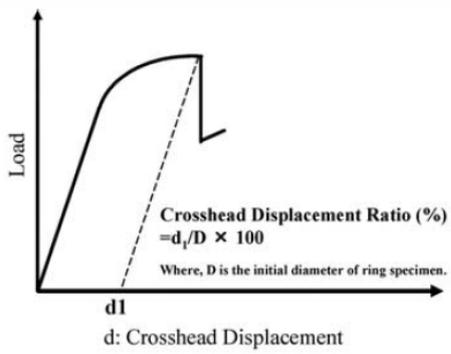


図 3.8.32 リング圧縮試験の評価

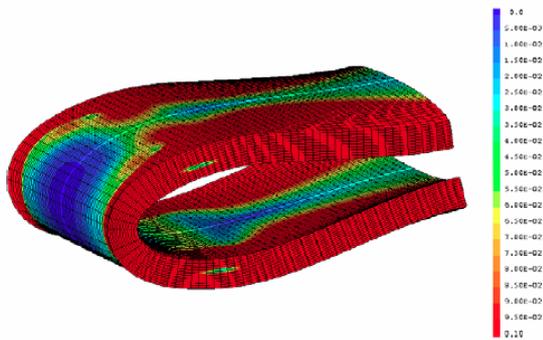


図 3.8.33 リング圧縮試験応力状態解析結果

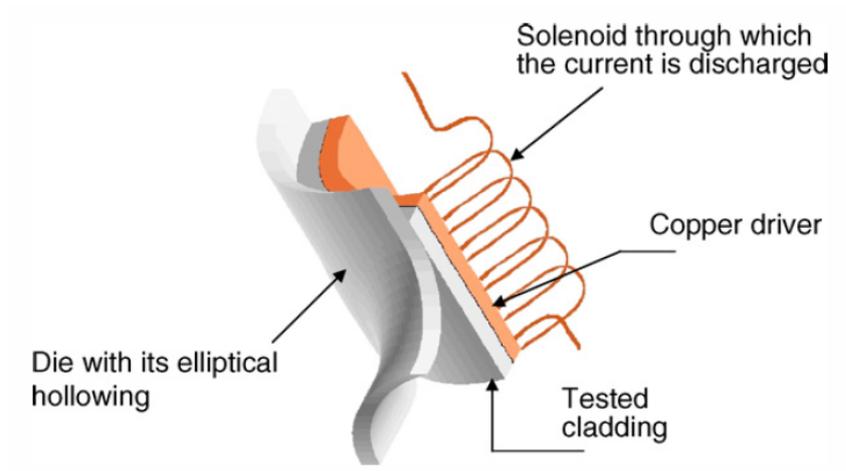


図 3.8.34 EMF 試験の模式図

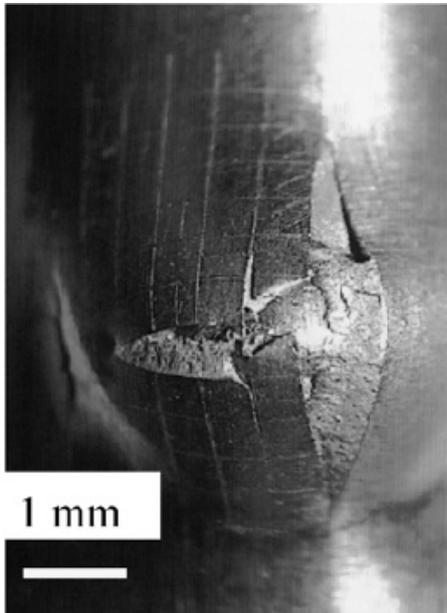


図 3.8.35 EMF 試験の試験後外観

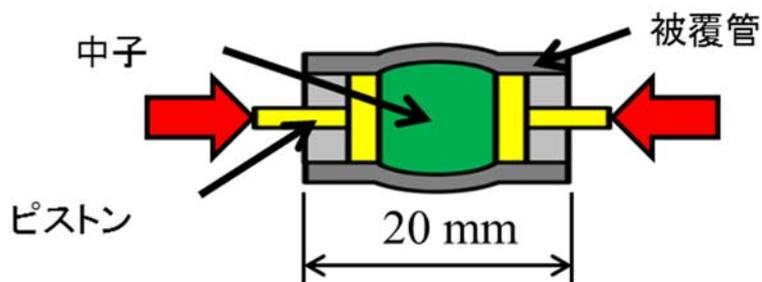


図 3.8.36 EDC 試験模式図

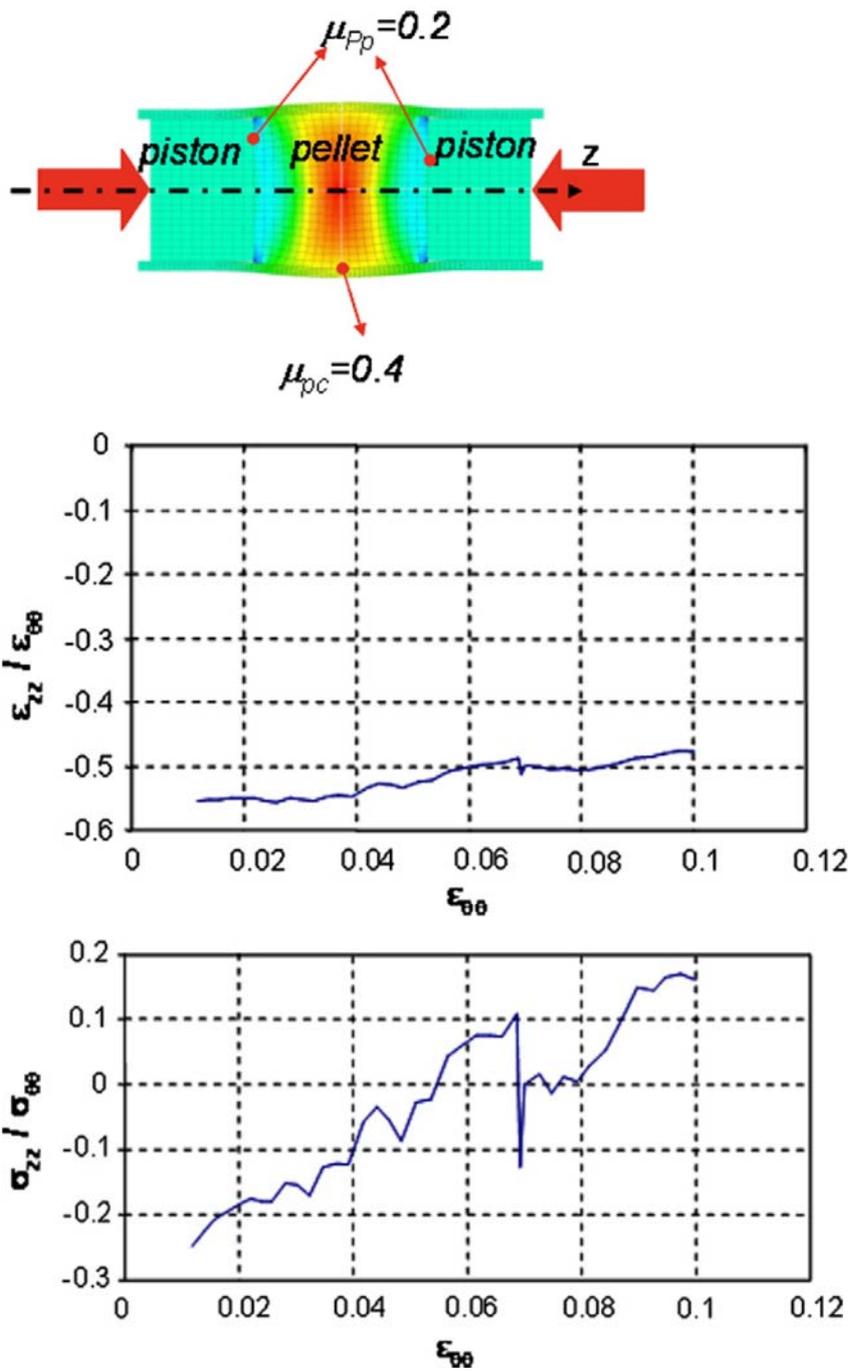


図 3.8.37 EDC 試験の FEM 結果 (ひずみ比と応力状態)

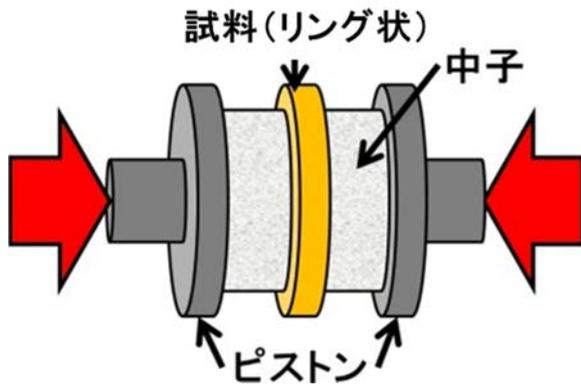


図 3.8.38(a) A-EDC 試験法概念

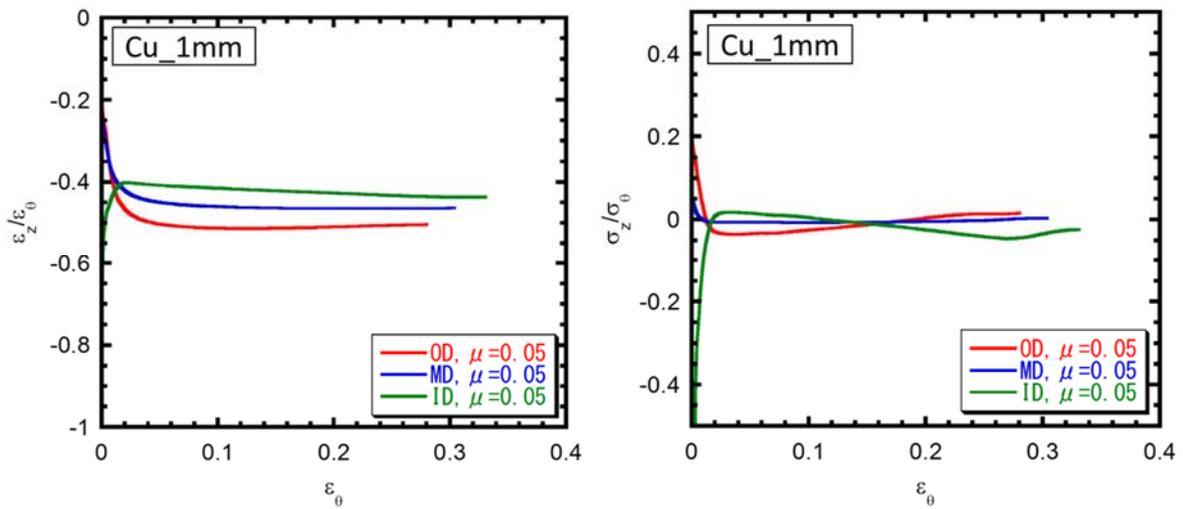


図 3.8.38(b) Cu の中子を用いた高さ 1mm の被覆管リング試料 (Cu_1mm 材) の A-EDC 試験によるひずみ比 (左図) 及び応力比 (右図)。中子 - 被覆管間の摩擦係数 $\mu = 0.05$ 。OD、MD、ID はそれぞれ被覆管の内壁面、中間部、外壁面

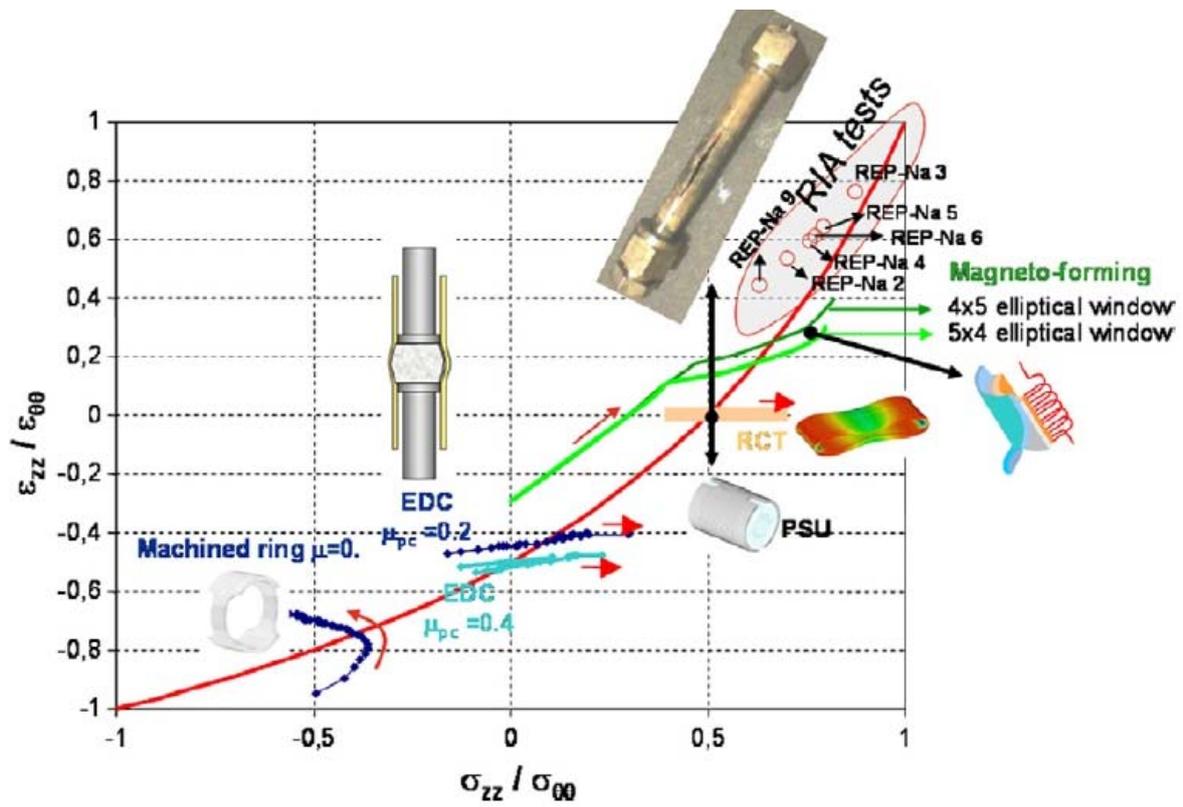


図3.8.39 各試験の応力状態とひずみ比の比較

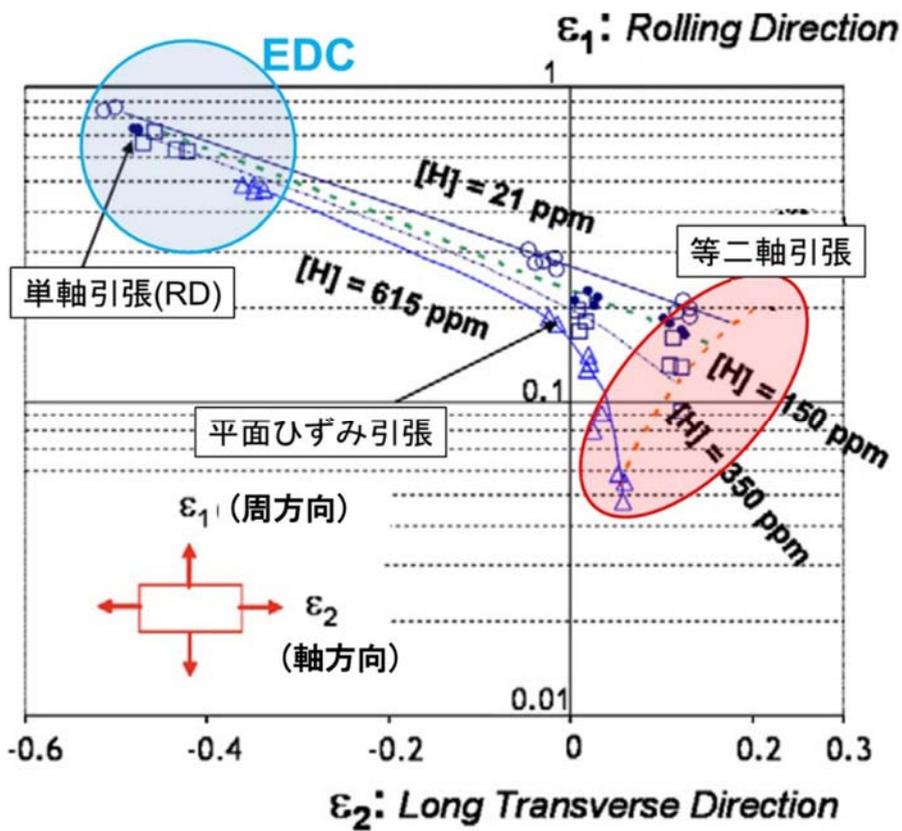


図 3.8.40 室温における各水素濃度における破壊時の Zry-2 平板の RD、TD のひずみ量

3.8.2 改良型中子拡管法 (A-EDC 法) の開発

3.8.2.1 最適条件の探索

・概要

ジルカロイ-4 被覆管を高さ 1~3 mm のリング試験片に加工し試料とした。中子には径 8mm、高さ 8、10、15mm の円柱状 Al、Cu、Brass、Fe を使用した。EDC 試験は室温で実施し、試料フープ方向ひずみ速度は 10^{-4} - 10^{-3} s⁻¹ とした。また、中子と被覆管間の摩擦の効果を調査するため、潤滑剤の塗布を行い、摩擦係数を 0.05 とした。

3.8.2.1.1 中子の最適化

中子の材質の要求条件として、被覆管が破断するまで十分な変形が与えられること、剛体の破損が生じないことが挙げられる。図 3.8.41 に高さ 8mm における各中子の荷重-中子高さ変位曲線を示す。図から、剛体が破損しない範囲でフープ方向に 30%程度の変形を与えるものとして、Al、Cu が最適であると判断した。また、図 3.8.42 に Al、Cu の各中子高さにおける変形後の外観を示す。中子形状として、再現性が高く、均一な変形であることが求められるため、比較的均一な変形を示す高さ 8 mm を選定した。

3.8.2.1.2 試料形状の最適化

リング形状の選定に関して、燃料被覆管において最も着目すべき現象が破損であるため、要求条件として破断が生じる事とした。図 3.8.43 に各リング幅における破断フープひずみを示す。破断フープひずみ量はリング幅が大きいほど、増加する傾向にあった。しかし、Cu の中子で幅 3 mm 以上の条件では、限界荷重を負荷しても破断に至らなかったため、除外した。次に中子の材質の影響に関して、Al では破断フープひずみが相対的に小さく、さらに被覆管の破断部付近において中子が局所的に被覆管に食い込むような変形が確認された(図 3.8.44)。この変形に伴い、リング試料の応力状態が多軸化し、破損に至り易くなったと考えられる。Cu の場合は変形が均一であり、被覆管の変形挙動を一定の応力負荷条件で、再現性よく評価できると結論付けられる。また、被覆管中央面において、中子、被覆管が対称的に変形しているかを調査するため、中子と被覆管の変形形状を測定した。改良型 EDC 試験の測定周期として、被覆管最大外径部で直径増分 D が 0、0.5、1.0、..... mm となった時に変形形状を測定する。中子圧縮試験の測定周期は、改良型 EDC 試験における $D=0$ 、0.5、1.0、..... mm の時のそれぞれの中子の高さ変位と同等の変形を与えたときの変形形状を測定した。図 3.8.45 に変形履歴を示す。中子が Al の場合、変形が進むにつれ、対称性が損なわれるのに対し、Cu では対称的な変形を示すことから、同様に Cu の高い再現性が確認された。最後に、図 3.8.46 に摩擦低減処理時と、未処理時での Cu_1 mm における改良型中子拡管試験をそれぞれ 5 回行った時の荷重変位曲線を示す。図から、得られた荷重変位曲線に関しても高い再現性を示し、Cu、リング幅 1 mm の時、破断フープひずみの標準偏差は摩擦低減処理時と未処理時でそれぞれ 0.8 %、0.7 %と安定した値を示した。以上から、最適な条件として中子に Cu、被覆管幅 1、2 mm と決定した。以降、Cu、1 mm の条件の結果について詳述する。

Cu 中子、リング幅 1 mm の試験では、一つの試料に複数のくびれが観察された。図 3.8.47 にくびれ数の破断フープひずみ依存性を示す。くびれ数が多いほど変形量も増加し、中子-被覆管間の

摩擦低減により、くびれ数は減少し、破断フープひずみは 0.244 から 0.122 へ減少した。また、破断後の試料の様相を観察するため、SEM を用いて破断面観察を行った。図 3.8.48 に径方向からと周方向から観察した SEM 像を示す。破壊形態は摩擦大小に関わらずカップアンドコーン型破壊を示した。また、軸方向から観察した SEM 像を図 3.8.49 に示す、図から径方向にも若干くびれていることが観察された。

3.8.2.2 A-EDC 試験の高度化（周方向応力ひずみ曲線の取得に向けた高精度化）

3.8.2.2.1 中子の改良

改良型中子拡管試験を行う上で、従来の中子拡管試験法と大きく異なる点の一つとして、中子の材質が挙げられる。従来はテフロンといったポリマー系の軟らかい材料が選択されてきたが、融点が300℃近傍と低いため、高温で試験を行うには適していない[3.8.49, 3.8.58, 3.8.64, 3.8.68, 3.8.69]。また、本試験の性質上、中子材質がリング試料と比較して軟らかすぎると、両材料の機械的相互作用に伴う試験片の変形が見込めない。そこで、本研究グループでは中子に金属を用いることで、高温での中子拡管試験にも適応し、かつ、リング試料に十分な変形を付与できる試験体系の開発を試みてきた[3.8.67]。本項においてはまず中子のみでの圧縮試験を行い、形状変化の確認及び作製方法の改善を行い、次に改良型中子拡管試験を行った。

中子は直径8mm×高さ8mmの円柱で、材質は銅とした。株式会社ニラコから直径8mmの銅の棒状試料を購入し、所定の形状まで切削加工することで作製した。後述の改良型中子拡管試験に用いる中子も同様の作製法である。しかし、阿部によって提案されたこの手法により作製された中子には、表面の傷やたわみの影響で同心円を担保できていない可能性が内包される。よって、圧縮試験により得られる結果において再現性が低くなる可能性が考えられる。そこで、今回は従来法を一部見直し、新しい作製手法を開発した。以下に新旧2種類の、中子の詳しい作製方法を説明する。

はじめに、昨年度までに開発した中子の製作方法を示す（以降、従来法と呼ぶ）。購入した直径8mmの銅棒を、はじめにファインカッターを用いて、高さ9mm程度（所定の高さ8mm＋加工しろ1mm）に切断する。その後、旋盤を用いて高さ8mmになるように切削した。この時、円柱底面部が平行になるように注意を払う必要がある。旋盤加工する際の注意点としては、バイトを旋盤に設置する際に、芯出しを正確に行うことが挙げられる。芯出しが正確に行われないと、切削後、切り出し面の中央部に突起物が残るため、中子設置時に、中子或いは中子の上にのせるアルミナが傾く恐れがあるからである。また切削した後の試料の面取りを行った。これは端部にバリがある可能性があるためである。上記従来法の手順を図3.8.50にまとめる。キーエンス製レーザー顕微鏡を用いて中子の側面を観察した。典型的な組織写真を図3.8.51に示す。様々な深さの無数の傷が縦横に入っていることが確認できた。表面の傷及びたわみが、中子を非同心円とする可能性が考えられるため、作製方法の見直しを行った。

新しい手法としては直径8mmの銅棒をそのまま利用するのではなく、直径10mmの銅棒の表面を旋盤で切削して直径8mmにした後、ファインカッターと旋盤を用いて中子を所定の高さに切削する手順で中子を作製するものである。これによりたわみ及び非同心円となる可能性を限りなく低減できる。まず、径を切削する際、直径10mmの市販銅棒を長さ8cm程度にファインカッターで切断する。次に旋盤を使用して直径10mm用のチャックを用い、長さの半分の4cm程度をまず直径8mmに切削する。その後、直径8mm用のチャックを用い、残り部分を直径8mmに切削する。切削する際に銅棒を長くし過ぎると撓みが生じ同心円に切削できない。また切削する際は送りを使用して均一に切削し、切り込み深さが深くなり過ぎないように注意した。必要であれば油を使用する。所定の直径8mmまで切削する最終の送りは、表面を仕上げるために5回ほど繰り返して送りを行う。以上の工程で作製した直径8mmの銅棒を高さ8mmまで切削する。新手法の手順を

図 3.8.52 にまとめる。レーザー顕微鏡を用いて新手法で作製した中子の側面を観察した（図 3.8.53）。依然傷は観察されるものの、従来法と比べて数も少なく、傷の深さも明らかに浅くなっていることが確認された。そこで、本研究では新手法に則って製作した中子を用いて、圧縮試験および改良型中子拡管試験を実施した。

3.8.2.2.2 中子圧縮試験

試験機として島津オートグラフ AG-100kNplus（島津製作所製）を用いた。最大荷重 100kN で引張及び圧縮試験が可能である。試験機には電気炉（最高温度 700 ）を設置しており、真空またはガス雰囲気での高温試験も実施できる。図 3.8.54 に炉内で圧縮試験に用いる治具と試験体系とその写真を示す。治具の材質はインコネル 718 とした。図 3.8.55 に示すように、試料下部の治具には球座式を採用した。これは、中子の試料成形において底部の平行性を誤差なく加工することが困難であるため、試料の上下端面の平行度が多少損なわれても、供試体全面に上部加圧板を接触させることを目的としている[3.8.70]。

試料を設置する上で、以下の点について注意しながら設置することが重要である[3.8.70]。

- (1) 試料の中心軸線は試験機の加圧軸線と正確に一致させること。
- (2) 加圧板の加圧面は試料中心軸に直角であること。
- (3) 加圧面は平面であること。
- (4) 加圧板には球座を用いる。球接面の中心と供試体中心軸とは正確に一致させること。

本試験において、試料、アルミナ設置前に上部治具で下部球座時具を徐々に圧縮し、約 500 N まで荷重を加えた。この操作により、治具上部下部の平行性が得られると考えられる。また、治具と中子の間にはジルコニアセラミックス（ジルコニア）を設置した。これは治具、中子ともに金属であるため、変形に伴う荷重量の増加に伴い試料が治具に埋没する可能性があることから、金属より剛性の高いセラミックスを挿むことで、測定精度の向上と治具の保護するためである。図 3.8.56 に示すような中子をジルコニアの中央に設置できる専用の治具(以降、治具 2 とする)を用い、上記(1)、(2)を達成した。(4)に関しては、実際に目視と後述するレーザー変位計のモニターを確認しジルコニアを中央へ設置した。治具 2 を用いて中子を中央に設置後、手動で 20 N 程度圧縮させつつ治具 2 を除去し、除荷した後試験を開始する。

変位測定にはレーザー変位計（キーエンス TM-3000 シリーズ）を使用した。本装置は、投光部から筒状の均一な平行光が測定対象物に照射され、測定対象物によって生じた影を受光部で撮像し、設定した部分の寸法を測定する。出力データはオートグラフから得られた荷重と同時にパソコンへ出力される。サンプリング周期は 50ms とした。試料を設置後、測定箇所、測定モードを決定した。測定領域、測定モードを図 3.8.57 に示す。図に示すように、本試験ではジルコニアとジルコニア間の距離、即ち中子の高さ変化と、中子の直径変化を測定した。図中「外径」は測定領域内の外径を測定し、その領域内における平均値や最小値、最大値を出力する（図 3.8.58(a)）。「段差」は 2 ヶ所の高さの差（Y 座標の差）を測定し、各測定領域内でピーク、ボトム、平均値を組み合わせて出力する（図 3.8.58(b)）。「外径」に関しては領域内の最大値を選択した。また測定領域において、今回使用した圧縮試験機は上部治具が下方へ変位することで試料に荷重を加えるため、樽状に変形する中子の最大外径部は徐々に下方へ移動することから、測定領域を試料の下方に設定した。

試験機のクロスヘッド速度を 0.005mm/s とし、最大荷重 45kN までの範囲で圧縮試験を行った。45kN はジルコニア及び試験機からくる制約である。図 3.8.59 に示すように、試験を通して最大外径部における周方向ひずみ速度は $10^{-4} \sim 10^{-3} \text{s}^{-1}$ となる。一般的な中子拡管試験では RIA を考慮した試験法であることから [3.8.57~3.8.64]、クロスヘッド速度は 1~100mm/s であり、被覆管の周方向ひずみ速度は $0.1 \sim 1 \text{s}^{-1}$ である。本試験では通常運転時、異常過渡時における PCMI の模擬を目的とし、より小さいひずみ速度である 10^{-3}s^{-1} 近傍を選択した。

新手法で作製した中子の形状変化をレーザー変位計で測定した結果を図 3.8.60 で示す。中子のせん断変形が明らかで、上部ジルコニアは左にずれ、中子の中心軸線は試験機の加圧軸線からずれている。これは、旋盤による切削加工によって、中子の側面の硬さが不均一になったためであると考えられる。そこで表面の硬さを均一にするために、旋盤切削後に真空熱処理炉を用いて熱処理を行った。熱処理を行う前に中子を 5% HCl -95% H_2O に 20 秒ほど浸し表面洗浄を行った。一般的な銅の再結晶温度は 473~523 K とされるため [3.8.71]、熱処理条件は 493K × 20 時間とし、真空度は $2.4 \times 10^{-3} \text{Pa}$ に保持した。熱処理を施した中子の圧縮試験における形状変化を図 3.8.61 に示す。中心軸線は試験機の加圧軸線からずれることなく軸方向に理想的に圧縮変形していることがわかる。以降、試験に使用する中子には全てこの熱処理を行った。

3.8.2.2.3 改良中子を用いた A-EDC 試験

中子の圧縮試験で適切な中子作製方法を決定した後、A-EDC 試験を行った。試験の手順は以下のような流れとなる。

- (1) 中子に摩擦低減スプレーを塗布する。
- (2) 中子、アルミナ、リング試料を試験機に設置する。
- (3) 中子を圧縮し、直径を増加させることでリング試料、中子間のギャップを埋め、両試料を固定する。この際同時に中子高さ、リング試料最大外径に関する荷重-変位曲線を取得し、クロスヘッドは圧縮終了時から変化させない。
- (4) リング試料高さ中央面と中子高さ中央面が一致するように、リング試料位置を調整する。
- (5) 固定に要した荷重、変位状態から、試験を開始し、中子高さ、リング試料最大外径に関する荷重-変位曲線を得る。
- (6) 解析する際、中子圧縮試験の荷重-変位曲線と、A-EDC 試験時の荷重-変位曲線の差分から、リング試料の荷重-変位曲線を得る。

A-EDC 試験で用いるリング試料の作製方法を述べる。試験体系確立を目的とすることから知見の十分な標準試料としてジルカロイ 4 (以降、Zry-4) を使用した。試料は、外径 9.5 mm、内径 8.3 mm、管厚 0.6 mm の被覆管から、高さ 1mm のリング試料を加工した。

中子の側面の摩擦低減処理には住鋳潤滑剤製スミペースト BN スプレーを使用した。選択理由として、(1)高温でも使用できる (1473 K まで)、(2)スプレーであるため、マスキングテープなどを利用することで局所的な塗布が可能である、(3)粘度が高いため、試験中に垂れることがない、が挙げられる。塗布ムラが生じないように均一に延ばすことに注意する。

A-EDC 試験の際、被覆管内径と中子直径のギャップを無くすために予め僅かに中子圧縮を行い、リング状試料を中子中央に設置する必要がある。図 3.8.62 に中子の圧縮試験を行った時の荷重変位曲線の一部を示す。直径を 0.3 mm 増大させるのに必要な中子の変位は概ね 0.5mm と評

価される。実際には中子高さ変位量が 0.53 mm 程度で良好な固定が確認された。この 0.53 mm の変位から図 3.8.63 に示すように中子の中央位置を逆算し、図 3.8.64 に示す治具を作製した。以降、治具 3 とする。

治具 2、3 及び中子、リング試料を図 3.8.65 のように設置し、両試料が固定されるまで中子を圧縮する。このときクロスヘッド速度、サンプリング周期共に中子みの圧縮試験と同様に 0.005 mm/s、50 ms に設定した。また十分かつリングの弾性域内での固定を行うため、リング最大外径を測定し、0.015mm となる際停止するように設定した。リング試料が中子に固定されているのを確認した後、治具 2、3 を取り外し、レーザー変形及び目視にてリング試料の位置が中子の中心にあることを確認する。図 3.8.66 に示すように、a と b、c と d の距離が一致するように適宜調整する。上記作業終了後、その時の中子の高さは後の解析時に使用するため記録した。

レーザー変位計による測定モード、測定箇所を図 3.8.67 に示す。中子の高さ変位とリング試料の最大外径変位を測定した。クロスヘッド速度、サンプリング周期共に中子みの圧縮試験と同様に 0.005 mm/s、50 ms に設定し、リング試料が破断するまで行った。図 3.8.68 よりリング試料の周方向ひずみ速度は $10^{-3} \sim 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ と評価される。

3.8.2.2.4 中子圧縮試験の再現性

従来法で作製した中子における圧縮試験によって得られた荷重 - 高さ変位曲線を図 3.8.69 に示す。ここでは同様の圧縮試験を 5 回行った。また図中、曲線に周期的な突起が見られるが、これは中子の形状変化を調査した際に一旦クロスヘッドを停止させて形状測定を行った際に生じた材料の応力緩和である。なお、途中でクロスヘッドを止めた場合と、止めずに連続で曲線を取得した場合とで、得られる曲線に差異は生じないことは確認済である。ここから、従来法でも中子圧縮試験は再現性の良い試験であることが分かる。

一方、新手法（ただし熱処理無し）で作製した中子における圧縮試験によって得られた荷重 - 高さ変位曲線を図 3.8.70 に示す。ここでも、同様の試験を 5 回行った。図 3.8.69 と図 3.8.70 を比較すると、明らかに新手法の中子の方が、より優れた再現性を示した。新手法と従来法それぞれの高さ変位 荷重曲線を併せて図 3.8.71 に示して比較する。変形初期において大きく異なる曲線を描いており、新手法による中子の結果の方が従来法の結果より 25%ほど大きな降伏応力をとっていることがわかる。これは旋盤の切削加工によって中子切削表面に加工硬化層が形成されるためであると考えられる。

3.8.2.2.5 中子熱処理の影響

新手法（熱処理無し）で作製した中子の圧縮試験における変形を評価するため、レーザー変位計を用いて観察した様子を図 3.8.72 に示す。試験が進行するにつれ、上部ジルコニアは左にずれ、中子の中心軸線は試験機の加圧軸線からずれていくことがわかる。この中子を用いて、A-EDC 試験を行ったときの変形の様子を図 3.8.73 に示す。中子圧縮試験時と同様に上部ジルコニアは左にずれていき、リング試料の平行性が失われ、傾いていくのがわかる。このように中子のアライメントが失われると、最大直径の測定値が正確に行われない。また、中子の膨張における最大外径の領域からリング試料がずれてしまい、破断ひずみにも影響を与えることが考えられる。これら中子変形形状の原因として、旋盤による切削加工によって、中子の側面の硬さが不均

一になったためであると考えられる。

そこで、表面の硬さを均一にするために、旋盤切削後に熱処理を施した。ここで、熱処理条件は $473\text{ K} \times 8\text{ hr}$ 、 $493\text{ K} \times 20\text{ hr}$ 、 $523\text{ K} \times 1\text{ hr}$ の3条件とした。図 3.8.74 にそれぞれの従来法と新手法、熱処理3条件を施した中子における高さ変位荷重曲線を示す。図のように、熱処理を施した中子 $493\text{ K} \times 20\text{ hr}$ 、 $523\text{ K} \times 1\text{ hr}$ の2条件は他の3条件に比して変形挙動が異なることがわかる。銅の一般的な再結晶温度はおおよそ $473\text{ K} \sim 523\text{ K}$ とされ[3.8.71]、以上2条件は全体が均質に再結晶していると考えられる。

$493\text{ K} \times 20\text{ hr}$ 熱処理条件の中子を用いて圧縮試験を実施し、変形形状をレーザー変位計で観察した。図 3.8.75 に示す。未熱処理の中子圧縮試験の際に見られた上部ジルコニアの左方向へのずれは観察されなかった。熱処理によって中子全体が均質化され、硬さの不均一性が解消されたためと考えられる。この中子を用いて A-EDC 試験を実施した。変形形状をレーザー変位計で観察した様子を図 3.8.76 に示す。未熱処理の中子を使用した際に見られた上部ジルコニアの左方向へのずれ及びリング試料の非平行性は観察されなかった。熱処理によって中子側面の硬さの不均一性が解消されたと判断される。

3.8.2.3 周方向単純引張条件の確認

実験の体系を有限要素解析により再現させ、二次元軸対称モデルを用いて数値的解析を行った。図 3.8.77 (a) に本数値解析体系を示す。図中の面を対称軸で 360° 回転させることで図 3.8.77 (b) の様に三次元モデルとして扱うことができ、計算量の大幅な減少が見込める。また、中子中央面に関しては対称面として扱い、同様に計算量の減少を図った。数値解析後、被覆管の応力分布と、図 3.8.78 に示すように、内径部 (ID)、中間部 (MD)、外径部 (OD) の応力状態、ひずみ比をそれぞれ求めた。

次に有限要素法による試料の応力分布における中子-被覆管間の摩擦の効果を調査した。図 3.8.79 に摩擦係数 0、1 の場合の被覆管内の径方向 (r)、周方向 (θ)、軸方向 (z) の応力分布を示す。図中、真ん中の数字は中子の変位量を示している。径方向応力分布について、外壁部で応力はほぼ 0 で、内壁部で、 $-x$ 方向に応力が生じていることが分かった。また、摩擦係数が小さいほど、径方向に対して、その分布は均一な傾向を示した。図中、内壁の端部で応力が局所的に上昇しているが、これはリング試料端部と中子の接触の不連続性に起因した応力集中である。

周方向分布に関しても摩擦係数が大きい場合、内壁部で応力が減少していることが確認された。また、摩擦係数が小さいほど断面に比較的均一にフープ引張応力が生じることが確認された。

軸方向応力に関しては、摩擦係数が小さいと被覆管断面の全領域において殆ど作用せず、摩擦係数が大きければ外壁面近傍で引張応力が、内壁面近傍で圧縮応力が生じるため、分布が複雑となることが分かった。

また、リング試料内部の軸方向 (z) 及びフープ方向 (θ) の応力比とひずみ比をフープひずみに対してプロットしたものを図 3.8.80 に示す。摩擦が小さい場合、変形開始直後より全箇所において $\sigma_z/\sigma_\theta \sim 0$ 、 $\varepsilon_z/\varepsilon_\theta \sim -0.5$ の単軸引張状態となった。これに対し摩擦が大きい場合には内径部の応力比、ひずみ比が共に大きく減じていることが分かった。これは中子との接触による拘束の影響であると考えられる。

3.8.2.4 周方向応力-周方向ひずみ曲線の取得

本研究グループは A-EDC 試験から得られた荷重変位曲線から周方向応力 - 周方向ひずみ曲線の導出を試みてきた。被覆管は異方性を有する材料であり、かつ PCMI や内圧上昇に伴う周方向応力が負荷されるため、周方向の機械的特性を得ることが重要であるが、管状試料において周方向の応力 - ひずみ曲線を得る手法は容易ではない。本研究グループはリング試料に付与された仕事に着目し応力 - ひずみ曲線を導出した。本稿では阿部が提案した導出方法について述べる。

3.8.2.4.1 リング試料に負荷される仕事

図 3.8.81 に A-EDC 試験と中子圧縮試験の荷重変位曲線を示す。図中、拡大された領域において、改良型 EDC 試験の荷重変位曲線を f_1 、中子圧縮試験を f_2 とすると、 $f_1 - f_2$ の領域（黄色）は、リング試料の変形に消費された仕事であると考えることができる。この仕事を用いてリング試料に負荷された周方向応力を求める。

3.8.2.4.2 立ち上がり点近傍の補正

最初の作業として、A-EDC 試験と中子圧縮試験結果の立ち上がり点近傍の誤差の補正を行う。図 3.8.82 に A-EDC 試験と中子圧縮試験の荷重変位曲線を示す。図中、一見良い一致を示しているかのように見えるが、弾性領域を拡大すると試験開始直後の曲線は滑らかに立ち上がっていることが分かる(図 3.8.83)。弾性領域では一般的に直線的な挙動を示すが、実験体系では、試験初期段階でジルコニアや治具を挿むことによる設置状態での誤差や、中子作製段階で生じる誤差、試験機に内包される誤差などが存在し、緩やかな立ち上がりになっている。そこで、弾性領域中において最も接線角度が大きい領域と、同じ接線角度をもつ原点を通る直線が一致するように、曲線を高さ変位方向に移動させ、誤差の補正を行った(図 3.8.84)。この時、中子圧縮試験の接線角度が最大の時の傾きは 410 kN/mm で高さ変位方向に -0.02 mm 移動させた。同様に A-EDC 試験では傾きが 270 kN/mm、変位が -0.038 mm であった。この補正された荷重変位曲線を基準として更に中子圧縮試験の荷重変位曲線の補正を行った。

3.8.2.4.3 両試料固定点近傍の補正

次に、リング試料と中子が接触し、両試料が固定される点近傍の補正を行う。拡大図を図 3.8.85 に示す。図から A-EDC 試験と中子圧縮試験では荷重方向に 150 N 程度の差が生じていることが分かる。この差を補正するため、中子圧縮試験の曲線を先ほど求めた最大接線角度方向へ移動させ、一致させる操作を行った。具体的に、曲線を荷重方向に 165 N 変位させ、その後高さ変位方向に $(165 \text{ N}) / (410 \text{ kN/mm}) = 0.000402 \text{ mm}$ だけ変位させた(図 3.8.86)。

3.8.2.4.4 リング試料に負荷される周方向応力の導出

補正操作した後、 $f_1 - f_2$ の領域を抽出したものが図 3.8.87 である。黄色の領域はプロットごとに注目すると図 3.8.88 の様に台形の集合体として考えることができ、プロット間の仕事 E は以下の式で求められる。

$$\frac{(F_1 + F_2)}{2} \cdot (h_2 - h_1) = E \quad (3.8.12)$$

このプロット間にリング試料は周方向にひずみを受けており(図 3.8.89)、その時の受ける仕事は図 3.8.90 の様に応力 - ひずみ曲線下の面積に試料体積を乗じたものとなる。

$$\sigma \cdot (\varepsilon_2 - \varepsilon_1) \cdot V = E \quad (3.8.13)$$

式 5.2.1、5.2.2 からリング試料に負荷される周方向の応力は下式の様に求められる。

$$\sigma = \frac{(F_1 + F_2) \cdot (h_2 - h_1)}{2V \cdot (\varepsilon_2 - \varepsilon_1)} \quad (3.8.14)$$

3.8.2.4.5 誤差低減のためのデータ点選択

次にデータ点の選択法について述べる。選択時にレーザー変位計の精度を考慮する必要がある。図 3.8.91 にフープひずみの時間依存性の一部拡大図を示す。図のようにひずみ値(測定時は外径)はレーザー変位計の読みが 1 μm 間隔であるため、段々と不連続的に増加していることが分かる。ひずみ値がほぼ同等の領域においてデータ点は 5 - 10 点存在しており、サンプリング数 50 ms である本実験においては約 0.25 - 0.5 s の間ひずみ値は変動しない。従って、データ点間を細かく取得しすぎるとひずみ差 $\varepsilon_{n+1} - \varepsilon_n$ の誤差が非常に大きくなることが予想される。即ち、式 5.2.3 の応力が大きくなればつきを持つことが予想される。そこで本解析では試験初期と破断近くで約 10 s 刻み、その他で約 40 s 刻みでデータを選択した。

3.8.2.4.6 周方向応力 - 周方向ひずみ曲線の考察

以上の方法で導出した周方向応力 - 周方向ひずみ曲線を図 3.8.92 に示す。選択的にデータ点をとっているため、本来応力 - ひずみ曲線から得られる、耐力や最大引張強度などの機械強度が正確に求められない。また、選択的にデータ点を取得しなかった場合の応力 - ひずみ曲線を図 3.8.93 に示す。ひずみ差 $\varepsilon_{n+1} - \varepsilon_n$ の誤差が非常に大きく表れている。また他の原因として、A-EDC 試験と中子圧縮試験という 2 つのステップサイズの異なる試験データを比較して導出しているため、レーザー変位計の測定誤差を増長させてしまう可能性が考えられる。

3.8.2.4.7 周方向応力 周方向ひずみ曲線の導出方法の改善

前述の通り、従来の導出方法では信頼性の高い機械強度は得ることができない。そこで、本研究において導出方法の改善を行った。具体的には、荷重変位曲線を数式化することで、A-EDC 試験と中子圧縮試験のステップサイズの統一を試みた。また $\varepsilon_{n+1} - \varepsilon_n$ のひずみ差の値をデータごとに同一になるように補正を行った。

3.8.2.4.8 立ち上がり点近傍の補正

従来方法同様に立ち上がり点近傍の補正を行った。図 3.8.94 に示すように、より再現性の高い中子を用いても、緩やかな立ち上がり方に変化はなかった。これは圧縮試験機に機械誤差の影響が大きいためであると考えられる。従来法同様に弾性率にあたる傾きが原点を通るように高さ変位を補正した。

3.8.2.4.9 A-EDC 試験における高さ変位 - 直径変位曲線

次に、A-EDC 試験の高さ変位 - 直径変位曲線の数式化を行う。これにより、 $\varepsilon_{n+1} - \varepsilon_n$ のひずみ差の値をデータ点ごとに同一になるように補正をする。A-EDC 試験で得られた高さ変位 - 直径変位曲線を図 3.8.95 に示す。図 3.8.96 のようにリング試料の直径が膨張し始める付近を拡大すると、高さ変位約 0.53mm 以降、直径変位が増加していた。今回、高さ変位約 0.53mm のときにリング試料と中子が接触し始めたと考え、以降リング試料が破断するまでのデータを取り扱う。高さ変位約 0.53mm 以降の高さ変位 - 直径変位曲線を図 3.8.97 に示す。

3.8.2.4.10 最小二乗近似法によるフィッティング

レーザー変位計は測定誤差を内包しており、取得されるデータを拡大すると、図 3.8.98 に示すように滑らかではなく段差があることがわかる。本研究ではこのばらつきを解消し、応力 - ひずみ曲線の誤差を低減するため、最小二乗近似法を用いてデータの数式化を行った。このとき、1 次から 9 次までの多項式の中から、最も相関係数が 1 に近い値をとる式を選択した。

3.8.2.4.11 A-EDC 試験における高さ変位 - 直径変位曲線のフィッティング

A-EDC 試験における高さ変位 - 直径変位曲線においては、以下のような 9 次多項式を用いて数式化を行った。ここで高さ変位は h 、直径変位は d とする。

$$h = 0.562359398820083 + 2.3115141766074d + 0.845169219910761d^2 - 23.2828779253616d^3 + 111.741446403471d^4 - 281.701633844441d^5 + 415.104058817038d^6 - 357.932132645134d^7 + 167.099194037257d^8 - 32.5874970803616d^9 \quad (3.8.15)$$

このとき、相関係数は 0.999993303379603 であった。尚、本報告書では念のため有効数字を 16 桁までとったが、実質的には 5 桁で十分であることを感度解析から得ている。以下の議論でも同様である。実験値と数式値を図 3.8.99 に示す。実験値のばらつきを低減するように数式がひけていることがわかる。ここで、式(5.3.1)は一例であり、当然ながら式は実験ごとによって異なるのでその都度求めることに注意する。 $\varepsilon_{n+1} - \varepsilon_n$ のばらつきを解消するため、この数式を用いて直径変位のデータ間隔が一定になるよう並び替えることが可能となる。このときの Δd は 0.000152896193404868 であった。この間隔一定の直径変位のデータを式(4.3.1)に代入して得られる高さ変位のデータを、ステップサイズを揃えるために使用する。

3.8.2.4.12 A-EDC 試験における荷重 - 高さ変位曲線のフィッティング

次に A-EDC 試験における荷重 - 高さ変位曲線についても同様に、最小二乗近似を用いてフィッテ

ィングを行う。実験値の荷重 - 高さ変位曲線を図 3.8.100 に示す。リング試料の弾性域にあたる領域が観察できる。そこでより精度良くフィッティングを行うために、3つの領域にわけて数式化を行った。領域ごとに求めた3つの数式 l_1 、 l_2 、 l_3 を以下に示す。ここで荷重は l 、高さ変位は h とする。

$$\begin{aligned}
 l_1 = & -1568.12821014953 + 321.368189449737h + 75919.0240611318h^2 \\
 & -364611.108979724h^3 + 682681.224706432h^4 - 400765.907022763h^5 \\
 & -418571.867978104h^6 + 705701.044343015h^7 \\
 & -281134.477099259h^8 (0.53 < h < 0.7)
 \end{aligned} \tag{3.8.16}$$

$$\begin{aligned}
 l_2 = & 15.0526084522276 - 144.292068212422h + 831.144542102621h^2 \\
 & -2021.56314167814h^3 + 2725.21657043852h^4 - 2184.51338194942h^5 \\
 & + 1038.39297669253h^6 - 270.704472728725h^7 \\
 & + 29.8469342286619h^8 (0.6 < h < 1.55)
 \end{aligned} \tag{3.8.17}$$

$$\begin{aligned}
 l_3 = & 332.64421944496 - 873.811796172472h + 636.675133776585h^2 \\
 & + 488.683439915894h^3 - 1159.7199151451h^4 + 870.417676387211h^5 \\
 & -336.564029927805h^6 + 67.7192185149778h^7 \\
 & -5.63621767968821h^8 (1.39 < h < 2.34)
 \end{aligned} \tag{3.8.18}$$

ここで相関係数はそれぞれ 0.999960629155388、0.999996452426646、0.999997643655121 となった。 l_1 と l_2 、 l_2 と l_3 を連続的につなぐため、 $\frac{dl_1}{dh} = \frac{dl_2}{dh}$ ($0.6 < h < 0.7$)となるような h を求める。ここでは、 $h = 0.620734481637959$ 、 0.657899173832406 、 0.693602930815837 のとき $\frac{dl_1}{dh} = \frac{dl_2}{dh}$ となった。このうち、 $h = 0.620734481637959$ のとき l_1 と l_2 の差が最も小さくなった。同様に l_2 と l_3 について考える。 $\frac{dl_2}{dh} = \frac{dl_3}{dh}$ ($1.39 < h < 1.55$)となるのは、 $h = 1.47363872082973$ のときのみであった。よって、

$$\begin{aligned}
 l_1 \text{の領域は} & 0.53 < h \leq 0.620734481637959、 \\
 l_2 \text{は} & 0.620734481637959 \leq h \leq 1.47363872082973、 \\
 l_3 \text{は} & 1.47363872082973 \leq h < 2.34
 \end{aligned}$$

として数式化し、 $h = 0.620734481637959$ 、 1.47363872082973 の2点をデータ点に加えることで連続した数式とした。また式(5.3.1)を用いて、 $h = 0.620734481637959$ 、 1.47363872082973 のときの直径変位 d を求める。このときそれぞれ $d = 0.035518902588389$ 、 0.507156673523927 であった。それぞれ、区間の左右で曲線と微分係数が等しく連続であることを確認した。

3.8.2.4.13 中子圧縮試験における荷重 - 高さ変位曲線のフィッティング

中子圧縮試験においても同様に、荷重 - 高さ変位曲線のフィッティングを行う。実験値の荷重 -

高さ変位曲線を図 3.8.101 に示す。このうち、リング試料の固定される高さ変位からリング試料が破断するまでの高さ変位間を取り出し、A-EDC 試験と同様、最小二乗近似を用いてフィッティングを行った。ここで高さ変位の領域は、 $0.53 < h < 2.34$ とした。式は以下ようになった。

$$\begin{aligned}
 l = & 1.61060200460545 + 67.4872352225328h - 164.09008062753h^2 \\
 & + 249.903294755541h^3 - 235.579311884828h^4 + 139.114943341647h^5 \\
 & - 50.1021849620466h^6 + 10.0683750064318h^7 \\
 & - 0.865441277307486h^8 \quad (0.53 < h < 2.34)
 \end{aligned} \tag{3.8.19}$$

このとき相関係数は 0.99998797457097 であった。

3.8.2.4.11 両試料固定点近傍の補正

リング試料と中子が固定される点近傍の補正を行う。A-EDC 試験と中子圧縮試験の荷重 - 高さ変位曲線結果を比較して図 3.8.102 に示す。両結果とも、前述の数式化を行ったものである。両試料固定点近傍では荷重方向にわずかに差があった。これは、リング試料を中子に固定するために治具を使用する際に、治具によって中子が拘束され、わずかではあるが A-EDC 試験の方がより荷重がかかるためと考えられる。この差の補正を行った。ここで、中子圧縮試験における弾性率は 188.906089576126 kN/mm であった。また、A-EDC 試験データの最初の点は

$$(h_1, l_1) = (0.538544492209476, 14.9556382461014)$$

であった。ここで図 3.8.103 のように (h_1, l_1) を通るような傾き 188.906089576126 の直線と式 (5.3.5) の交点を求め、

$$(h_2, l_2) = (0.537616822429906, 14.7803988270317)$$

であった。中子圧縮試験のデータを弾性率の傾きにそって補正するため、高さ変位方向に +0.000927669779568929 mm、荷重方向に +0.175239419069667 補正した。補正後の荷重 - 高さ変位曲線結果を比較して図 3.8.104 に示す。またこの補正によって、中子圧縮試験の荷重 - 高さ変位曲線の数式は式 (5.3.5) から以下のように書き換えられる。

$$\begin{aligned}
 l = & 1.78584142367512 + 67.4872352225328(h + 0.000927669779568929) \\
 & - 164.09008062753(h - 0.000927669779568929)^2 \\
 & + 249.903294755541(h - 0.000927669779568929)^3 \\
 & - 235.579311884828(h - 0.000927669779568929)^4 \\
 & + 139.114943341647(h - 0.000927669779568929)^5 \\
 & - 50.1021849620466(h - 0.000927669779568929)^6 \\
 & + 10.0683750064318(h - 0.000927669779568929)^7 \\
 & - 0.865441277307486(h - 0.000927669779568929)^8 \\
 & \quad \text{(for } 0.53 < h < 2.34) \tag{3.8.20}
 \end{aligned}$$

3.8.2.4.12 ステップサイズの統一

従来方法のように荷重 - 高さ変位曲線において、単純に A-EDC 試験結果から中子圧縮試験の差分をとると、統一された高さ変位における差分ではないため正確とはいえない。また、A-EDC 試験

はリング試料によって中子が拘束されるため、時間に対する高さ変位の変化は中子圧縮試験に比べてわずかではあるが小さくなる。つまり両試験では高さ変位の Δh の時間変化も異なっている。そこで、以上のフィッティングを用いて、A-EDC 試験と中子圧縮試験のステップサイズを統一して差分を求めた。ここでは高さ変位は A-EDC 試験のものとした。図 3.8.105 に示す。従来法において見られたデータの段差、ばらつきがほとんど見られないことがわかる。従来方法と同様にこの面積を積分して求め、リング試料に負荷された仕事とする。

3.8.2.4.13 周方向応力 - ひずみ曲線の導出

以上補正した高さ変位、直径変位、仕事から式(5.2.3)を用いて周方向に負荷された応力を求める。図 3.8.106 に求めた周方向応力 - 周方向ひずみ曲線を示す。ここで、ひずみは直径変位をリングの外径 9.5 mm で除したものである。従来の周方向応力 - 周方向ひずみ曲線はばらつきが大きく、連続的ではなかったのに対し、本手法では破断に至る大変形域まで連続的に描くことに成功した。これにより、従来方法では行うことができなかった、機械強度の導出及び評価を行うことが可能となった。

3.8.2.5 フィッティングの考察

本項では今回行ったフィッティングの妥当性について考察する。

・ A-EDC 試験における荷重 - 高さ変位曲線の近似式本数

前項では A-EDC 試験における荷重 - 高さ変位曲線において 3 本の近似曲線を連続させることで数式化を行った。この本数を決定するために近似曲線を 1~4 本に変えて計算を行った（順に、近似 1~4 とする）。図 3.8.107 に荷重 - 高さ変位曲線の実験値との比較を示す。一見どれも良い一致を示しているように見えるが、弾性領域近傍で近似 1 と 2 は実験値からの誤差が大きいことがわかった。次に、これらの近似曲線を用いて周方向応力 - 周方向ひずみ曲線を求めた結果を図 3.8.108 に示す。荷重 - 高さ変位曲線でみられた傾向と同じく、弾性領域及び降伏近傍で近似 1 と 2 は、3 と 4 に比べ大きく異なる曲線となった。また近似 3 と 4 は非常に良い一致を示した。ここで、周方向応力 - 周方向ひずみ曲線から得られた機械強度をそれぞれ表 3.8.2 に示す。機械強度を比較しても、近似 3 と 4 は非常に良い一致を示し、近似 1 と 2 は数値を高く見積もっていることがわかった。よって、近似 1 と 2 では十分な近似が行えていないとし、近似曲線 3 本で十分であると決定した。

・ 中子圧縮試験における荷重 - 高さ変位曲線の近似式本数

次に中子圧縮試験における荷重 - 高さ変位曲線の近似式本数について考察する。今回荷重 - 高さ変位曲線を 1 本で近似（近似 1 とする）、高さ変位約 0.7 で区切り 2 本で近似（近似 2）、高さ変位約 1.4 で区切り 2 本で近似（近似 3）したものを比較した。ここで、近似 2 の区切りは A-EDC 試験結果における弾性域にあたる部分をよく近似するために高さ変位 0.7 を選択した。計算の結果 $h = 0.651011198395453$ のとき連続となる。また、近似 3 は $0.53 < h < 2.34$ の計算領域においておおよそ半分で区切るために高さ変位 1.4 を選択した。結果、 $h = 1.41069397042093$ のとき連続となることが分かった。

図 3.8.109 に荷重 - 高さ変位曲線の実験値との比較を示す。今回近似 1~3 とともに非常に良い一致を示し、グラフからは有意な違いを見出せなかった。次に、これらの近似曲線を用いて周方向応力 - 周方向ひずみ曲線を求めた結果を図 3.8.110 に示す。降伏近傍でそれぞれわずかに異なる曲線を描くものの有意な差は見られなかった。ここで、周方向応力 - 周方向ひずみ曲線から得られた機械強度をそれぞれ表 3.8.3 に示す。近似による誤差は限りなく小さいことがわかる。よって本研究では、中子圧縮試験結果においては、近似曲線は 1 本で十分であると決定した。

3.8.2.6 考察

3.8.2.6.1 A-EDC 試験の適用性

摩擦低減により破断ひずみ値が減少した。摩擦が小さい場合、リング試料は軸方向に非拘束であり、軸方向応力が生じない。そのため、一旦くびれが発生すると応力が集中し易く破断に至る。一方、摩擦が大きい場合、内壁は摩擦により拘束され外壁では引張応力が生じているため、軸方向に変形が拘束される。従ってくびれが生じにくい分、破断ひずみ値が上昇したと考えられる。但し、変形により軸方向拘束力が減少するため、同様にくびれが生じ、破断に至った。また、複数のくびれが発生したが、これは図 3.8.111 のように中子と管内壁の接触が非均一となる可能性があり、その場合には被覆管と中子の間には摩擦の強い部分と弱い部分が混在することから、変形の集中の度合いに差が出ると考えられる。

次に、従来型 EDC 試験との比較を行う。改良型に関してはリング幅 1 mm、摩擦係数 $\mu = 0.05$ で議論する。変形法について、改良型では中子の不均一な変形によりくびれを複数発生したが、従来型においても多数のせん断帯が観察されていることから、両試験ともに破断フープひずみ値を過多に評価している可能性がある。機械的特性に関して、改良型は誤差が小さく、安定したひずみ値を与えたが、従来型は破断ひずみ値が約 0.55 から 0.75 に分布した[3.8.47]。しかし、ひずみ速度が異なるため単純な比較は行えない。破断面に関して、改良型はカップアンドコーン型破壊を示したが、従来型では管厚方向に 45° 傾いた破断形態[3.8.56]を示し、明確な差が確認された。応力状態、ひずみ比に関しては両試験共に図 3.8.112 に示すように単軸引張状態を示すが、改良型の方がより安定した単軸引張状態を示した。

従来型、改良型 EDC 試験は実機条件の応力状態と大きく異なる。Leclercq ら[3.8.56]は Yungchang ら[3.8.42]の実験データ(図 3.8.113)からひずみ比に着目し、単軸引張状態の破断ひずみ値に補正を加え、RIA 時の応力状態での破断ひずみ値の導出を試みた。各水素量における破断相当ひずみ値において、各応力状態の値の相関を取り、近似曲線を示したものが図 3.8.114 である。例として、単軸引張から等二軸引張へ破断相当ひずみを補正した場合、以下の式で表せる。

$$\bar{\varepsilon}_{corrected} = 0.602 \exp(-0.0007H) \bar{\varepsilon}_{exp} \quad (3.8.21)$$

H は水素量(ppm)を示す。この補正式を導出した実験における単軸引張状態の破断相当ひずみは単純な引張試験で得られたことから、安定した単軸引張状態であることが考えられる。従来の試験法において、試料体積が小さく、かつ、フープ方向への応力を生じさせる簡便な手法としてリング引張試験が頻繁に扱われてきたが、同試験は応力状態、ひずみ比共に単軸引張応力下と大きく異なることが報告されている[3.8.49]。また、改良型 EDC 試験においても、摩擦低減を行っていない場合には応力状態、ひずみ比が内壁部、外壁部で大きく異なるため、安定した単軸引張状態であるとはいえない。一方、摩擦低減処理を改良型 EDC 試験では、応力状態、ひずみ比はそれぞれ約 0、-0.5 とほぼ単軸引張状態を示し、また、安定した挙動を示した。従って、上記補正を適用する上で、摩擦低減を行った改良型 EDC 試験はかなり有利な試験法であるといえる。

次に実機環境下への適用法について提案を行う。図 3.8.115 は図 3.8.113 を模式的に示したものである。図中、青い線は単軸引張状態を示し、赤い線は等二軸引張状態を示す。今、RIA 時における破断相当ひずみを $\bar{\varepsilon}_{RIA}$ とし、等二軸引張状態であると仮定する。等二軸引張状態である $\bar{\varepsilon}_{RIA}$ は式 3.8.1 から以下の様に単軸引張状態へ変換できる。

$$\bar{\varepsilon}_{corr,RIA} = \frac{1}{f} \bar{\varepsilon}_{RIA} \quad (3.8.22)$$

また、同様に安定した単軸引張状態を示す摩擦低減処理をした改良型 EDC 試験で得られた破断相当ひずみ($\overline{\varepsilon}_{EDC}$) は $\overline{\varepsilon}_{corr,RIA}$ と以下の式のような関係を持つ。

$$\overline{\varepsilon}_{EDC} = k\overline{\varepsilon}_{corr,RIA} \quad (3.8.23)$$

改良型 EDC 試験による破断相当ひずみは式 3.8.1 を用いることで等二軸引張状態での破断相当ひずみ $\overline{\varepsilon}_{corr,EDC}$ へ変換できる。更に式 3.8.2、3 を利用して整理すると以下の式で表される。

$$\overline{\varepsilon}_{corr,EDC} = f\overline{\varepsilon}_{EDC} = kf\overline{\varepsilon}_{corr,RIA} = k\overline{\varepsilon}_{RIA} \quad (3.8.24)$$

上式と、最初に定義した $\overline{\varepsilon}_{RIA}$ との関係性は以下のように表される。

$$\overline{\varepsilon}_{RIA} = \frac{1}{k}\overline{\varepsilon}_{corr,EDC} \quad (3.8.25)$$

式 3.8.5 を用いて整理を行えば、改良型 EDC 試験の破断相当ひずみは以下の式を用いることで実験環境下での破断相当ひずみ値を得ることができる。

$$\overline{\varepsilon}_{RIA} = \frac{f}{k}\overline{\varepsilon}_{EDC} \quad (3.8.26)$$

3.8.2.6.1 A-EDC 試験の再現性の考察

本稿では、5.3 項で述べた方法を用いて、周方向応力 - 周方向ひずみ曲線を導出した結果を示す。リング試料は Zry-4 まま材、中子試料は旋盤切削後 493 K×20 hr 熱処理を施した試料を使用した。A-EDC 試験を 5 回実施し、その再現性を評価した。図 3.8.116 にそれぞれの周方向応力 - 周方向ひずみ曲線を示す。また、試験ごとのばらつきを評価するため、ヤング率、0.2%耐力、最大引張強度、全伸びの 4 つの機械強度の値をそれぞれプロットしたものを図 3.8.117 ~ 図 3.8.120 に示す。また平均値、標準偏差、変動係数を求め表 3.8.4 に示す。

試験の再現性を評価するのに一般的に使用するヤング率について考えると、平均値から最もずれが大きい Test 1 のデータにおいても、6.5 %程度となり、許容しうる範囲で収まっていることがわかった。またそれぞれの変動係数で比較を行うと、破断ひずみにおいて突出して高い値を示していることがわかる。これはリング試料に管軸方向のくびれが複数発生し、くびれの数が試験ごとに異なるためである。ここでくびれの数は、レーザー顕微鏡で観察しうる管軸方向のへこみと定義した。レーザー変位計で観察したくびれの様子を図 3.8.121、図 3.8.122 に示す。試験ごとのくびれの数と周方向破断ひずみを表 3.8.5 に示す。このうち、くびれの数と周方向破断ひずみは相関性を示した(図 3.8.123)。くびれの数は試験ごとにばらつきが大きく、なおかつ試験前に予想することも不可能である。そのため、他の機械強度に比べると、破断ひずみのばらつきは多少大きくなると考えられる。

次に破断後リング試料の高さ変化(軸方向破断ひずみ)を測定し、軸方向及び周方向破断ひずみから、実験的にひずみ比を算出した。表 3.8.6 に示す。ここで軸方向破断ひずみは試料のくびれ以外の 5 箇所を測定した平均値としている。いずれの試験においても、理論的な単軸引張条件であるひずみ比-0.5 からはずれている。ここで、ひずみ比のずれの関係性を考察するために、軸方向破断ひずみの理論値を算出した。理論値は周方向破断ひずみとひずみ比-0.5 の積とした。表 3.8.7 に示す。試験ごとの軸方向破断ひずみにおける理論値と実験値を図 3.8.124 に示す。いずれの試験においても実験値は理論値を下回っている。これは、軸方向にくびれが複数発

生するためであると考えられる。くびれが発生すると軸方向のひずみはくびれ部分に集中し、くびれ部分以外の圧縮は進行しないため、今回測定した軸方向破断ひずみは理論値を下回ったと考えられる。くびれ分を考慮すると、実験的にも A-EDC 試験は周方向単軸引張条件をおおよそ満足すると考えられる。次に理論値のずれとくびれの関係を図 3.8.125 に示す。図のように、くびれの数からは有意な差が見られなかった。これはくびれそれぞれ軸方向の高さや周方向の大きさが異なるため、ずれはくびれの数そのものには依存しないと考えられる。

3.8.2.6.2 他試験との比較

本試験結果において、Zry-4 試料の周方向における機械強度は平均値として、ヤング率は 101 GPa、0.2%耐力は 820.3 MPa、最大引張強度は 1021 MPa、破断ひずみは 0.116 と求めることができた。ここで、過去に行われてきた周方向応力負荷試験[3.8.52, 3.8.55, 3.8.72~3.8.75]と比較し、A-EDC 試験の考察を行う。試験ごとの機械強度、条件を表 3.8.8 にまとめた。まず、必要な機械強度を全て算出できる試験が少ない。周方向応力 - 周方向ひずみ曲線の導出方法が確立された A-EDC 試験はこの面において有利な試験である。また試験ごとに機械強度のばらつきが大きい。これは試験における応力状態、ひずみ速度等の違いによる影響が大きいと考えられる。ここでは試験の比較を行うために破断ひずみに着目する。破断ひずみは一般的にひずみ速度依存性がある。しかし室温において Zry-4 周方向破断ひずみは、ひずみ速度 10^{-3} の試験と 10^2 の試験とでは 10%程度しか低下しないとされる[3.8.48]。また、試験における応力状態の違いが破断ひずみに影響を与えることもわかっている[3.8.42, 3.8.76]。そこで、ひずみ速度の影響を除外した上で、破断ひずみと応力状態の関係を調査した。今回計算を行った 5 種類の試験と結果を表 3.8.9 にまとめる。ここで破断ひずみはひずみ速度の常用対数に依存するとした(図 3.8.126)。ここで近似式の傾きは -0.004 であった。またバースト試験[3.8.52]に関しては、ひずみ速度が不明であるため、S.K. Kim らの試験[3.8.74]を参考にひずみ速度 1 とした。またリング圧縮試験は破断時においては平面ひずみ引張条件とは大きく異なるため今回は除外して考えた。ここでひずみ速度は 0.01 として算出した。また Yunchang ら[2.49]は Zry-2 の板材について図 3.8.127 のように破断ひずみのプロットを行っているが、本試験でも比較を行うため、軸方向破断ひずみを周方向破断ひずみとひずみ比の積として算出した。周方向破断ひずみと軸方向破断ひずみの関係を図 3.8.128 のように示す。Yunchang らと同様に本結果においても指数近似を示すことがわかった。また近似 20 式は以下となる(図 3.8.129)。

$$\varepsilon_{\theta} = 0.088440956122558 \cdot \exp(-5.14295056652857\varepsilon_z) \quad (3.8.27)$$

式(3.8.27)を用いて、等二軸引張条件における破断ひずみを求めると、 $\varepsilon_{\theta} = 0.063726137101947$ と算出できる。

ここで、Leclerc ら[3.8.56]はひずみ比に着目し、単軸引張状態から得られた破断ひずみ値に補正を加えることで、等二軸引張条件における破断ひずみ値を算出する数式の導出を行っている。

単軸引張 等二軸引張

$$\frac{\bar{\varepsilon}_f|_{eqb}}{\bar{\varepsilon}_f|_{ut}} = 0.602 \exp(-0.0007H) \quad (3.8.28)$$

ここで、 $\bar{\varepsilon}_f|_{eqb}$ は等二軸引張時の破断相当ひずみ値、 $\bar{\varepsilon}_f|_{ut}$ は単軸引張の破断相当ひずみ値、 H は水素量 (ppm) を表す。この式に A-EDC 試験から得られた破断ひずみを代入すると、 $\bar{\varepsilon}_f|_{eqb} = 0.065$ となる。上記式(3.8.27)から求めた等二軸引張条件における破断ひずみとほぼ一致する。このことから、A-EDC 試験が周方向における単軸引張条件を満足していることが実験的にわかった。

3.8.2.7 結論

3.8.2.7.1 最適条件

実機被覆管の PCMI による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 試験法の開発を行い、以下の成果と知見を得た。

- ・改良型における最適な条件を決定した。それは中子 Cu、リング幅 1、2 mm とした時であった。
- ・Cu 中子、リング幅 1mm において、中子-被覆管間の摩擦係数が小さい時、試料中には比較的均一な応力分布が表れ、その応力状態は従来型よりも安定した単軸引張状態を示した。
- ・改良型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。

本研究では新しい試験法の最適な試験条件の決定と、その時の試験体系の詳細な把握を行った。その中で新たな問題が生じることもあり、今後も試験条件ごとに問題が生じる可能性も考えられる。また、得られた結果を正確に把握し、実炉環境との対応を取ることも重要である。そこで、以下の3点を重視することで、より発展的な試験法の開発を行うことが可能になると考えられる。

・新しい条件での試験

本研究では材料は Zry-4 の無垢材に対し、室温で試験を行った。従って、試験片材料や試験温度、試料の水素吸収量、腐食量、照射量ごとに本試験体系がどのような挙動を示すかを明らかにする必要がある。それら进行评估することで本試験法の有効な範囲を正確に見定める必要がある。

・問題点の解決

本研究においてもくびれが複数生じるといった問題が生じているが、同様に新しい条件での試験を行えば再び問題が生じることが考えられる。これら問題点を解決することでより発展した試験法となると考えられる。

・実炉環境への適応法

本試験法の応力状態、ひずみ比は単軸引張状態を示しているため、実炉環境下への適応を考えると、厳密な補正が必要になると考えられる。例えば、本論文で紹介した補正手法だが、Yunchang と Koss ら [3.8.42] が行った実験は水素を均一に吸収させた試料に対する破断相当ひずみについて述べているが、実炉環境下では水素化物は不均一に分布し、場合によっては径方向へ配向していることもある。また、被覆管表面は酸化膜や水素化リム組織などの脆い層で覆われており、Yunchang と Koss らの実験結果だけでは補正は不十分である。従って、更なる文献調査を行い、補正手法の提案を行う必要がある。

3.8.2.7.2 周方向応力 - 周方向応力ひずみ曲線の導出

周方向応力 - 周方向応力ひずみ曲線の導出方法を確立するため、中子作製方法の改善と、データフィッティングを行った。

中子として、市販の銅棒を使用するよりも、径を切削したものの方が試験再現性はより高いものの、A-EDC 試験においてはリング試料の平行性が失われ、再現性が損なわれることがわかった。これは表面硬さのばらつきによるものであると考えられる。径を切削した後に熱処理を施した中子は試験再現性及び A-EDC 試験におけるリング試料の平行性が非常に高いことがわかった。その中でも、熱処理条件 593 K × 20 hr の中子は、完全に均質化されており、本試験において十分であるとした。

中子圧縮試験と A-EDC 試験の荷重 - 高さ変位曲線を比較することで、周方向応力 - 周方向応力ひずみ曲線を導出する手法を提案した。この際、データをフィッティングすることで測定誤差の低減及びステップサイズの統一を図った。中子圧縮試験における荷重 - 高さ変位曲線の近似式は 1 本、A-EDC 試験の荷重 - 高さ変位曲線は 3 本を連続させてフィッティングすることが十分だと決定した。

以上の改良を行ったことで、破断に至る大変形域まで連続した周方向応力 - 周方向応力ひずみ曲線の導出に成功した。

3.8.2.7.3 A-EDC 試験の再現性

A-EDC 試験を 5 回実施し、それぞれ周方向応力 - 周方向応力ひずみ曲線を導出した。ヤング率の平均値は 101 GPa、標準偏差は 4.77 となり、非常にばらつきは小さかった。この結果から、A-EDC 試験は十分に再現性の高い試験であることがわかった。

3.8.2.7.4 A-EDC 試験の実験的に求められる応力状態

Zry-4 の周方向における機械強度は、ヤング率は 101 GPa、0.2%耐力は 820.3 MPa、最大引張強度は 1021 MPa、破断ひずみは 0.116 と求めることができた。このうち破断ひずみに着目し、A-EDC 試験と他の周方向応力負荷試験における周方向破断ひずみ値をプロットすると、軸方向破断ひずみ値に指数近似することがわかった。ここから、Zry-4 の等二軸引張条件における破断ひずみ相当値は約 0.064 と算出できた。また Leclercq らの式に A-EDC 試験で得られた周方向破断ひずみ値を代入すると、0.065 と算出できた。これは先に求めた値とほぼ同じであり、A-EDC 試験が周方向における単軸引張条件を満足していることを実験的にも確認できた。

3.8.2.8 今後の展望

3.8.2.8.1 A-EDC 試験の他材料への適用

今回は標準試料として Zry-4 を用いて実験を行ったが、周方向単軸引張条件を満足する A-EDC 試験を用いれば、あらゆるリング状試料に対して周方向の機械的特性を調査でき、一般的な軸方向引張機械試験との比較も可能である。燃料被覆管分野においては特に今後は、Zry-4 水素化材、照射材、他 Zr 合金材料への試験適用及び機械的特性評価が期待される。また他分野においても、管状材料は成形の際に必ず集合組織が形成されるため、周方向の機械的特性を調査する際に A-EDC 試験は非常に有用である。

3.8.2.8.2 高温環境における A-EDC 試験方法の確立

従来の EDC 試験と比較したときに、A-EDC 試験の大きなメリットの一つに、高温環境での試験も可能であるということが挙げられる。高温環境における周方向の機械的特性を調査するために、A-EDC 試験による高温試験の確立は非常に期待される。しかし課題が多く残るのが現状である。例えば、高温での中子試料の軟化が挙げられる。室温で Zry-4 リング試料に対して周方向単軸引張条件を満たしていた銅中子でも、高温では再調査を行う必要が出てくる。中子試料の硬度が低いと、試験中にリング試料が中子に食い込んでしまい、単軸引張条件を満足しなくなる可能性があるからである。

3.8.2.8.3 くびれの調査

破断後のリング試料からは管軸方向に複数のくびれが観察され、その数は試験ごとに非常にばらつきが大きかった。そこで、試料のくびれの発生及び進展、割れを周方向応力 - 周方向ひずみ曲線と比較して、リング状試料及び管状試料におけるくびれの発生及び進展のメカニズムを調査する必要がある。

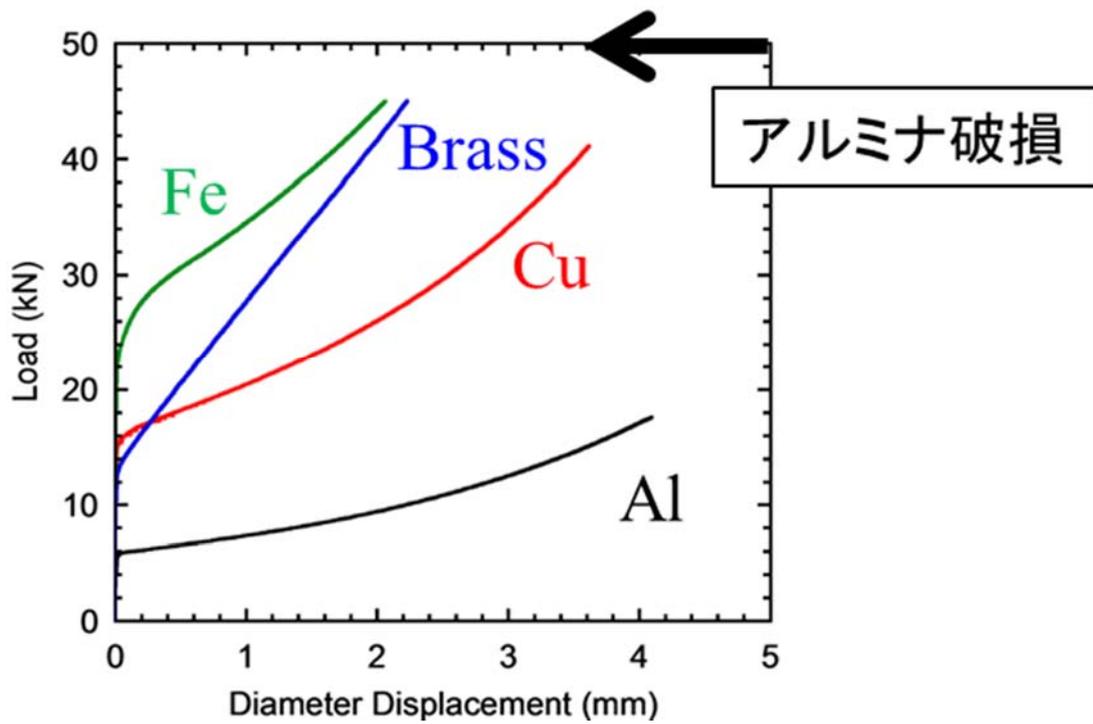


図 3.8.41 各材料の高さ 8 mm の試料における荷重-変位曲線

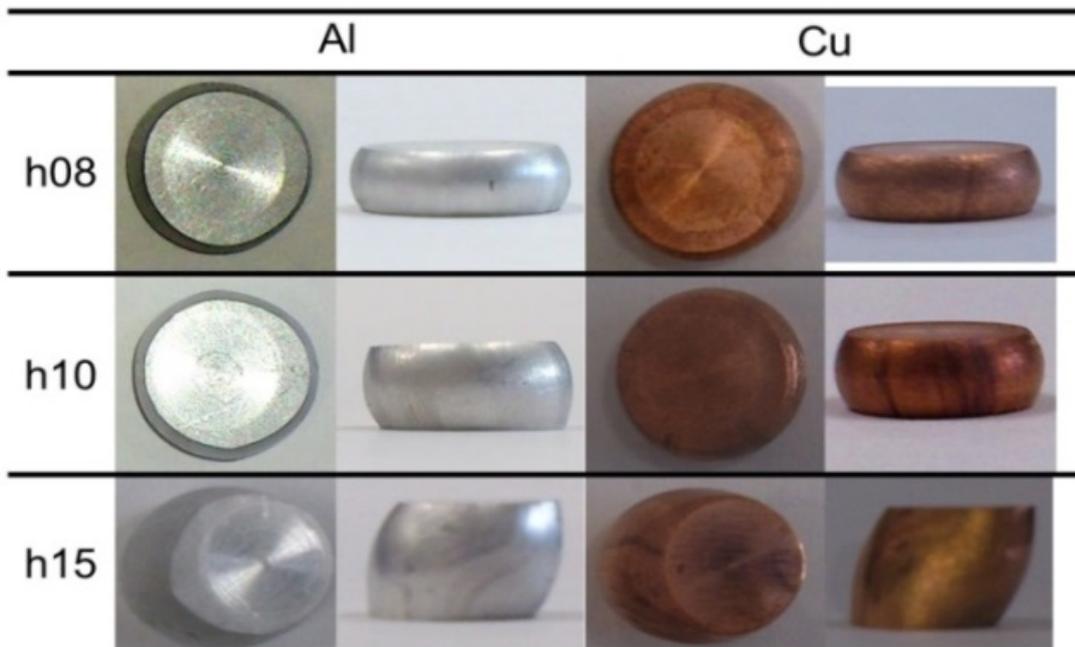


図 3.8.42 各材質、中子高さにおける変形後の外観

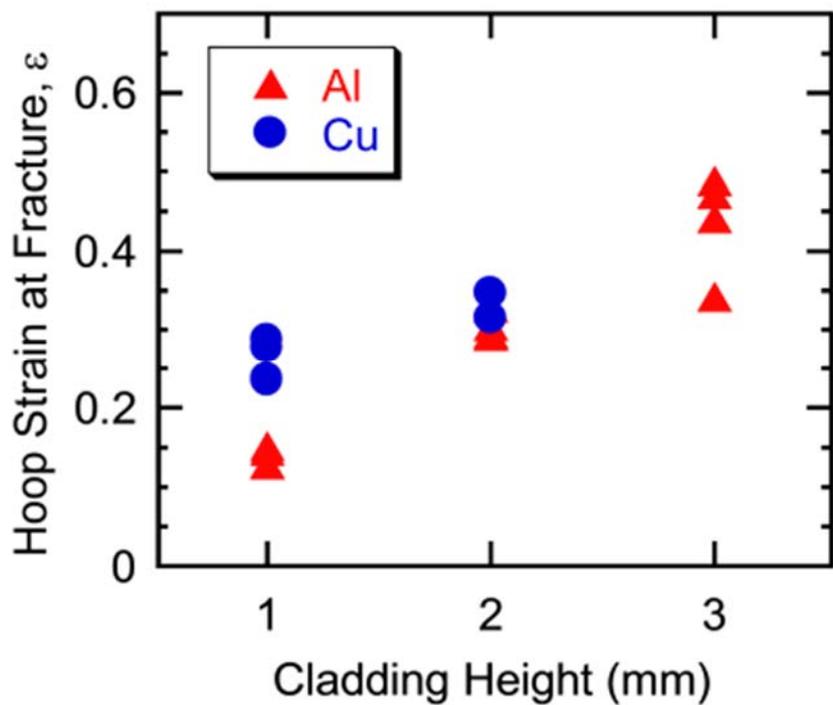


図 3.8.43 各材質の荷重-直径変位曲線

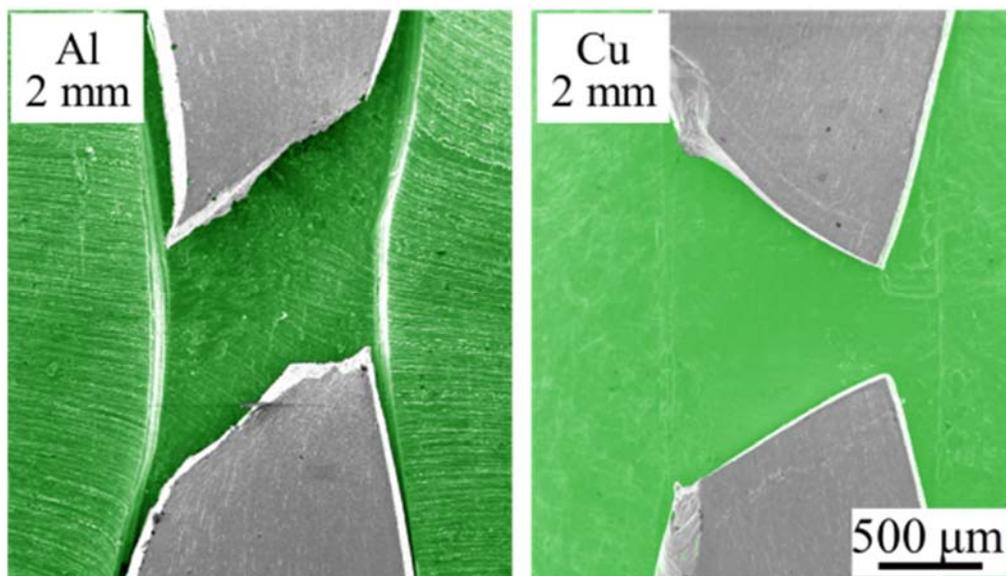


図 3.8.44 破断部近傍の SEM 像

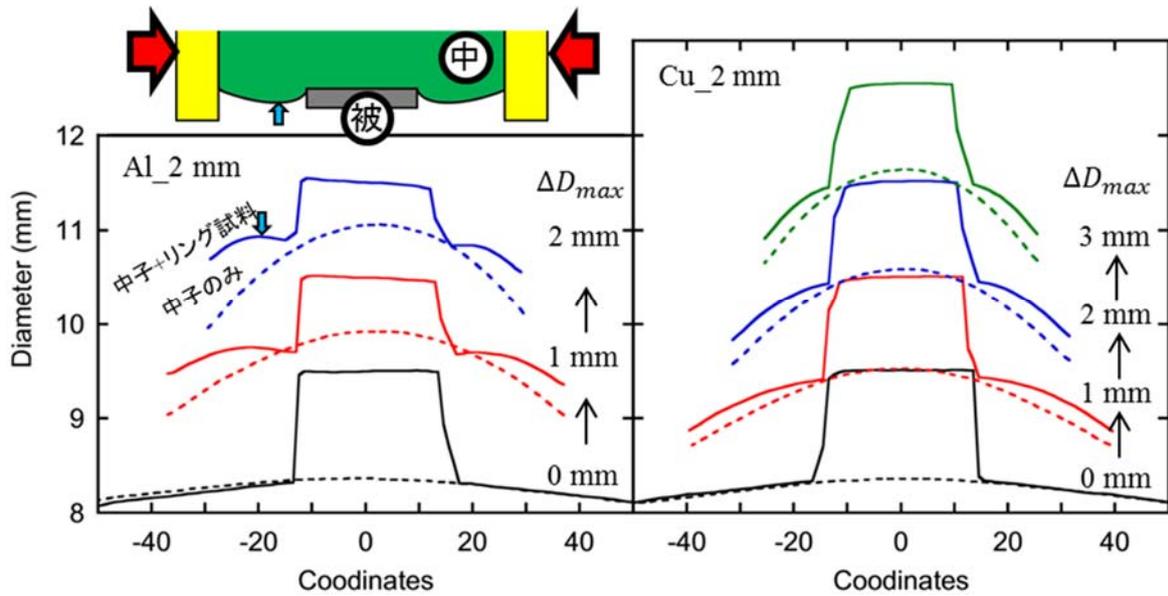


図 3.8.45 改良 EDC 試験における被覆管、中子の変形状
 (実線：改良 EDC 試験、点線：中子のみ圧縮試験、横軸は高さに相当する)

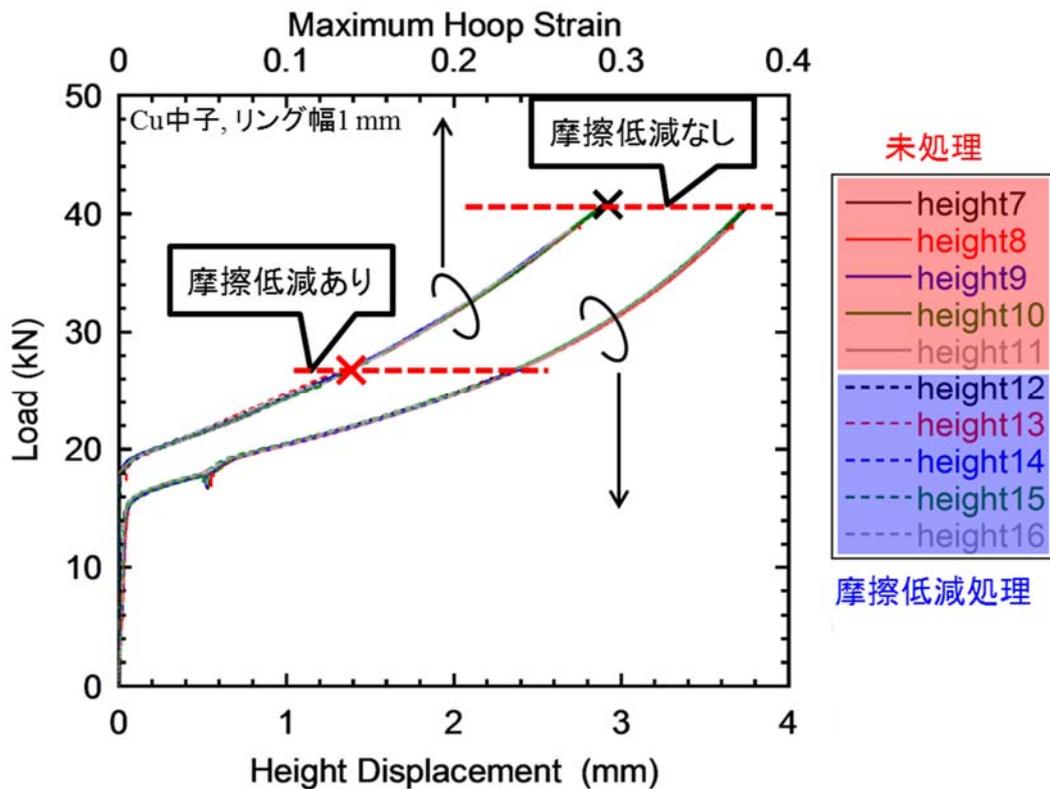


図 3.8.46 摩擦低減処理時、未処理時における Cu_1 mm の荷重変位曲線
 (图中、×印は試料の破断を示す。赤×：摩擦低減処理した試料、黒×：未処理の試料の破断)

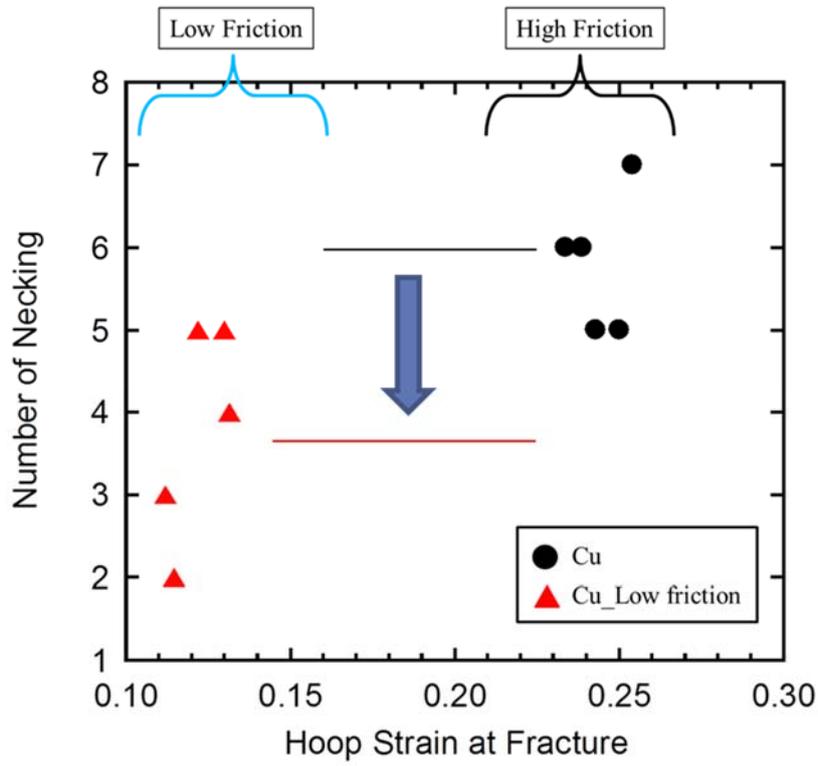


図 3.8.47 くびれ数の破断フープひずみ依存性

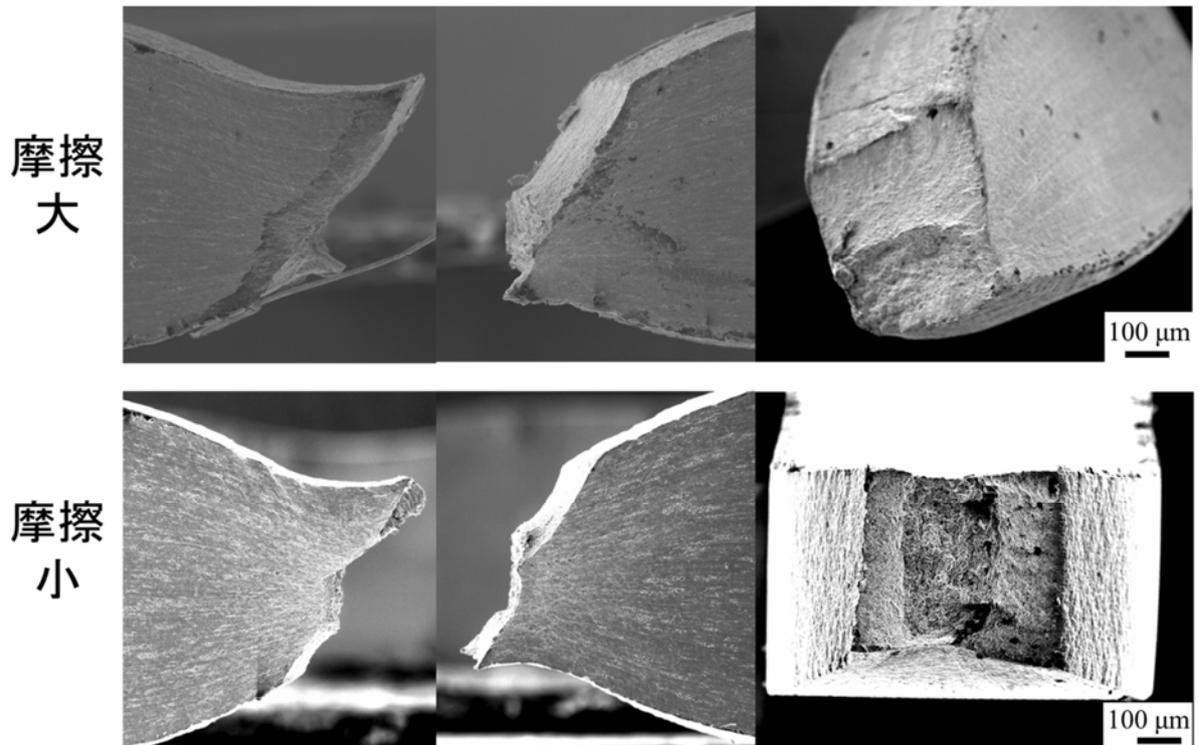


図 3.8.48 摩擦低減処理時と未処理時の破断部 径方向、周方向からの SEM 像

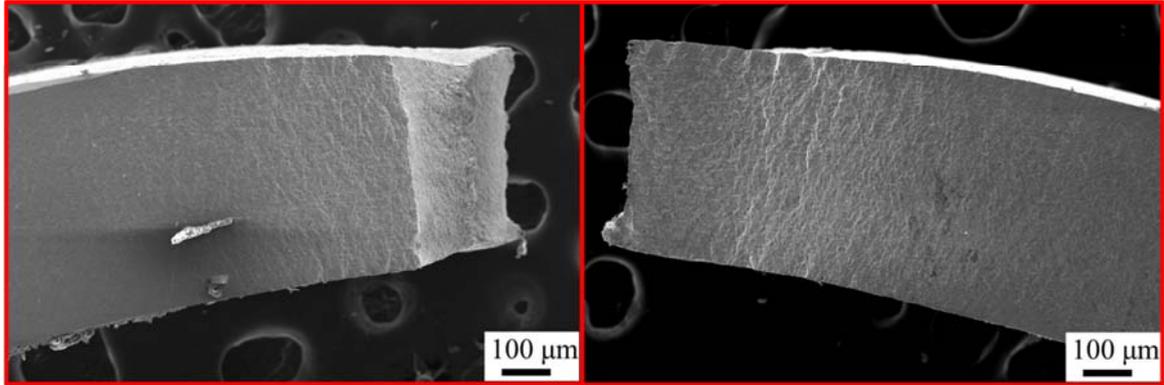
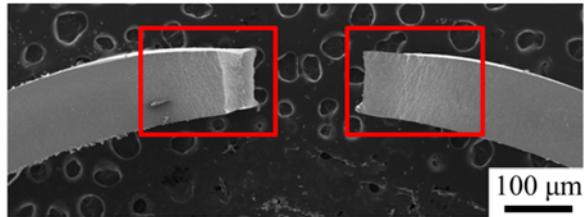
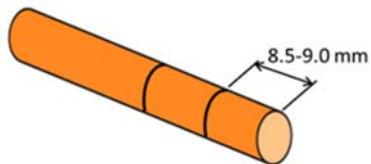


図 3.8.49 摩擦低減処理時の破断部 軸方向からの SEM 像



①ファインカッターで試料を概ねの大きさに切断



②旋盤加工で所定の高さまで加工



③面取りを行いバリを除去

図 3.8.50 従来手法の中子作製手順

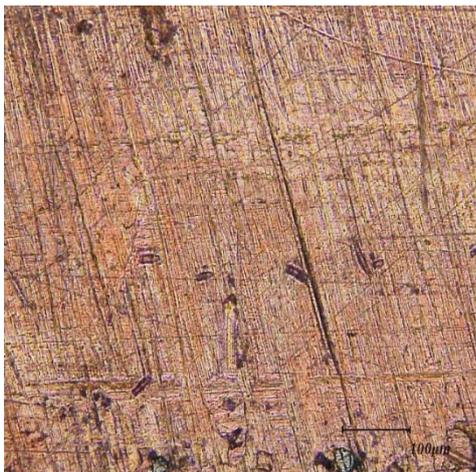


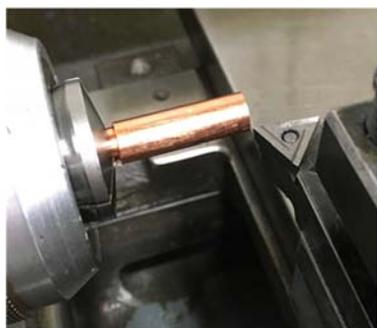
図 3.8.51 従来手法で作製した中子側面



①ファインカッターで試料を8 cm程度に切断



②旋盤加工で4 cm程度を直径8 mmに切削



③残部も同様に切削、以降従来手法と同様

図 3.8.52 新手法の中子製作手順



図 3.8.53 新手法で作製した中子側面

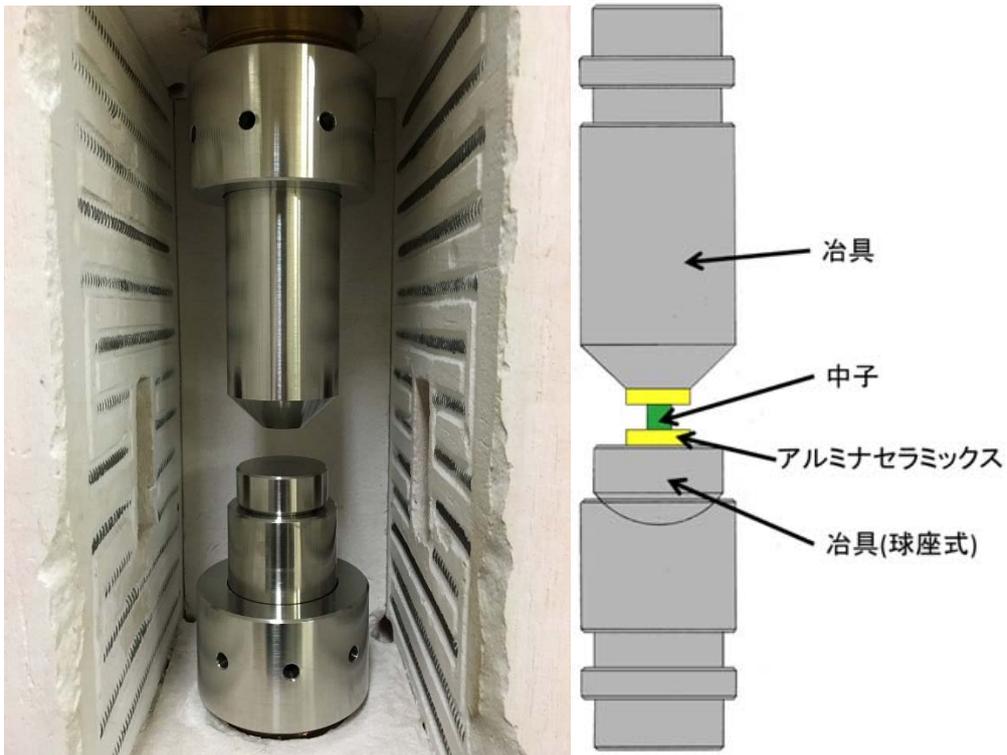


図 3.8.54 中子圧縮試験炉内外観及び試験体系

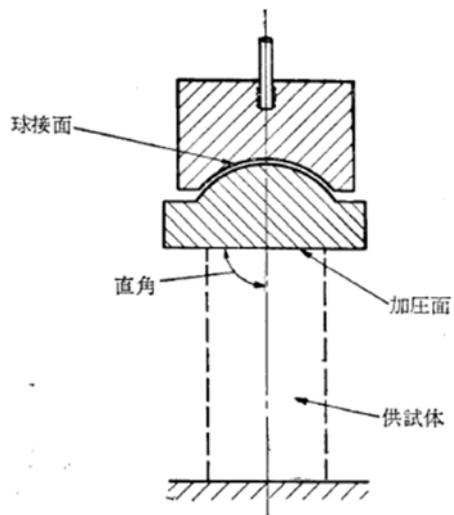
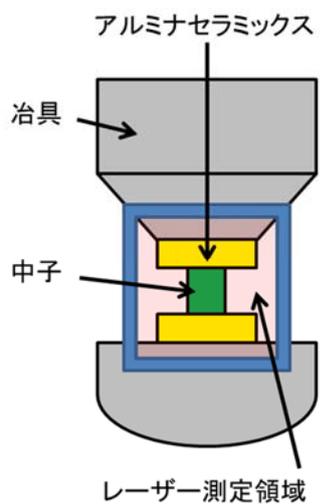


図 3.8.55 圧縮試験機の加圧版に用いられる球座の例



図 3.8.56 治具 2



- ①モード: 段差 測定結果: 平均
- ②モード: 外径 測定結果: 最大

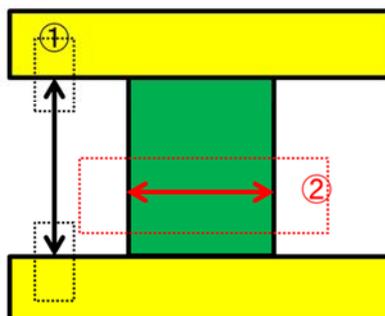


図 3.8.57 測定領域とモード

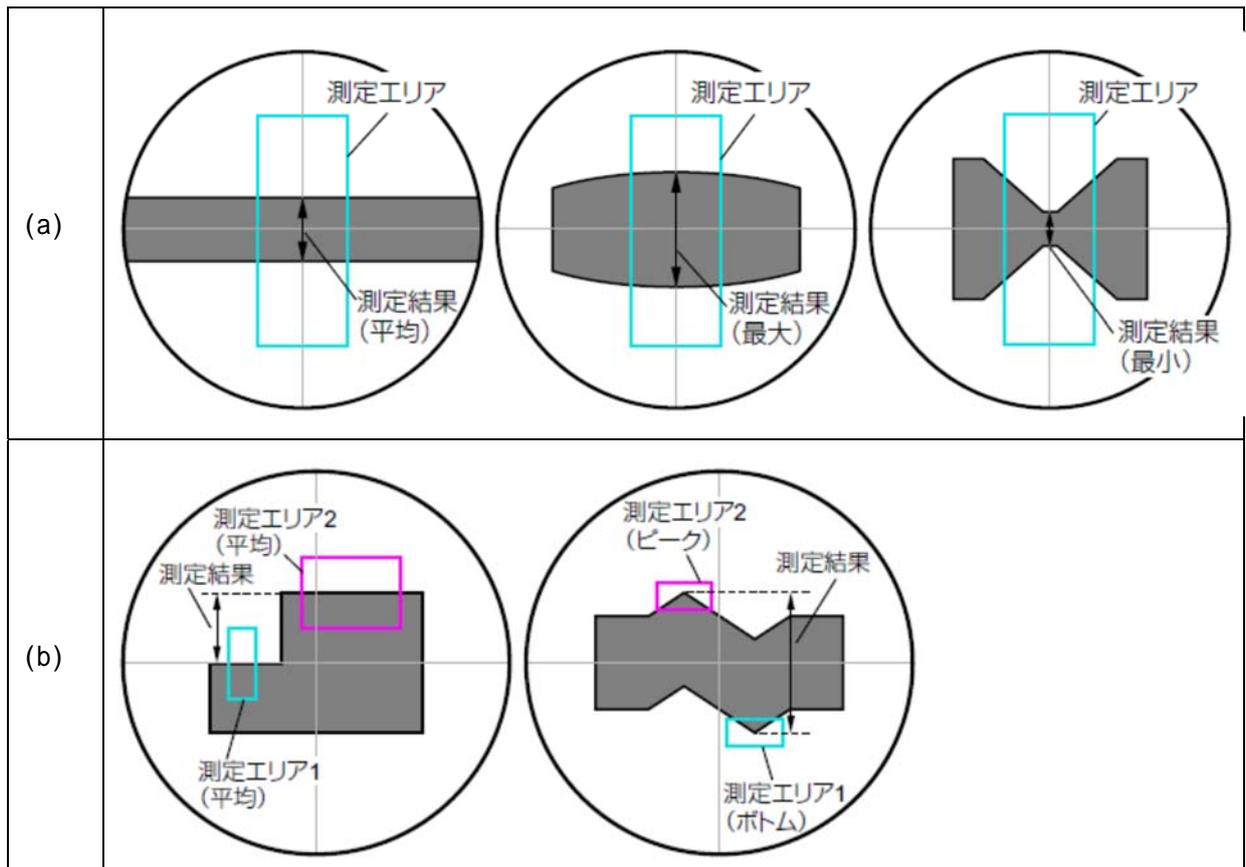


図 3.8.58 測定モードの概要 (a)外径 (b)段差[4.4]

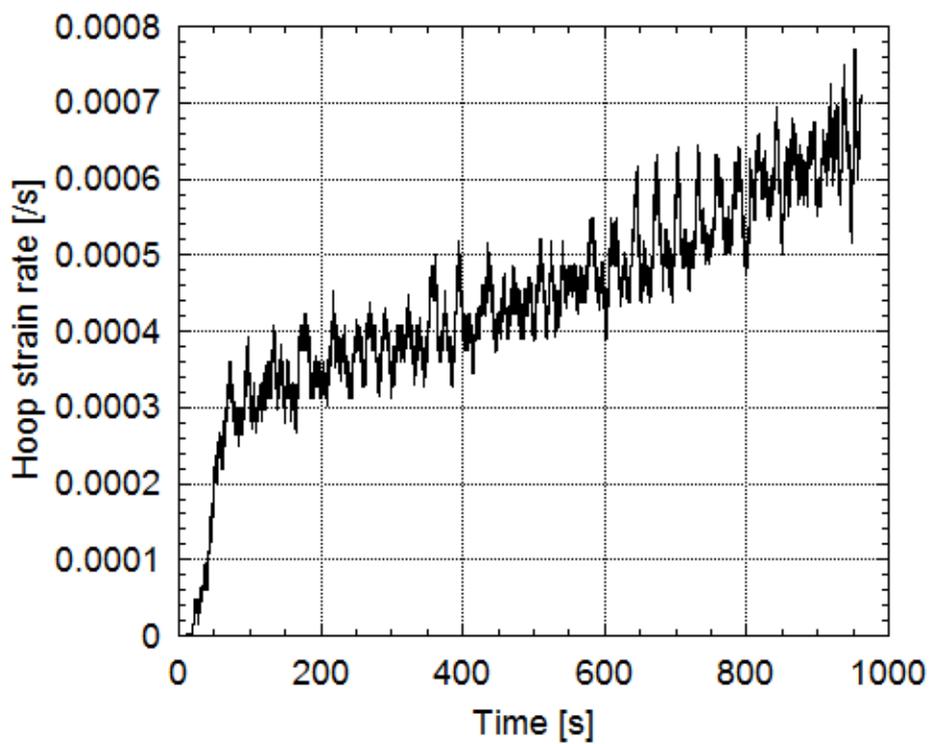


図 3.8.59 中子圧縮試験最大外径部における周方向ひずみ速度

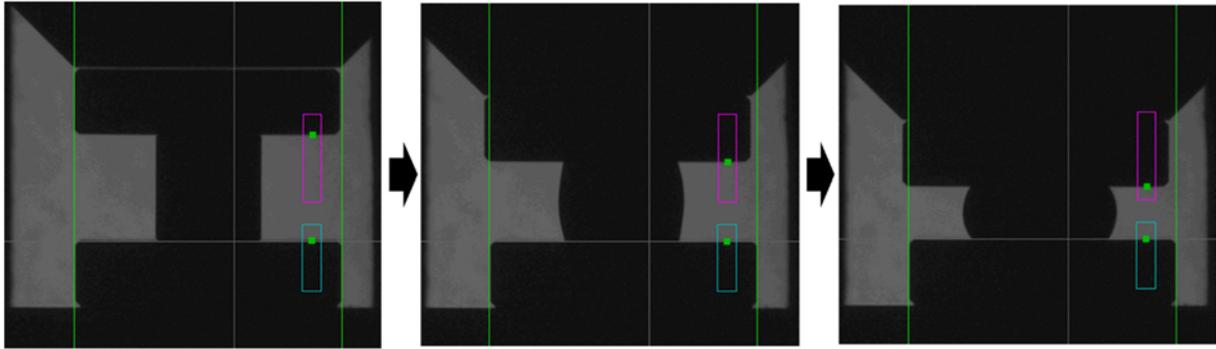


図 3.8.60 新手法で作製した中子の形状変化

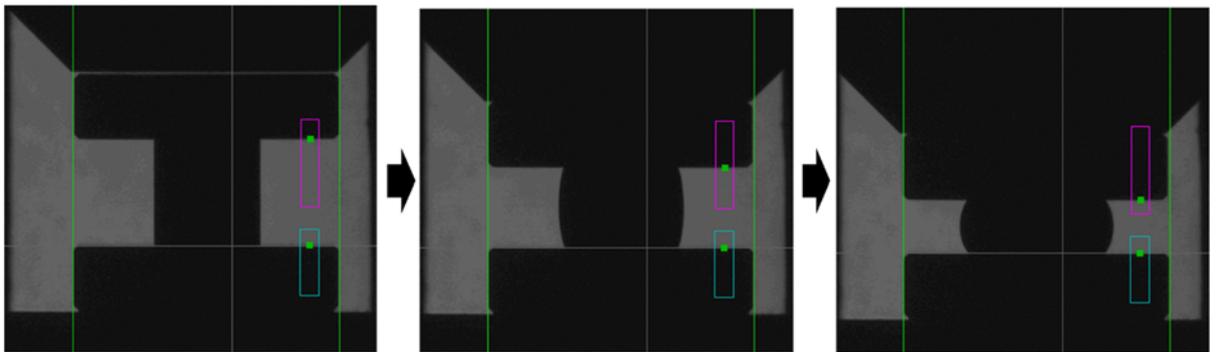


図 3.8.61 熱処理を施した中子の形状変化

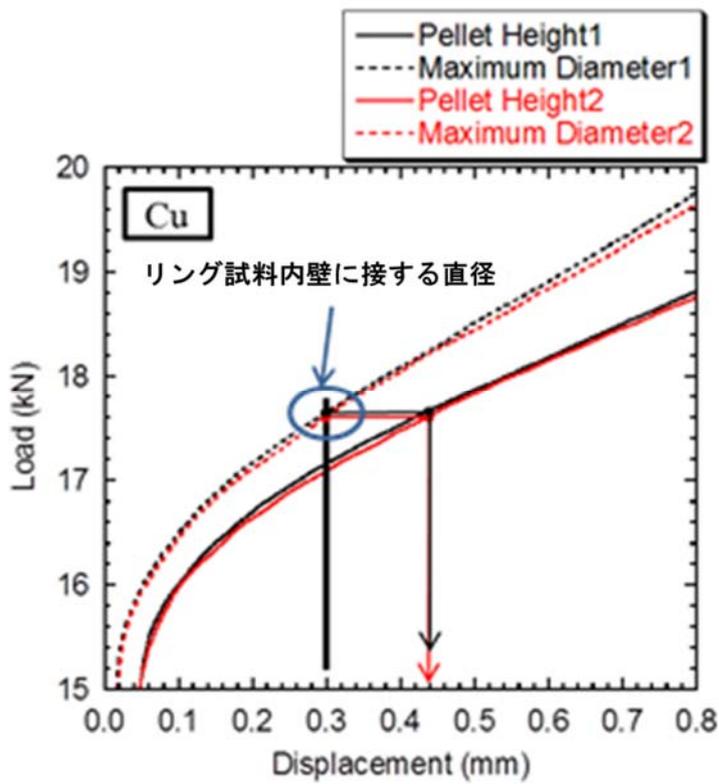


図 3.8.62 銅中子の荷重変位曲線一部

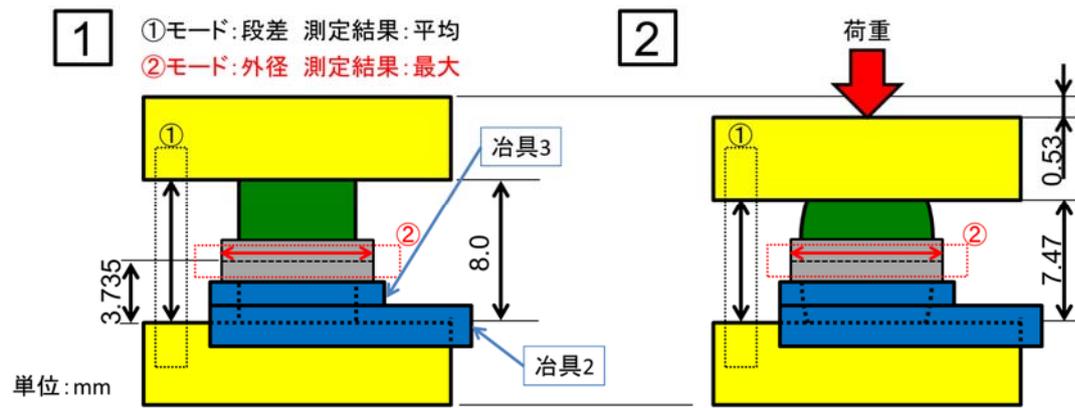


図 3.8.63 試料固定方法の模式図

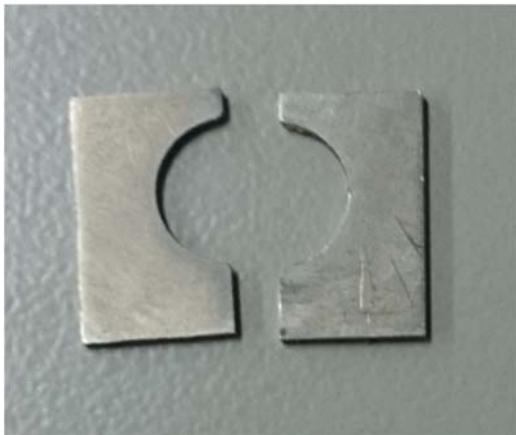


図 3.8.64 リング試料固定位置を調整する治具 3

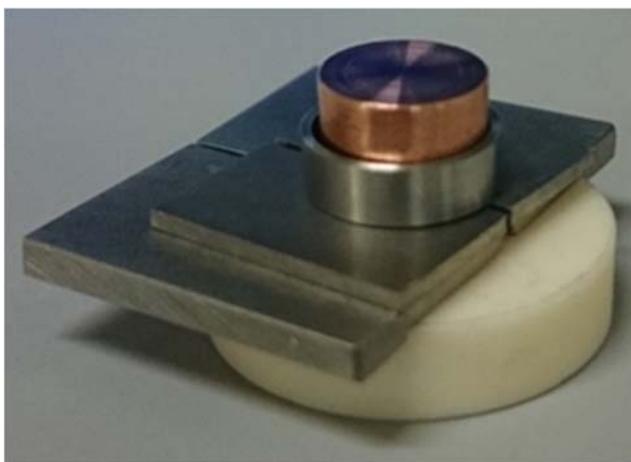


図 3.8.65 リング試料設置の様子

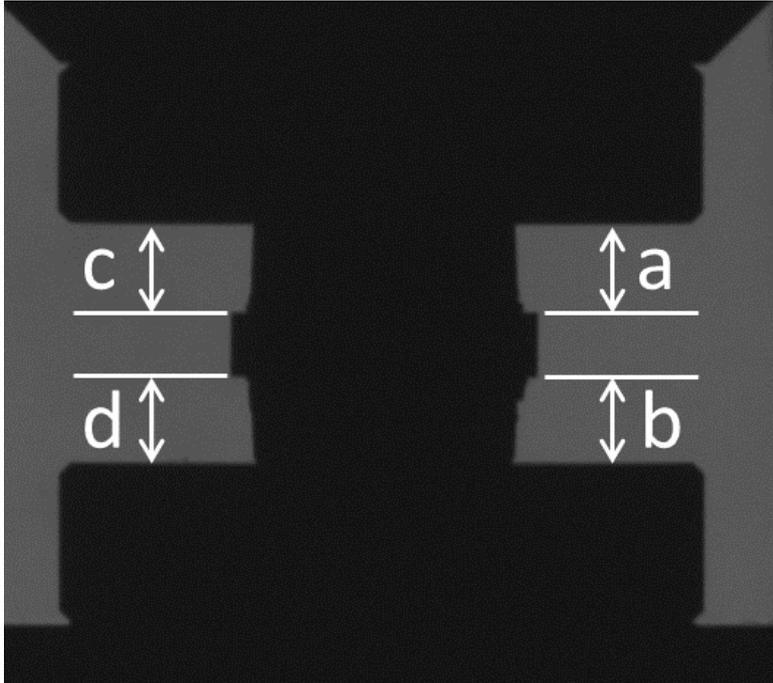


図 3.8.66 レーザー変位計モニター図

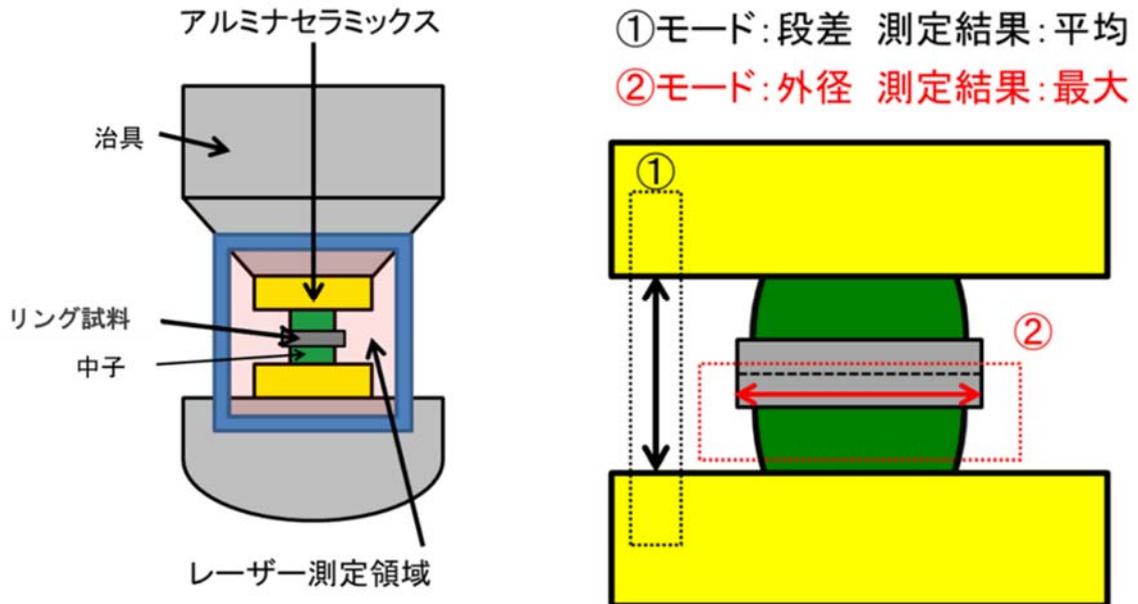


図 3.8.67 A-EDC 試験における測定領域とモード

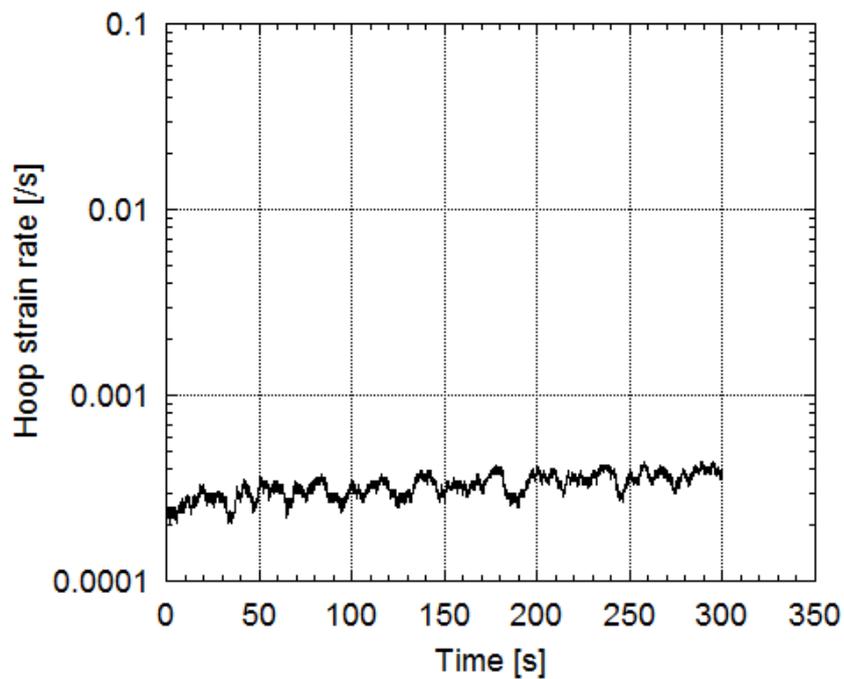


図 3.8.68 A-EDC 試験最大外径部における周方向ひずみ速度

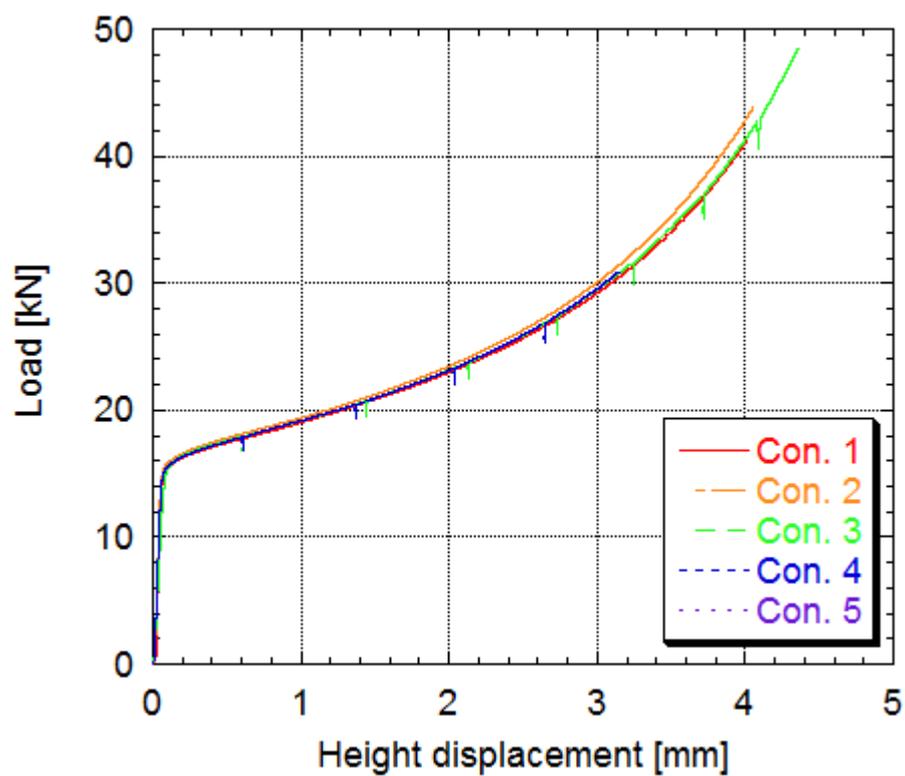


図 3.8.69 従来手法で作製した中子圧縮試験結果 (N=5)

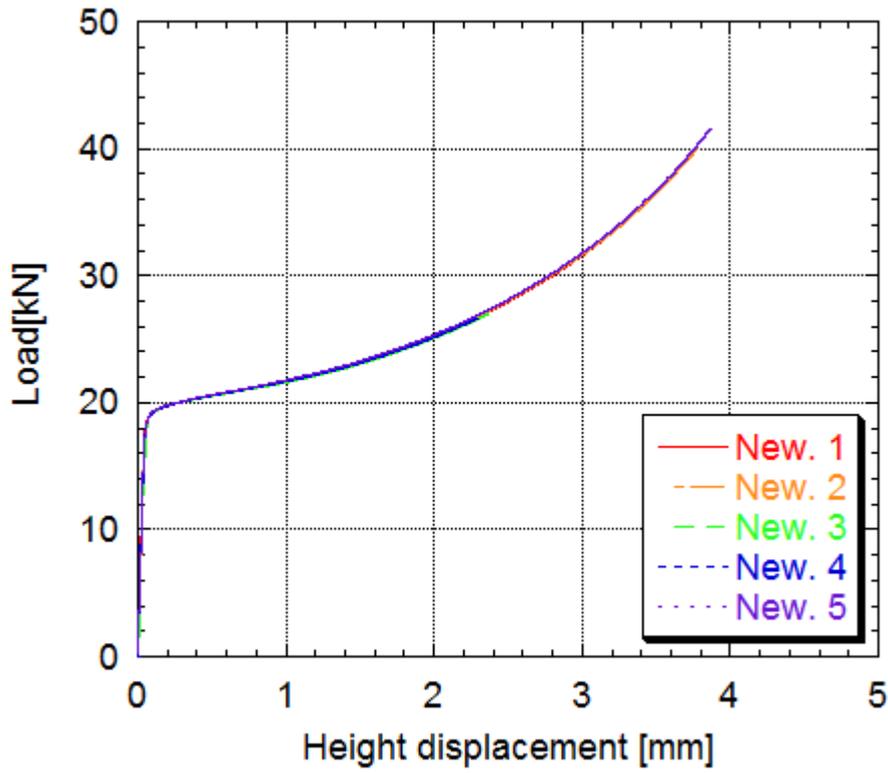


図 3.8.70 新手法で作製した中子圧縮試験結果 (N=5)

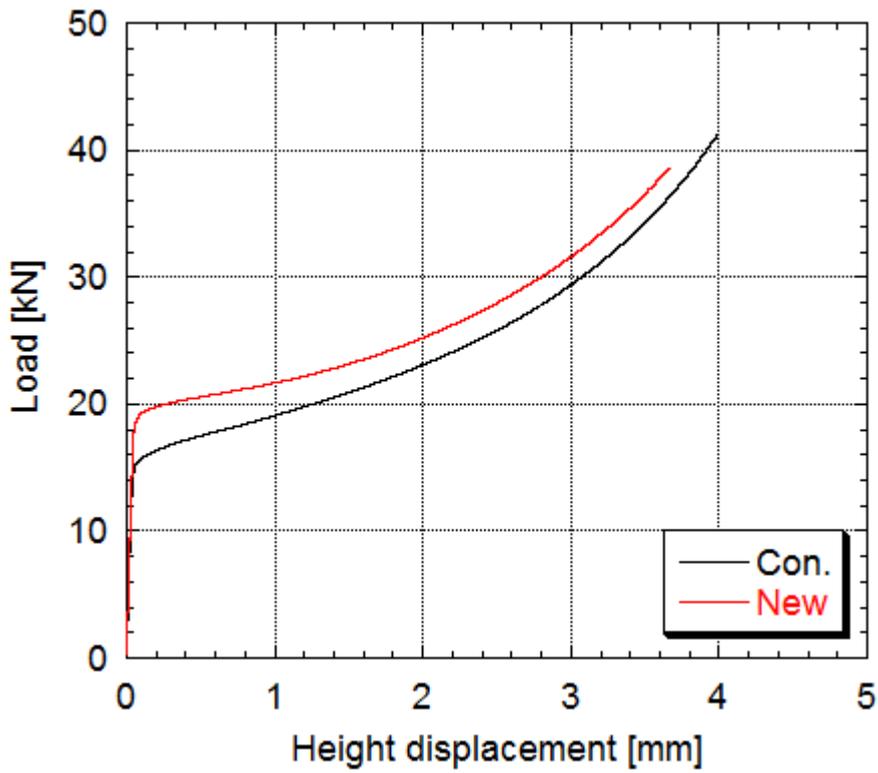


図 3.8.71 作製方法の違う中子圧縮試験結果の比較

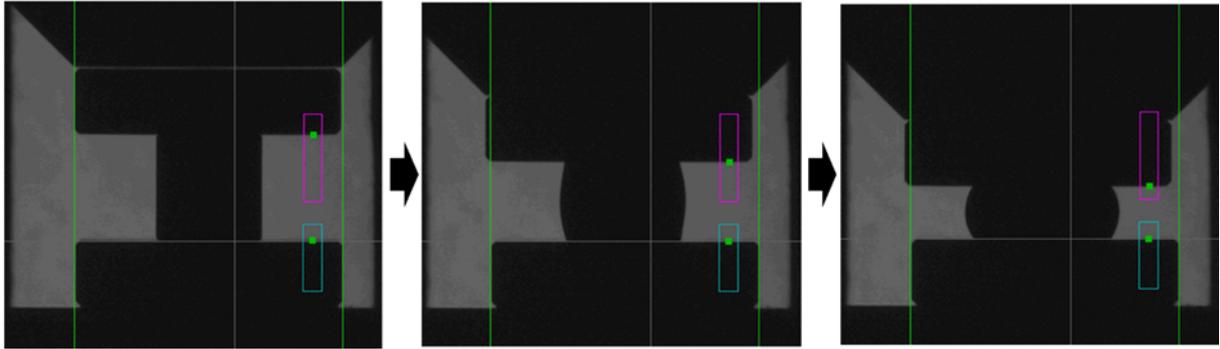


図 3.8.72 新手法で作製した中子の形状変化

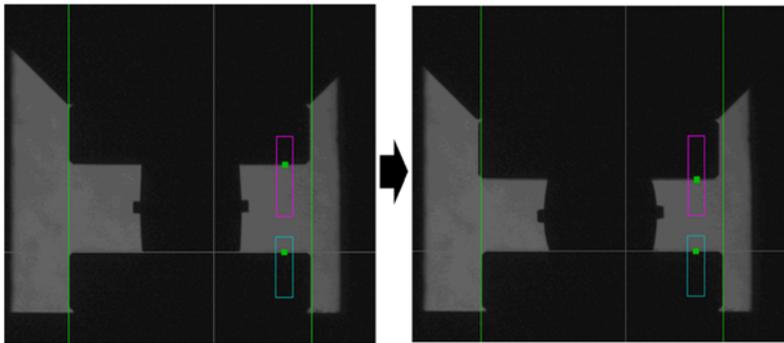


図 3.8.73 新手法で作製した中子を用いた A-EDC 試験

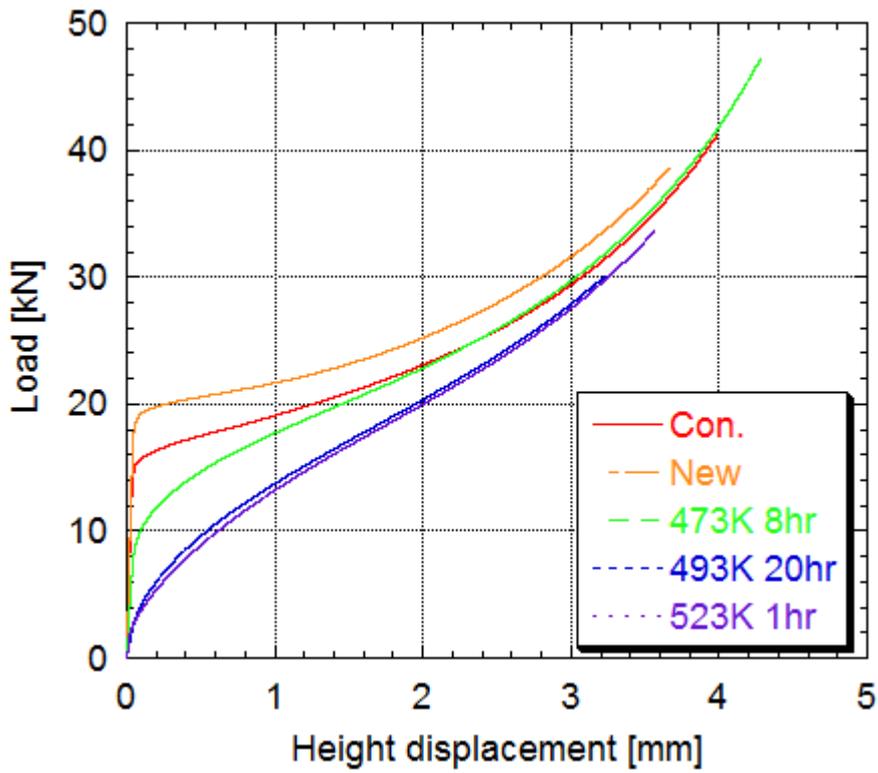


図 3.8.74 作製方法の異なる中子の圧縮試験結果比較

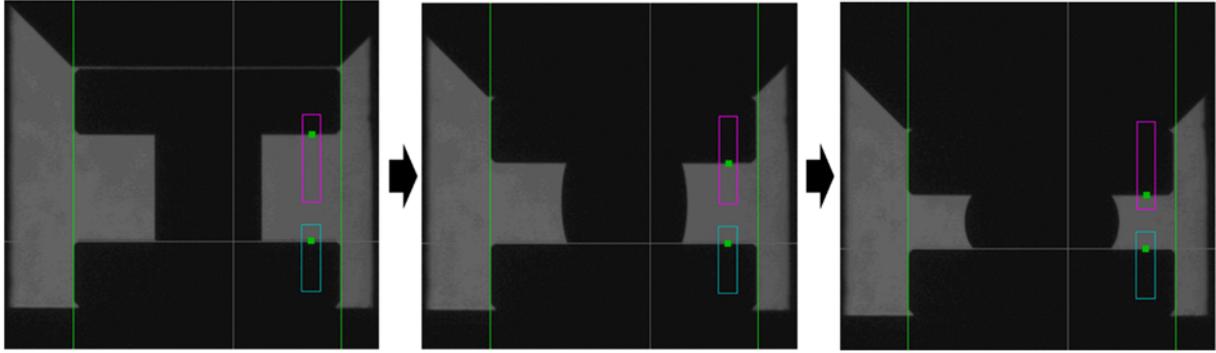


図 3.8.75 熱処理を施した中子の変形形状

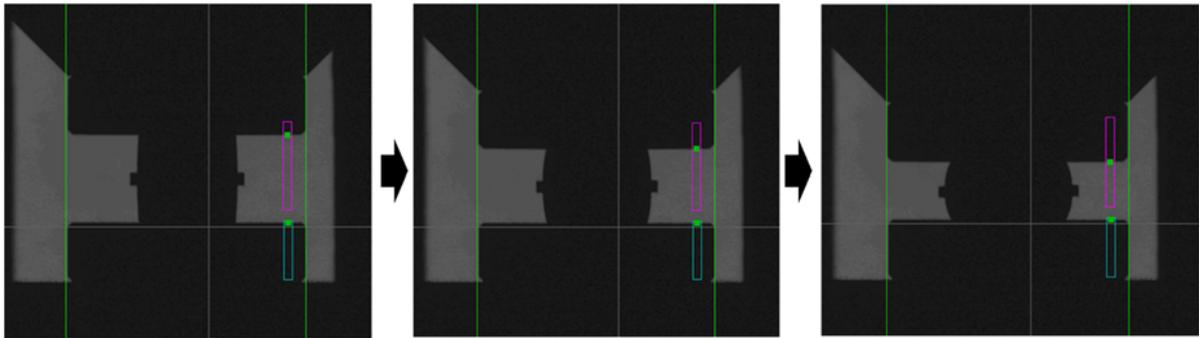


図 3.8.76 熱処理を施した中子を用いた A-EDC 試験

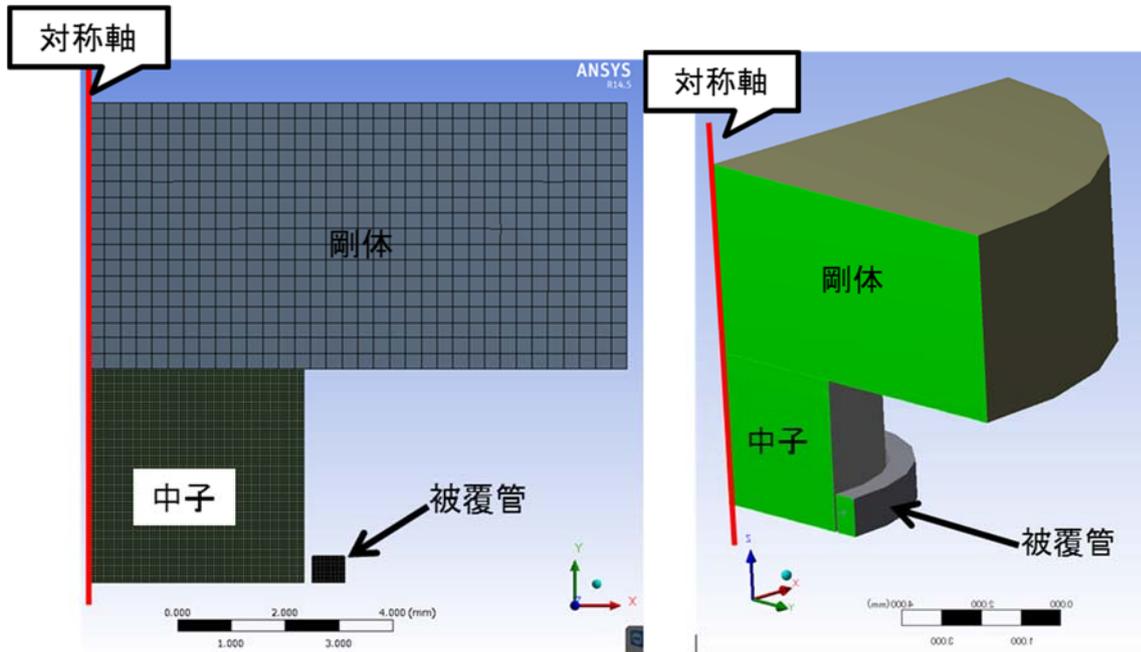


図 3.8.77 数値解析モデル、(a) 二次元軸対称モデル、(b) 回転モデル

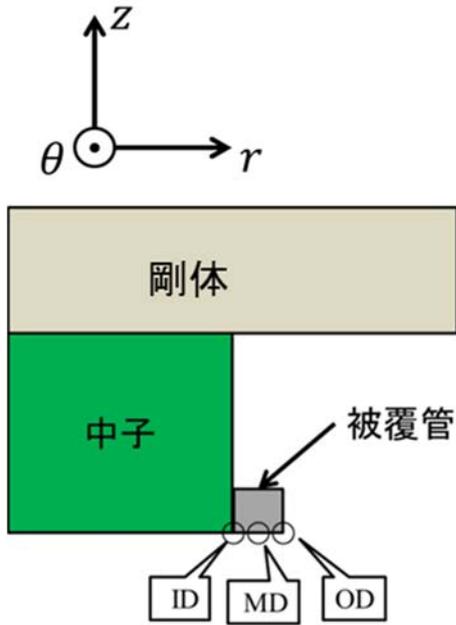


図 3.8.78 測定箇所

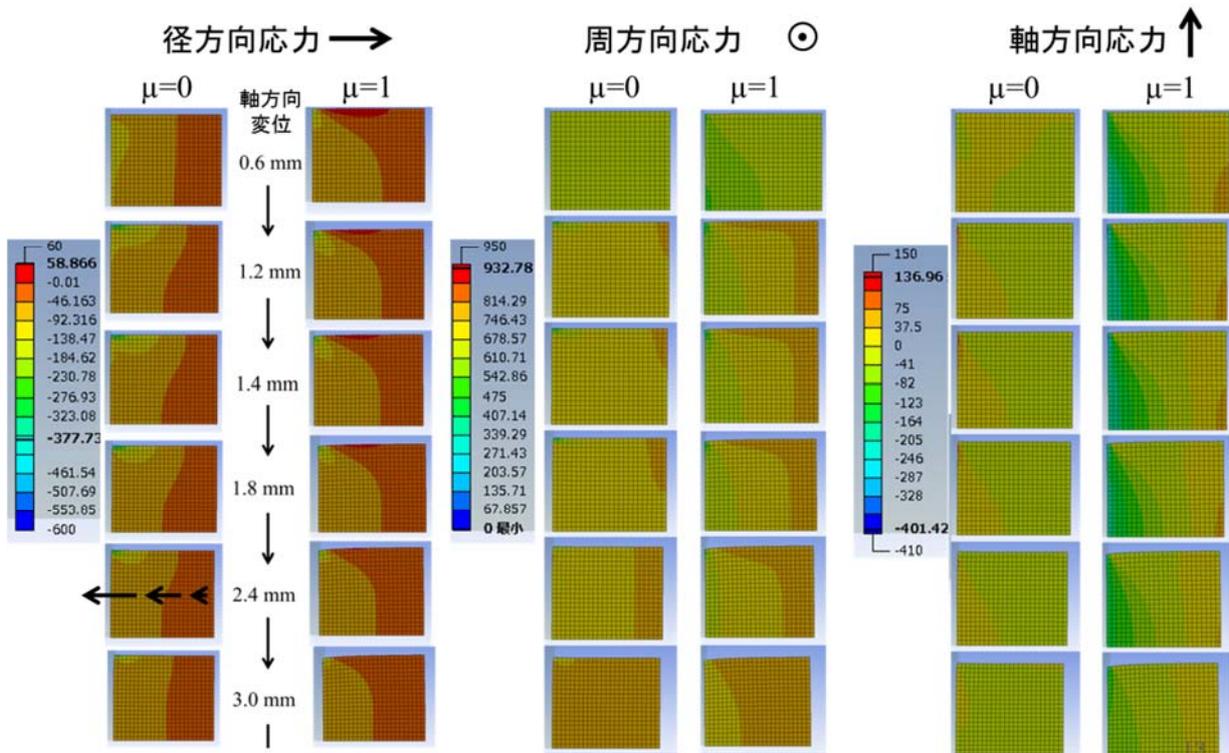


図 3.8.79 リング試料断面部の各方向の応力分布。中子と管の摩擦係数 0 と 1 の場合。

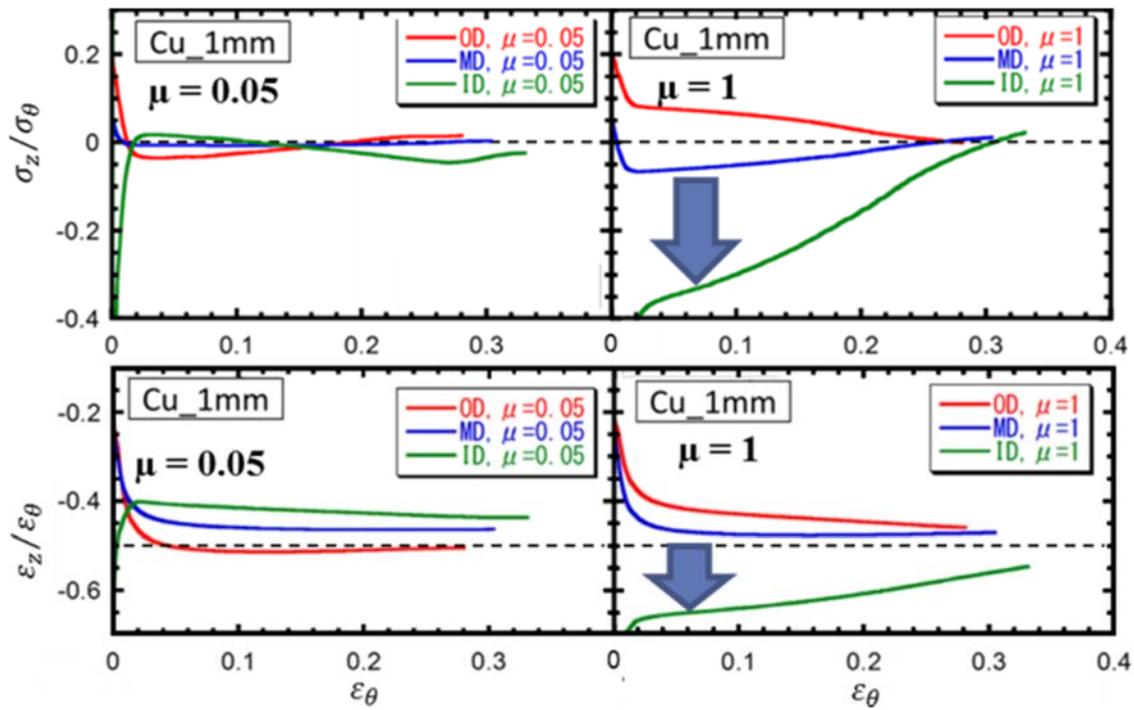


図 3.8.80 応力状態、ひずみ比に及ぼす摩擦の効果

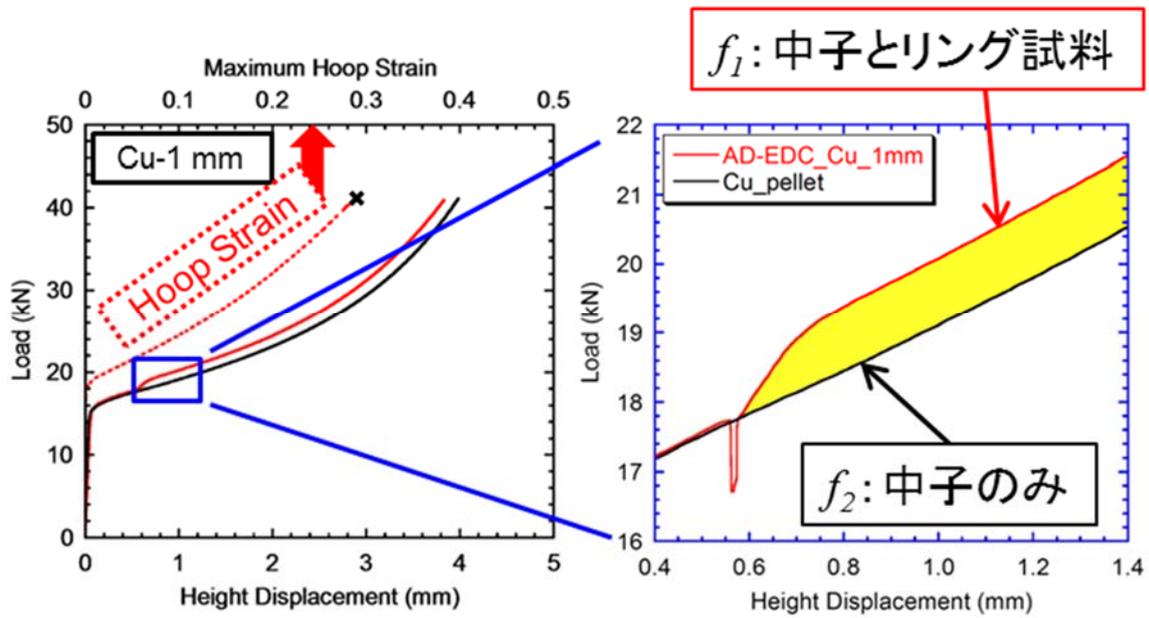


図 3.8.81 A-EDC 試験と中子圧縮試験の荷重 - 高さ変位曲線比較

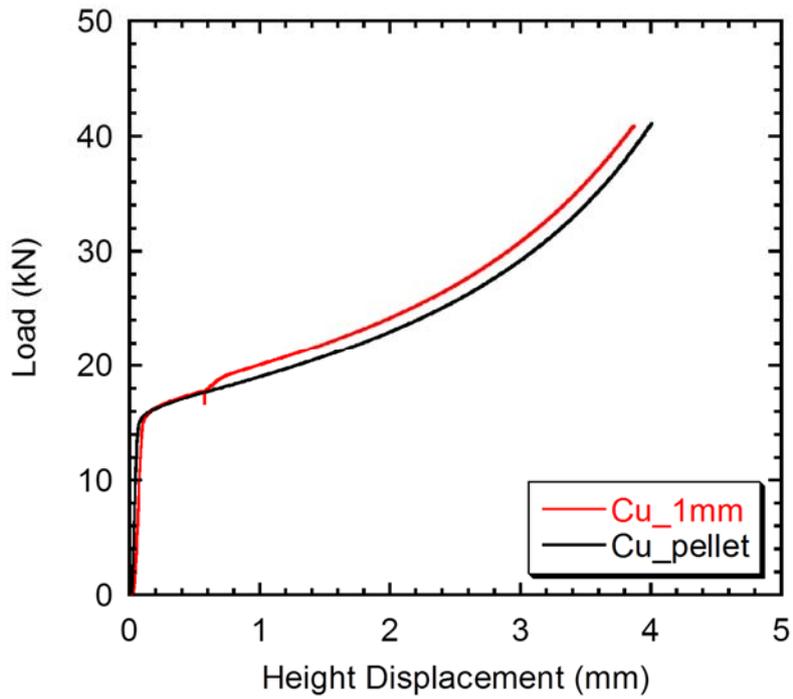


図 3.8.82 補正前の荷重 - 高さ変位曲線

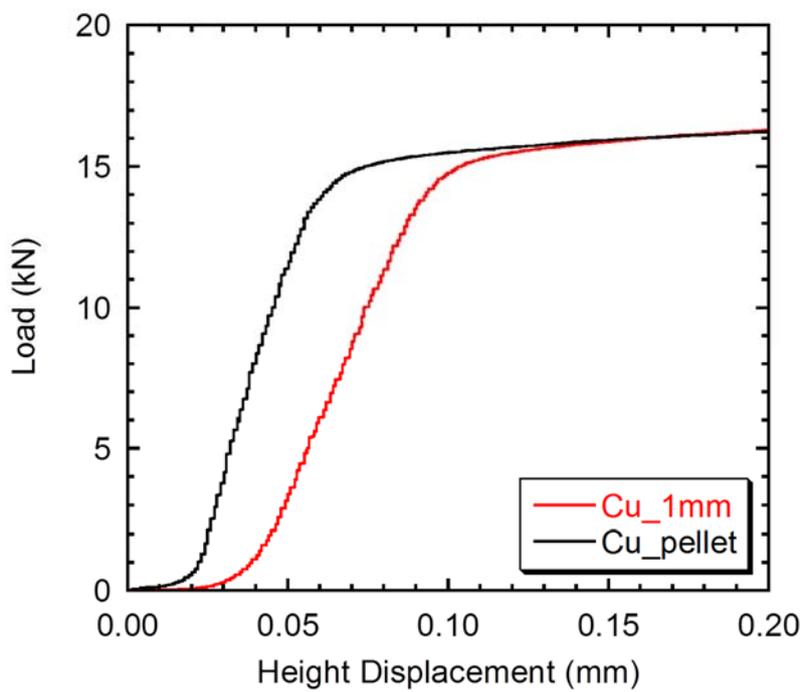


図 3.8.83 補正前の荷重 - 高さ変位曲線立ち上がり点近傍

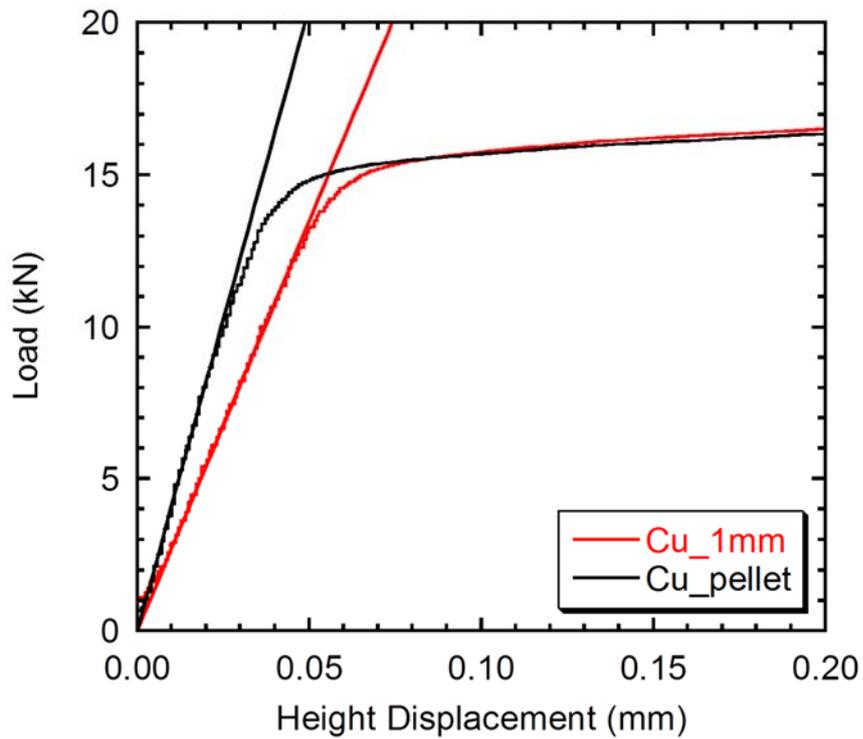


図 3.8.84 補正後の荷重 - 高さ変位曲線立ち上がり点近傍

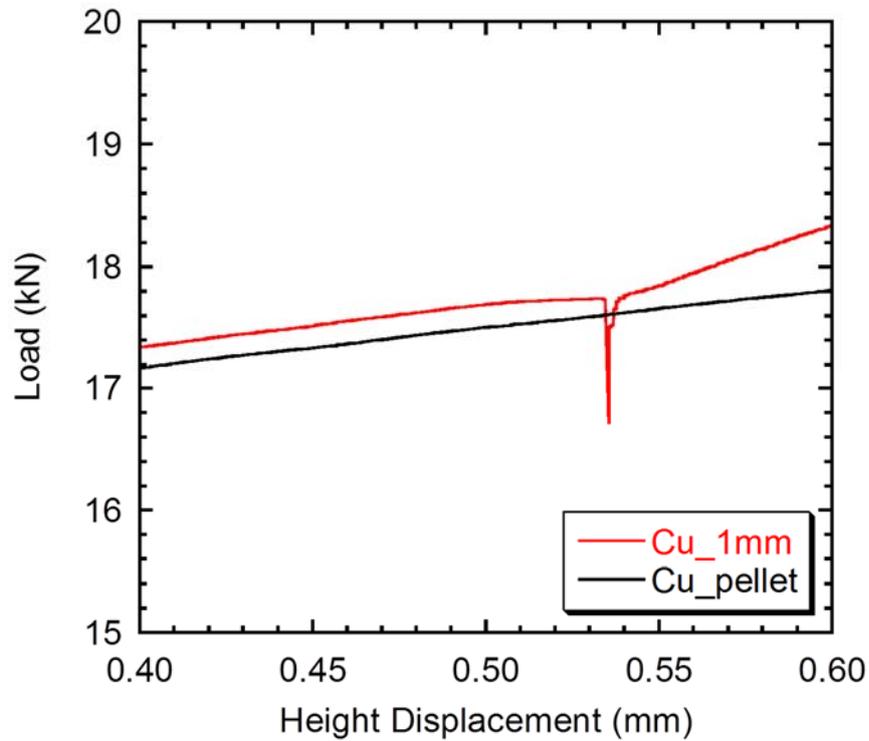


図 3.8.85 補正前の両試料固定点近傍

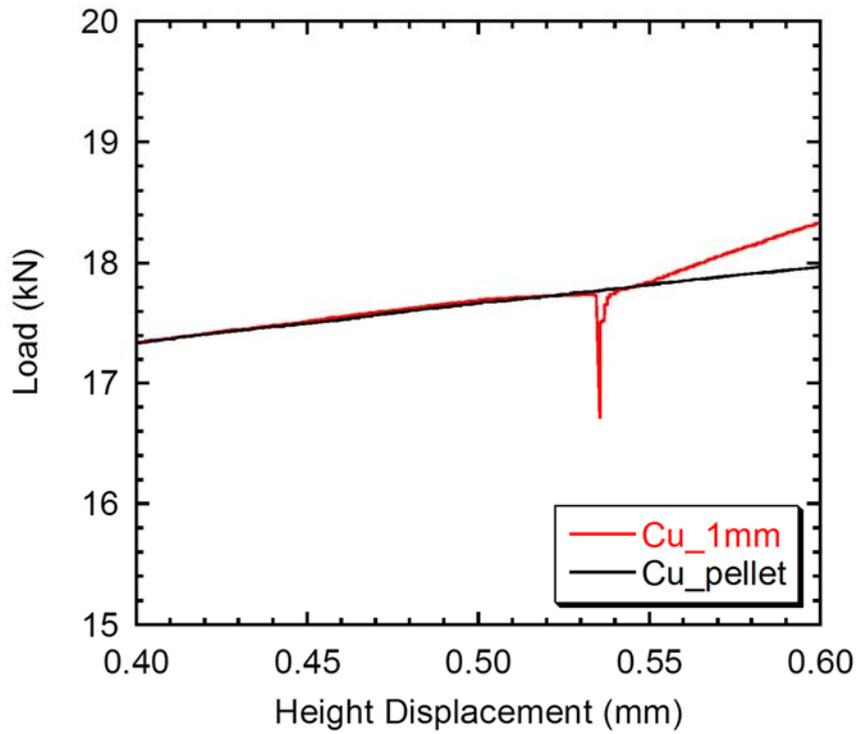


図 3.8.86 補正後の両試料固定点近傍

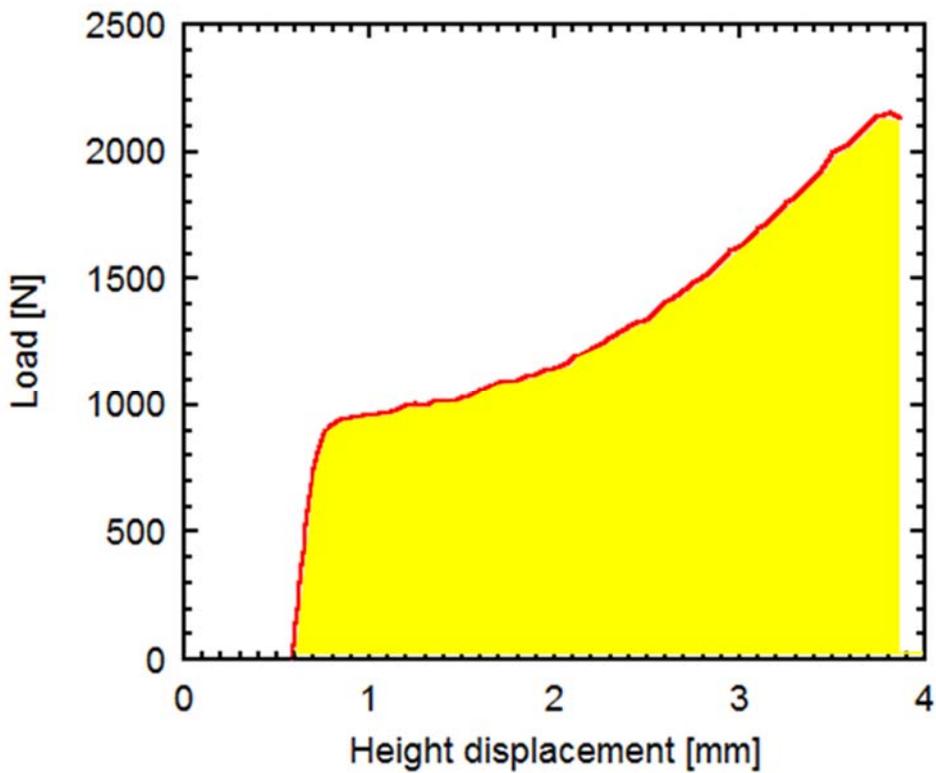


図 3.8.87 荷重 - 高さ変位曲線から抽出した仕事

$$\frac{(F_1 + F_2)}{2} \cdot (h_2 - h_1) = E$$

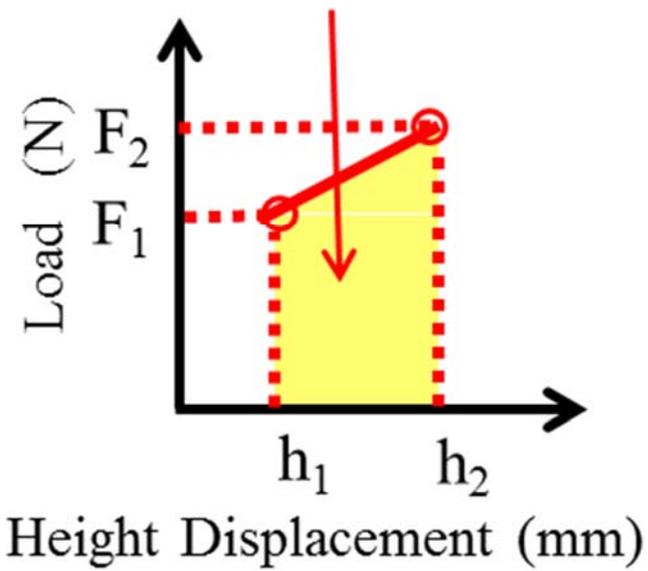


図 3.8.88 仕事の計算手法

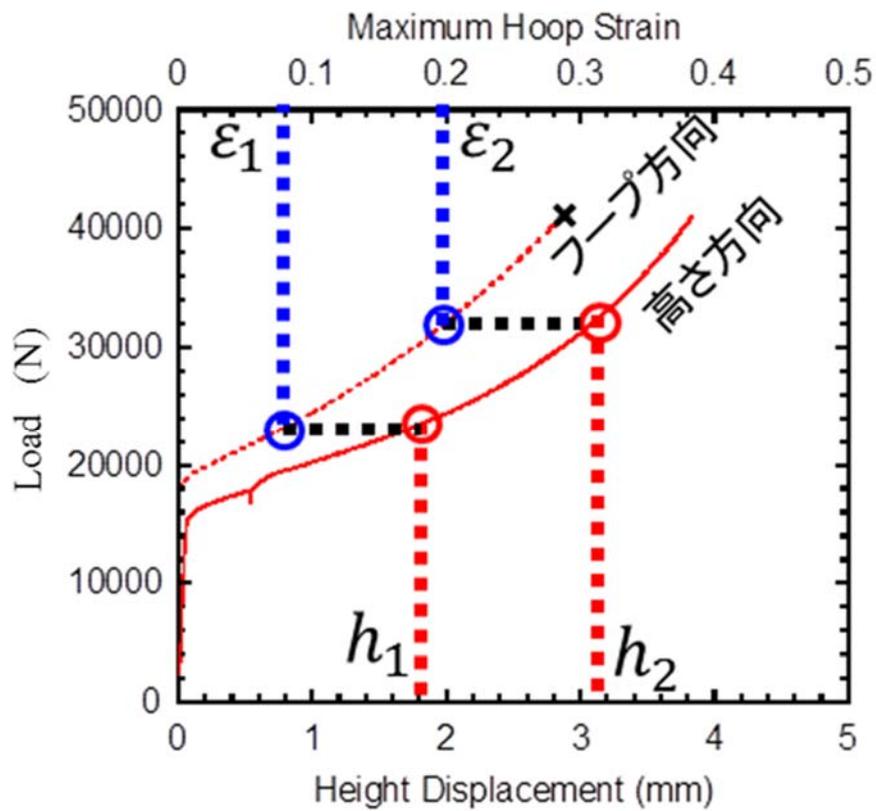


図 3.8.89 あるプロット間の高さ変位と周方向ひずみの関係

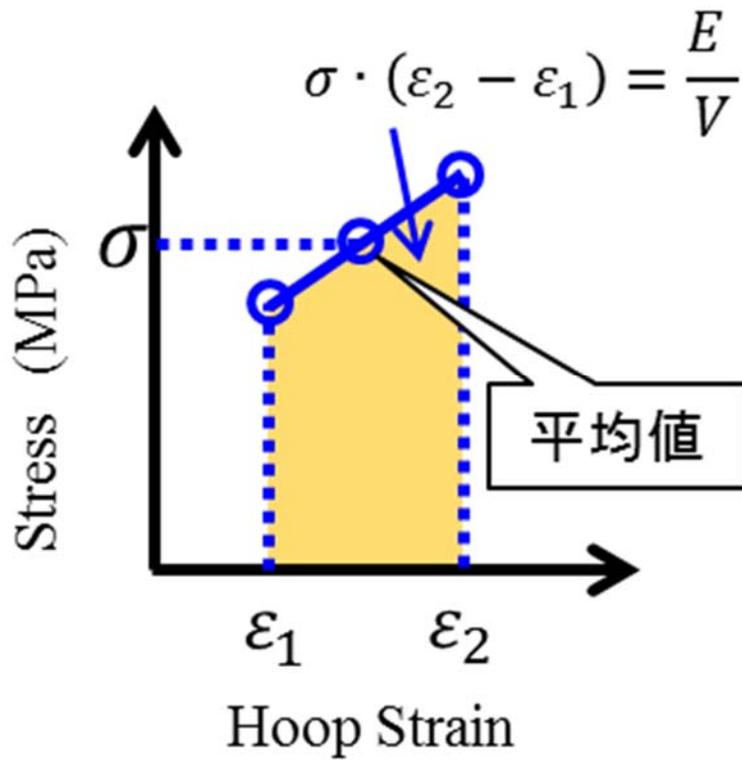


図 3.8.90 応力 - ひずみ曲線中の仕事計算手法

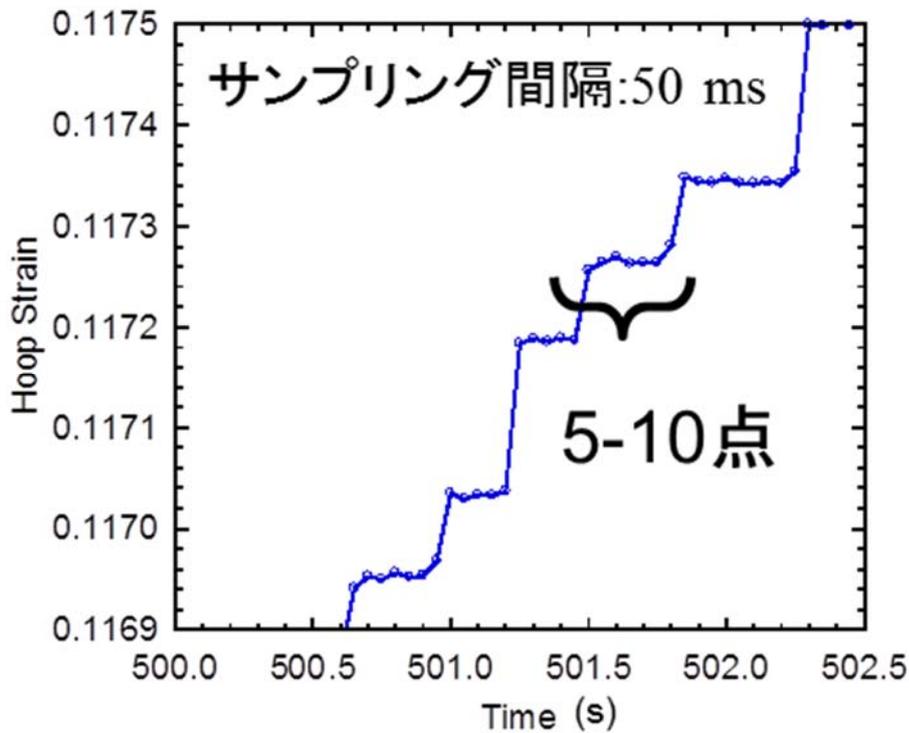


図 3.8.91 レーザー変位計による測定誤差

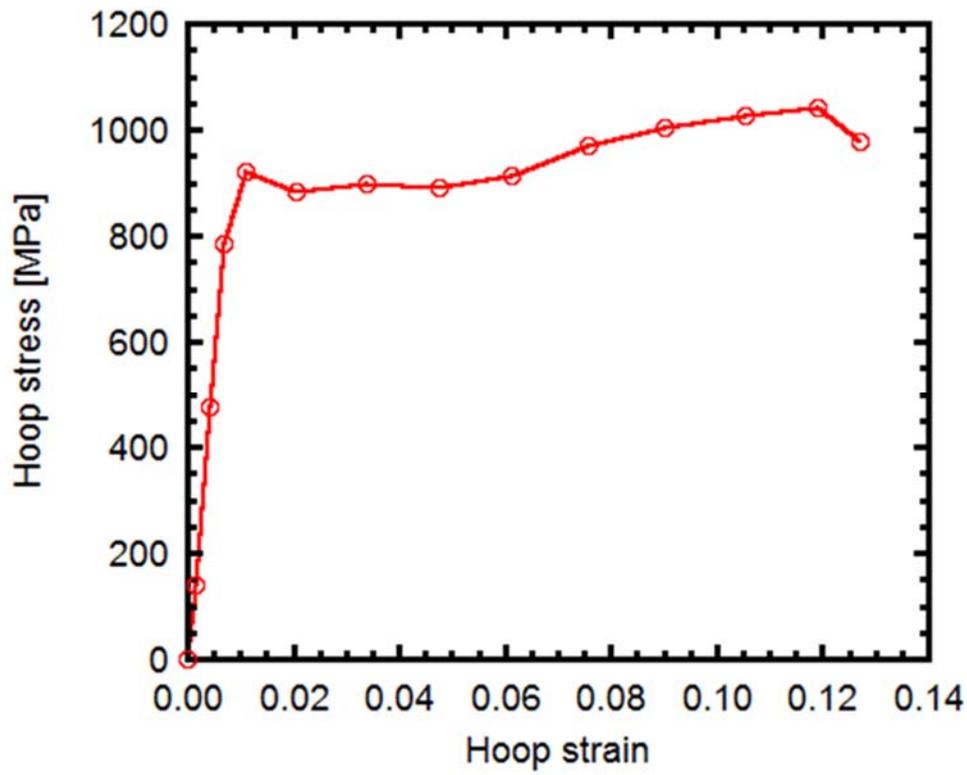


図 3.8.92 周方向応力 - 周方向ひずみ曲線

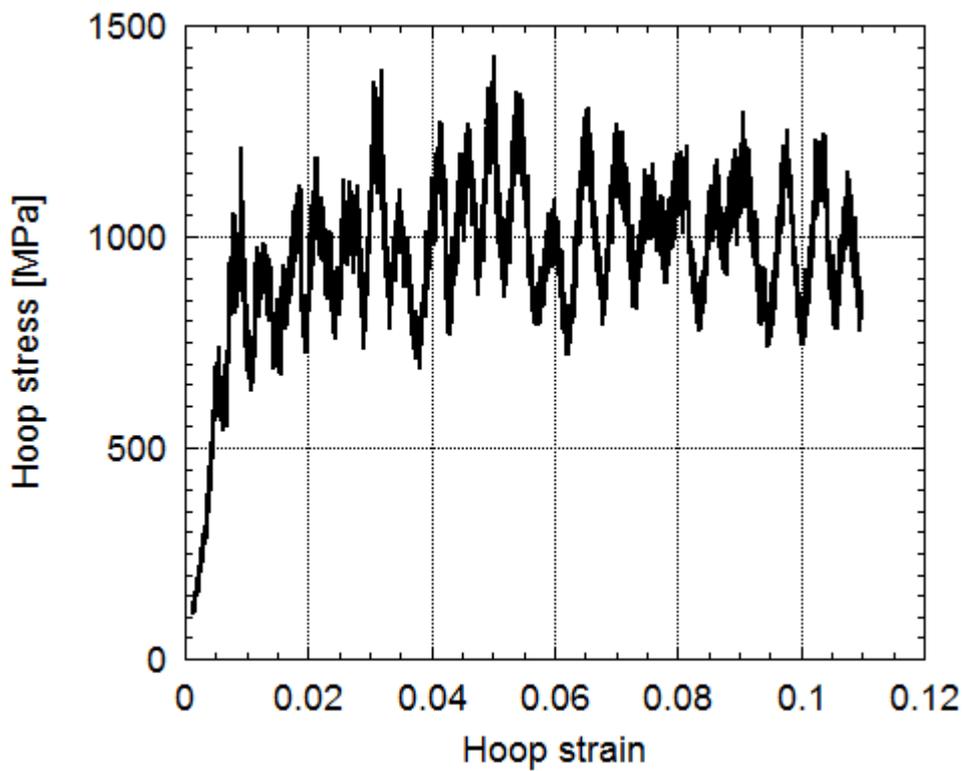


図 3.8.93 周方向応力 - 周方向ひずみ曲線 (データ非選択)

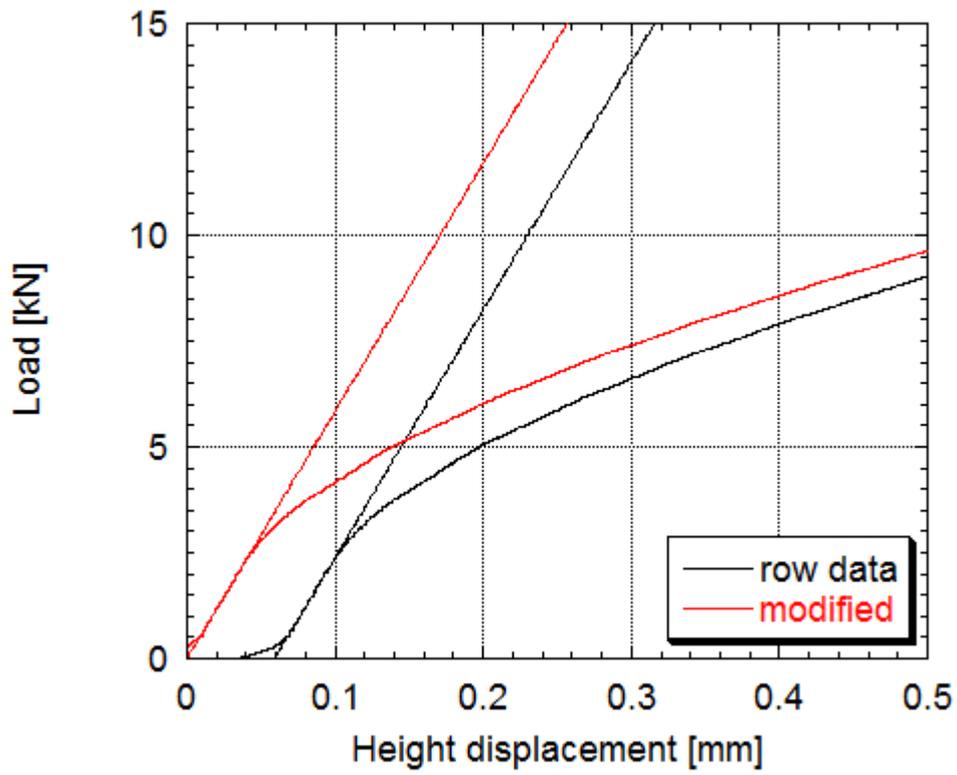


図 3.8.94 立ち上がり点近傍補正

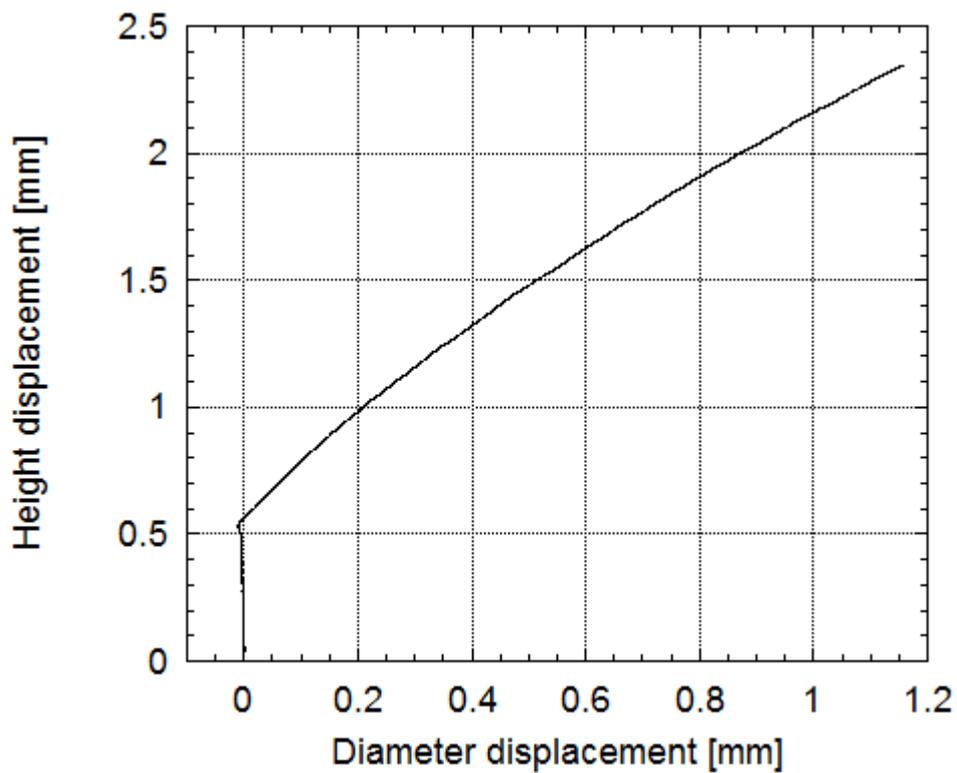


図 3.8.95 A-EDC 試験における高さ変位 - 直径変位曲線

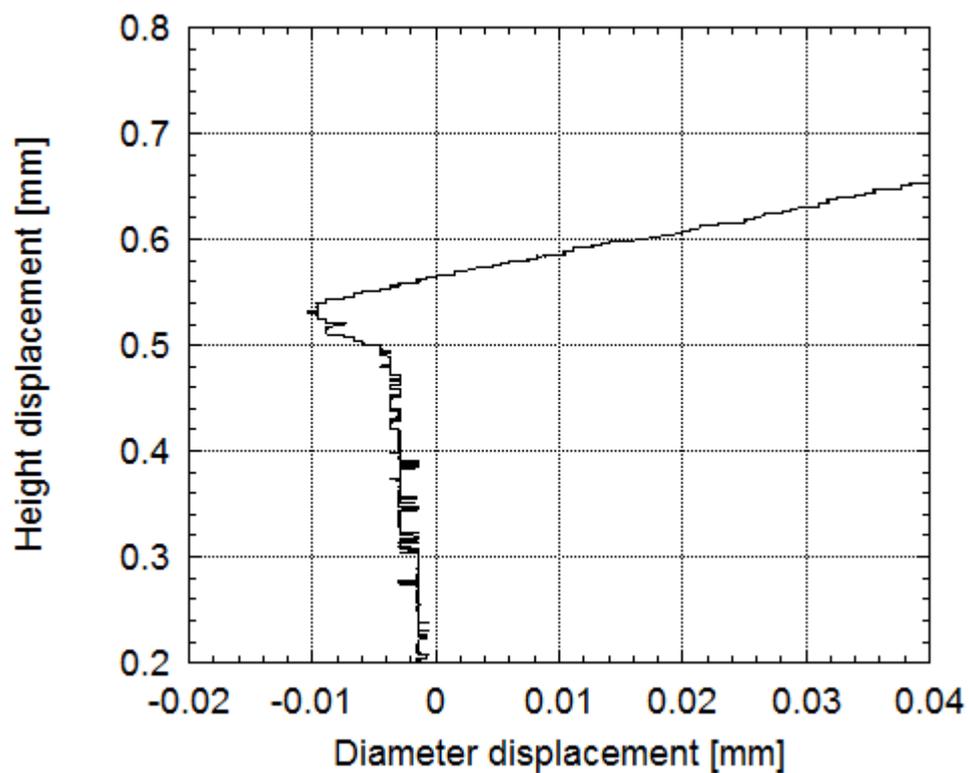


図 3.8.96 直径変位増加始点近傍

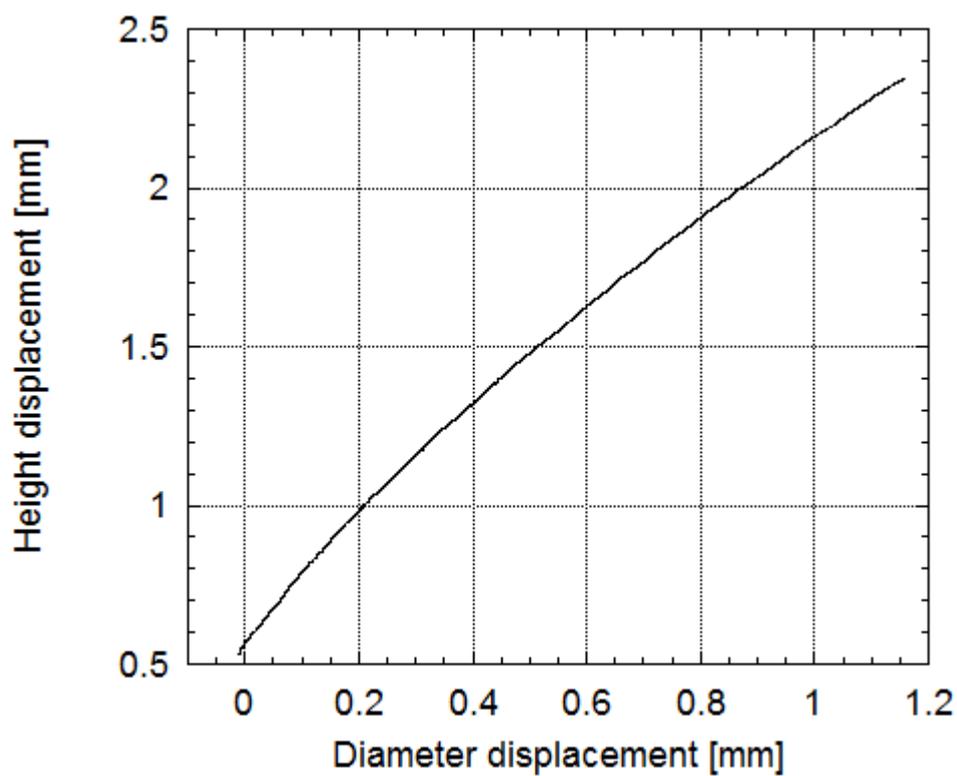


図 3.8.97 A-EDC 試験における高さ変位 - 直径変位曲線 (リング試料固定から破断まで)

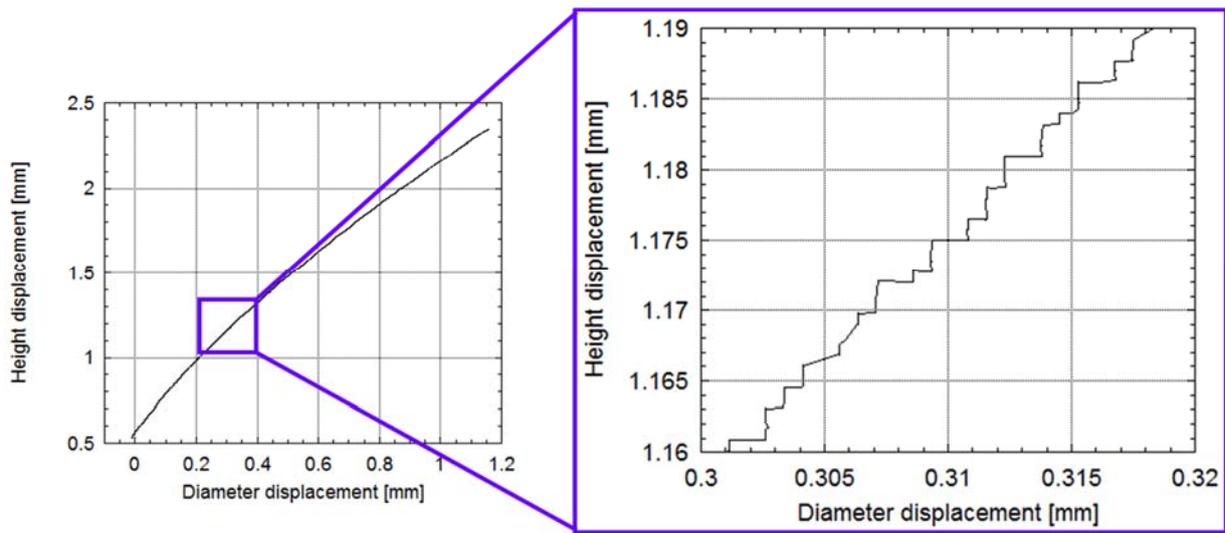


図 3.8.98 レーザー変形による測定誤差のデータへの影響

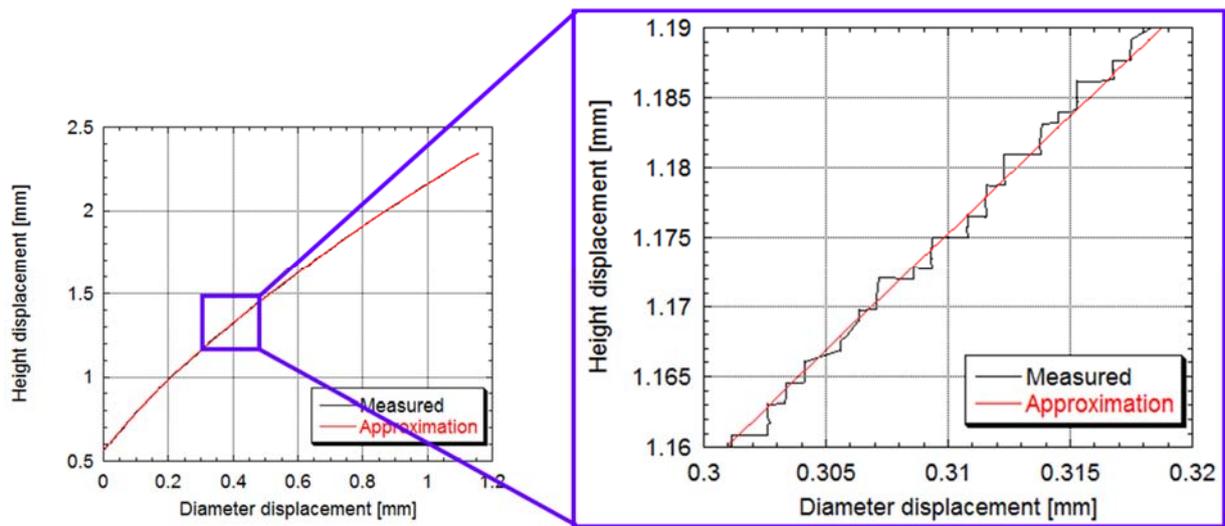


図 3.8.99 近似曲線による補正

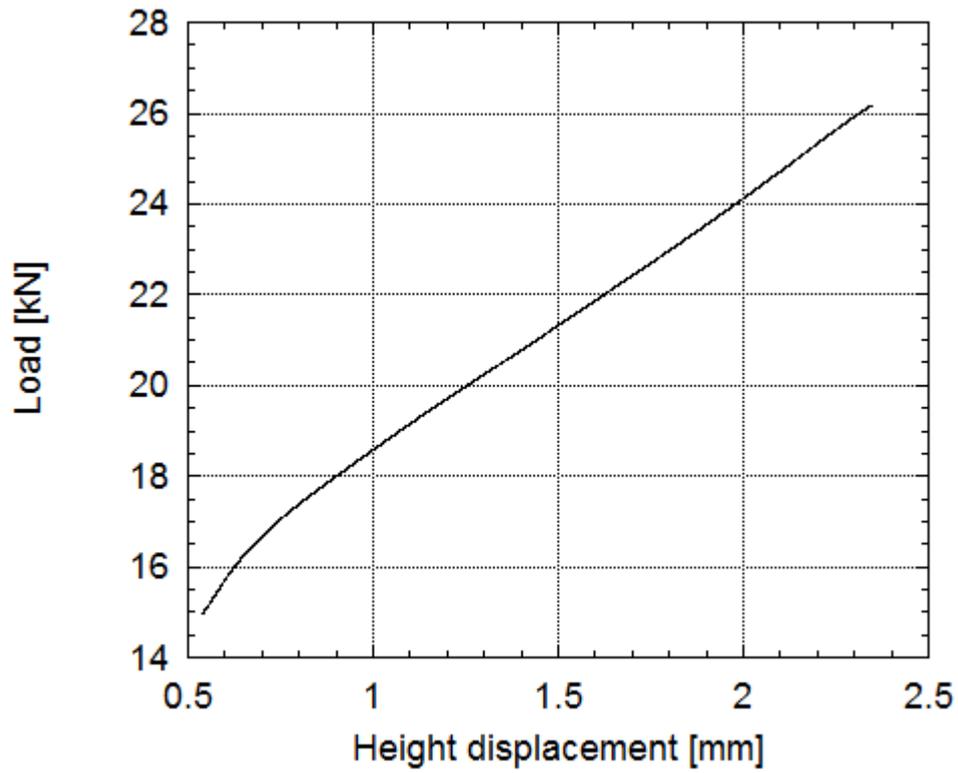


図 3.8.100 A-EDC 試験における荷重 - 高さ変位曲線

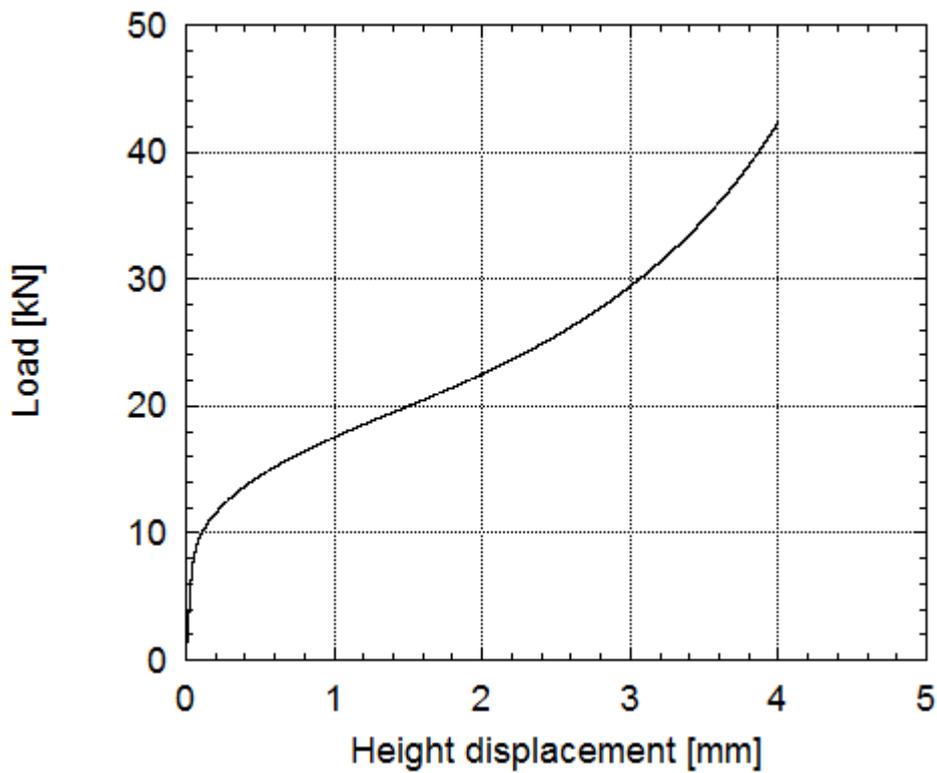


図 3.8.101 中子圧縮試験における荷重 - 高さ変位曲線

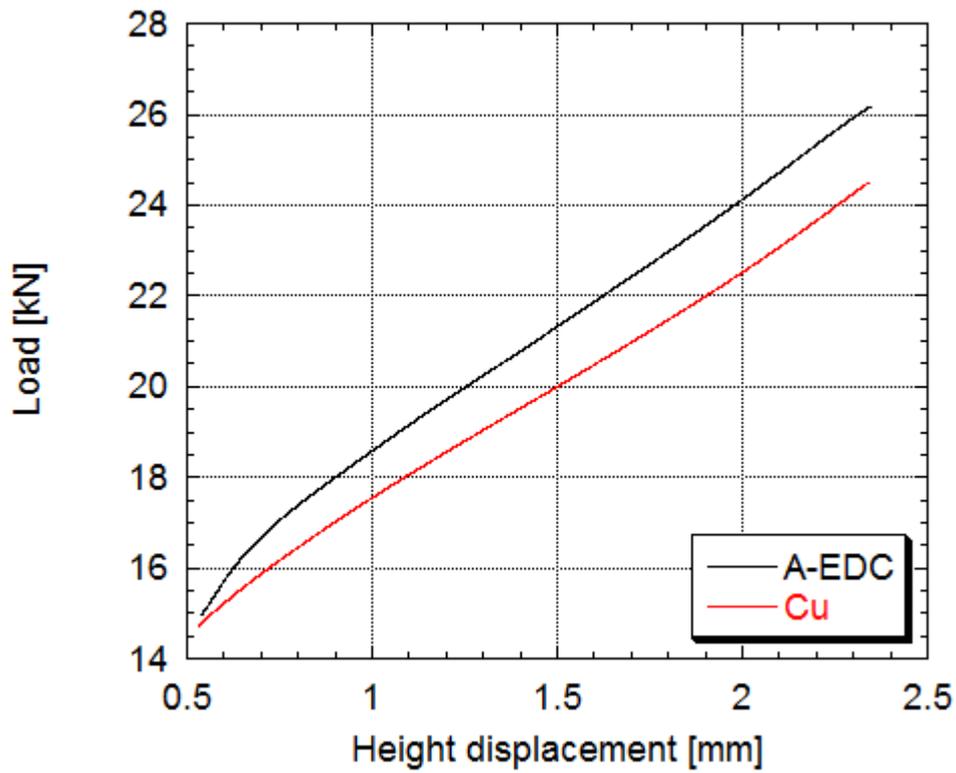


図 3.8.102 A-EDC 試験と中子圧縮試験の荷重 - 高さ変位曲線比較

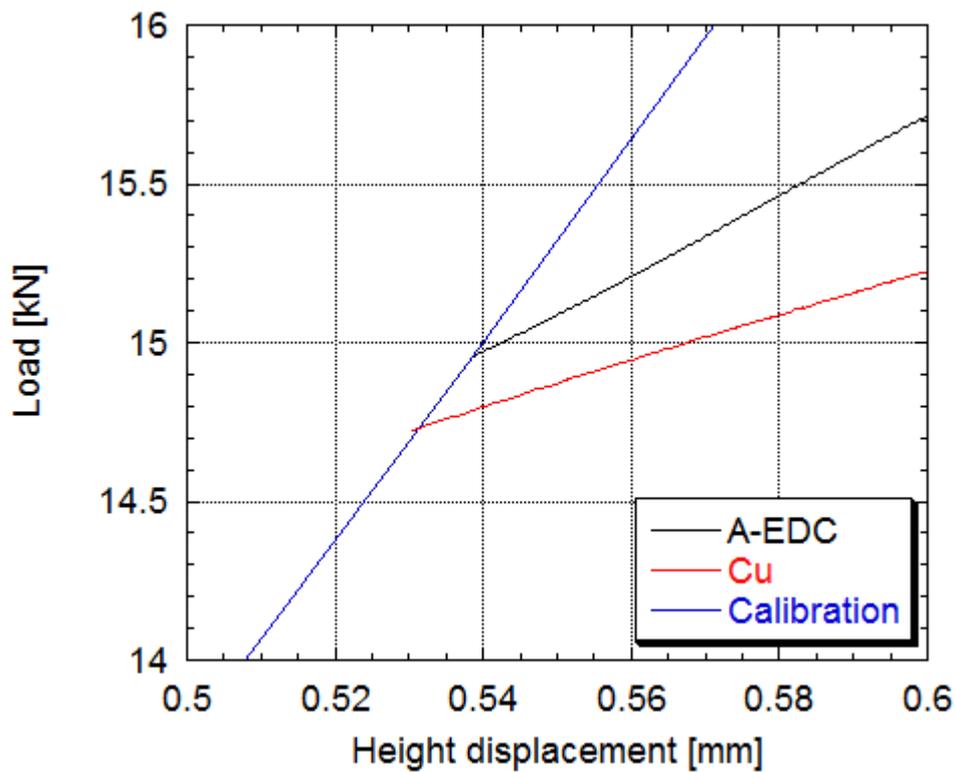


図 3.8.103 両試料固定点近傍の補正方法

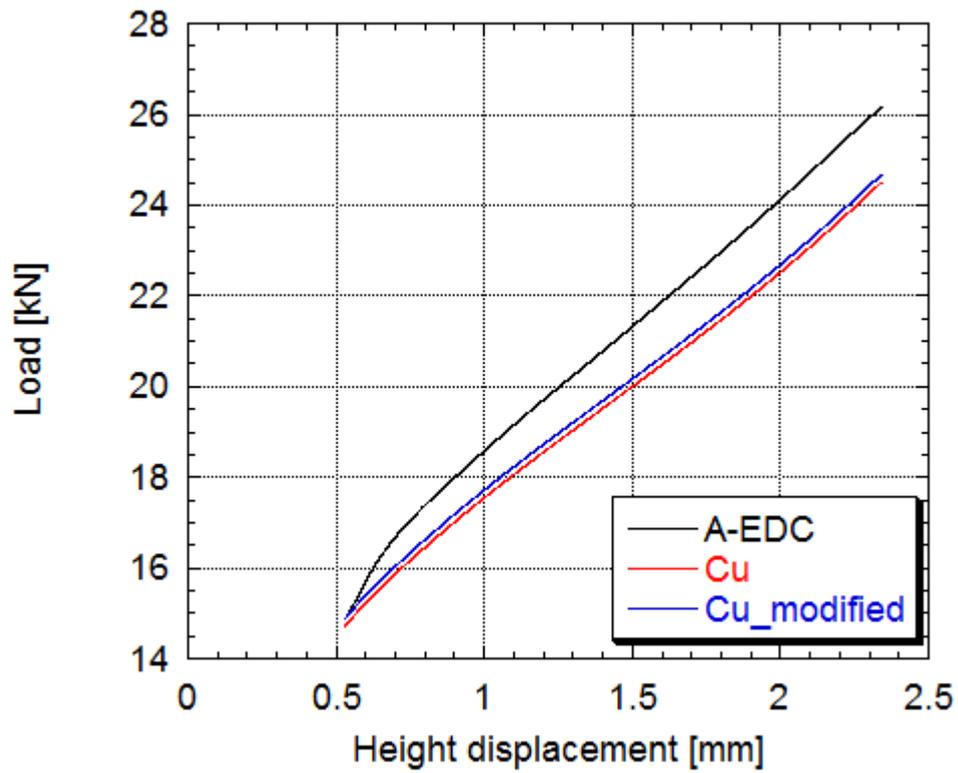


図 3.8.104 A-EDC 試験と中子圧縮試験の荷重 - 高さ変位曲線比較 (補正後)

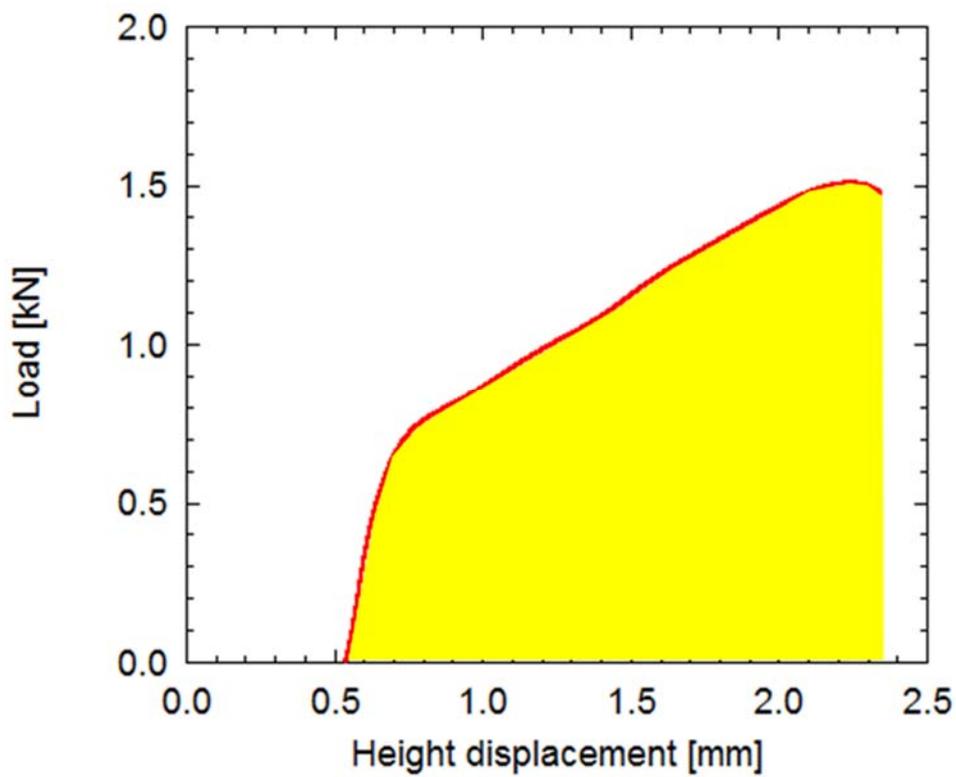


図 3.8.105 荷重 - 高さ変位曲線から抽出した仕事

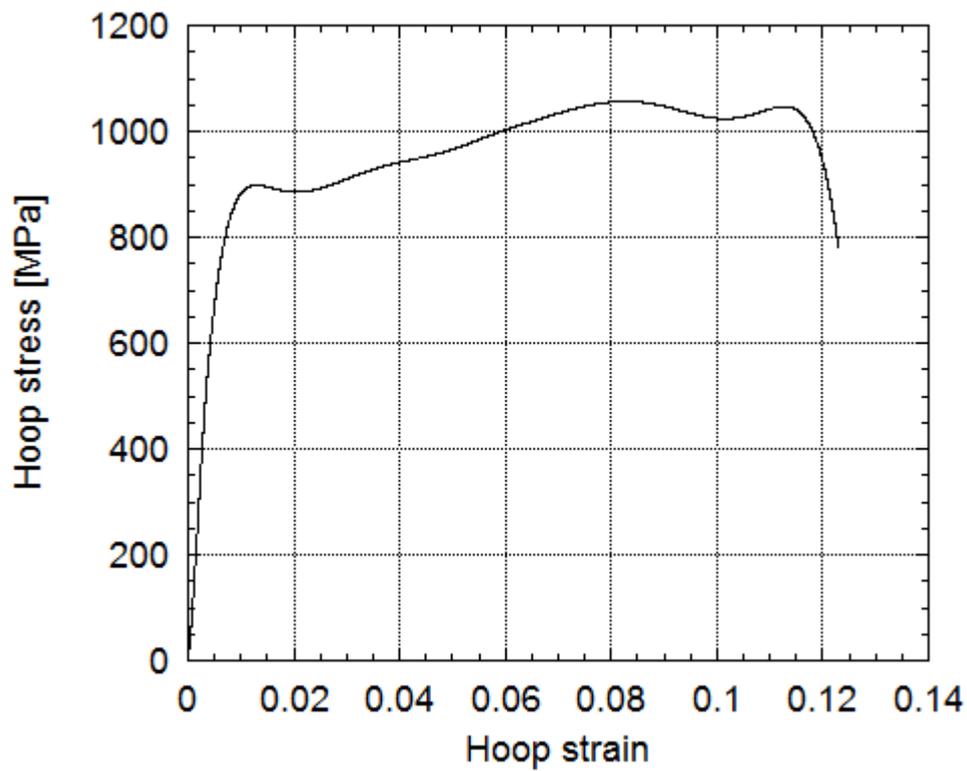


図 3.8.106 新手法で導出した周方向応力 - 周方向ひずみ曲線

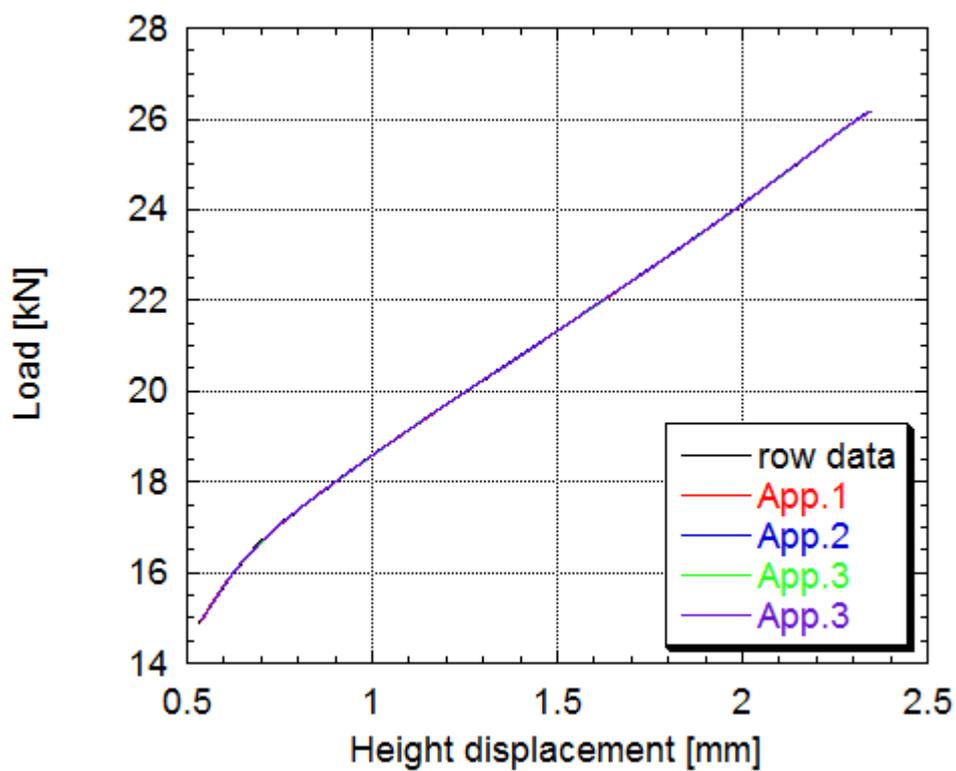


図 3.8.107 A-EDC 荷重 - 高さ変位曲線近似の比較

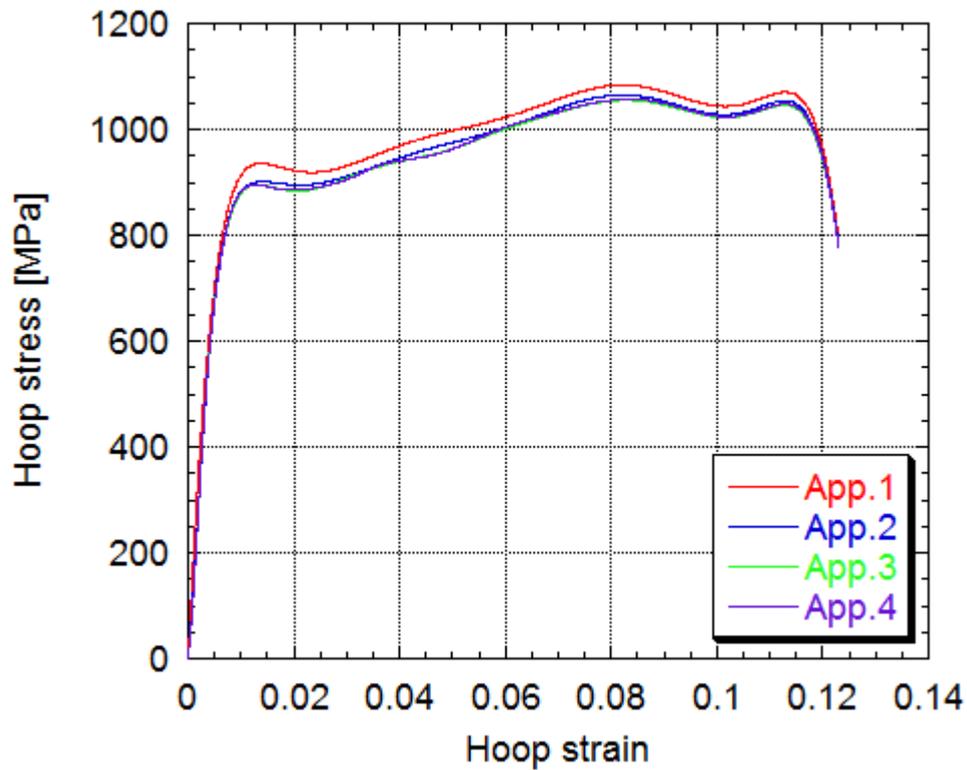


図 3.8.108 A-EDC 近似による周方向応力 - 周方向ひずみ曲線比較

表 3.8.2 A-EDC 近似による機械強度比較

	ヤング率[GPa]	0.2%耐力[MPa]	最大引張強度 [GPa]
近似 1	123.5	900.0	1084.1
近似 2	115.3	878.3	1065.2
近似 3	107.7	876.1	1055.4
近似 4	108.0	877.8	1057.5

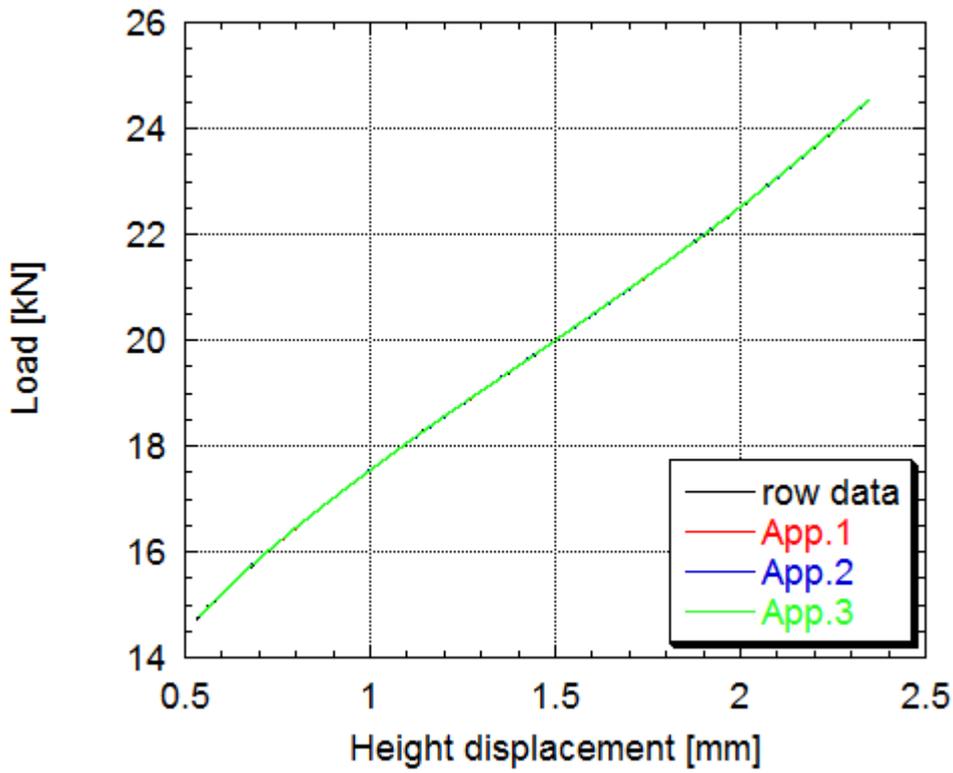


図 3.8.109 中子圧縮試験荷重 - 高さ変位曲線近似の比較

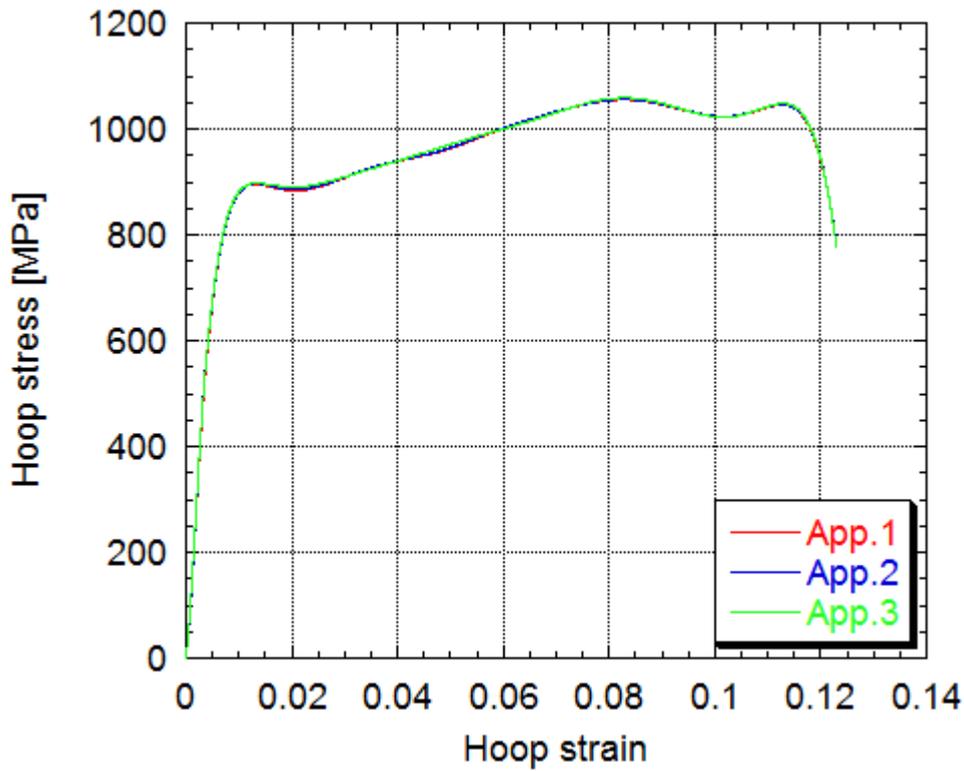


図 3.8.110 中子圧縮試験近似による周方向応力 - 周方向ひずみ曲線比較

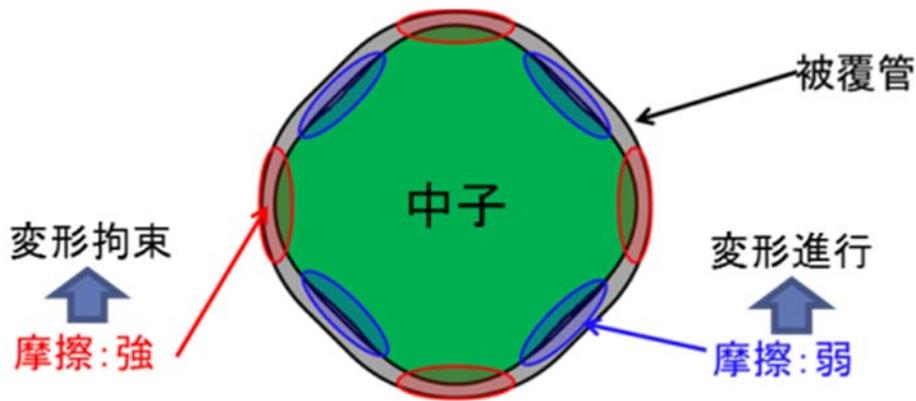


図 3.8.111 試験中に生じる摩擦箇所の模式図

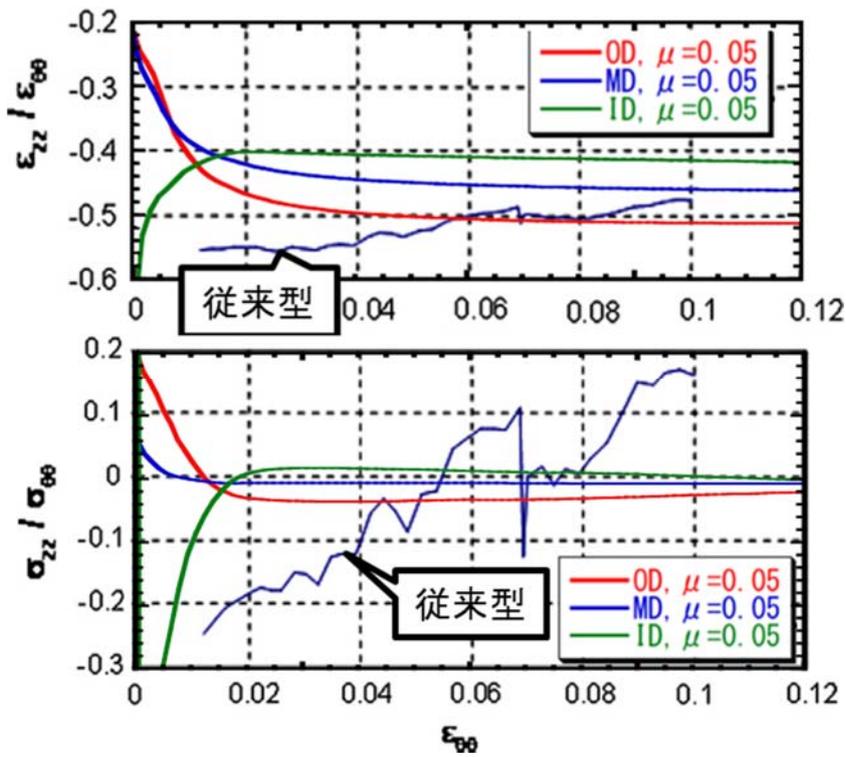


図 3.8.112 従来型、改良型の応力状態、ひずみ比の比較

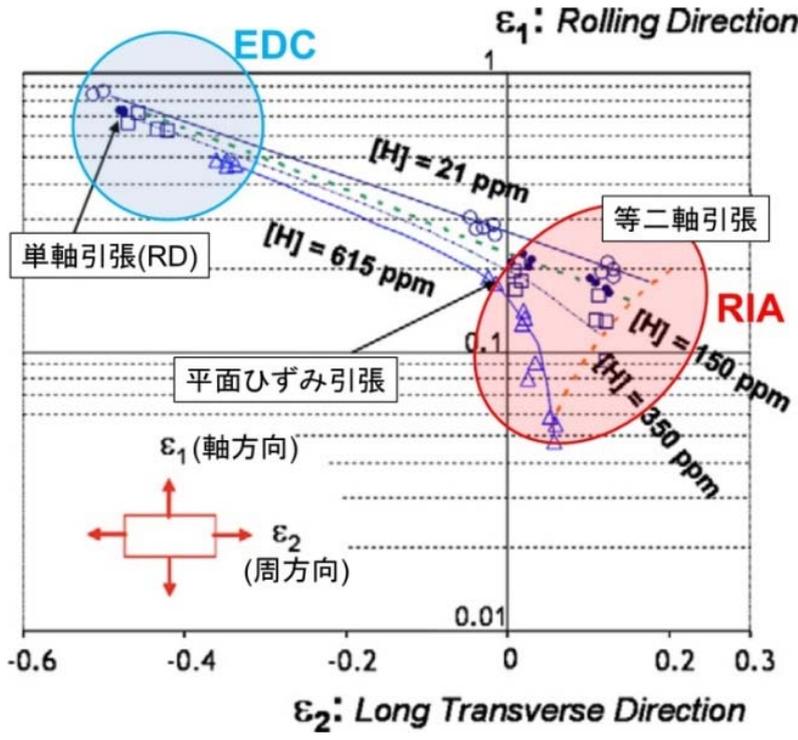


図 3.8.113 各水素量における破壊時のひずみ量[1]

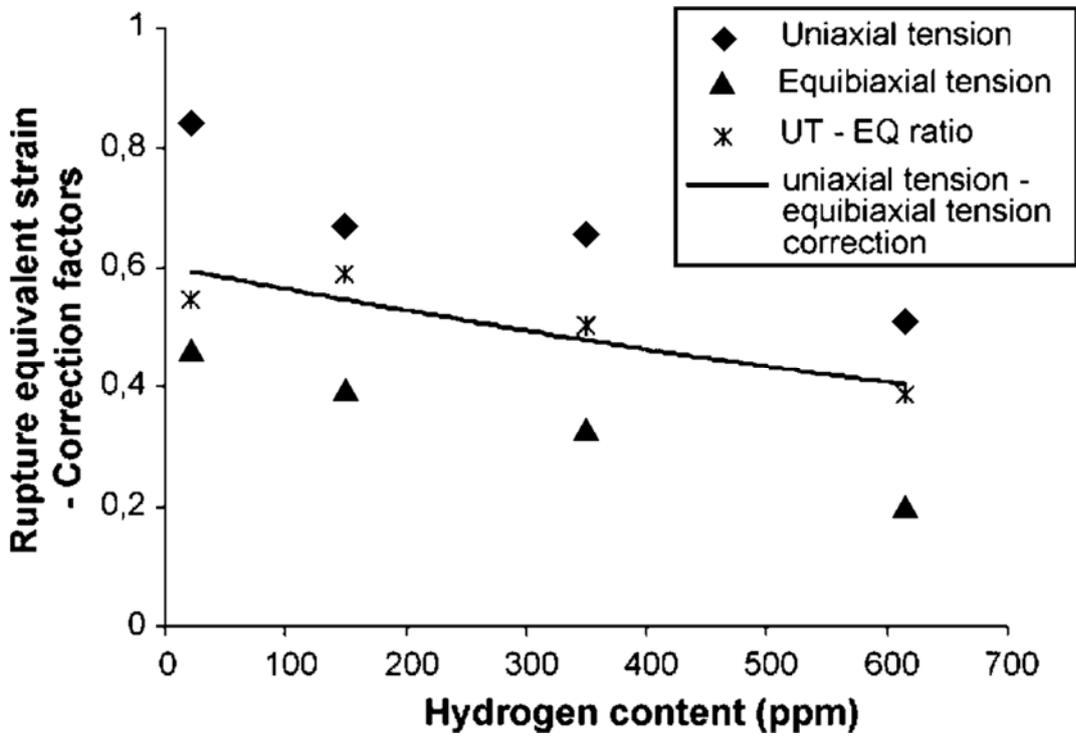


図 3.8.114 単軸引張から等二軸引張の補正曲線

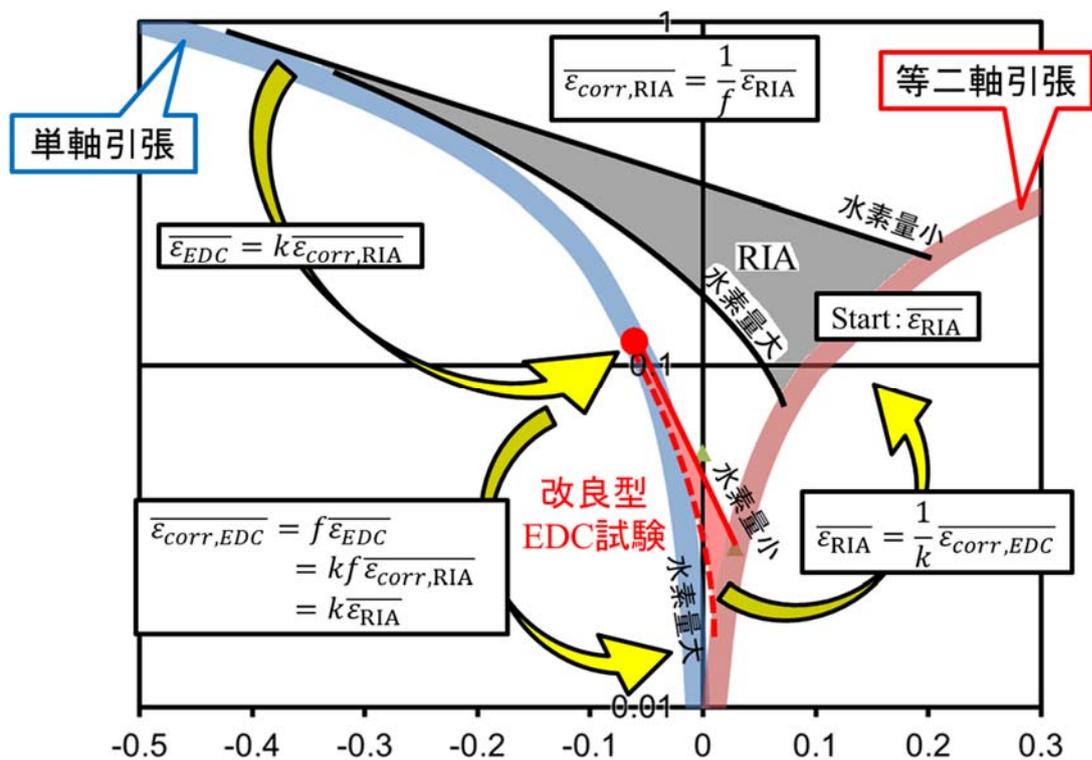


図 3.8.115 実機環境下へ適用方法の模式図

表 3.8.3 中子圧縮試験近似による機械強度比較

	ヤング率[GPa]	0.2%耐力[MPa]	最大引張強度 [GPa]
近似 1	107.7	876.1	1055.4
近似 2	107.4	875.5	1056.0
近似 3	107.8	875.7	1059.1

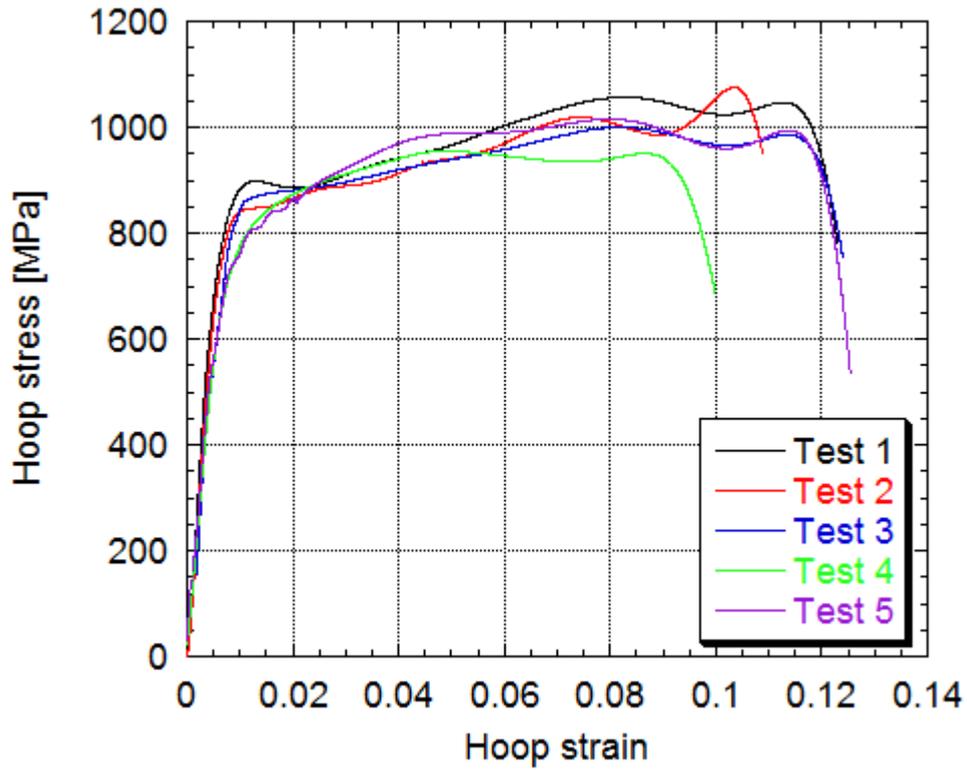


図 3.8.116 A-EDC 試験で導出した周方向応力 - 周方向ひずみ曲線 (N=5)

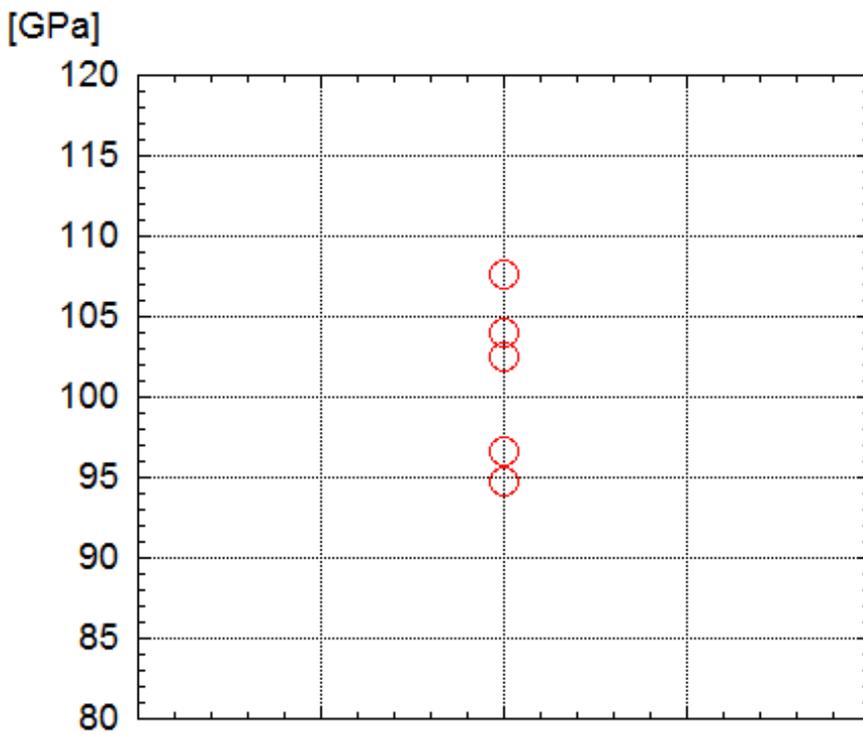


図 3.8.117 A-EDC 試験による Zry-4 周方向ヤング率のばらつき (N=5)

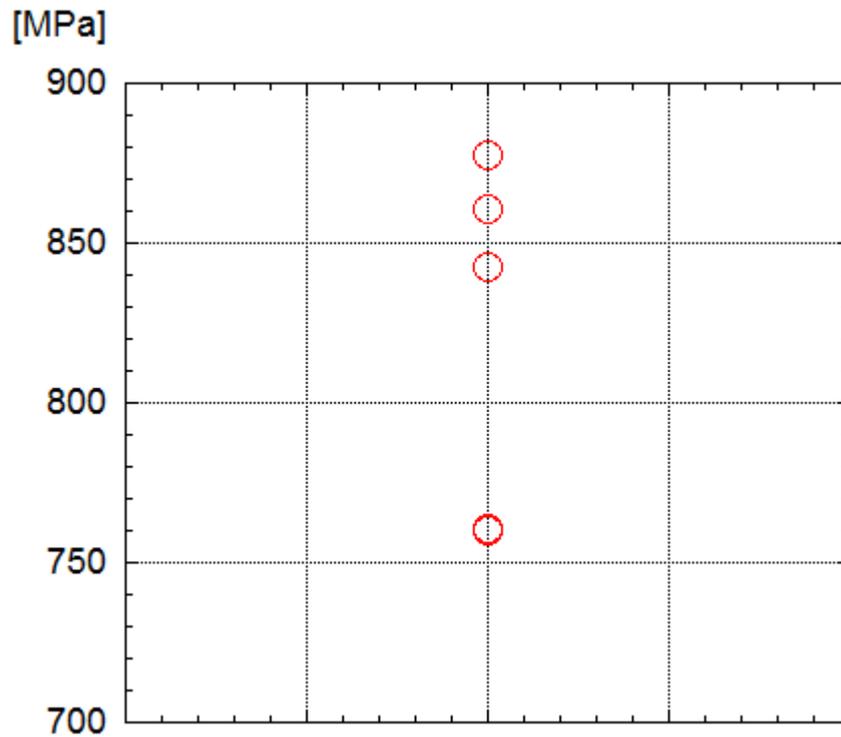


図 3.8.118 A-EDC 試験による Zry-4 周方向 0.2%耐力のばらつき (N=5)

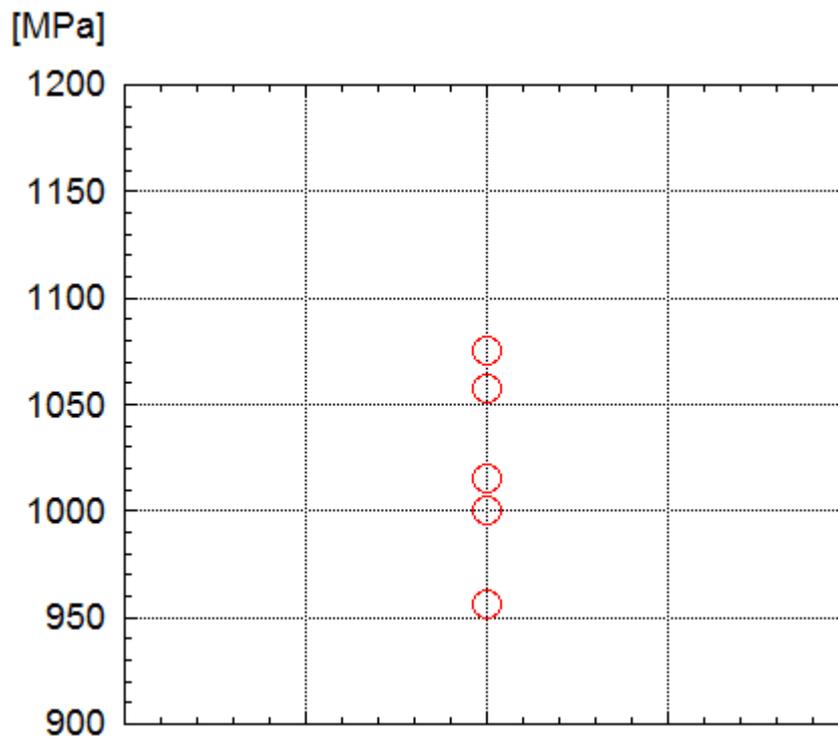


図 3.8.119 A-EDC 試験による Zry-4 周方向最大引張強度のばらつき (N=5)

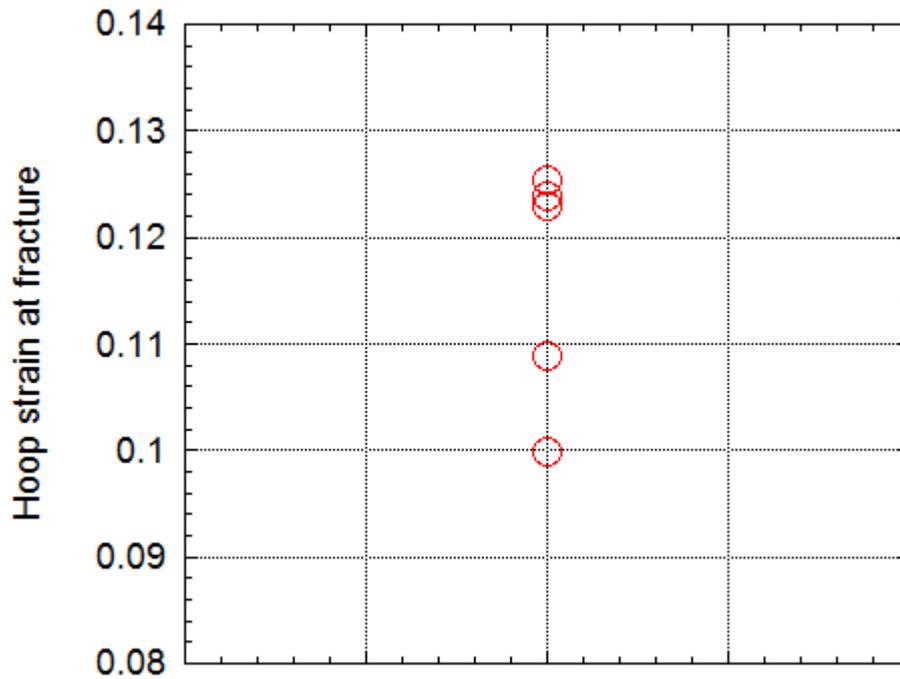


図 3.8.120 A-EDC 試験による Zry-4 周方向破断ひずみのばらつき (N=5)

表 3.8.4 A-EDC 試験による Zry-4 周方向機械強度

	ヤング率[GPa]	0.2%耐力[MPa]	最大引張強度[MPa]	破断ひずみ
Test 1	107.7	877.7	1057.1	0.1230
Test 2	104.0	842.7	1075.3	0.1088
Test 3	96.6	860.5	1000.0	0.1240
Test 4	102.5	760.1	955.9	0.0999
Test 5	94.8	760.4	1015.5	0.1254
平均値	101	820.3	1021	0.116
標準偏差	4.77	50.25	42.35	0.0101
変動係数	4.72	6.13	4.15	8.71
ばらつき(最大) [%]	6.5	7.3	6.4	14.1

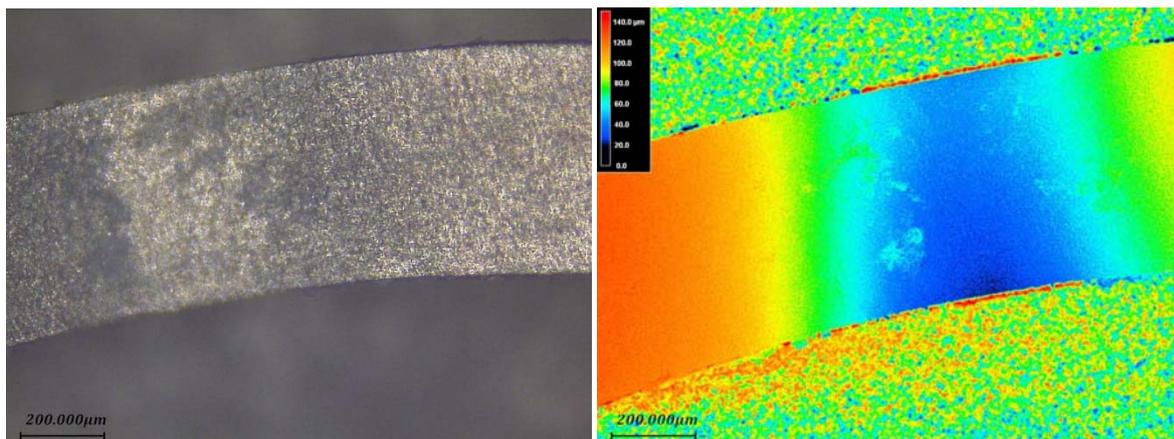


図 3.8.121<113 ぐびれ 1 (左：レーザー顕微鏡写真、右：軸方向高さ分布、Test 2)

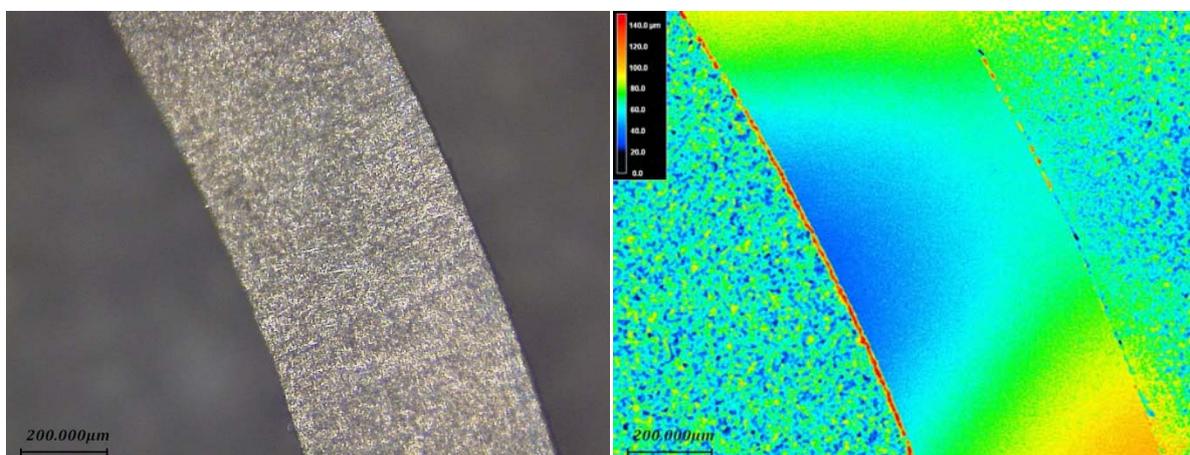


図 3.8.122 ぐびれ 2 (左：レーザー顕微鏡写真、右：軸方向高さ分布、Test 2)

表 3.8.5 ぐびれの数と破断ひずみ

	ぐびれの数	破断ひずみ
Test 1	4	0.1230
Test 2	3	0.1088
Test 3	5	0.1240
Test 4	2	0.0999
Test 5	4	0.01254

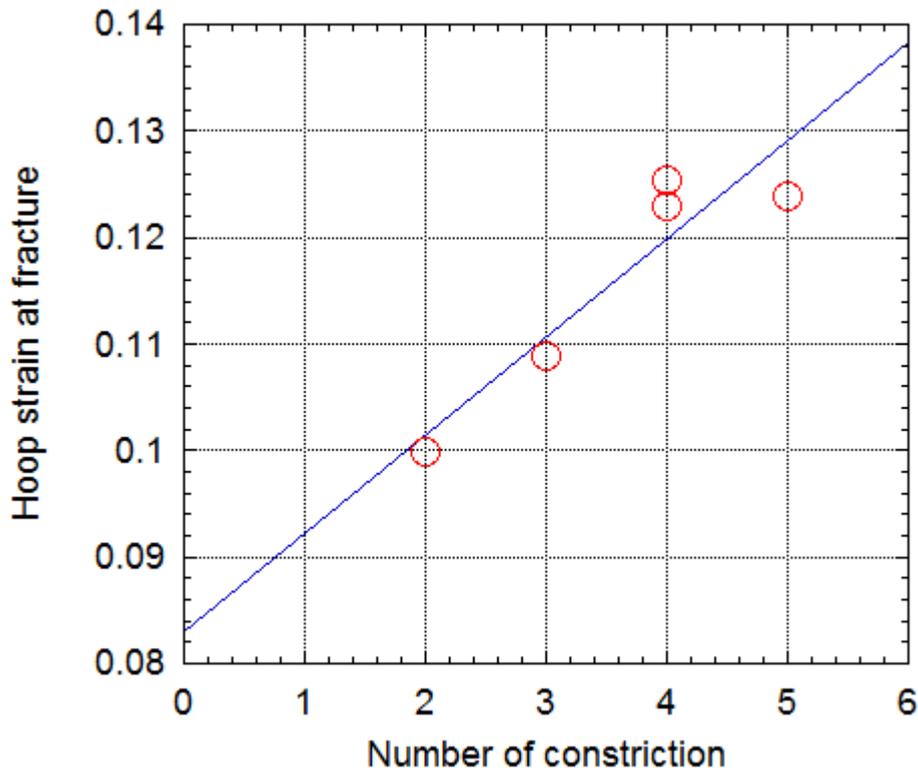


図 3.8.123 くびれの数と破断ひずみの関係

表 3.8.6 破断ひずみから算出したひずみ比

	周方向破断ひずみ	軸方向破断ひずみ	ひずみ比 $\varepsilon_z/\varepsilon_\theta$
Test 1	0.1230	-0.052	-0.42
Test 2	0.1088	-0.044	-0.40
Test 3	0.1240	-0.052	-0.42
Test 4	0.0999	-0.0398	-0.40
Test 5	0.01254	-0.052	-0.41

表 3.8.7 軸方向破断ひずみ

	くびれの 数	周方向破断ひずみ	軸方向破断ひずみ 理論値	軸方向破断ひずみ 実験値	理論値からのずれ
Test 1	4	0.1230	-0.06149	-0.052	0.0095
Test 2	3	0.1088	-0.0544	-0.044	0.010
Test 3	5	0.1240	-0.06198	-0.052	0.010
Test 4	2	0.0999	-0.0499	-0.0398	0.010
Test 5	4	0.1254	-0.06269	-0.052	0.011

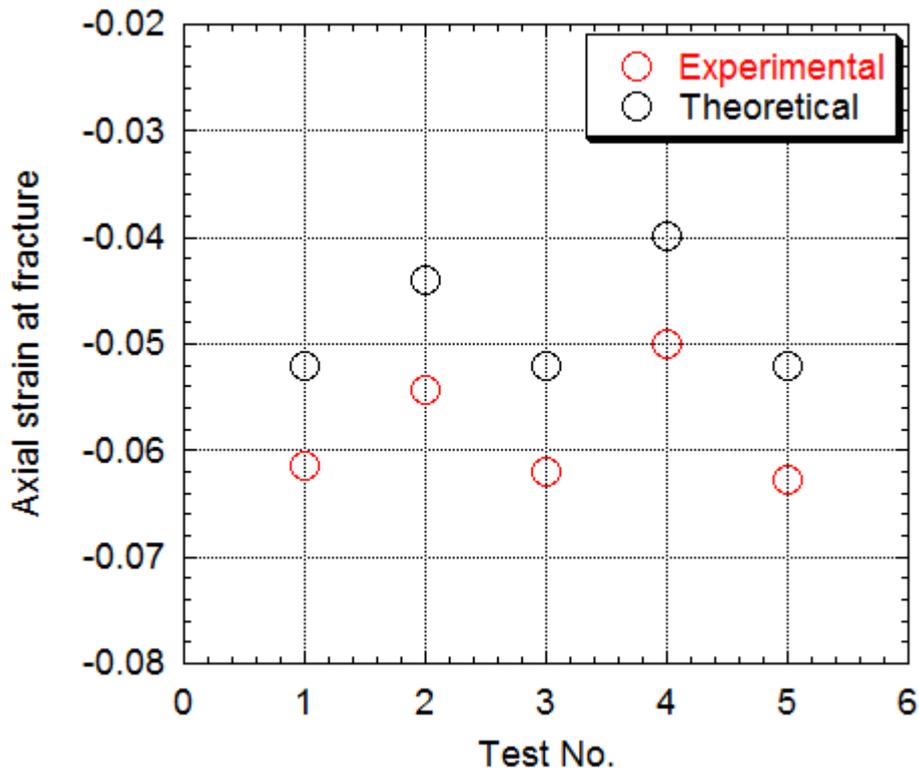


図 3.8.124 軸方向破断ひずみにおける理論値と実験値比較

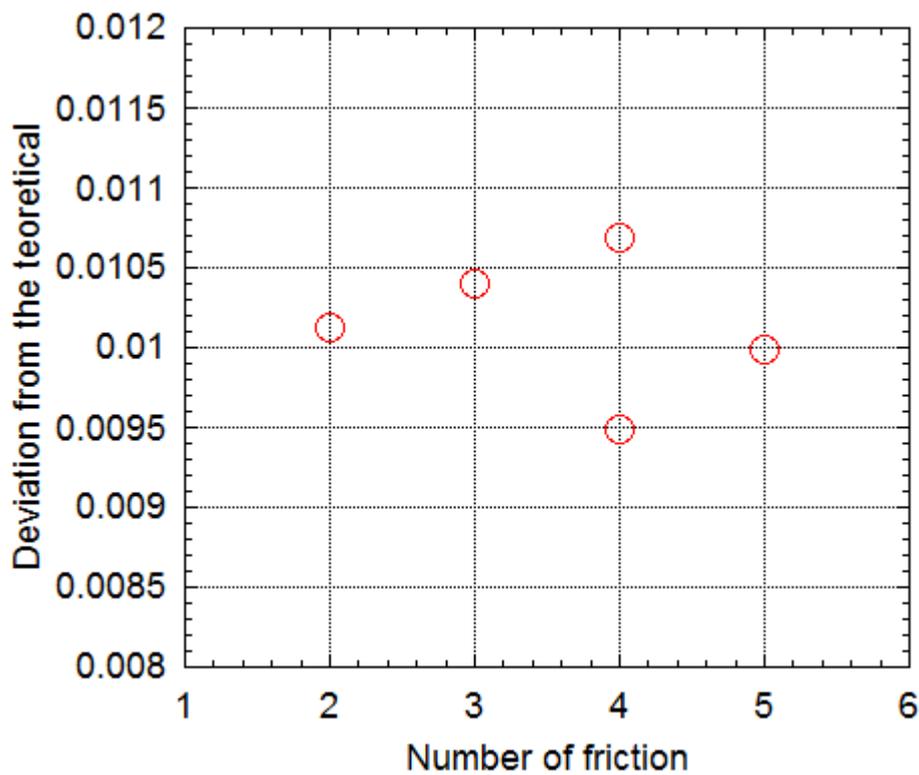


図 3.8.125 軸方向破断ひずみ理論値からのずれとくびれ数との関係

表 3.8.8 Zry-4 周方向機械強度

	A-EDC	EDC	OEB	リング引張		PST	リング圧縮	バースト	
		[4.2]	[4.3]	[2.61]	[4.4]	[4.5]	[2.65]	[2.61]	[4.4]
ヤング率[GPa]	101	90	-	85	-	-	99	-	-
0.2%耐力[MPa]	820.3	670	740	700	830	718	530	-	-
最大引張強度 [MPa]	1021	-	-	765	950	765	560	950	1050
破断ひずみ	0.116	-	-	0.36	0.50	0.10	0.42	0.07	-
ひずみ速度[s ⁻¹]	10 ⁻⁴ - 10 ⁻³	-	-	10 ⁻²	10 ⁻²	10 ⁻²	-	-	1
応力比 $\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta}$	0			-0.5		0.5		0.5	
ひずみ比 $\varepsilon_{zz}/\varepsilon_{\theta\theta}$	-0.5			-0.7		0		0.2	

表 3.8.9 周方向及び軸方向破断ひずみの算出（ひずみ速度 0.01 のとき）

	A-EDC	リング引張		PST	バースト
		[2.61]	[4.4]	[4.5]	[2.61]
応力比 $\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta}$	0	-0.5		0.5	0.5
ひずみ比 $\varepsilon_{zz}/\varepsilon_{\theta\theta}$	-0.5	-0.7		0	0.2
周方向破断ひずみ	0.108	0.36	0.5	0.096	0.078
軸方向破断ひずみ	-0.0541	-0.252	-0.35	0	0.0156

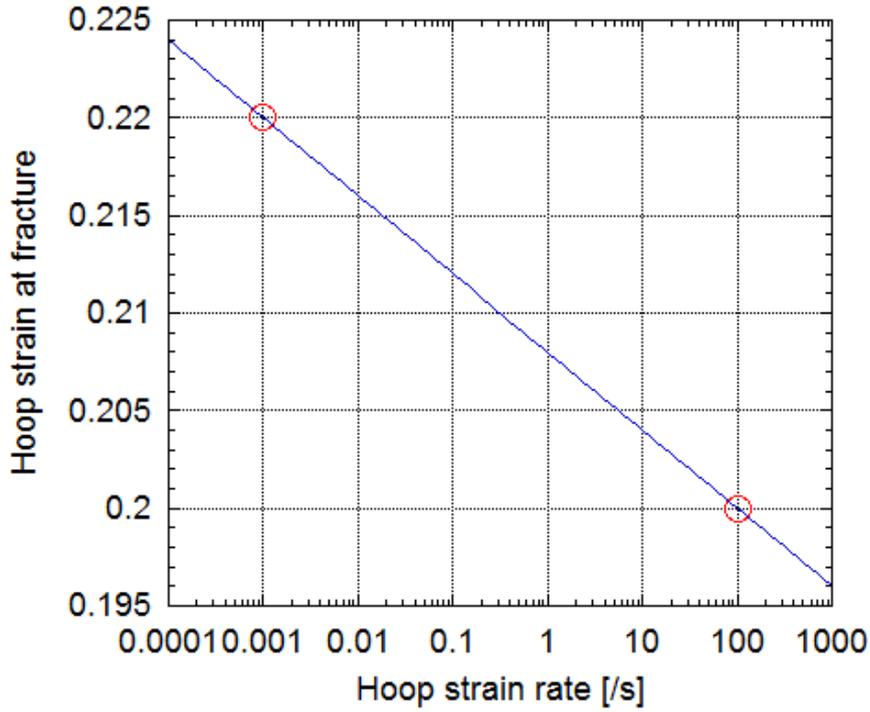


図 3.8.126 破断ひずみの周方向ひずみ速度依存性

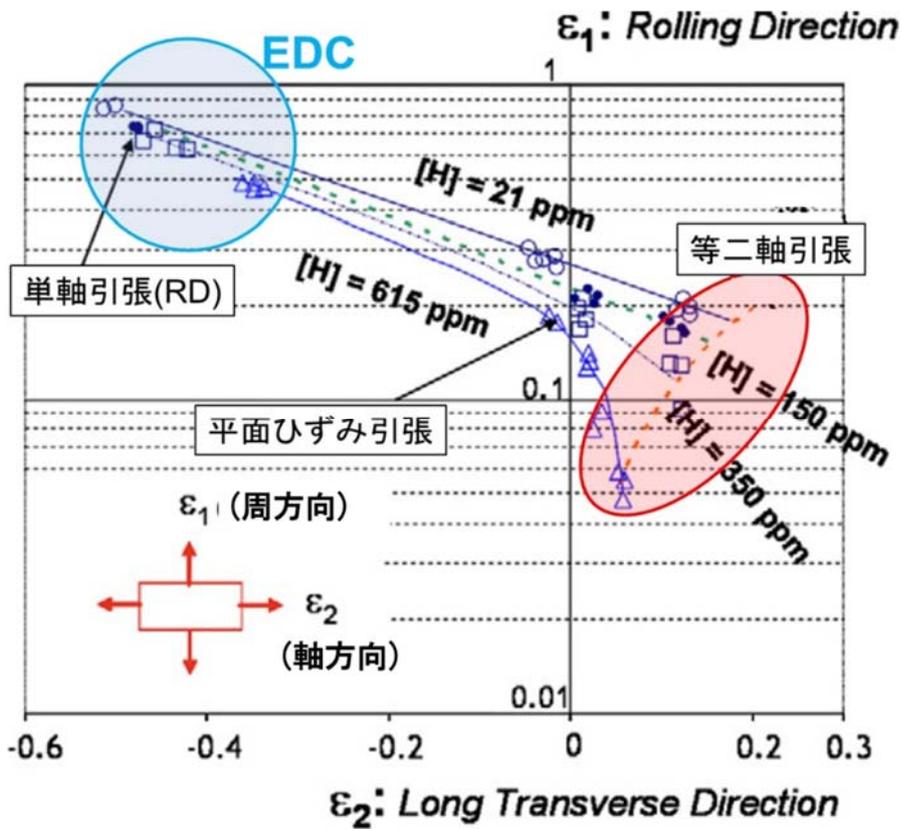


図 3.8.127 Zry-2 平板の RD、TD の破断ひずみ量

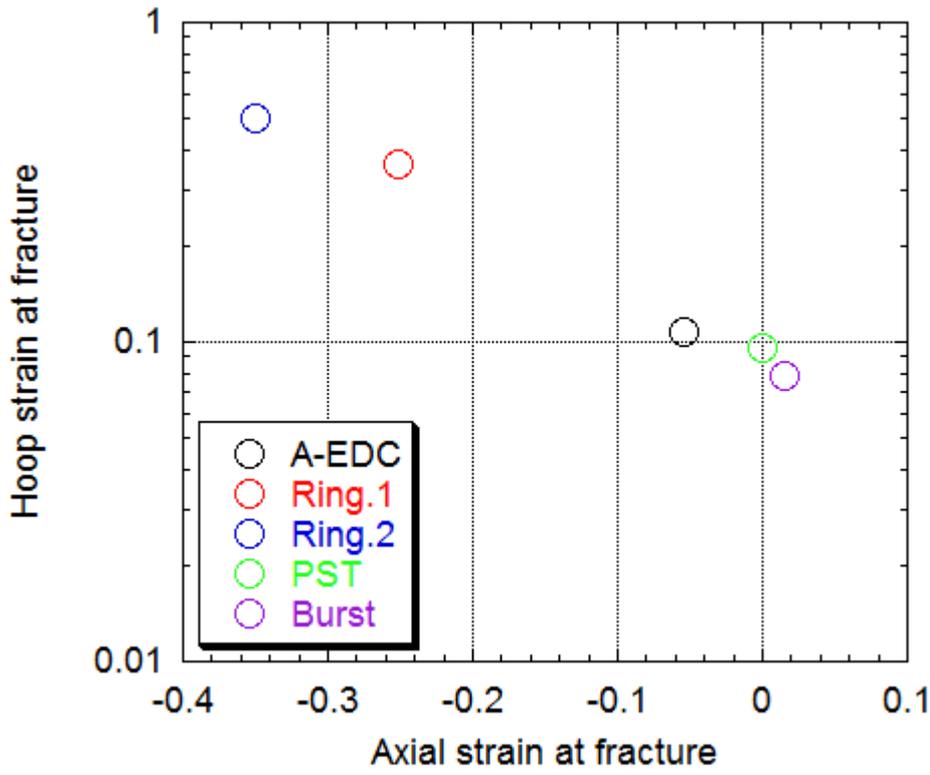


図 3.8.128 機械試験ごとの周方向及び軸方向破断ひずみ

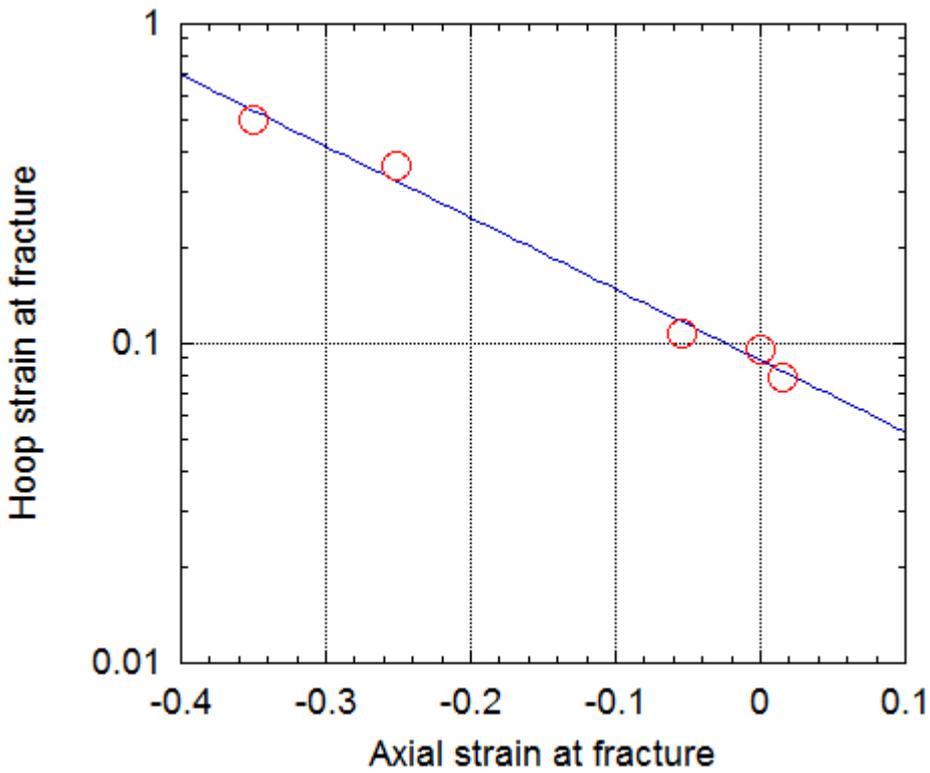


図 3.8.129 周方向機械試験による Zry-4 の破断ひずみ

3.8.3 水素化 Zr 合金への適用

本節では水素化した Zr-2.5 wt% Nb 合金において水素化物が機械的性質に及ぼす影響について報告する。

3.8.3.1 実験方法

(1) 水素化実験

水素化試料は NDC より供給を受けた。図 3.8.130 に装置の概要を示す。純度 99.999%、流量 0.5 l/min の Ar ガス雰囲気において、所定濃度の Ar-水素混合ガスを流量 0~10 ml/min で混合させ、水素化反応チャンバーの雰囲気を制御した。この雰囲気に曝された被覆管試料を 360 に加熱し、所定時間保持の後炉冷した。目標とした水素濃度は 20、200、500、1000 および 2000 wt ppm である。以下、20ppm 材、200ppm 材、... と略称する。室温における Zr 中の水素固溶限はほぼゼロであり、ほぼ全てが水素化物として析出していると考えられる。

(2) 水素化試料の観察試験

水素化試料は所定サイズに加工した後、観察試験に供した。観察表面は以下の要領で仕上げた。まず、耐水研磨紙 #2000 で研磨し、その後粒径 3 μm のアルミナ粉末で研磨し、さらにコロイダルシリカ (粒径 0.05 μm) で仕上げた。この表面を化学研磨によりエッチングし水素化物を可視化した。エッチング溶液の条件は以下の通りとした。すなわち 7 ml HF、10 ml HNO₃、20 ml H₂SO₄、63 ml H₂O とした。エッチング時間は約 40 秒とし、速やかに純水中で数分洗浄した。最後にメタノール中で超音波洗浄し大気中乾燥させた。作製した試料は光学顕微鏡 (OM) および走査電子顕微鏡 (SEM) にて表面組織を観察した。

(3) 改良型中子拡管 (A-EDC) 試験

本事業において開発してきた A-EDC 試験を、水素化試料に対して適用した。被覆管試料を高さ 1mm のリング状に加工した。リング端面の表面は耐水研磨紙 (#2000) で仕上げた。中子には銅を用い、10mm 棒から直径 8mm に旋盤加工し、高さ 8mm に加工した。これらを機械試験機に設置し、圧縮試験を行った。圧縮速度は 0.3 mm/min とした。試験機の性能から圧縮試験の限界は約 45kN である。

3.8.3.2 実験結果

(1) 水素化物の観察

Zr 合金は水素吸蔵性があり 300 で約 0.7 at.% (約 64 weight ppm) が固溶限である。これを超えた水素は水素化物として析出するが、この時水素化物は管の周方向に析出することが知られている。これは管に成形する際の加工により結晶粒が集合組織を形成することに因る。また Zr-2.5 wt% Nb 合金系 (J3) 被覆管は再結晶組織材であり、上述の集合組織は再結晶処理により緩和され組織の異方性が減じている。そのような組織の場合には水素濃度に応じて径方向に水素化物が形成されることもある。図 3.8.131 に Zr-2.5 wt% Nb alloy の水素化物組織を示す。図 3.8.131 (a) は比較的 low 水素濃度 (20ppm) 材の組織であり、水素化物がドット状に近い組織を有し、かつ周方向と径方向に均一に分布していた。これに対して、水素濃度 200ppm 材では同図 (b) に示すように水素化物の周方向への成長が顕著であった。尚、この周方向は A-EDC 試験のフープ方向と同義であ

り、水素化物が周方向引張応力に対して平行に分布していることが分かる。水素濃度 500 ppm 材までは、同図(c)に示すように水素化物は周方向に成長している様子が分かった。一方で、同図(d)に示すように 1000ppm に至ると一部の水素化物は径方向に分布するようになった。この径方向への水素化物分布により A-EDC 試験による周方向引張試験において機械強度の低下が予測される。最大濃度である 2000ppm (同図(e)) では、周方向、径方向ともに高密度かつ成長した水素化物が形成され、これらがネットワーク化しているような様相が観察された。

SEM を用いて組織を観察した結果 (倍率 1000 倍) を図 3.8.132 に示す。同図(a)に示すように 20ppm 材では水素化物の長さは 10 μm 以下であった。200ppm 材では、同図(b)に示すように短い水素化物が 90 μm 程度かそれ以上に連結した様相を示した。500ppm 材および 1000ppm 材では水素化物の連結がより顕著で、周方向に配向するだけでなくランダムな方向に形成され、粒界だけでなく粒内にも観察された。同様の傾向は 2000ppm 材 (同図(e)) でも観察された。

現在までの報告の範囲では、三種類の水素化物が知られている。これらの結晶構造や結晶の morphology を表 3.8.3.1 にまとめた。本研究では、図 3.8.133 に示すように 20ppm 材において針状および板状の二種類の水素化物を確認した。表 3.8.10 と合わせて 相と、 (または) 相であると考えられるが、電子後方散乱回折法 (EBSD 法) などを適用した確認が必要である。

(2) 改良型中子拡管 (A-EDC) 試験

A-EDC 試験により得られた荷重-変位曲線と荷重-フープひずみ曲線を図 3.8.134 に示す。中子だけの圧縮試験から得られた両曲線を図中に黒実線または黒破線で示すが、A-EDC 試験データと比較して低めの値をとることが分かる。A-EDC 試験データと中子圧縮試験データの差の積分はリング形状試験片の変形に要した仕事と、中子と試料との間の摩擦に要した仕事の和に対応する。受取まま材、20ppm 材、200ppm 材、500ppm 材ではフープ方向の歪 (ϵ_{θ}) は 0.31 程度まで到達したが、装置の限界である荷重 45kN までの範囲で破断には至らず、十分な延性を有していると考えられる。これに対して、1000ppm 材では破断ひずみは約 0.2 であり、10%以上の延性低下を示した。さらに 2000ppm 材では、破断ひずみは 0.04 であり、強く脆化していた。図 3.8.135 に典型的なフープひずみ-時間曲線を示す。これより銅中子圧縮試験におけるフープ方向ひずみ速度を約 $4.4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ と見積もった。また、水素化試料のフープ方向ひずみ速度は約 $3.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ と見積られた。

(3) Zr-2.5 wt% Nb 合金 1000ppm 水素化材の破面観察

A-EDC 試験により破断に至った試料のうち 1000ppm 水素化材について破面観察をさらに行った。破断した試料を管周方向全体にわたり光学顕微鏡観察した結果を図 3.8.136 に示す。全体像の内側には破断点以外の部位における様相を拡大図として示す。これらより多数の微細なクラックが管の内面および外面に水素化物が高濃度に集積していること (hydride rim) および両面に高密度の微細なクラックが形成されていることが分かった。

破断面の両面を SEM により観察した結果を図 3.8.137 に示す。全体的に破面はディンプル破面の様相を示し、延性的に破断したことが分かる。また管肉の比較的内部には径方向に垂直な比較

的大きなクラックが形成され開口していることが分かった。これらから、比較的大きな水素化物が形成され、A-EDC 試験時のせん断応力により水素化物ないしその近傍で割れが発生したことによるものと考えられる。

管状試料の外表面と内表面の SEM 観察結果を図 3.8.138 に示す。A-EDC 試験により無い表面、外表面共に高密度のクラックが形成され、数十から 200 μm 程度に成長していた。また、変形量の大きな外表面の方がクラックの開口の度合いが大きい傾向にあった。

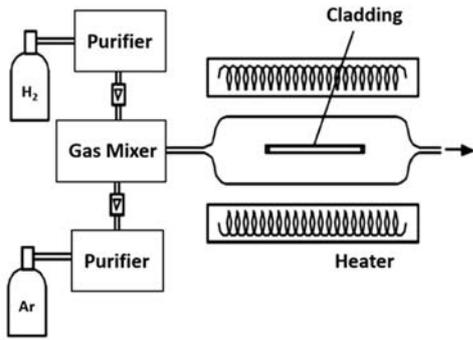
クラックの成長についてより詳細な情報を得るために、破面近傍の RD-CD 面の SEM 観察を行った。その結果を図 3.8.139 に示す。観察結果から、同図右図に模式的に示すように、クラックが外表面に形成され、クラックの分岐を生じながら内表面に向かって進展していったことが分かった。

3.8.3.3 考察

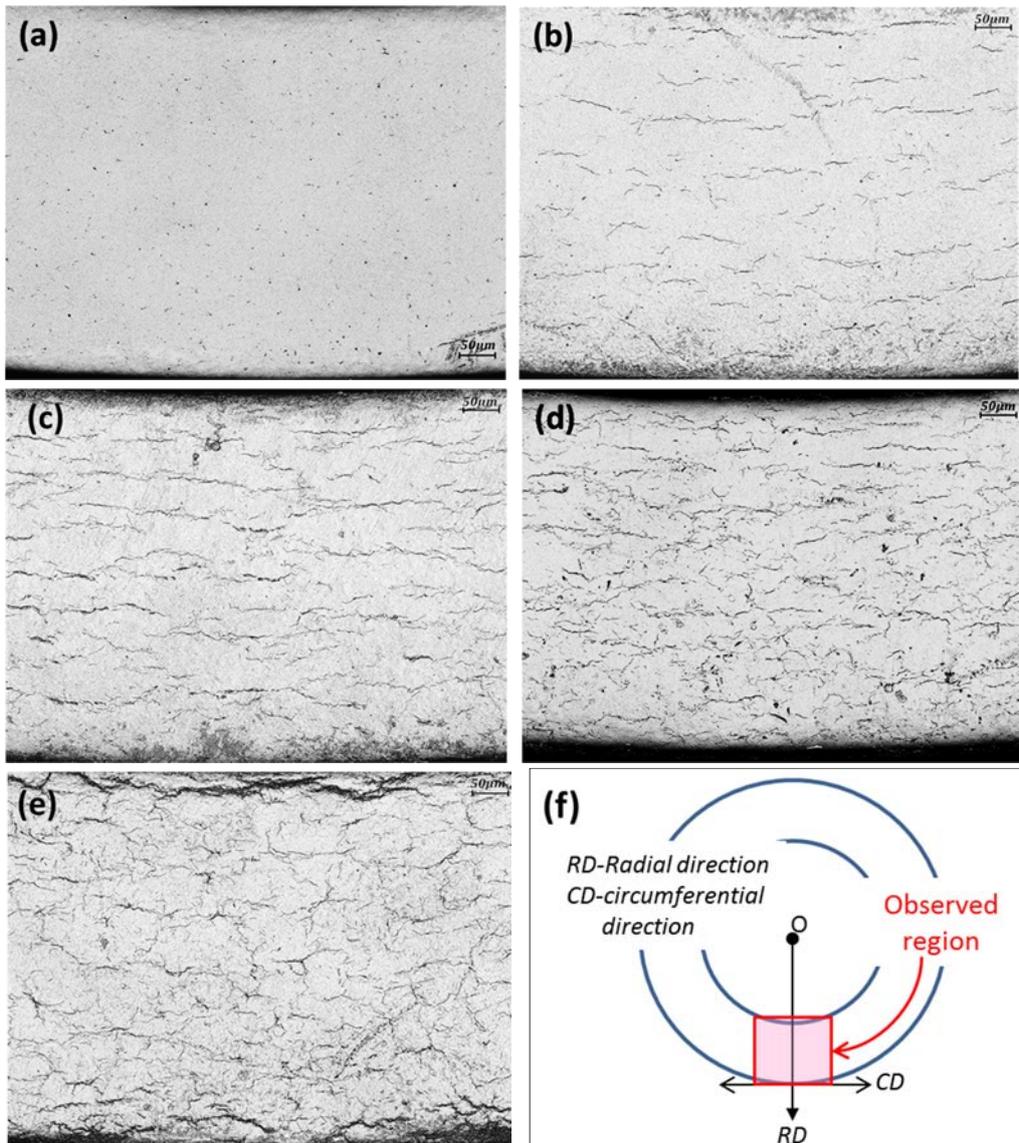
500ppm までの水素吸収量では材料は延性変形し、実験装置の性能範囲内で破壊には至らなかった。このことはこの程度の吸収量では Zr-Nb 母相の変形が主因子であり、ほぼ水素化の影響が無視できることを意味する。水素吸収量が低い場合には水素化物は結晶粒界に優先的に形成され、周方向に集合した組織を形成する。これは、管製造時のピルガー圧延に伴う強加工により、Zr の六方晶の c 面が径方向に優先的に配列した集合組織が形成され、製造工程終段の再結晶焼鈍後もある程度の集合組織が残存することによる。そして水素吸収量が 1000ppm を超えると径方向に水素化物が形成されるようになる。そして隣接する水素化物が連結しネットワーク化する。これらにより一層の脆化が進むと考えられる。破面の観察結果から貫通クラックは管外面に形成され内表面に向けて進展することが分かった。さらに水素化物はクラックの進展に影響しており、さらに周方向のせん断変形に伴う内面割れも観察された。既往研究も踏まえるとこれらは水素化物が脆い物質であることに起因すると考えて十分である。水素濃度が高い材料に周方向引張応力が印可された場合、表面に形成された高濃度の水素化物組織 (hydride rim) の影響により、表面には高密度のクラックが形成され、hydride rim 層が強く脆化していることを指している。

3.8.3.4 まとめ

- (1) Zr-Nb 合金では、ジルカロイ合金と同様に、水素化初期には周方向に水素化物が析出するが、1000ppm 以上になると径方向への析出が生じるようになる。
- (2) A-EDC 試験では、200ppm 材と 500ppm 材ではフープ方向伸び 0.3 以上でも破断には至らなかった。一方、1000ppm 材および 2000ppm 材が破断に至り、この時のフープ方向の破断伸びはそれぞれ 0.2 および 0.04 であった。1000ppm 材では延性変形の割合がある程度高いと予想されるが、2000ppm 材ではほとんど延性変形せずに破断に至ったものと考えられる。
- (3) A-EDC 試験ではクラックの形成は試料の内外両面で生じた。荷重増加に伴い外表面からクラックが分岐しながら成長することで貫通に至る様子が観察された。クラックの分岐には水素化物が影響するものと考えられる。



☒ 3.8.130 Schematic of hydrogen-charging experimental instrument



☒ 3.8.131 Optical microscope observation of hydrides in different samples (a) 20 ppm; (b) 200 ppm; (c) 500 ppm; (d) 1000 ppm; (e) 2000 ppm; (f) illustration of observed region

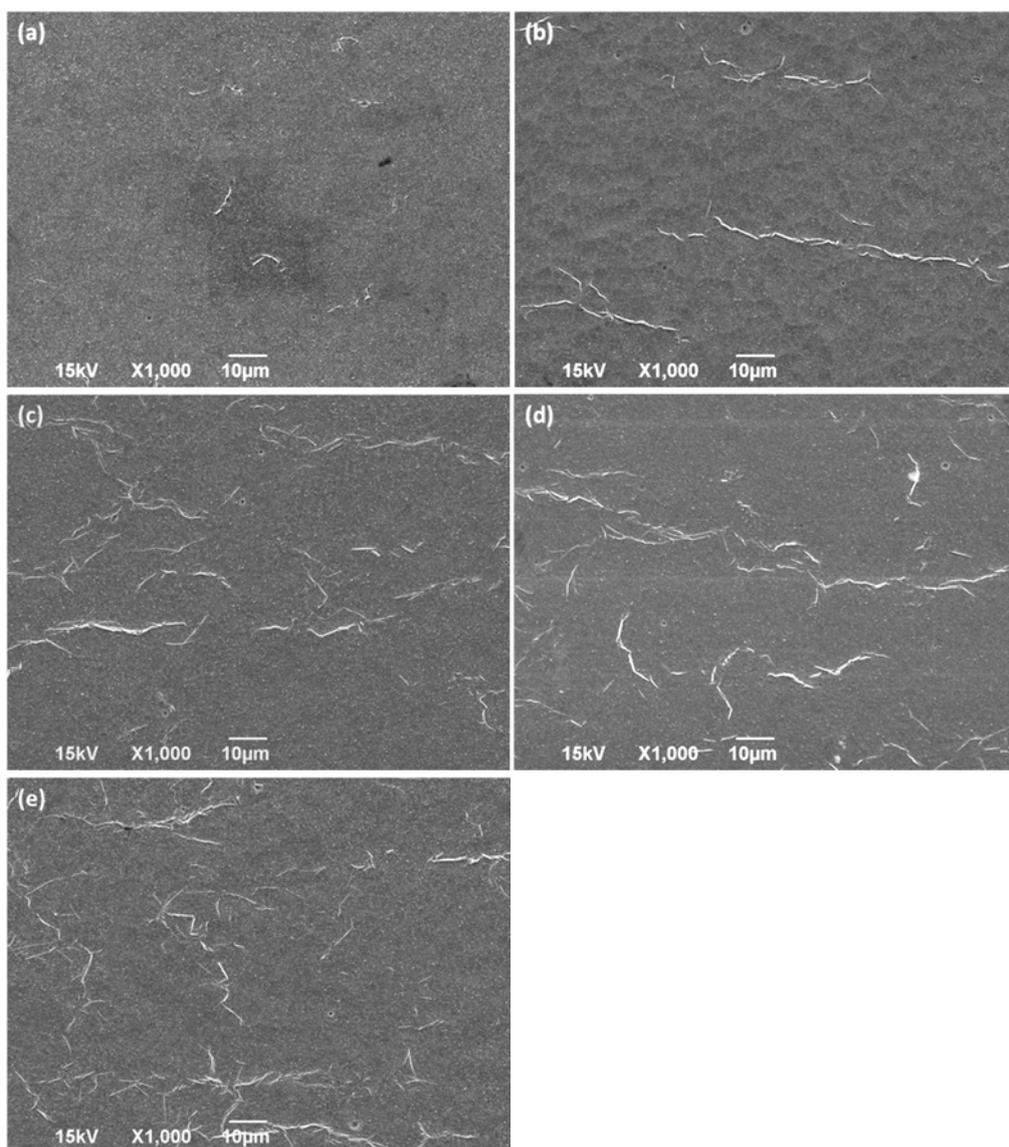
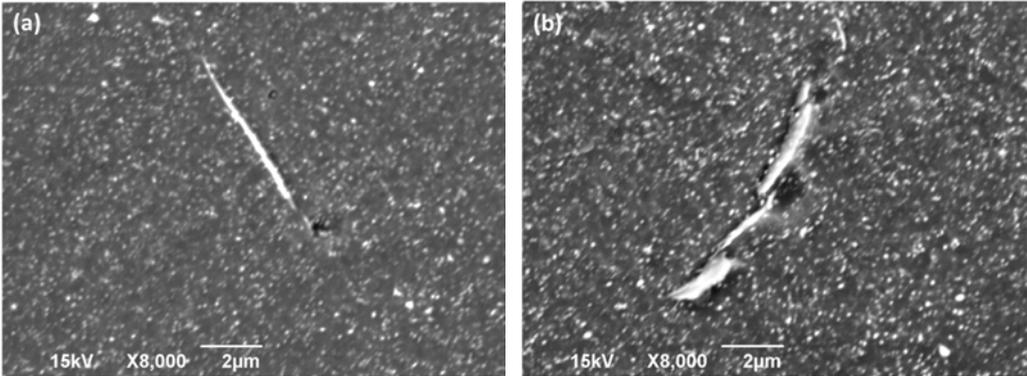


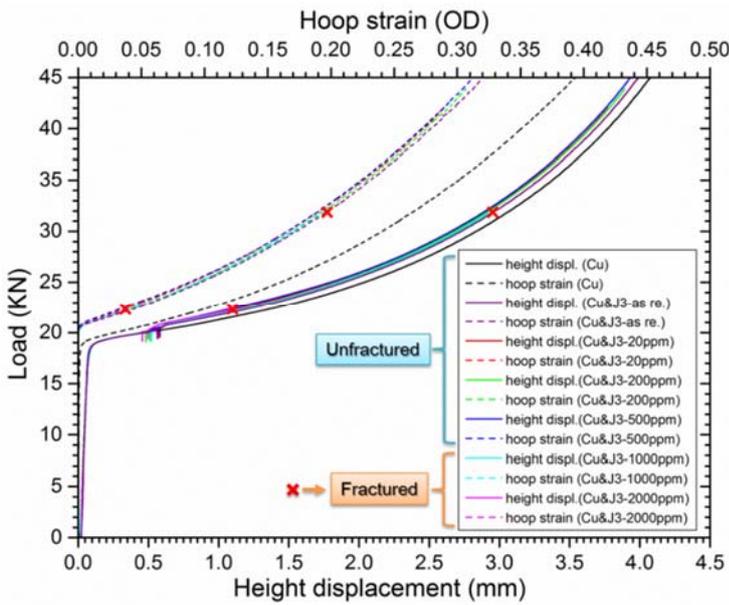
图 3.8.132 SEM observation of hydrides at 1000× magnification. (a) 20 ppm; (b) 200 ppm; (c) 500 ppm; (d) 1000 ppm; (e) 2000 ppm

表 3.8.10 Crystal structure information and morphology features of different types of hydrides

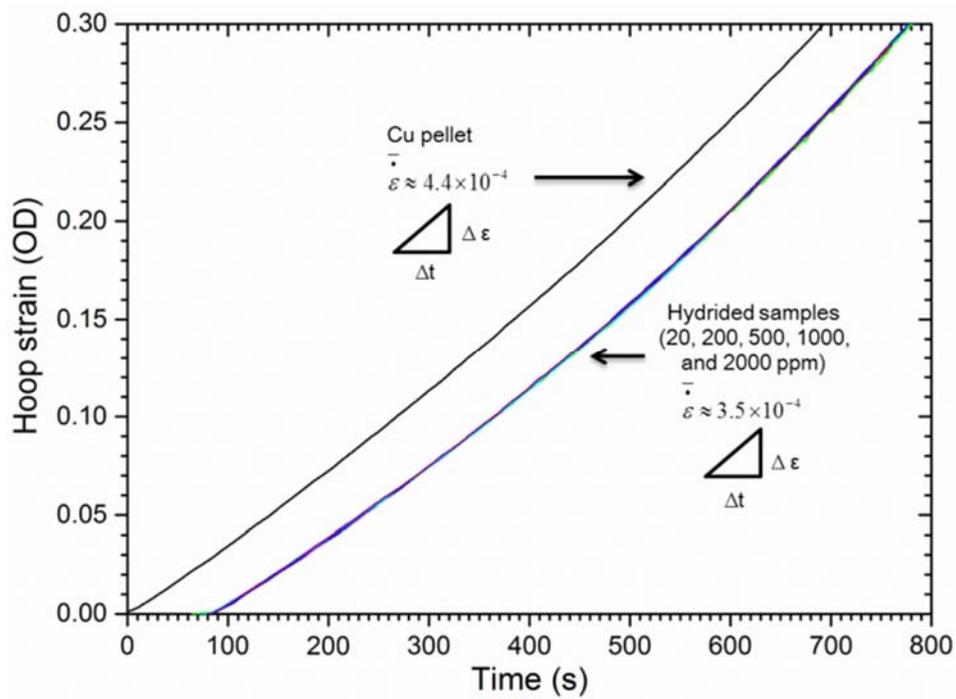
Phases	Structure	Stoichiometric Formula	Morphology	Stability
	face-centered cubic (fcc)	ZrH _{1.66}	plate-shaped	stable
	face-centered tetragonal (fct) (c/a<1)	ZrH ₂	plate-shaped	
γ	fct (c/a>1)	ZrH	needle-shaped	metastable



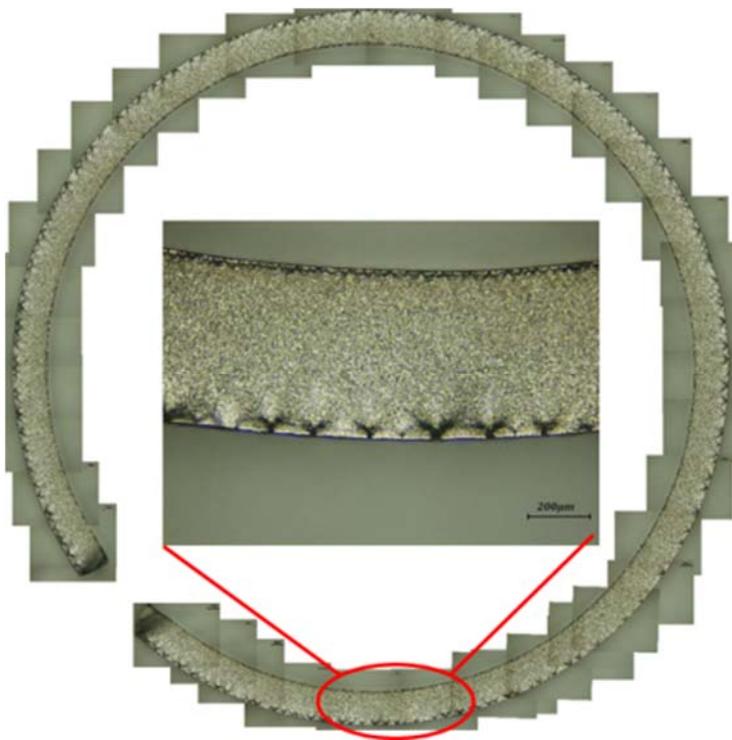
☒ 3.8.133 Morphology of (a) needle-shaped and (b) plate-shaped hydrides



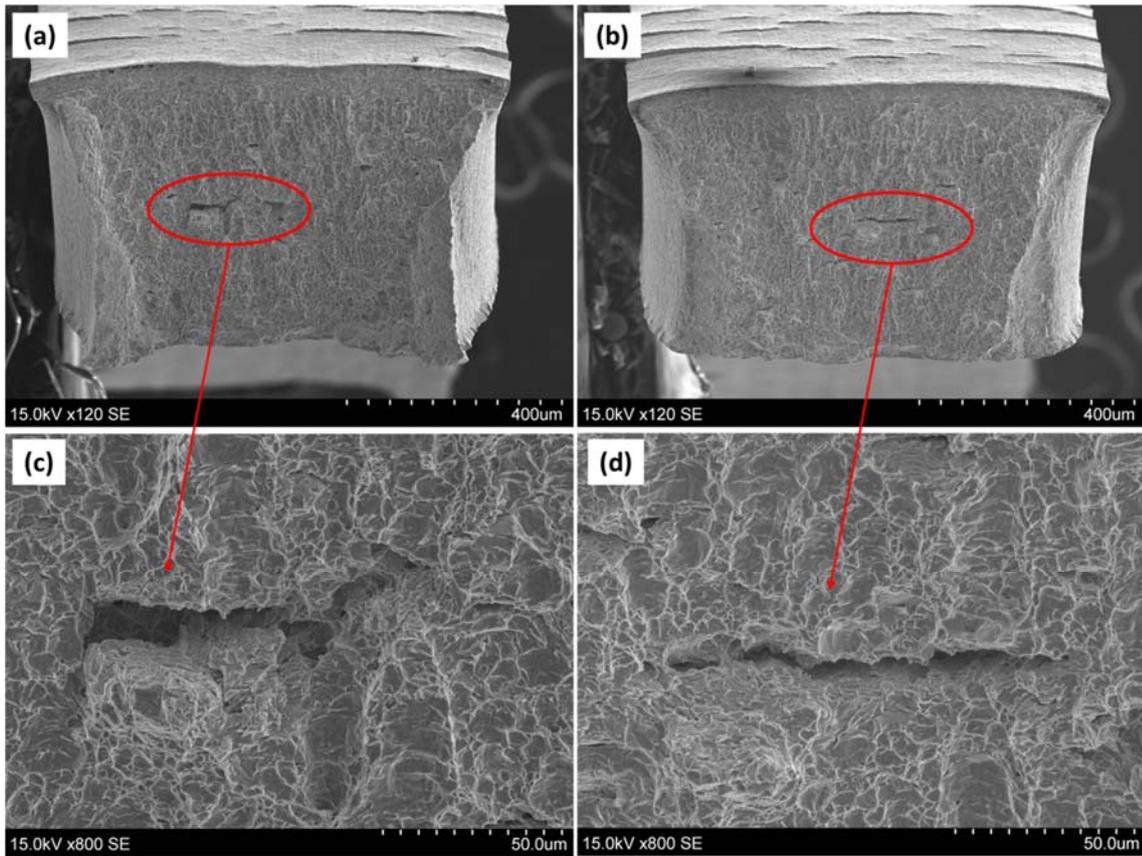
☒ 3.8.134 load-height displacement and load-hoop strain (OD) curves obtained through A-EDC experiment. The cross marks means fracture occurred at corresponding hoop strain (OD). OD represents the maximum of outer diameter.



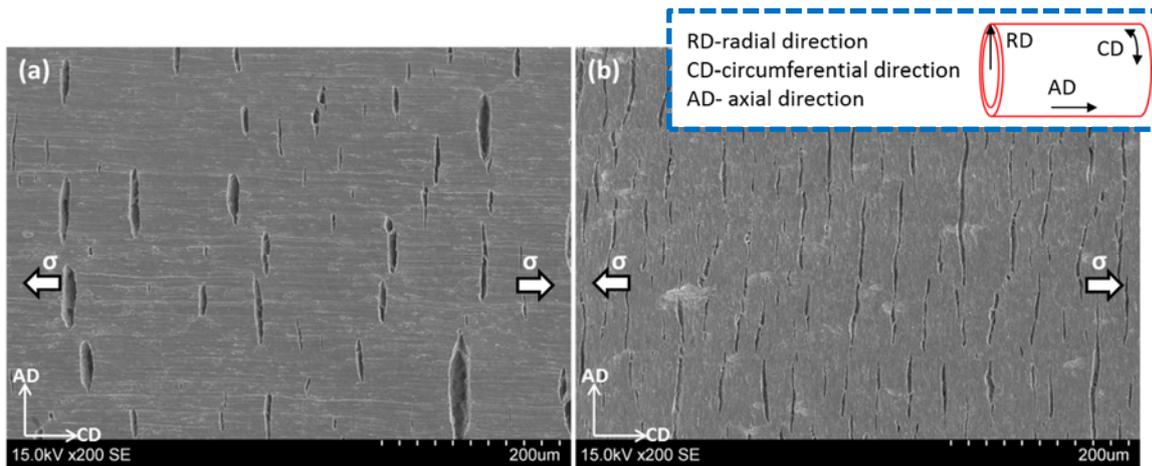
☒ 3.8.135 Strain rate in hoop direction (OD) for Cu pellet and hydrided samples in A-EDC experiment



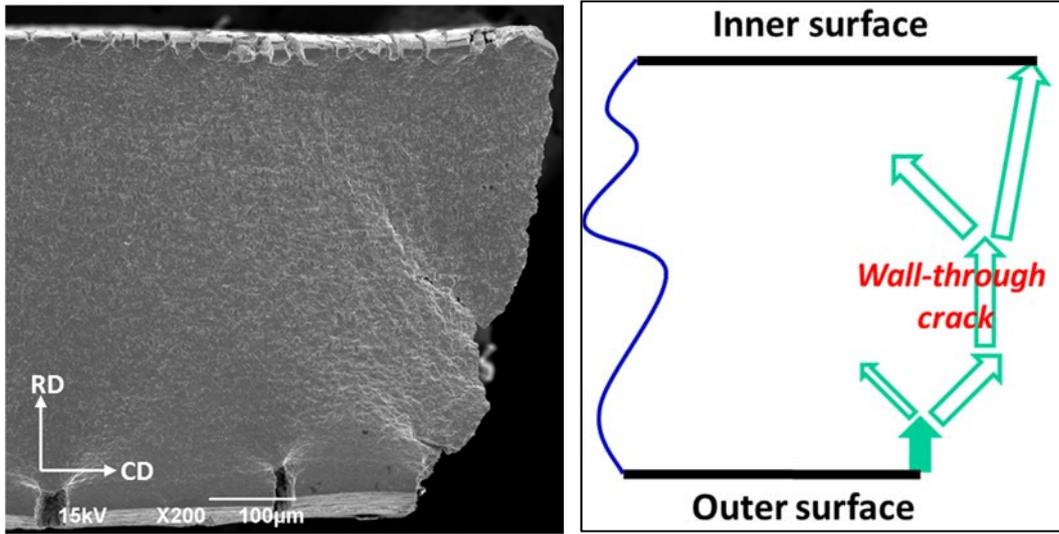
☒ 3.8.136 OM overall observation of fractured ring-shaped sample after A-EDC experiment



☒ 3.8.137 Observation of fracture morphology by SEM. The sample contained 1000 ppm hydrogen. (a) and (b) represented two fractured surfaces; (c) and (d) were partially enlarged figures



☒ 3.8.138 Observation of hydrided sample (1000 ppm). (a) Outer surface; (b) inner surface



☒ 3.8.139 SEM observation of RD-CD plane. The right figure is a schematic drawing of crack propagation during A-EDC experiment

参考文献

- [3.8.1] 岡島 安二郎, “原子力発電と原子燃料,” 鉄と鋼, 第71, 第6号 (1985)
- [3.8.2] H. Assmann and H. Stehle, eutsches Atomforum, Reactor Conf., Karlsruhe Proc., p.409 (1973)
- [3.8.3] Une et al., “Microstructural change and its influence on fission gas release in high burnup UO₂ fuel”, Journal of Nuclear Materials, Vol. 188, pp. 65-72 (1992)
- [3.8.4] 原子力安全研究協会, 実務テキストシリーズ No.3(第5版), “軽水炉燃料のふるまい” (2013)
- [3.8.5] 原子力安全委員会, 一部改訂版 “発電用軽水型原子炉施設の安全評価に関する審査指針” (2001)
- [3.8.6] 原子力安全研究協会, 実務テキストシリーズ No.3(第4版), “軽水炉燃料のふるまい” (1998)
- [3.8.7] 日本機械学会, ジルコニウム合金ハンドブック, 日刊工業新聞社 (1997)
- [3.8.8] 萩茂樹, 山本章夫, 松浦敬三, 日本原子力学会誌, 47, 1, 35-44 (2005)
- [3.8.9] J.R. Lamarsh, “原子炉の初等理論”, 吉岡書店 (1974)
- [3.8.10] W.E. Berry, D.A. Vaughan, E.L. White, Corrosion, 17, 109-117 (1961)
- [3.8.11] 長島晋一, “集合組織”, 日本金属学会 (1966)
- [3.8.12] 三島 良績 他, 原子力学会誌, Vol.29, No.2, 90 (1987)
- [3.8.13] S. Doi, et al., “High Burnup Experience of PWR Fuel in Japan”, ANS-ENS International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Proceedings p.588, Avignon (France), 21-24 (1991)
- [3.8.14] 三島 良績 他, 原子力学会誌, Vol.31, No.10, 734 (1987)
- [3.8.15] V. Fidleris, et al., ASTM STP 939, 49 (1987)
- [3.8.16] D. O. Northwood, et al., J.Nucl. Mater., 79, 379 (1979)
- [3.8.17] M. Griffiths, et al., J.Nucl. Mater., 150, 169 (1987)
- [3.8.18] A. J. pedraza, et al., J.Nucl. Mater., 88, 236 (1980)
- [3.8.19] V. Fidleris, et al., J.Nucl. Mater., 159, 22 (1988)
- [3.8.20] M. Griffiths, et al., J.Nucl. Mater., 225, 245 (1995)
- [3.8.21] E. Hillner, ASTM STP 633, 211 (1977)
- [3.8.22] B. Griggs, et al., J. Electrochem. Soc., 109, 665 (1962)
- [3.8.23] N.B. Pilling, R.E. Bedworth, J. Inst. Met. 29, 529 (1923)
- [3.8.24] J. Godlewski, in Zirconium in the Nuclear Industry: 10th Int. Symp., ASTM STP 1245, ed. A. M. Garde and E. R. Bradley, American Society for Testing and Materials, Philadelphia, PA, pp. 663-683 (1994)
- [3.8.25] Cox, B., Report AECL 9382, Atomic Energy of Canada Ltd, Chalk River Nuclear Laboratories, Ontario, Canada (1987)
- [3.8.26] N. A. P. Kiran Kumar, et al., Materials Science and Engineering A 528, 6366-6374 (2011)
- [3.8.27] 文部科学省, 原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ「先進燃料被覆管材料の水素化お

- よび照射効果の解明に関する研究」成果報告書, 国立大学法人 東北大学, (2010)
- [3.8.28] N. A. P. Kiran Kumar, et al., Journal of Nuclear Materials 403, 101-107 (2010)
- [3.8.29] D. Hardie, et al. J. Nucl. Mater. 55, 1-13 (1975)
- [3.8.30] T. B. Massalski, Binary Alloy Phase Diagram, Second Edition, ASM (1990)
- [3.8.31] R.N. Singh, et al. J. Nucl. Mater. 325, 26-33 (2004)
- [3.8.32] R.N. Singh, et al. J. Nucl. Mater. 359, 208-219 (2006)
- [3.8.33] M. Aomi, et al. Journal of ASTM International, 5, 9, 651-673 (2008)
- [3.8.34] K. Une, et al. J. Nucl. Sci. Tech. 41, 731-740 (2004)
- [3.8.35] P.E. MacDonald, et al., Nucl. Safety 21, 582-602 (1980)
- [3.8.36] F. Schmitz, et al., Journal of Nuclear Materials 270, 55-64 (1999)
- [3.8.37] J. Papin, et al., Nuclear Technology, 157, 230-250 (2007)
- [3.8.38] J. Papin, et al., “SYNTHESIS OF CABRI-RIA TESTS INTERPRETATION” (2003)
- [3.8.39] C. Vitanza, Nuclear Engineering and Technology, 39, 591-602 (2007)
- [3.8.40] T. Fuketa, et al., Nuclear Technology, 133, 50-62 (2001)
- [3.8.41] T. Fuketa, F. Nagase, K. Ishijima, T. Fujishiro, Nucl. Safety 37, 328-342 (1996)
- [3.8.42] F. Yunchang, et al. Metallurgical Transactions A, 16A, 675-681 (1985)
- [3.8.43] 佐藤一男 他, 日本原子力学会誌, vol.28, 887 - 907 (1986)
- [3.8.44] Japan Atomic Energy Agency, Progress of Nuclear Safety Research-2005, JAEA-Review (2005)
- [3.8.45] 北野 剛司 他, “改良リング引張試験における引張方法と試験片形状の最適化”, JAERI-Research (2001)
- [3.8.46] 独立行政法人 原子力安全基盤機構, 平成 16 年度高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証成果報告書 (2004)
- [3.8.47] M. Le Saux, et al., “Behavior and failure of uniformly hydrided Zircaloy-4 fuel claddings between 25 and 480 under various stress states, including RIA loading conditions”, Engineering Failure Analysis, Vol. 17, pp. 683-700 (2010)
- [3.8.48] T.M. Link, et al., “Failure of Zircaloy cladding under transverse plane-strain deformation”, Nuclear Engineering and Design 186, 379-394 (1998)
- [3.8.49] J. Desquines, et al., “The issue of stress state during mechanical tests to assess cladding performance during a reactivity-initiated accident (RIA)”, Journal of Nuclear Materials., Vol. 412, pp. 250-267 (2011)
- [3.8.50] F. Nagase, et al., J. Nucl. Sci. Tech, 42, 58-65 (2005)
- [3.8.51] 独立行政法人 原子力安全基盤機構, 平成 18 年度 高燃焼度燃料安全裕度確認試験成果報告書 (2006)
- [3.8.52] J. H. Kim, et al., Journal of Alloys and Compounds 431, 155-161 (2007)
- [3.8.53] M. Nakatsuka, et al., Journal of Nuclear Materials 434, 303-310 (2013)
- [3.8.54] T. Yella Reddy and S.R. Reid, “On obtaining material properties from the ring compression test”, Nuclear Engineering and Design, Vol. 52, Issue 2, pp. 257-263 (1979)

- [3.8.55] V. Busser, et al., “Mechanical response of oxidized Zircaloy-4 cladding material submitted to a ring compression test”, *Journal of Nuclear Materials*, Vol. 384, issue 2, pp. 87-95 (2009)
- [3.8.56] S. Leclercq, et al., *Nuclear Engineering and Design*, 238, 2206-2218 (2008)
- [3.8.57] V. Grigoriev, et al., “Mechanical Testing of High Burnup PWR Cladding to Simulate RIA”, *Proceedings of Annual Meeting on Nuclear Technology 2000: JAHRESTAGUNG KERTECHNIK*, Bonn, 23-25, 359-362 (2000)
- [3.8.58] V. Grigoriev, et al., “Experimental evaluation of critical strain energy density for irradiated cladding under simulated RIA conditions”, In: *ENS topfuel 2001*, Stockholm, Sweden (2001)
- [3.8.59] V. Grigoriev, et al., “Further Development of Mechanical Test to Simulate RIA in Irradiated Cladding”, *JAERI - Conf 2001 - 010*, Proceeding of the 24th NSRR Technical Review Meeting, 139-149 (2001)
- [3.8.60] V. Grigoriev, et al., “Temperature Effect on BWR Cladding Failure under Mechanically Simulated RIA Conditions”, *JAERI - Conf 2002 - 009*, *FSRM Procs*, 97-106 (2002)
- [3.8.61] V. Grigoriev, et al., “Impact of Corrosion on Rapid Deformation Capabilities of ZIRLOTM Cladding”, *RIA Topical Meeting (OECD/ CSNI)*, Cadarache, France (2002)
- [3.8.62] V. Grigoriev, et al., “RIA Failure of High Burn-up Fuel Rod Irradiated in KKL: Out-of-Pile Mechanical Simulation and Comparison with Pulse Reactor Tests”, *16th ASTM International Symposium Zirconium in the Nuclear Industry*, Chengdu, China (2010)
- [3.8.63] O. Dufourneaud, et al., “Elastic-Plastic Deformation of a Nuclear Fuel Cladding Specimen under the Internal Pressure of a Polymer Pellet”, *PA-03-06-01*, Malmö Univeristy, Malmö, Sweden (2001)
- [3.8.64] O. Dufourneaud, et al., “Numerical Simulation of the Expansion-Due-to-Compression Test”, *JAERI*, Ibaraki-ken, Japan, 142-162 (2002)
- [3.8.65] Y. Ménager, et al., “Effect of External Hydride Layer on Fuel-Cladding Deformation during EDCTesting”
- [3.8.66] H. Abe, et al., “Development of Advanced Expansion Due to Compression (AEDC) Test Method for Safety Evaluation of Degraded Nuclear Fuel Materials”, *Abstract of 2nd Asian Nuclear Fuel Conference*, p. 17 (2014)
- [3.8.67] 阿部友紀, 修士論文 (2014)
- [3.8.68] V. Grigoriev, “Advanced techniques for mechanical testing of irradiated cladding materials”, *IAEA TCM on advanced PIE techniques for water reactor fuel*, 14 - 18, Dimitrovgrad, Russia (2001)
- [3.8.69] F. Latourte, “Full Field Measurements used for Assessing Industrial Issues- Two Examples”, *Procedia IUTAM* 4, 92-105 (2012)
- [3.8.70] “サクシオン測定を伴う一軸圧縮試験マニュアル”, *土と基礎*, 54, 8, 583 (2006)
- [3.8.71] 堀 茂徳, “銅の再結晶温度と溶質元素”, *日本金属学会誌*, 第 45 巻, 第 12 号, 1223

~ 1228 (1991)

[3.8.72] R. A. Jaramillo, et al., "Tensile Hoop Behavior of Irradiated Zircaloy-4 Nuclear Fuel Cladding", ORNL/TM-2006/163 (2006)

[3.8.73] T. Fukuda, et al., "The cladding fracture behavior under biaxial stress condition" (2011)

[3.8.74] Sun-Ki Kim, "Behaviors of Nuclear Fuel Cladding During RIA", Advances in Nuclear Fuel (2012)

[3.8.75] Robert S. Daum, "Hydride-induced Embrittlement of Zircaloy-4 Cladding under Plane-strain Tension" (2007)

[3.8.76] A. H. Menibus, "Fracture of Zircaloy-4 cladding tubes with or without hydride blisters in uniaxial to plane strain conditions with standard and optimized expansion due to compression tests" (2014)

3.9 多軸応力機械試験 (H24-H27)

3.9.1 目的

多軸応力場における燃料被覆管の変形挙動を把握するための試験手法を開発し、当該手法を用いて、Zr系被覆管無垢材および水素化材、腐食材に対し同試験による挙動評価を行うことを目的とした。

H24年度に試験装置の導入を行い、H24年度からH25年度にかけて試験手法の予備検討等の準備を実施した。また、H26年度に試験体系および試料形状の検討を行い、H27年度において試験手法を確立し、当該試験による挙動評価を実施した。

3.9.2 光学顕微鏡用引張試験装置の導入 (H24)

本試験では、試料変形過程のその場観察により、試料中のひずみ分布や水素化物等の組織状態の変化を把握することを考慮し、光学顕微鏡用引張試験装置の仕様を検討して、同装置の導入および動作確認を実施した。

(1) 引張試験装置の仕様等

試験装置の概要

既存の弊社所有カールツアイスマイクロスコピー(株)製光学顕微鏡の試料ステージ上で、試料を高温に保持した状態で引張試験が可能な構造とした。また、同引張試験を、所定のガス雰囲気でその場観察が可能な体系であることとした。

引張試験装置の仕様

- 1) 顕微鏡用延伸ステージ：ジャパンハイテック製 顕微鏡用延伸ステージ 10073A型 (図3.9.1)
 - ・試験温度：室温～350
 - ・引張荷重：～200N
 - ・引張試験片形状：幅7mm以下×厚さ2mm以下×長さ26mm以上
- 2) 顕微鏡用延伸ステージ内雰囲気：アルゴン-水素混合ガス
 - ・Ar-3% H_2 ガスボンベ内のガスをArガス精製器(株)リットガス製MFP-1型)を経由してステージ内に引き込む構造とした。
- 3) 延伸ステージ用固定治具として短冊状試料用とリング状試料用の2種類を製作した。

(2) 動作確認

導入した光学顕微鏡用引張試験装置について、性能確認のための予備試験を実施した。テスト試験片(幅6.8mm×厚さ0.2mm×長さ26mm)を装着した状態で、試験片のテスト昇温および引張テストを実施し、昇温、引張ともに問題なく実施可能であることを確認した。

3.9.3 試験片形状に関する予備検討 (H24-H25)

多軸応力状態が材料の破壊挙動に与える影響を評価する試験方法の一つに、円周切欠付丸棒引張試験がある。同試験では、引張試験片中央部に設ける切欠形状を変化させることにより、応力の多軸度をパラメータとして、材料の破壊挙動への影響を評価することが可能である^[3.9.1]。一方、本事業では、対象を被覆管としていることから丸棒での試験片は使用できず、板状、または板状に近い形状の試験片を対象とする必要があると考えられる。

H24年度において、試験片形状の検討に資するため、同じZr系材料から、丸棒と板材をそれぞれ加工し、加工した試験片に対して同じ形状の切欠を設けて引張試験を実施し、その破壊挙動への試験片形状(丸棒/板材)の影響を調べた。また、それぞれの試験片形状での有限要素解析をあわせて実施した。

H25年度において、被覆管の劣化を評価できる試験手法を検討するため、Zr系材料について、被覆管形状での引張試験を実施した。また、その試験片形状での有限要素解析をあわせて実施し、特にZr系材料で考慮すべきと考えられる塑性異方性の変形挙動への影響評価を行った。

(1) 丸棒および板材を用いた切欠き試験片の引張試験 (H24)

引張試験

1) 材料

今後の対象が軽水炉被覆管であるため、Zry4の丸棒(再結晶焼鈍材)を対象とし、図3.9.2に示す形状の試験片を製作した。

2) 試験方法

図3.9.3に示すように、加工した試験片を引張試験機に装着し、下記の条件で引張試験を実施した。

- ・試験温度：室温
- ・引張速度：0.16 mm/min (静的引張試験レベル)

3) 試験結果

図3.9.4に破断した位置での試験片の外観を示す。切欠なしの試験片では、破断部近傍で外径または板幅が緩やかに減少しており、十分な延性を示して破断したことが確認できる。切欠付試験片については、切欠なし試験片に比べると切欠部近傍での変形量は小さく、多軸応力状態の影響が現れていることが確認できる。しかし、丸棒と板材、または、切欠先端部形状の影響は明確ではない。

そこで、各試験後試験片の破断部での断面減少率を測定した。断面減少率は下式で定義される値である。

$$= (A_0 - A) / A_0$$

なお、変形に伴う体積変化がないと仮定した場合、断面減少率（ ）と破断部近傍の真歪量（ ϵ_f ）とは次のような関係となるため、断面減少率は、局所的な歪量を反映していることが分かる。

$$\epsilon_f = \ln(L/L_0) = \ln(A_0/A) = \ln(100/(100 - \text{断面減少率}))$$

測定結果を、図 3.9.5 に示す。同図より、丸棒の場合、切欠の先端が鋭くなる、すなわち、応力の多軸度が増すにつれ、断面減少率が減少しており、少ない変形量で破損に至ったことが分かる。これに対し、板材の場合は、同じ切欠形状の変化に対する断面減少率の低下度合いは小さく、応力多軸度の影響が出にくい結果となっていることが分かる。同じ材料を用いた試験であるため、両者の差は形状の効果と判断できる。同図には、板材における肉厚方向の変化率と板幅方向の変化率の測定結果を重ねて示したが、切欠効果の肉厚方向への影響がほとんどないことが確認でき、同方向に対しては、応力多軸度の影響が及び難いものと考えられる。

有限要素解析

上記の引張試験結果の解釈に資するため、有限要素解析（以降、FEM 解析）を実施した。

1) 解析モデル

使用コードは、ABAQUSver.6.7.2 を使用した。図 3.9.6 に FEM 解析モデルを示す。モデルは形状の対称性を考慮し、何れのモデルも軸方向には切欠部中央を軸方向の対称面とし、水平断面方向には、丸棒材も板材も 1/4 象限を解析対象とした。有限要素は「20 節点 2 次 6 面体要素(C3D20)」を適用し、要素数は最大約 76 万要素でモデル化した。

2) 物性値

材料は等方性材料を想定した。物性値は、Zry4 の室温での値として、以下の数値を適用した。

ヤング率	100000	[MPa]
ポアソン比	0.30	[-]

3) 荷重条件

試験片両端の軸方向に 0.1mm の強制変位を負荷した際の応力分布を解析した。

4) 解析結果

図 3.9.7 に解析により得られた Mises 相当応力の分布評価結果を示す。丸棒、板材ともに同じ物性値を使用し、同じ表示レベル色で表現したものである。両者の比較より、切欠底部での応力は、丸棒の方が大きいことが分かる。

また、図 3.9.8 には、き裂が進展すると考えられる径方向（丸棒）または板幅方向（板材）の応力成分を引張試験での破断部形状とともに示した。同方向の応力成分は、切欠底部からやや外れた領域で最大となり、実際の引張試験片でも丸棒は当該位置近傍で破断していることが確認できる。一方、板材は切欠底部でき裂が生じている。このように、対称性の優れた丸棒と板厚方向の拘束が弱い板材では、同じ材料、同じ切欠形状であっても応力分布、破壊挙動には差が生じることが確認された。

(2) 管材を用いた切欠き試験片の引張試験 (H25)

引張試験

1) 材料

Zry4（応力除去焼鈍材）および Zr-2.5Nb（再結晶焼鈍材）組成の被覆管より、受取材、予水素添加材を準備し、試験片製作に供した。

準備した水素濃度は、受取材、約 400ppm、約 1000ppm の 3 種類である。

2) 試験方法

被覆管の受取材および水素化材を用いて、リング引張試験を実施し、リング引張試験片に多軸応力状態形成用の切欠きを設け、その形状が破損歪に与える影響を把握することにより、保守的なリング引張試験片形状を抽出することとした。

加工したリング引張試験片の形状を図 3.9.9 に示す。多軸応力状態、応力集中の度合いの影響が確認できるように以下の形状を加工・準備した。

- ・切欠き部底半径：0.25 ~ 2 mm
- ・リガメント部（切欠き部に挟まれた箇所）：1 ~ 3 mm

図 3.9.10 に引張試験機への装着状況および固定治具を示す。引張試験では、切欠き部が引張方向に対し 90° 位置となるように保持して実施した。試験条件は以下のとおりである。

- ・試験温度：室温
- ・引張速度：0.05 mm/min（静的引張試験レベル）

3) 試験結果

多軸応力状態の影響として、切欠き部、リガメント幅の延性への影響を確認するため、H24 年度の整理と同様に、各試験後試験片の破断部での断面減少率を測定した。

測定結果を、図 3.9.11 に示す。同図より、以下の点が確認できる。

- ・切欠き部半径の断面減少率への影響が確認できるのは、Zry4 受取材のリガメント幅 1 mm のケース、および、Zr-2.5Nb の 1000ppm 水素添加のケースであり、それ以外は、切欠き部半径が変化しても断面減少率に明確な変化は認められない。影響が確認された 2 ケースと他の条件との応力集中に対する差異は明確ではないこと

から、切欠き部半径の断面減少率への影響は明確ではないと判断する。

- ・リガメント幅については、Zry4 の 1000ppm を除く他の条件で、1 ～ 2 mm の変化で断面減少率が減少し、それ以上のリガメント幅増加に伴う変化は小さい（または僅かに増加する）結果となった。本評価で用いた形状（リング 5 mm：軸方向長さ）では、2 mm 程度以上のリガメント幅であれば、断面減少率はほぼ最小を示し、保守的評価の点では妥当と推定される。

有限要素解析

1) 解析モデル

使用コードは、ABAQUSver.6.11-1 を使用した。材料非線形、幾何学的非線形を考慮した静的 FEM 解析とし、塑性後の異方性は、HILL のポテンシャル関数により考慮することとした。使用要素は 3 次元要素（ソリッド要素）、引張試験における 中子は剛体とし、試験片とは面接触を考慮した。

図 3.9.12 に FEM 解析モデルを示す。モデルはリング引張試験片形状とし、切欠き部底の半径を 0.5 mm としたものの、リガメント幅を 2 ケース（1 mm、3 mm）とした。

2) 物性値

物性値は、Zry4 の室温での値として、以下の数値を適用した。

ヤング率 (E)	100000 [MPa]
ポアソン比()	0.30 [-]
塑性変形	図 3.9.13 に示す室温式
降伏応力(σ_y)	648.9 [MPa] (図 3.9.13(2))
	降伏応力は、図 3.9.13(1) 関係式 ^[3.9.2] と弾性の応力-歪関係式の交点とした

異方性に関しては、影響の概略を検討するため、塑性異方性とし、弾性範囲については等方性材料を仮定した。

3) 塑性後の異方性（HILL のポテンシャル関数）

HILL のポテンシャル関数は、Mises 関数の単純な拡張であり、以下のように直交デカルト座標の応力成分で表すことができる。

$$f(\sigma) = \sqrt{F(\sigma_{22} - \sigma_{33})^2 + G(\sigma_{33} - \sigma_{11})^2 + H(\sigma_{11} - \sigma_{22})^2 + 2L\sigma_{23}^2 + 2M\sigma_{31}^2 + 2N\sigma_{12}^2} \quad \dots \text{式(4-1)}$$

ここで、F、G、H、L、M、N は異なる方向の材料試験により得た定数である。これらは、次のように定義される。

$$F = \frac{(\sigma^0)^2}{2} \left(\frac{1}{\bar{\sigma}_{22}^2} + \frac{1}{\bar{\sigma}_{33}^2} - \frac{1}{\bar{\sigma}_{11}^2} \right) \dots \text{式(4-2)}$$

$$G = \frac{(\sigma^0)^2}{2} \left(\frac{1}{\bar{\sigma}_{33}^2} + \frac{1}{\bar{\sigma}_{11}^2} - \frac{1}{\bar{\sigma}_{22}^2} \right) \dots \text{式(4-3)}$$

$$H = \frac{(\sigma^0)^2}{2} \left(\frac{1}{\bar{\sigma}_{11}^2} + \frac{1}{\bar{\sigma}_{22}^2} - \frac{1}{\bar{\sigma}_{33}^2} \right) \dots \text{式(4-4)}$$

$$L = \frac{3}{2} \left(\frac{\tau^0}{\bar{\sigma}_{23}} \right)^2 \dots \text{式(4-5)}$$

$$M = \frac{3}{2} \left(\frac{\tau^0}{\bar{\sigma}_{13}} \right)^2 \dots \text{式(4-6)}$$

$$N = \frac{3}{2} \left(\frac{\tau^0}{\bar{\sigma}_{12}} \right)^2 \dots \text{式(4-7)}$$

ここで、 $\bar{\sigma}_{ij}$ は σ_{ij} を唯一の非ゼロの応力成分として加えたときに測定された降伏応力の値である。 σ^0 は参照降伏応力であり、 $\tau^0 = \sigma^0 / \sqrt{3}$ である。

ABAQUS に入力する値は次式に示す降伏応力比、 $\frac{\bar{\sigma}_{11}}{\sigma^0}$ 、 $\frac{\bar{\sigma}_{22}}{\sigma^0}$ 、 $\frac{\bar{\sigma}_{33}}{\sigma^0}$ 、 $\frac{\bar{\sigma}_{12}}{\tau^0}$ 、 $\frac{\bar{\sigma}_{13}}{\tau^0}$ 、 $\frac{\bar{\sigma}_{23}}{\tau^0}$ であり、それぞれ、式(4-8~4-9)で表される。

$$\frac{\bar{\sigma}_{11}}{\sigma^0} = \sqrt{\frac{1}{G+H}}, \quad \frac{\bar{\sigma}_{22}}{\sigma^0} = \sqrt{\frac{1}{F+H}}, \quad \frac{\bar{\sigma}_{33}}{\sigma^0} = \sqrt{\frac{1}{F+G}} \dots \text{式(4-8)}$$

$$\frac{\bar{\sigma}_{12}}{\tau^0} = \sqrt{\frac{3}{2N}}, \quad \frac{\bar{\sigma}_{13}}{\tau^0} = \sqrt{\frac{3}{2M}}, \quad \frac{\bar{\sigma}_{23}}{\tau^0} = \sqrt{\frac{3}{2L}} \dots \text{式(4-9)}$$

塑性異方性として、本 FEM 解析では、板厚平面方向には等方で、板厚方向には変形(ひずみ)が 1/2 となる降伏応力比とした。

簡易モデル解析により決定された各降伏応力比は下表のとおりである。

表 3.9.1 . 塑性異方性を考慮した降伏応力比

$\frac{\bar{\sigma}_{11}}{\sigma^0}$	$\frac{\bar{\sigma}_{22}}{\sigma^0}$	$\frac{\bar{\sigma}_{33}}{\sigma^0}$	$\frac{\bar{\sigma}_{12}}{\tau^0}$	$\frac{\bar{\sigma}_{13}}{\tau^0}$	$\frac{\bar{\sigma}_{23}}{\tau^0}$
1.22474	1.0	1.0	1.6	1.6	1.0

注記) 材料座標系は円筒座標系を採用。上表中の応力の添え字 1 ~ 3 は、それぞれ、

1 : 板厚 (半径) 方向、2 : 周方向、3 : 円筒軸方向を示す。

4) 境界条件

1/8 対称モデルとし、境界条件を図 3.9.14 に示す。中子は、剛表面の条件を与え、試験片要素表面との面接触の条件を与える。また、試験片と中子のとの摩擦はないものとした。中子の寸法を図 3.9.14 に示す。

5) 荷重条件

実際のリング引張試験と同様に、中子を外側に強制移動させた (図 3.9.15)。解析では、中子は試験片内側頂点に接している状態から計算を開始した。

解析では中子移動量が 0.3mm になるまで RIKS 法 (弧長増分法) により漸増载荷させた。

6) 解析結果

解析ケースは以下の 4 ケースとした。

表 3.9.2 解析ケース

モデル	異方性
試験片 1	なし
	考慮
試験片 2	なし
	考慮

図 3.9.16 に図 3.9.15 に示した着眼要素位置での真歪の変形に伴う変化を試験片 1 および 2 について示す。切欠き付リング引張試験結果に示されたように、水素濃度の増加に伴う延性の低下は、ほぼ最大荷重以降で生じたため、図 3.9.16 には解析で得られた最大荷重発生に相当した変形量もあわせて示した。

同図に示された傾向より、以下の考察が可能と考えられる。

- ・ いずれのケースにおいても、異方性を考慮した場合の周方向歪は、等方材よりも小さいことが示され、異方性として肉厚方向への変形を抑制した場合、周方向変形が助長される結果とはならなかった。
- ・ 軸/径方向への変形についても、異方性として肉厚方向への変形を抑制した場合、等方材で生じる歪と同等程度以下であり、異方性によりある方向の歪が増大し、破損を助長するとの兆候は認められなかった。
- ・ 最大荷重発生時点での (着目要素の) 歪量は、リガメント幅が大きいケースでより大きく、破損の起点となる可能性が高いと考えられた。

本 FEM 解析においては、Zr 系材料特有の塑性異方性を考慮したが、明確に周方向変形に対して破損を助長するような解析結果は示されなかった。影響の概略を確認するため、塑性異方性のみを考慮したが、実態に併せ弾性変形における弾性率の異方性や臨界せん断応力の差等を考慮しなければならない可能性も否定できない。

3.9.4 その場観察試験の準備 (H25)

3.9.2 項で述べた光学顕微鏡用引張試験装置を用いて、その場観察試験の準備を行った。

(1) 観察試料の準備

形状

被覆管への適用を図るために試料形状はリング引張試験に準ずるものが好ましいと考えられる。また、既存の軽水炉用被覆管に使用される Zr 系材料被覆管は、歴史的な改良を経て水素化物が周方向に析出するような製造方法が採用されている。この傾向は、本事業での腐食試験（実機冷却材模擬水）や水素化試験での被覆管金相観察結果からも確認できる。このような水素化物を観察するには、被覆管の横断面を観察面とすることが望ましい。

以上の前提条件より、その場観察試験は、リング引張試験としてリング試験片の横断面を引張試験中にその場観察することが妥当と判断できる。更に、多軸応力機械試験手法として、切欠き付引張試験を検討対象としたことを踏まえ、引張試験ゲージ部に切欠きを付与した試験片とすることが、その場観察試験における微視的な観察結果と多軸応力機械試験でのマクロな結果を比較評価する上で、妥当と判断される。

一方、光学顕微鏡用引張試験装置の仕様は下記に示すとおりである。

- ・試験温度：室温～350
- ・引張荷重：～200N
- ・引張試験片形状：幅7mm以下×厚さ2mm以下×長さ26mm以上

荷重上限値は試料の大きさを制限する。Zr 系材料の強度（室温での引張強さ～100MN/m²）を考慮した場合、リング引張試験での試験部断面は、0.2 mm²（リング試験片片側とすると 0.1 mm²）程度以下とする必要があることとなる。

被覆管の肉厚 0.6 mm 程度に対し、ある程度の切欠きを付与することを想定すると、軸方向（リング試験片厚さ方向）には 0.5 mm 程度とする必要があると考えられる。

試験片製作方法の検討

上記検討結果より、

- ・試験片形状：ゲージ部に切欠きを有する被覆管リング引張試験片形状
- ・その場観察試験中に横断面の水素化物が確認できること

が、その場観察試験用試験片への要求事項である。

そこで、以下の手順で試験片を製作することとした。

- ・受取材または水素化試験材より、1 mm厚さ（軸方向高さ）のリング片を採取。
- ・任意の位置を引張試験でのゲージ部とし、断面積減少のための薄肉化加工（軸方向）を施す。
- ・軸方向薄肉化した位置に対応した位置で肉厚方向に切欠き加工を施す。
- ・金相観察用研磨/エッチング処理後に除去可能な樹脂を用いて、観察面の水素化物を観察できるよう樹脂埋め込みを行い、研磨/エッチングを施した後に、樹脂除去を実施。
- ・その場観察試験（引張試験）中の寸法変化追跡用として、所定の間隔でマイクロビッカース硬さ試験用の圧痕を打痕（25g × 5sec）し、圧痕間の間隔を測定。

上記の要領にて作製したその場観察試験用リング試験片とその延伸ステージへの装着状態を図 3.9.17 に示す。

(2) 試験

試行試験

上記(1) にて製作したその場観察試験用リング試験片を用いて、光学顕微鏡用引張試験装置での引張試験の実施を試みた。

材料、試験条件は以下のとおりである。

- ・試験片形状：ゲージ部に切欠きを有する被覆管リング引張試験片形状
- ・材料：Zr-2.5Nb 被覆管、約 400ppm 水素化材
- ・引張試験温度：室温
- ・引張速度：0.05 mm/min（静的引張試験レベル）

（ただし、所定変位毎に引張動作を一旦ホールドし、横断面金相観察写真を撮影し、撮影後、引張を再開する方法で実施）

図 3.9.18 に引張試験中の試験片横断面の顕微鏡観察写真を示す。変形量は、延伸ステージでの固定治具の移動量（クロスヘッド移動量）で示した。試験では、切欠き部が引張方向に対して 90° 方向となる位置でリング引張試験片を固定した。

図 3.9.18 に示された最大変位は 0.62 mm であるが、この変形量で荷重が上限値（200N）となり、装置安全系により引張動作は停止し、試験が終了した。観察写真より、0.3 mm 程度より、内側の切欠き部を中心に、変形に伴うすべり帯に対応したような黒色部が広がって行く様子が観察された。

図 3.9.19 に 0.62 mm 終了時点での金相観察（拡大）を示すが、水素化材の引張試験で確認できることが期待された水素化物内での割れ等は、この変形量では明確には認められなかった。

試験

試行試験結果を受け、装置荷重上限内で試験片の破断まで確認できるように、径方向の切欠き部深さを深くした試験片を製作し、その場観察試験を実施した。

材料、試験条件は以下のとおりである。

- ・材料：Zry4 被覆管、受取材および約 400ppm 水素化材
- ・試験温度：室温
- ・引張速度：0.05 mm/min

(所定変位毎に引張動作を一旦ホールドし、横断面金相観察写真を撮影。撮影後、引張を再開)

図 3.9.20 に作製した試験片の切欠き部拡大写真を示す。試行試験結果を受け、また、切欠き部深さを深くしたことから、マイクロピッカーズ圧痕間の間隔を 100 μm と狭くした。

図 3.9.21 にその場観察試験における荷重-変位曲線、および、横断面金相観察写真を記録した時点の荷重-変位曲線との関係を示す。試験片形状が特殊なため、断面積は統一されておらず、荷重は参考値であるものの、今回 Zry4 被覆管を用いて実施した試験では、受取材に比べ水素化材の伸びは小さい結果となった。図 3.9.22 は、金相写真上での圧痕間の距離の測定結果をもとに、その場観察試験中の圧痕間の相対位置の変化(変位に相当)を示したものである。ばらつきが大きいことから、十分な精度は得られていないと判断されるが、クロスヘッドの移動量の増加に伴い、周方向にはある程度単調に変形量が増加するが、径方向には破断直前まで変形しにくい傾向がうかがわれる。

図 3.9.23 にその場観察で得られた Zry4 被覆管受取材、および水素化材の変形に伴う金相観察結果を示す。切欠き等の加工形状のばらつきが大きいと、精度の高い比較は困難であるが、0.47 mm 程度の変形までは、受取材と水素化材の間に大きな違いは認められない。その後、水素化材では破断直前の 0.52 mm の時点で試行試験において確認されたと同様な変形に伴うすべり帯のような黒色部が急激に広がり破断に至ったことが分かる。受取材では、0.56 mm 程度から、かなり広い範囲に同様な黒色部が観察されるが、破断は 0.65 mm で発生しており、黒色部の広がり以降もかなりの変形が可能であったことが分かる。

本試験では、水素化物等、破損を助長すると考えられる領域について、マトリックスの変形に伴う形態の変化を確認することが期待された。図 3.9.24 は、Zry4 被覆管水素化材のその場観察試験後に倍率を上げて撮影した金相観察写真であるが、破断部近傍に黒色部が広がっていることもあり、水素化物の割れ等の明確な兆候は認められなかった。しかし、図 3.9.25 に示すように、その場観察面から僅かに内部に入った領域(図 3.9.25 では表面から約 0.1 mm 程度と推定)では、明らかな水素化物内のポア状破壊起点が確認された。図 3.9.24 と図 3.9.25 の観察結果に相違が生じた原因は、現

状明らかではないものの、水素化物の割れ挙動が、表面と内部で異なることも考えられ、今後の観察では考慮が必要と思われる結果となった。

3.9.5 試験体系および試験片形状の検討 (H26)

(1) 多軸応力機械試験

試験体系

3.9.3項および3.9.4項で述べたH25年度の検討においては、燃料被覆管から採取したリング状試験片に多軸応力場を形成させるための切欠きを設けた試験片を用いた引張試験体系を適用した。図3.9.26に示すように、燃料被覆管と燃料ペレットの機械的相互作用(PCMI: Pellet Clad Mechanical Interaction)が生じる場合には、周方向を主応力として軸方向にも応力が生じる多軸応力状態が形成されると考えられており、また、多軸応力状態の変化により材料の破損限界は影響を受けることが知られている^[3.9.3]。H25年度に用いた試験体系は、周方向機械試験(リング引張試験)をベースとして、切欠き効果による軸方向応力を加えることを図ったものであり、上記のようなPCMI時の多軸応力状態模擬の観点から妥当なアプローチと判断された。H26年度に検討した試験においても、試験体系の考え方は基本的にH25年度と同じであるが、ベースとする周方向機械試験手法の見直しを行った。

リング引張試験においては、半円状の中子を挿入して一方向に引張荷重を負荷するという構造上、曲率を持つ部分が直線的に変形することに起因する曲げモーメントの発生および中子と試験片の接触による摩擦力の発生を避けることができない。従来、試験片形状や潤滑剤の検討により試験手法の改良が進められてきたが^[3.9.4]、現状、根本的な解決には至っていない。そこで、H26年度の検討においては、周方向機械試験として最近提案された手法の一つとして、ISATP(Internal Slotted-Arc specimens with parallel gauge section)と呼ばれる形状の試験片形状をベースとした引張試験^[3.9.5]をリング引張試験に代えて適用することとした。本試験体系の模式図を図3.9.27に、実際の固定治具に試料をセットした状況を図3.9.28に示す。本試験体系は、半円状に加工した被覆管を掴み治具で固定し、周方向中央領域に平行部を設けることにより、引張方向に対して曲げが生じることが無く、かつ、平行部に中子の接触が無いいため摩擦の影響を考慮する必要が無い体系となっている。本試験体系をベースとして、平行部中央領域の軸方向に切欠きを設けることにより、周方向応力場に軸方向応力を加えることを図ることとした。

試験片形状

供試材には Zry4 被覆管を用い、試料形状を構成する各形状パラメータ(切欠き半径(R)、切欠き深さ(D)およびリガメント幅(W))が試料延性に及ぼす影響を確認することとした。

各形状パラメータの影響確認のための寸法設定は以下の通りとした。

- ・切欠き半径影響確認試験

R=0、0.05、0.1、0.2、0.3mm (D=0.25mm (固定)、W=0.3mm (固定))

- ・切欠き深さ影響確認試験

D=0.25、0.50、0.75mm (R=0.05mm (固定)、W=0.3mm (固定))

- ・リガメント幅影響確認試験

W=0.3、0.5、0.6mm (R=0.05mm (固定)、D=0.75mm (固定))

図 3.9.29～図 3.9.31 に上記の各影響確認試験において用いた試験片の試験前外観状況の例を示す。

また、本年度は、上記の切欠き半径影響確認試験において、試験片に形成されるひずみ分布を把握することを目的として、図 3.9.32 に示すように、一部の試験片 (R=0.05、0.1、0.2mm) について、リガメント中央の約 0.2mm×0.2mm の領域に、FIB を用いたタンクステンデポジットによるマーカー加工を施した。同図に示すように、引張試験中に連続写真を撮影することにより当該マーカーの位置座標の変化を追跡し、変形に伴う周 (x 方向) および軸 (y 方向) のひずみを求めた。

試験条件

引張試験の条件は以下の通りとした。

- ・被覆管種：Zry4 (受取材)
- ・試験温度：室温
- ・引張速度： 1×10^{-3} mm/sec (静的引張試験レベル)
- ・試験形状：上記 項に示した通り。

また、水素吸収材 (水素濃度レベル：100、400、800ppm 目標材) を用いて、切欠き無の試験片と切欠き有 (R=0.05mm、D=0.75mm、W=0.3mm) の試験片を製作し、水素吸収材における切欠き効果を確認する試験を併せて実施した。

結果および考察

1) 切欠き半径影響確認試験

図 3.9.33 に試験後の外観状況を示す。いずれの試験片においてもクラックは引張方向に対してせん断的に形成されており、延性破壊に認められる特徴が確認された。本試験で得られた荷重-変位線図の例を図 3.9.34 に示す。同図に示すように、最大荷重以降の塑性変形量が切欠き半径が小さくなるに従って低下する傾向であることが分かる。H24-25 年度の試験と同様に、延性の指標として各試験片の断面減少率を導出し、切欠き半径との関係をプロットした結果を図 3.9.35 に示す。同図より、切欠き半径が小さくなるに従って断面減少率の低下が認められ、本試験で設定した切欠き半径範囲において、多軸応力度合いの変化が生じたことに起因する延性低下が生じたことが

示唆された。

図 3.9.36 に、その場観察により、試験片中に配列したタングステンデポジットによるマーカの移動量から求めた破断直前のひずみ分布測定結果を示す。同図より、以下のことが確認できる。

- ・周方向ひずみについては、周方向中央領域（マーカ配列において B 列～D 列）において最大値が生じており、切欠き半径が小さくなるほど最大値が低下し、ひずみ分布が小さくなる傾向となっている。
- ・軸方向ひずみについては、B～D 列において最小値が生じる傾向であり、切欠きが小さくなるほど最小値が増大し、上記の周方向ひずみと同様に、ひずみ分布が小さくなる傾向となっている。

以上の結果は、切欠き半径が小さくなるに従って、局所変形（ネッキング）量が小さくなることを示しており、軸方向への収縮に抵抗するための引張応力が増大していることを意味している。

本結果より、周方向機械試験片の軸方向に設けた切欠き半径を変化させることにより、軸方向応力成分を変化させることが可能であることが確認された。

2) 切欠き深さ影響確認試験

図 3.9.37 に試験後の外観状況を示す。クラックおよび破断面の方向等の破壊形態については、切欠き深さの変化の影響は明確には認められない。図 3.9.38 に断面減少率と切欠き深さの関係を示す。同図に示すように、本試験体系においては、切欠き深さが 0.25mm から 0.5mm になると延性は低下する傾向であったが、0.5mm から 0.75mm では延性は殆ど変化しない傾向を示した。

本試験結果により、ある範囲で切欠き深さを変化させることによっても、先述の切欠き半径と同様、試験片延性の変化が生じることが示唆された。

3) リガメント幅影響確認試験

図 3.9.39 に試験後の外観状況を示す。リガメント幅が 0.3mm の試験片では、上述した切欠き半径影響確認試験および切欠き深さ影響確認試験における試験片と同様の破壊形態を示したが、リガメント幅が 0.5mm および 0.6mm の試験片では、破面の方向が肉厚方向に対して傾斜した方向に変化した。断面減少率とリガメント幅の関係を図 3.9.40 に示す。同図に示すように、本試験で設定した寸法範囲内においては、リガメント幅が増大する程、延性は低下する傾向であることが分かる。図 3.9.40 においては、その場観察によって確認された軸方向の収縮ひずみが 1%以下の領域の初期リガメント幅に対する割合を平面ひずみ割合と定義してプロットした。リガメント幅が 0.3mm から 0.5mm にかけて、平面ひずみ割合が大きく増大する傾向となっており、多軸応力度合いを増大させるためには、リガメント幅を増大させることも有効であることが示唆される。

4) 水素吸収材における切欠き効果の確認

水素吸収材（水素濃度レベル：100、400、800ppm 目標材）を用いて、切欠き無の試験片と切欠き有（R=0.05mm、D=0.75mm、W=0.3mm）の試験片を製作し、水素吸収材における切欠き効果を確認する試験を実施した。

図 3.9.41 に断面減少率と試料中水素濃度の関係を示す。同図より、本試験での水素濃度範囲においては、切欠き無の場合に比べて、切欠き試験片では、延性の水素濃度依存性が小さい傾向であった。これは、切欠き試験片の場合においては、多軸応力場の形成によって、母材の延性が水素化物の有無に関わらず低下していることから、水素化物の形成による延性低下の影響が相対的に低下したことが要因として推察される。一方で、図 3.9.42 に試験後の横断面金相観察写真を示すが、切欠き無に比べると、切欠き試験片においては、破断部近傍に比較的大きなポイドが形成されており、また、破断面において、水素化物に沿ったクラック進展の傾向がより明確に認められる。本結果は多軸応力場において、水素化物がより破壊し易い傾向であることを示唆している。多軸応力場においては、単軸応力場に比べて水素脆化が顕著になるとの報告例^[3.9.6]もあり、今後、多軸応力場と水素化物の関係について、更なるデータの拡充による確認が望ましいと考えられる。

(2)有限要素解析

解析モデル

本年度は、上記（1）項 で示した切欠き半径影響確認試験で用いた試験片（R=0、0.05、0.1、0.2mm）を対象として解析モデルを作製した。使用コードは、ABAQUSver.6.11-1を使用した。材料非線形、幾何学的非線形を考慮した静的FEM解析とし、使用要素は3次元要素（ソリッド要素）、引張試験における固定治具は剛体とし、試験片とは面接触を考慮した。図 3.9.43 に解析モデルを示す。

物性値

物性値は、Zry4の室温での値として、以下の数値を適用した。

ヤング率 (E)	100000 [MPa]
ポアソン比()	0.30 [-]
塑性変形	図 3.9.10 に示す室温式
降伏応力(σ_y)	648.9 [MPa] (図 3.9.13)
	降伏応力は、図 3.9.13(1)関係式[3.9.2]と弾性の応力-歪関係式の交点とした

なお、昨年度の解析においては、HILL のポテンシャル関数を用いて塑性後の異方性を考慮したが、等方性と比較して大きな相違は認められなかったため、本年度は等方性材を仮定して解析を行った。

境界条件

1/4 対称モデルとし、境界条件を図 3.9.44 に示す。中子（固定治具）は、剛表面の条件を与え、試験片要素表面との面接触の条件を与える。また、試験片と中子のとの摩擦はないものとした。中子の寸法を図 3.9.44 に示す。

荷重条件

実際の試験と同様に、中子（固定治具）を外側に強制移動させた（図 3.9.45）。解析では中子移動量が 0.2mm になるまで RIKS 法（弧長増分法）により漸増载荷させた。

結果および考察

H26 年度においては、先述の切欠き半径影響確認試験に対応する有限要素解析を実施し、試験片に形成される応力場（軸/周比）の評価を行った。試験片の変形が進行してネッキングが進行すると、応力状態の変化が大きく、切欠きの幾何形状に対応する応力場を精度良く評価することが困難である。したがって、本解析では、ネッキングが生じる前の最大荷重時における応力場を評価することとした。

図 3.9.46 に応力分布の例として、切欠き半径 0.05mm の試験片における最大荷重時の周方向および軸方向応力のコンター図を示す。同図に示すように、切欠き部以外の領域においてやや応力分布があるものの、着目部である切欠き部においては、周方向および軸方向にも応力がほぼ均一に発生していることが分かる。本解析により導出されたひずみを試験データと比較した結果を図 3.9.47 に示す。なお、本比較はリガメント中央位置（試験において 5 行×5 列配列したマーカーの中央マーカーに対応する位置）で行った。試験片によって、若干解析と試験の相違が認められるが、絶対値としての相違は小さいものであり、試験におけるひずみ発生状況を概ね模擬しているものと判断される。

本解析により評価された多軸応力度合いとして軸/周の応力比を図 3.9.48 に示す。また、本解析により導出された軸/周の応力比とひずみ比の関係を、図 3.9.26 に示した既存の相関ライン[3.9.3]の上にプロットした結果を図 3.9.49 に示す。同図に示すように、本試験で実施した切欠き半径影響確認試験における応力比は、約 0（切欠き無：単軸引張）～約 0.35（切欠き半径 0.05mm）となると評価された。

一方、本年度実施した切欠き深さ影響確認試験およびリガメント幅影響確認試験では、更に延性が低下して平面ひずみの発生が認められた試験片形状が確認された。平面ひずみが発生した試験片では軸/周応力比が約 0.5 に近い状態に達しているものと推察される。

3.9.6 試験手法の確立および適用 (H27)

H26 年度までの検討により、切欠き加工を施した試料引張試験により、軸/周応力比として約 0 ~ 約 0.5 の間で多軸応力度合いを変化させることを可能とする試験体系および試験片形状の見通しを得た。

H27 年度においては、H26 年度までの結果を踏まえて、多軸応力度合いを高めた平面ひずみ試験片の形状を検討し、一般的な引張試験装置を用いた試験体系へ発展させることにより、多軸応力機械試験としての試験手法の確立を図った。また、当該試験手法を、水素化材等の劣化模擬材に適用し、機械特性を評価した。

(1) 多軸応力機械試験

試験体系

本試験の試験体系の模式図を図 3.9.50 に、固定治具に試料をセットした状況を図 3.9.51 に示す。基本的な概念は H26 年度に用いた体系と同じであり、試験片の曲げおよび中子による摩擦の影響を除外し、周方向に均一な応力負荷が可能な体系である。H26 年度の体系は光学顕微鏡用引張ステージ内の寸法制約のため、試料形状は半円状としていたが、H27 年度においては、一般的な引張試験装置を用いたため、試験片の形状を C リング状とし、掴み治具と試験片の接触面積を増大させた。これにより、荷重負荷時の試験片の固定状態が強化され、後述の平面ひずみ試験片を用いた試験等、より高い荷重が生じる条件に対応することを可能とした。

供試材

H26 年度に実施した試験片形状の各パラメータ (切欠き半径(R)、切欠き深さ(D)およびリガメント幅(W)) の延性への影響確認試験の結果を図 3.9.52 に示す。なお、同図中のリガメント幅影響確認試験においては、H27 年度に別途追加した結果 (リガメント幅 (横軸) : 1 ~ 3mm) を含めてプロットした。本結果を踏まえ、以下の方針にて、試験片形状を選定した。

- ・切欠き効果により、できる限り多軸応力度合いを高めた試験片形状とする。
- ・多軸応力度合いが増大する程、試験片の延性は低下する傾向を示すことから、できるだけ低延性となる切欠き形状を選定することとした。
- ・切欠き半径 (R) については、小さい程延性は低下する傾向であった。ただし、現状の最小半径である $R=0.05\text{mm}$ では加工性の観点で長時間を要する等の難点があり、かつ、 $R=0.1\text{mm}$ と大きな差は無いと判断されることから、本試験では、 $R=0.1\text{mm}$ を適用することとした。
- ・切欠き深さ(D)については、 $D=0.5\text{mm}$ 程度までは延性が低下する傾向であったが、それ以上では延性には明確な変化が認められなかった。このことから、本試験では、 $D=0.5\text{mm}$ を適用することとした。
- ・リガメント幅(W)については、 $W=2.0\text{mm}$ 程度までは延性が低下する傾向であったが、

それ以上では延性には明確な変化が認められなかった。このことから、本試験では、D=2.0mm を適用することとした。

以上に示すように、多軸応力度合いを高めた試験片形状として、R=0.1mm、D=0.5mm および W=2.0mm を適用した。本形状の試験片は、後述するように、リガメント部分の広い範囲で平面ひずみ状態を示すことから、以降、平面ひずみ試験片と呼称する。なお、多軸応力度合いの比較のために、切欠き無し試験片（以降、単軸試験片）、および、やや高い多軸応力度合いとなることを念頭に R=0.2mm、D=0.25mm、W=0.5mm の試験片（以降、中間試験片と呼称）についても供試した。図 3.9.53 に本試験に用いた試験片の試験前外観状況の例を示す。

試験条件

引張試験の条件は以下の通りとした。

- ・被覆管種：Zry4
- ・試験温度：室温
- ・引張速度： 1×10^{-3} mm/sec（静的引張試験レベル）
- ・試料形状：上記 項に示した通り。

また、H26 年度においては、光学顕微鏡用引張ステージを用いたその場観察により、試験片に形成されるひずみ分布を詳細に把握することができた。本成果を踏まえ、H27 年度においても同様に、試験片中央領域に FIB を用いたタングステンデポジットによるマーカー加工を施した。図 3.9.54 に示すように、引張試験中にマイクロスコープを用いて動画撮影することにより当該マーカーの位置座標の変化を追跡し、取得された画像を用いて、変形に伴う周方向および軸方向のひずみを求めた。

上記試験について、受取材を用いて試験手法の確立を確認した後、材料劣化模擬材である水素化材（水素濃度レベル：600ppm 目標材(実績 598.1ppm)）および高温酸化材（1200 × 60sec）に対して本試験を適用し、受取材の挙動との比較を行った。なお、高温酸化材については、非常に脆化が進行しているため、その変形挙動は切欠き形状に依らない可能性が推察された。そのため、試料形状は中間試験片のみとして挙動を確認することとした。

結果および考察

引張試験により得られた荷重-変位線図を図 3.9.55 に、試験後の試験片外観状況を図 3.9.56 に示す。これらの結果より、以下が確認される。

- ・単軸試験片と中間試験片の比較から、切欠きの効果により、塑性変形量が減少する傾向であることが分かる。中間試験片の方が、最大荷重以降の荷重低下割合が大きいことから、切欠きの存在により、試験片幅方向のネッキングの進行が促進されたものと推察される。
- ・一方、平面ひずみ試験片においては、塑性変形量は小さいが、最大荷重以降の荷重低下割合が比較的小さい傾向であった。試験後外観における破面形成状況から、単

軸試験片および中間試験片では破面の向きは肉厚方向とほぼ一致していたが、平面ひずみ試験片では、破面の向きが肉厚方向に対して傾斜しており、変形モードの変化が認められる。平面ひずみ試験片の荷重-変位線図において、最大荷重以降の荷重低下割合が小さい傾向であったことは、試験片幅方向のネッキングが抑制され、肉厚方向の収縮変形が支配的な変形モードとなったことが要因として推察される。

次に、平面ひずみ試験片におけるひずみ分布測定結果を図 3.9.57 に示す。同図は試験片中にクラックが発生する直前の状態でのひずみ分布測定結果である。本結果より、リガメント幅中央の 70%程度の領域において、軸方向への収縮（ネッキング）が認められず、周方向への平面ひずみ場が形成されていることが確認された。また、クラックは平面ひずみ場内の端部で発生する傾向であり、発生直前の周方向ひずみ（以降、破壊ひずみと呼称）は 17%であった。同様に、中間試験片における測定結果を図 3.9.58 に示す。中間試験片では、周方向中央部でネッキングが進行し、30%程度の軸方向への収縮歪が認められた。クラックは軸方向中央部で発生し、破壊ひずみは 42%程度であった。

以上、本試験においては、リガメント部分の十分に広い範囲において、平面ひずみ場を形成させることに成功した。本試験の平面ひずみ試験片における軸/周応力比の FEM 解析による確認は後述するが、図 3.9.59 に示すように、一般に平面ひずみにおける軸/周応力比は 0.5 である^[3.9.3]。したがって、本試験手法により、軸/周応力比は 0（単軸引張）から 0.5（平面ひずみ引張）までの多軸応力引張試験が可能となった。本試験のひずみ分布測定結果により得られた破壊ひずみを、図 3.9.26 の従来データベース（ジルカロイ 2 板材使用）^[3.9.3]に対してプロットした結果を図 3.9.60 に示す。同図に示すように、本試験で得られた破壊ひずみは、従来データと概ね同様の傾向を示しており、多軸応力度の増大に伴って低下する傾向を示した。ただし、従来データに比べて、平面ひずみ条件における破壊ひずみがやや小さい傾向となった。本試験の供試材がジルカロイ 4 の管状試料であることを踏まえると、集合組織や熱処理条件の相違等が影響因子として推察されるが、要因の詳細については、データ数の拡充も含めて、更なる検討が必要である。

上記により確立した試験手法を用いて、水素化材(600ppm 目標材(実績 598.1ppm))および高温酸化材(1200 × 60sec)を用いて試験を実施し、従来データベース^[3.9.3]上にプロットした結果を図 3.9.61 に示す。同図に示すように、水素化材は同程度の水素量の従来データと概ね同様の傾向であり、多軸応力度合いが増大するに従い、引張方向への延性低下への影響が増大する傾向にある。なお、受取材と同様に、平面ひずみ条件でやや低い破壊ひずみとなる傾向であり、要因の詳細については、今後の更なる検討が必要である。高温酸化材では、バラツキが大きい結果となり、高温で形成される組織の不均一性が反映された結果と推察される。

(2)有限要素解析

解析モデル

H27 年度は、上記(1)項 で示した平面ひずみ試験および単軸試験片を対象として解析モデルを作製した。使用コードは、ABAQUSver.6.11-1を使用した。材料非線形、幾何学的非線形を考慮した静的 FEM 解析とし、使用要素は 3 次元要素(ソリッド要素)、引張試験における 固定治具は剛体とし、試験片とは面接触を考慮した。図 3.9.62 ~ 図 3.9.63 に解析モデルを示す。

物性値

物性値は、Zry4 の室温での値として、以下の数値を適用した。

ヤング率 (E)	100000 [MPa]
ポアソン比()	0.30 [-]
塑性変形	図 3.9.10 に示す室温式
降伏応力(σ_y)	648.9 [MPa] (図 3.9.13)

降伏応力は、図 3.9.13(1)関係式^[3.9.2]と弾性の応力-歪関係式の交点とした

なお、H27 年度は H26 年度と同じく、等方性材を仮定して解析を行った。

境界条件

1/4 対称モデルとし、対象面を拘束した。

荷重条件

端面全接点に引張方向強制変位を与えた。解析では中子移動量が 0.2mm になるまで RIKS 法(弧長増分法)により漸増载荷させた。

結果および考察

H26 年度と同様に、H27 年度においても、最大荷重時点までの範囲を対象として、応力状態の評価を行った。

図 3.9.64 に最大荷重時の周方向および軸方向の応力分布のコンター図を示す。同図に示すように、単軸試験片では、周方向の単軸応力状態となっており、軸方向応力は圧縮応力のみが発生しているが、一方で、平面ひずみ試験片では、軸方向にも引張応力が発生しており、多軸引張状態であることが確認できる。ここで、試験においてクラックが発生した位置に対応する領域において、それぞれの試験片の軸/周応力比およびひずみ比を導出し、既存データの相関ライン上にプロットした結果を図 3.9.65 に示す。同図には、塑性ひずみ発生時から最大荷重時までの間の単軸試験片および平面ひずみ試験片の解析結果からの導出結果を示している。同図に示すように、いずれの試験片につい

ても、既存の相関ラインと同程度の相関となる傾向であり、平面ひずみ試験片については、軸/周応力が約 0.5 となることが確認された。

3.9.7 まとめ

多軸応力試験として、予備検討を踏まえ、切欠き付試験片を用いた引張試験を検討し、試験手法を確立した。本手法の引張体系は、曲げおよび摩擦の影響を除外した体系であり、試験片形状を調整することにより、単軸引張（軸/周応力比約 0）から平面ひずみ引張（軸/周応力比約 0.5）となる試験が可能である。

また、本試験手法を水素化材および高温酸化材に適用して、多軸応力下における延性の評価を行った。水素化材については、受取材と同様に、従来知見の傾向と概ね一致していた。今後、更なるデータ拡充により、得られた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して挙げられる。

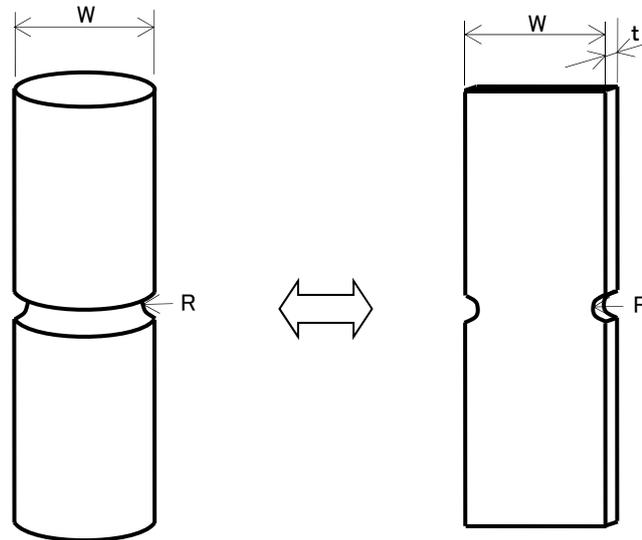
3.9.8 参考文献

- [3.9.1] （例えば）桑村仁ら，“三軸応力状態における構造用鋼材の延性き裂発生条件”，日本建築学会構造系論文集，477，pp.129-135，1995.
- [3.9.2] T.M.Link, et al., Nucl. Eng. Des. 186, p379 (1998).
- [3.9.3] J. Desquines, et al., J. Nucl. Mater. 412, p250 (2011).
- [3.9.4] K.Kitano, et al., JAERI-Rsearch 2001-011.
- [3.9.5] S.K.Yagnik, et al., ASTM STP 1543, p1077 (2015).
- [3.9.6] F.Yuchang, et al., Metallurgical Trans. A, Vol16-A, p675 (1985).

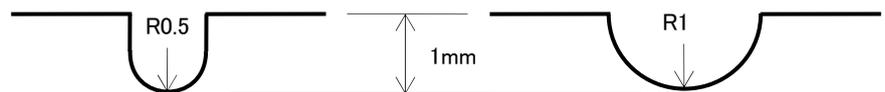


図 3.9.1 光学顕微鏡用引張試験装置の外観状況

同一の Zry4 丸棒（再結晶焼鈍材）より加工

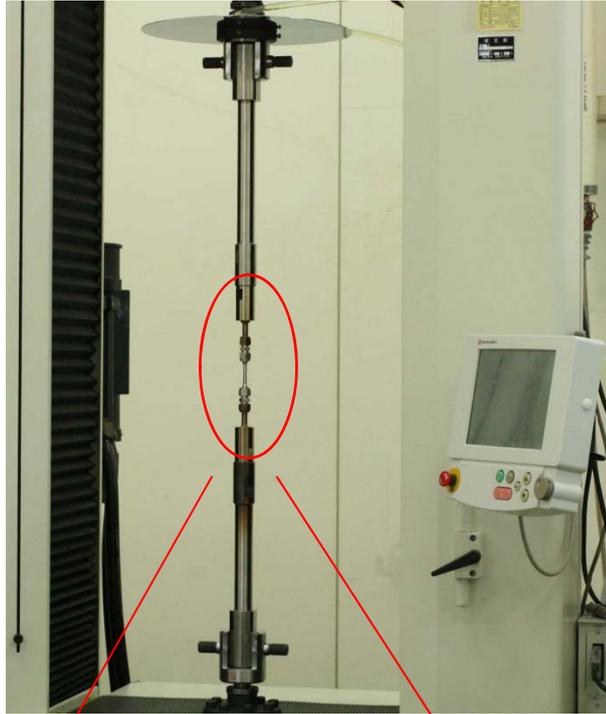


形状： W （外径/板幅） = 6mm
 t （板肉厚） = 1mm
 R （溝/ノッチ先端部半径）：2種類 0.5mm、1mm（下図参照）
平行部長さ = 25 mm



比較参照用：丸棒では 4 mm 径、板材では 4 mm 幅（同一肉厚）の通常試験片
（切欠部底位置での外径、または板幅に相当）

図 3.9.2 切欠付引張試験片



Zry4 丸棒



Zry4 丸棒から加工した板材

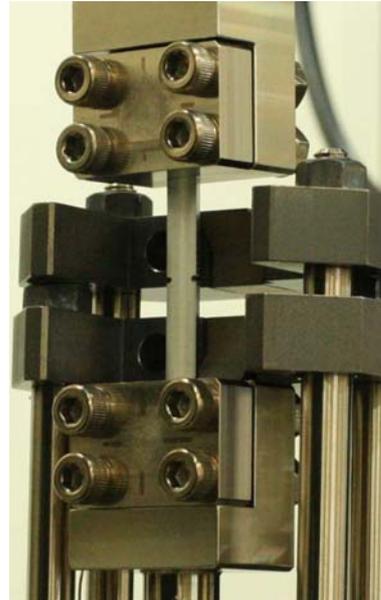


図 3.9.3 切欠付引張試験片の引張試験機への装着状況

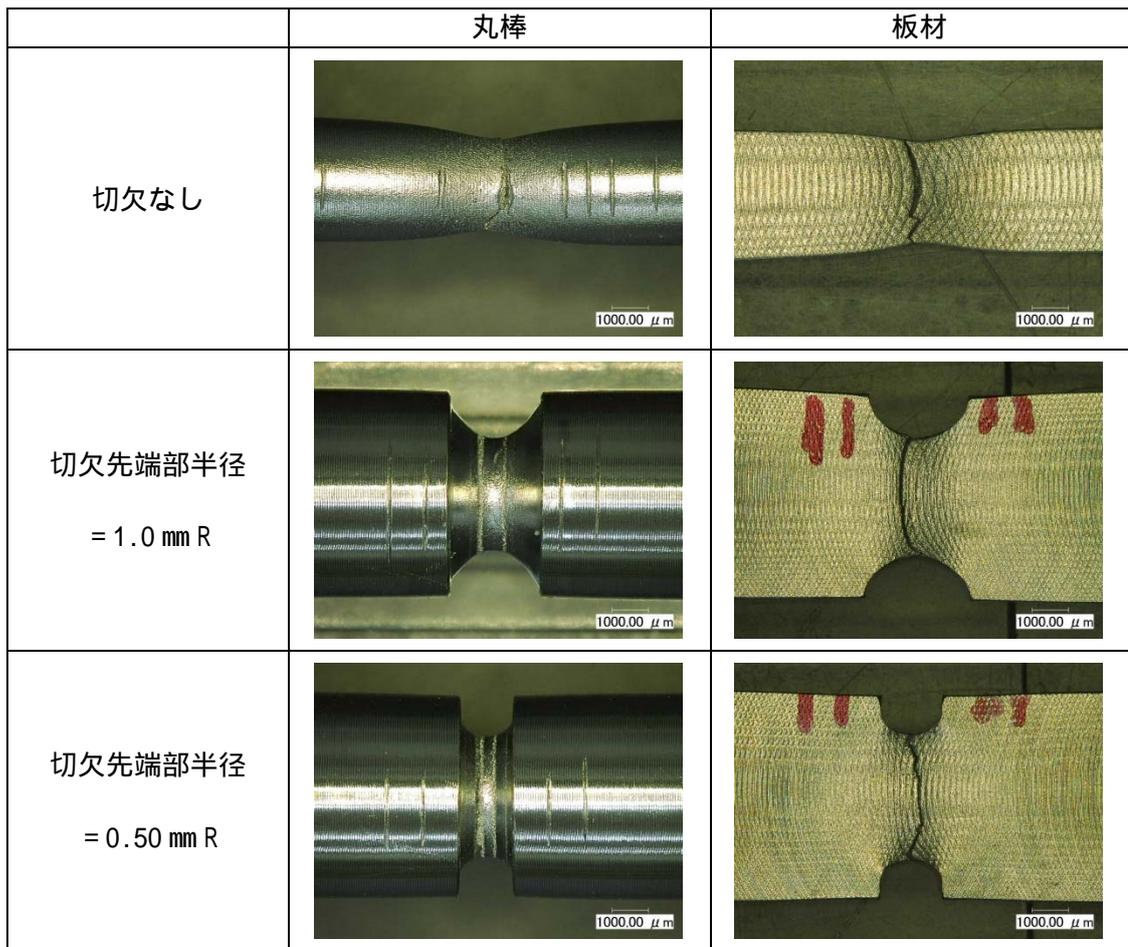


図 3.9.4 切欠付引張試験片の引張試験後、切欠部（または破断部）状況

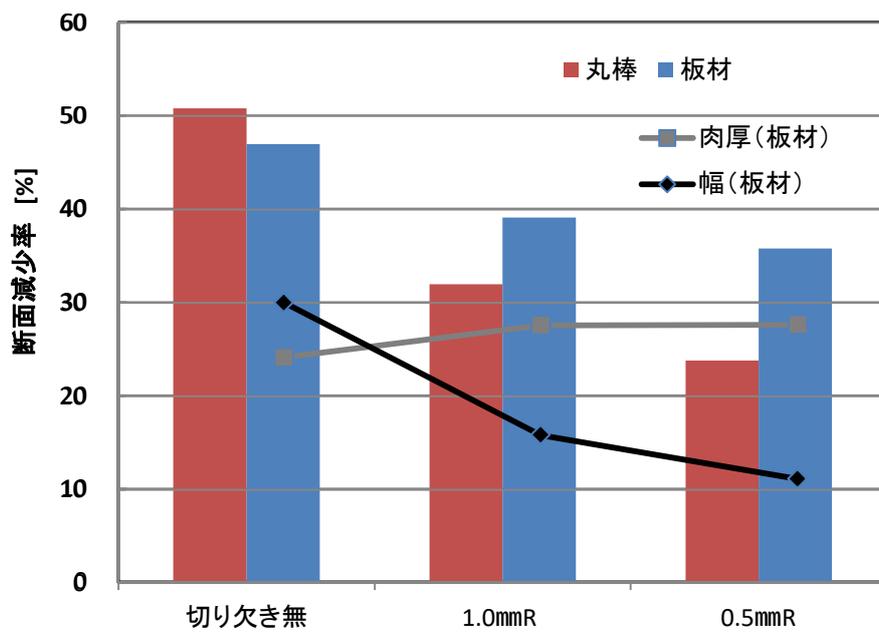
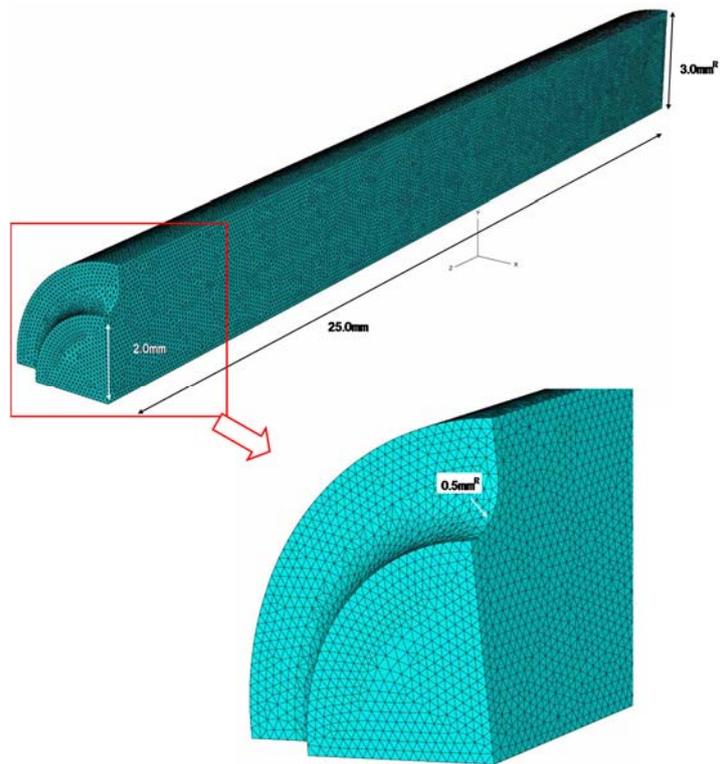
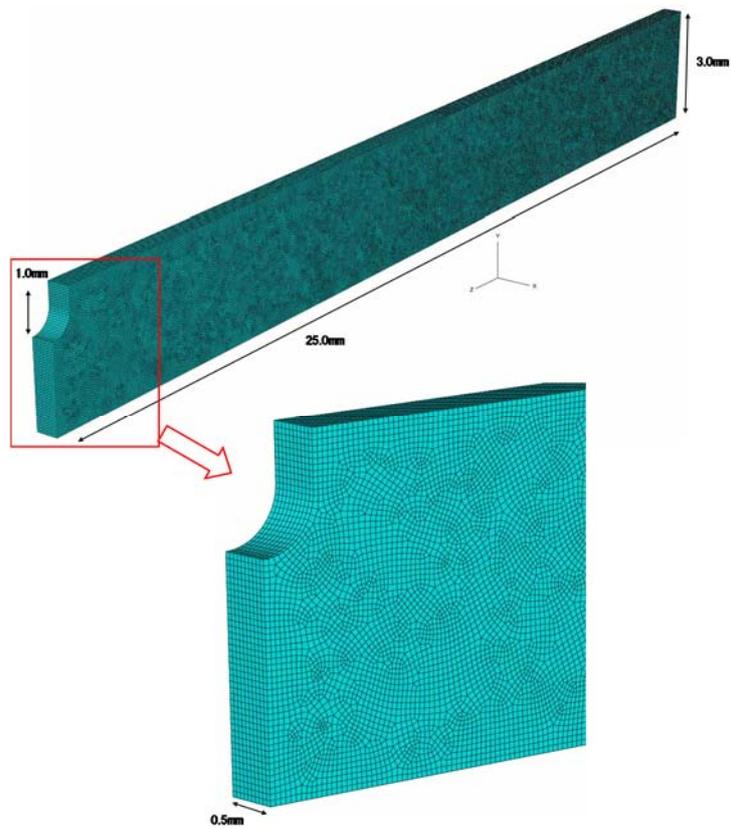


図 3.9.5 切欠付引張試験片の破断部における断面減少率測定結果

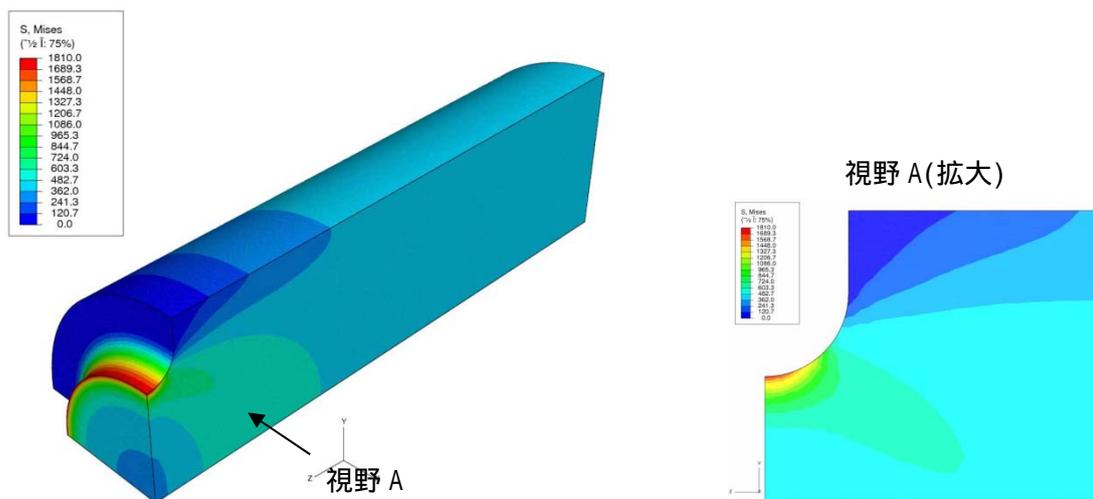


(1) 切欠付丸棒試験片の FEM 解析モデル(先端部半径=0.5mm)

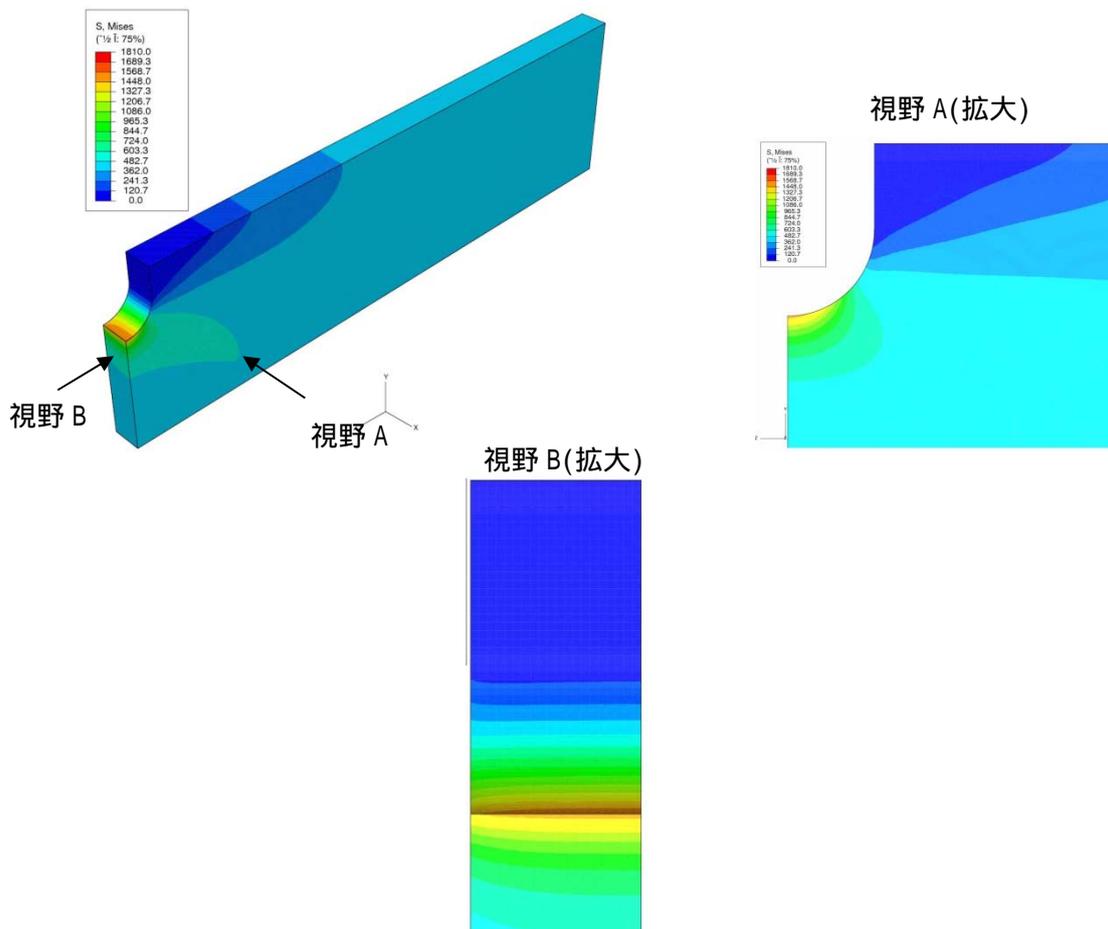


(2) 切欠付板材試験片の FEM 解析モデル(先端部半径 0.5mm)

図 3.9.6 FEM 解析モデル

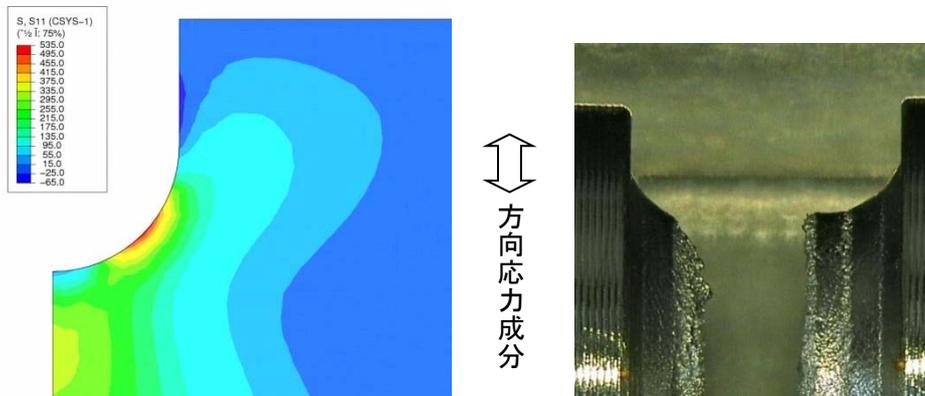


(1) 切欠付丸棒試験片 (先端部半径=0.5mm)

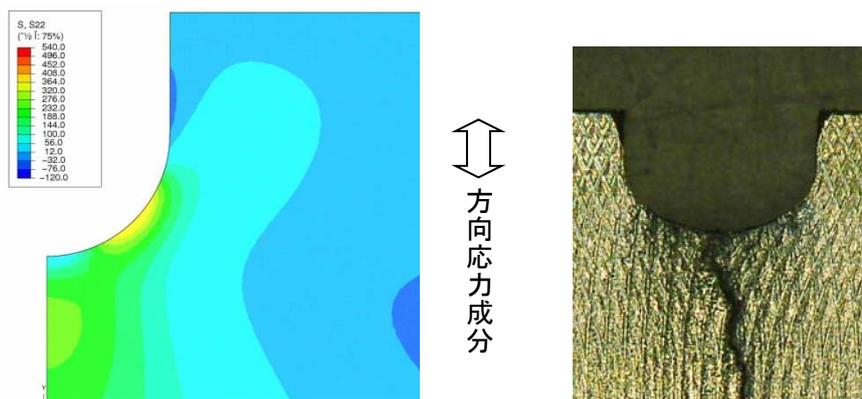


(2) 切欠付板材試験片 (先端部半径 0.5mm)

図 3.9.7 FEM 解析結果 (Mises 相当応力の分布)



(1) 切欠付丸棒試験片 (先端部半径=0.5mm)



(2) 切欠付板材試験片 (先端部半径 0.5mm)

図 3.9.8 FEM 解析による径方向 (丸棒) または板幅方向 (板材) の応力成分分布と試験片破断状況の比較

	リガメント部 幅 1 mm	リガメント部 幅 2 mm	リガメント部 幅 3 mm
切欠き部底 半径 0.25 mm			
切欠き部底 半径 0.5 mm			
切欠き部底 半径 1 mm			
切欠き部底 半径 2 mm			

注記) 切欠き部にはさまれた部分をリガメントと称することとする。

図 3.9.9 切欠き付リング引張試験片 (Zry4 受取材)

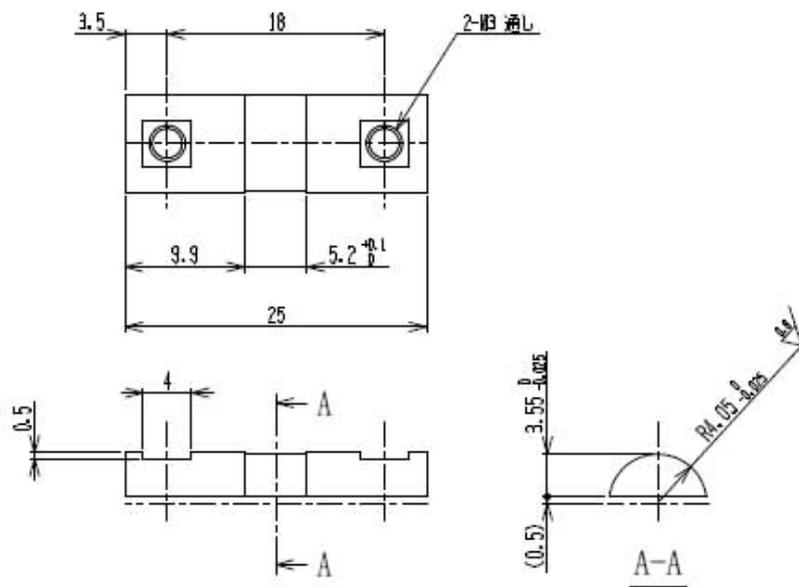
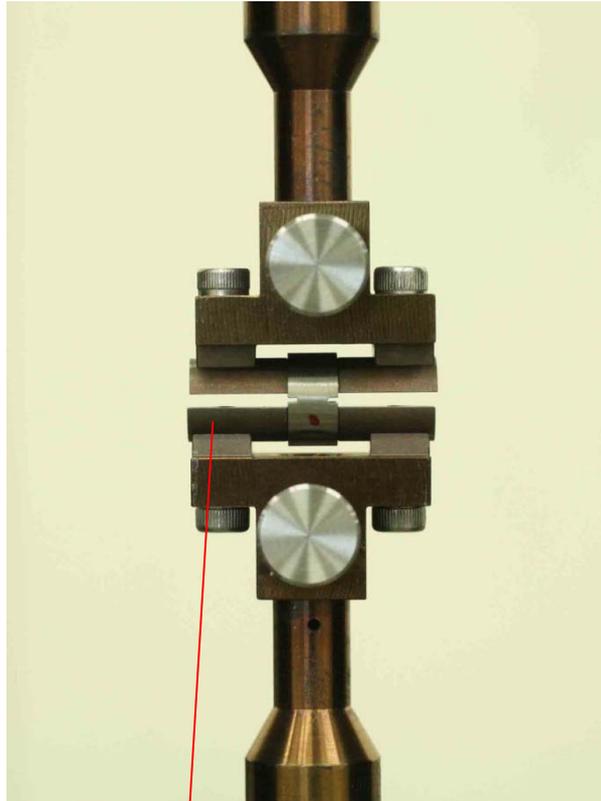


図 3.9.10 切欠付リング引張試験片の引張試験機への装着状況と引張用固定治具

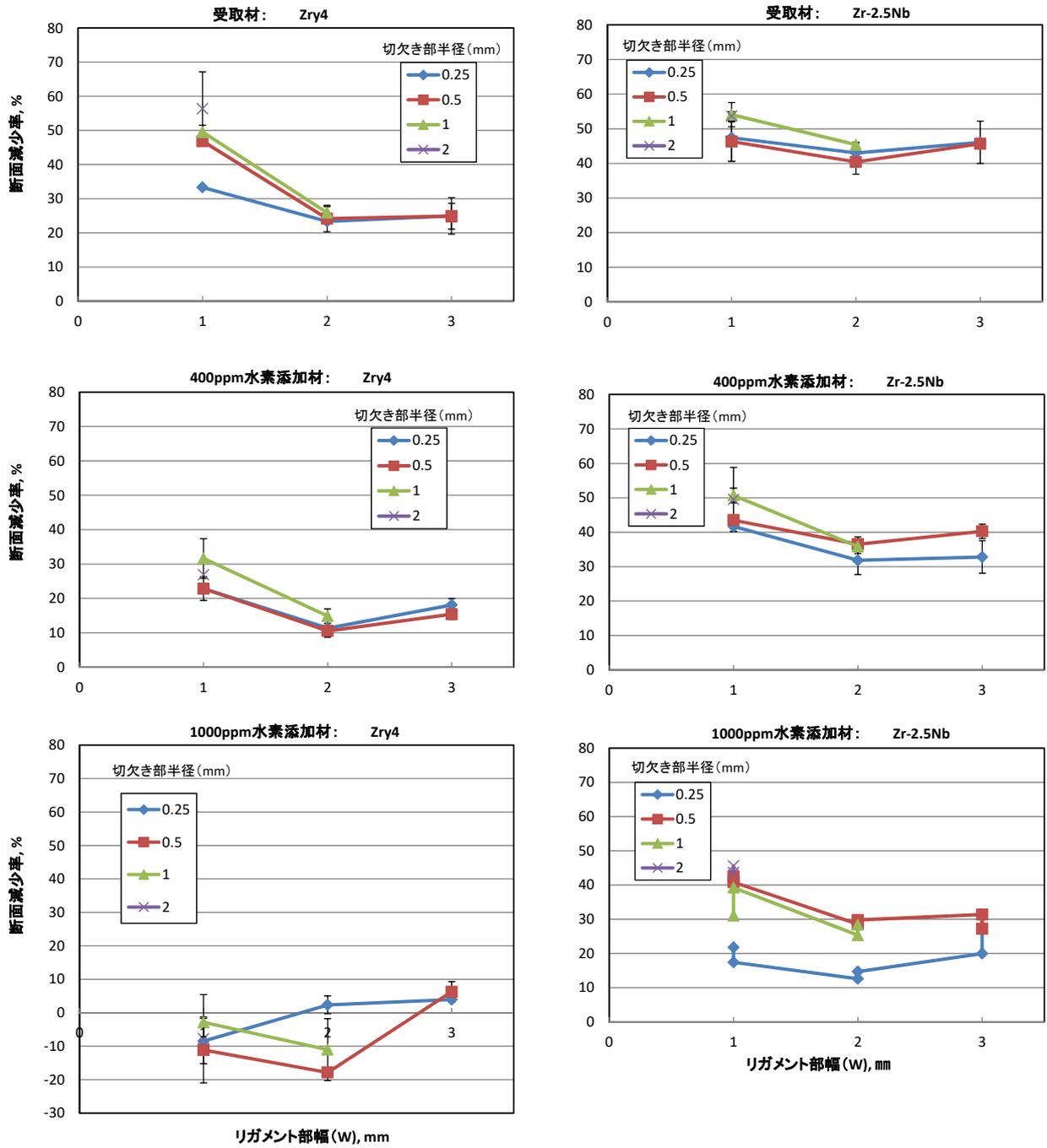
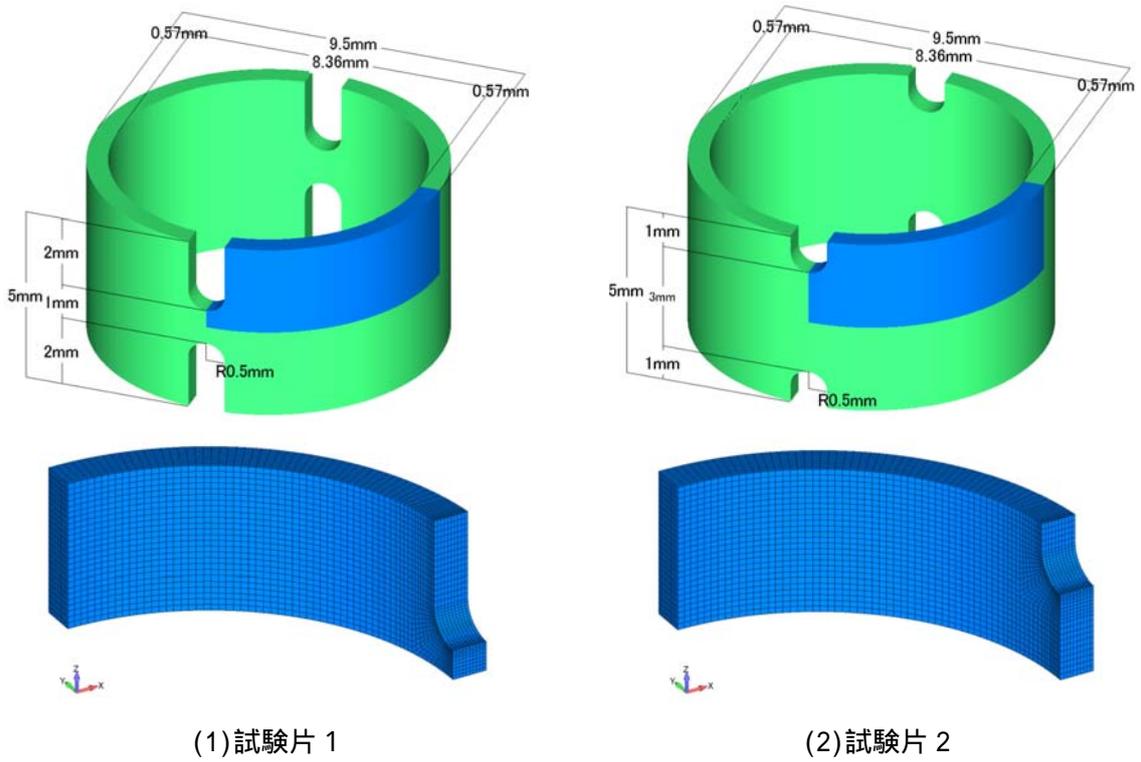


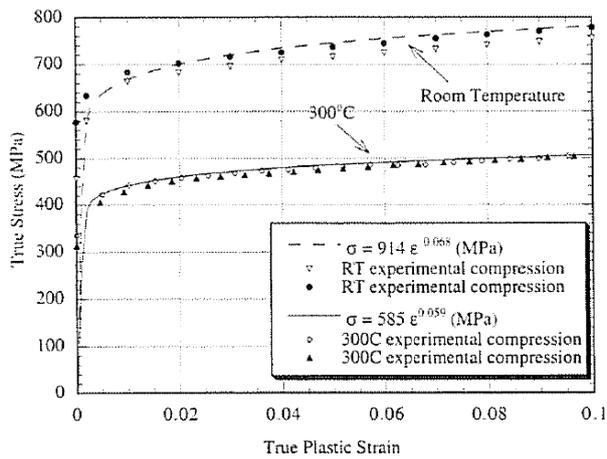
図 3.9.11 切欠付リング引張試験片の破断部における断面減少率測定結果と試験片形状の関係



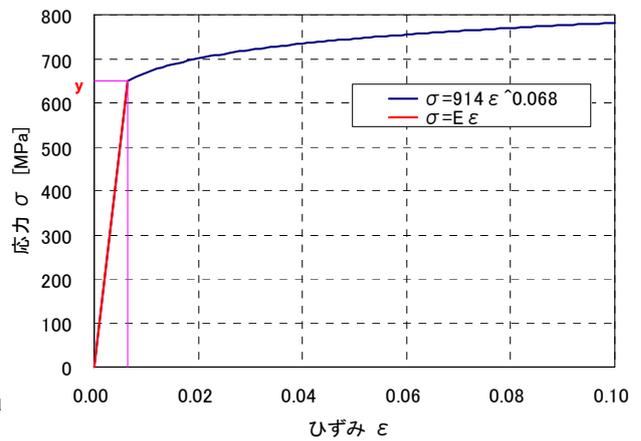
(1) 試験片 1

(2) 試験片 2

図 3.9.12 FEM 解析モデル

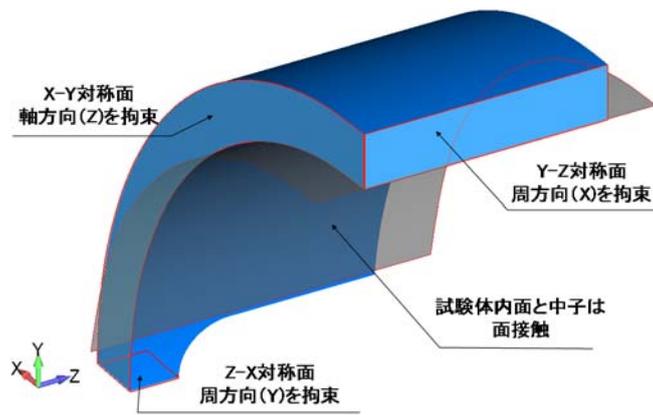


(1) 文献値^[3.9.2]

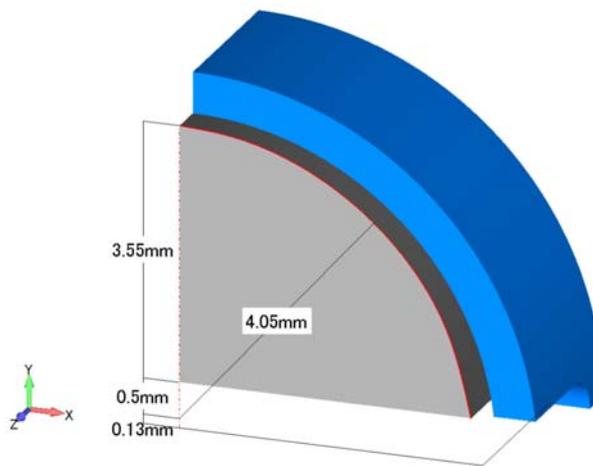


(2) モデルでの使用値

図 3.9.13 応力-歪関係

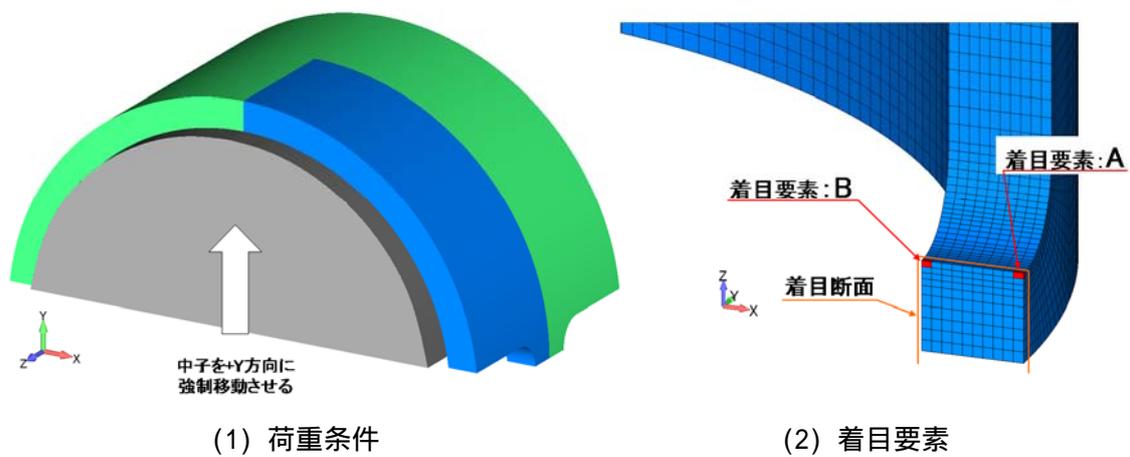


(1) 境界条件



(2) 中子寸法

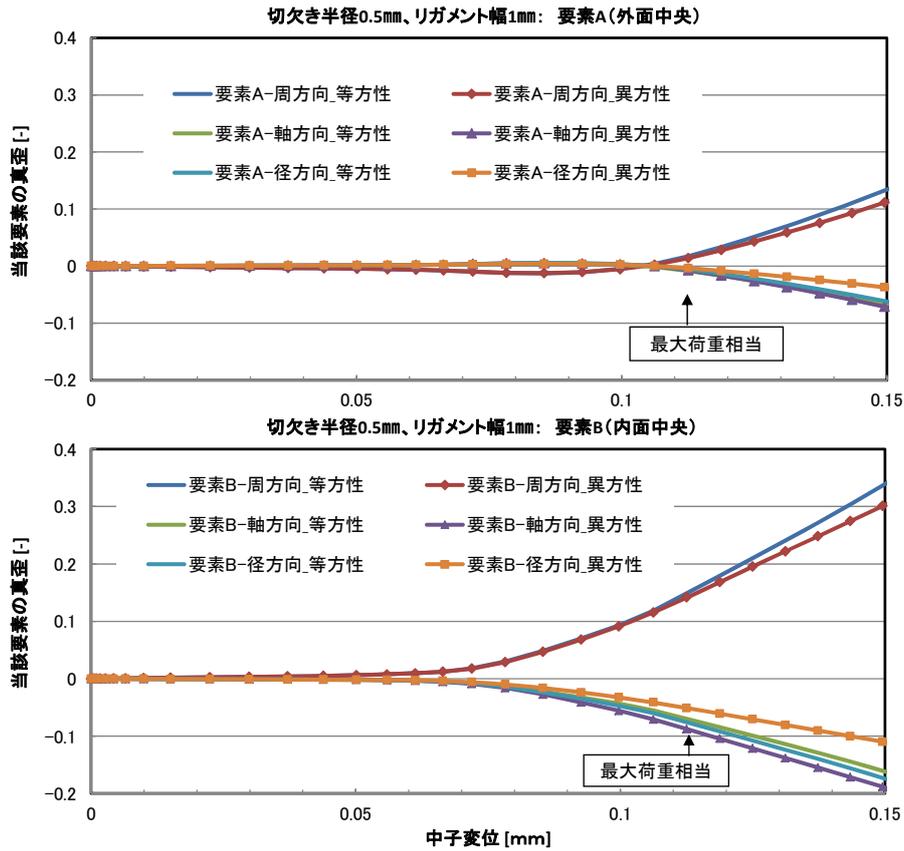
図 3.9.14 FEM 解析境界条件



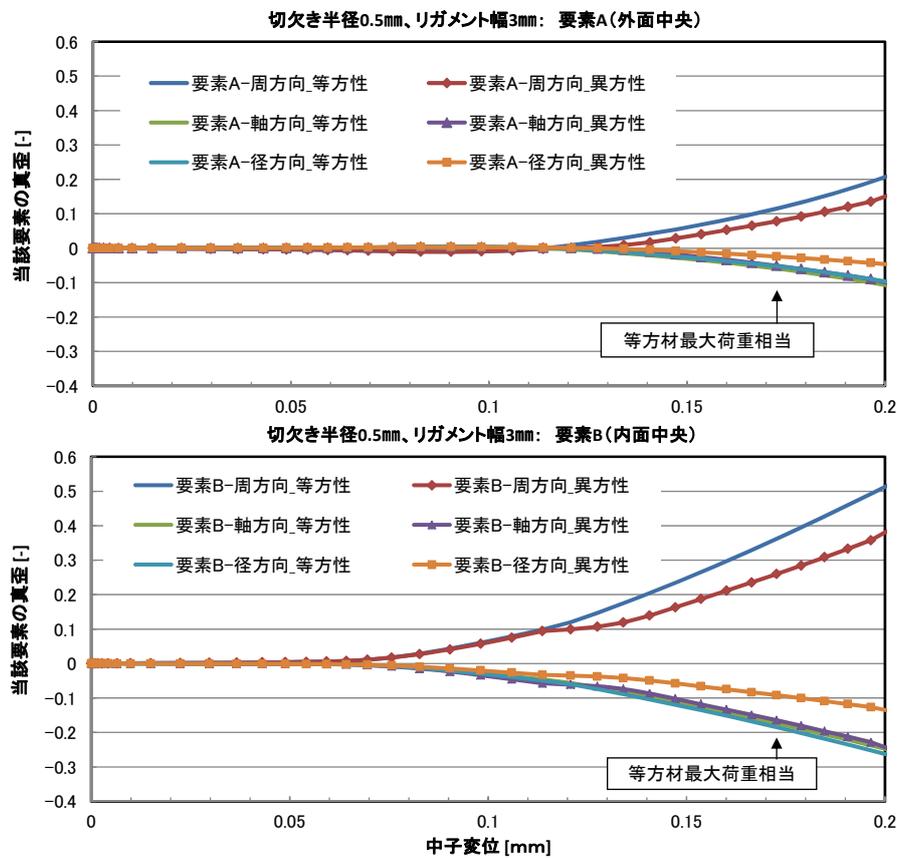
(1) 荷重条件

(2) 着目要素

図 3.9.15 FEM 解析荷重条件と着目要素

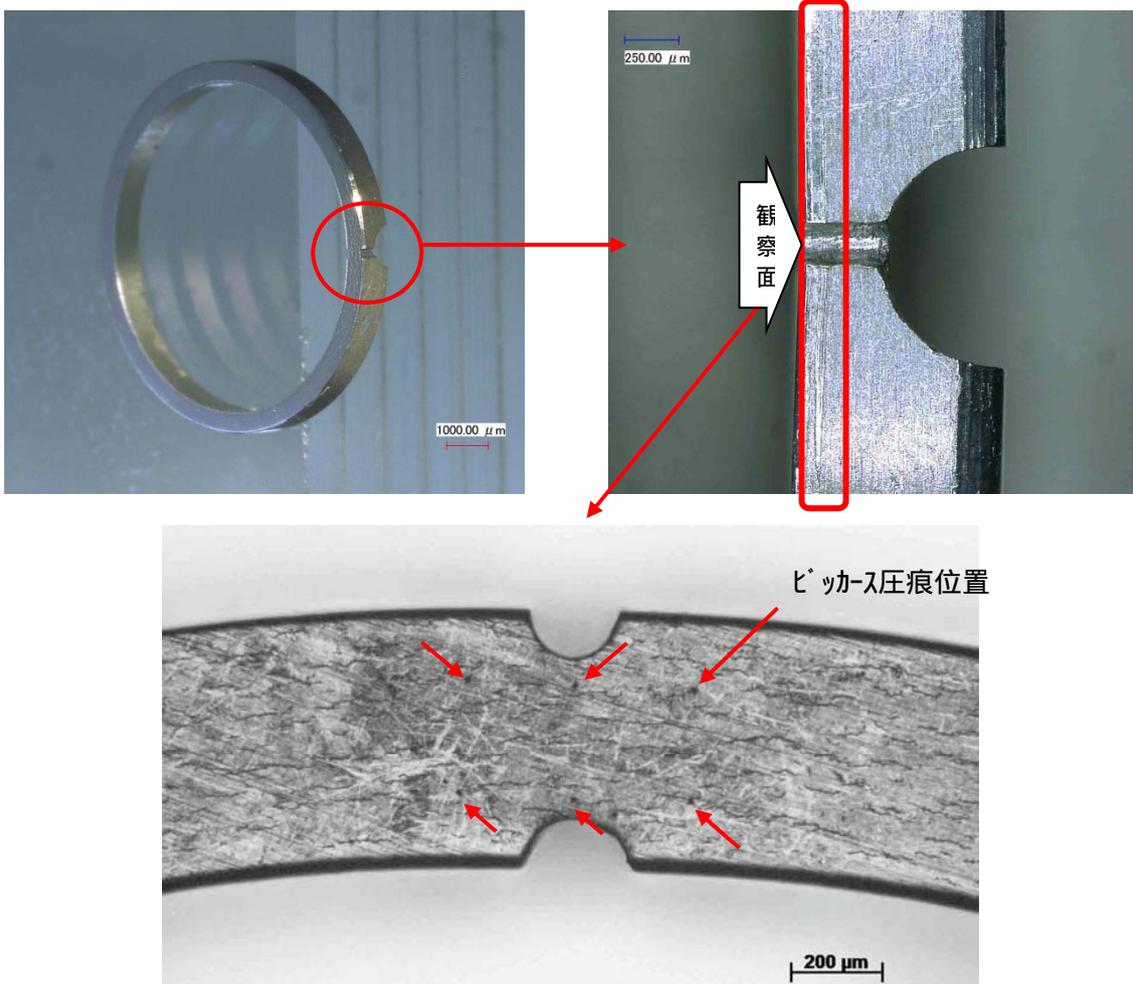


(1) 試験片 1

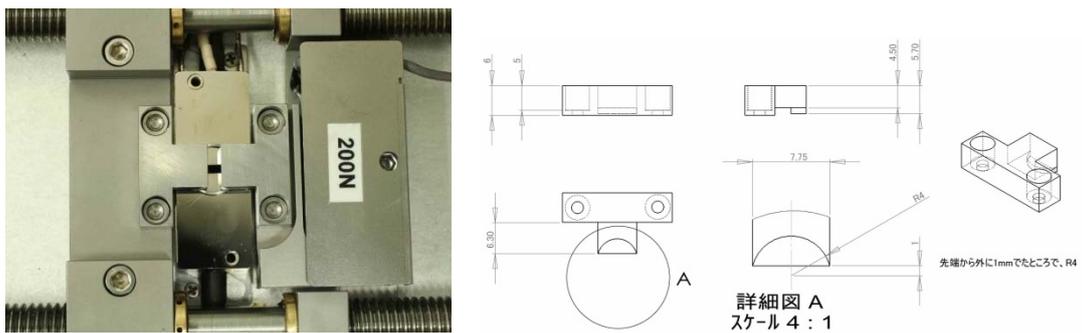


(2) 試験片 2

図 3.9.16 着目要素位置での変形に伴う真歪量の比較



(1) 試験片 (テスト試験片)



(2) 延伸ステージへの装着状態 (左写真)、リング引張治具図面 (右図)

図 3.9.17 その場観察試験用切欠き付リング試験片と試験状況

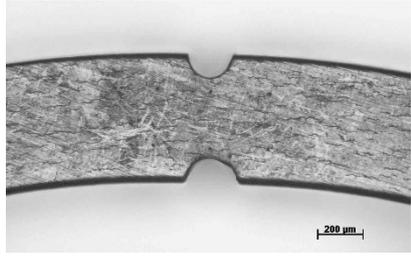
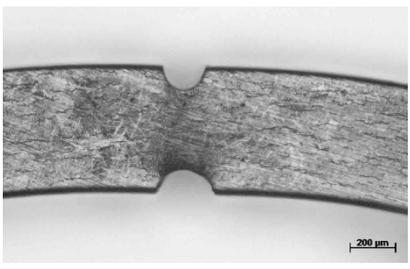
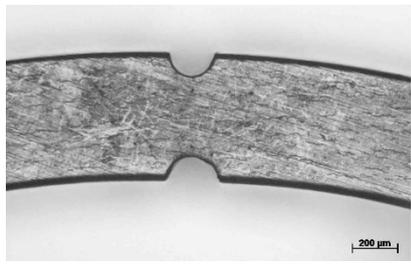
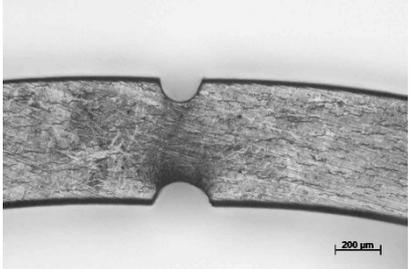
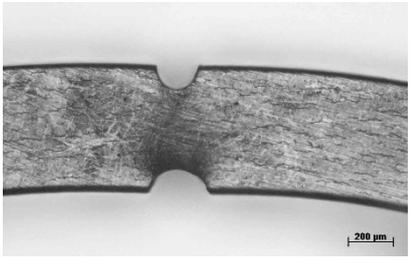
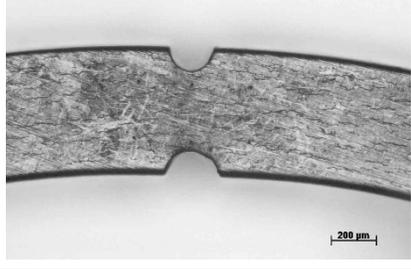
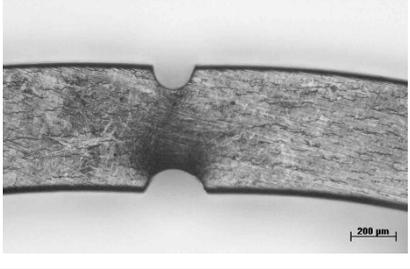
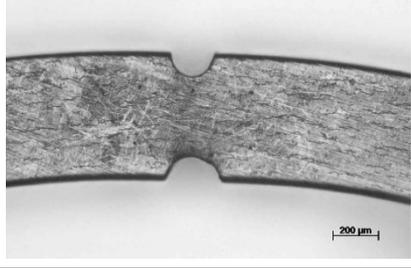
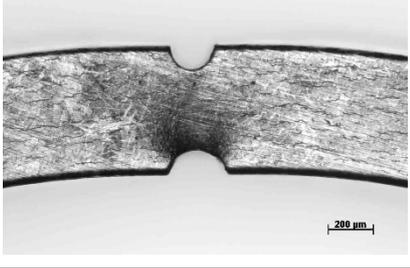
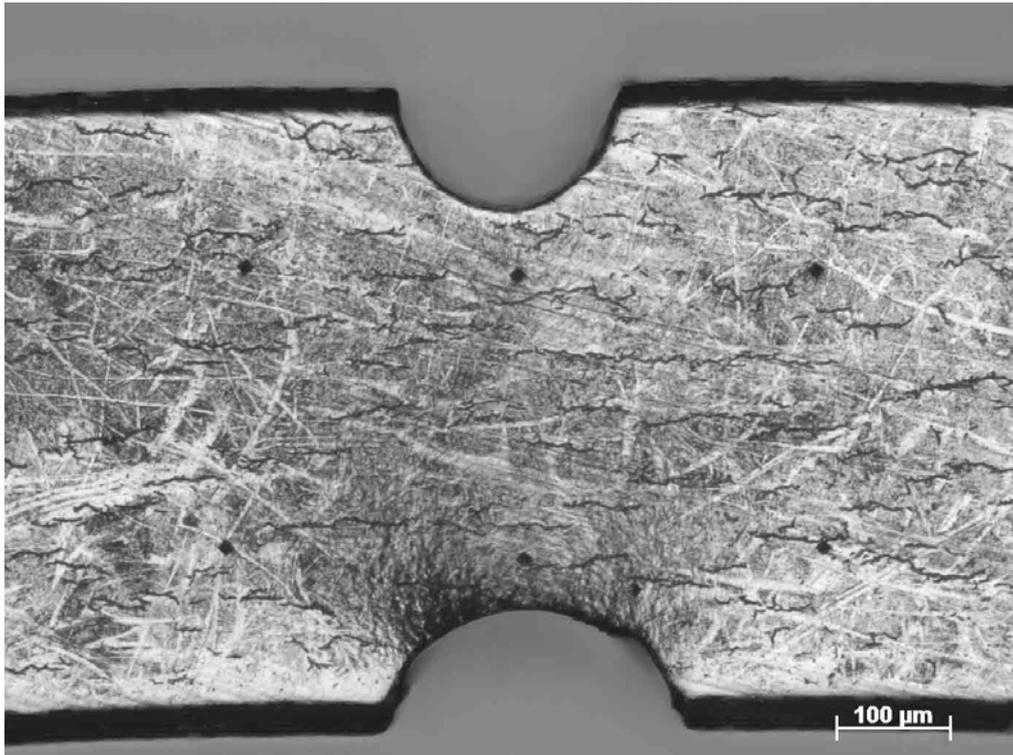
クロスヘッド移動量,mm	顕微鏡写真	クロスヘッド移動量,mm	顕微鏡写真
0		0.39	
0.15		0.44	
0.21		0.49	
0.26		0.54	
0.30		0.59	
0.34		0.62	

図 3.9.18 光学顕微鏡用引張試験装置でのその場観察試験結果 (Zr-2.5Nb-400ppm)



(Zr-2.5Nb-400ppm 材、0.62 mmクロスヘッド変位)

図 3.9.19 光学顕微鏡用引張試験装置での予備試験結果後金相観察写真

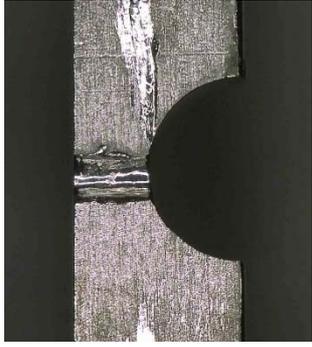
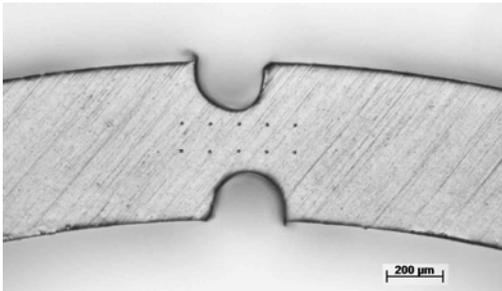
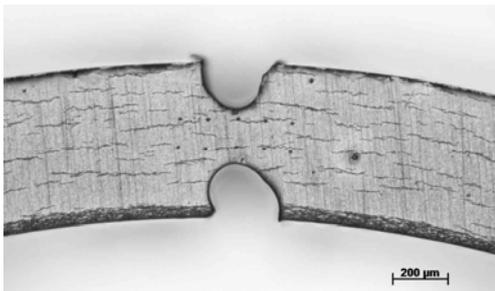
種類	Zry4：受取材	Zry4：約 400ppm 水素化材
試験部 側面 (左右 が被覆 管軸方 向)		
試験部 横断面		

図 3.9.20 その場観察試験用切欠き付リング試験片切欠き部拡大写真（試験前）

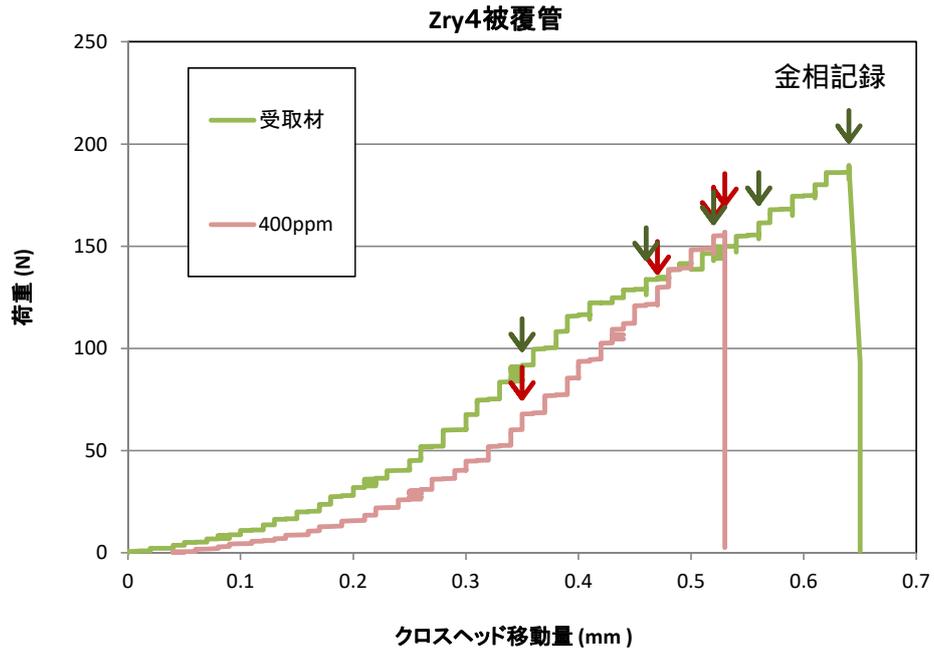


図 3.9.21 その場観察試験における荷重-変位曲線とその場観察写真記録時点

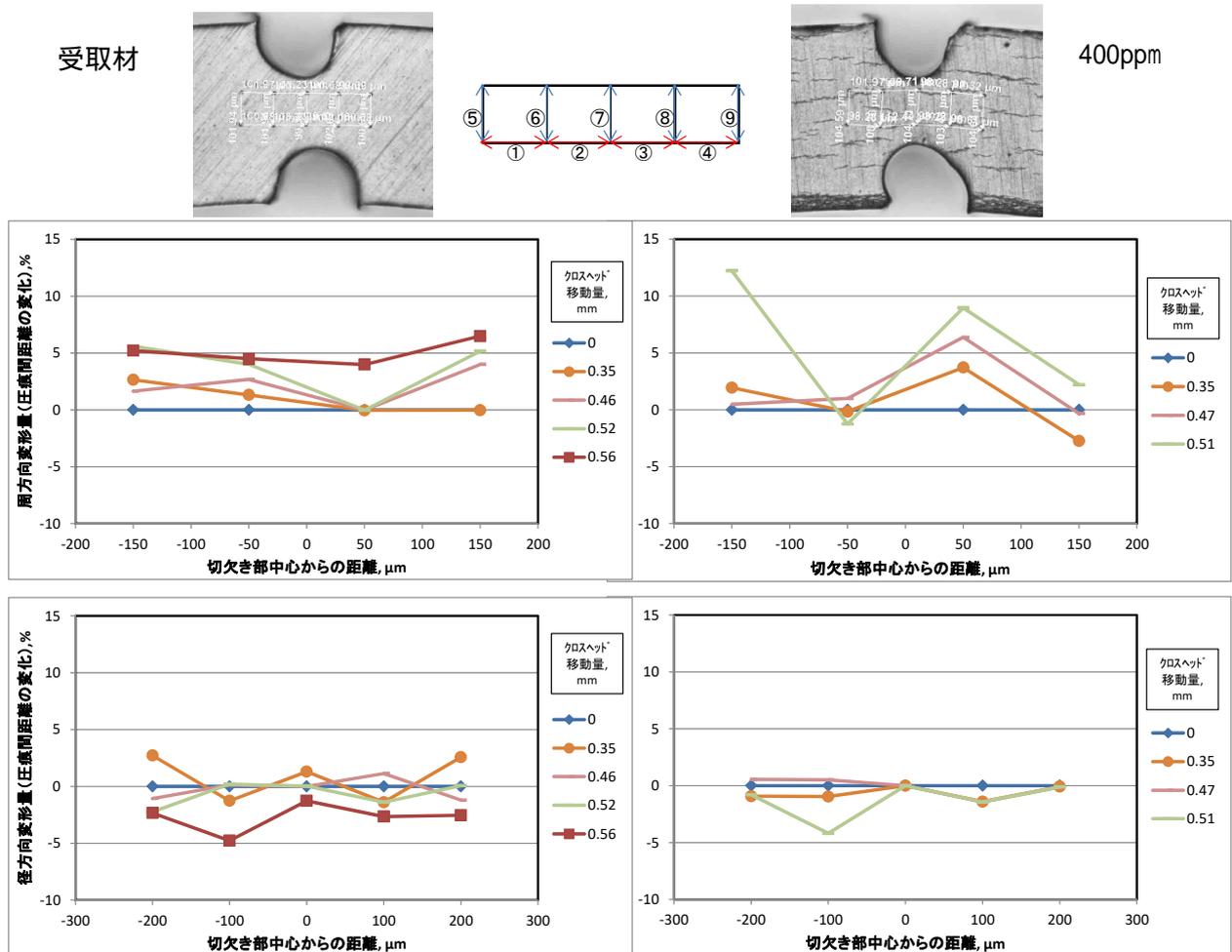


図 3.9.22 その場観察試験における変形量測定結果

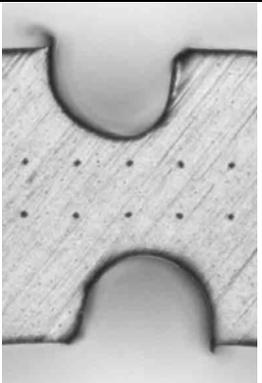
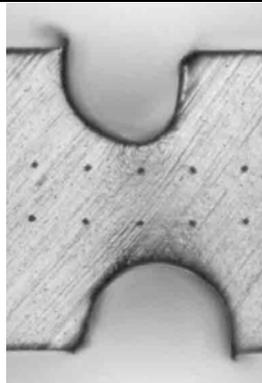
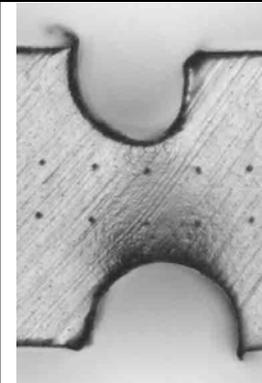
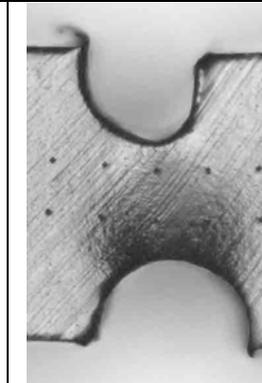
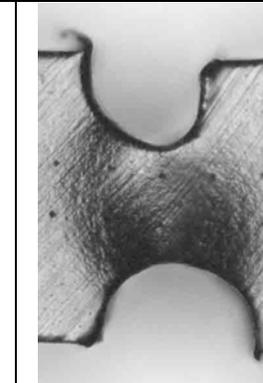
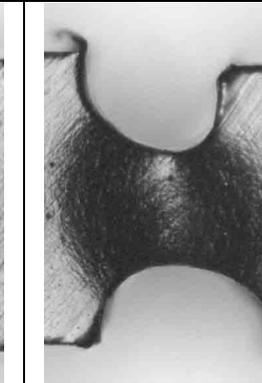
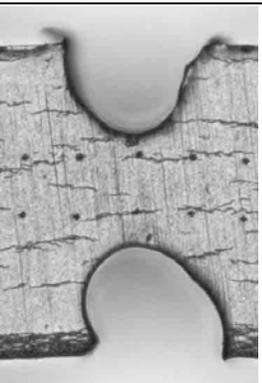
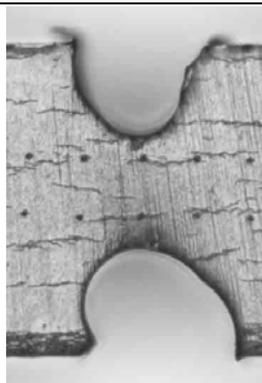
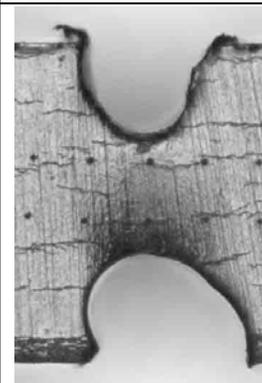
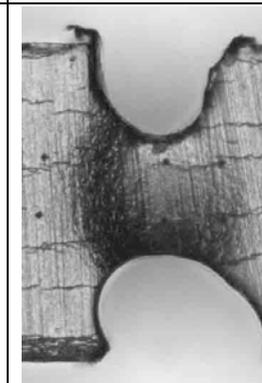
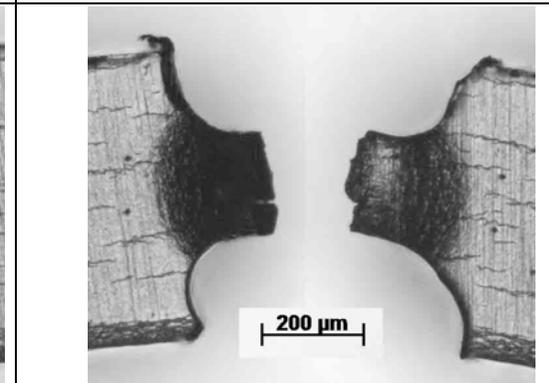
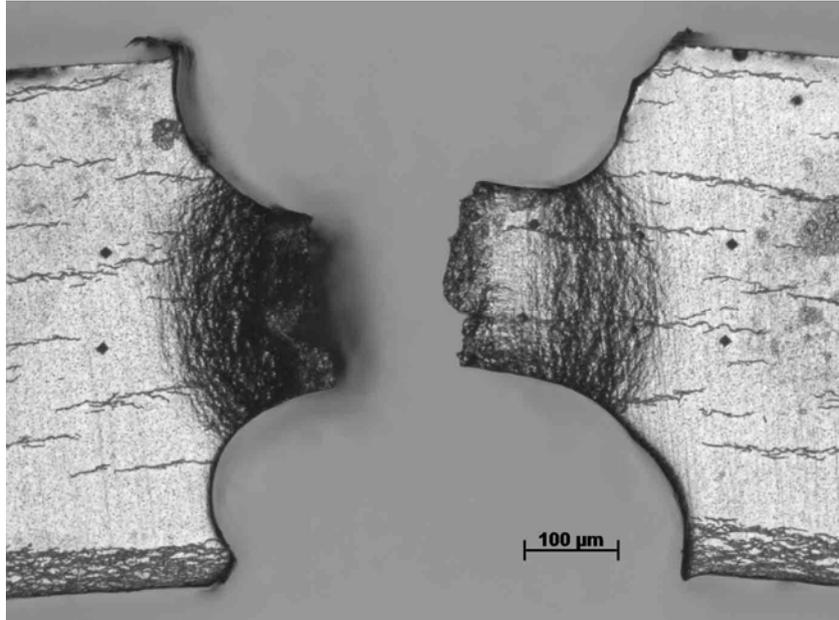
受取材	加ヘッド移動量 mm	0	0.35	0.46	0.52	0.56	0.64 (0.65にて破断)
	顕微鏡 写真						
水素化材	加ヘッド移動量 mm	0	0.35	0.47	0.52	0.53	
	顕微鏡 写真						

図 3.9.23 その場観察試験における金相観察写真



(Zry4-400ppm 材、0.53 mmクロスヘッド変位により破断)

図 3.9.24 その場観察試験後金相観察写真

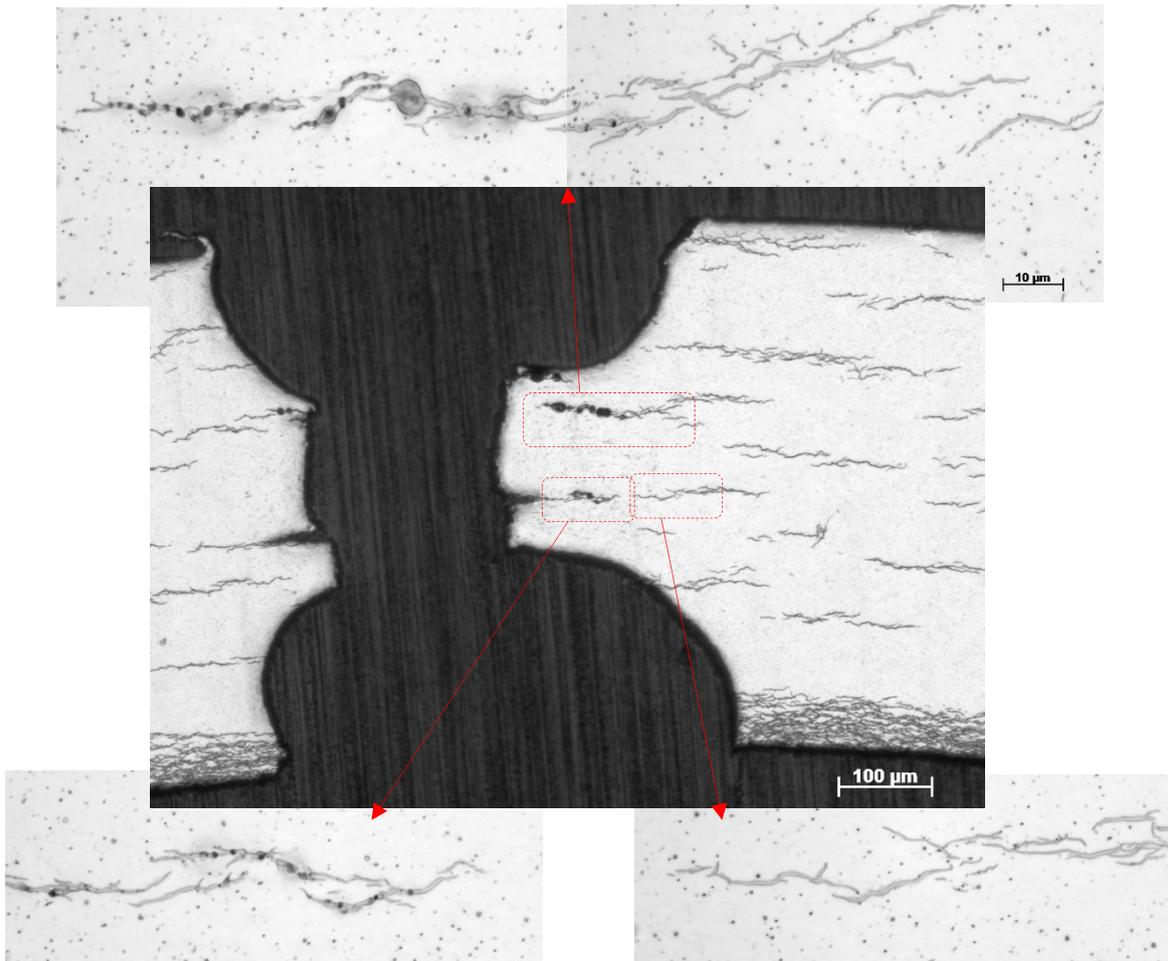


図 3.9.25 図 3.9.24 の金相観察面から僅かに研磨 (~0.1 mm) した面での観察写真

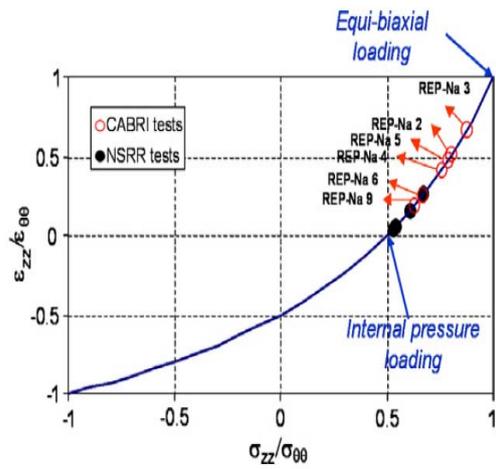


Fig. 2. The strain ratio ($\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta}$) as a function of the stress ratio ($\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta}$) for a series of RIA tests conducted at the NSRR and CABRI facilities.

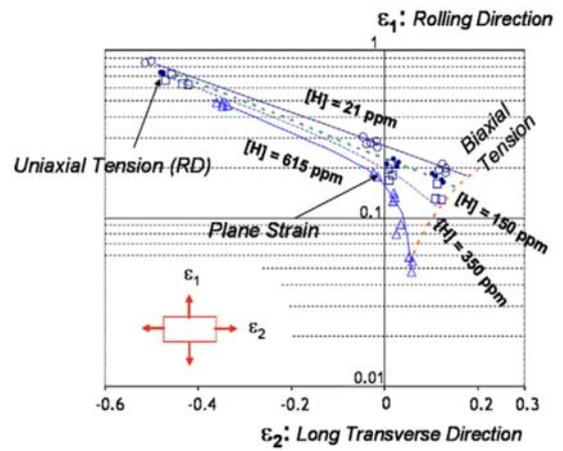


Fig. 3. A room temperature fracture limit diagram for recrystallized Zircaloy-2 sheet at four levels of hydrogen content. The values of ϵ_1 and ϵ_2 refer to the major and minor principal strains respectively in the plane of the sheet at fracture. After Yunchang and Koss [16].

図 3.9.26 試験炉での反応度事故試験時応力/歪の解析結果（左図）と
破損限界歪への水素濃度と応力状態の影響（右図）^[3.9.3]

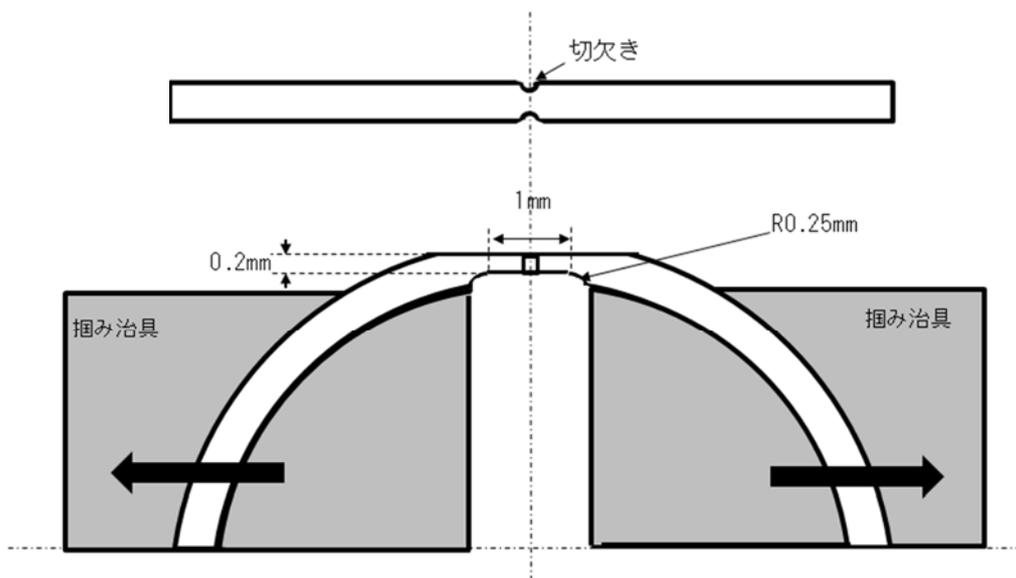


図 3.9.27 H26 年度多軸応力機械試験の試験体系の模式図

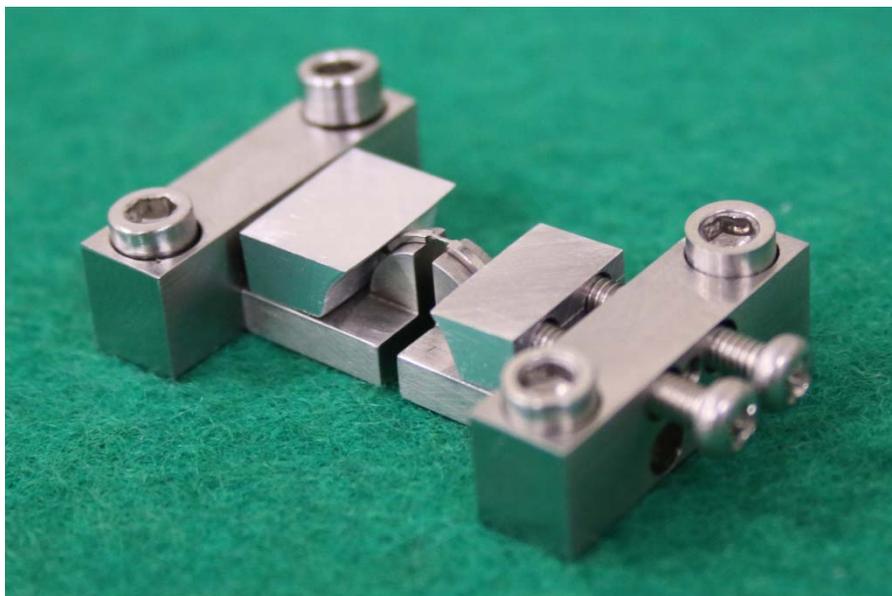
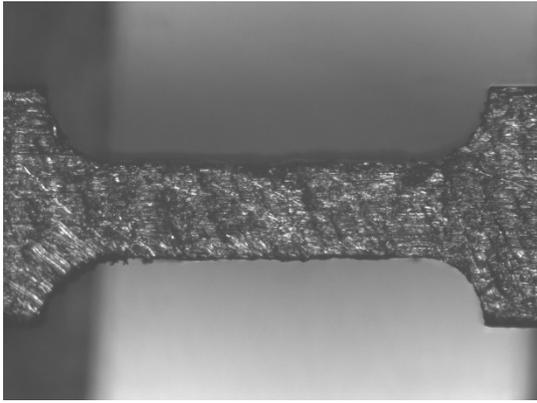
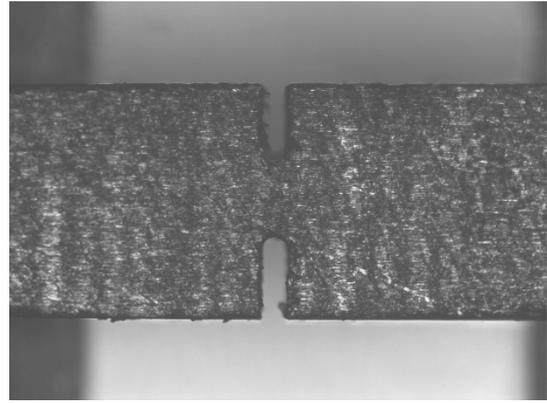


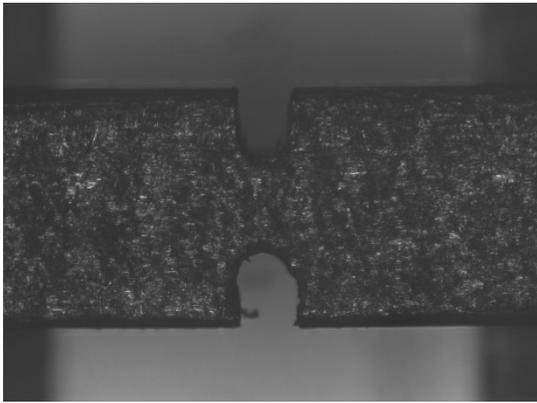
図 3.9.28 試験治具による試験片固定状況



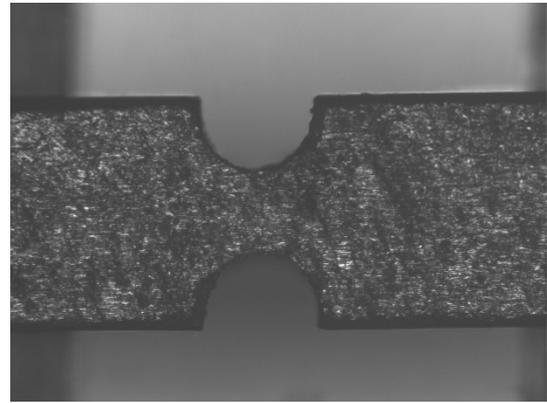
(a) 切欠き無



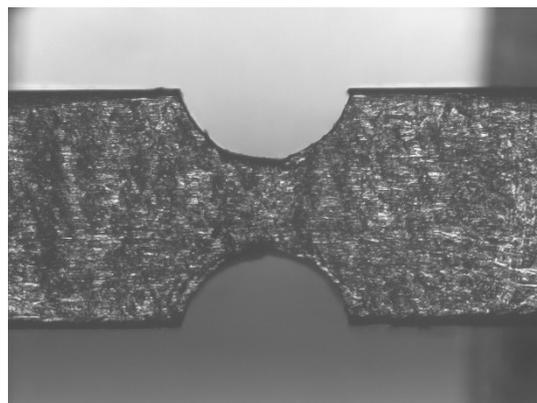
(b) 切欠き半径 : 0.05mm



(c) 切欠き半径 : 0.1mm

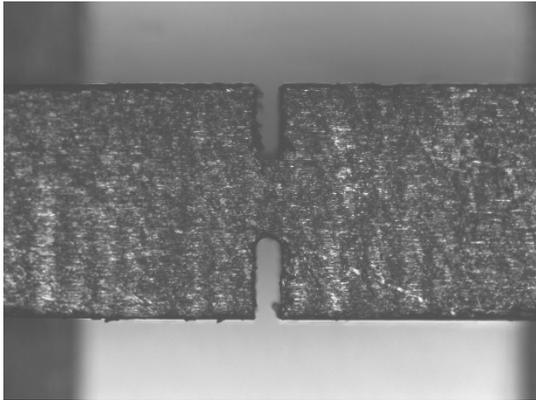


(d) 切欠き半径 : 0.2mm

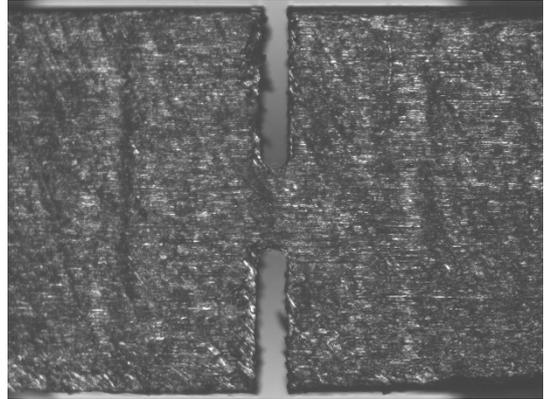


(e) 切欠き半径 : 0.3mm

図 3.9.29 切欠き半径影響確認に用いた試験片の試験前外観例

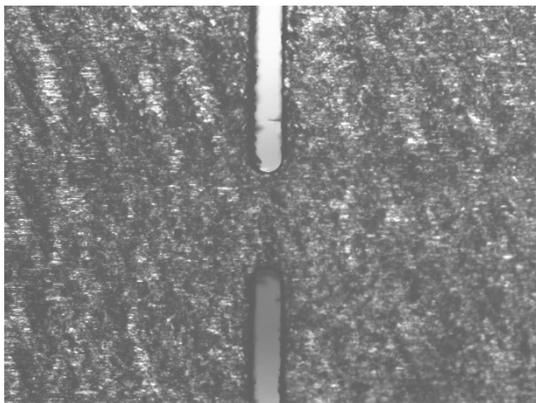


(a) 切欠き深さ：0.25mm

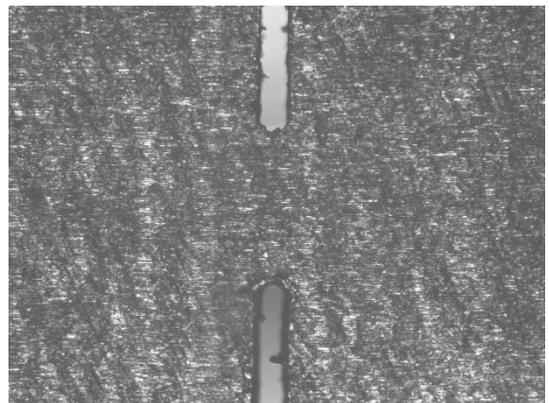


(b) 切欠き深さ：0.5mm

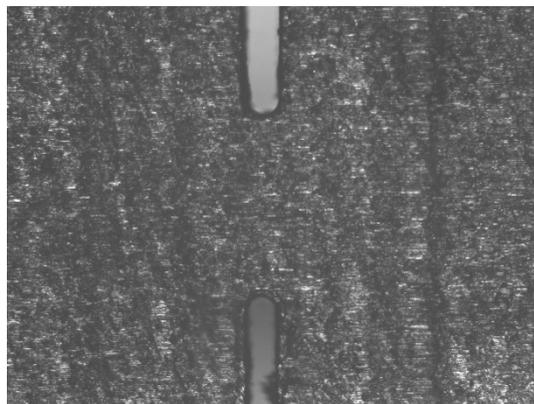
図 3.9.30 切欠き深さ影響確認に用いた試験片の試験前外観例



(a) リガメント幅：0.3mm

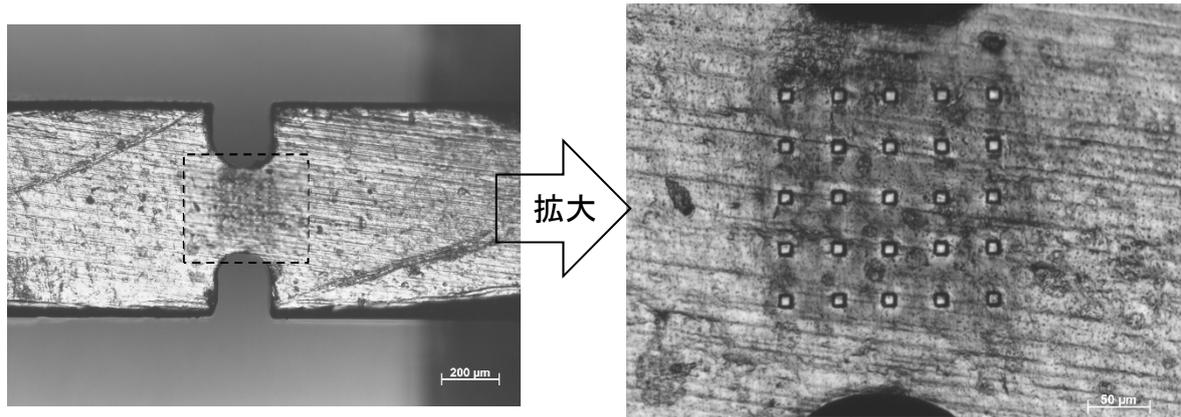


(b) リガメント幅：0.5mm

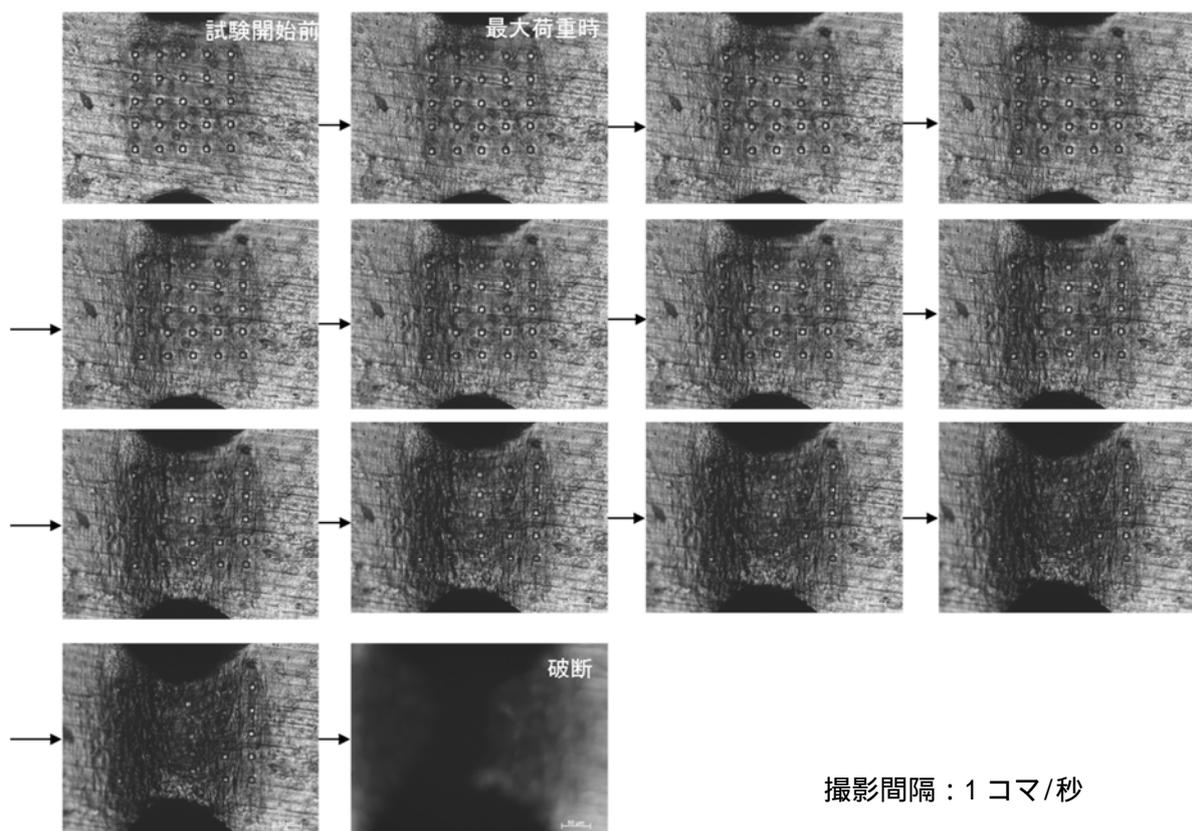


(c) リガメント幅：0.6mm

図 3.9.31 切欠き深さ影響確認に用いた試験片の試験前外観例

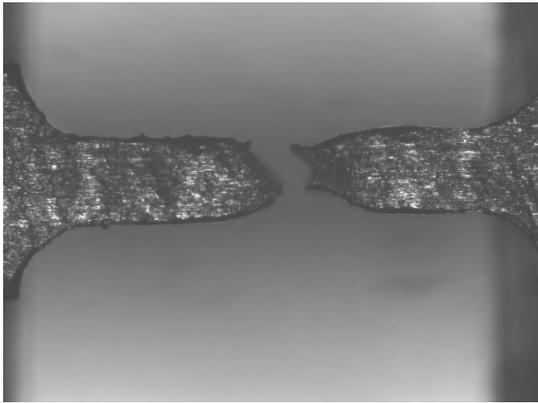


(a) タングステンデポジットによるマーカー配列加工

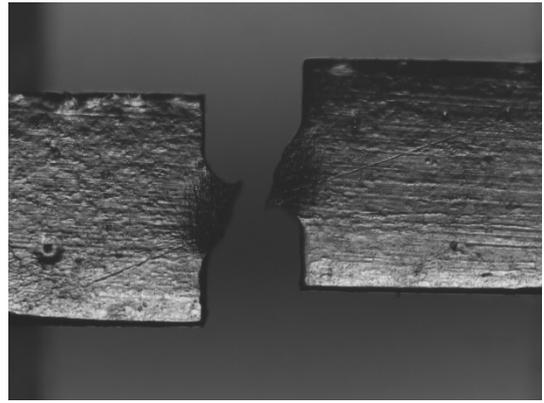


(b) 引張試験中の連続撮影像

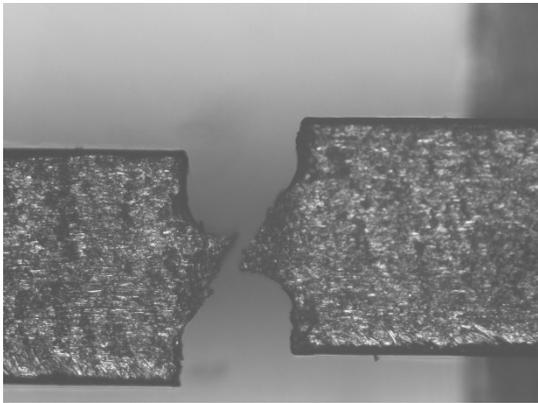
図 3.9.32 本試験で用いたひずみ分布測定手法



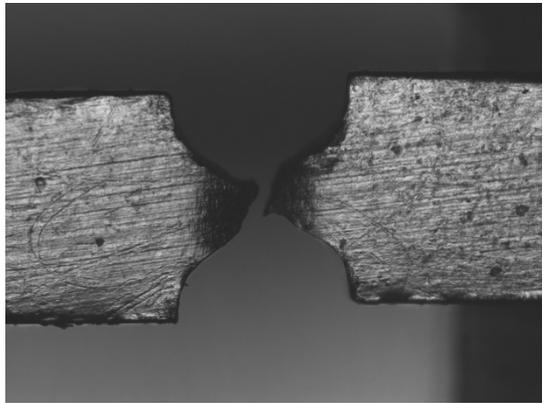
(a) 切欠き無



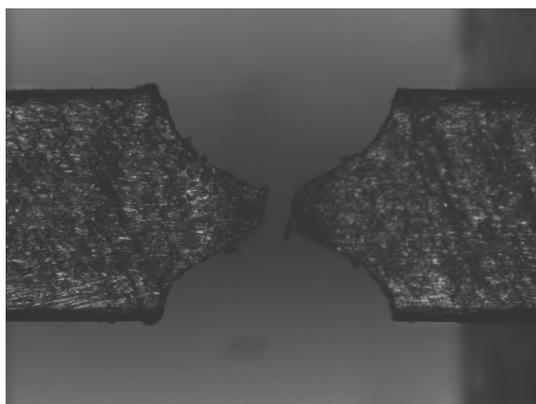
(b) 切欠き半径 : 0.05mm



(c) 切欠き半径 : 0.1mm



(d) 切欠き半径 : 0.2mm



(e) 切欠き半径 : 0.3mm

図 3.9.33 試験後の試験片外観状況 (切欠き半径影響確認試験)

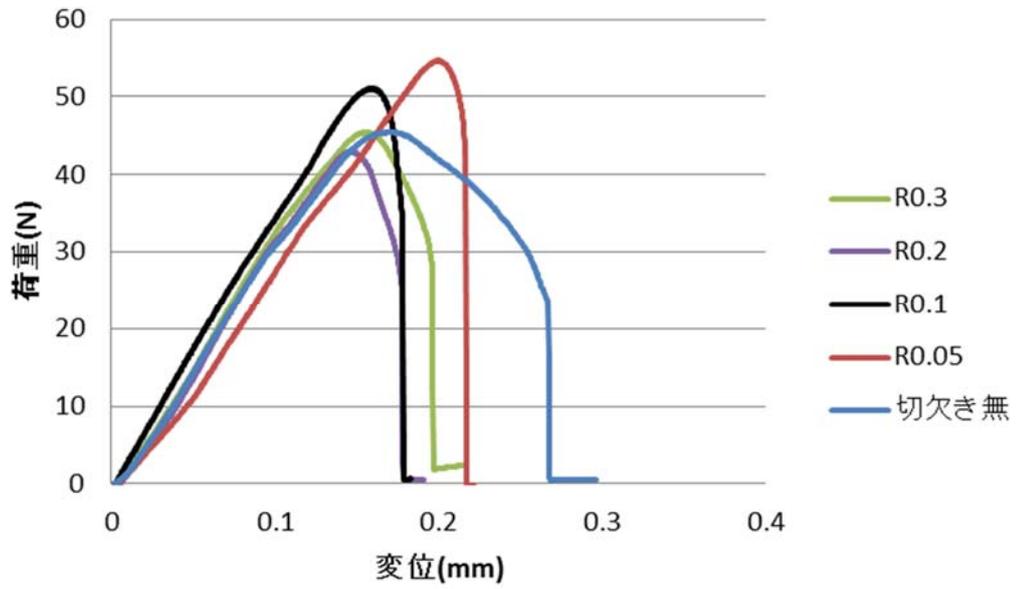


図 3.9.34 荷重-変位線図 (切欠き半径影響確認試験)

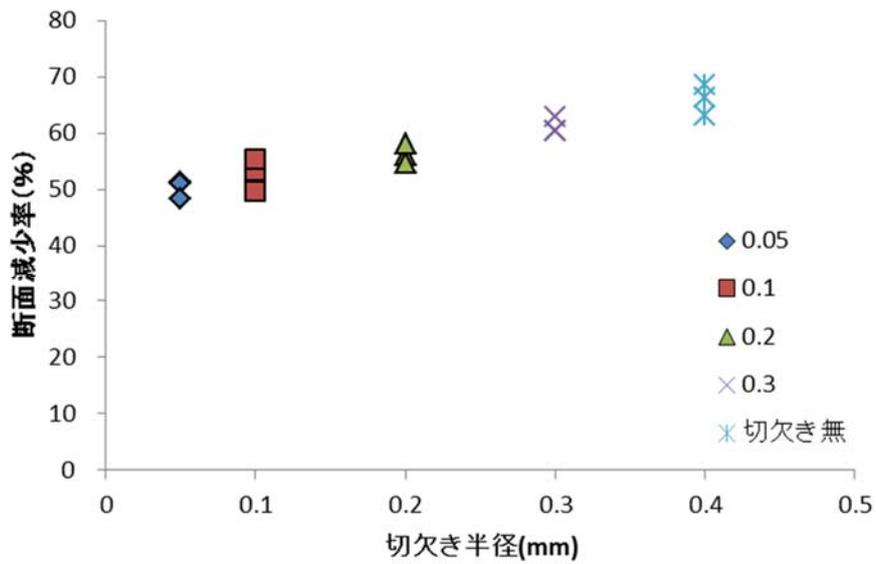
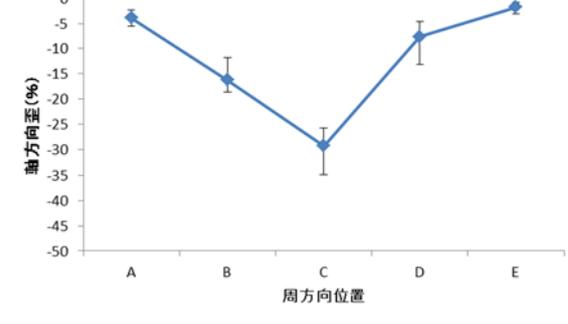
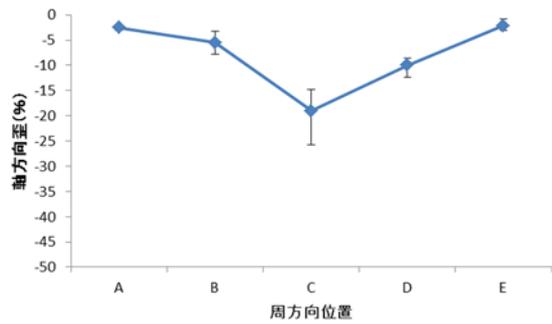
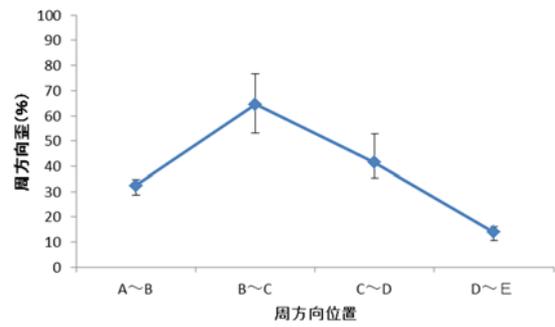
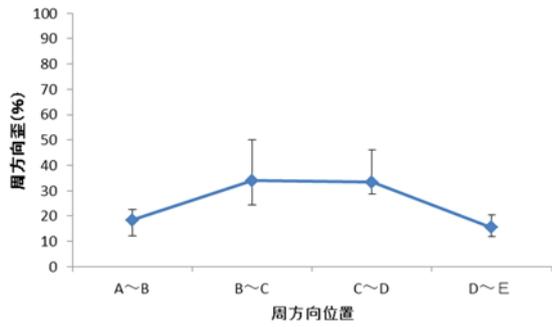
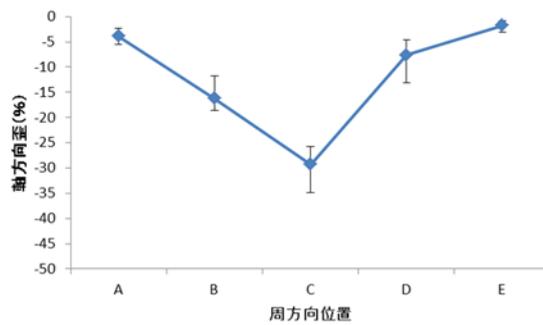
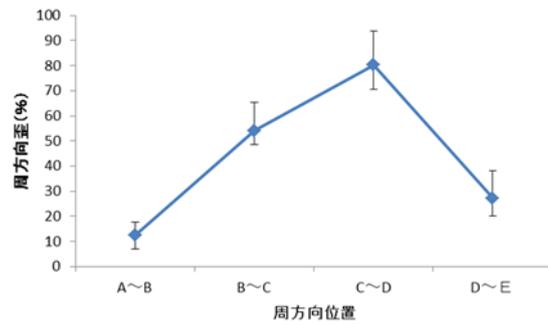


図 3.9.35 断面減少率と切欠き半径の関係



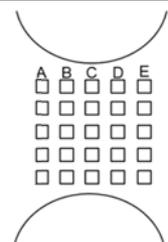
(a) 切欠き半径 0.05mm

(b) 切欠き半径 0.1mm



(c) 切欠き半径 0.2mm

マーカー位置関係



各試験片の上段図：周方向ひずみ分布

各試験片の下段図：軸方向ひずみ分布

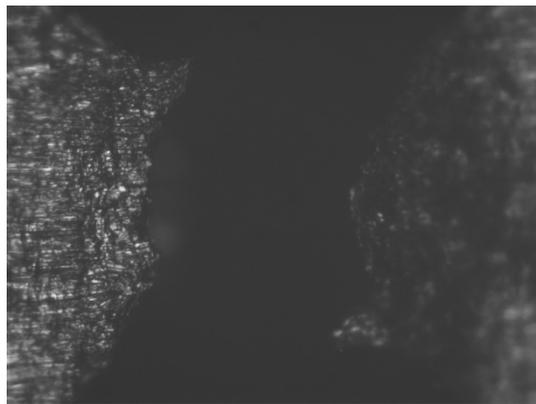
図 3.9.36 ひずみ分布測定結果



(a) 切欠き深さ：0.25mm



(b)切欠き深さ：0.5mm



(c)切欠き深さ：0.75mm

図 3.9.37 試験後の試験片外観状況（切欠き深さ影響確認試験）

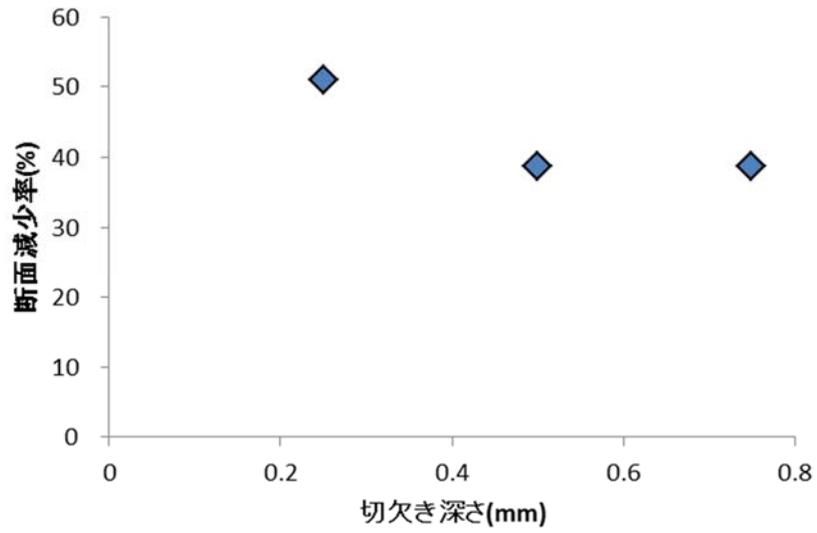
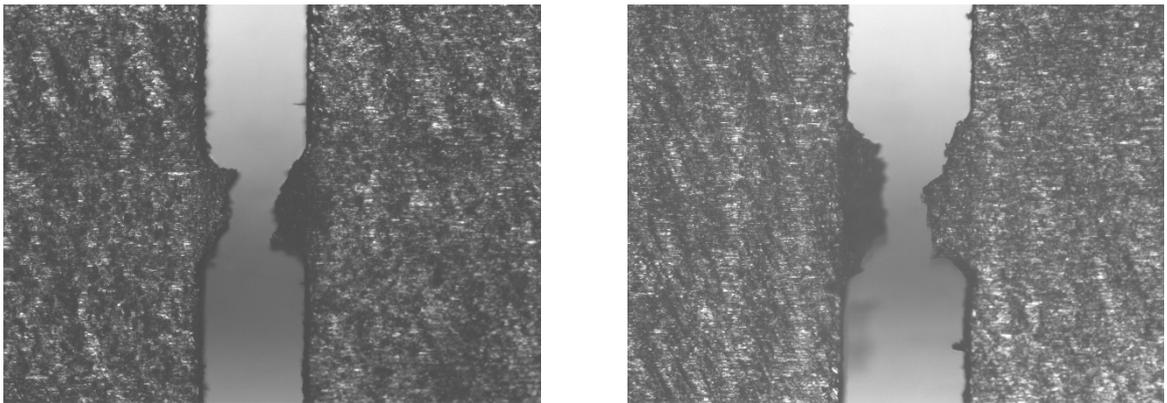
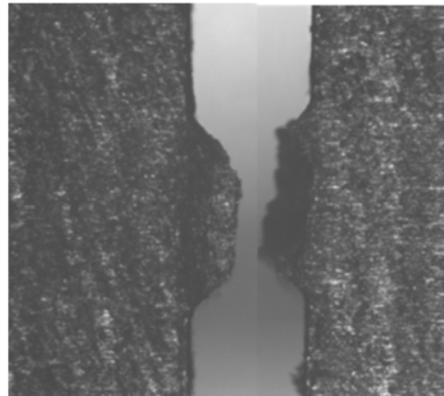


図 3.9.38 断面減少率と切欠き深さの関係



(a) リガメント幅 : 0.3mm

(b) リガメント幅 : 0.5mm



(c) リガメント幅 : 0.6mm

図 3.9.39 試験後の試験片外観状況 (リガメント幅影響確認試験)

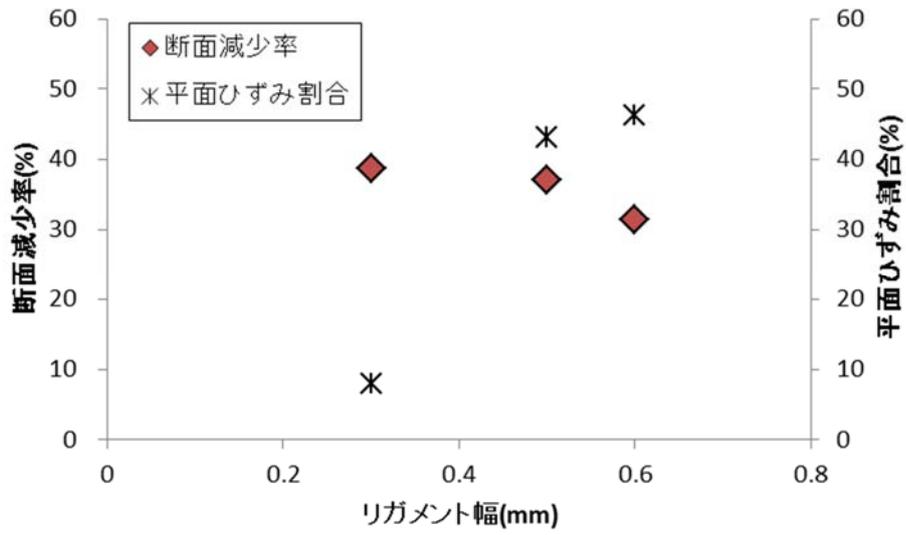


図 3.9.40 断面減少率とリガメント幅の関係

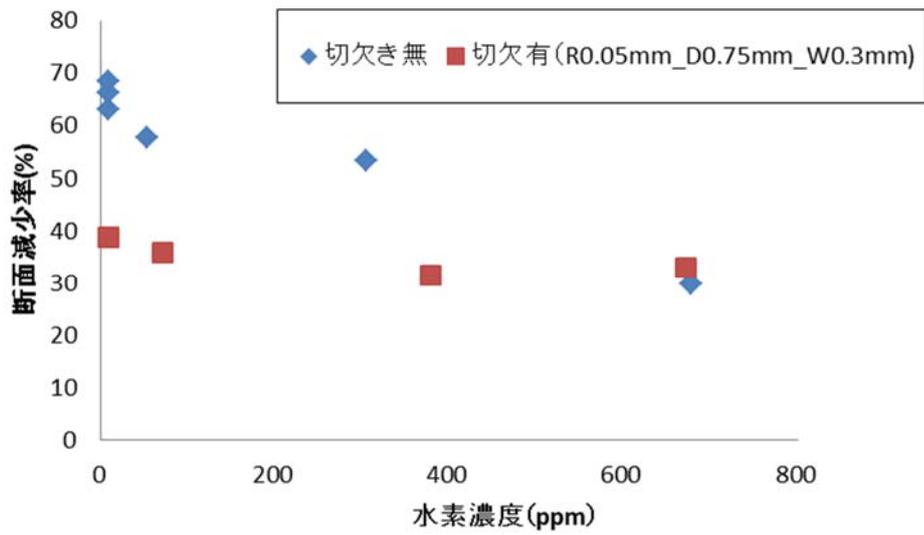
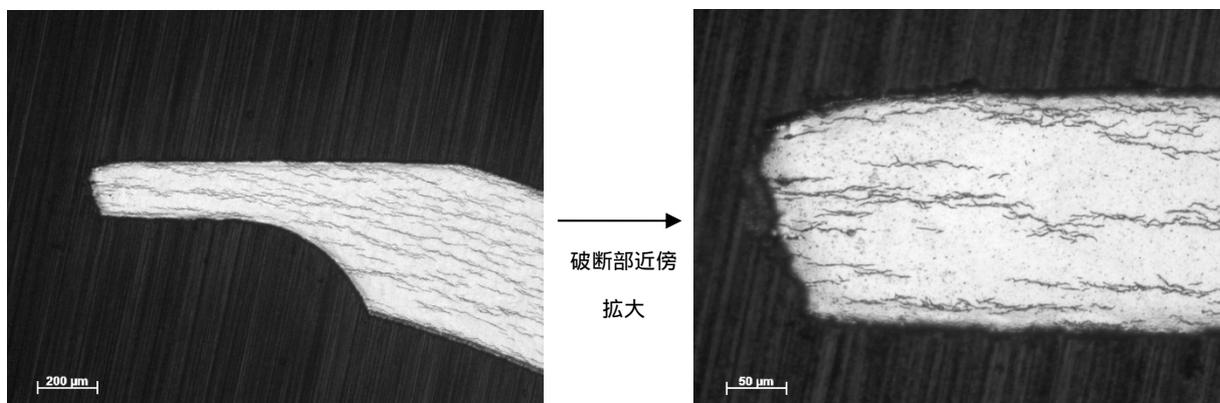
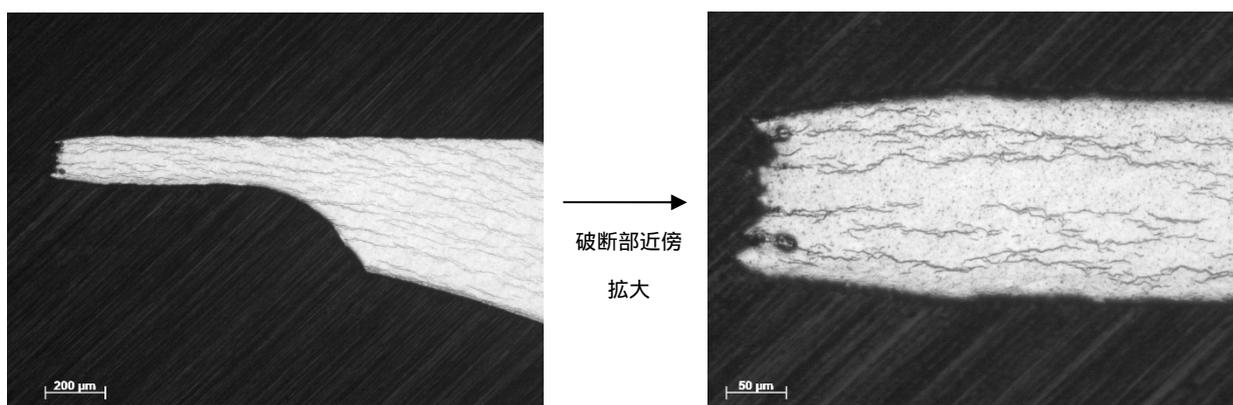


図 3.9.41 断面減少率と水素濃度の関係



(a)切欠き無（水素濃度分析値：304ppm）



(b)切欠き有（R=0.05mm、D=0.75mm、W=0.3mm、水素濃度分析値：378ppm）

試験後試料の軸方向追込み研磨により、軸方向は中央位置

図 3.9.42 水素吸収材を用いた試験後試料の横断面金相観察

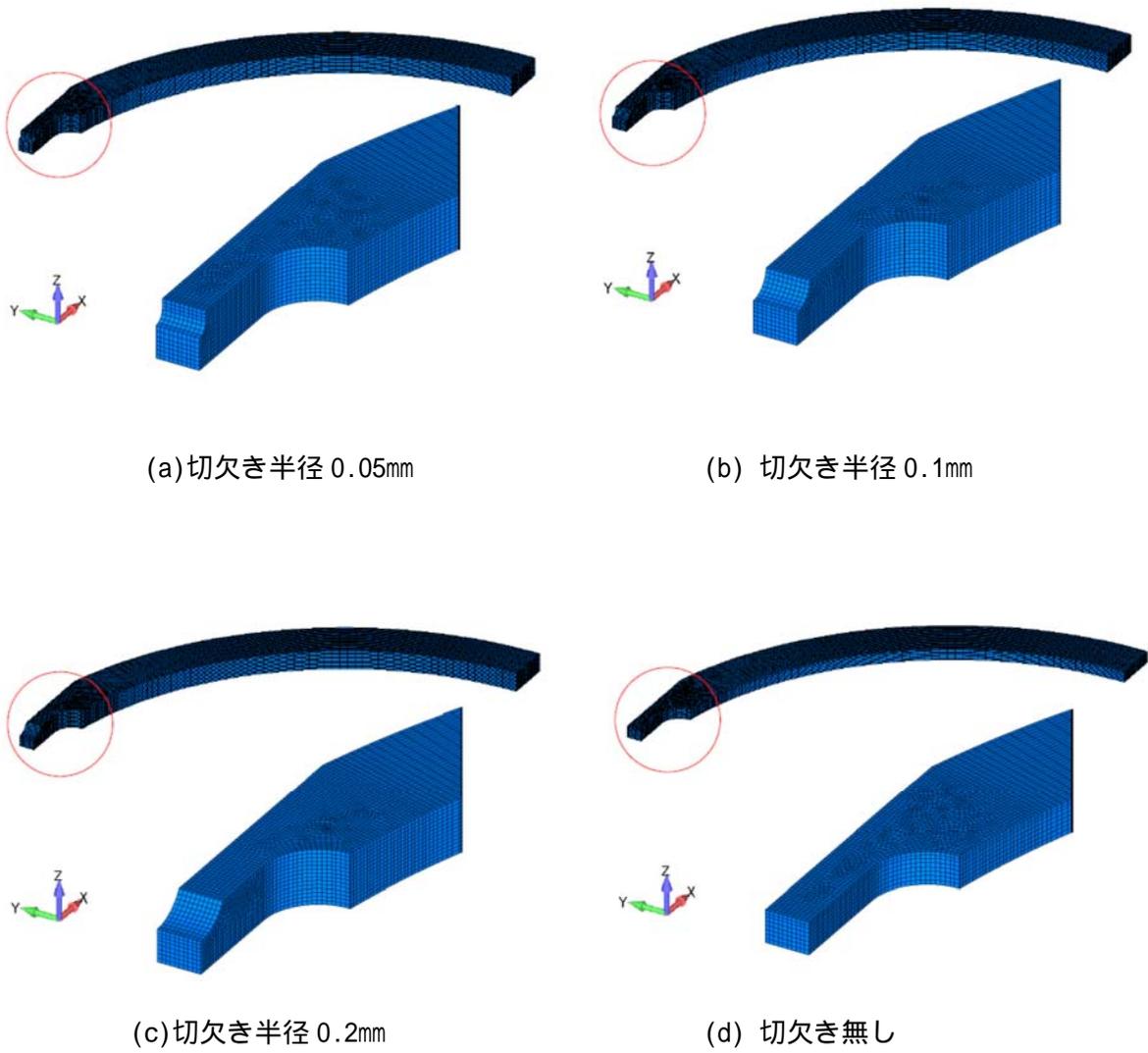


図 3.9.43 解析モデル

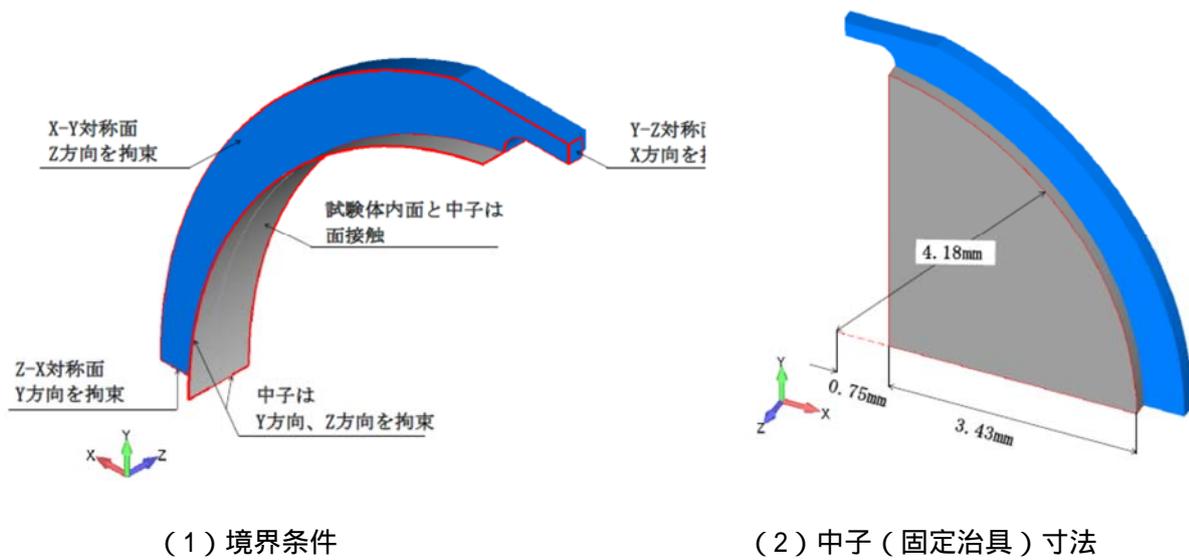
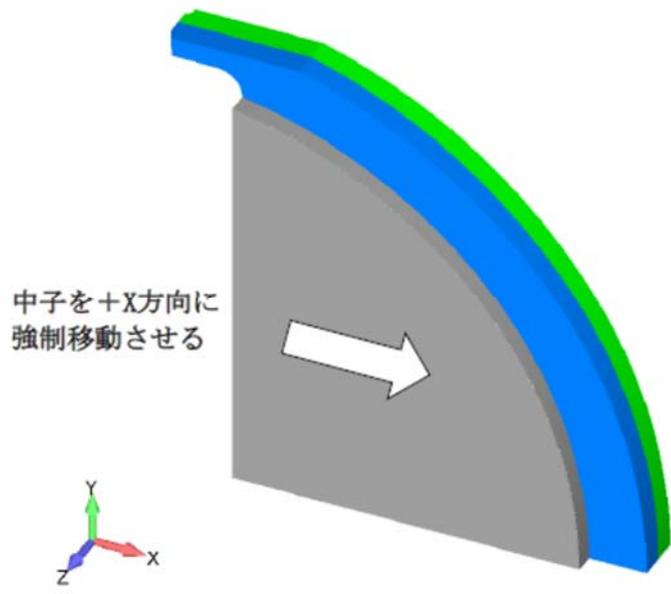
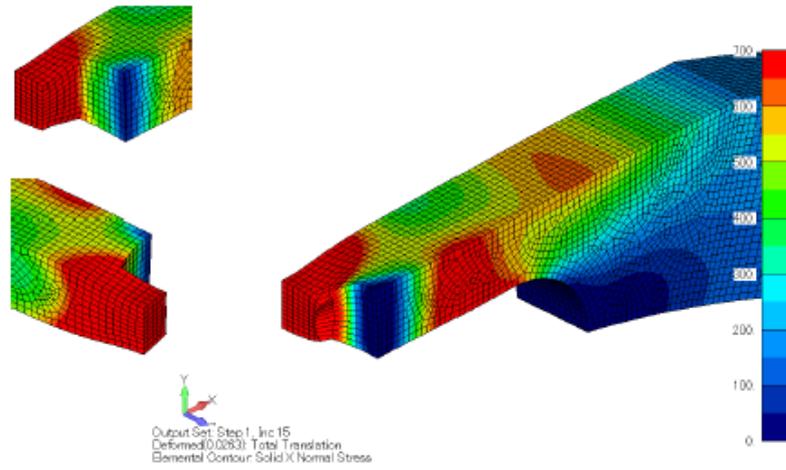


図 3.9.44 FEM 解析境界条件

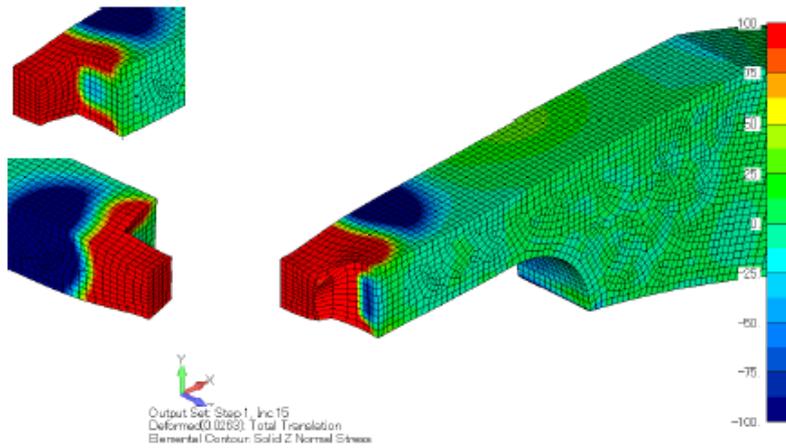


中子を+X方向に
強制移動させる

図 3.9.45 荷重条件

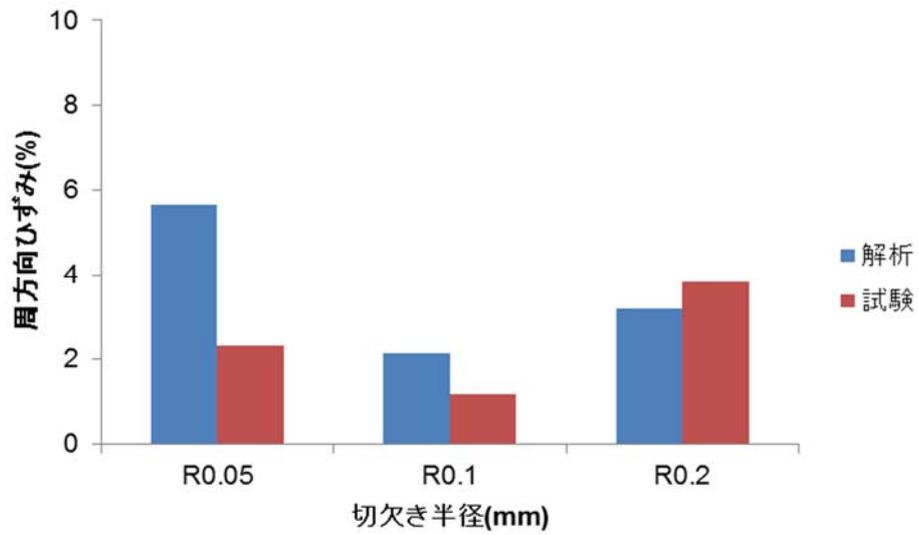


(a)周方向応力

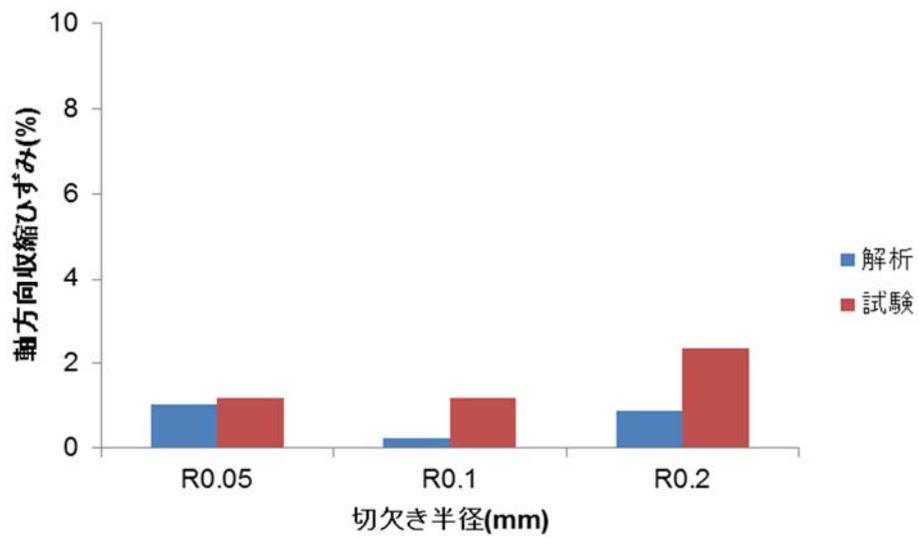


(b)軸方向応力

図 3.9.46 有限要素解析による応力分布評価例 (R=0.05mm、 D=0.25mm、 W=0.3mm)



(a)周方向ひずみ



(b)軸方向収縮ひずみ

比較対象位置はリガメント中央位置

図 3.9.47 解析によるひずみ評価と試験データの比較

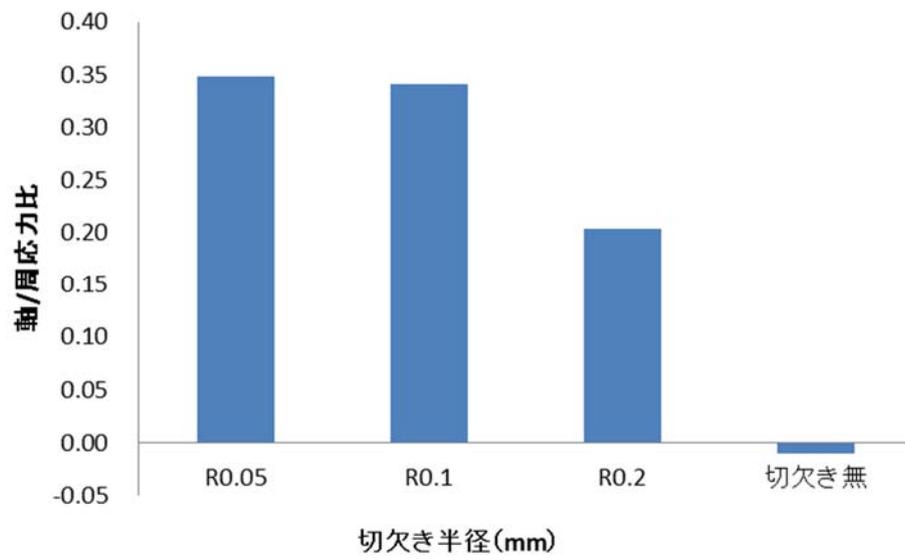


図 3.9.48 軸/周応力比と切欠き半径の関係

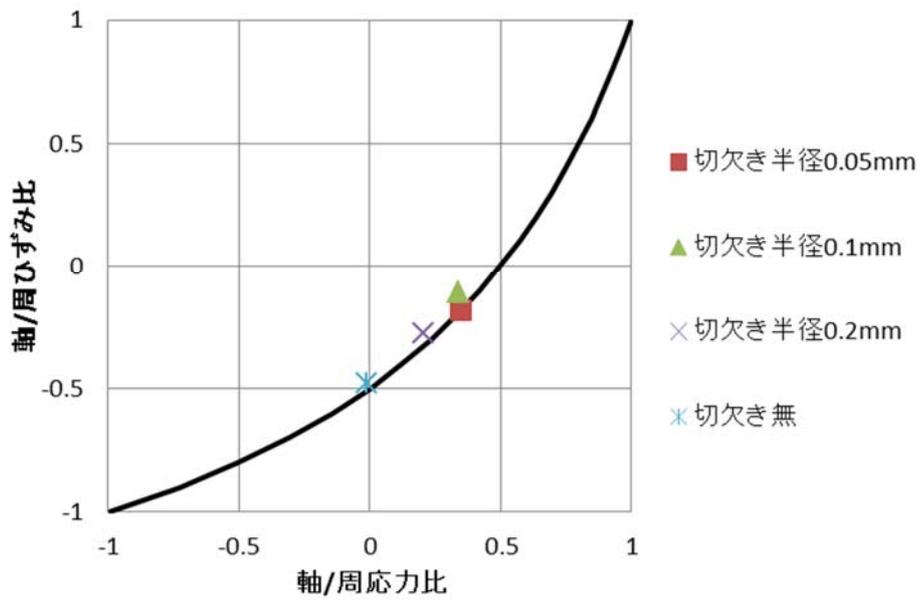


図 3.9.49 ひずみ比と応力比の関係

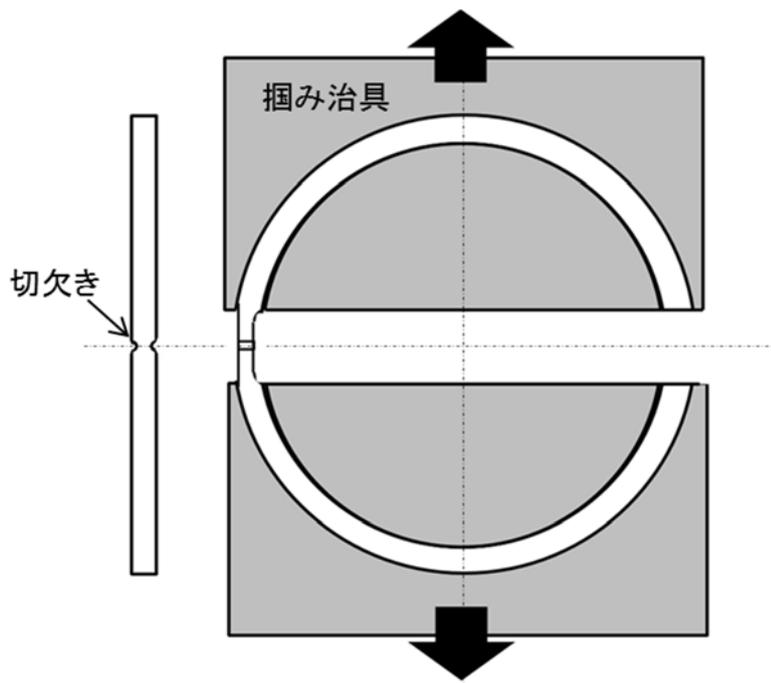


図 3.9.50 H27 年度多軸応力機械試験の試験体系の模式図

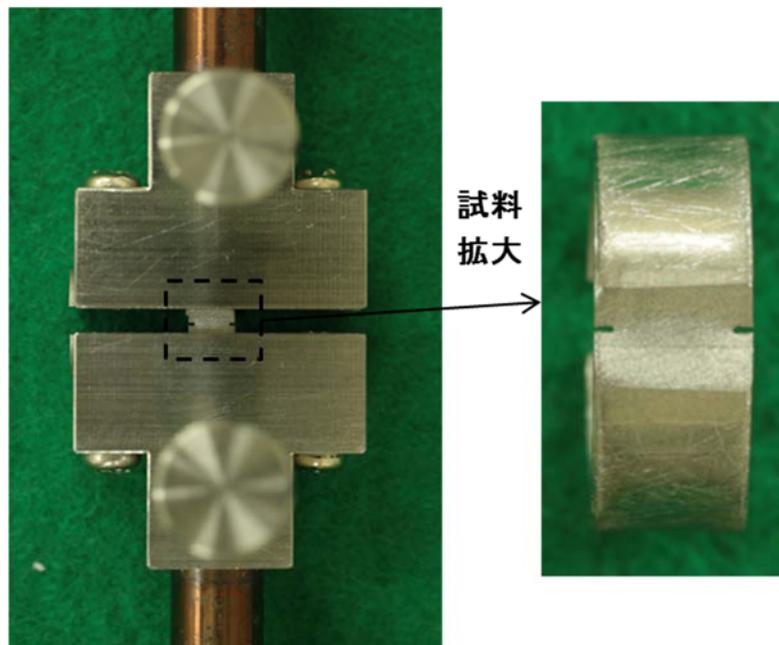
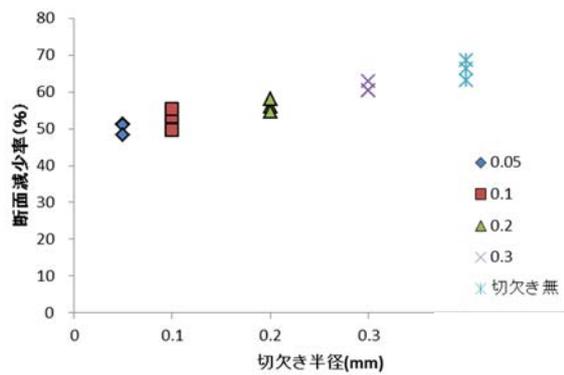
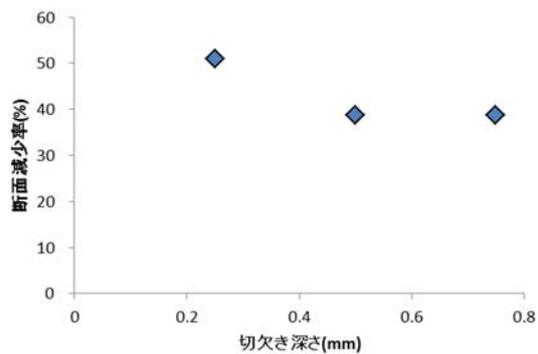


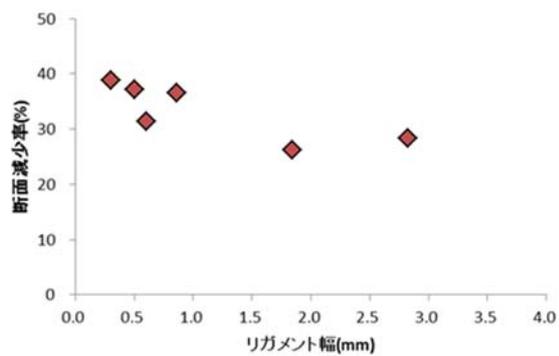
図 3.9.51 試験治具による試験片固定状況



(a) 切欠き半径依存性



(b) 切欠き深さ依存性



(c) リガメント幅依存性

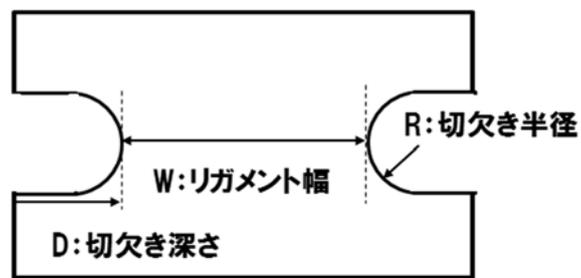
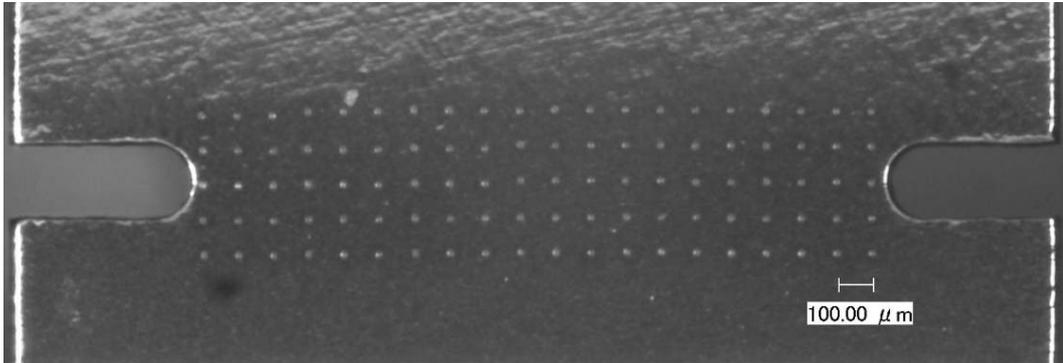
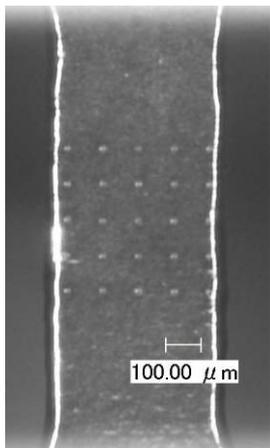


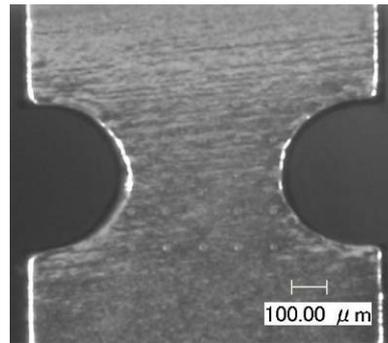
図 3.9.52 断面減少率と試験片寸法の関係



(a) 平面ひずみ試験片 ($R=0.1\text{mm}$ 、 $D=0.5\text{mm}$ 、 $W=2.0\text{mm}$)

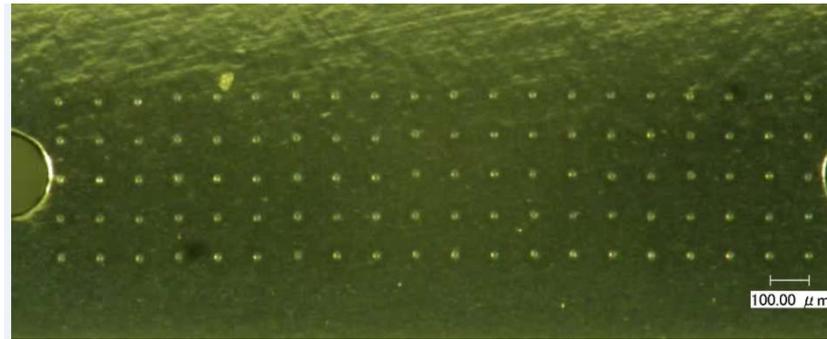


(b) 単軸試験片

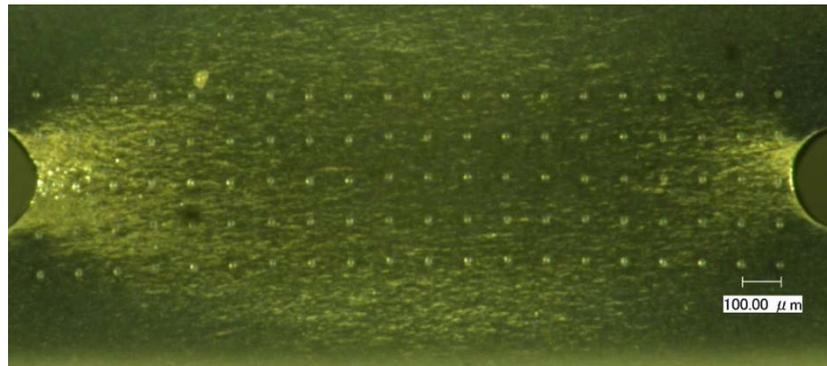


(c) 中間試験片
($R=0.2\text{mm}$ 、 $D=0.25\text{mm}$ 、 $W=0.5\text{mm}$)

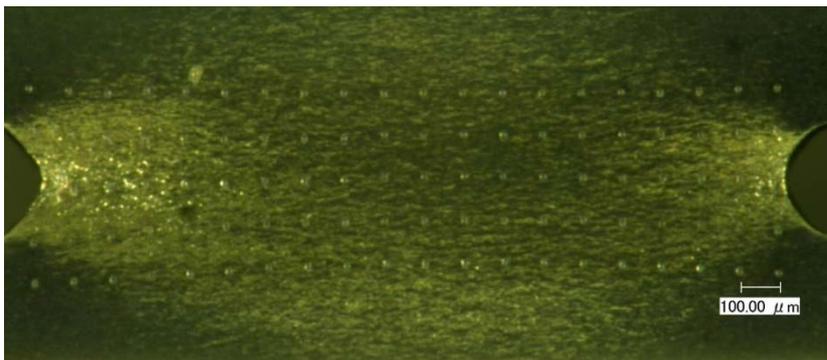
図 3.9.53 試験前外観状況の例



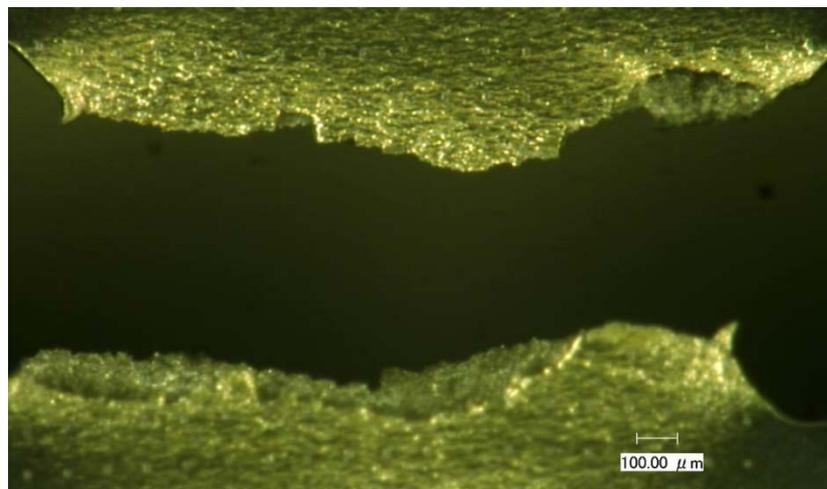
(a) 試験前



(b) 最大荷重時



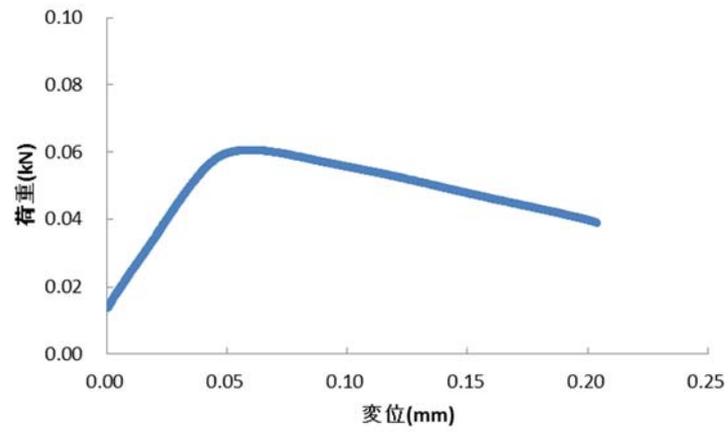
(c) クラック発生時



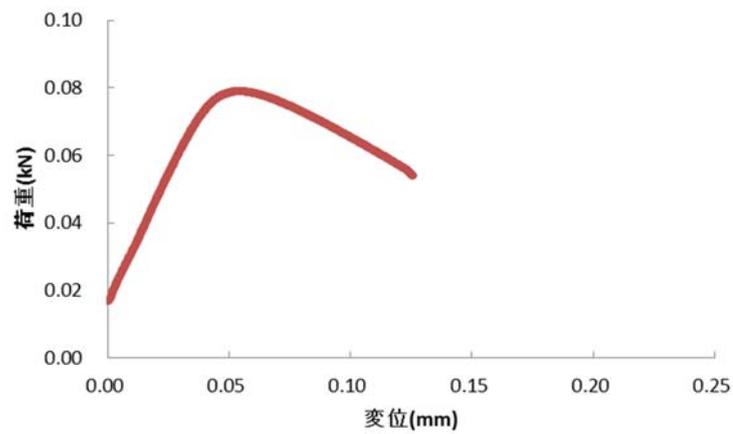
(d) 破断後

画像記録間隔：15コマ/秒

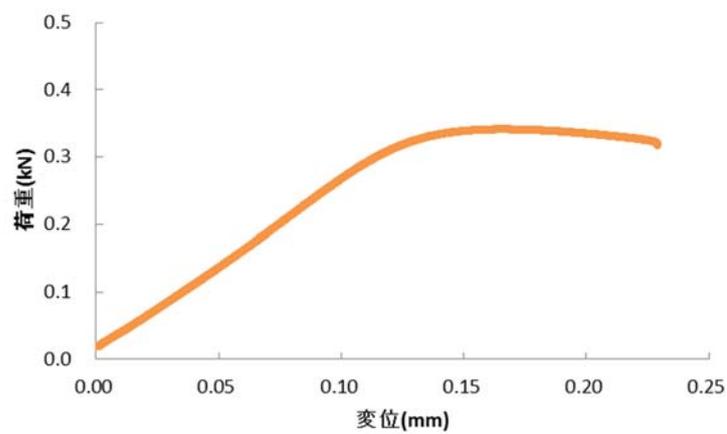
図 3.9.54 試験片の変形過程



(a) 単軸引張試験片

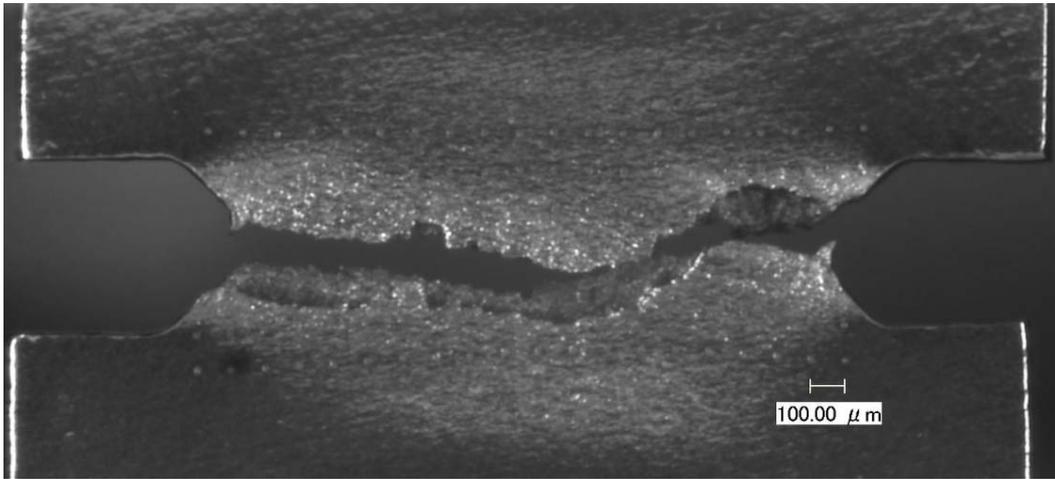


(b) 中間試験片

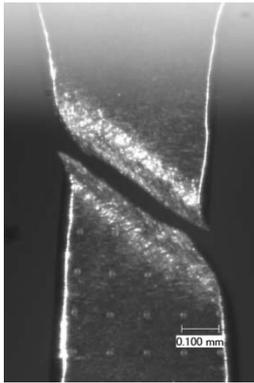


(c) 平面ひずみ試験片

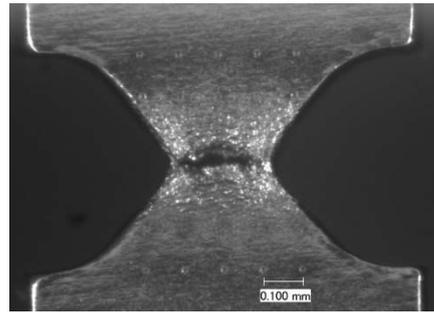
図 3.9.55 荷重-変位線図



(a) 平面ひずみ試験片

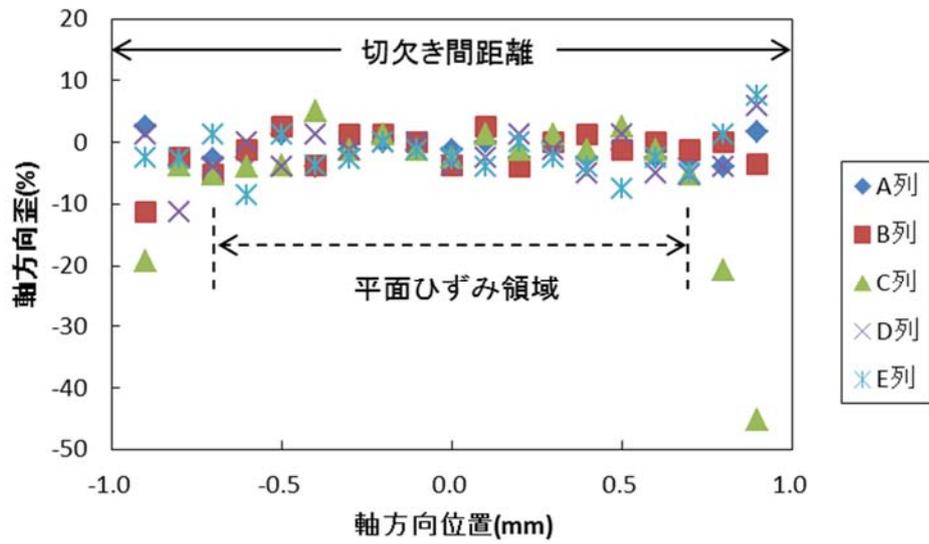


(b) 単軸試験片

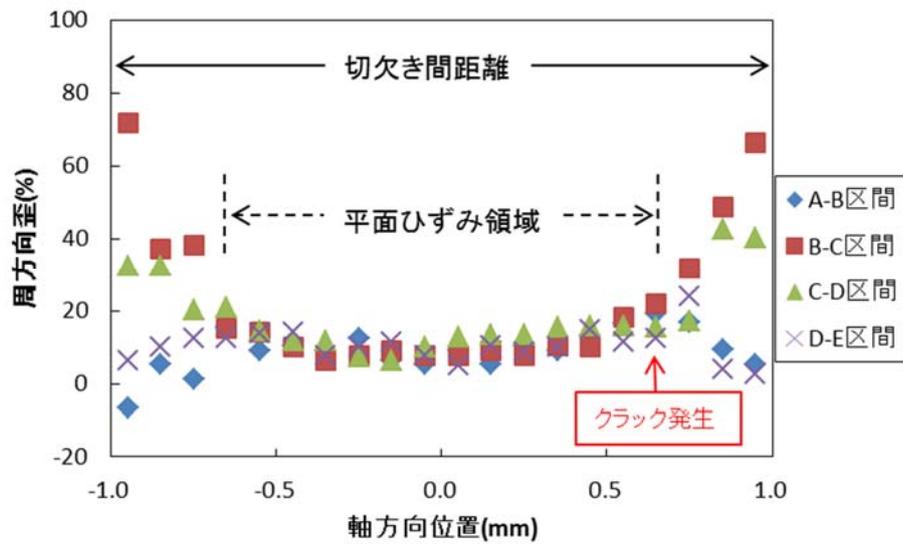


(c) 中間試験片

図 3.9.56 試験後試験片の外観状況の例



(a)軸方向ひずみ分布



(b)周方向ひずみ分布

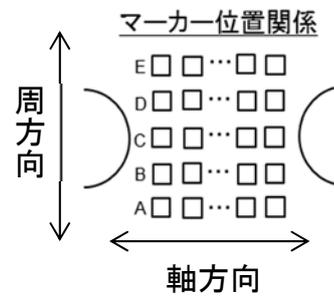
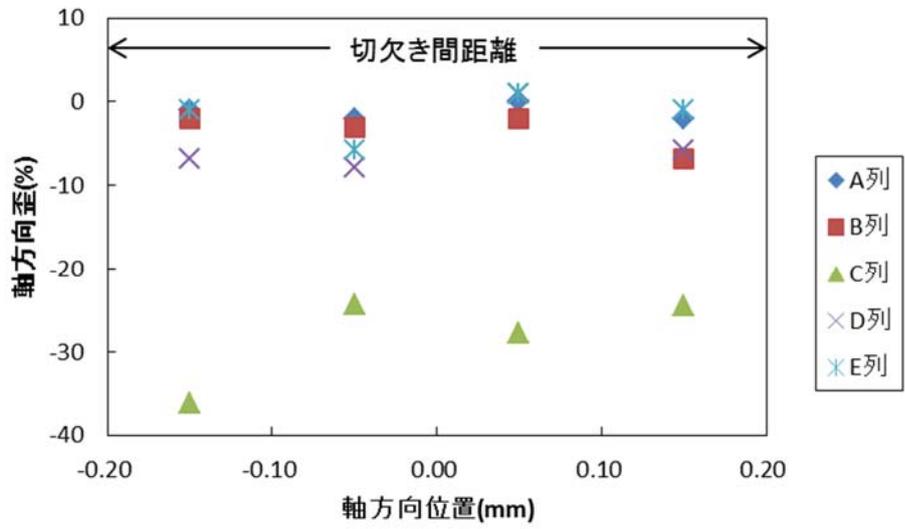
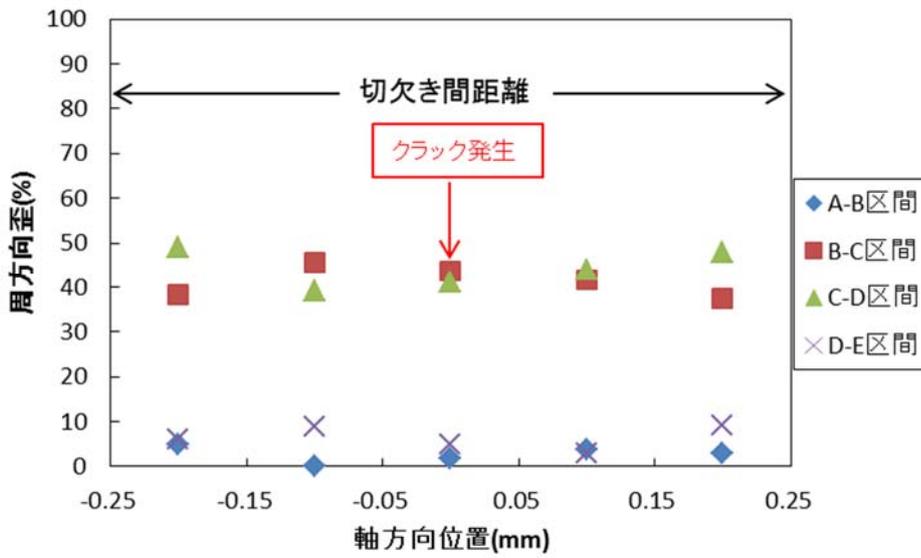


図 3.9.57 クラック発生直前における平面ひずみ試験片のひずみ分布測定結果



(a)軸方向ひずみ分布



(b)周方向ひずみ分布

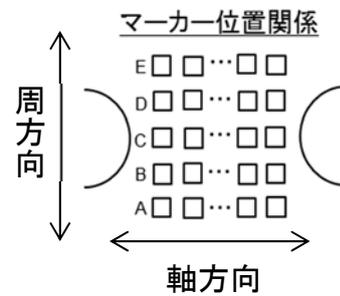


図 3.9.58 クラック発生直前における中間試験片のひずみ分布測定結果

Table 1
States of stress relevant to the mechanical testing for RIA (assuming isotropic plasticity).

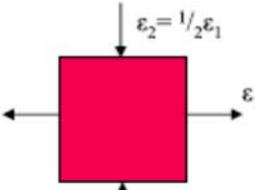
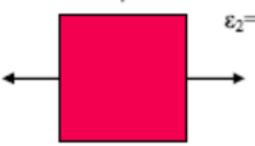
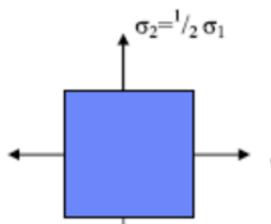
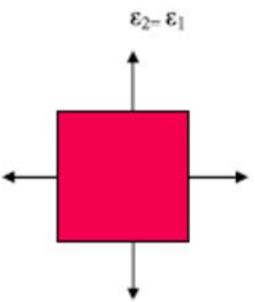
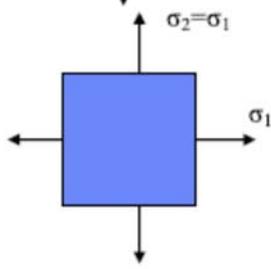
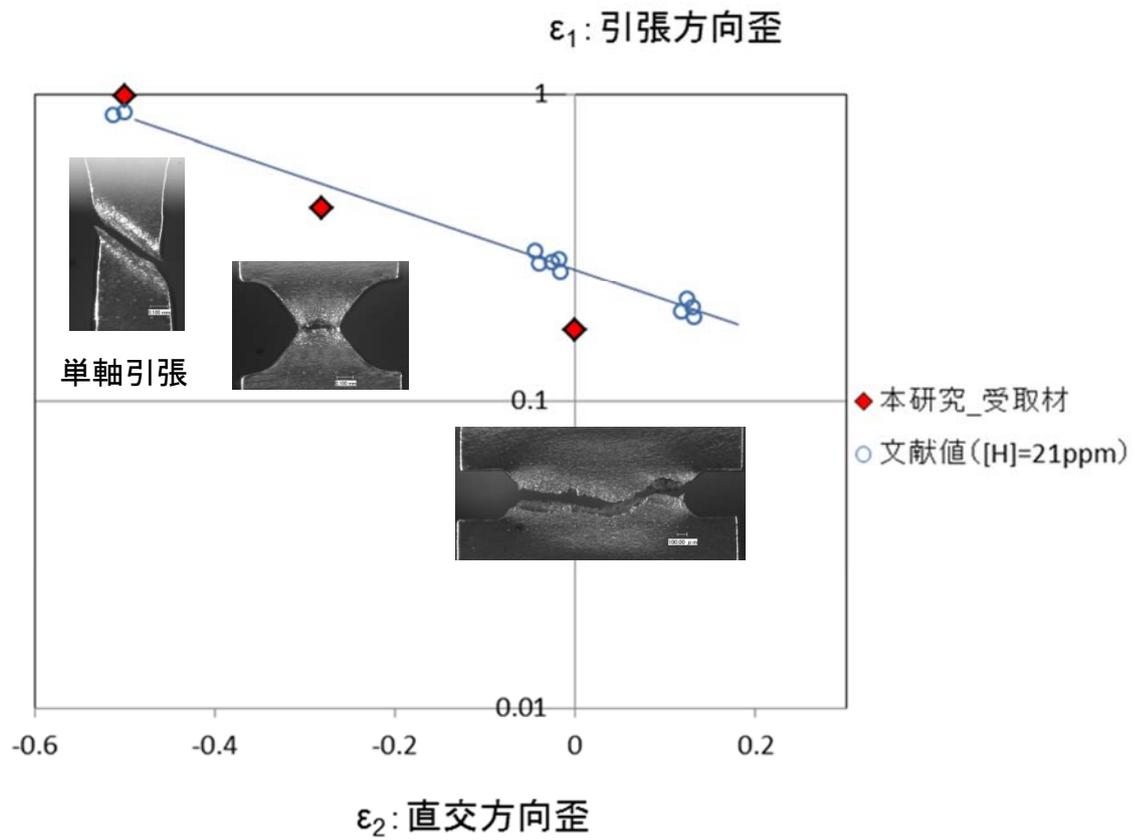
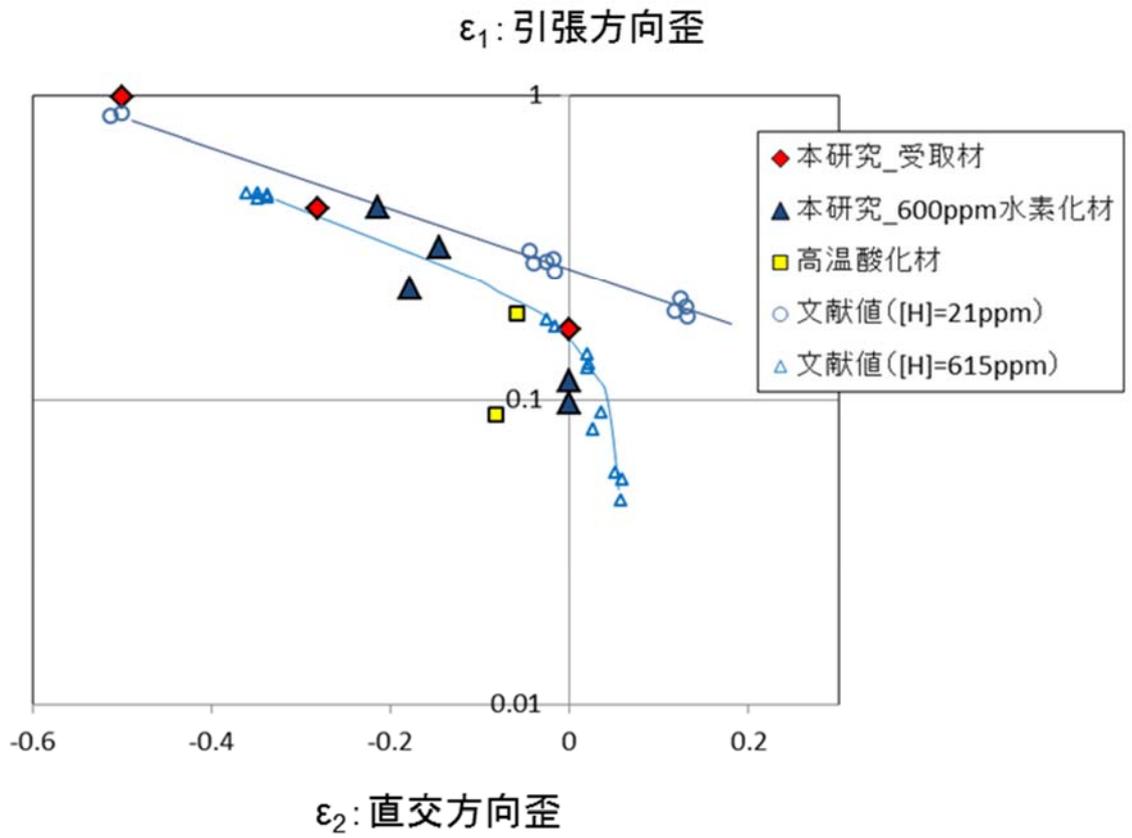
State of stress	Strain	Stress
Uniaxial tension		
Plane-strain tension		
Equal-biaxial tension		

図 3.9.59 ひずみ比と応力比の関係^[3.9.3]



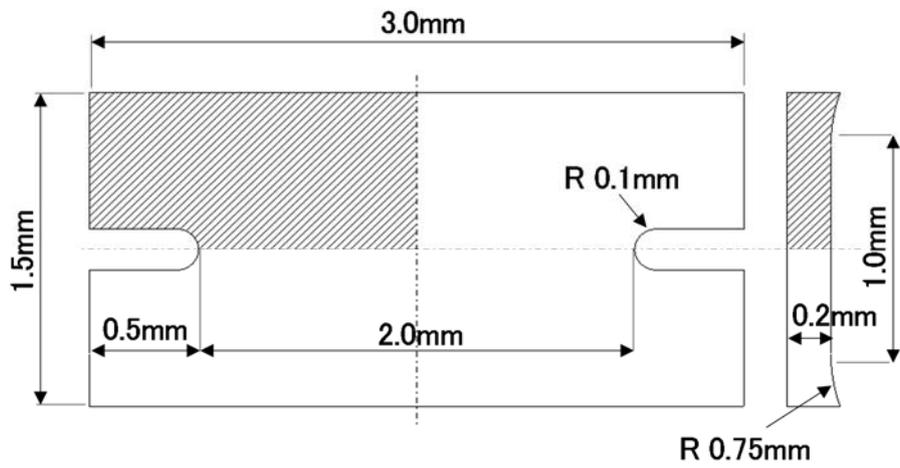
本研究の受取材の単軸引張の破壊ひずみ () は、断面減少率断面減少率 () の値を用いて、 $\ln(1/(1-))$ より導出

図 3.9.60 多軸応力度の変化と破壊ひずみの関係 (受取材)

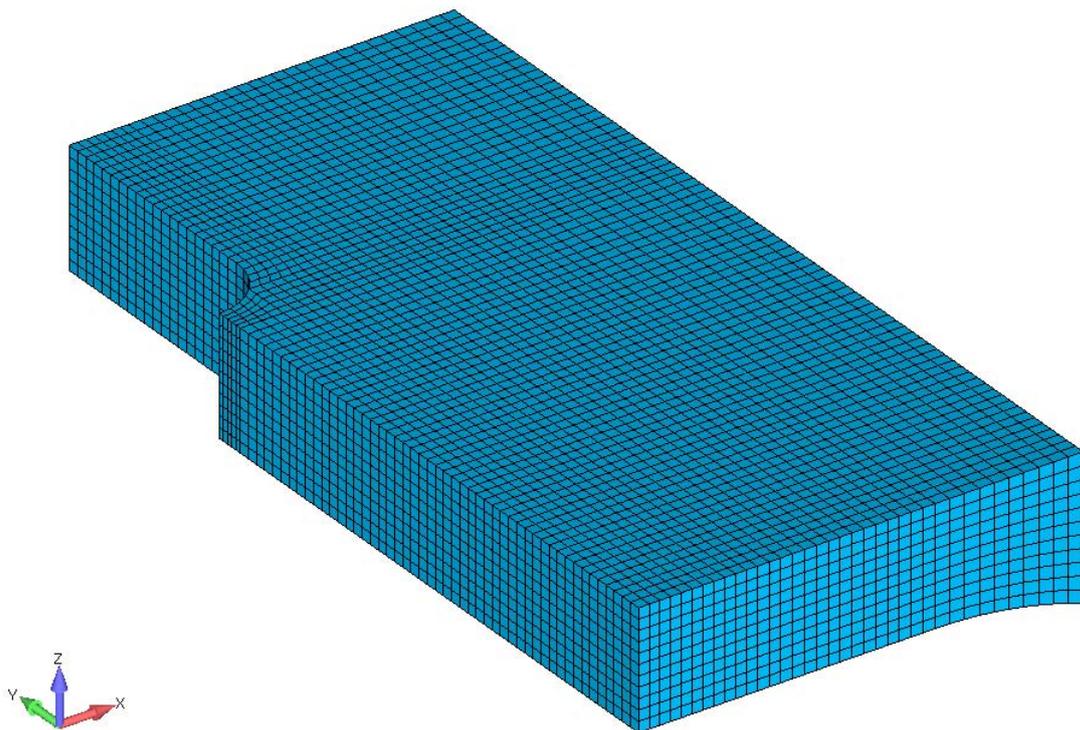


本研究の受取材の単軸引張の破壊ひずみ () は、断面減少率断面減少率 () の値を用いて、 $\ln(1/(1-))$ より導出

図 3.9.61 多軸応力度の変化と破壊ひずみの関係 (受取材、水素化材、高温酸化材)

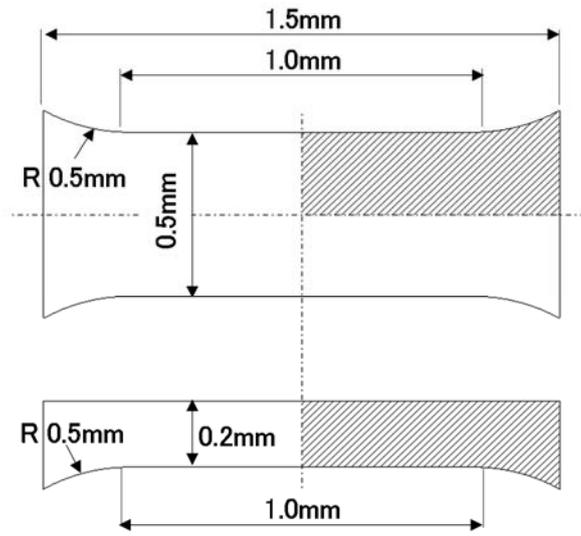


(a) モデル寸法

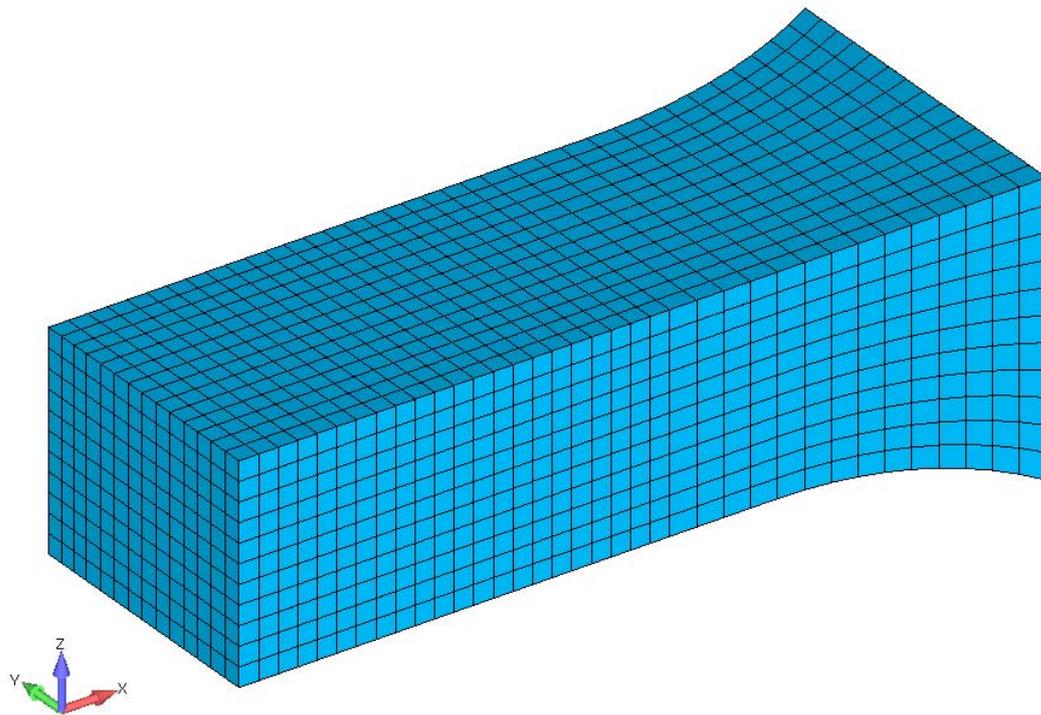


(b) モデル外観

図 3.9.62 平面ひずみ試験片の解析モデル



(a) モデル寸法

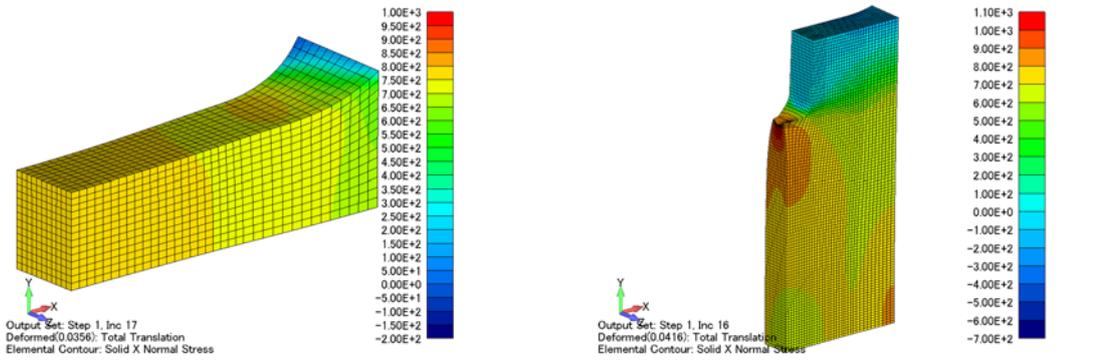


(b) モデル外観

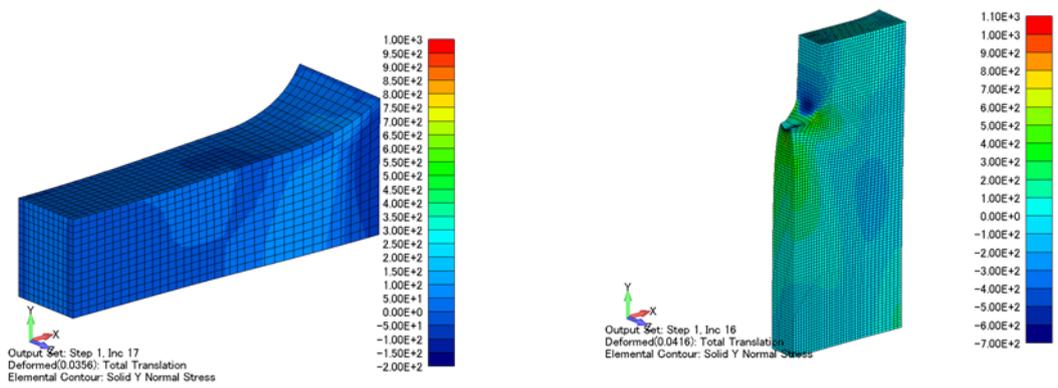
図 3.9.63 単軸試験片の解析モデル

単軸試験片

平面ひずみ試験片



(a) 周方向応力



(b) 軸方向応力

図 3.9.64 最大荷重時の応力分布

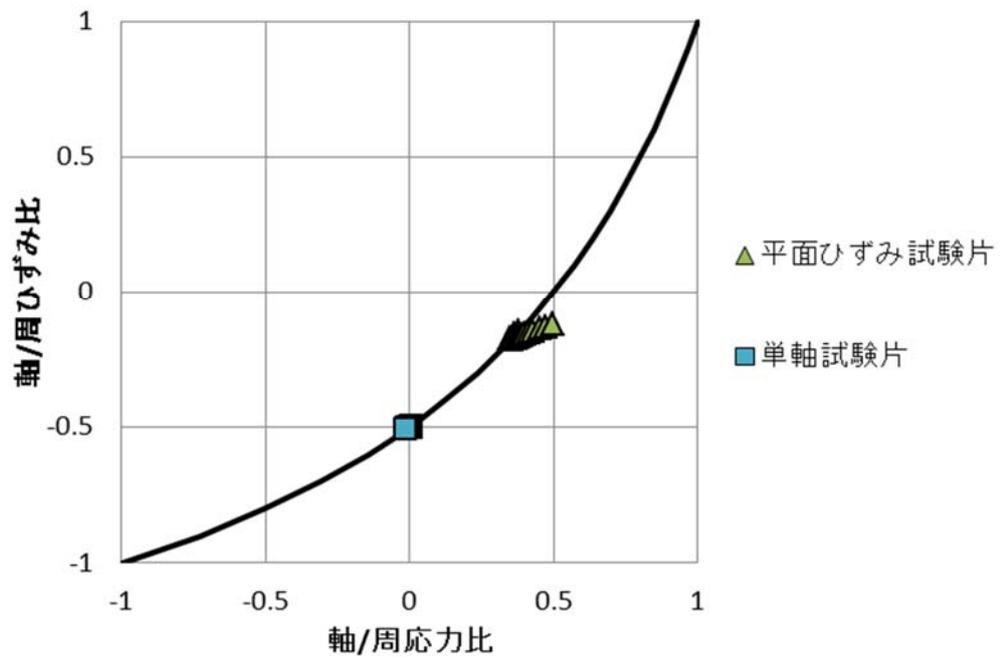


図 3.9.65 ひずみ比と応力比の関係

3.10 SEM/EBSD 観察

3.10.1 背景と目的

ジルコニウム合金からなる被覆管は酸化、水素化、照射等により劣化し、強度が低下する[3.10.1]。特に水素化によって生じるジルコニウム水素化物は非常に脆く、被覆管の半径方向に析出した場合は管の強度が著しく劣化する。このため被覆管の製造においては水素化物が円周方向に配向するよう集合組織が形成されており、六方晶構造を持つ α ジルコニウムの c 軸が半径方向を向き、水素化物は主に周方向に析出する。しかし周方向に引張応力がかかったときの再配向などにより、一部の水素化物が半径方向に析出すると、脆化の原因となる。

この強度の劣化の程度についてはこれまで巨視的な評価がなされているのみであり、水素化物の配向を含む微細組織に基づいた微視的かつ定量的な評価はなされていない。同じ水素吸収量でも配向によっては倍程度引張強度や伸びが異なるという報告もあり[3.10.2]、定量的な評価方法の確立が望まれている。水素化物が析出した被覆管に応力が付加されたとき、どのように水素化物近傍の合金母相粒の応力・ひずみ状態が変化し、破断に至るかの条件を評価することができれば、水素化に伴う強度劣化の大きな知見になると考えられる。以上から、本節では後方散乱電子回折パターン (Electron Backscattering Diffraction pattern, EBSD) 法を用いて、Zr-Nb 合金機械試験材の局所的なひずみ量、また破断に至る応力等の評価を試みた。

EBSD 法によるひずみ量評価には鉄系合金を中心に多数報告されており、様々な指標がひずみ量と比例するとされている[3.10.2-3.10.6]。一方で、ジルコニウム合金についてひずみ量を定量的に調査した例はない。本研究では昨年度に引き続き東北大学にて改良型中子拡管 (AEDC) 試験を施したひずみ量既知の引張試験材について観察を行い比較することで、ひずみ指標と実際のひずみ量の関係を定式化した。その後腐食材、また水素化後に AEDC 試験を行い破断させた試料を観察し、水素脆化についての知見を得ることを目的とする。

3.10.2 実験方法

・ 試料調整

観察試料はいずれも NDC/MNF により製造・提供された Zr-2.5Nb 合金被覆管を切断して得られた、厚さ 1 mm のリング材である。これに対して東北大学で開発された AEDC 試験を施し、ひずみ量を 16 %および 21 %に調整した試料を提供頂いた。これらリング試料を切断し、導電性樹脂埋め後に軸方向に垂直な面についてクロスセクションポリッシャー (日本電子データム製, CP) によって表面研磨処理を行った。また 8500 時間の PWR 模擬条件腐食材についても同様に表面処理と観察を行った。また NDC/MNF にておよそ 1000 ppm の水素を吸収させた Zr-2.5Nb 材を AEDC 試験により破断させた試料についても同様の処理および観察を行った。破断試験材の外観と観察面を図 3.10.1 に示す。観察面は被覆管軸方向に垂直な面であり、いずれも半径方向に対して中央付近を対象とした。

・ EBSD 観察

得られた研磨面について、FE-SEM(日本電子製, JSM-6500F)附属の EBSD カメラを用いて後方散乱電子回折パターンを検出し、結晶構造および結晶方位の推定を行った。解析には OIM Analysis ver.6.2 を用いた。EBSD 観察では、試料ごく表面近傍での回折電子線から得られた、菊池パターンと呼ばれる信号から結晶方位等の情報を得る。EBSD 法による結晶方位評価の概略を図 3.10.2

に示す。EBSD 法では得られた菊池パターンを様々に処理し、結晶構造ごとに決定されるパターンに当てはまるかどうかを判定することでその結晶方位を決定する。まったく未知の物質の評価は難しく、通常は予想される物質の結晶構造を入力しておく必要がある。ここで Zr-Nb 合金において主に存在する物質はマトリクスである α -Zr のほか、微細な析出物として β -Nb や Zr-Nb-Fe 化合物、また腐食材では δ -ZrH_x 水素化物の形成が考えられる。しかし評価対象が多いと相の推定が困難になり、また今回は試料のひずみ量が大きく相の取り違えが起きやすいこと、またひずみ評価のため微細な方位差を求める必要があることから、析出物は対象とはせず、 α -Zr 相のみを評価対象とした。また加速電圧は 30 kV とし、倍率は 5000 倍のときはステップサイズを 0.1 μm 、2000 倍のときは同サイズを 0.2 μm とした。また、一部の試料についてはより高精度な評価手法 [3.10.7] として解析ソフトウェア CrossCourt および解析用 PC を購入し評価に用いた。

・EBSD 法によるひずみ量評価

EBSD 法によるひずみの定量的評価は鉄系材料を中心に幅広く行われており、様々な指標が用いられている。菊池パターンの強度・鮮明さを表わすイメージクオリティ (Image Quality, IQ)、局所方位差 KAM (Kernel Average Misorientation)、局所方位差平均 GAM (Grain Averaged Misorientation, GAM)、結晶粒方位分散 GOS (Grain Orientation Spread, GOS) などがある。平成 26 年度における観察から、KAM、GAM、GOS はいずれもひずみ量と相関があるように見られたが、図 3.10.3 に示す通り特に GOS が比較的良好な傾向を示した。このため今年度は EBSD 法によるひずみ量の指標として GOS を用いることとして、KAM は参考として示すのみとする。なお KAM はあるピクセルと接しているピクセルとの方位差を足し合わせ平均をとったものであり、ピクセルごとに定義される局所的な方位差である。本解析では 5 度以上方位差がある場合は粒界と見なしたため、KAM 値は最大でも 5 度となる。同一粒内のすべてのピクセル間の方位差をとって平均したものが GOS であり、粒ごとに定義される。粒内の離れたピクセル間の方位差を考慮するため、広範囲のひずみを評価できる指標とされている。KAM、GOS の評価手法概略を図 3.10.4(a)(b) に示す。ひずみ量既知の試料について、数視野の GOS 平均値を評価し、実際のひずみ量と比較することでこれらひずみ指標とひずみ量の関係式を求めた。また、破断させた試料については全体の観察に加え、破断面に接する粒の GOS 値を評価した。

3.10.3 結果と考察

・ひずみ指標との比較

ひずみ量 16 %、21 %とした AEDC 試験試料の IQ マップ、結晶方位を示す逆極点図 (結晶方位) (Inverse Pole Figure, IPF) マップ、IQ+KAM マップおよび IQ+GOS マップをそれぞれ図 3.10.5 および図 3.10.6 に示す。それぞれ数視野観察したなかの 2 視野ずつを示した。画像の横方向が被覆管の円周方向、縦方向が半径方向に対応しており、AEDC 試験では円周方向に応力が付加されている。なおクリーンアップ処理およびローテーションは行っていない。観察面の結晶面は柱面が主に見られているが、昨年度のひずみ 10.5 %以下の試料と比較すると赤で示される底面に近い方位の面の割合が大きくなっている。これは双晶変形等に伴うものと思われる。またそれぞれの粒内で方位に相当する色の変化が表れており、塑性ひずみによる方位変化が見て取れる。図 3.10.7 に粒径の分布、表 3.10.1 にその平均を示す。粒径は面積から円と換算し、その直径で評価している。粒径の分布は他の試料とほぼ変わらず、ひずみを含まない試料で平均粒径 2.7 μm

に対し、ひずみ量 16 %、21 %試料でそれぞれ 2.7 μm 、2.9 μm と大きな差は見られなかった。

図 3.10.8 には KAM の分布を、その平均値を表 3.10.1 に示す。分布はひずみ量が大きくなるほどブロードに、かつ高い側にシフトしており、また平均値が増加していることがわかる。図 3.10.9 には同様に GOS の分布、平均値を表 3.10.1 に示している。KAM と同様に、ひずみ量とともにブロードに、かつ値が大きくなっていることがわかる。GOS について、各視野での値を組成ひずみ量ごとにプロットしたものを図 3.10.10 に示す。昨年度までの結果を合わせ、21 %のひずみ量まで GOS 値と塑性ひずみ量の間に関係が得られていることがわかる。フィッティングにより、GOS とひずみ量 $\varepsilon(\%)$ との間で下記の線形関係があることを確かめた。

$$\text{GOS}_{\text{ave}}[\text{度}] = 0.143 \varepsilon[\%] + 0.251, R^2=0.983$$

相関関数 R の二乗の値も 0.986 と高く、この式をもって局所的な粒ごとのひずみ量を評価できると考えられる。

・腐食試料

Zr-2.5Nb を 8500 時間腐食させた試料の 2000 倍、5000 倍で観察した IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップおよび IQ+GOS マップをそれぞれ図 3.10.11(a)(b)に示す。ところどころに IQ マップ上で黒く表示される領域があり、これまでの観察例からこれが水素化物と思われる。8500 時間の腐食でも水素化物の量は少ないが、わずかに見えた部分について 5000 倍で見た図 3.10.11(b) についての IQ+GOS マップを見てみると、水素化物に隣接している粒の GOS 値が有意に高くなっている。他に高い GOS 値を示す粒もところどころに見られるが、連なった水素化物に沿って高い GOS 値を示す領域が見られていることから、これは水素化物形成時の体積膨張に伴うひずみと思われる。ただこの値はそれほど大きくはなく、GOS にして最大でも 1~1.5 度程度であり、前述の式からは 5 %程度以下の塑性ひずみに相当する。このように、水素化物形成に伴う隣接 Zr 粒のひずみ量を定量化できた。

・水素化 + 破断試料

図 3.10.12 に水素化後に AEDC 試験を行い破断させた試料について、破断面から離れた部分で EBSD 観察を行ったときの 2 視野分の各マップを示す。これまでの観察例から、IQ マップ上で粒界以外のある程度以上の厚さを持った黒色の部分が水素化物と思われる。KAM、GOS 値はこの水素化物の分布と関連はないように見える。これは水素化物形成によるひずみ量が数%以下であるため、このような大きいひずみ量を有する試料では GOS 値等の増加が埋もれてしまったものと思われる。

続いて図 3.10.13 に、破断部近傍での各マップを示している。本観察において垂直方向から見た破断面は大きく二通りに分かれる傾向が見られており、ひとつはその破断面が滑らかな部分であり、もう一方は粗くなっていた。前者の例を図 3.10.13(a)に、後者を同図(b)に示している。IQ 値が非常に低く、信頼性はそれほど高くないと考えられる。まず IPF マップから破面に接している粒の結晶方位を見た。図 3.10.13 の IPF マップの右横に、破面に接するいくつかの粒の方位を六方晶のかたちで示している。水素化物の癖面関係などとの関係があるか考えたが、ここでは粒はほぼランダムな方向を向いているように思われ、また滑らかな部分と粗い部分のあいだの差異も見られない。強いて言えば破面は(01-12)、(01-11)面などを向いているものが多いようにも思える

が、単に集合組織のよるものようでもあり、はっきりしない。また KAM の分布については赤（5度）で示された部分が粒界に大きく偏っているように見えるが、これは IQ 値が低く、結晶方位がランダムになっている部分であり、ひずみに起因するものとは言えない。GOS 値については、破面に接する粒の平均 GOS を次に示す方法で算出した。まず破面にほぼ平行となるよう直線を引き、そこでの GOS 値分布を求めた。それぞれの分布を IQ+GOS マップの右横に示している。これを長さで重みづけすることで平均値を求めた。得られた平均 GOS 値は、ばらつきが大きいものの滑らかな部分では 2.2~3.2 度、粗い部分では 3.2~4.2 度となり、差が見られた。前述の式から前者は 13~20 %、後者は 20~28 %の組成ひずみ量に相当する。

ここで GOS 値に差が見られた理由について、近傍の水素化物の有無が関係していると考えた。半径方向に分布した水素化物を含む試料に引張応力をかけ破断させた際、まず脆い水素化物が存在する界面からクラックが形成し、これが起点となって破断するものと思われる。水素化物が割れたのち、他の部分は延性的に破壊するため、破面は脆性破面と延性破面が混在する。この概略を図 3.10.14 に示す。こうした破面の混在は他の水素化物を含む被覆管の破損でも見られている [3.10.8]。以上から、EBSD 観察で見られた二つの破面について、滑らかな部分は水素化物に隣接しており初期に脆性的に破断した面、粗い部分はそののちに延性的に破断した部分と考えた。このため前者のひずみ量は、局所的な水素化物を有する界面が割れるときの応力に対応していると思われる。図 3.10.15 には Zr-2.5Nb 材と同じく再結晶材である Zry-2 の簡略化した真応力-真ひずみ関係を示している。ここから 13-20 %の塑性ひずみに対応する引張応力はおおよそ 500~550 MPa となる。これは周囲を Zr 粒に囲まれた水素化物を含む界面が割れるときの局所的な引張応力に相当すると考えられる。

以上から、ひずみ量既知の AEDC 試験材の観察から EBSD 観察による定量的な局所ひずみ量評価の手法を確立し、これをもとに水素化物形成に伴うひずみ量、また水素化物を含む界面が割れるときの局所引張応力の値を推定した。これは水素脆化を評価する一つのパラメータになると考えられる。例として図 3.10.16 に初期き裂を含む Zr 板の FEM 解析結果を示す。解析には ABAQUS Student Edition ver.6.14 を用いた。図 3.10.15 に示した Zry-2 の機械特性およびき裂進展の臨界応力として 500 MPa を入力することで、おおよそ周方向応力が 350 MPa となったときに水素化物が割れはじめ、き裂進展部に接した部分では 10~50 %の塑性ひずみが形成された。得られた局所ひずみ評価手法や破壊に関するパラメータは、このような破断の解析や破断後の組織観察に用いることができると考えられる。

3.10.4 まとめ

本節では Zr-2.5Nb の厚さ 1 mm のリング材について、東北大学にて AEDC 試験を行ったひずみ量既知の試験材、8500 時間腐食材、1000 ppm 水素化後に AEDC 試験により破断させた試験材、それぞれについて EBSD 観察を行い、以下の結果を得た。

- ・昨年度に引き続きひずみ指標として GOS の平均値に着目し、この結果から既知ひずみ量 ϵ に対して以下の比例関係があることを確かめた。

$$GOS_{ave}[\text{度}] = 0.143 \epsilon[\%] + 0.251, R^2=0.983$$

試料のひずみ量を昨年度の 10.5 %までから 21 %まで拡大したことで、少なくとも 20 %程度までは粒ごとの局所ひずみ量の評価が可能となった。

- ・ 8500 時間腐食材の観察から、水素化物形成時に隣接する Zr 粒に最大 5 %程度の塑性ひずみを与えることがわかった。
- ・ 水素化・AEDC 試験材の観察から、二種類の破面が認められ、滑らかな側の破断面に沿った Zr 粒のひずみ量を 13~20 %と推定した。これは 500~550 MPa の引張応力がかかったことに相当する。

以上から SEM/EBSD 観察による Zr 合金被覆管の水素脆化の評価手法について、一定の知見を得ることができた。

参考文献

- [3.10.1] ジルコニウム合金ハンドブック, 日本機会学会編, 日刊工業新聞社, 1997.
- [3.10.2] H.C. Chu, S.K. Wu, K.F. Chien, R.C. Kuo, J. Nucl. Mater., 362 (2007) 93-103.
- [3.10.3] A.J. Wilkinson, D. J. Dingley, Acta Metal. Mater., 39 (1991) 3047-3055.
- [3.10.4] M. Kamaya, A.J. Wilkinson, J.M. Titchmarsh, Nucl. Eng. Design, 235 (2005) 713-725.
- [3.10.5] 木村英彦, Yun WANG, 秋庭義明, 田中啓介, 日本機械学会論文集(A編), 71 巻 712 号 (2005) 1722-1728.
- [3.10.6] 釜谷昌幸, J. Inst. Nucl. Safety System, 18 (2011) 181-197.
- [3.10.7] 鈴木清一, D. J. Dingley, 顕微鏡, 42, (2007) 89.
- [3.10.8] 例えば平成 22 年度 高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書, 独立行政法人 原子力安全基盤機構 など.

表 3.10.1 粒径およびひずみ指標の平均値

既知ひずみ量	平均粒径 (μm)	KAM 平均 (度)	GOS 面積平均 (度)
0 %	2.7	0.22	0.21
2.3 %	2.9	0.23	0.42
4.0 %	3.1	0.27	0.78
8.7 %	2.8	0.38	1.47
10.5 %	2.8	0.46	1.92
16 %	2.7	0.58	2.51
21 %	2.9	0.68	3.13

0～10.5 %試料については平成 26 年度報告書の値を再掲した

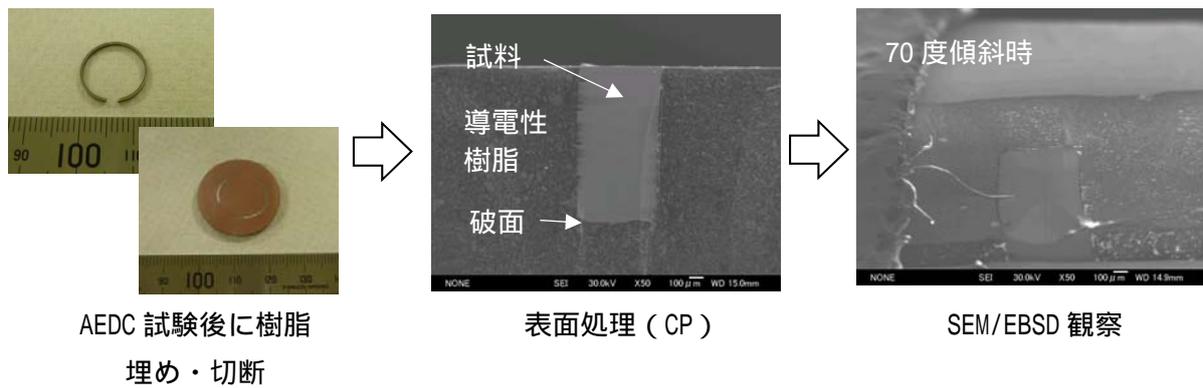


図 3.10.1 EBSD 観察における試料調整

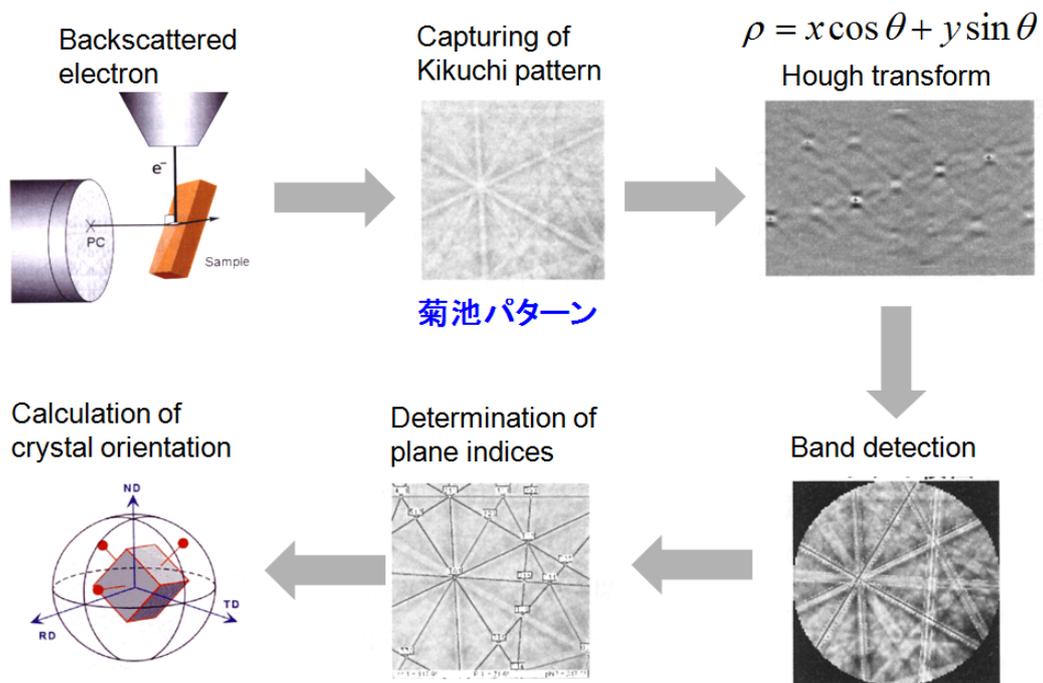


図 3.10.2 EBSD 法による結晶方位決定の流れ

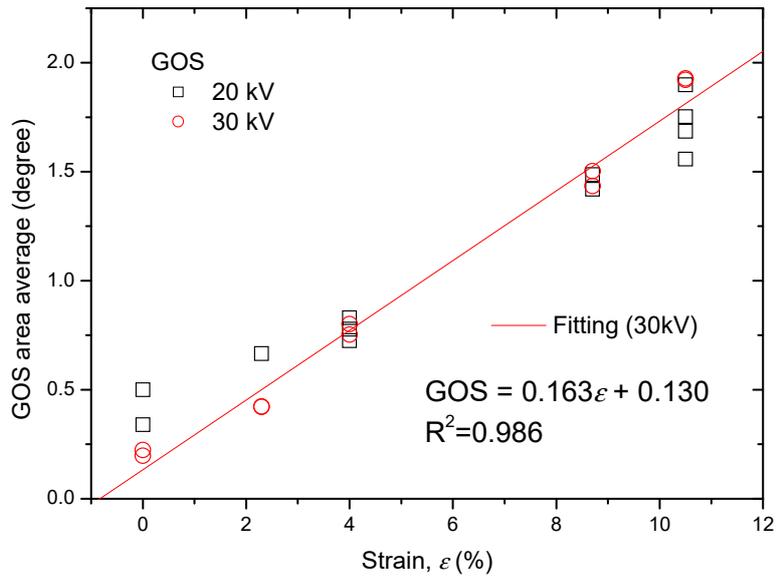


図 3.10.3 GOS 値と塑性ひずみ量の比較 (平成 26 年度報告書、再掲)

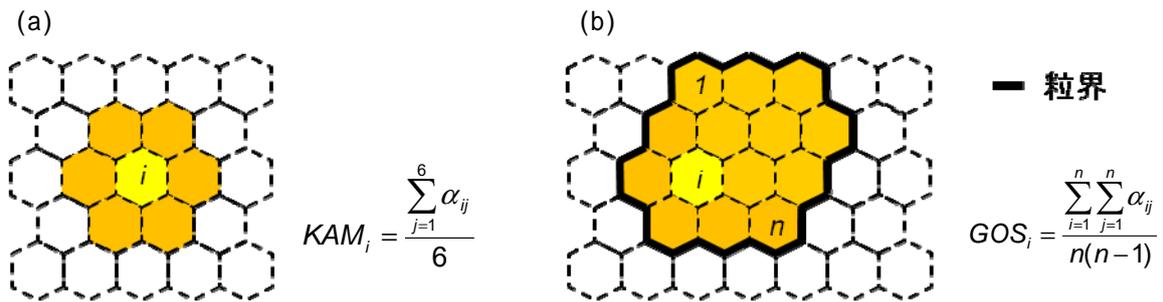
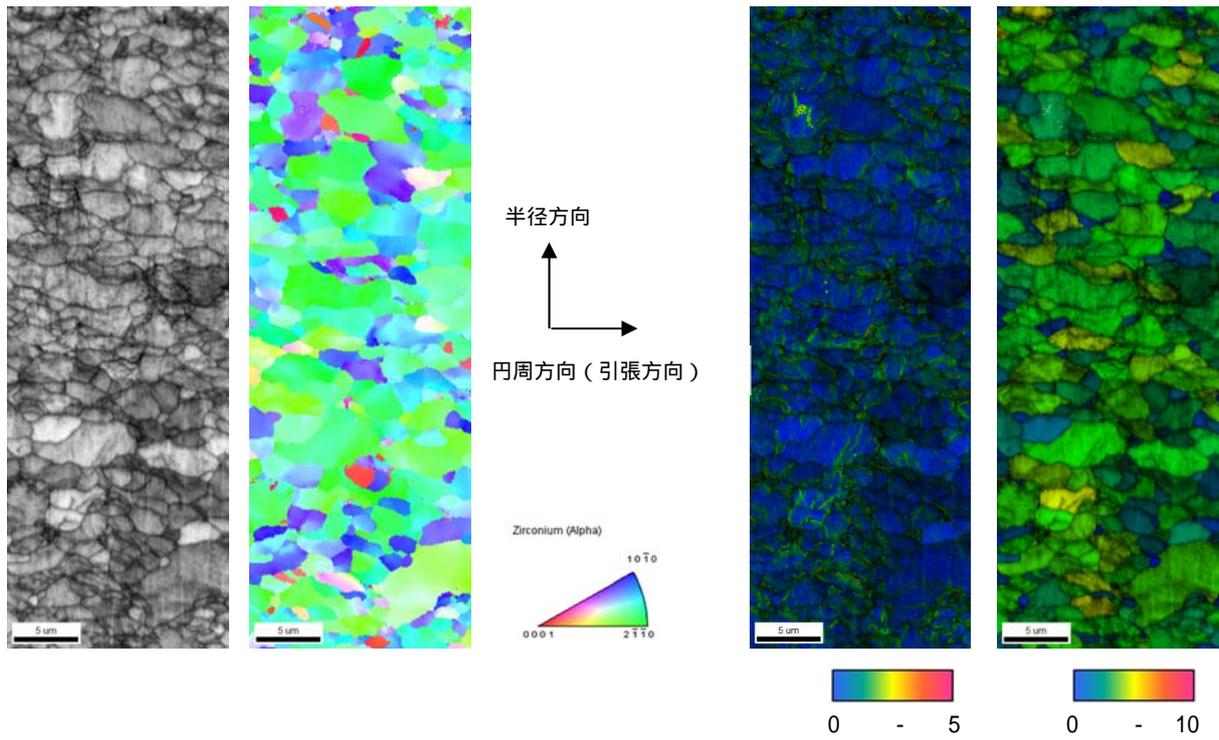


図 3.10.4 EBSD 法によるひずみ指標の評価手法 (a)KAM (b)GOS

AEDC 試験材 ひずみ量 16 % 左から IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップ、IQ+GOS マップ



AEDC 試験材 ひずみ量 16 % 左から IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップ、IQ+GOS マップ

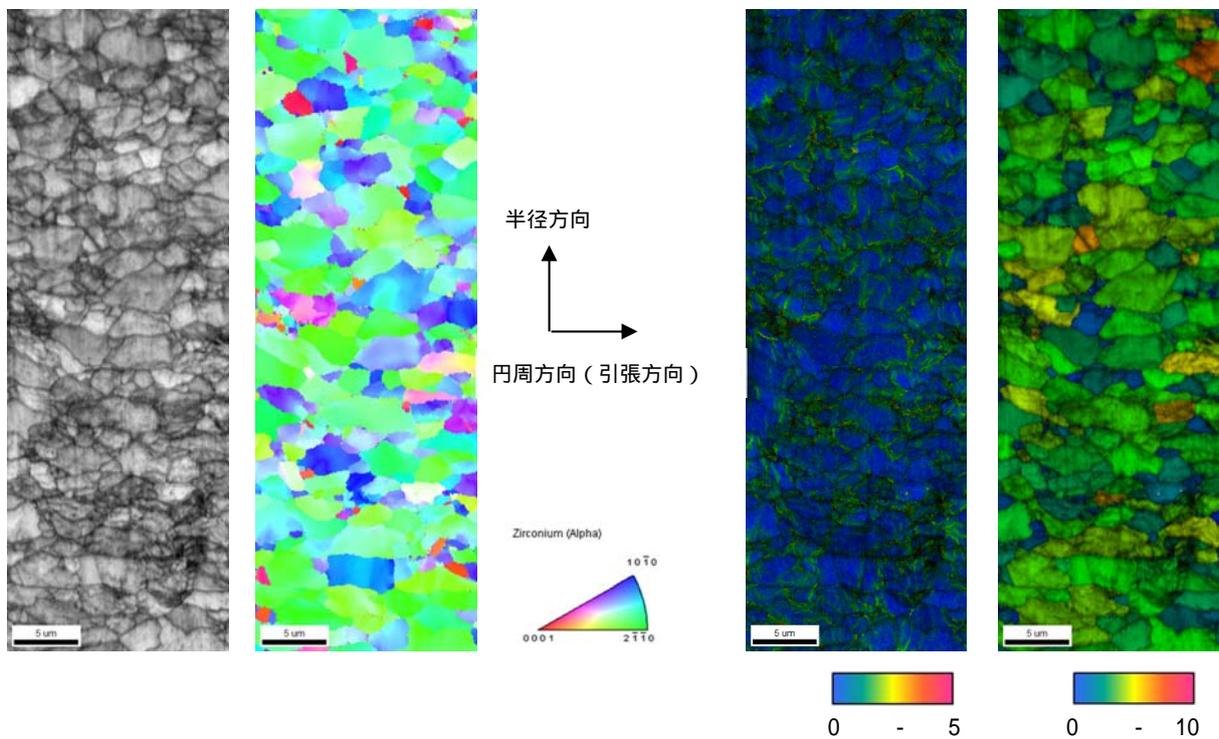
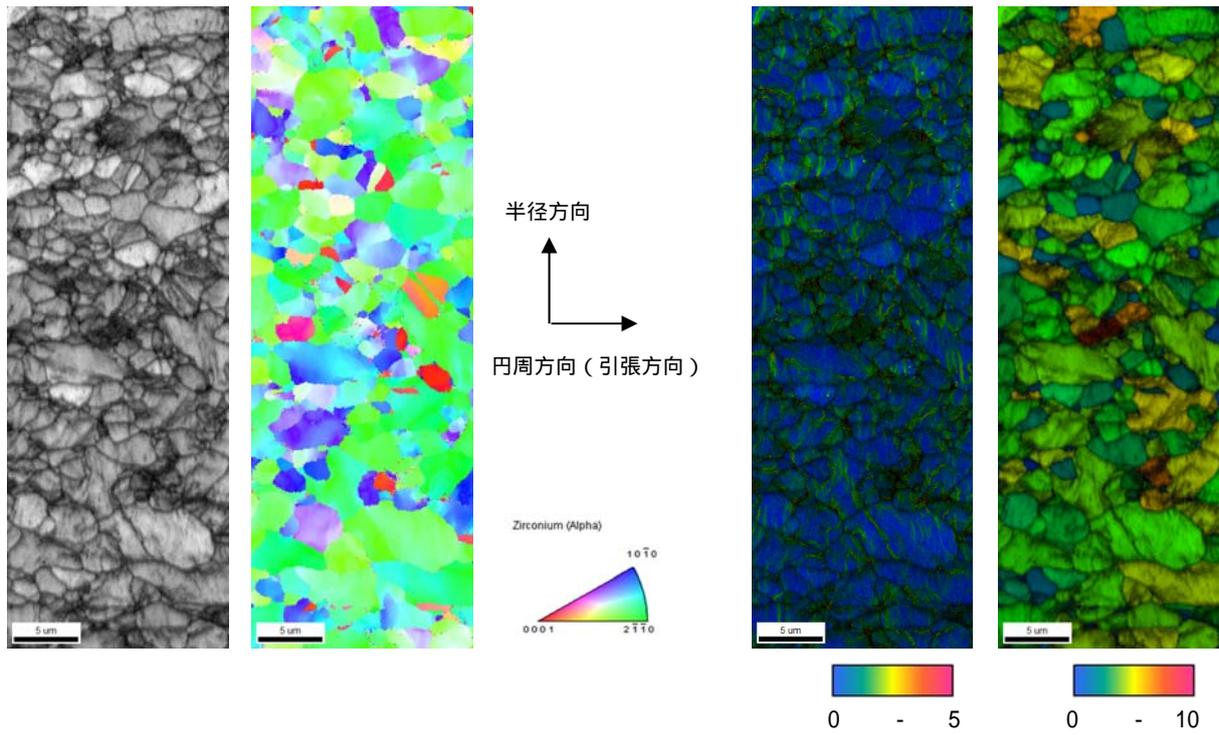


図 3.10.5 AEDC 試験材の EBSD 観察結果 ひずみ量 16 %

AEDC 試験材 ひずみ量 21 % 左から IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップ、IQ+GOS マップ



AEDC 試験材 ひずみ量 21 % 左から IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップ、IQ+GOS マップ

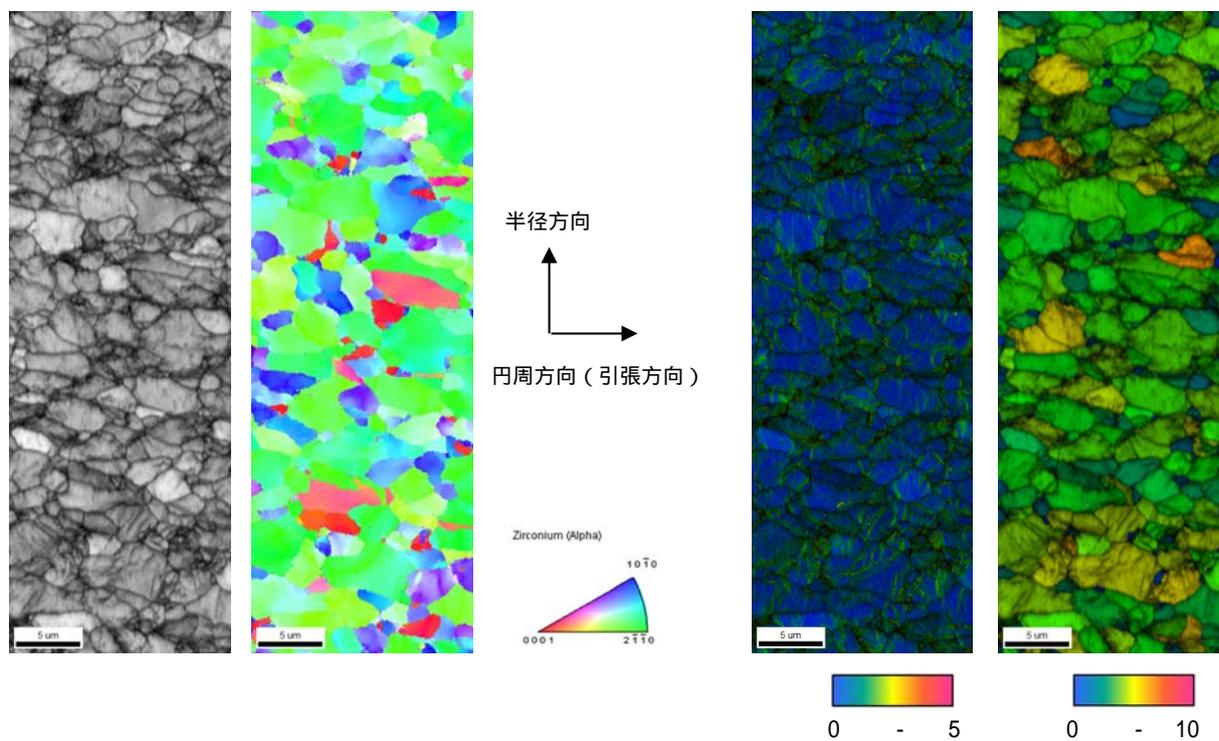


図 3.10.6 AEDC 試験材の EBSD 観察結果 ひずみ量 21 %

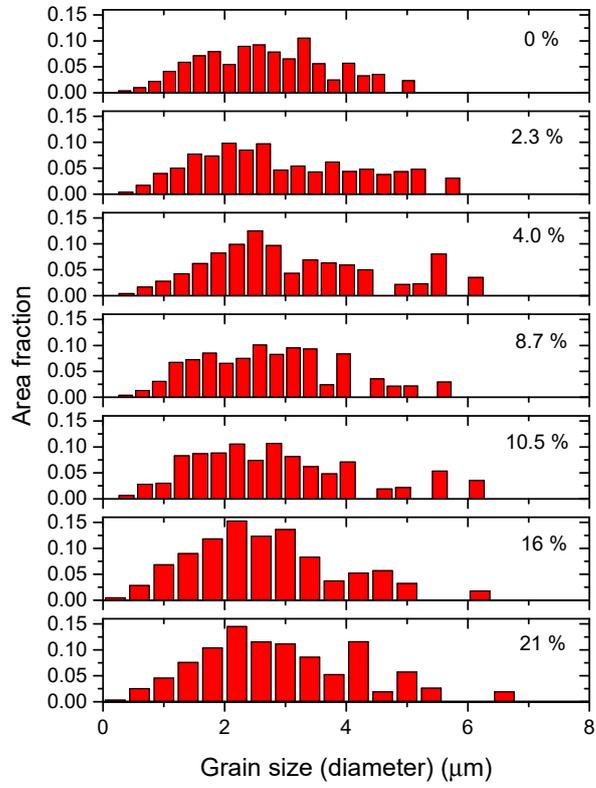


图 3.10.7 粒径分布 (直径换算)

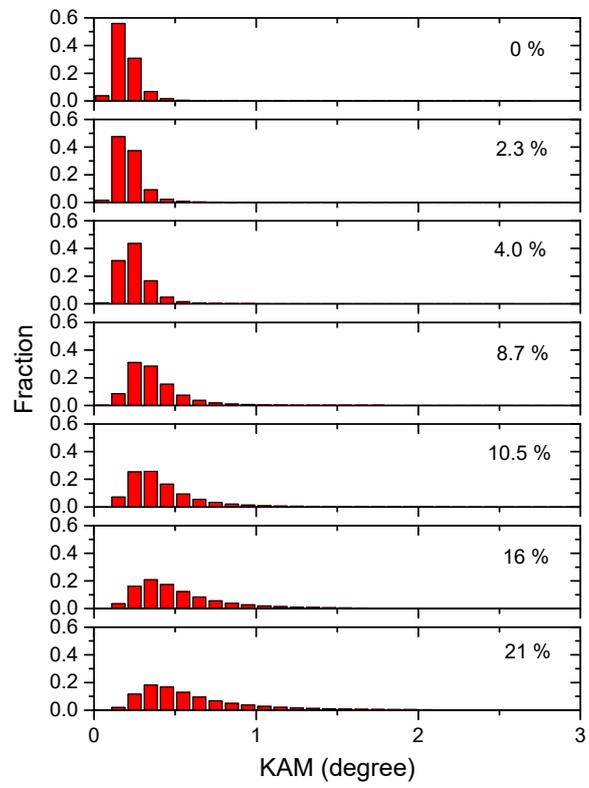


图 3.10.8 KAM 分布

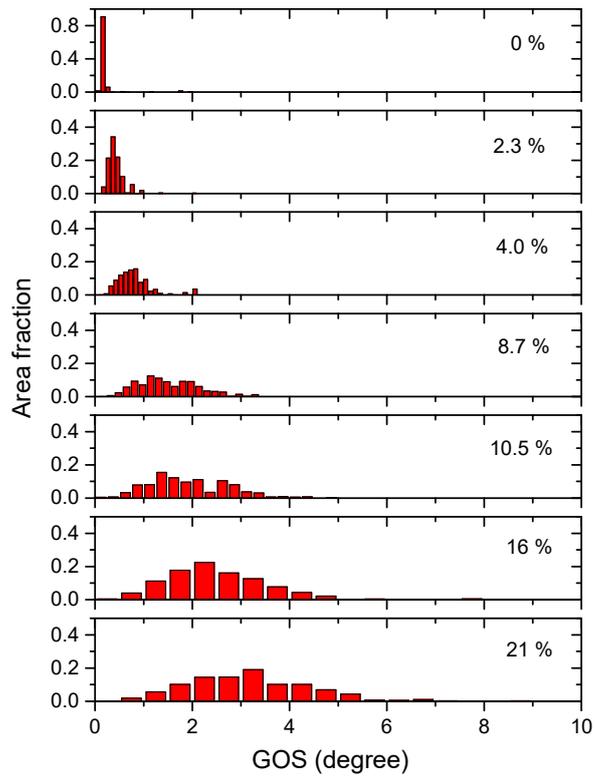


図 3.10.9 GOS 面積割合分布

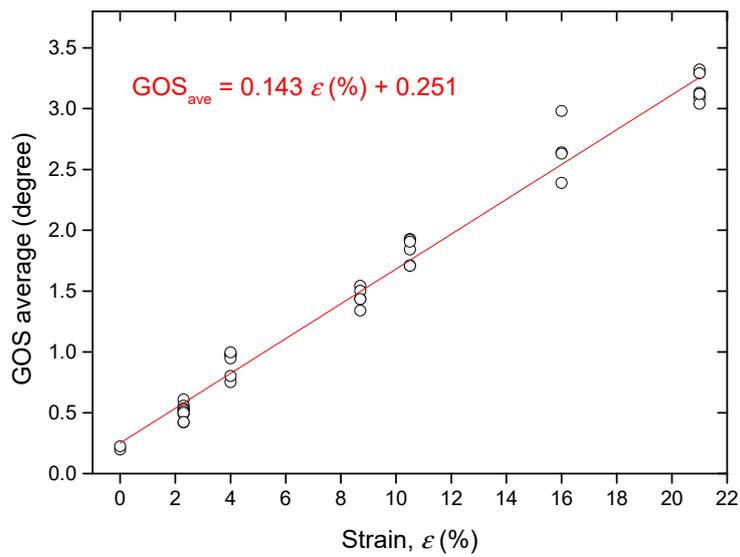
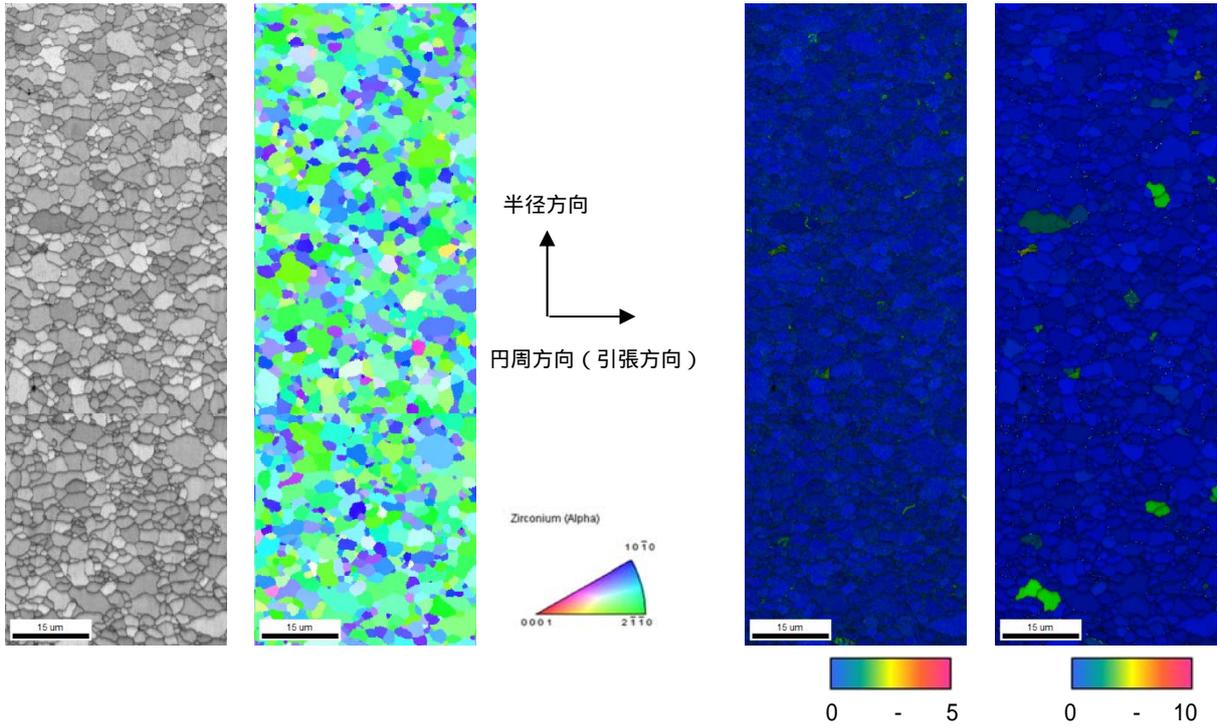


図 3.10.10 GOS 値と塑性ひずみ量の比較

8500 時間腐食材 左から IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップ、IQ+GOS マップ



8500 時間腐食材 左から IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップ、IQ+GOS マップ

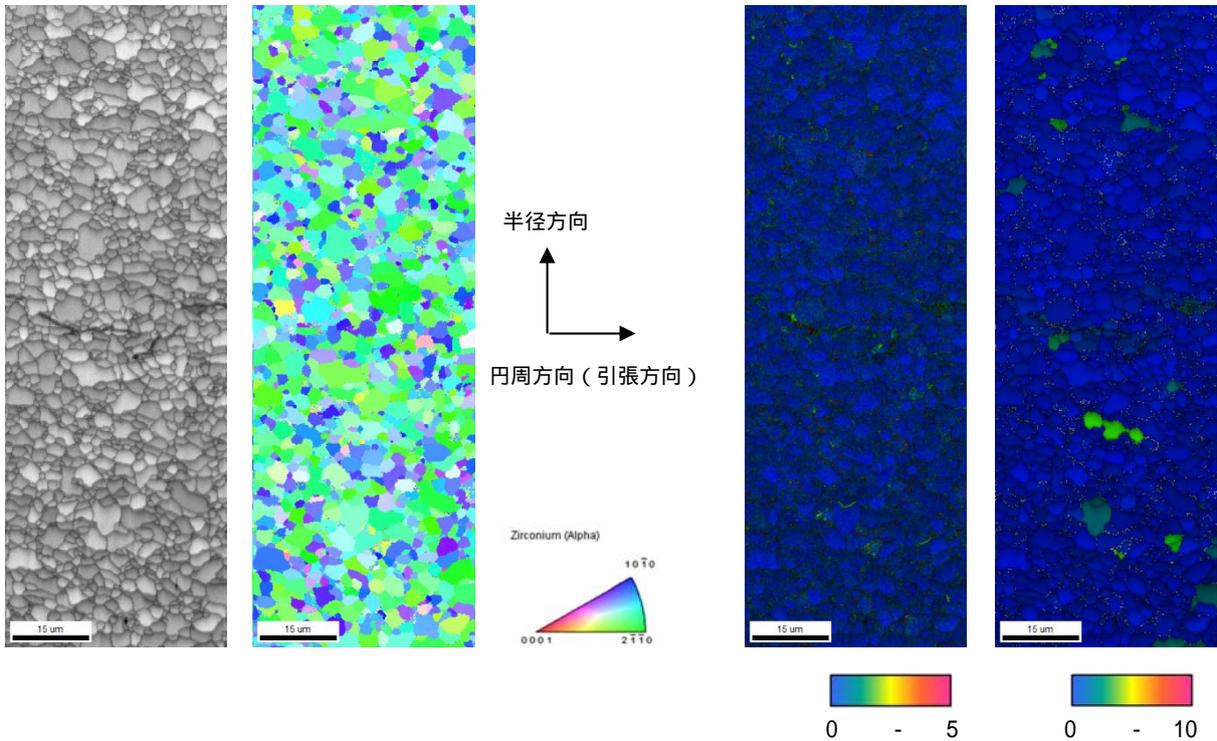
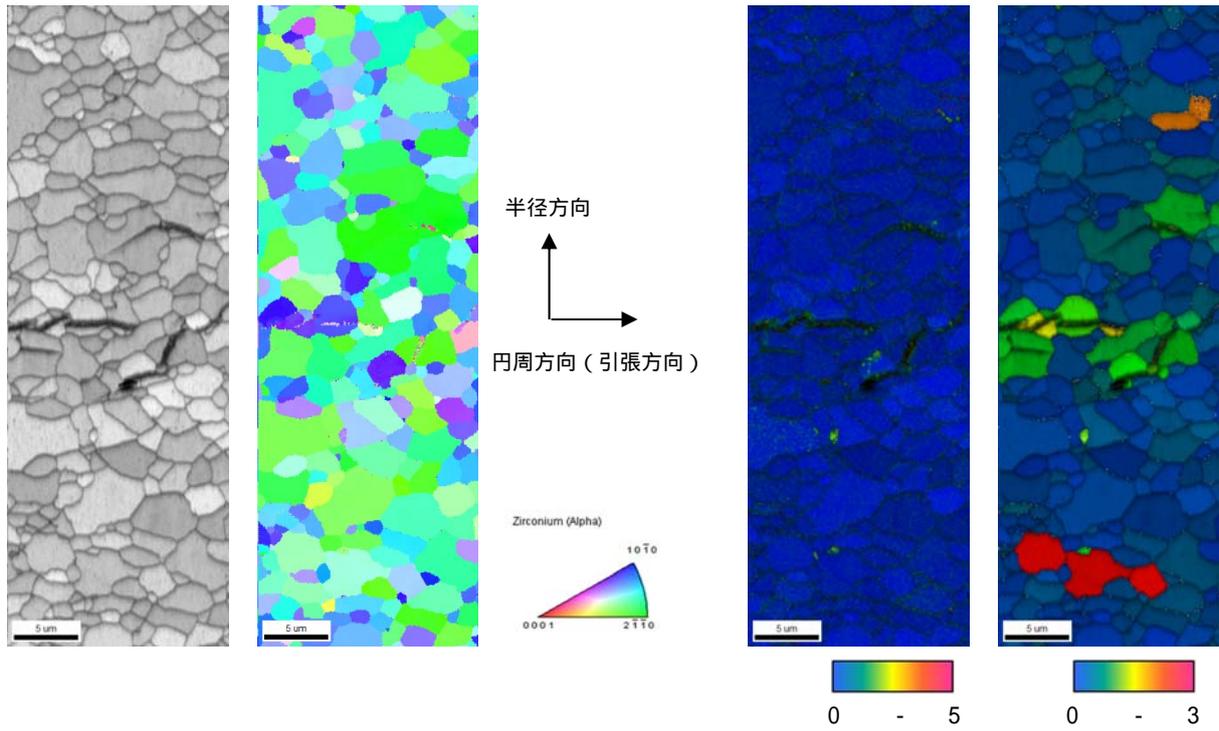


図 3.10.11 8500 時間腐食材の EBSD 観察結果 (a) × 2000

8500 時間腐食材 左から IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップ、IQ+GOS マップ



8500 時間腐食材 左から IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップ、IQ+GOS マップ

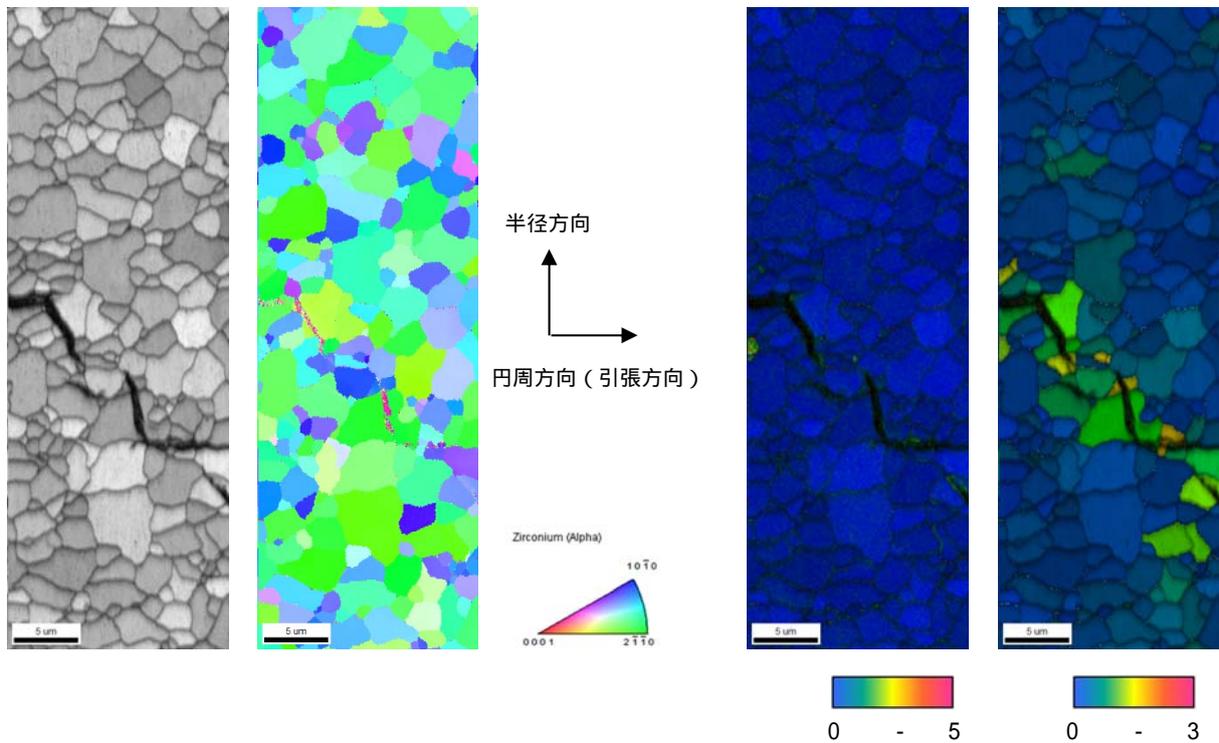
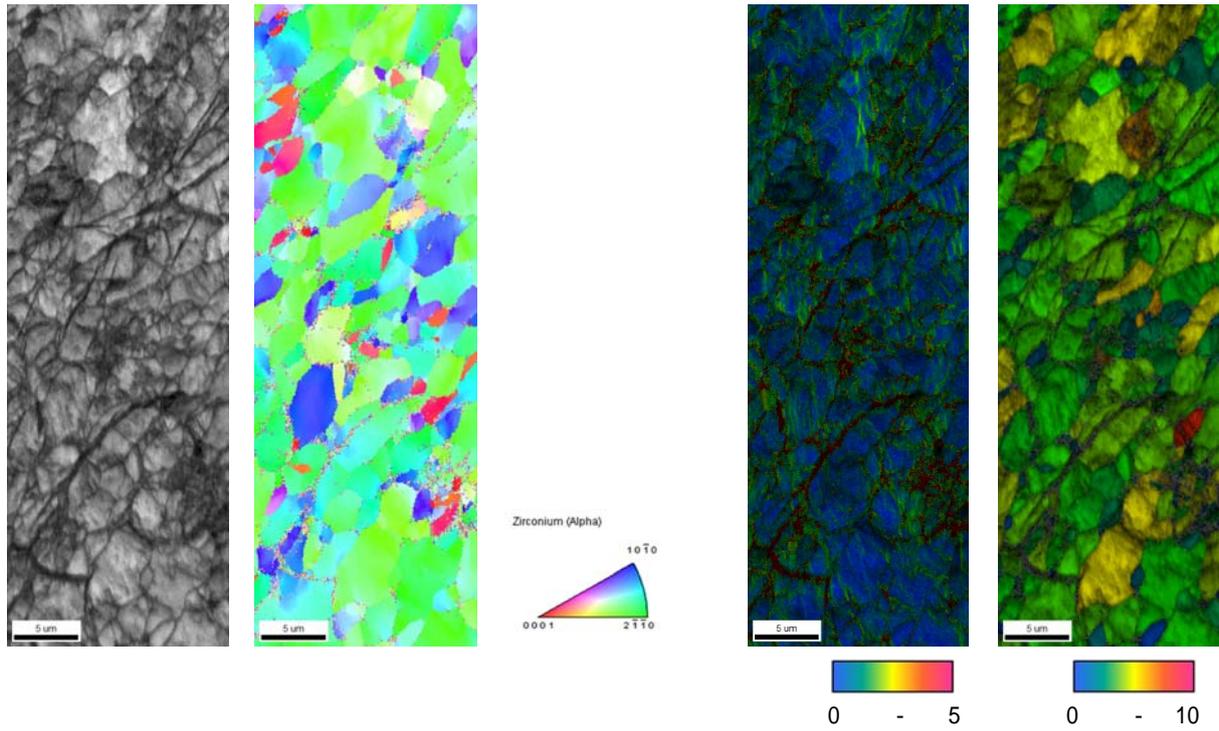


図 3.10.11 8500 時間腐食材の EBSD 観察結果 (b) × 5000

水素化・AEDC 試験材 左から IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップ、IQ+GOS マップ



水素化・AEDC 試験材 左から IQ マップ、IPF マップ、IQ+KAM マップ、IQ+GOS マップ

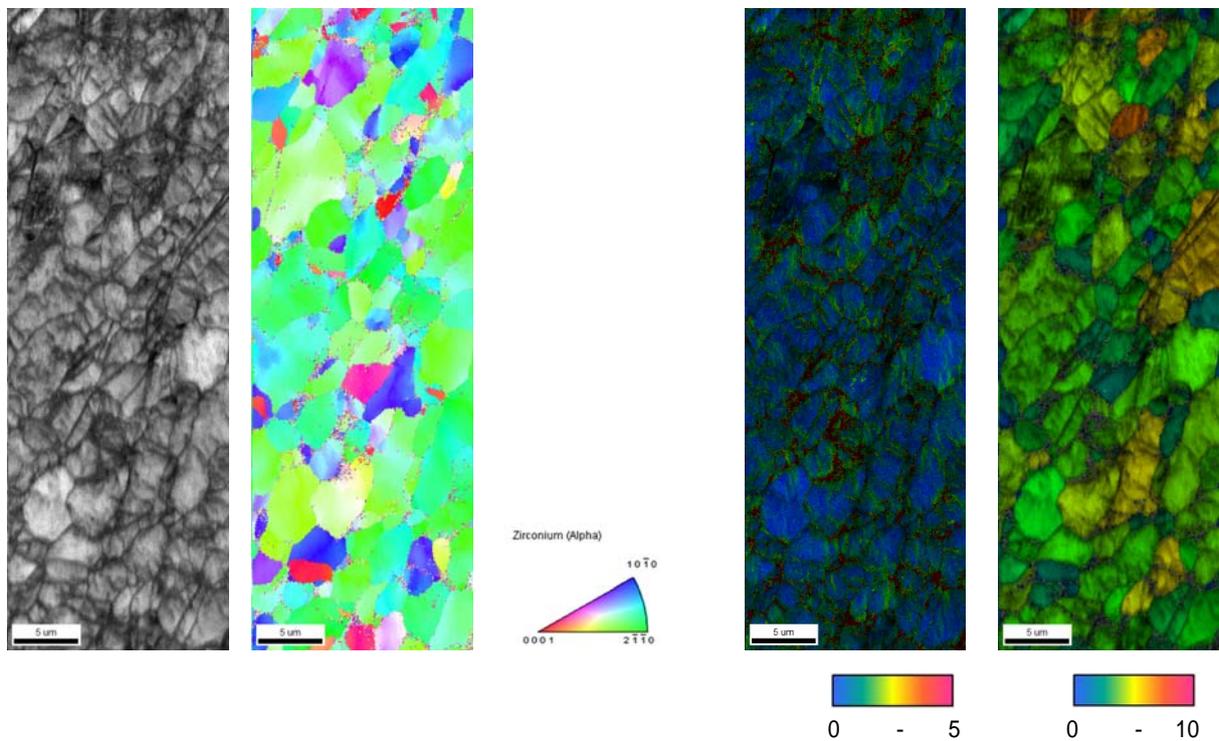
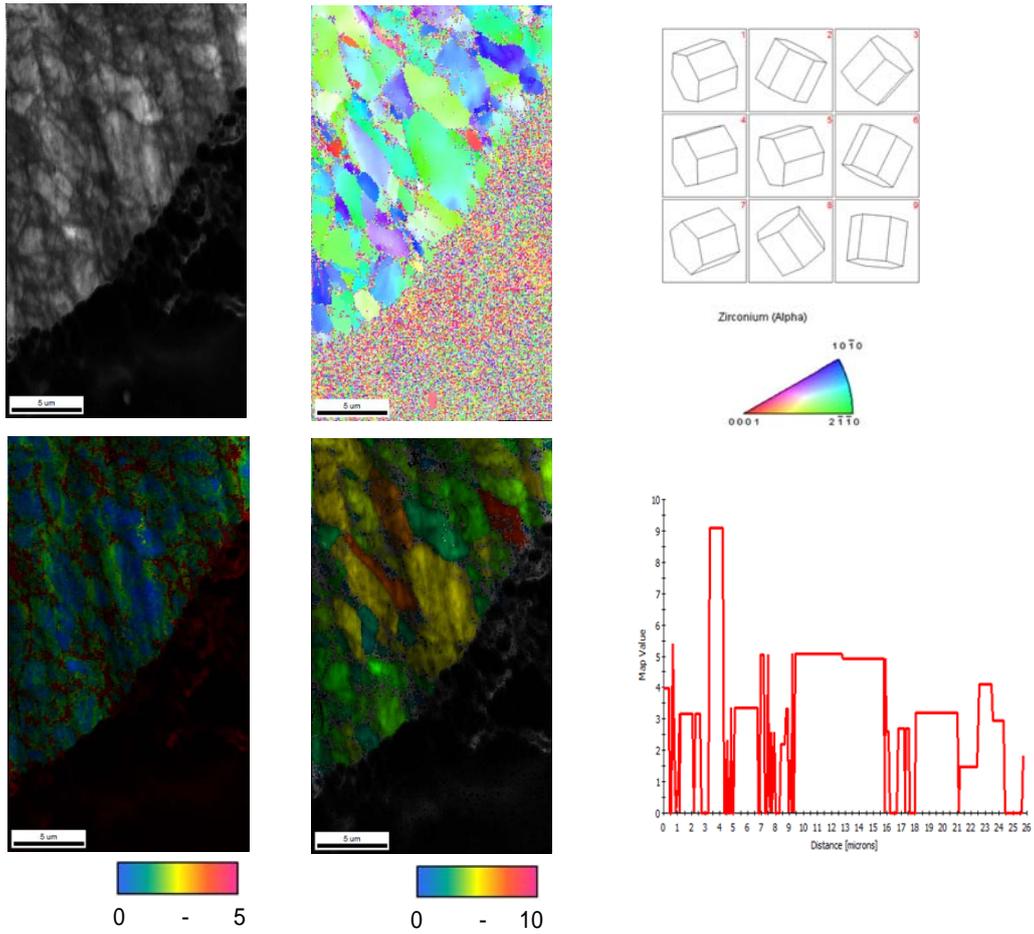


図 3.10.12 1000 ppm 水素化・AEDC 試験材の EBSD 観察結果

水素化・AEDC 試験材 左上 IQ マップ、右上 IPF マップ、左下 IQ+KAM マップ、右下 IQ+GOS マップ



水素化・AEDC 試験材 左上 IQ マップ、右上 IPF マップ、左下 IQ+KAM マップ、右下 IQ+GOS マップ

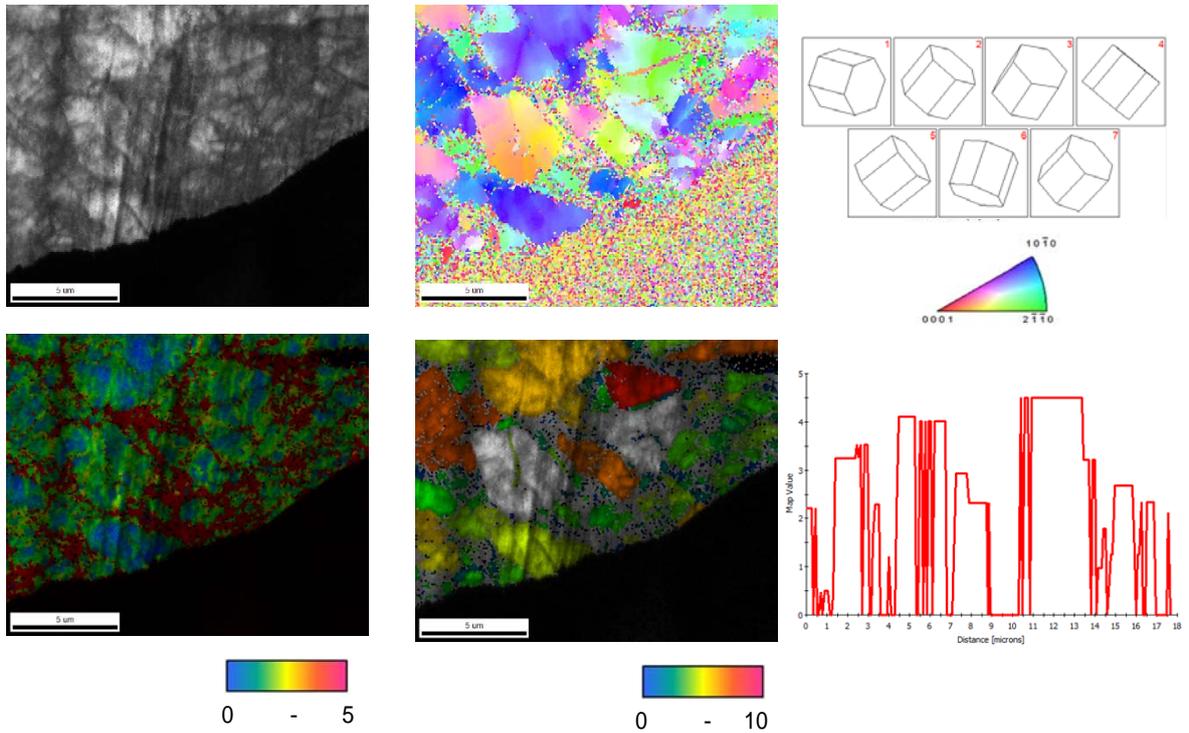
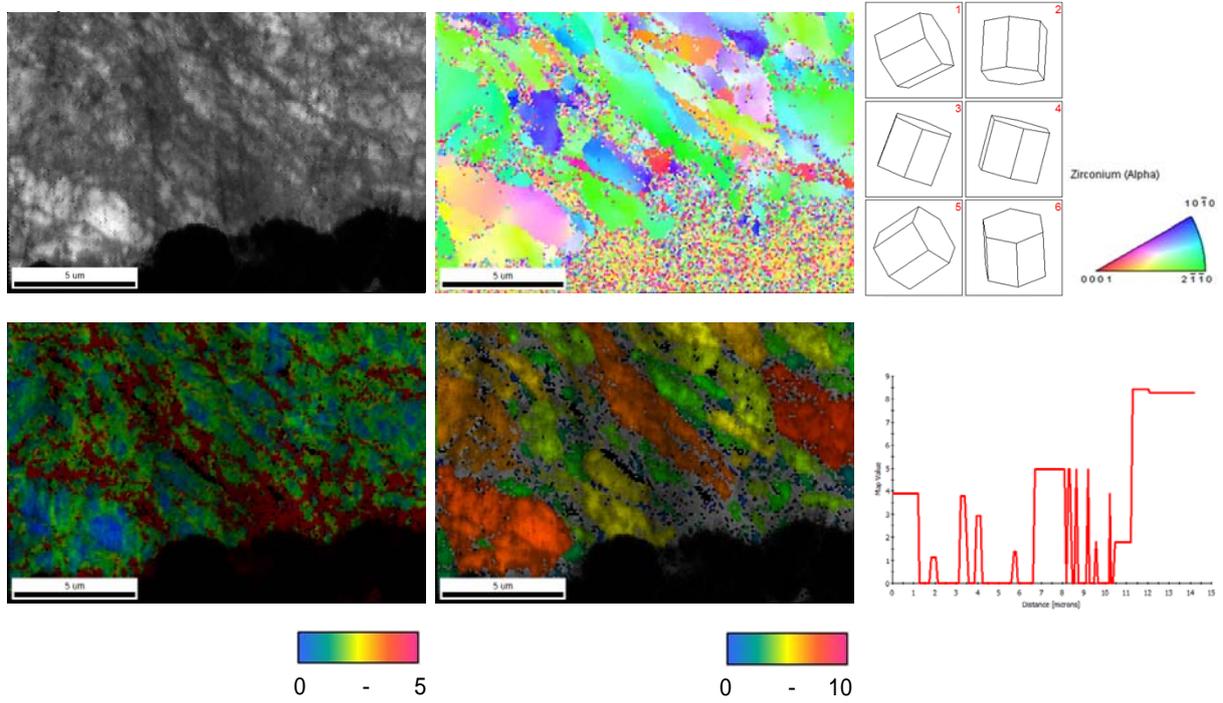


図 3.10.13 破断部近傍の EBSD 観察結果 (a)滑らかな破断面

水素化・AEDC 試験材 左上 IQ マップ、右上 IPF マップ、左下 IQ+KAM マップ、右下 IQ+GOS マップ



水素化・AEDC 試験材 左上 IQ マップ、右上 IPF マップ、左下 IQ+KAM マップ、右下 IQ+GOS マップ

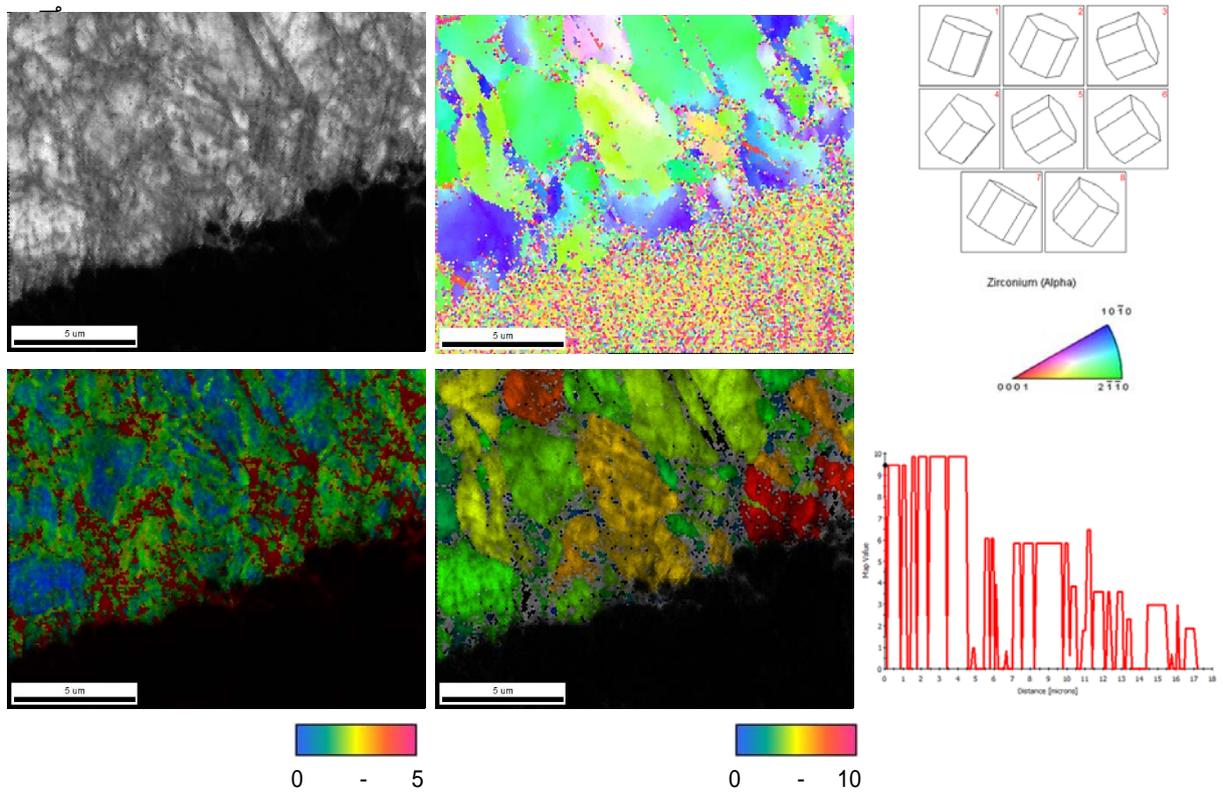


図 3.10.13 破断部近傍の ESD 観察結果 (b)粗い破断面

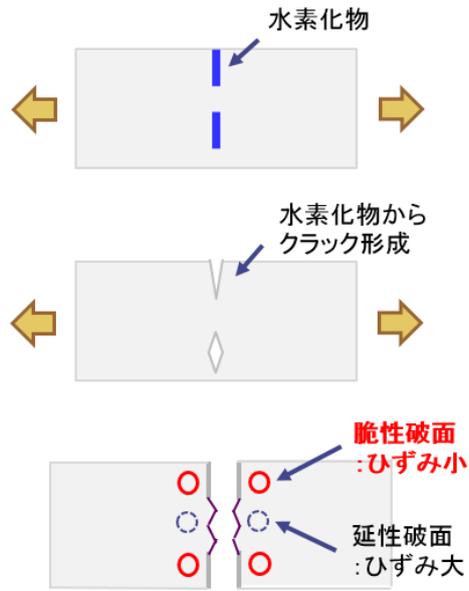


図 3.10.14 予想される混在破面の形成の流れ

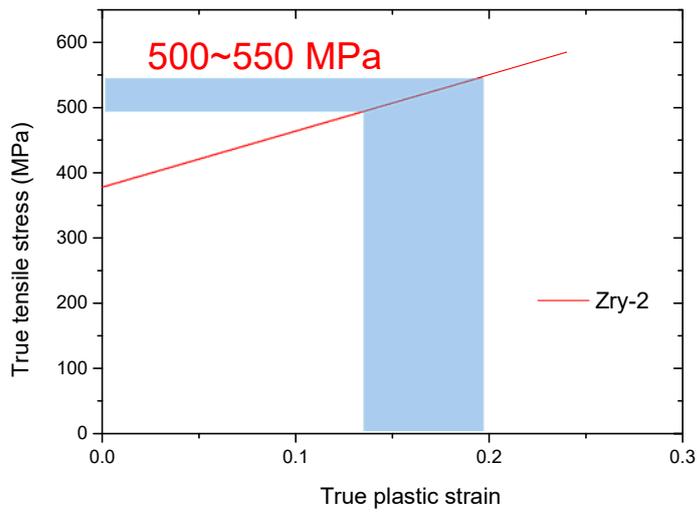


図 3.10.15 Zry-2 の室温における真応力 - 真ひずみ関係

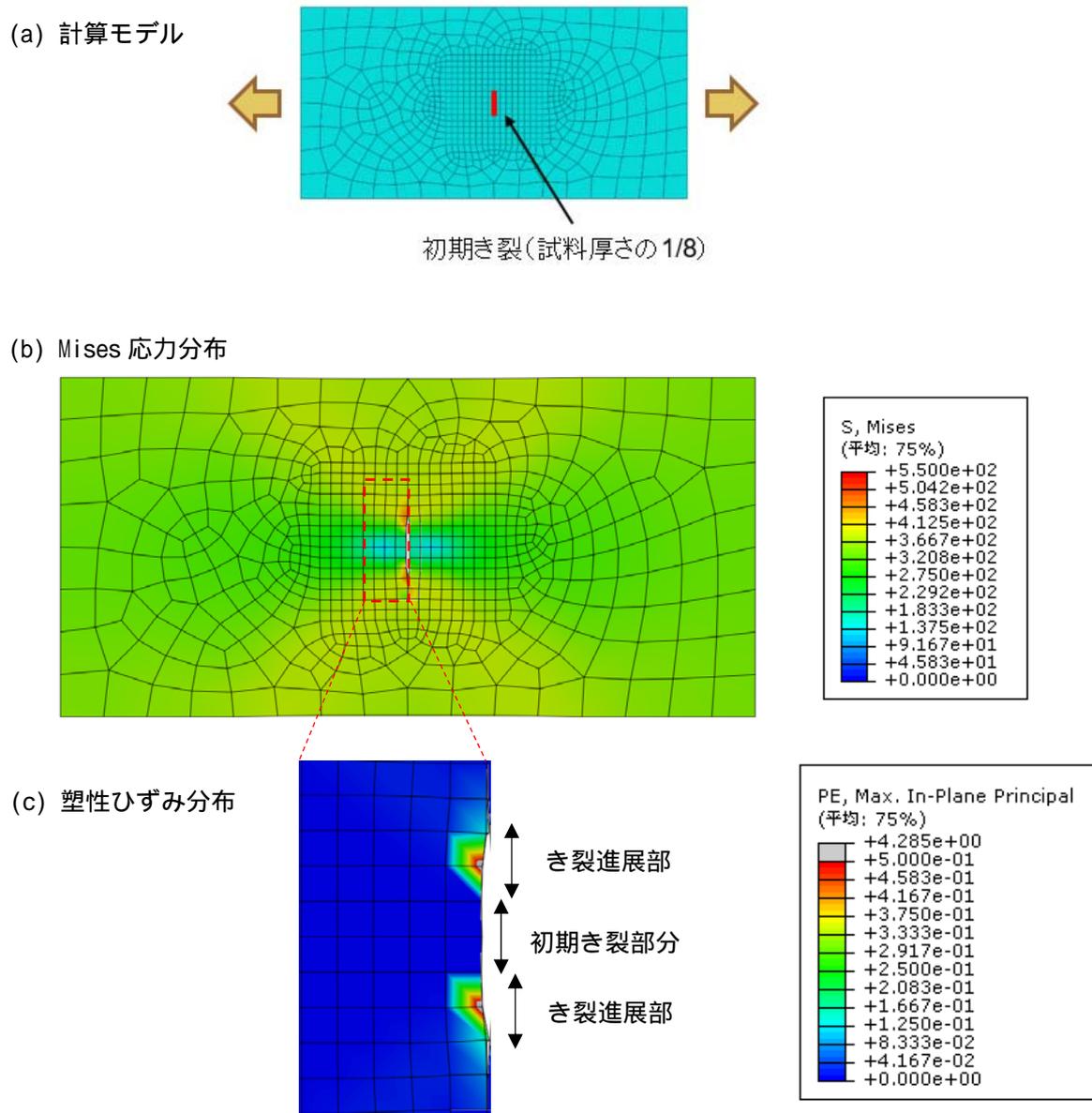


図 3.10.16 FEM 計算例 (a)計算モデル (b)Mises 応力分布 (c)塑性ひずみ分布

3.11 TEM 観察

3.11.1 背景及び目的

燃料被覆管材料の環境劣化において最も懸念される問題は、腐食とそれに伴う水素脆化である。水素は材料表面が高温高圧の水もしくは水蒸気によって酸化する際に生成され、その表面酸化被膜を介して材料の内部へ拡散する。水素が酸化被膜でトラッピングされて透過しなければ、水素脆化は起こらない。透過する速度が速ければ、水素脆化が起こるタイミングも早くなる。水素が表面酸化被膜を透過する速度は、被膜を構成する酸化物相の結晶構造や結晶粒径、結晶方位関係、合金元素の分布などに依存すると考えられる。それ故に、酸化被膜の微細組織に関する詳細な情報は、水素の透過性及び水素脆化に対する耐性をモデリングするために必要不可欠なデータベースであり、また、より優れた特性を持つ材料を設計するための指針となる。我々は本研究プロジェクトの前身である JST 原子力イニシアティブ「先進燃料被覆管材料の水素化および照射効果の解明に関する研究」において、J 合金の酸化被膜を最新鋭の 3 次元レーザーアトムプローブを用いて解析し、酸化被膜と金属母相の界面には亜酸化物相が複数種類存在することや、Nb 析出物はマトリックスよりも酸化が開始するタイミングが遅いことを明らかにした[3.11.1]。但し、アトムプローブで観察可能な視野範囲はせいぜい数 100 ナノメートルのオーダーであり、分析は界面近傍について重点的に行ったため、それだけでは解釈しきれない未解決問題もいくつか残った。特に、Nb 析出物が腐食によって最終的にどうなるのかという、Nb 添加による耐食性向上のメカニズムを考える上で最も重要な検討項目が未解決であった。本研究プロジェクトでは、“TEM 観察実験”の検討課題として、球面収差補正機構付き分析型 TEM (JEOL ARM200F) を駆使して J 合金の酸化被膜の解析を行い、その未解決問題を解明することを試みた。これは JST 原子力イニシアティブの実績を踏まえて採択された本原子力システム研究プロジェクトに期待される“発展型研究課題”であると同時に、この酸化被膜の研究は特にここ数年、国内外の燃料被覆管関連の学会において最も注目されている研究テーマの一つであるという意味で、燃料被覆管研究業界の強いニーズに対応した研究課題でもある。

“TEM 観察”ではこの他にもう一つ、機械的試験に関連した基礎研究を並行して行った。これは、本原子力システムの研究プロジェクト全体の方向性が研究の進行に伴い変遷し、最終的に改良型中子拡管試験などの機械的試験の手法開発に重点を置いて成果を集約することになったため、その目的に合わせて企画したサブテーマである。具体的には、塑性変形した試料について、EBSD で分析した個所を TEM で直接観察し、EBSD で評価した結晶回転 (KAM) と転位密度の関係について解明することを試みた。EBSD は塑性変形組織を定量的に評価することが容易で、材料の構造寿命を予測するという目的において有用な分析手法であるが、それによって評価した結晶回転の内訳が必ずしも明らかではないため、実験データを直接モデル計算に反映することが困難である。モデル計算では通常、転位密度をインプットデータとして用いることが多いため、結晶回転と転位密度の定量的関係 (転位一本当たり何°の結晶回転に相当するか) を求めることができれば、EBSD とモデル計算を橋渡しできることになる。本研究のように、TEM で転位密度を測定した場所をそのまま EBSD で分析するという試みは他に例がない。

先行研究には XRD で求めた転位密度と比較した例が幾つかある[3.11.2-3.11.4]が、XRD との

比較では粒界転位の解釈が問題となる。XRD で得られる転位密度のデータは、（試料が多結晶の場合）結晶粒内の転位と粒界転位の両方を含めた平均の値であり、それぞれの割合が何%かはわからない。一方、EBSD で得られる結晶回転角のデータでは、粒内の平均方位からズレ（GOS の場合）や隣のピクセルとのズレ（KAM の場合）を評価しているが、結晶粒と結晶粒の狭間に位置する粒界は、いずれの結晶粒にも属していないと考えれば、その評価の適用範囲外ということになる。この解釈が正しいか正しくないかという議論は、人によって意見が分かれるところではあるが、現実には起こりうる状況として、例えば電子線のプローブが粒界を跨いで左側の粒と右側の粒から均等に照射した場合は、そのピクセルはどちらの結晶粒に属するか判別不能となるため、結晶回転角を評価することができない。しかし、EBSD 分析における盲点である均等照射の条件は、理論上、粒界の情報を最も正確に取得できるはずの条件でもある。このように、粒界の本質と EBSD の原理を突き詰めて考えていくと、XRD で得られたデータと EBSD で得られたデータを同じ土俵に乗せて比較することの正当性が必ずしも担保されていないことに気づく。

先行研究にはまた、TEM の結果と EBSD の結果を比較した例も幾つかある[3.11.4-3.11.5]が、それらはいずれも同じ試料から作成したサンプルの比較ではあっても、全く同じ場所の比較ではない。多結晶試料の塑性変形では、転位密度は結晶粒によって異なるため、統計的議論に十分な数の結晶粒（一般的には数百から千程度）を観察しなければ比較は本来成立しないはずである。それは測定データの計算処理をソフトウェア上で完全自動で行える EBSD では可能であっても、手作業で転位を一本一本地道に数えなくてはならない TEM では不可能である。

これらの理由から、TEM で観察した（結晶粒界を含まない）領域をそのまま EBSD で直接分析する意義は大きい。EBSD を用いた歪評価手法の高度化に寄与する基礎研究として、燃料被覆管だけでなく、構造材料の寿命評価全般について波及効果が期待できる。

3.11.2 腐食材の組織観察

3.11.2.1 先行研究

ジルコニウム合金の耐食性が Nb を合金化することによって向上することは昔から経験的に知られており、近年開発された高燃焼度化対応先進燃料被覆管材料 (J 合金や、ZIRLO、M5 など) にはいずれもこの知見が活かされているが、Nb 添加による耐食性向上のメカニズムは必ずしも明らかではない[3.11.6]。J 合金では、マトリックスに固溶している Nb の濃度は 0.5 at.%程度であり、粒界に Nb は偏析していない (図 3.11.1 及び図 3.11.2) [3.11.1, 3.11.7, 3.11.8]。添加した Nb の大部分は、J1 及び J3 では bcc-Nb として析出している (図 3.11.3)。J2 では、bcc-Nb の他にもラーベス相 $Zr(Fe,Cr)_2$ に Nb が置換固溶した析出物が含まれる (図 3.11.3)。腐食によって合金の表面形成した酸化被膜の微細組織について、JST 原子カイニシアティブ時代に行ったアトムプローブ分析で明らかになった Nb のふるまいは以下の 3 点である。

- (1) 酸化被膜内の Nb 濃度は、金属母相より低い
- (2) Nb は偏析しない
- (3) Nb 析出物は Zr マトリックスと比較して酸化が開始するタイミングが遅い

表 3.11.1 は我々が J3 の腐食材 (腐食時間は 500 h) について行ったアトムプローブ分析結果であり、金属母相と比較して、亜酸化物 Zr_3O 、 ZrO_2 、 ZrO 、安定酸化物 ZrO_2 の Nb 濃度が低い傾向にあることが定量的に示されている。同様の傾向は、最近 Wei らが ZIRLO について行ったアトムプローブ分析結果でも確認されている (図 3.11.4) [3.11.9]。Wei らの分析結果では、金属母相と表面酸化被膜の界面に Sn は偏析するが、Nb は偏析しないことも示されている。Nb が金属母相と酸化被膜の界面に偏析しないことは、Sundell らが Zr-2.5Nb モデル合金について行ったアトムプローブ分析結果にも示されている[3.11.10]。酸化被膜内部の界面については、我々が J 合金の腐食材に行ったアトムプローブ分析で、Nb が ZrO_2 と ZrO の界面 (図 3.11.5) やそれらの粒界 (図 3.11.6) に偏析しないことが明らかとなった。Nb 析出物の遅れ酸化に関しては、これも我々のアトムプローブ分析 (図 3.11.7) で、マトリックスが亜酸化物 Zr_3O の組成のとき、Nb 析出物には酸素が全く含まれていないことが明らかとなった。

これらのアトムプローブ分析では、酸化被膜と金属母相の界面から数 100 nm 以内の領域における Nb のふるまいを示している。それより遠く離れた領域における Nb のふるまいについては、アトムプローブで検討した先行研究はない。TEM による組織観察では、酸化被膜を構成する ZrO_2 の結晶粒が析出物と同程度に微細なため、Nb 析出物を回折コントラストで判別することが困難である。そのような制約がある中で、幾つかの研究グループが Nb 析出物のふるまいの特徴を TEM 観察で調査している[3.11.11-3.11.14]。その結果は以下の 4 点に要約されるが、これらは相互に矛盾しており、包括的な理解は未だに得られていない。

- (1) Nb 析出物は腐食酸化によってアモルファス化する場合がある
- (2) Nb 析出物の酸化は段階的に進行し、 NbO_2 を経て Nb_2O_5 になる

(3) Nb 析出物の遅れ酸化はない

(4) Nb 析出物はマトリックス (ZrO_2) に再固溶する場合もある

Nb 析出物のアモルファス化を最初に見出したのは Lin ら [3.11.11] であり、その後、Pêcheur [3.11.12]、Kim ら [3.11.13]、de Gabory と Motta ら [3.11.14] の報告がある。Kim らの報告では、高分解能電子顕微鏡観察 (HR-TEM) 像において析出物に格子縞が確認できなかったことを根拠にアモルファスと結論づけている。また、de Gabory と Motta らの報告では、回折コントラストにおいて析出物のコントラストが “milky” であったことを根拠にアモルファスと結論づけている。これらはアモルファス化の根拠としては不十分であるが、Lin らと Pêcheur の報告ではナノビーム電子回折によってアモルファス構造に起因するハローリングを検出しているため、Nb 析出物がアモルファス化する場合があることそれ自体は間違いはないと考えてよいだろう。Lin らはアモルファス化した Nb 析出物を EELS で分析し、その EELS スペクトラムを bcc Nb、 Nb_2O_5 、 ZrO_2 のそれと比較した (図 3.11.8)。アモルファス Nb 析出物のプラズモンピークが 2 つに分離していることから、この析出物は金属ではなく、酸化物であると結論づけている。彼らが用いた試料は Zr-2.5Nb モデル合金で、400 の水蒸気に 24 時間暴露した後、310 のリチウム含有水に 176 日間浸漬させたものである。

Kim ら [3.11.13] は、360 の純水で腐食させた Zr-1.5Nb 合金における Nb 析出物の HR-TEM 格子像を解析し、Nb 析出物は界面近傍でまず正方晶の NbO_2 に変態し、その後アモルファスを経てから、析出物がマトリックスに再固溶すると結論づけている (図 3.11.9)。彼らは、析出物が回折像コントラスト観察で見出せたのが界面から約 1 μm 以内の領域に限定されていたため再固溶したと結論づけているが、これは析出物が消えた根拠としては不十分である。

de Gabory と Motta ら [3.11.14] は、360 の純水で腐食させた ZIRLO に含まれる bcc-Nb の析出物と Nb 含有ラーベス相の析出物を観察し、両者は共にアモルファス化することを確認している。アモルファス化が開始するのは界面から約 400 nm であり、それより界面に近い領域にある析出物は全て金属であると結論づけている。但し、界面近くの析出物が金属であると結論づけた根拠が何かは記述されていない。また、界面から遠く離れた領域 (1 μm 以上離れた領域) において、析出物がアモルファスのままなのか、或いは再固溶しているのかという問題については言及されていない。彼らはまた、EDS による分析結果を根拠として、bcc-Nb 析出物には Zr が 20 at.% 含まれており、酸化に伴い Zr の含有量が統計的に有意に減少していたと主張している。しかしながら、分析した析出物がマトリックスとオーバーラップしている可能性については検討しておらず、また、特性 X 線ピークのオーバーラップの問題 (後述) についても全く記述されていないため、その主張の信憑性については疑問が残る。

Yao ら [3.11.15] は、360 のリチウム含有水で Zr-1.0Nb-0.2Bi 合金について Kim らと同様の HR-TEM 観察を行い、Nb 析出物はアモルファス化しないと結論づけている (図 3.11.10)。彼女らの解析では、酸化被膜をまず STEM 暗視野像で観察し、STEM で見えた析出物を HR-TEM 格子像で観察している。STEM で析出物が検出されるのは界面から約 1 μm 以内の領域に限定され、それより離れた領域で析出物がどうなっているのかという問題については言及されていない。彼女

らの解析では、Nb 析出物はまず正方晶の NbO_2 に変態し、その後（界面からの距離の増大に伴い） Nb_2O_5 に変態すると結論づけられている。彼女らは、酸化被膜と金属母相の界面上にある析出物が NbO_2 であると指摘しており、これを根拠にして析出物の遅れ酸化はないと結論づけている。同じグループが Zr-1Nb-xGe について行った HR-TEM 像観察[3.11.16]でも、結論はほぼ同じである。

Sakamoto と Une ら[3.11.17-3.11.18]は、STEM 像観察と EDS 元素マッピングによる分析に基づき、Nb 析出物はマトリックスに再固溶すると結論づけている（図 3.11.11）。試料は Zr-2.5Nb モデル合金で、腐食環境は純水とリチウム含有水の 2 種類を検討した結果、リチウムがある状況では再固溶が促進されるが、純水でも再固溶は起こると報告している。彼らの観察では、回折コントラストや回折図形、HR-TEM 格子像観察は行われていないので、析出物がどのような構造変化を経て再固溶に至るのか、そのメカニズムの詳細は不明である。 ZrO_2 に Nb 析出物が再固溶するのであれば、その過程で ZrO_2 には一時的に Nb が高濃度（場合によっては数～数 10 at. %）強制的に固溶した状態を経なくてはならないが、そのような状態が現実的に起こりうるものなのかという問題について、状態図の観点からは検討されていない。Zr に酸素が固溶したときの Nb の固溶限への影響については、熱力学的に検討した先行研究があり[3.11.19]、その計算では酸素の固溶量の増大に伴い（hcp-Zr 中の）Nb の固溶限が減少すると報告されている（図 3.11.12）。 ZrO_2 における Nb の固溶限については検討されていない。

先行研究を踏まえると、本 TEM 観察における主な検討項目は次の 3 つということになる。

- (1) 再固溶の有無
- (2) アモルファス化の有無
- (3) 遅れ酸化の有無

アモルファス化は酸素が Nb 析出物に浸透することで起こる。これは言い換えると、酸素の拡散によって誘起されるアモルファス化である。アモルファス化が元素の拡散によって誘起される現象は、金属 - 金属拡散対[3.11.20-3.11.23]や酸化物 - 酸化物拡散対 [3.11.24]、金属の水素化 [3.11.25-3.11.26]や酸化[3.11.27]などで報告例があり、拡散係数が大きく異なる元素を組み合わせた場合に起こることが知られている[3.11.28]。但し、これまでに報告されている事例はいずれも、2 つの元素のうちの片方が動けない条件である。Nb 析出物が再固溶するのであれば、アモルファス化が酸素原子とニオブ原子の両方が動ける条件で起こっていることになり、それはアモルファスの基礎研究としてインパクトのある現象である。

3.11.2.2 実験方法

試料は腐食時間が 3,500、8,500、13,000 時間の J3 である。TEM 観察用の試料は、表面酸化被膜を断面方向から観察する試料と、酸化被膜から遠く離れた領域を観察する試料の 2 種類を用意した。後者は（腐食の際の）長時間熱時効が組織に及ぼす影響を検討する目的で観察した。前者

は FIB を用いて管材表面からピックアップし、後者は管材を機械研磨して得られた平板から打ち抜いた 3 mm ディスクを、テヌポールを用いてツインジェット電解研磨して作成した。電解研磨は過塩素酸 10% + エタノール 90%溶液を用いて-20 °Cで行った。FIB は東大東海村キャンパスの Hitachi FB2000 を使用した(図 3.11.13)。観察に用いた TEM は主に東北大大洗キャンパスの JEOL ARM200F である(図 3.11.14)。この他にも、九大病院キャンパスと筑紫キャンパスの ARM200F も使用した。

EDS の分析条件の詳細は以下の通りである。シグナル強度を稼ぐため、コンデンサレンズ絞りは最小サイズより一つ大きなものを選択し、プローブサイズは 5C を選択した。倍率は主に 2 万倍と 5 万倍である。5 万倍で酸化被膜を分析した場合のカウント数は、約 1000 cps であった。マッピングのスキャン解像度は 512 x512 pxl であり、スキャン回数は 300 回を目途とした。

3.11.2.3 実験結果及び考察

図 3.11.15 は 3,500 時間及び 13,000 時間の酸化被膜の STEM 像である。STEM 暗視野像ではカメラレングスを応じてコントラストが変化する。カメラレングスが長い場合は、STEM 検出器に低角側に散乱された電子が捕獲されるため、回折コントラストを強く反映した像が得られる。カメラレングスが短い場合は、高角側に散乱された電子が結像に寄与するため、元素の種類を反映したいわゆる Z コントラストが得られる。前者では金属母相が酸化被膜より暗いコントラストになるのに対し、後者では金属母相の方が酸化被膜より電子密度が大きいため明るいコントラストになる。コントラストの逆転が起こるのは、この電子顕微鏡の場合、カメラレングスが 12~20 cm 程度であった。カメラレングスが長い場合も短い場合も、析出物は界面から約 1 μm の領域にのみ検出された。この臨界距離は、腐食時間によらず、常に約 1 μm であった。

図 3.11.16-図 3.11.18 は、STEM 像で可視化された析出物のサイズについて定量的に分析した結果である(図 3.11.16 は 3,500 時間、図 3.11.17 は 8,500 時間、図 3.11.18 は 13,000 時間である)。析出物が酸化によって再固溶しているのであれば、界面からの距離の増大に伴いサイズが徐々に小さくなっていると予想されるが、実際にサイズを定量評価してみると、そのようなサイズ変化は顕著ではなく、析出物は臨界距離を境にしてサイズ変化を伴わずに消えていることが明らかとなった。

図 3.11.19 は 3,500 時間及び 13,000 時間の酸化被膜の EDS マップである。Nb や Zr といった重い元素のマッピングでは、デフォルト設定で最外殻の L 線が指定されている。これは内側にある K 線よりも特性 X 線の強度が一桁近く大きく、一般的に定量精度が高いためである。L 線を用いた Nb マッピングでは、析出物は界面近傍にのみ検出され、STEM 観察と整合する結果が得られた。しかしながら、周期律表で Nb の右隣に位置する Mo でマッピングすると、析出物が酸化被膜全体に様に分布していることが明らかとなった。この合金には Mo は含まれておらず、FIB の試料をマウントしたメッシュも Mo 製ではなく Cu 製であるため、この析出物は Mo ではない。実際、Nb-K 線でマッピングした結果では Mo-L 線で可視化された析出物が検出されている。これらの結果は、Nb 析出物が再固溶せず、析出物のまま酸化していることを示唆している。

Nb 析出物が (L 線の) Nb マップでは可視化されず Mo マップで可視化されるという現象は、特性 X 線の S/N 比と、マッピングに用いられた ROI (region of interest) の設定に起因したアーティファクトである (図 3.11.20)。Nb の L 線は Zr の L 線と非常に近い位置にあるため、マトリックスからのシグナルが強い条件 例えば試料の厚いところ では、Nb のシグナルはマトリックスのシグナルに埋もれてしまい、Nb マップでは析出物を識別できなくなる (図 3.11.21)。デフォルト設定では、ROI の幅は Nb の場合、左端が Zr の L の位置で、右端が Mo の L の位置である。Mo の ROI は、左端が Nb の L の位置である。Nb の ROI の位置ではマトリックスのシグナルが大きすぎて析出物が見えない場合でも、Mo の ROI の位置では、Nb のシグナル強度は小さくても、それ以上にマトリックスのシグナル (ノイズ) が小さくなるため、S/N 比が向上した結果として Nb 析出物が見えると考えられる。このように、L 線ではピークのオーバーラップの問題によって析出物のふるまいについて正確な情報が得られないが、L 線より高エネルギー側に位置する K 線では、ピーク間の間隔が広く、マトリックスのシグナルとオーバーラップしないため、アーティファクトを回避できる (図 3.11.22)。

以上の解析結果から、析出物が再固溶せず析出物のまま酸化されていることは明らかであるが、この解析から得られたもう一つの重要な知見は、界面近くの析出物と、界面から遠く離れたところの析出物とでは、Z コントラスト及び EDS マップにおける S/N 比が異なるということである。界面近いところと離れたところとでは、(特性 X 線の強度プロファイルを見る限りでは) 試料厚さにそれほど大きな違いはない (図 3.11.23)。にもかかわらず、析出物の視認性がある位置を境にして大きく異なるということは、析出物自体の電子密度がその位置で (酸化が急激に進行した結果として) 変化していることを意味している。

理論上、STEM コントラストで析出物が見えなくなるのは、析出物の電子密度がマトリックスの電子密度と同じになったときである。そこで、析出物とマトリックスの電子密度が酸化によってどのように変化するのかという問題について、まずは数値計算で検討してみた。マトリックスに関しては、hcp の Zr と単斜晶の ZrO_2 について計算した。析出物に関しては、Nb-O 平衡状態図 [3.11.29] には NbO 、 NbO_2 、 NbO_5 の 3 種類しか記載されていない (図 3.11.24) が、JCRDS カードを検索すると "Nb oxide" に該当するものは 99 件ある。このうち、結晶構造の詳細が明らかなもの (表 3.11.2 はその一部である) について計算を行った (図 3.11.25)。電子密度は組成に敏感であるが、結晶構造にはそれほど敏感ではないことが明らかとなった。析出物の電子密度は NbO_2 のとき、マトリックス ZrO_2 とほぼ等しくなる。このとき、Z コントラストでは析出物が理論上、見えないということになる。それより酸化が進行した場合 (例えば Nb_2O_5 になった場合) は理論上、析出物は暗いコントラストとして可視化されることになる。

このような理論計算結果を念頭に置き、酸化被膜内の析出物の結晶構造解析を行った。まず、Z コントラストで識別するが容易な界面近傍の析出物は、未酸化の bcc-Nb 析出物と比較して、格子定数が明らかに大きいことが明らかとなった (図 3.11.26)。この格子定数に該当する酸化物は bct 構造の NbO_2 (空間群番号 88 の deformed ルチル構造) であり、これより酸素含有量が少ない酸化物でこれだけ格子定数の大きいものはなかった (表 3.11.2)。先行研究では、この界面近傍の析出物が bct- NbO_2 であると結論づけられている [3.11.13, 3.11.15]。これは上述した

電子密度の観点から考えると、明らかにおかしい。そのため、回折図形のシミュレーションを行い、面間隔だけでなく、回折図形の特徴を詳細に検討した。図 3.11.26 は、未酸化 bcc-Nb 析出物の回折図形 ($//[111]$ 晶帯軸入射) と酸化した Nb 析出物の回折図形 (方位は不明だが、低指数の晶帯軸入射) を重ね合わせ、両者の面間隔を視覚的に比較した図である。実験結果 (c) とシミュレーション結果 (d) は、縦方向に関してはよく一致しているが、横方向に関しては赤丸と青丸の数が合わない。ここに図示したシミュレーション結果は bct-NbO₂ の入射方位が $//[110]$ の回折図形であり、縦方向に $\{110\}$ 面の回折斑点が並んでいる。横方向の回折斑点の数が実験結果と一致するためには、この方向に bcc-Nb の $\{112\}$ 面の面間隔の 4 倍の原子面の回折斑点が現れなくてはならない。それに該当する bct-NbO₂ の原子面は $\{110\}$ 面のみである。bct 構造は bcc 構造が z 軸方向に伸びた構造なので、z 軸に平行な 2 組の $\{110\}$ 面は互いに直交するが、平行でない $\{110\}$ 面の組み合わせでは直交しない。しかしながら、前者の場合は消滅則によって (110) が禁制反射になってしまうため、bcc-Nb の $\{112\}$ 面の回折斑点 (赤丸) の数と比較した場合、回折斑点の数が合わないことになる。後者の場合は、回折斑点の数は合うが、(面が直交しないため) 回折斑点の角度が合わないということになる。したがって、実験で得られた酸化した析出物の回折図形の特徴と一致する bct-NbO₂ の回折図形は存在しないということになる。

Yao ら [3.11.15] はこの析出物を “T-NbO₂” と表記しているが、その JCPDS カード番号が “85-0379” であると補足説明しており、これは表 3.11.2 の “bct-NbO₂ (deformed ルチル構造)” を意味する。ルチル構造の NbO₂ も tetragonal であるため、本研究ではこちらを t-NbO₂ と表記した。Yao らはこの析出物が bct-NbO₂ であると結論づけた根拠として、結晶格子像をフーリエ変換したパワースペクトラムのデータを 2 つ示し、入射方位をそれぞれ $//[113]$ と $//[\bar{1}\bar{1}3]$ であると結論づけている (図 3.11.10) が、我々のシミュレーションでは再現されなかった (図 3.11.27)。念のため、ルチル構造の t-NbO₂ の回折図形もシミュレートしてみたが、やはり Yao らの結果は再現できなかった (図 3.11.28)。この析出物が NbO₂ ではないことは、電子密度の観点から考えてほぼ間違いがないため、現時点では、先行研究の構造解析が誤りであると考えている。この析出物の結晶構造は、現在解析中である。

Z コントラストでは識別困難な界面から離れたところにある析出物は、多くの場合、アモルファスであった。図 3.11.29 は腐食時間 13,000 時間の酸化被膜の、界面から約 6 μm に位置する析出物の解析結果である。EDS マップで Nb 析出物の位置を把握した後、その領域を STEM 像で詳しく観察した結果、その析出物は Z コントラストでもかろうじて識別できることが明らかとなった。ナノビーム電子回折 (プローブサイズは 2.0 nm) でその析出物をピンポイントで分析したところ、ハローリングが検出された。図 3.11.29 の STEM 像では識別できない析出物に関しても、さらに高倍率で検討した結果、微弱ながらコントラストがあることが明らかとなった (図 3.11.30)。析出物の内部には Z コントラストのムラがあり、ムラが析出物の輪郭に沿っている場合は比較的判別し易いということもわかった。Z コントラストのムラは、電子密度のムラに相当するため、析出物の内部における酸化が不均一に進行していることを示唆していると考えられる。図 3.11.30 では結晶化が進行しているアモルファス析出物も検出されているが、構造の同定までは至らなかった。図 3.11.31 は 13,000 時間腐食材の最表面から 300 nm の位置で検出されたアモルファス析出物である。

本研究では、Nb 析出物は再固溶せずに析出物のまま酸化されるという結果が得られたが、条件次第では、析出物が再固溶する場合もあるのかもしれない。Sakamoto と Une らの先行研究 [3.11.17-3.11.18]では、マッピングに用いた特性 X 線は Nb-K 線であると述べられている。その情報が正しければ、彼らの試料では析出物が再固溶している可能性が高い。但し、彼らはリチウムが再固溶を促すと結論づけているが、本研究ではリチウム含有水で腐食処理を 13,000 時間も行ったにもかかわらず析出物が再固溶していない。また、J 合金が腐食に強いことは腐食試験のデータ (図 3.11.32) から明らかのため、Nb 添加による耐食性向上のメカニズムに析出物の再固溶は無関係と考えてよいだろう。

3.11.3 結晶回転と転位密度の関係調査

3.11.3.1 転位と結晶回転（回位）の関係についての一般論

EBSD で検出される結晶回転は、しばしば回位（disclination）と関連づけて議論される [3.11.2]。回位とは、1907 年に Volterra [3.11.30] が提唱した幾何学的変位の様式の一つであり、図 3.11.33 に図示した連続体においては、切れ込み線 L に対して平行な変位がらせん転位、垂直な変位が刃状転位とそれぞれ定義されるのに対し、線 L に対して回転する変位が回位であると定義される。Volterra 自身はそれらの幾何学的変位を転位や回位とは称しておらず、命名者はそれぞれ、転位に関しては 1934 年の Taylor [3.11.31-3.11.32]、回位に関しては 1958 年の Frank である [3.11.33]。Volterra が提示した基本概念では、転位と回位は別々の種類の変位として分類されているが、傾角粒界の傾角成分が刃状転位に由来することや、ねじれ粒界のねじれ角成分がらせん転位に由来することから判断すると、傾角粒界に類似した wedge disclination は刃状転位、ねじれ粒界に類似した twist disclination はらせん転位にそれぞれ由来した回転であると考えられる。

傾角粒界における傾斜角（結晶回転角）と刃状転位の本数との関係については、1953 年に Read [3.11.34] が幾何学モデルから定量的な関係式を導出している（図 3.11.34）。傾角粒界の粒界に同符号の刃状転位が一行に並んでいるとき、粒界の傾斜角 θ と転位の間隔 D とバーガースベクトル b の間には、幾何学的関係から次式が成り立つ。

$$b/2D = \tan(\theta/2)$$

傾斜角 θ が小さいとき（小傾角粒界のとき）は、近似から次式が導かれる。

$$b/D \approx$$

ねじれ粒界に関しては、らせん転位について同様のことを考えれば、これと全く同じ式が導かれる [3.11.34]。この関係式が定量的に妥当であることは、同年 Vogel [3.11.35] が粒界転位をエッチピット法で観察して証明している（図 3.11.34）。

このように、転位の本数と結晶回転角の間には定式が既に確立しているのだが、この関係式を用いて EBSD で評価した回転角から転位密度を導出した先行研究は（筆者の知る限り）ない。その理由はおそらく、この式が成立するためには“同符号の転位”が“一行に並んでいる”ことが大前提であり、この前提が成立しない（一般的な）状況での適用可能性が未知なためであると考えられる。粒界とは異なり、結晶粒内では転位が一行に並んでいることは稀であり、バーガースベクトルや符号も一種類ではない（図 3.11.35）。そのような一般的な状況で、転位の本数と結晶回転角との関係がどのように変化するかを確認することが、本 TEM 観察の目的である。

3.11.3.2 実験方法

この実験に使用した試料は 304 ステンレスである。ジルコニウム合金ではなくオーステナイト

系のステンレスを選択した理由は以下の4点である。

- (1) コンタミがつきにくい
TEM と EBSD で同じ場所を何度も観察しなくてはならないため
(×ジルコニウム合金、 ステンレス)
- (2) 立方晶であること
六方晶の指数は EBSD では3軸の指数に変換されて計算処理されるため、
(分析中に) 指数を直感的に理解しにくい
(×ジルコニウム合金、 ステンレス)
- (3) 非磁性であること
電子顕微鏡の分解能低下を防ぐため
(×フェライト系ステンレス、 オーステナイト系ステンレス)
- (4) すべり系の同定が容易であること
オーステナイト (fcc 構造) と比較して、フェライト (bcc 構造) のすべり系は種類が多いため、転位の種類の同定を行う場合、解析がより困難である
(×フェライト系ステンレス、 オーステナイト系ステンレス)

試料は短冊状の TEM 内その場引張り実験用の試験片である。電解研磨はテヌポールを用いたツインジェット研磨であり、研磨液は過塩素酸 5% + メタノール 95% 溶液、研磨温度は -42 °C である。この短冊形試料をまず TEM 内にて室温でクラックが発生するまで引張り変形させた。引張りホルダ (GATAN 社製 Model 671 cooling straining stage) は試料傾斜機構を持たないため、転位組織を回折コントラストで観察することが困難である [3.11.36]。そのため、引張り試験後に試料を TEM から取り出し、短冊から 3 mm ディスクを打ち抜き、二軸ホルダを用いて TEM で再観察して転位密度を測定した。

TEM 内その場引張りで塑性変形材を作製した理由は、様々な転位密度の組織を一つの試料の中に、同時に作製できるためである。一般的なバルクの引張り試験片では、変形組織は (粒によってバラつきはあるが) 比較的均一である。それに対して、TEM 内引張り用の試験片は、試料の厚さが不均一な薄膜であるため、塑性変形も不均一に進行し、その結果として転位密度が極端に高いところから転位が全く存在しないところまで、様々な組織が一つの試料の中に共存した状態となる。TEM 観察では、転位の回折コントラスト像を人間の目で判別して数を数えるが、転位がタングリングしていわゆる転位セル構造になってしまうと、そのセル壁を構成する転位が何本であるかを見分けることは不可能である。EBSD でも、転位密度があまりにも高すぎると (おそらく結晶格子の歪みが大きすぎて) Kikuchi パターンそのものが検出できないという問題がある。本研究の目的に理想的な、転位密度ができるだけ高く、尚且つ転位セル構造にはなっていない状態の組織を、バルクの引張り試験片で作成するためには多くの試行錯誤と時間が必要になる。そのような問題を回避するために、本研究では TEM 内引張り試験片を使用した。また、クラックが発生するまで試料を変形させたのは、TEM 観察した場所を SEM-EBSD 観察で探す際の目印として、クラックが役立つと考えたためである。

TEM 観察が終了した後、EBSD 分析を行った。TEM 観察を先に行った理由は、一度 EBSD を行うと、どんな材料でも目視で明らかなほどコンタミがついてしまうためである。測定は hexagonal grid で行い、ステップサイズは 50 nm に設定した。EBSD では、十分な強度のシグナルが得られないと分析自体が不可能であるため、分解能よりもシグナル強度を優先して、可能な限り大きいスポットサイズを選択するのが一般的である。さらに、試料内部でのビームの広がりの影響もあるため、ステップサイズは最小でも 50 nm 程度に設定するのが一般的である（最新鋭の透過 EBSD ではステップサイズを 10 nm にして測定している研究もある[3.11.37]）。

3.11.3.2 実験結果及び考察

図 3.11.36 はそのようにして作成した試料を TEM で観察して転位密度を測定し、さらに EBSD で KAM を評価した結果である。分析に用いた箇所は、転位密度ができるだけ高く、それでいて尚且つタンリングしていない個所を TEM 観察で探し、まずその転位密度を測定した。しかしながら、そのようにして TEM で観察した場所を SEM-EBSD 観察で見つけることは必ずしも容易ではない。目印になるクラックの近傍に分析箇所を設定した場合、EBSD 測定のために試料を大きく傾斜させた際に、陰に隠れてしまうことが往々にして起こる。また、粒界を目印にした場合も、その粒界が SEM 像のチャネリングコントラストで明瞭に可視化できないこともある。今回の分析では、有効なデータが一つしか得られなかったが、このデータを得るまでに、条件の最適化にかなりの数の試行錯誤を費やした。

転位密度はライン・インターセプト法[3.11.38]で求めた。インターセプト法とは、任意の基準線を引いたときに、その基準線と交差する転位線の本数から、単位長さ当たりの転位密度を求め、それを体単位積当たりの転位の密度（転位は線欠陥なので転位密度は“単位面積当たりの転位の長さ”である）に観察する手法である。測定に使用した基準線の本数は 30 本であり、基準線の長さは、1 本あたり 100 から 200 の転位が交差するように設定した。測定の結果得られた転位密度は $(1.42 \pm 0.56) \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ であった（図 3.11.36）。一般的な理解では、アニールした結晶の転位密度は $10^9 \sim 10^{11} \text{ m}^{-2}$ で、塑性変形すると歪量がおおよそ 10%で転位密度が 10^{14} m^{-2} になり、それより歪量が大きくなると転位セル構造が発達し始めるといわれている。本分析で導出した転位密度と、転位組織の視覚的な特徴は、一般的な認識と整合している。

次に、TEM 観察で測定した転位の密度を“転位の間隔”に変換することを試みた。ここではまず、密度から間隔を直接導出するのではなく、転位の間隔から密度を逆算した。図 3.11.37) はその計算方法の概念図である。転位の間隔が例えば 100 nm のときは、1000 nm x 1000 nm の面積中には、1000 nm の長さの転位が 10 本存在することになる。1000 nm x 1000 nm x 1000 nm のボックスの中には、1000 nm の長さの転位が 10x10 本存在することになる。このように考えれば、転位の間隔が 100 nm のときの転位密度は 10^{14} m^{-2} 、間隔が 10 nm のときの転位密度は 10^{16} m^{-2} 、間隔が 1 nm のときの転位密度は 10^{18} m^{-2} であることがわかる。この考え方を逆に考えると、転位密度が $1.42 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ のときは転位の間隔として 84 nm という数字が導出される（図 3.11.37）。

EBSD 分析では、この転位組織の KAM が 0.28° であることが明らかになった（図 3.11.36）。

Read の式を用いて結晶回転角と転位の間隔の関係を導出すると、 0.1° のときは 147 nm、 1° のときは 15 nm、 5° のときは 3 nm、 10° のときは 1.5 nm、 0.28° のときは 52 nm という解が得られる (図 3.11.37)。これは転位密度から導出した間隔 (84 nm) とは、完全には一致していないが、桁が同じという意味でかなりよく一致しているといえる。以上の結果から、転位のバーガースベクトルや符号がバラバラで、一列に並んでいないような一般的な状況でも、EBSD で求めた結晶回転角を、Read の式を元にして転位密度に換算することは、厳密な意味では正しくなかないとしても、ガイドラインとして半定量的な議論をする上ではそれほど大きな問題ではないと結論づけられる。

本研究で得られた成果を塑性変形組織の劣化の指標として活用するためには、転位密度と破壊の臨界条件の関係について理解する必要がある。この関係はマテリアルサイエンスの未解決問題の一つであり、理論が未だに確立していないので、現時点で考えられる予想を以下に記す。冷間強加工材の歪量は一般に $10^{14} \sim 10^{16} \text{ m}^{-2}$ であり、少なくともマクロスケールにおける平均値としては、転位密度の上限は 10^{16} m^{-2} 程度であることが多い [3.11.39]。例えば、冷間強加工法の一つである E-CAP (equal-channel angular pressing) では、転位密度は 2~4 パス目で最大となるが、そのときの転位密度は $10^{15} \sim 10^{16} \text{ m}^{-2}$ である [3.11.40]。前述したとおり、転位密度が 10^{16} m^{-2} のときの転位の間隔は 10 nm である (図 3.11.37)。転位自身には弾性応力場があるため、ある臨界距離まで近づくと、弾性相互作用によって互いに反発しあったり、引き寄せられたりする [3.11.36]。このような弾性相互作用がおそらく、転位密度の上限を規定しているのだろう。転位密度がその臨界濃度 (10^{16} m^{-2}) より大きい場合、それは (同符号の) 転位が 10 nm 以下の間隔で密集して存在することを意味する (転位論では伝統的に、クラックの核を “同符号の転位が合体した巨大転位” であると仮定している [3.11.41])。転位の間隔が 10 nm のときの結晶回転角を $b/D \approx$ の式を用いて、 b をオーステナイトステンレスの 0.257 nm として計算すると、 $\approx 0.0257 \text{ [rad]} = 1.47^\circ$ となる。 $b/2D = \tan(\theta/2)$ で計算した場合でも、 $0.01285 = \tan(\theta/2)$ から $\theta = 1.47^\circ$ である。EBSD で測定した KAM の値がそれより大きい領域は、転位密度がマクロスケールにおける上限より大きいという意味で、クラックの核形成の起点となる可能性が高い領域であるといえるかもしれない。この判定基準は、Read の関係式と転位密度の上限の一般論から導き出したものなので、その妥当性は本実験結果の是非とは無関係である。この判定基準の是非については、EBSD の原理 (KAM の計算手法の原理) という観点から今後さらなる議論が必要不可欠であるが、EBSD による寿命評価手法のガイドラインを作成するための叩き台として役立つと考えている。

3.11.4 結論

腐食による劣化組織の観察と、塑性変形による劣化組織の観察を行った。後者は EBSD と連携した基礎研究であり、具体的には、EBSD で分析した場所を TEM で直接観察し、EBSD で得られた結晶回転 (KAM) のデータが転位密度に換算するとどのような値になるのかを定量的に調べた。モデル計算では通常、転位密度をインプットデータとして用いることが多いため、結晶回転と転位密度の定量的関係 (転位一本当たり何°の結晶回転に相当するか) を求める本研究は、EBSD とモデル計算を橋渡しする役割を担う。このような試みは他に例がない。

腐食材の観察では、J 合金の Nb 析出物のふるまいについて重点的に調査した。ジルカロイの析出物 (ラーベス相 $Zr(Fe,Cr)_2$ と $Zr_2(Fe,Ni)$) は腐食酸化する際に Zr マトリックスに再固溶することが知られているが、J 合金の Nb 析出物は PWR 模擬環境で 13,000 時間腐食させても再固溶せず、析出物のまま酸化されることが TEM 観察の結果明らかとなった。モデル合金を用いた先行研究では、Nb 析出物が完全に再固溶するという報告もあるが、J 合金についてはその指摘が当てはまらないことが本研究によって明らかとなった。J 合金の耐食性が良好なことは、腐食増量の実験データから明らかであることから、Nb 添加による Zr 合金の耐食性向上のメカニズムに Nb 析出物の再固溶は関係ないと結論づけられる。

Nb 析出物の酸化は、大きく分けて 2 段階のプロセスで進行することが明らかとなった。第一段階から第二段階へ移行するタイミングは、微細組織上では、表面酸化被膜 - 金属母相界面から約 $1 \mu m$ がその臨界距離であり、これは時系列では腐食のステージ I に相当する (腐食時間 500 時間の時点における酸化被膜の厚さは約 $1.4 \mu m$ であった)。

第一段階の析出物と第二段階の析出物は、STEM 暗視野像 (Z コントラスト) や EDS 元素マップにおける視認性が大きく異なった。これは、第一段階から第二段階に移行する際に、析出物内部の電子密度と Nb 原子密度が大きく変化していることを意味する。第一段階の析出物は Z コントラストで明瞭に可視化されるのに対し、第二段階の析出物はマトリックス ($m-ZrO_2$) とほとんど見分けがつかないという特徴があった。これは、第二段階の析出物の電子密度が $m-ZrO_2$ のそれと同等であることを意味する。その条件に該当する Nb 酸化物は NbO_2 であるが、第二段階の析出物は殆どの場合、アモルファス構造であることがナノビーム電子回折から明らかとなった。第一段階の Nb 析出物は、電子回折図形が $bcc-Nb$ のそれとは明らかに異なっていた (格子定数が大きい) ことから、酸化していることは間違いないと判断されるが、その回折図形を再現できる酸化物は JCPDS の結晶データベースには存在しなかった。先行研究では、第一段階の析出物が NbO_2 (空間群 136) であると結論づけているものもあるが、本研究で得られた電子回折図形は NbO_2 に一致しなかった。また、電子密度の観点からも、析出物が NbO_2 になれば STEM-Z コントラストでマトリックスと見分けがつかなくなることは明らかである。析出物の酸化がさらに進行して Nb_2O_5 になると理論上、STEM-Z コントラストでは析出物がマトリックスより暗いコントラストになると予想されるが、そのようなコントラストは検出されなかった。

塑性変形による劣化組織の観察では、転位密度ができるだけ高く、尚且つ転位セル構造になっていない場所について、TEM 観察と EBSD 分析を行った。TEM 観察で定量評価した転位密度は

$(1.42 \pm 0.56) \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ であり、EBSD で定量評価した結晶回転 (KAM) は 0.28° であった。転位密度 $1.42 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ を転位の間隔に換算すると 84 nm である。この値は、Read が傾角粒界について提案した傾斜角 (結晶回転角) と刃状転位の間隔 D についての関係式 $b/2D = \tan(\theta/2)$ において、 $\theta = 0.28^\circ$ としたときの D 値 ($D = 52 \text{ nm}$) とよく一致している。Read の式は本来、“転位のバーガースベクトルと符号が同一の転位が一行に並んだ場合の回転角” について提案された式であるが、“バーガースベクトルや符号がバラバラで、一行に並んでいない転位の場合” についても、比較的よい近似になっていることが明らかとなった。

マクロスケールで XRD を用いて冷間加工材の転位密度を測定すると、その上限は 10^{16} m^{-2} 程度である場合が多い。転位密度が 10^{16} m^{-2} のときの転位の間隔は 10 nm である。転位密度が 10^{16} m^{-2} より大きい場合、それは同符号の転位が 10 nm 以下の間隔で密集して存在する状態に相当する (転位論では伝統的に、クラックの起源を“同符号の転位が合体した巨大転位” であると仮定している)。転位の間隔が 10 nm のときの結晶回転角は (Read の関係式で求めると) $\theta = 1.47^\circ$ である。EBSD で測定した KAM の値がそれより大きい領域は、転位密度がマクロスケールにおける上限より大きいという意味で、クラックの核形成の起点となる可能性が高い領域であると判定される。

参考文献

- [3.11.1] JST 原子力イニシアティブ「先進燃料被覆管材料の水素化および照射効果の解明に関する研究」報告書
- [3.11.2] Klimanek, P., Klemm, V., Romanov, A. E., & Seefeldt, M. Disclinations in plastically deformed metallic materials. *Adv. Eng. Mater.* 3, 877–884 (2001).
- [3.11.3] Kimura, H., Wang, Y., Akiniwa, Y. & Tanaka, K. Misorientation analysis of plastic deformation of austenitic stainless steels by EBSD and X-ray diffraction methods. *Trans. JSME (in Japanese)* A71, 1722–1728 (2005).
- [3.11.4] Kuroda, M., Yasunaga, K., Kamaya, M. & Yamada, T. Detection of Fatigue Damage in Stainless Steel by EBSD Analysis (Comparison with TEM Observation). *JPN Soc. Mech. Eng. (in Japanese)* 804, 38–42 (2013).
- [3.11.5] Umezaki, S., Yoshinori Murata, Y., Nomura, K. & Kubushiro, K. Quantitative analysis of dislocation density in an austenitic steel after plastic deformation. *JPN Inst. Met. Mater. (in Japanese)* 78, 218–224 (2014).
- [3.11.6] Allen, T. R., Konings, R. J. M. & Motta, A. T. Corrosion of Zirconium Alloys. In: Konings R. J. M., (ed.) *Comprehensive Nuclear Materials* 5, 49–68 (Amsterdam, Elsevier, 2012).
- [3.11.7] Toyama, T., Matsukawa, Y., Saito, K., Satoh, Y., Abe, H., Shinohara, Y. & Nagai, Y. Microstructural analysis of impurity segregation around ϵ -Nb precipitates in Zr-Nb alloy using positron annihilation spectroscopy and atom probe tomography. *Scripta Mater.* 108, 156–159 (2015).
- [3.11.8] Matsukawa, Y., Yang, H. L., Saito, K., Murakami, Y., Maruyama, T., Iwai, T., Murakami, K., Shinohara, Y., Kido, T., Toyama, T., Zhao, Z., Li, Y. F., Kano, S., Satoh, Y., Nagai, Y. & Abe, H. The effect of crystallographic mismatch on the obstacle strength of second phase precipitate particles in dispersion strengthening: bcc Nb particles and nanometric Nb clusters embedded in hcp Zr. *Acta Mater.* 102, 323–332 (2016).
- [3.11.9] Wei, J. et al. The effect of Sn on autoclave corrosion performance and corrosion mechanisms in Zr-Sn-Nb alloys. *Acta Mater.* 61, 4200–4214 (2013).
- [3.11.10] Sundell, G., Thuvander, M. & Andr en, H. ϵ -Nb. Barrier oxide chemistry and hydrogen pick-up mechanisms in zirconium alloys. *Corros. Sci.* 102, 490–502 (2016).
- [3.11.11] Lin, Y. P. & Woo, O. T. Oxidation of β -Zr and related phases in Zr-Nb alloys: an electron microscopy investigation. *J. Nucl. Mater.* 277, 11–27 (2000).
- [3.11.12] P cheur, D. Oxidation of ϵ -Nb and Zr(Fe,V)₂ precipitates in oxide films formed on advanced Zr-based alloys. *J. Nucl. Mater.* 278, 195–201 (2000).
- [3.11.13] Kim, H., Choi, B., Park, J., Cho, H. & Jeong, Y. Analysis of oxidation behavior of the ϵ -Nb phase formed in Zr-1.5Nb alloy by using the HVEM. *J. Alloys Compd.* 481, 867–871 (2009).

- [3.11.14] de Gabory, B., Motta, A. T. & Wang, K. Transmission electron microscopy characterization of Zircaloy-4 and ZIRLO™ oxide layers. *J. Nucl. Mater.* 456, 272–280 (2015).
- [3.11.15] Yao, M. Y. et al. Oxidation behavior of γ -Nb precipitates in Zr-1Nb-0.2Bi alloy corroded in lithiated water at 360 °C. *Corros. Sci.* 100, 169–176 (2015).
- [3.11.16] Zhang, J. L. et al. Corrosion behavior and oxide microstructure of Zr-1Nb-xGe alloys corroded in 360 °C/18.6 MPa deionized water. *Corros. Sci.* 102, 161–167 (2016).
- [3.11.17] Sakamoto, K. et al. Oxidation behavior of niobium in oxide layer of zirconium-niobium alloys. *Proc. TopFuel 2012*, Manchester, UK, September 2-6, 2012.
- [3.11.18] Une, K. et al. Controlling factors in hydrogen absorption of zirconium alloys. *Proc. TopFuel 2012*, Manchester, UK, September 2-6, 2012.
- [3.11.19] Jerlerud Pérez, R. & Massih, A. R. Thermodynamic evaluation of the Nb-0-Zr system. *J. Nucl. Mater.* 360, 242–254 (2007).
- [3.11.20] Schwarz, R. B. Johnson, W. L. Formation of amorphous alloy by solid-state reaction of the pure polycrystalline metals. *Phys. Rev. Lett.*, 51, 415–418 (1983).
- [3.11.21] Clemens, B. M., Johnson, W. L., Schwarz, R.B. Amorphous zirconium nickel films by solid-state reactions. *J. Non-Crystall. Sol.* 61 & 62, 817–822 (1984).
- [3.11.22] Cheng, Y. -T., Johnson, W. L. & Nicolet, M. A. Dominant moving species in the formation of amorphous NiZr by solid state reaction. *Appl. Phys. Lett.* 47, 800–802 (1985).
- [3.11.23] Newcomb, S. B. & Tu, K. N. Transmission electron microscopic observations of amorphous NiZr alloy formation by solid-state reaction. *Appl. Phys. Lett.* 48, 1436–1438 (1986).
- [3.11.24] Thomas, O., d'Heurle, F.M. & Charai, A. Reacted amorphous layers: tantalum and niobium oxides. *Philos. Mag. B* 58, 529–538 (1988).
- [3.11.25] Yeh, X. L., Samwer, K. & Johnson, W. L. Formation of an amorphous metallic hydride by reaction of hydrogen with crystalline intermetallic compounds—A new method of synthesizing metallic glasses. *Appl. Phys. Lett.* 42, 242–244 (1983).
- [3.11.26] Aoki, K., Yamamoto, T. & Matsumoto, T. Hydrogen induced amorphization in RNi₂ Laves phase. *Scripta Met.* 21, 27–31 (1987).
- [3.11.27] Li, Y. Y., Yang, C., Chen, W. P., Li, X. Q. & Zhu, M. Oxygen-induced amorphization of metallic titanium by ball milling. *J. Mater. Res.* 22, 1927–1932 (2007).
- [3.11.28] Johnson, W. L. Thermodynamic and kinetic aspects of the crystal to glass transformation in metallic materials. *Prog. Mater. Sci.* 30, 81–134 (1986).
- [3.11.29] Okamoto, H., *Phase Diagrams for Binary Alloys*, Desk Handbook, 2nd Edition. 1, (ASM International, 2000).

- [3.11.30] Volterra, V., Sur l'équilibre des corps élastiques multiplément connexes. Annales scientifiques de l'École Normale Supérieure (in French) 24, 401–517 (1907).
- [3.11.31] Taylor, G.I. The mechanism of plastic deformation of crystals. Part I. - Theoretical. Proc. Roy. Soc. London 145, 362–387 (1934).
- [3.11.32] Taylor, G.I. The mechanism of plastic deformation of crystals. Part II. - Comparison with observations. Proc. Roy. Soc. London 145, 388–404 (1934).
- [3.11.33] Frank, F. C. On the theory of liquid crystals, Discussions Faraday Soc. 25, 19–28 (1958).
- [3.11.34] Read Jr, W. T. Dislocations in Crystals. (McGraw-Hill, New York, 1953). pp.155-181.
- [3.11.35] Vogel, F. L., Pfann, W. G., Corey, H. E. & Thomas, E. E. Observations of dislocations in lineage boundaries in Germanium. Phys. Rev. 90, 489–489 (1953).
- [3.11.36] Matsukawa, Y. & Liu, G. S. In situ TEM study on elastic interaction between a prismatic loop and a gliding dislocation. J. Nucl. Mater. 425, 54-59 (2013).
- [3.11.37] Garner, A., Gholinia, A., Frankel, P., Gass P., MacLaren, I. & Preuss, M. The microstructure and microtexture of zirconium oxide films studied by transmission electron backscatter diffraction and automated crystal orientation mapping with transmission electron microscopy. Acta Mater. 80, 159-171 (2014).
- [3.11.38] Canfield, R. .H. Application of the line interception method in sampling range vegetation. J. Forestry 39, 399-394 (1941).
- [3.11.39] Murty, K. L. & Charit, I. An introduction to nuclear materials: fundamentals and applications. (Wiley-VCH, Boschstr, 2013) pp.
- [3.11.40] Gubicza, J. X-Ray line profile analysis in materials science. (IGI Global, Hershey, 2014) pp.298-300.
- [3.11.41] Cottrell, A. H. Trans. AIME 212, 192 (1958).

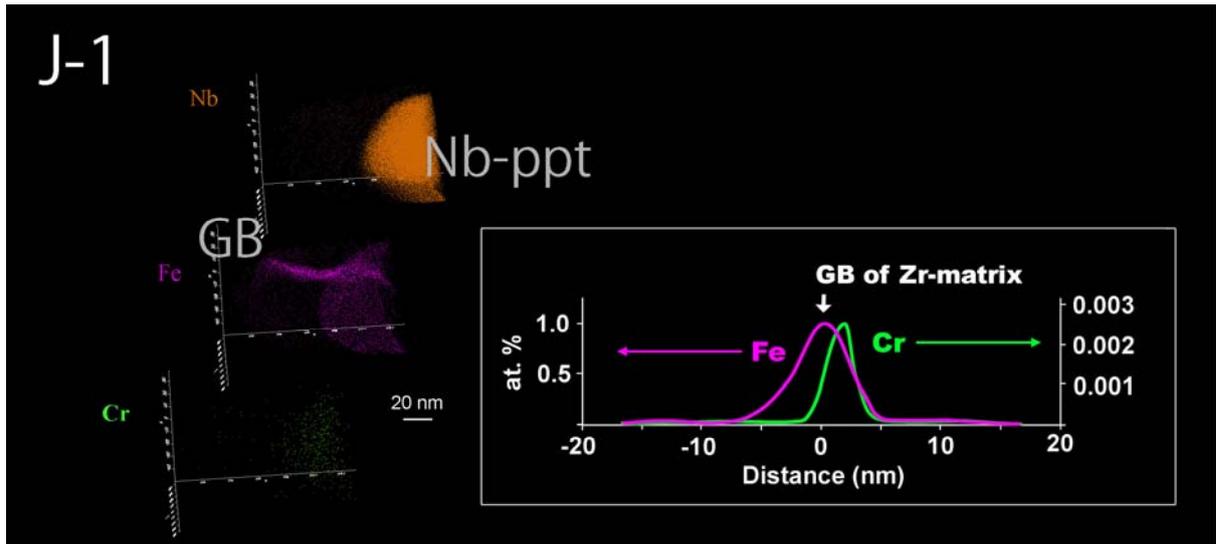


図 3.11.1 J1 受領材の三次元原子マップ[3.11.1,7]

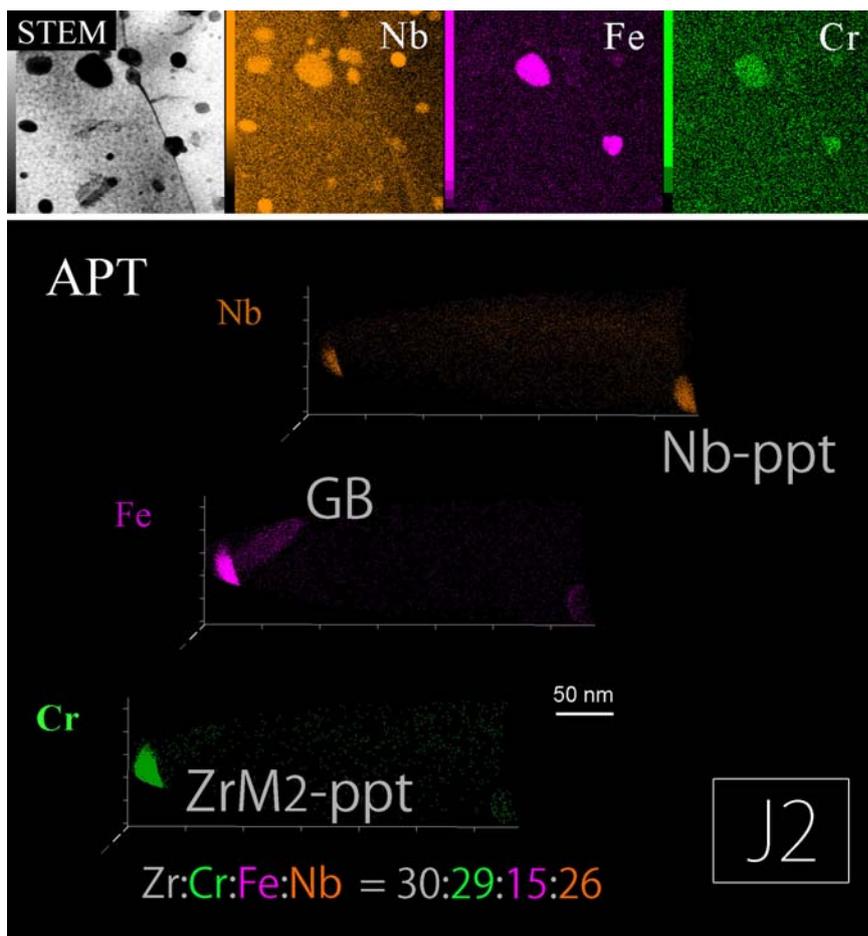


図 3.11.2 J2 受領材の EDS マップと三次元原子マップ[3.11.1]

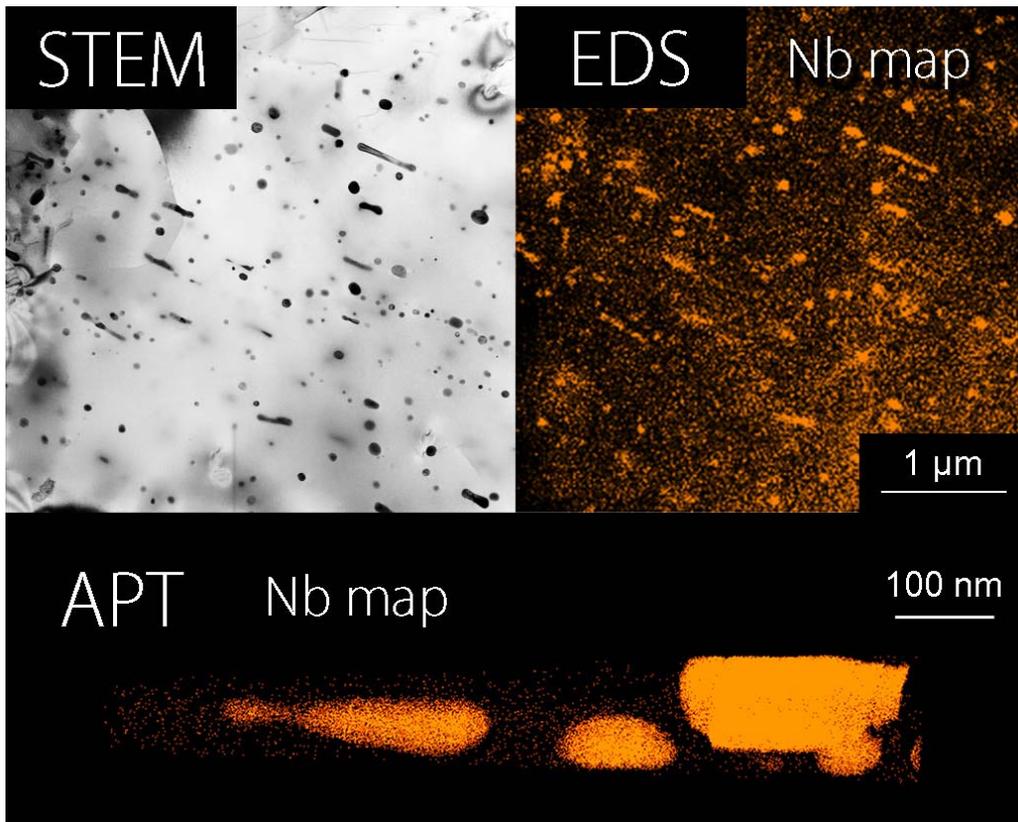


図 3.11.3 J3 受領材の EDS マップと三次元原子マップ[3.11.1,8]

表 3.11.1 APT で導出した J3 の金属母相と酸化被膜（亜酸化物 Zr₃O、Zr₂O、ZrO と安定酸化物 ZrO₂）の組成[3.11.1]

	ZrO ₂	ZrO	Zr ₂ O	Zr ₃ O	Matrix
Zr	28.4	51.8 (48.7)	67.6	73.7	99.48
O	71.4	48.1 (51.3)	32.3	26.0	-
Nb	0.18	0.09 (-)	0.01	0.29	0.51
Fe	0.02	0.01 (0.01)	0.07	0.08	0.01

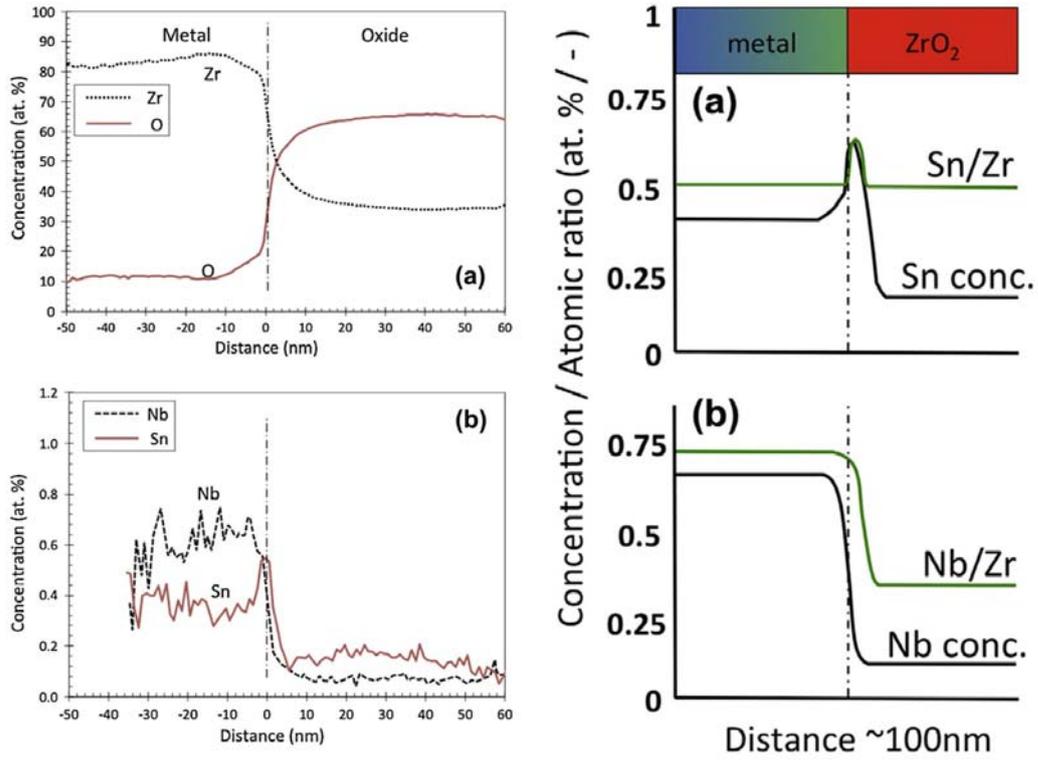


図 3.11.4 ZIRLO の金属母相 - 酸化被膜界面の Wei らの APT 分析結果[3.11.9]

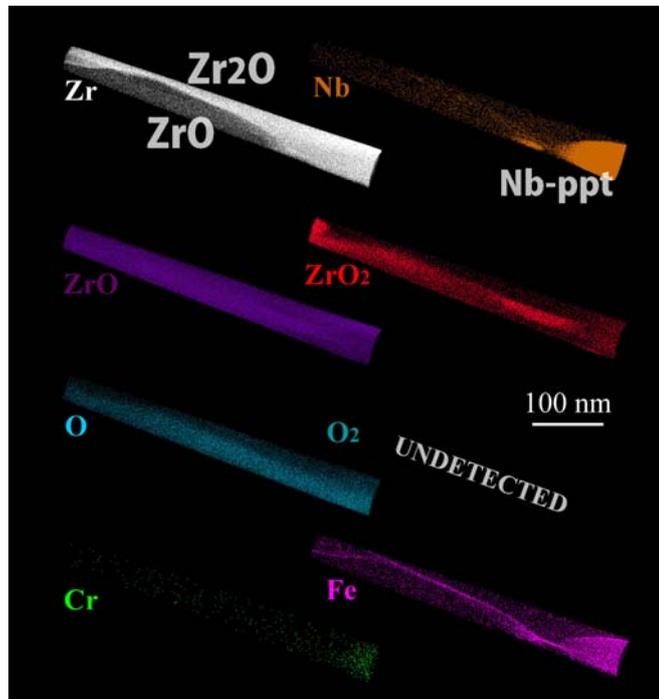


図 3.11.5 J3 腐食材の三次元原子マップ (その1) [3.11.1]

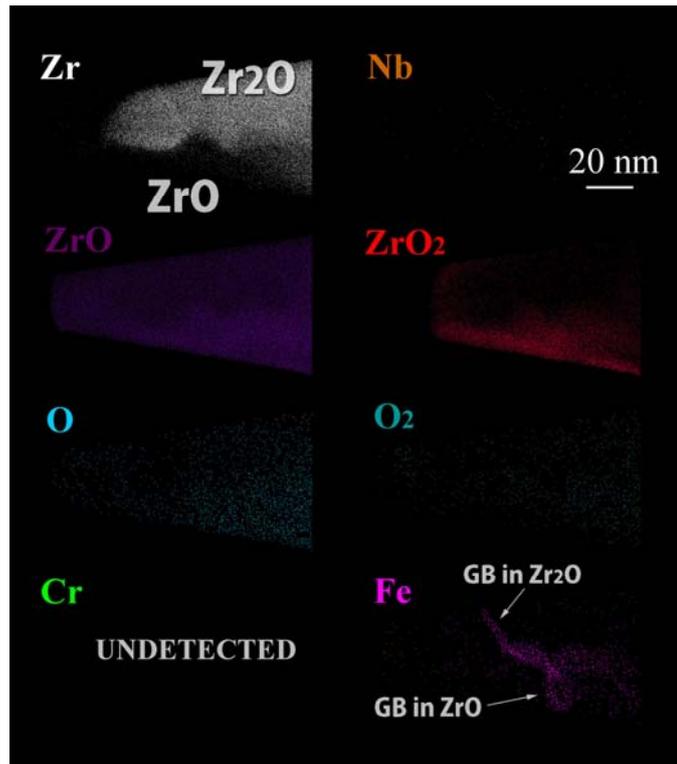


図 3.11.6 J3 腐食材の三次元原子マップ (その 2) [3.11.1]

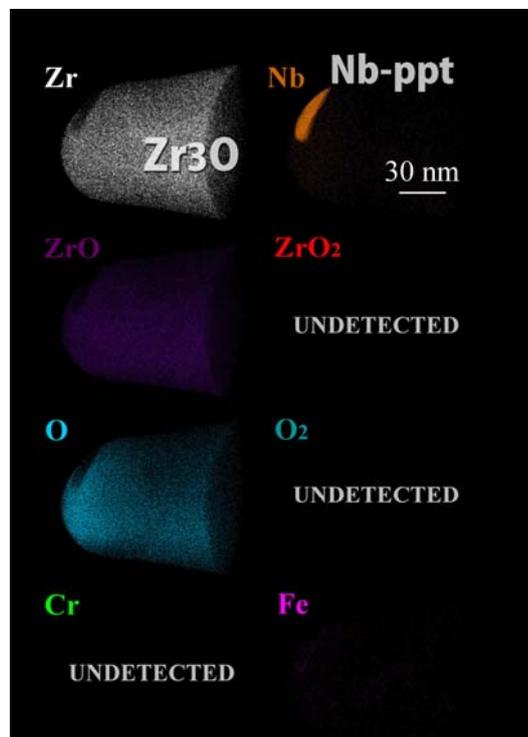


図 3.11.7 J3 腐食材の三次元原子マップ (その 3) [3.11.1]

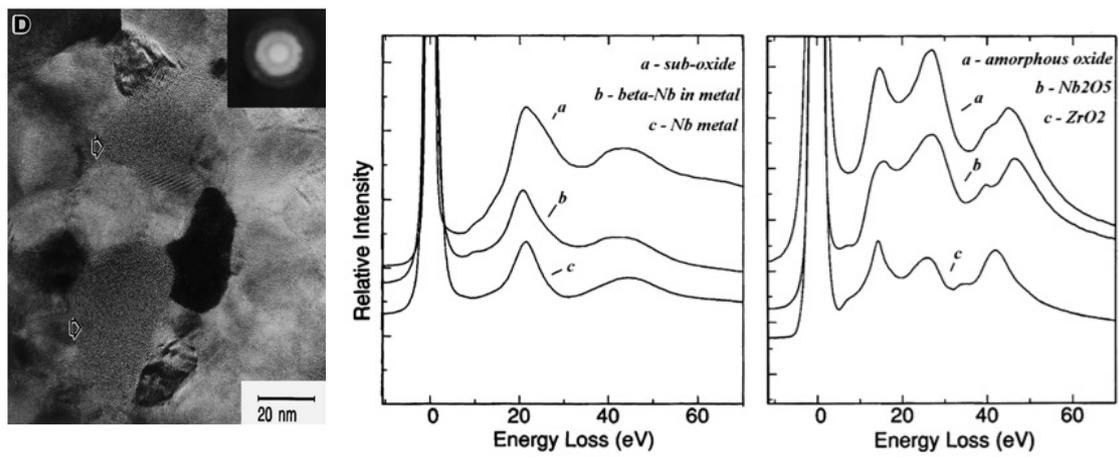


図 3.11.8 Lin らが分析したアモルファス Nb 析出物の EELS スペクトラム[3.11.11]

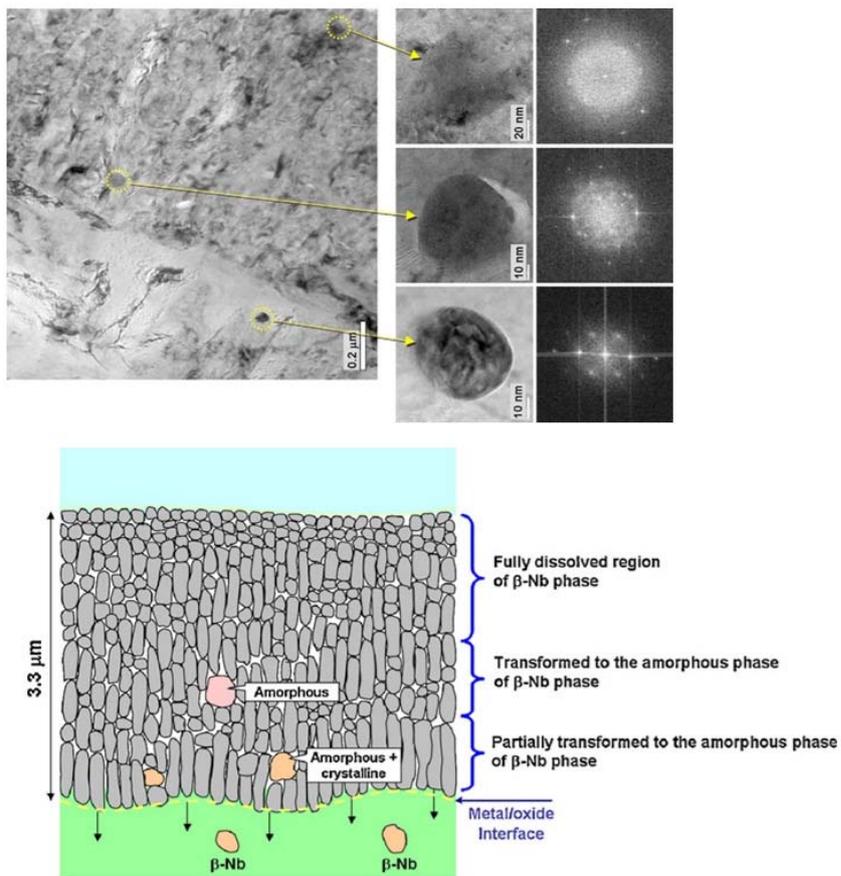


図 3.11.8 Kim らの HR-TEM 分析結果と Nb 析出物のふるまいの模式図[3.11.13]

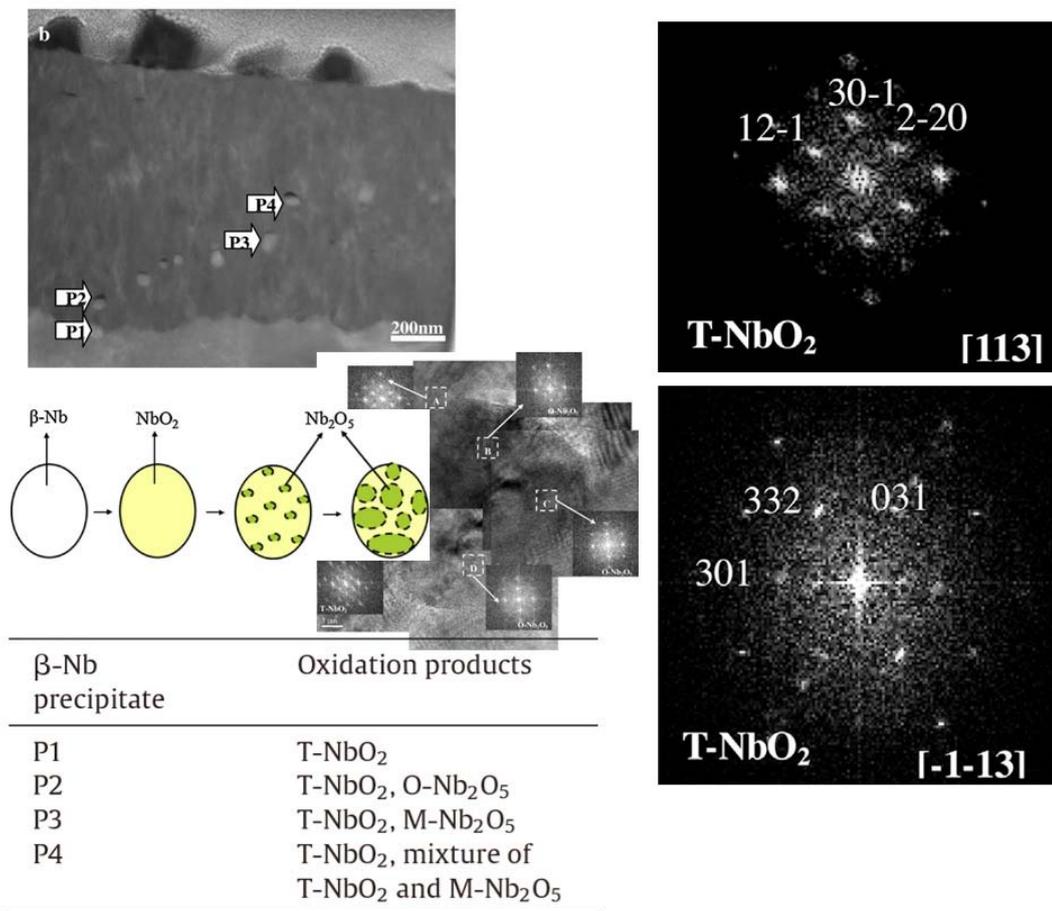


図 3.11.10 Yao らの HR-TEM 分析結果と Nb 析出物の酸化プロセスの模式図[3.11.15]

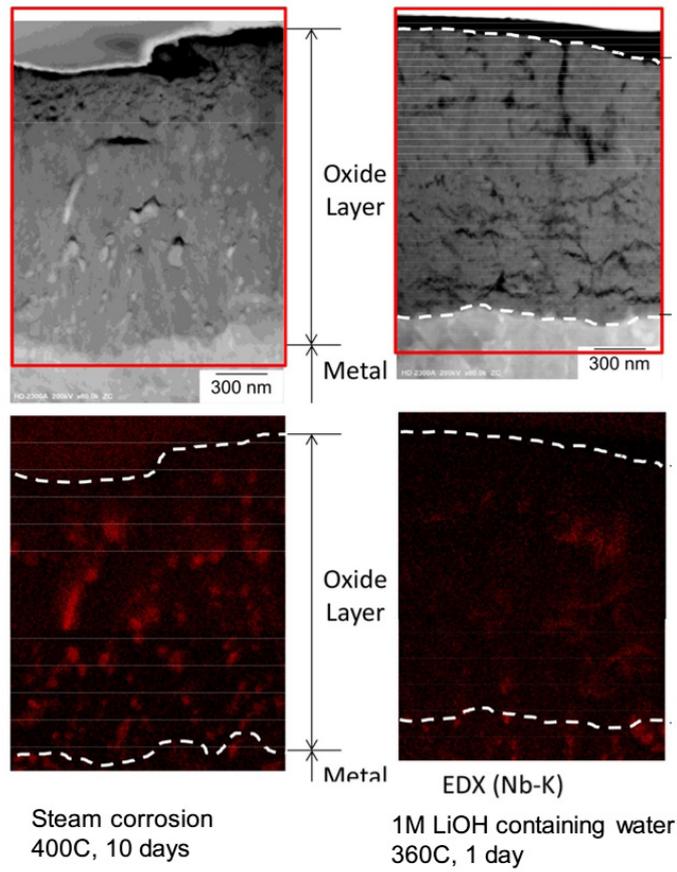


図 3.11.11 Sakamoto と Une らの STEM と EDS 分析結果[3.11.17-3.11.18]

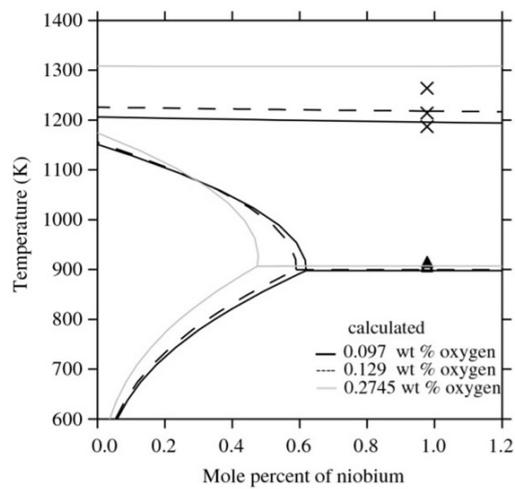


図 3.11.12 Pérez らの Zr-Nb-O 擬二元系計算状態図 [3.11.19]



図 3.11.13 本研究で使用した FIB (東大東海村キャンパスの Hitachi FB2000)



図 3.11.14 本研究で主に使用した TEM (東北大大洗キャンパスの JEOL ARM200F)

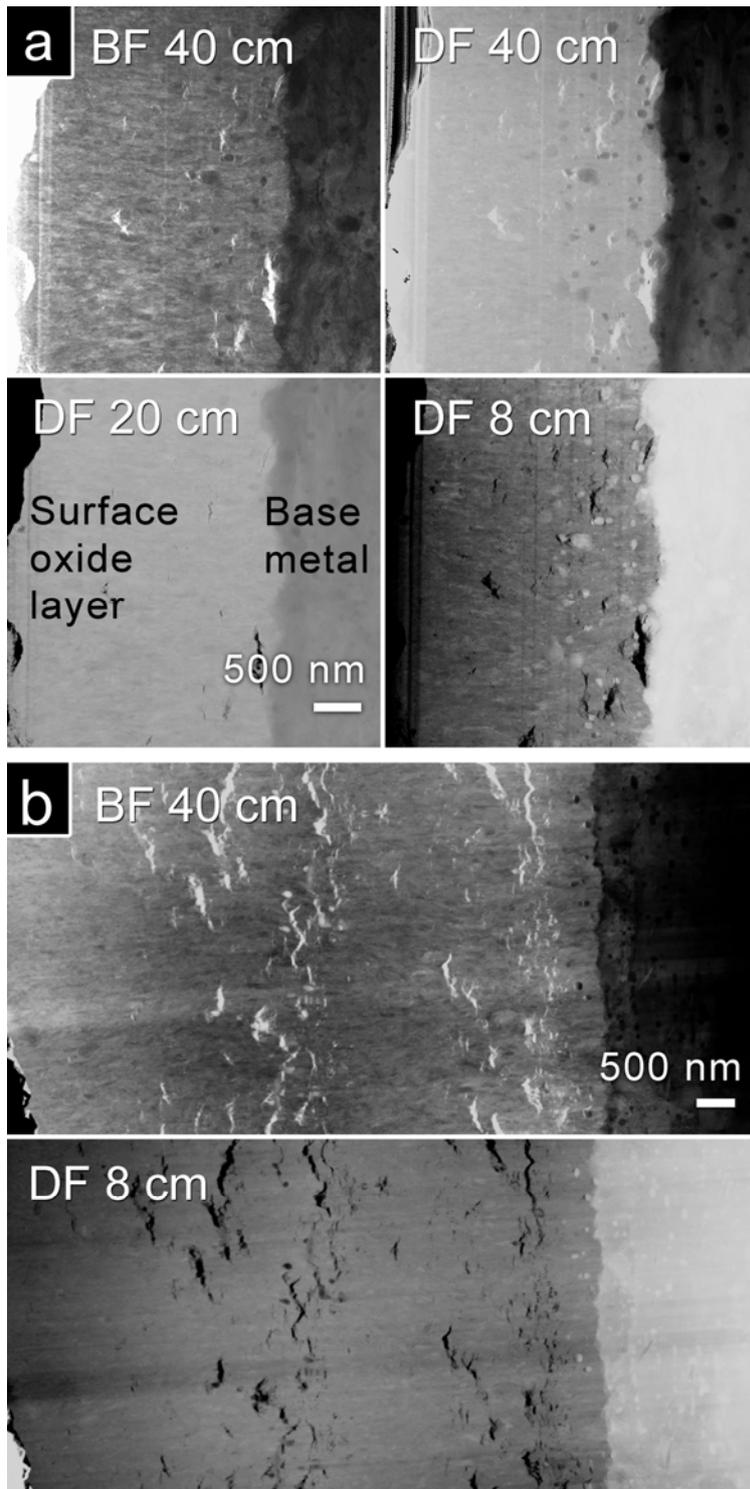


図 3.11.15 表面酸化被膜の STEM 像 (a) 3,500 時間 (b) 13,000 時間

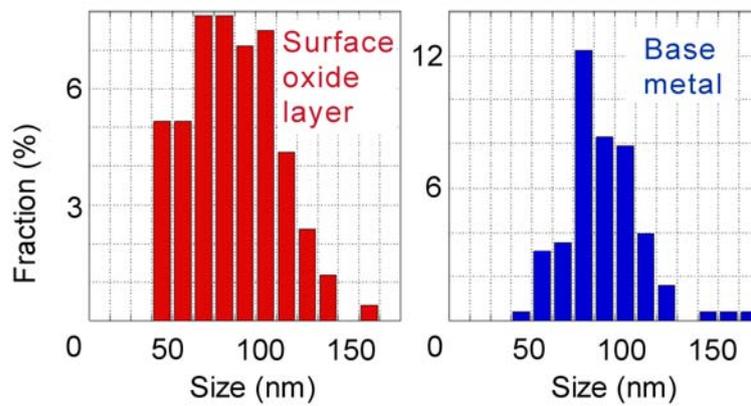
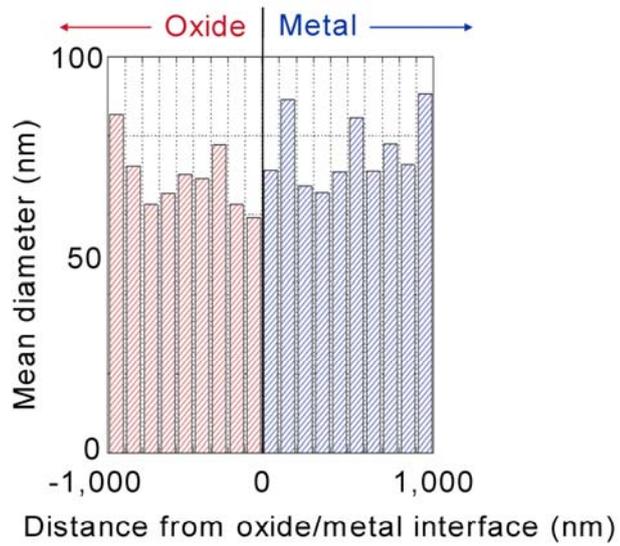
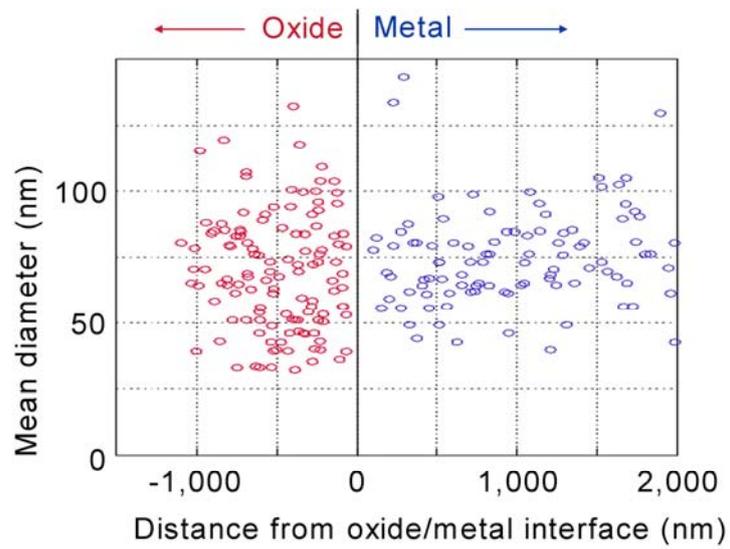


図 3.11.16 酸化被膜及び隣接する金属母相における Nb 析出物のサイズ分布 (3,500 時間)

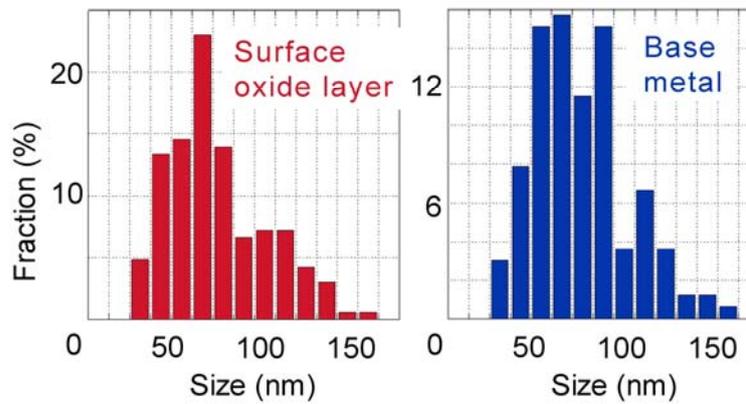
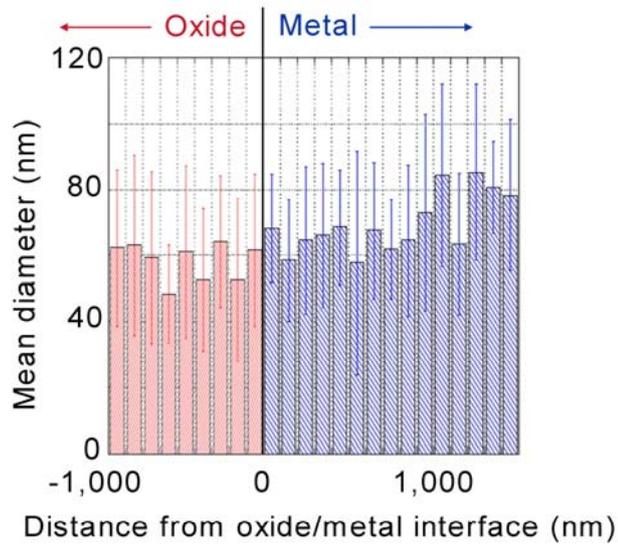
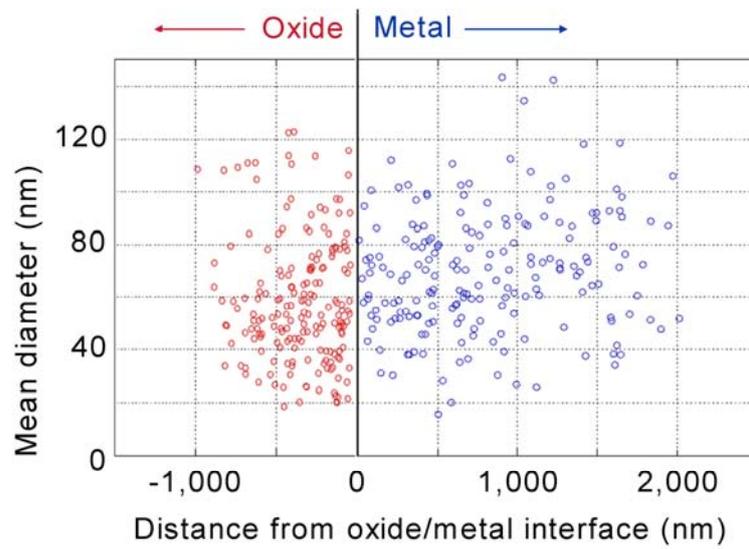


図 3.11.17 酸化被膜及び隣接する金属母相における Nb 析出物のサイズ分布 (8,500 時間)

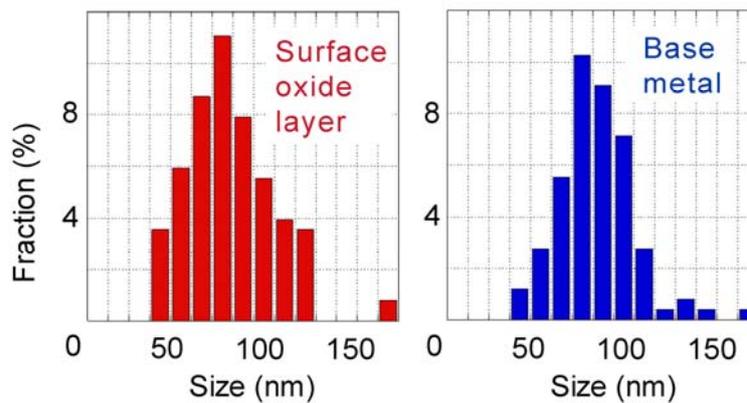
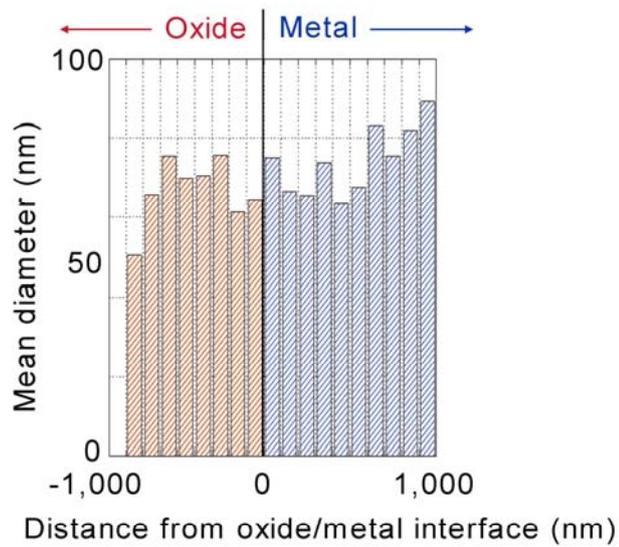
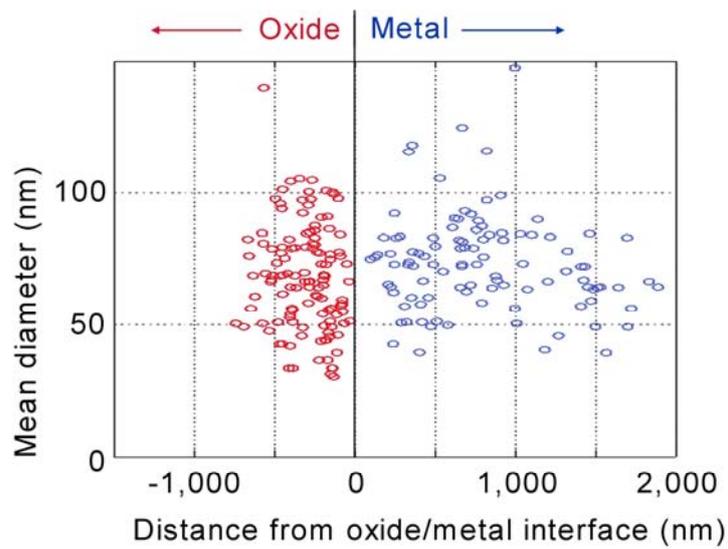


図 3.11.18 酸化被膜及び隣接する金属母相における Nb 析出物のサイズ分布 (13,000 時間)

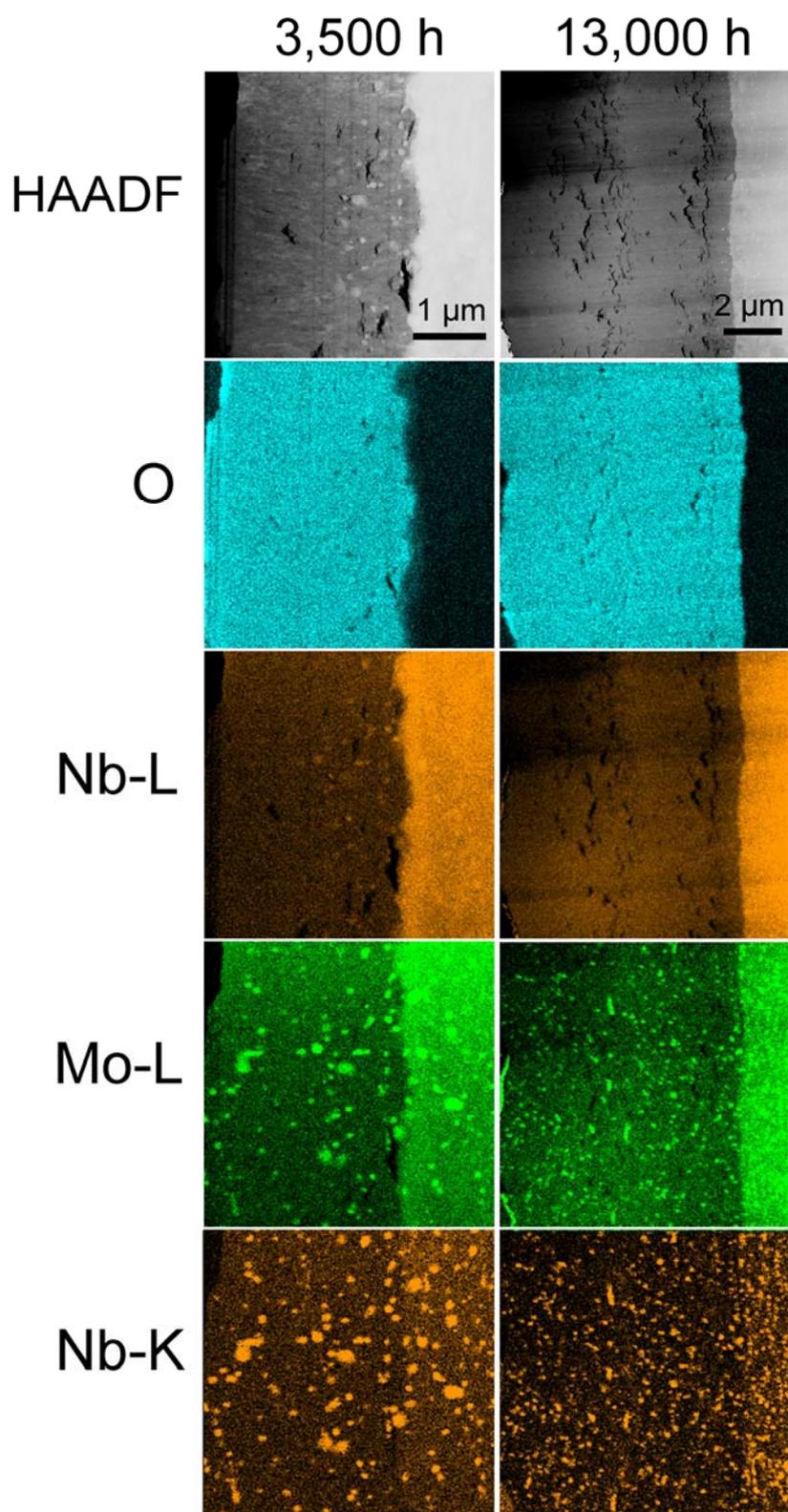


図 3.11.19 表面酸化被膜の EDS マップ

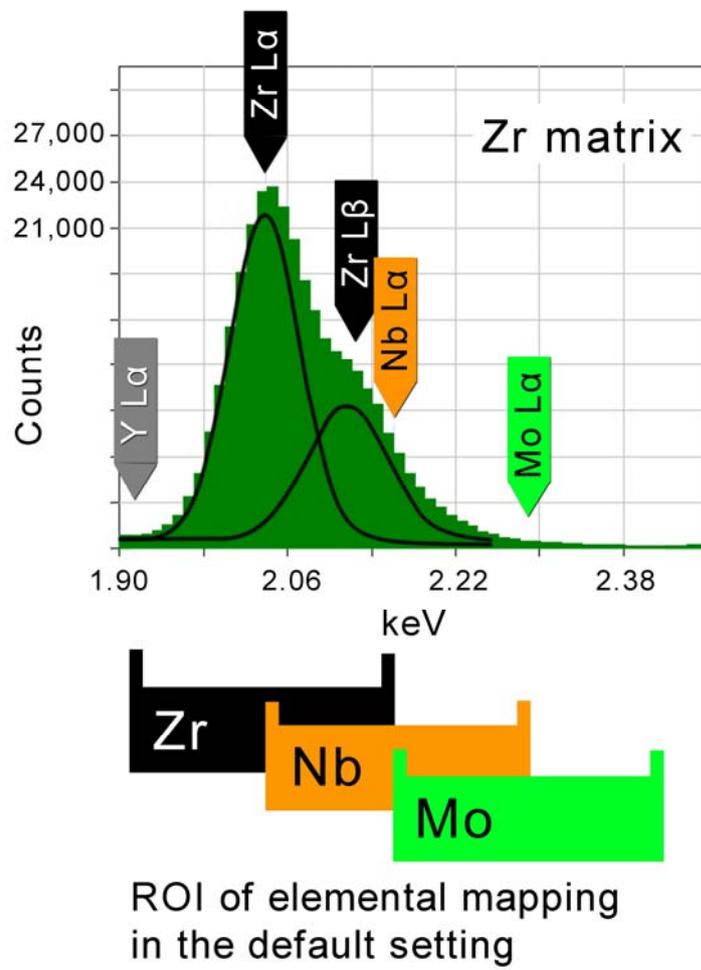


図 3.11.20 EDS における Nb-L 線のピークオーバーラップ

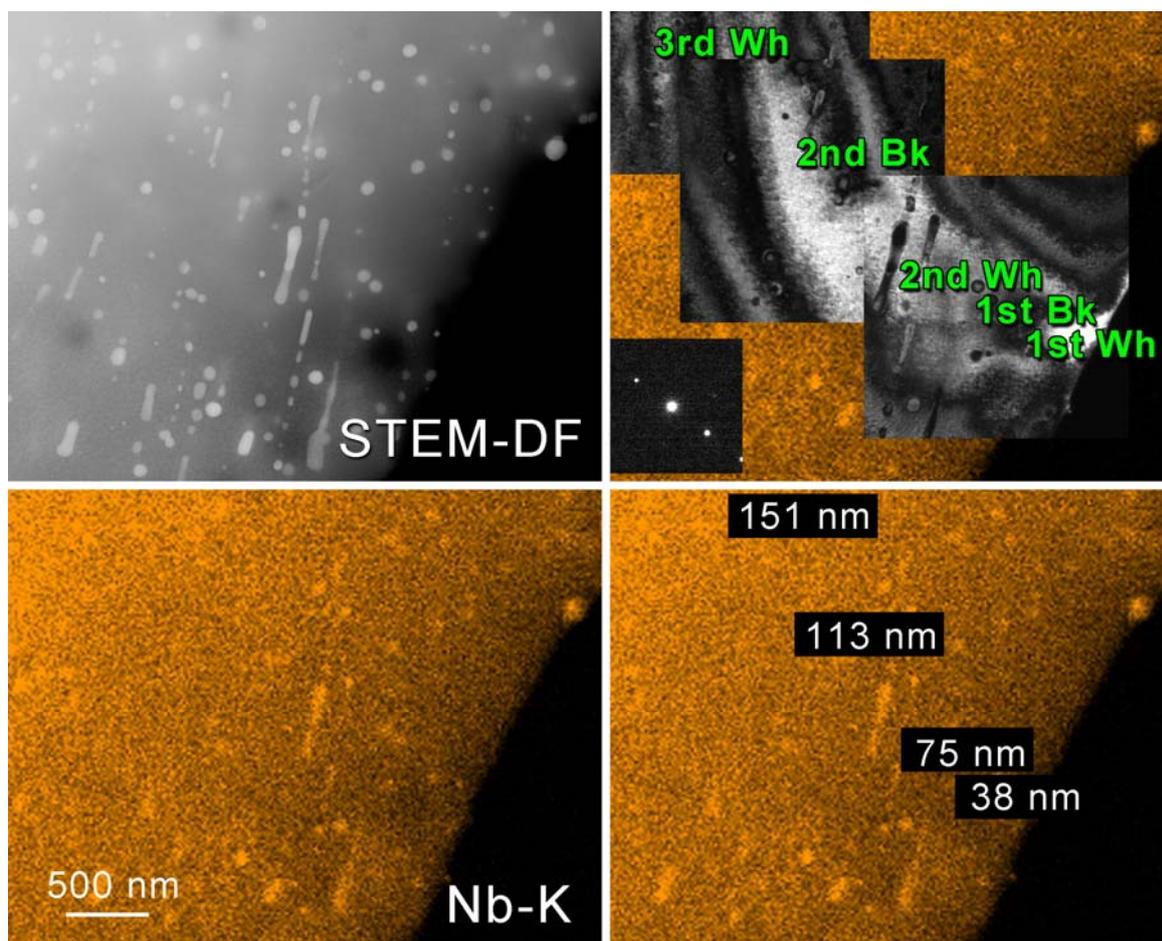


図 3.11.21 Nb-L マップにおける Nb 析出物の視認性と試料厚さの関係 (試料は J3 受領材)

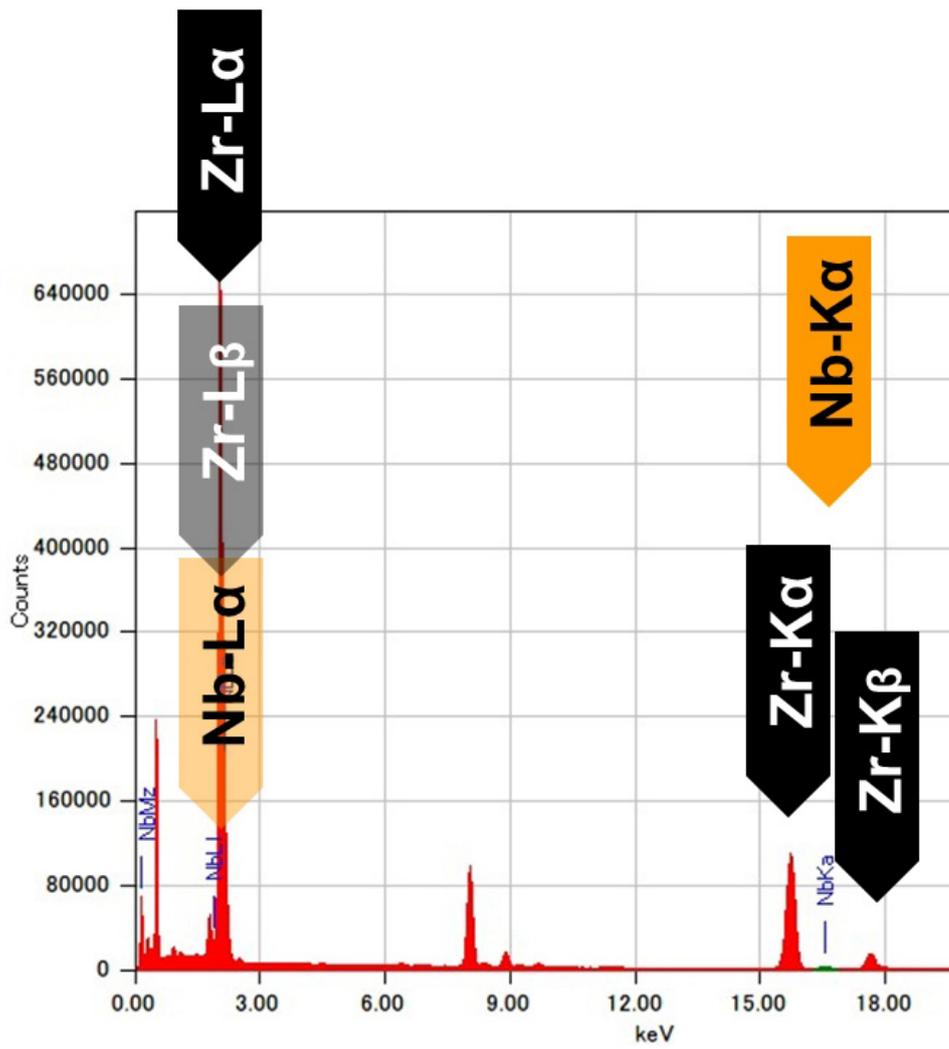


図 3.11.22 Nb-L 線と Nb-K 線の比較

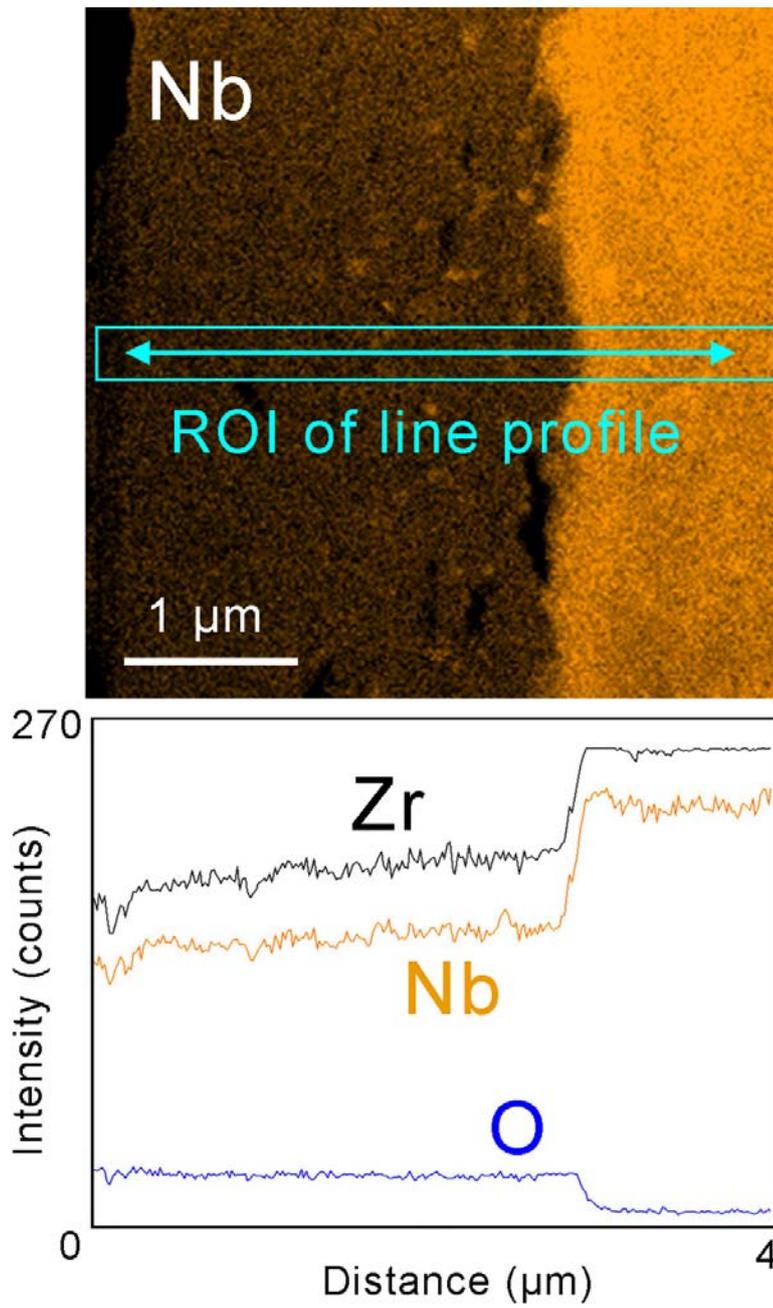


図 3.11.23 特性 X 線の強度プロファイル

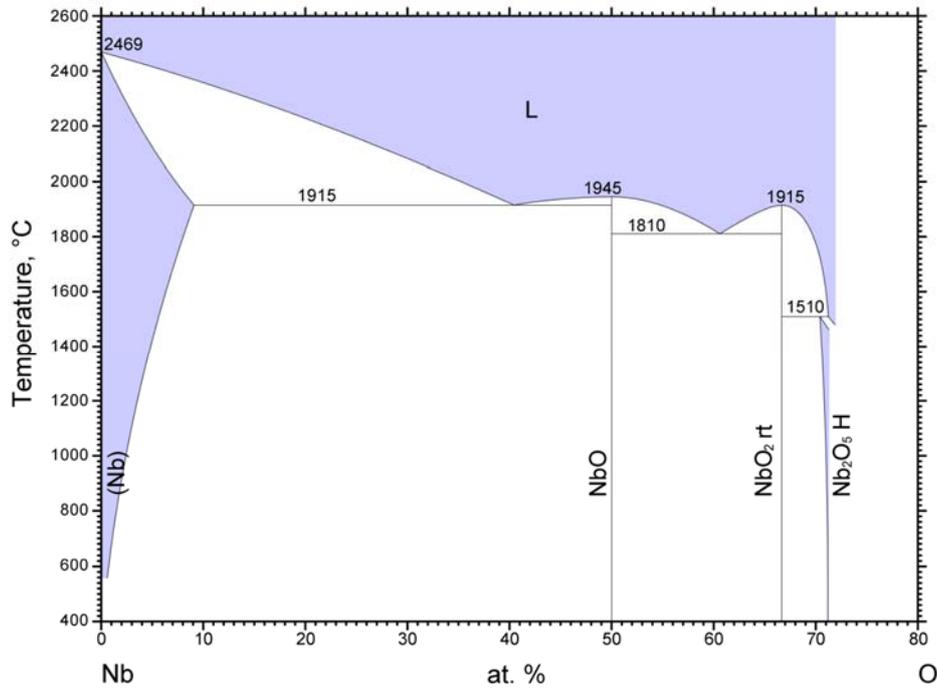
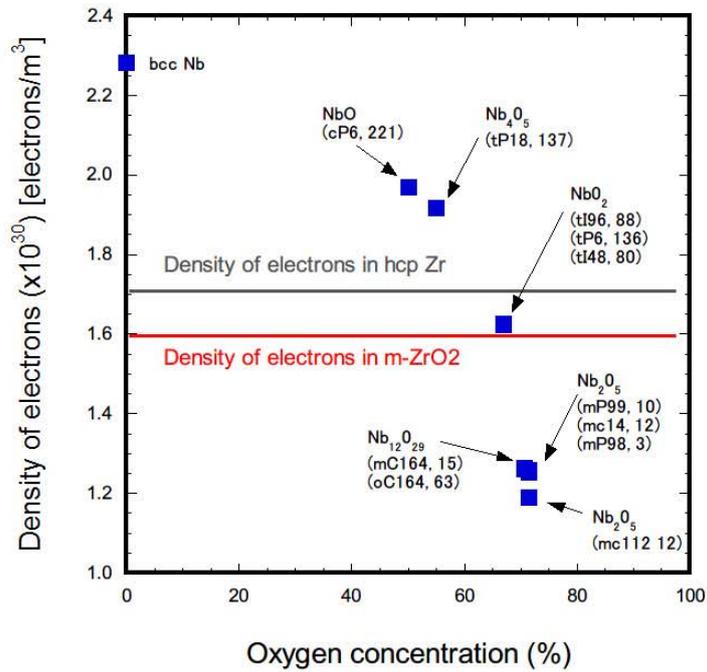


図 3.11.24 Nb-O 二元系平衡状態図

表 3.11.2 hcp-Zr、m-ZrO₂、bcc-Nb 及び Nb 酸化物の結晶学的データと電子密度

	hcp-Zr	m-ZrO ₂	bcc-Nb	NbO	Nb ₄ O ₅	bct-NbO ₂	t-NbO ₂	Nb ₁₂ O ₂₉	H-Nb ₂ O ₅
Symmetry	P6 ₃ /mmc	P2 ₁ /c	Im $\bar{3}$ m	Pm $\bar{3}$ m	P4 ₂ /mnc	I4 ₁ /a	P4 ₂ /mnc	C2/c	P2/m
Space group	194	14	229	221	137	88	136	15	10
Pearson symbol	hP2	mP12	cI2	cP6	tP18	tI96	tP6	mC164	mP99
Atoms / unit cell	2	12	2	6	18	96	6	164	99
Electrons / unit cell	80	224	82	147	408	1824	114	2896	1708
a [pm]	323	514	330	421	665	1370	485	2072	2115
b [pm]	323	521	330	421	665	1370	485	383	382
c [pm]	515	531	330	421	481	598	299	3133	1936
α [degree]	120	90	90	90	90	90	90	113	90
β [degree]	90	99.2	90	90	90	90	90	90	119.8
Unit cell volume [m ³]	4.7x10 ⁻²⁹	1.4x10 ⁻²⁸	3.7x10 ⁻²⁹	7.5x10 ⁻²⁹	2.1x10 ⁻²⁸	1.1x10 ⁻²⁷	8.1x10 ⁻²⁸	2.3x10 ⁻²⁷	1.4x10 ⁻²⁷
Atomic density [m ⁻³]	4.3x10 ²⁸	8.5x10 ²⁸	5.6x10 ²⁸	8.0x10 ²⁸	8.5x10 ²⁸	8.6x10 ²⁸	8.1x10 ²⁸	7.2x10 ²⁸	7.2x10 ²⁸
Density of Zr atoms	4.3x10 ²⁸	2.8x10 ²⁸	-	-	-	-	-	-	-
Density of Nb atoms	-	-	5.6x10 ²⁸	4.0x10 ²⁸	4.2x10 ²⁸	2.9x10 ²⁸	2.8x10 ²⁸	2.1x10 ²⁸	2.1x10 ²⁸
Electron density [m ⁻³]	1.7x10 ³⁰	1.6x10 ³⁰	2.3x10 ³⁰	2.0x10 ³⁰	1.9x10 ³⁰	1.6x10 ³⁰	1.6x10 ³⁰	1.3x10 ³⁰	1.3x10 ³⁰

Density of electrons in bcc Nb and Nb oxides



Density of Nb atoms in bcc Nb and Nb oxides

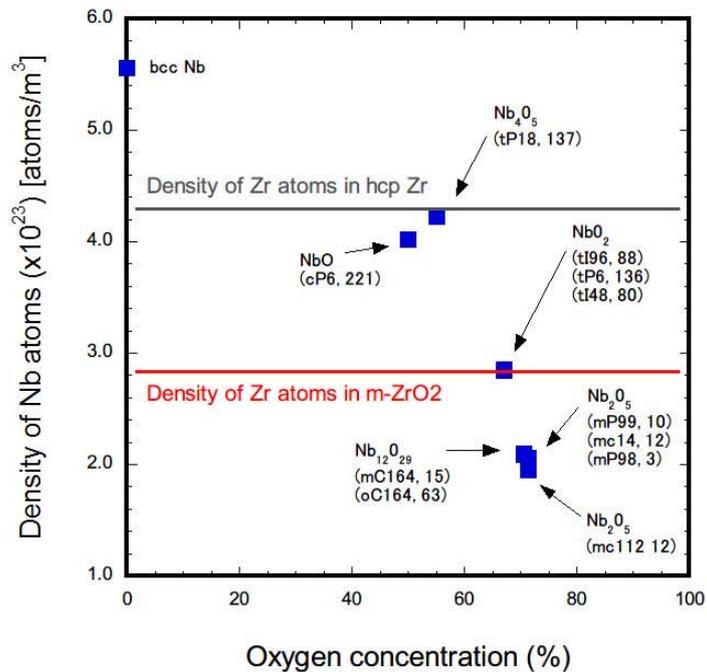


図 3.11.25 酸化に伴う電子密度と原子密度の変化

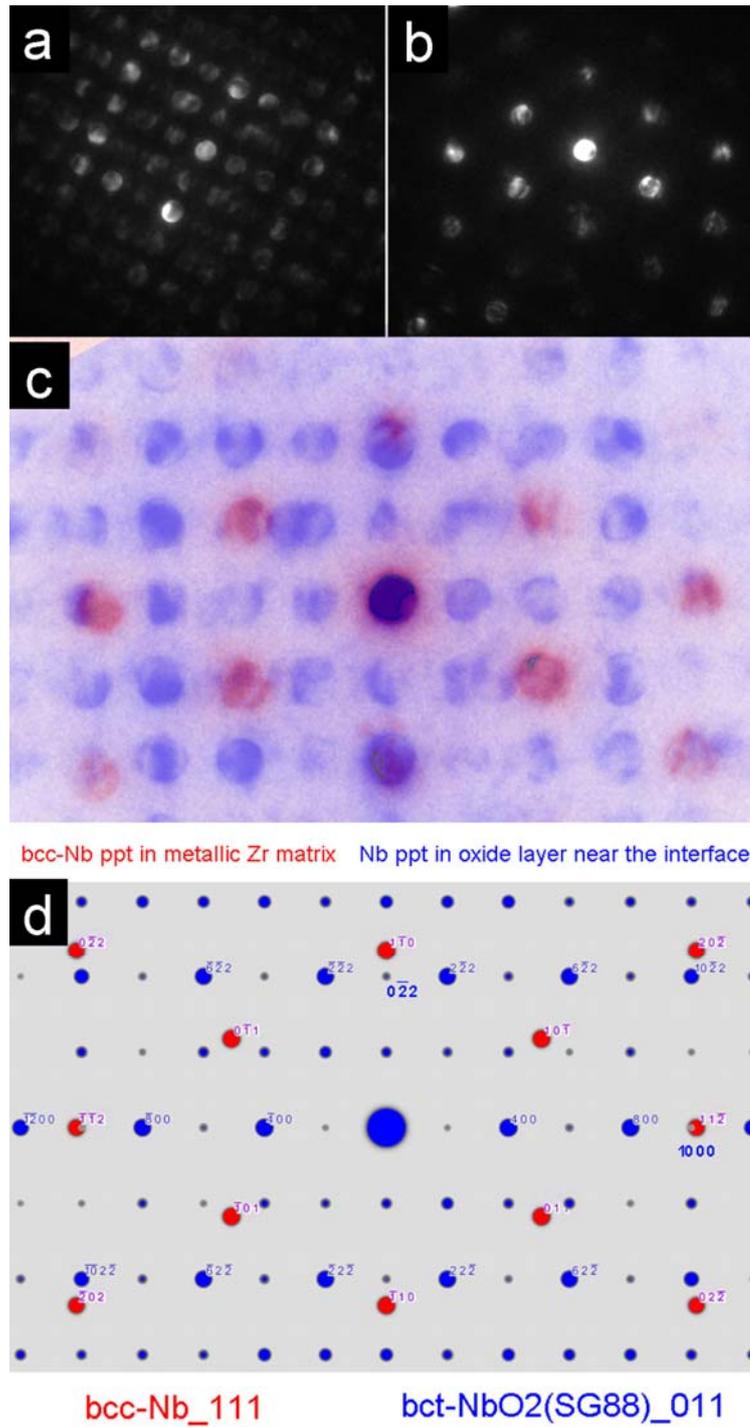


図 3.11.26 界面近傍の (STEM で容易に識別できる) 析出物の結晶構造解析

(a) 酸化被膜中の析出部の回折図形 (b) 未酸化 bcc-Nb 析出物の回折図形 (c) 格子定数を比較するために両者を重ね合わせたもの (d) シミュレーションの結果 (c) と (d) は縦方向に関してはほぼ一致しているが、横方向に関しては赤丸と青丸の数が一致していない。

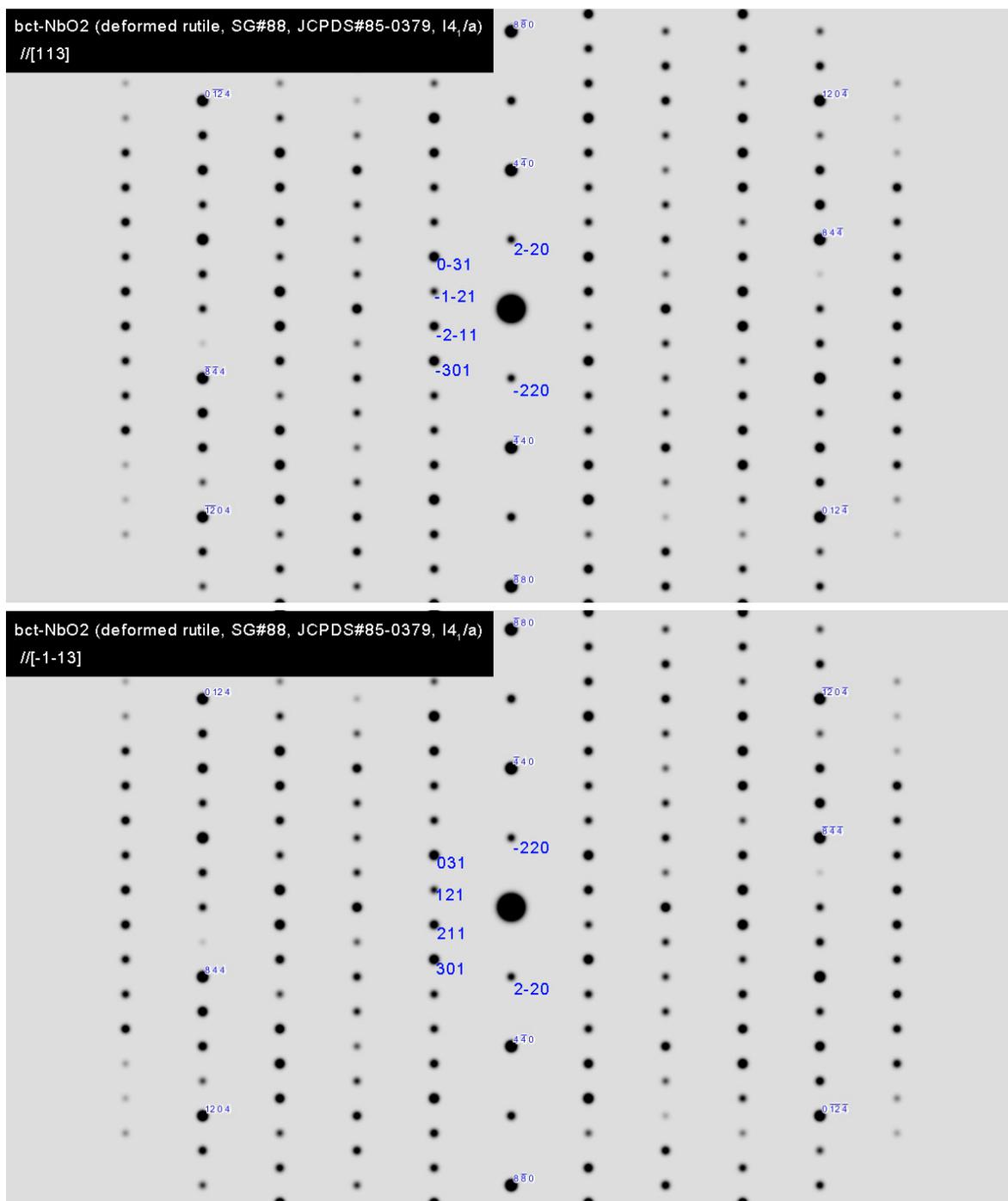


図 3.11.27 bct-NbO₂ の回折図形 (//[113]及び//[$\bar{1}\bar{1}3$])

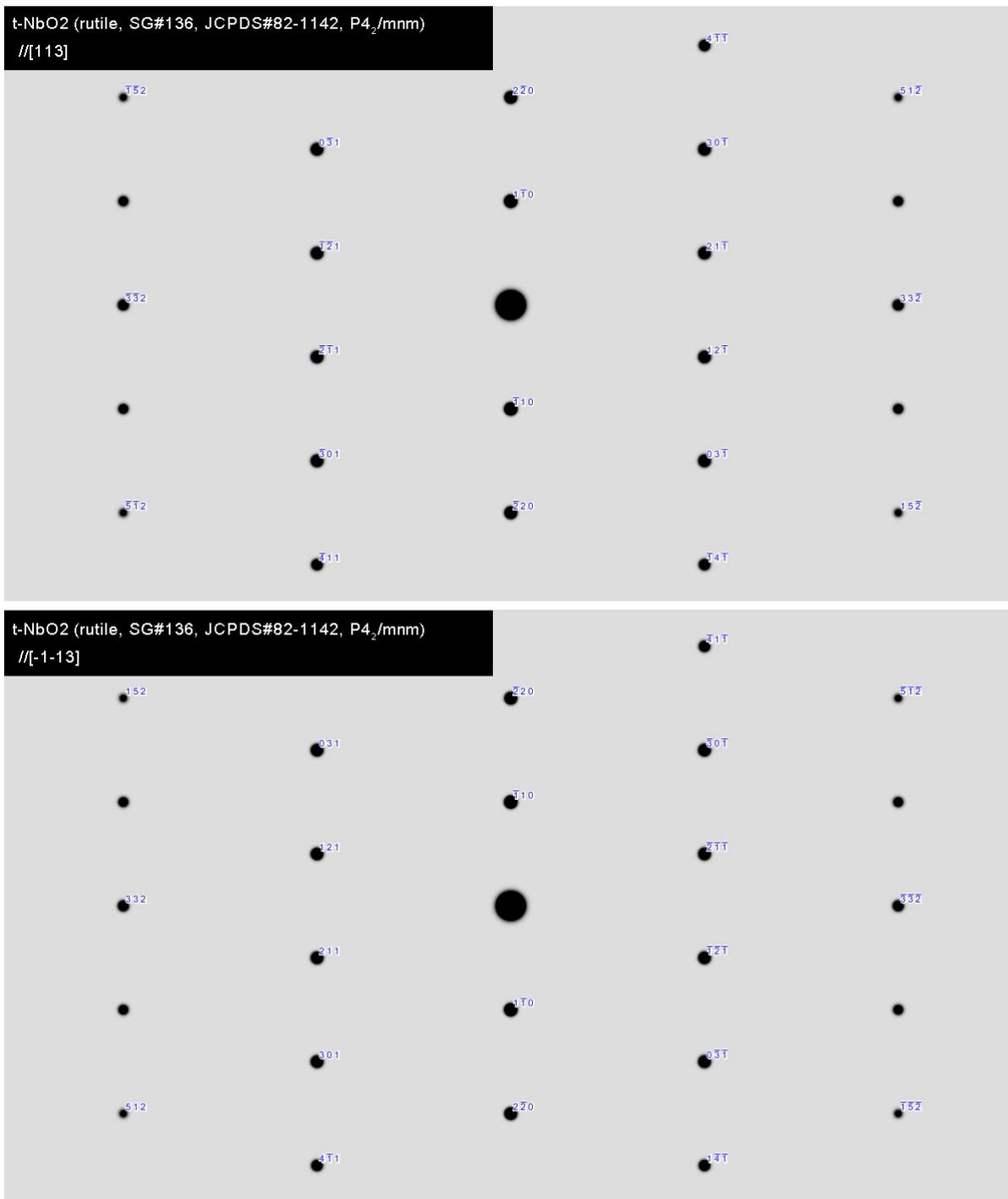


図 3.11.28 t-NbO₂の回折図形（//[113]及び//[$\bar{1}\bar{1}3$]）

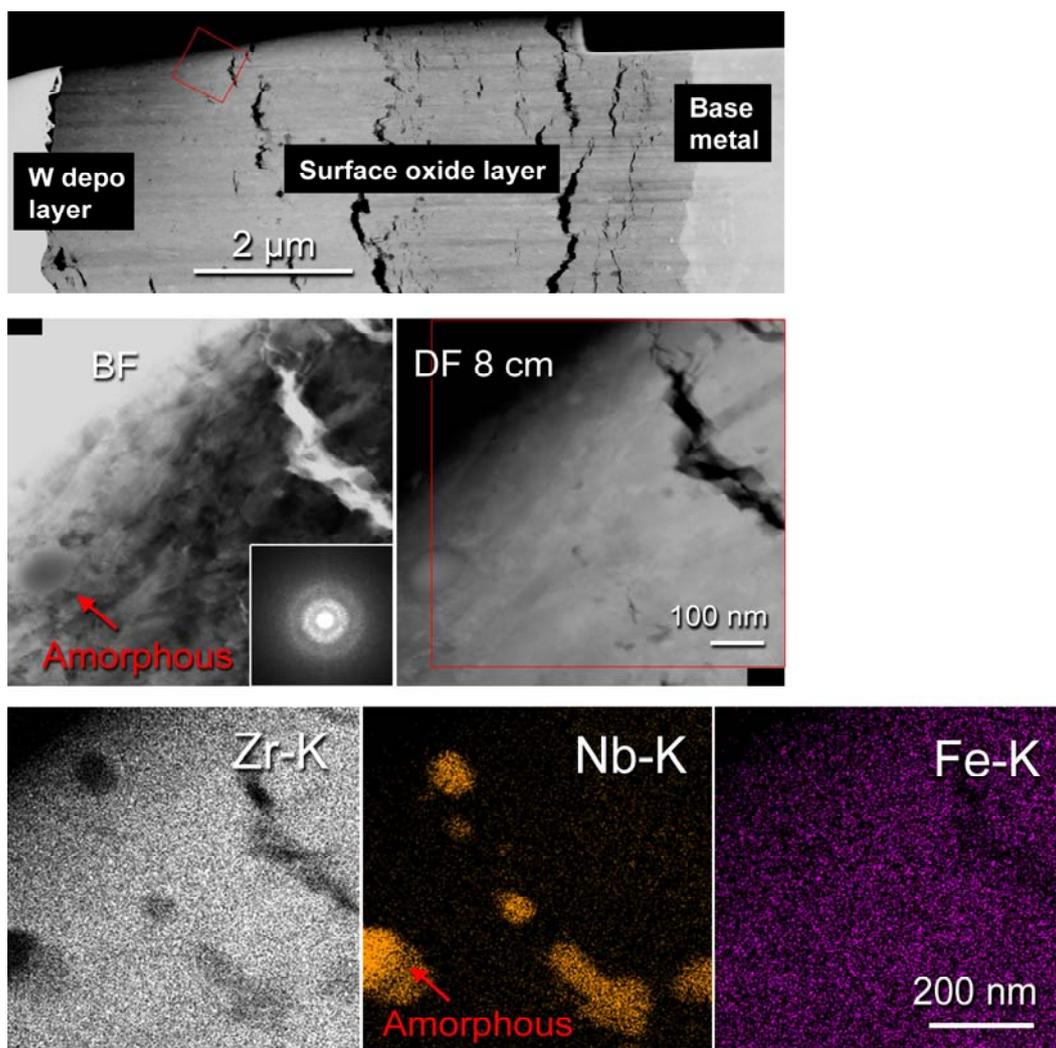


図 3.11.29 界面から離れた (STEM で識別困難な) 析出物 (その 1)

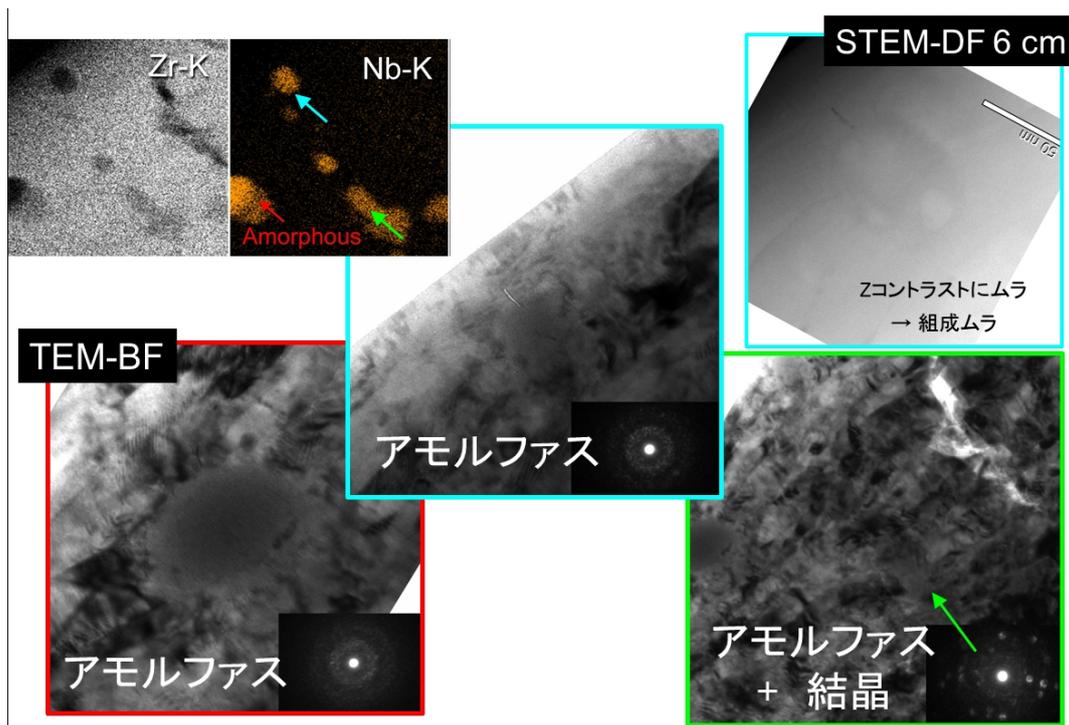


図 3.11.30 界面から離れた (STEM で識別困難な) 析出物 (その 2)

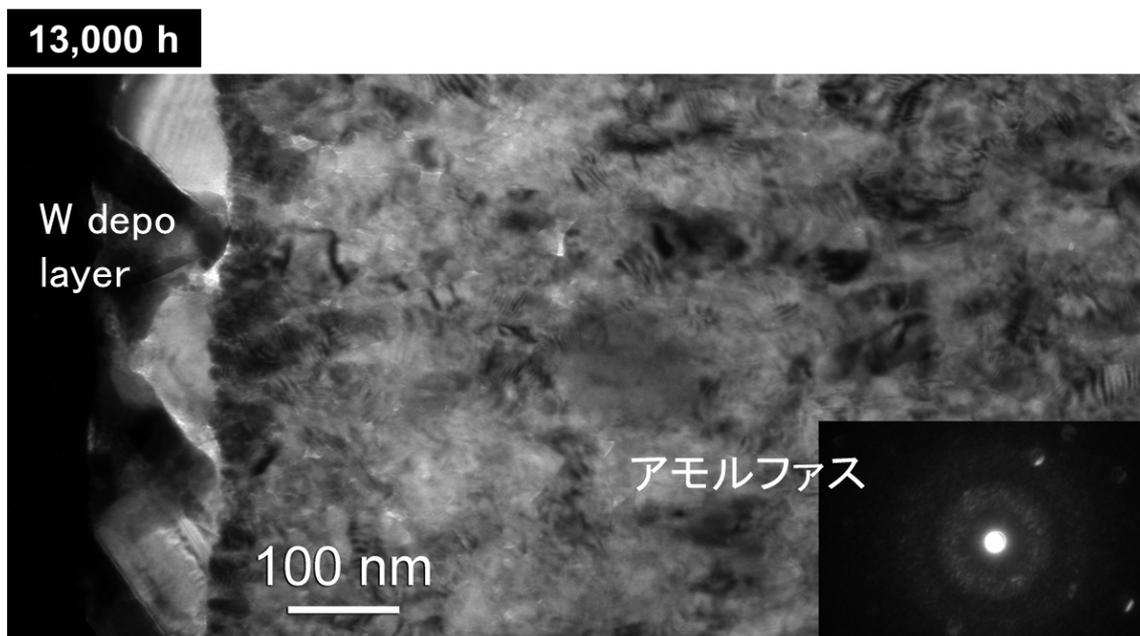


図 3.11.31 界面から離れた (STEM で識別困難な) 析出物 (その 3)

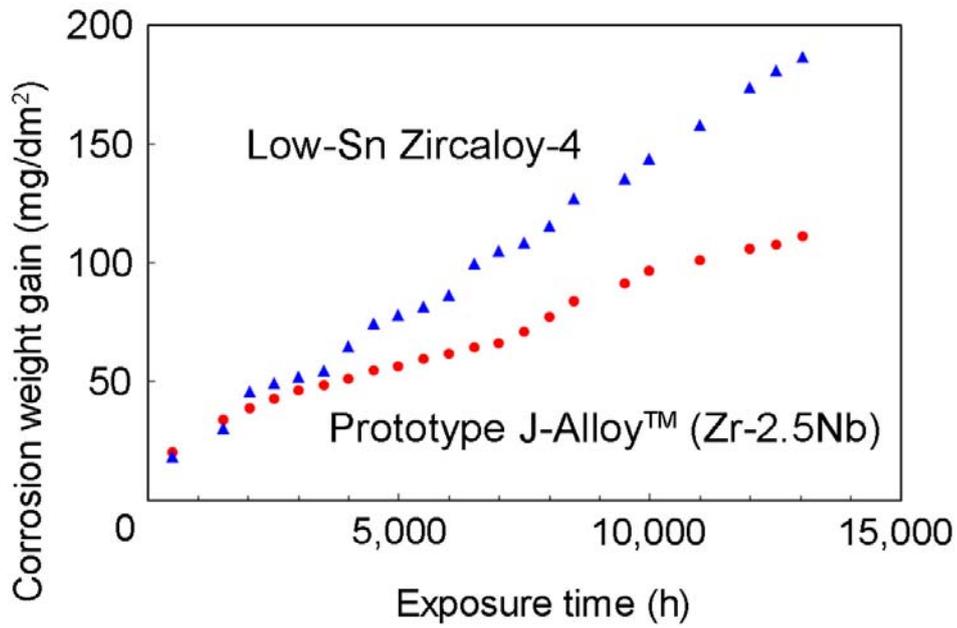


図 3.11.32 腐食試験の結果

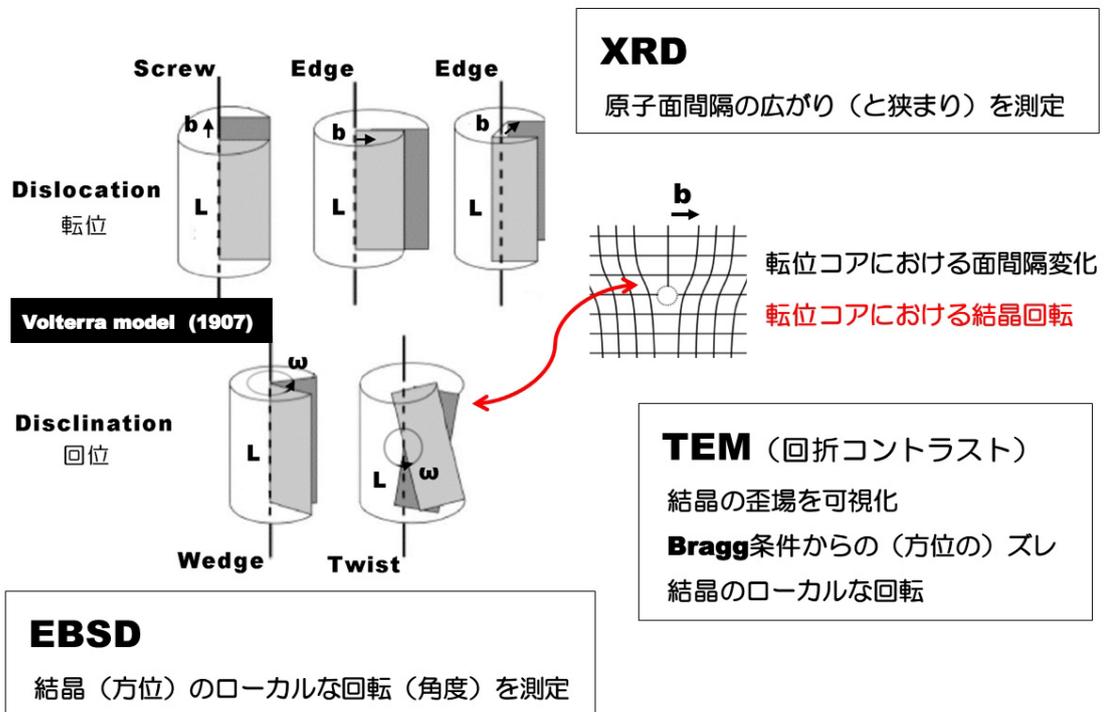


図 3.11.33 転位と結晶回転 (回位) の関係

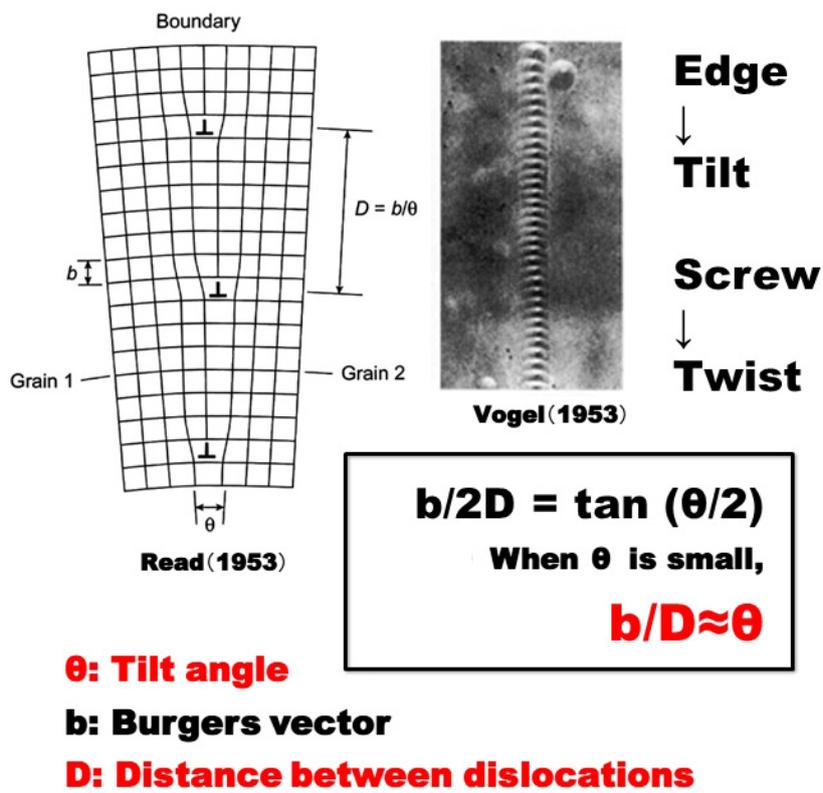


図 3.11.34 小傾角粒界における粒界転位の間隔と粒界傾斜角の関係[3.11.34-3.11.35]

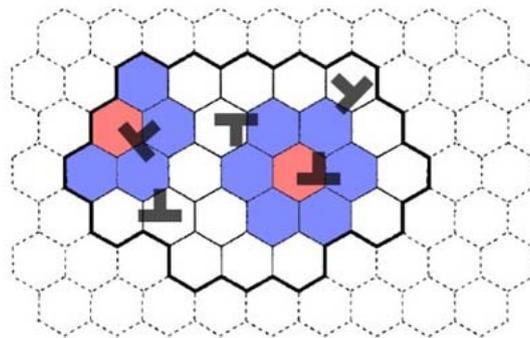


図 3.11.35 結晶粒内に分散した転位の概念図

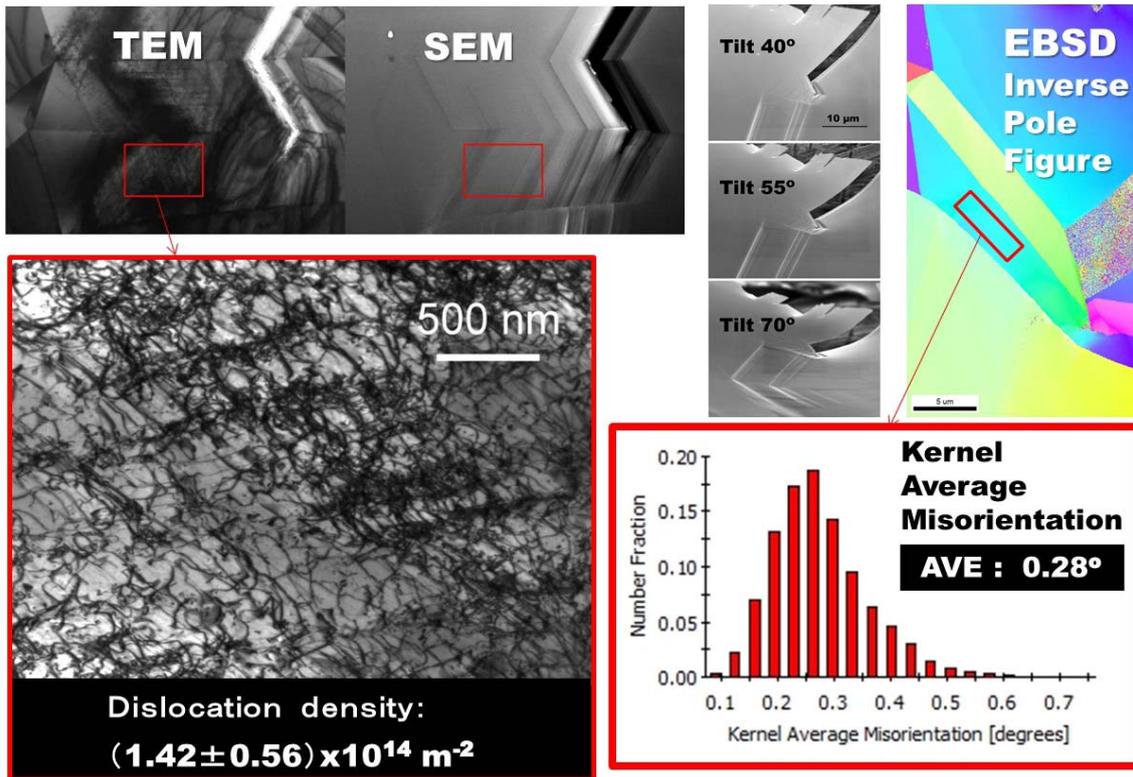


図 3.11.36 同じ場所を TEM と EBSD で分析した例

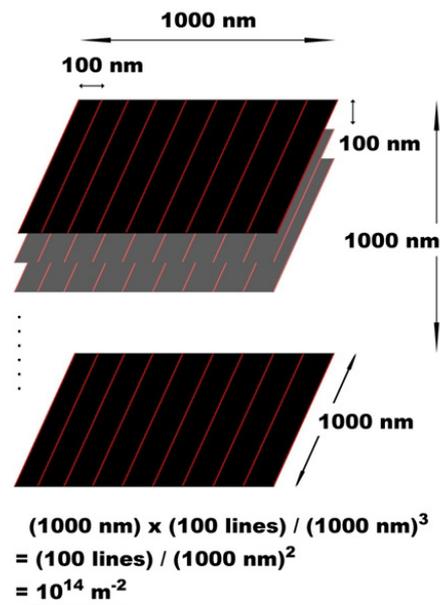
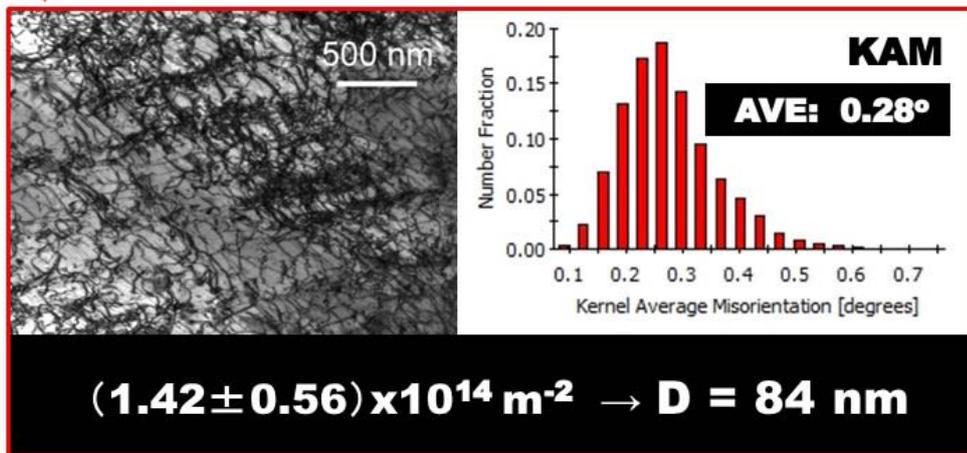


図 3.11.37 転位の間隔を転位の密度に換算する手法の概念図

Fully annealed → $10^9 \sim 10^{11} \text{ m}^{-2}$
1000 nm interval → 10^{12} m^{-2}
100 nm interval → 10^{14} m^{-2} $\epsilon = \sim 10\%$
10 nm interval → 10^{16} m^{-2}
1 nm interval → 10^{18} m^{-2} **Dislocation cell**



$b/D \approx \theta$

When $\theta = 0.28^\circ$, $D = 52 \text{ nm}$

When $\theta = 0.1^\circ$, $D = 147 \text{ nm}$

When $\theta = 1^\circ$, $D = 15 \text{ nm}$

When $\theta = 5^\circ$, $D = 3 \text{ nm}$

When $\theta = 10^\circ$, $D = 1.5 \text{ nm}$

図 3.11.38 転位密度と転位の間隔の関係、及び、Read の式から導出した（小傾角粒界における）転位の間隔と傾斜角（結晶回転角）の関係

3.12 He 注入試験 1 (H24~H27)

3.12.1 目的

He 蓄積による環境劣化事象を明らかにするため、東北大学サイクロトロン加速器(既存)を用いた He 注入試験を実施する。

3.12.2 サイクロトロン加速器

He 注入は、東北大学サイクロトロンラジオアイソトープセンターの AVF (Azimuthally Varying Field: 加速粒子の軌道にそって磁場の強弱を交互につけることで、ビームを収束させ加速させるサイクロトロンの一方式)サイクロトロン加速器を用いて実施する。AVF サイクロトロン加速装置の概略図を図 3.12.1 に示す[3.12.1]。サイクロトロン加速器本体(図 3.12.2)は本体室に設置されており、加速されたイオンは各ビームラインを通り、タ第 1 から第 5 までの各ターゲット室に輸送される。各ターゲット室には更にいくつかの照射チャンバーが設置されており、種々の実験に使用されている。サイクロトロンで使用されるイオンは、外部に設置されたイオン源から供給される。イオン源は、陽子・重陽子専用の軽イオン用小型電子サイクロトロン共鳴(ECR)イオン源、重イオン用 ECR イオン源、負イオン源の 3 種類のイオン源があり、種々のイオンを発生させることができる。重イオン用 ECR イオン源からは、He、炭素、窒素、酸素、ネオン、アルゴン、クリプトンのイオンが供給されており、さらにマグネシウム、アルミニウム、シリコン、カルシウム、チタン、鉄、コバルト、ニッケル、キセノンイオンが開発中である。また、短時間でビームを切り替えるために有効な手段として、炭素、酸素、ネオン等のイオンを同時に加速する、カクテルビーム加速も行われている。また、より大強度のイオンビームを得るための工夫として、負イオン状態で加速した後に正イオンに変換して取り出す研究が進められており、通常の正イオン加速と比べて数十倍以上の大強度化が期待されている。東北大学サイクロトロン加速器は、負イオン加速による大強度イオンビーム専用の取り出しポートを備えた、ユニークな加速器である。

本研究では、本サイクロトロンの第 4 ターゲット室に配置されている 42 コースを使用し He 注入試験を行った。

3.12.3 エネルギーディグレーダ構成

He の注入条件を決定するため、エネルギーディグレーダの構成を検討した。エネルギーディグレーダとは、加速されたイオンのエネルギーを減衰させる装置である。本研究で用いる He 注入チャンバーには、図 3.12.3 に示す 2 つの円盤状の回転式エネルギーディグレーダが設置されており、種々の厚さのアルミニウム箔を貼付けてビームライン上にセットすることで、そこを通過するイオンのエネルギーを減衰させることができる(図 3.12.4)。エネルギーの減衰は通過するアルミニウム箔の厚さに依存するので、エネルギーディグレーダ通過後のイオンはある幅のエネルギースペクトルを持ったイオンビームとなる。種々のエネルギーに減衰したイオンを注入することで、試料深さ方向に均一な照射を実現することができる。

加速された 粒子およびある厚みのアルミ箔を通過した後の試料中での 粒子の飛程は

SRIM コード[3.12.2]を用いて計算した。SRIM コードは、Monte-Carlo 法を利用して材料中のイオンの飛程を計算するコードである。本研究では、母材としての ODS 鋼(Fe-12Cr-2W) に対して、弾き出しエネルギーとして、Fe: 40 eV, Cr: 40 eV, W: 90 eV を設定し計算を行った[3.12.3]。

粒子の材料中での飛程は加速電圧に依存するため、まず加速電圧の検討を行った。粒子の飛程の加速電圧依存性を計算した結果を図 3.12.5 に示す。試験片厚さが 350 μm であることを考慮すると、加速電圧 50MeV の時、照射によって試験片厚さをカバーするに十分な飛程を有することがわかる。よって加速電圧は 50 MeV とすることとした。

次に、試料深さ方向に均一に He 注入を実施するためのディグレダの厚さについて検討を行った。Al 箔によって減衰した粒子の材料中での飛程を SRIM コードを用いて計算した結果の一例を図 3.12.6 に示す。横軸は試料表面からの深さを示しており、各アルミニウム箔の厚さについて、最終的に He が材料中のどの深さに分布しているかを示している。図 3.12.7 に Al 箔を通過した後の粒子の材料中での飛程を計算した結果を示す。Al 箔厚さ 940 μm の時に飛程は 0 になるため、それ以下の厚さの Al 箔をディグレダとして用いる。また、図 3.12.8 に示すように、0 μm と 10 μm のアルミ箔では、ピーク位置が離れすぎているために注入量にムラができると考えられるので、4 μm と 6 μm に見られるように、アルミ箔の最小の厚さステップを 2 μm とすることで、より均一に試料深さ方向に注入できると考えられる。以上のことから、ディグレダのアルミ箔の構成を、第一ディグレダは 0, 2, 4, 6, 8 μm と 2 μm 毎に 5 段階、第二ディグレダには、0, 10, 20, ..., 920, 930 μm と 10 μm 毎に 94 ステップとすることとした。本ディグレダ構成を用いて照射を行った際の試料深さ方向への注入 He の分布について計算した結果を、図 3.12.9 に示す。本計算結果では約 380 μm 付近に He 注入量が高い部分があるが、これはビーム調整のために必要な窓をディグレダに残しておく必要があるため、Al 箔を通過しない粒子が相対的に多いためである。試験片の厚さは 350 μm であるため、本結果は試験片の厚さ方向全体にわたり He が均一に注入されることを示しており、本研究ではこのエネルギーディグレダ構成を用いることとした。

3.12.4 真空度測定装置

He 注入チャンバーの真空度が、He 注入試験に十分な真空度に到達することを確認するため、真空度測定装置を導入した。

導入にあたっての装置仕様は以下の通りである。

(1) 大気圧から 1×10^{-6} Torr までの真空度が測定可能なこと。

上記を満たす装置として、以下のシステムを導入した。導入したシステムの仕様は表 3.12.1 に示す通りで、上記要求仕様を満たしている。

- ・クリスタルイオンゲージ M-336MX-SP/N25
- ・表示機 M-601GC

導入した真空度測定装置の各構成部品を図 3.12.10 に、He 注入チャンバーに設置後の外観図を図 3.12.11 に示す。

ビームの上流側（サイクロトロン本体側）への影響を減らすために、チャンバーとビームライン間に設けられたゲートバルブを開閉するに十分な真空度となっていることを確認する必要があり、本真空度測定装置を用いて、He 注入チャンバー内の真空度が 10^{-6} Torr 台と、その目標真空度 (1×10^{-5} Torr) を達成していることを確認した。

3.12.5 イオン注入温度測定装置

サイクロトロンにおける He 注入試験において、照射温度は極めて重要なパラメータである。照射ステージには複数の試験片を並べて同時に He 注入を行うため、スポット測定ではなく、広範囲を測定することが可能な赤外線サーモグラフィが必要である。試料表面の温度分布を測定するため、イオン注入温度測定装置を導入した。導入にあたっての装置仕様は以下の通りである。

- (1) 温度測定に関して、300 ~ 700 まで測定誤差 $\pm 2\%$ または ± 2 で測定が可能であること。
- (2) フレームレートが 1/30 以上であること。
- (3) 40cm 以上離れた位置からマッピング測定が可能であること。
- (4) Gigabit Ethernet IEEE802.3ab (1000BASE-T) の出力があること。
- (5) 望遠ないし、広角のレンズが後から取り替え可能であること。

上記を満たす構成として以下のシステムを導入した。導入したシステムの仕様は表 3.12.2 に示す通りで、上記要求仕様を満たしている。

・超小型熱画像センサ	FSV-1200-H16
・標準カメラケーブル	FSV-C3S 3m
・イーサネットケーブル	FSV-C3E
・解析ソフトウェア	FSV-S500
・A C アダプタ	FSV-U110
・ソフトケース	FSV-P010
・三脚	Sherpa 545
・DELL PC	XPS 15-L521X BTX

図 3.12.12 に、イオン注入温度測定装置の各構成部品の外観図を、図 3.12.13 にイオン注入温度測定装置設置後の外観図を示す。また、本装置は LAN を介して制御室での測定を可能にしており、図 3.12.14 に制御室への制御用 PC の設置後の様子を示す。

本イオン注入温度測定装置を用いて、He 注入チャンバー内に設置された試験片の温度分布が測定可能であることを確認した。図 3.12.15 に試料表面の温度分布を測定した例を示

す。

3.12.6 イオン注入計測システム

サイクロトロンにおける He 注入試験では、He 注入中はビームライン近傍での測定は被曝防護の観点から不可能である。そこで、He 注入条件の測定を可能にするために、LAN 対応のデータロガーを導入し、LAN を介して制御室からデータを測定できるイオン注入計測システムを導入した。導入にあたっての装置仕様は以下の通りである。

- (1) 試料ホルダーの温度とビームカレントを測定するため、8ch の入力チャンネルを有すること。
- (2) LAN を介してデータ出力可能であること。

上記を満たす構成として以下のシステムを導入した。導入したシステムの仕様は表 3.12.3 に示す通りで、上記要求仕様を満たしている。

・ Graphtec midi LOGGER	GL900-8
・ Graphtec 無線 LAN 計測システム	GMS-WL01
・ SONY PC	SVZ1311AJ

図 3.12.16 にイオン注入計測システムの各構成部品の外観図を、図 3.12.17 にイオン注入計測システム設置後の外観図を示す。本システムは LAN を介して制御室での測定を可能としており、図 3.12.18 に制御室への制御用 PC の設置後の様子を示す。

本イオン注入計測システムを用いて、He イオンビームのビームカレント及び照射ステージの温度測定が可能であることを確認した。

3.12.7 試験片

He 注入する試験片は、12Cr-ODS 鋼である。組成を表 3.12.4 示す。試料は、図 3.12.19 に示す SS-J 型微小試験片に加工した。ゲージ部の寸法は、幅 1.2mm × 長さ 5.0mm × 厚さ約 0.3mm である。SS-J 型微小試験片に加工された後の試験片は、図 3.12.20 に示す本研究で導入した研磨琢磨機等を用いて SiC ペーパーで表面の機械研磨を行った。

3.12.8 He 注入試験

本研究では、He 注入試験はサイクロトロンの「優先ビームタイム」枠を用いて実施した。

He 注入は、図 3.12.21 に示す試験片を固定した照射ステージを、図 3.12.22 に示す照射ステージ設置プレートに固定した上で He 注入チャンバー内に設置し、50MeV の 粒子を照射することにより実施した。He 注入試験中は、ターゲット室の放射線量が高くなるため、図 3.12.23 に示すように制御室から遠隔でコントロールした。注入条件としては、注入温度は約 300 °C、He 注入量は数 appm、35 appm および 70 appm とした。

He 注入を高効率に行うためには、ビーム電流を増加させる必要がある。そこで、想定さ

れる最大ビーム電流値である $4\mu\text{A}$ で照射した際に、注入温度が 300 を超えないかについて、有限要素解析により評価した。解析結果の一例を図 3.12.24 に示す。照射ステージ設置プレートの中でも冷却機能が高いセット位置では、ビーム電流を $4\mu\text{A}$ としても、試験片の温度は 300 を超えないことを確認した。よって、ビーム電流による加熱と外部ヒータによる加熱を組み合わせることにより、目標とする注入温度である 300 が実現可能であることを確認した。

図 3.12.25、図 3.12.26 および図 3.12.27 に、ビーム電流値、He 注入チャンバー内真空度および試験片温度の He 注入試験中における時間推移の一例をそれぞれ示す。これらは、平成 27 年度に実施した注入量 70 appm までの He 注入試験における計測結果である。図 3.12.27 より、He 注入温度を 300 ± 15 に制御できていることがわかる。

平成 25 年度、平成 26 年度および平成 27 年度における He 注入試験により、注入量が 5 appm 、 35 appm および 70 appm までの He 注入を実施した。図 3.12.28 に、He 注入後の試験片の表面写真の一例を示す。He 注入後においても、試験片表面は健全に保たれていることを確認した。

3.12.9 試験片の輸送

He 注入後の試験片は、誘導放射能が十分減衰し、表面線量等量率が十分低下した後、クリープ試験に供するため、東北大学金属材料学研究所アルファ放射体実験室に輸送した。試験片は図 3.12.29 に示す鉛容器に入れ、図 3.12.30、図 3.12.31 に示す L 型容器にて輸送を行った。

3.12.10 まとめ

He 蓄積による環境劣化事象を明らかにするため、東北大学サイクロトロンラジオアイソトープセンターのサイクロトロン加速器（既存）を用いた He 注入試験を実施した。

He 注入条件を決定するため、計算によりエネルギーディグレーダの構成を検討し、その仕様を決定した。加速電圧は 50 MeV とし、第一ディグレーダは $0, 2, 4, 6, 8\ \mu\text{m}$ と $2\ \mu\text{m}$ 毎に 5 段階、第二ディグレーダには、 $0, 10, 20, \dots, 920, 930\ \mu\text{m}$ と $10\ \mu\text{m}$ 毎に 93 ステップとすることとした。

サイクロトロンによる He 注入試験に必要な次の機器を導入した。真空度測定装置を設置し、He 注入チャンバー（既存）の真空度が、 10^{-6} Torr 台と、ビームポートのゲートバルブを開閉するに十分な真空度になっていることを確認した。イオン注入温度測定装置を設置し、試験片温度とその分布を計測可能であることを確認した。イオン注入計測システムを導入し、ビームカレントと注入温度が測定可能であることを確認した。

He 注入する材料としては、 12Cr-ODS 鋼を用いた。SS-J 型微小引張試験片に切りだした後、SiC ペーパーにて表面の機械研磨を行い、He 注入に供する試験片とした。

He 注入試験は、東北大学サイクロトロンラジオアイソトープセンターの第 4 ターゲット室に配置されている 42 コースを使用し、 50 MeV の 粒子を試料に照射することで He を材料中に注入した。平成 25 年度、平成 26 年度および平成 27 年度における He 注入試験により、注入量が 5 appm 、 35 appm および 70 appm までの He 注入を、注入温度 300 において

実施した。

He 注入後の試験片はその後のクリープ試験に供するため、L 型容器に入れて、東北大学金属材料学研究所アルファ放射体実験室に輸送した。

参考文献

[3.12.1] CYRIC Annual Report 2002.

[3.12.2] <http://www.srim.org>

[3.12.3] ASTM E521 (1996) Standard Practice for Neutron Radiation Damage Simulation by Charged-Particle Irradiation. Annual Book of ASTM Standards, vol. 12.02. American Society for Testing and Materials, Philadelphia, PA.

表 3.12.1 真空度測定装置仕様

圧力測定範囲	3×10^{10} Torr ~ 8×10^2 Torr
使用温度範囲	5 ~ 50

表 3.12.2 イオン注入温度測定装置仕様

測定温度範囲	-40 ~ 1500
フレームレート	60 フレーム/秒
外部インターフェース	ギガビット Ethernet IEEE802.3ab(1000BASE-T)
交換レンズ	16 mm、5 mm、25 mm、50 mm に交換可能
標準レンズ測定距離	30 cm ~
使用温度範囲	-10 ~ 50

表 3.12.3 イオン注入計測システム仕様

アナログ入力 ch 数	8 ch
サンプリング周期	10 μ s
外部インターフェース	イーサネット (10 BASE-T/100 BASE-TX)
使用温度範囲	0 ~ 40

表 3.12.4 12Cr-ODS 鋼の化学組成

	Cr	W	Ti	C	Y ₂ O ₃
wt. %	12	2	0.3	0.05	0.26

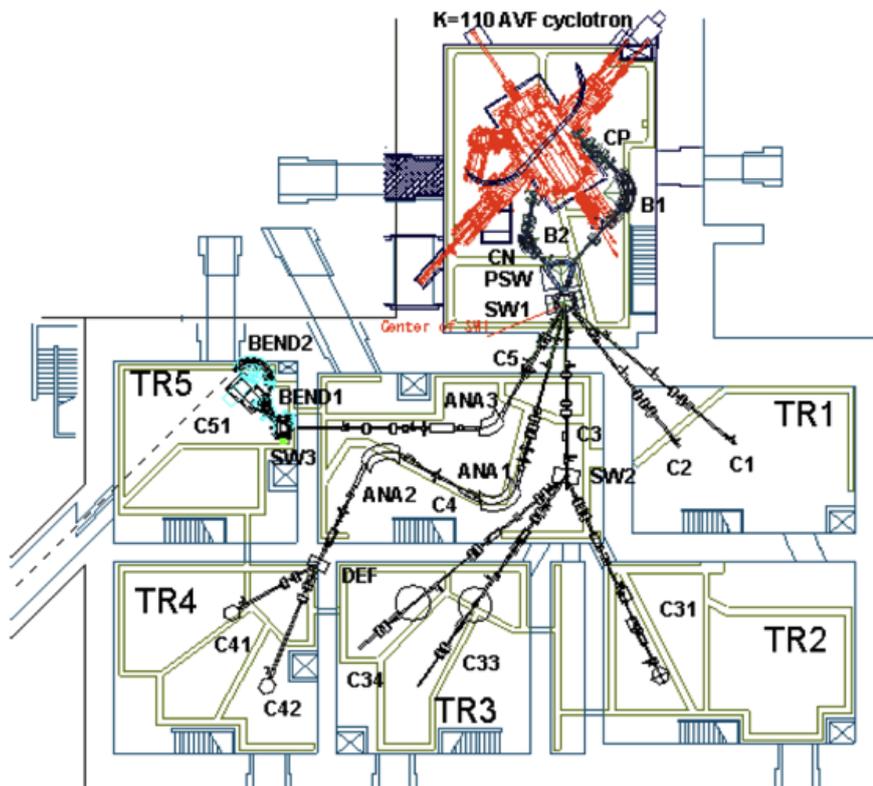


図 3.12.1 サイクロトン加速器ビームライン概略図[3.12.1]

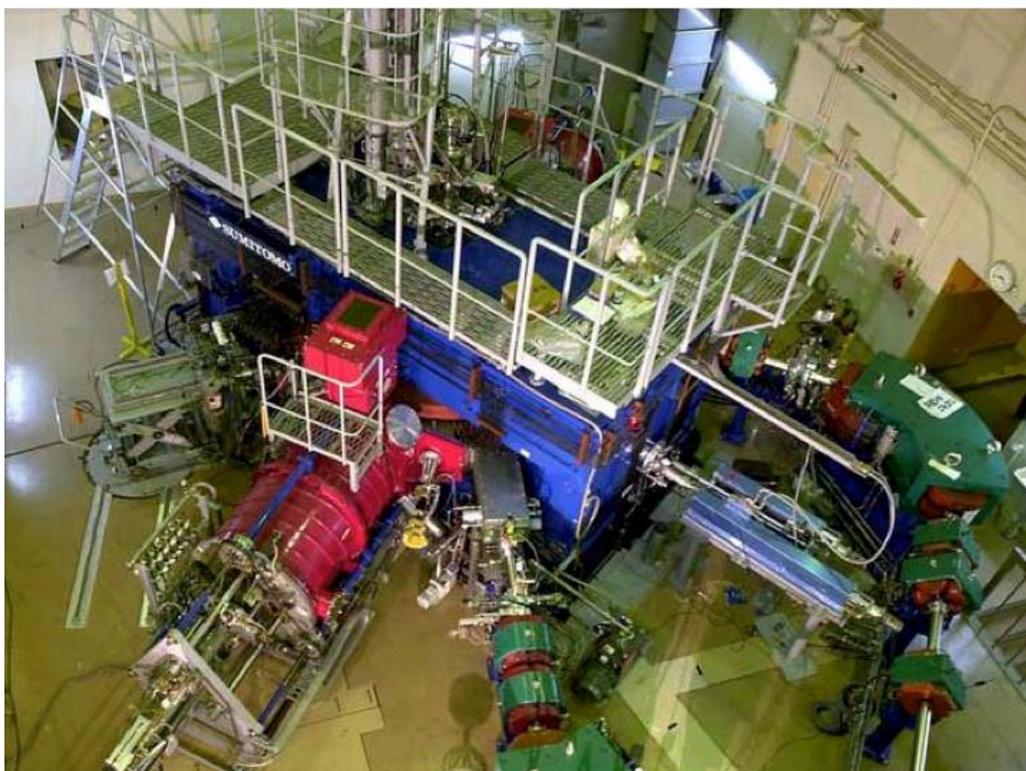


図 3.12.2 AVF サイクロトン加速器本体



図 3.12.3 回転式エネルギーディグレーダ

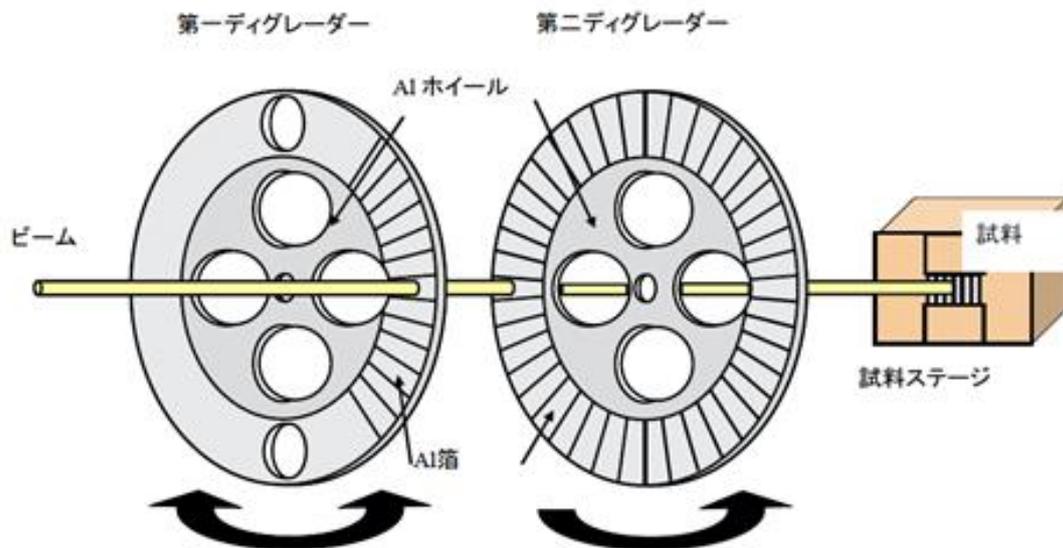


図 3.12.4 エネルギーディグレーダの模式図

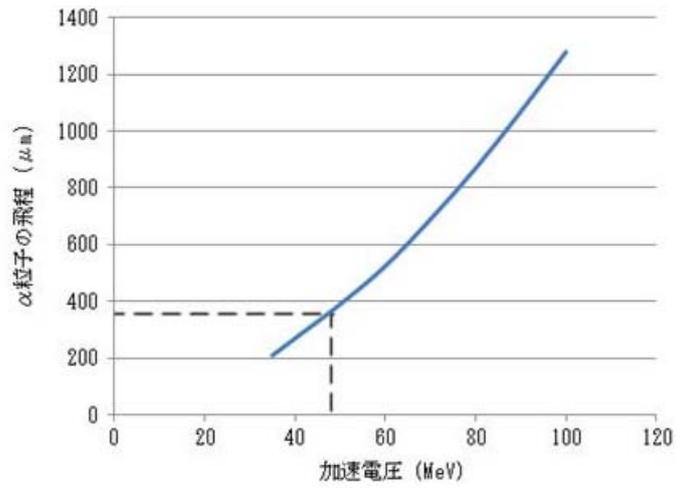


図 3.12.5 粒子の飛程の加速電圧依存性

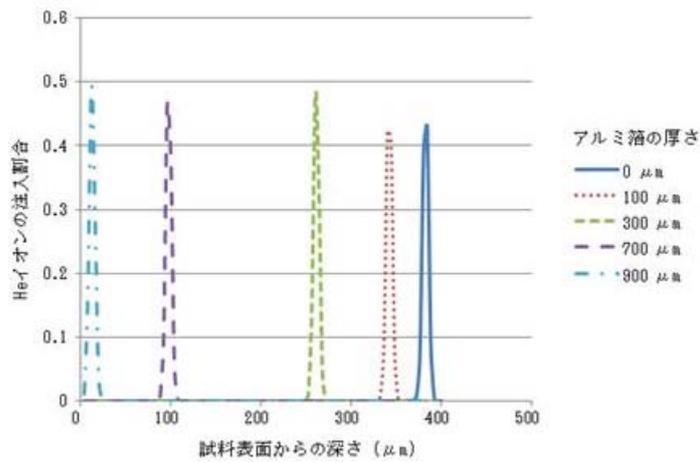


図 3.12.6 SRIM による計算結果の一例

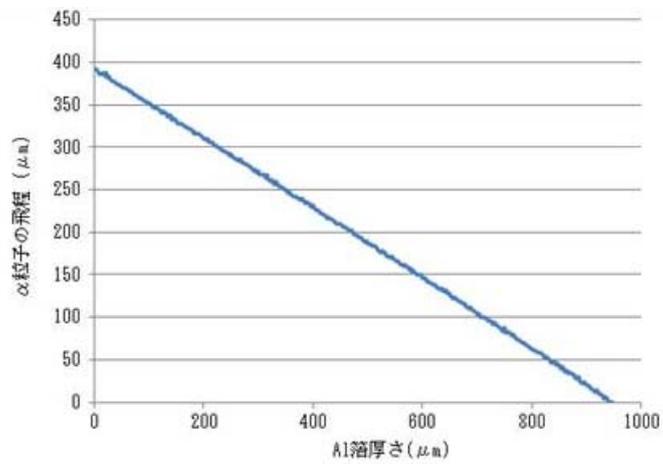


図 3.12.7 Al 箔で減衰した 粒子の材料中での飛程

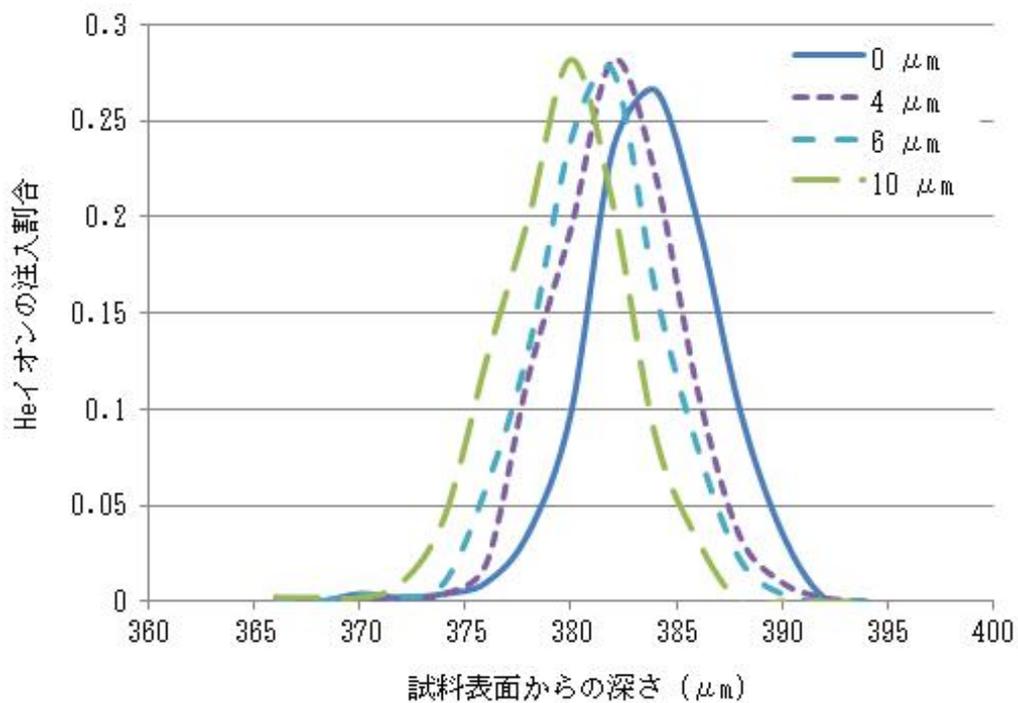


図 3.12.8 He イオンの注入分布

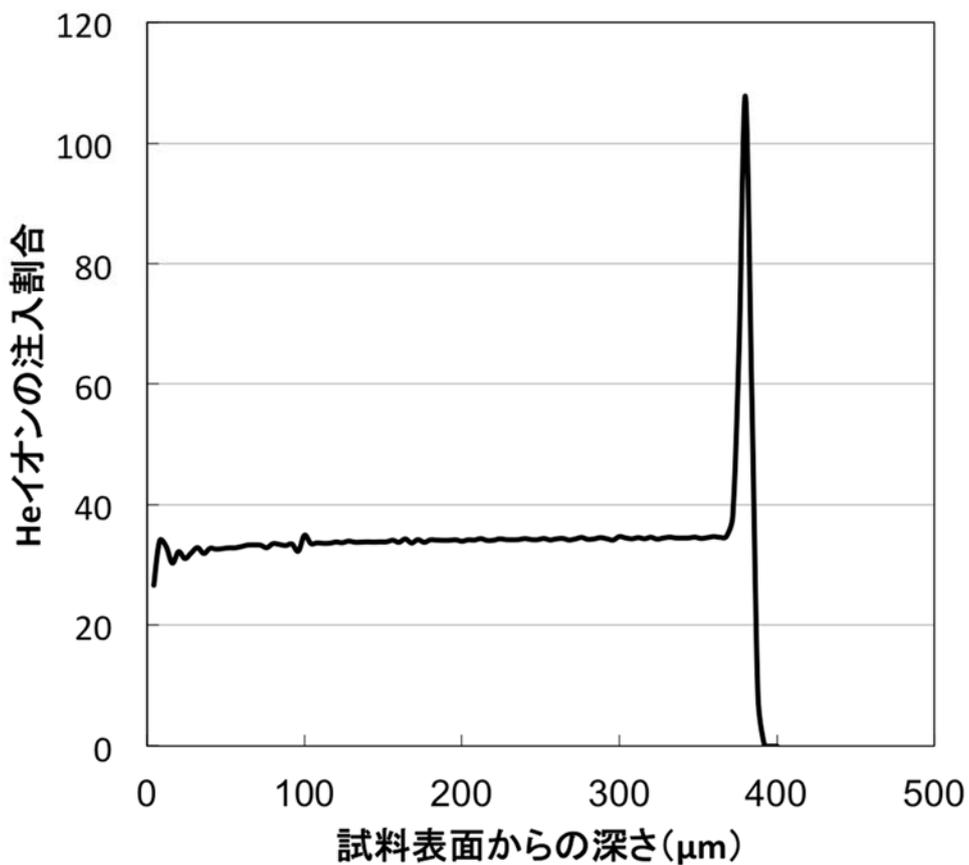
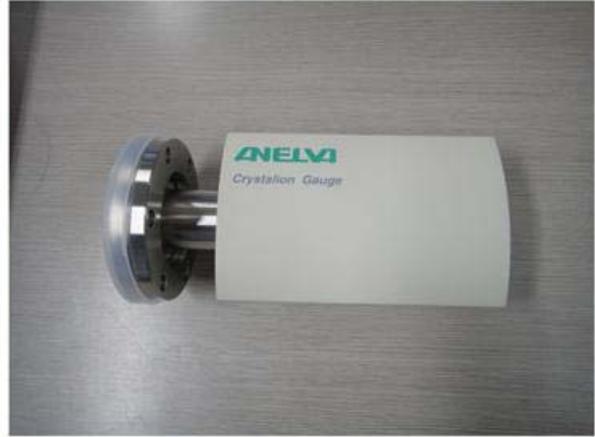


図 3.12.9 エネルギーディグレーダ使用時の深さ方向への He 注入量分布



表示機



クリスタルイオンゲージ

図 3.12.10 真空度測定装置の各構成部品



図 3.12.11 真空度測定装置設置後外観図



超小型熱画像センサ



標準カメラケーブル



イーサネットケーブル



解析ソフトウェア



ACアダプタ



ソフトケース



三脚



制御用PC

図 3.12.12 イオン注入温度測定装置の各構成部品

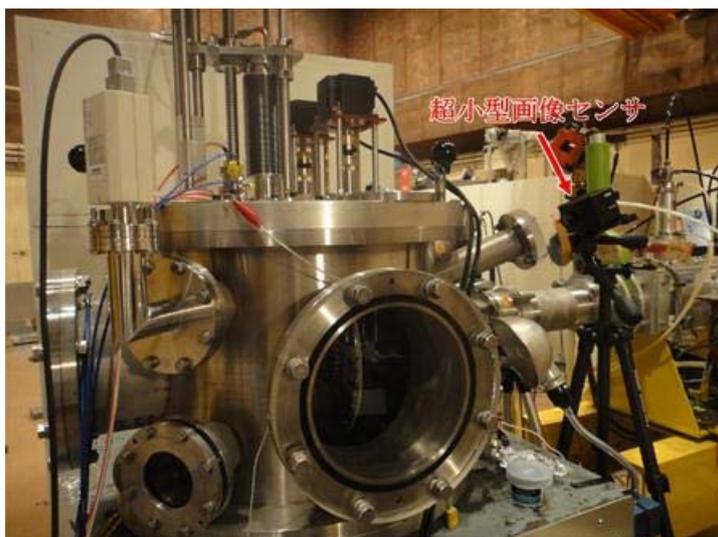


図 3.12.13 イオン注入温度測定装置設置後の外観図



図 3.12.14 イオン注入温度測定制御 PC の設置

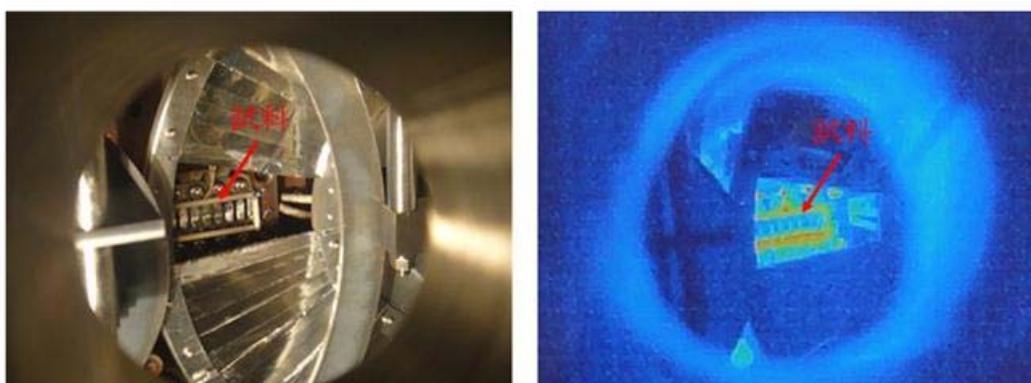


図 3.12.15 試料表面温度分布の測定例



Graphtech midi LOGGER



Graphtec 無線LAN計測システム



制御用PC

図 3.12.16 イオン注入計測システムの各構成部品



図 3.12.17 イオン注入計測システム設置後外観図

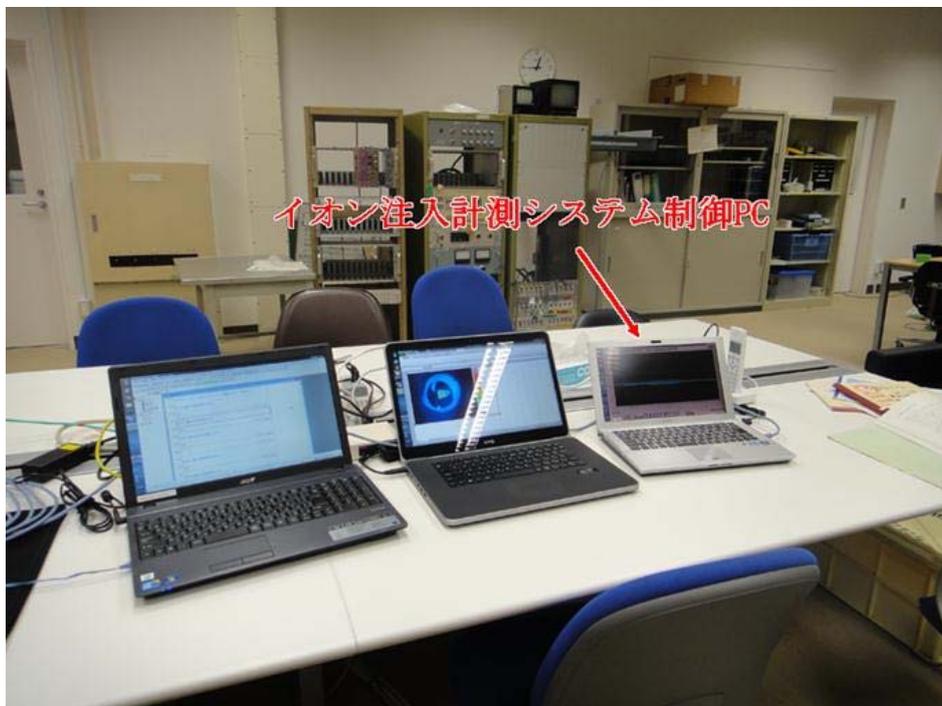


図 3.12.18 イオン注入計測システム制御 PC の設置

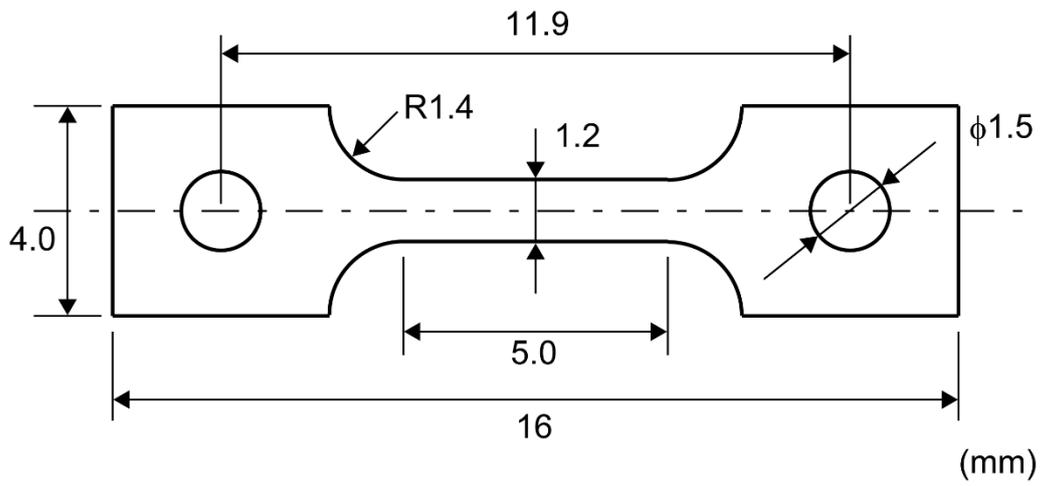


图 3.12.19 SS-J 型微小引張試驗片



图 3.12.20 研磨琢磨機

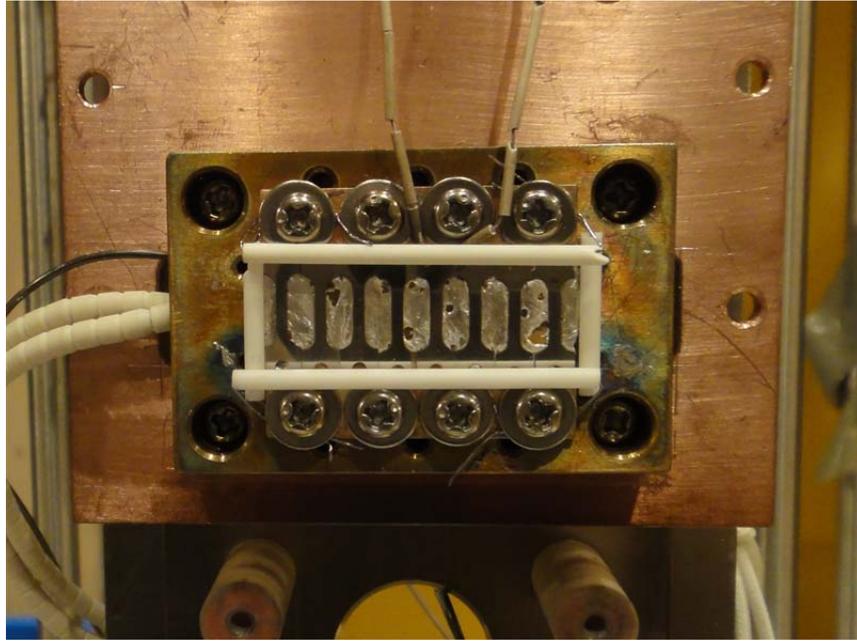


図 3.12.21 照射ステージ

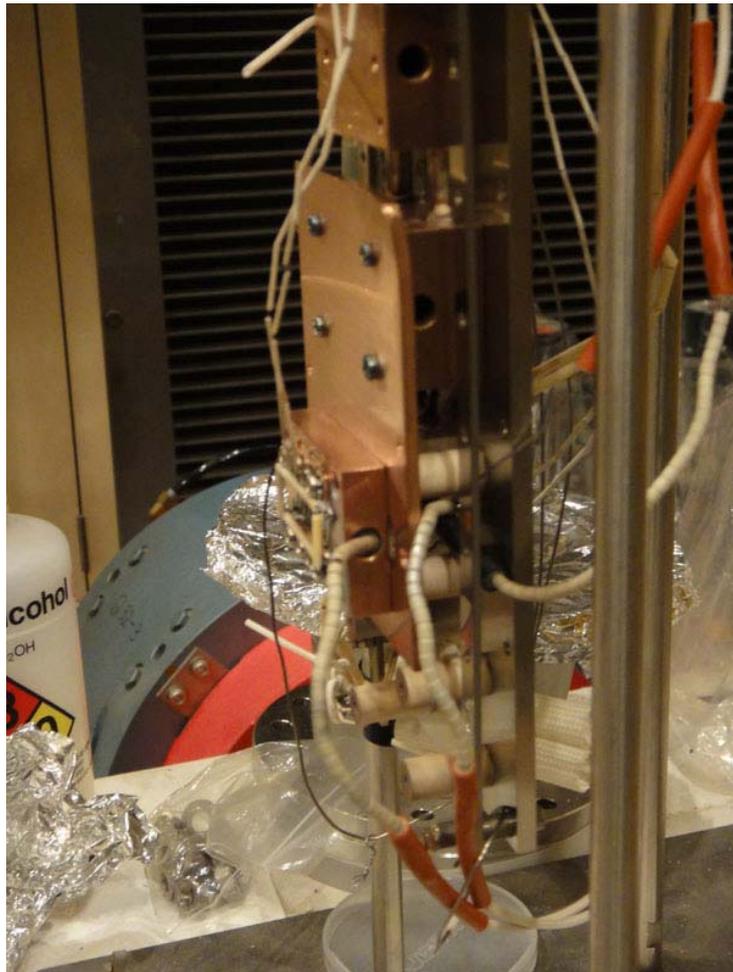


図 3.12.22 照射ステージ設置プレート



図 3.12.23 制御室からの遠隔コントロール

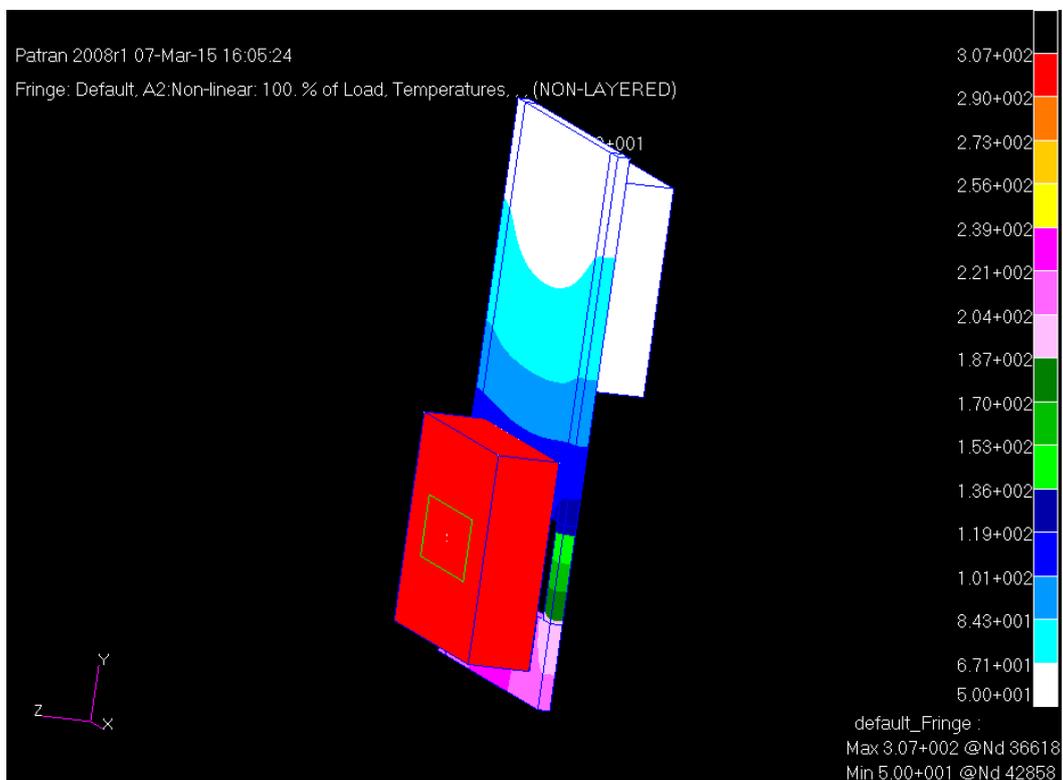


図 3.12.24 He 注入時の照射ステージ温度の有限要素解析結果の一例

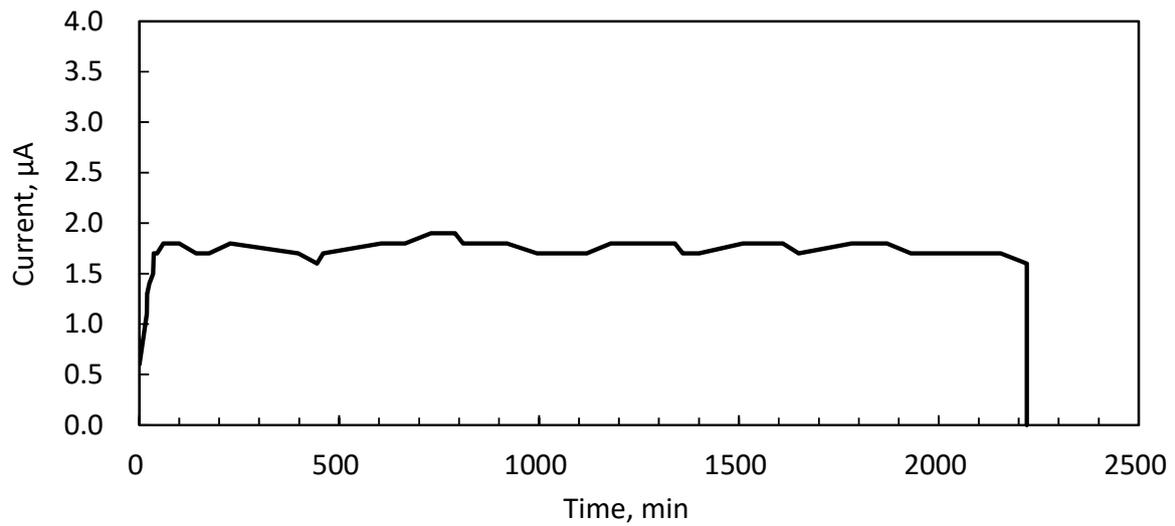


図 3.12.25 ビーム電流値の He 注入試験中における時間推移の計測結果の一例

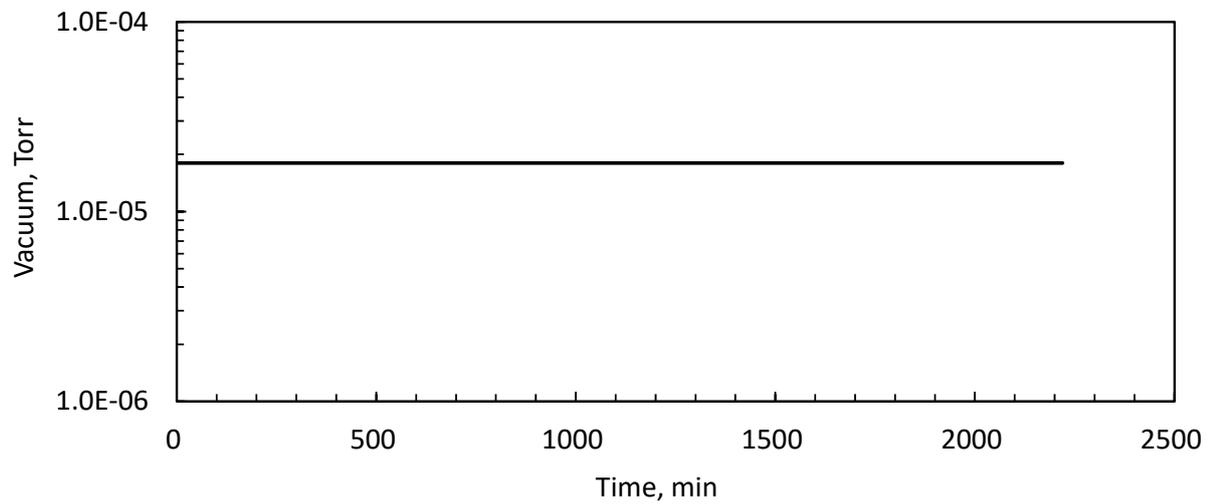


図 3.12.26 真空度の He 注入試験中における時間推移の計測結果の一例

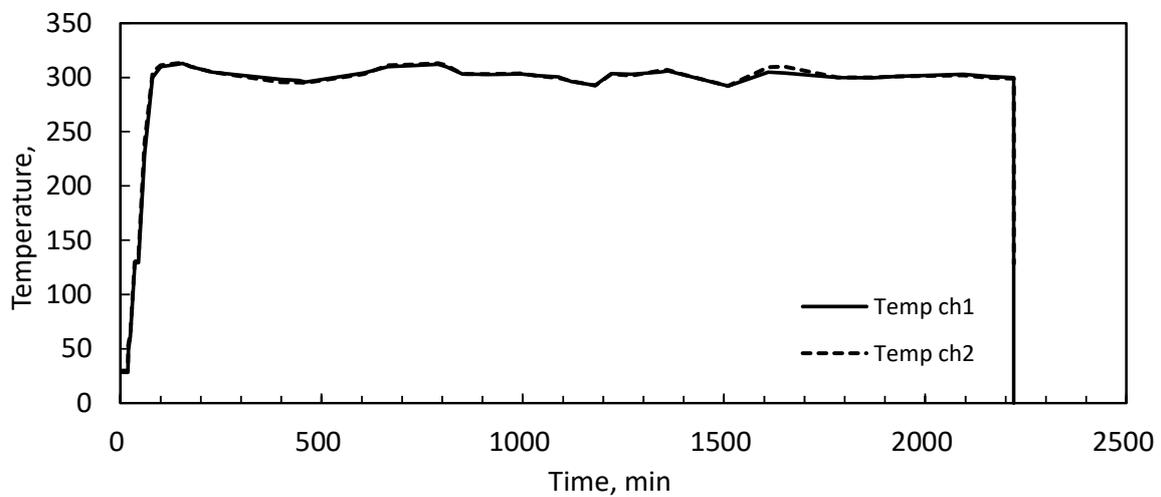


図 3.12.27 試験片温度の He 注入試験中における時間推移の計測結果の一例

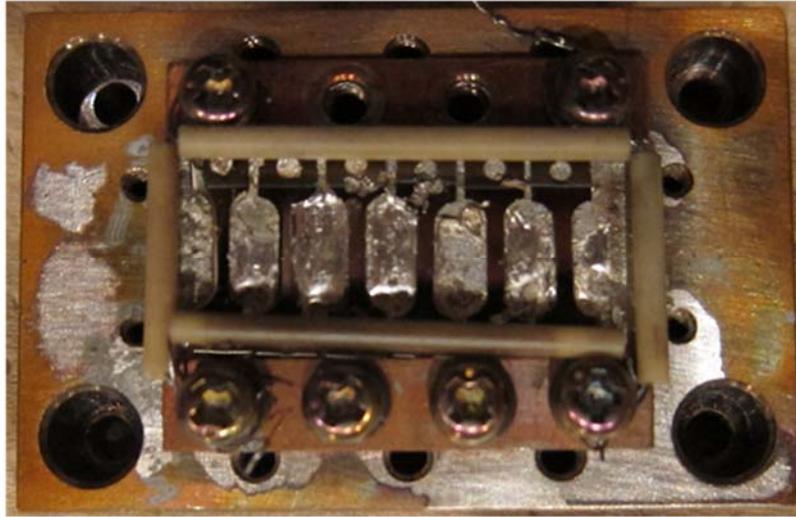


図 3.12.28 He 注入後の試験片表面写真の一例



図 3.12.29 鉛容器



図 3.12.30 L 型容器の外観



図 3.12.31 L 型容器の中身

3.13 He 注入試験 2 (再委託先：物質・材料研究機構) (H24～H26)

3.13.1 背景と目的

NIMS サイクロトロン加速器は加速エネルギー20MeV、最大 20 μ A の He イオンビームを射出することが可能であり、世界的にも数少ない 1000 appm の He 注入試験の実績を有する。さらに、特殊マグネットによる He イオンビーム空間強度分布の均一化機能を有するため、1 回の照射試験で多数の He 注入試料を得ることができる。本節では、NIMS サイクロトロン加速器ならびに He 注入装置を用いて、東北大学より供給される 12Cr-ODS 鋼の SS-J 試験片について He 注入試験を実施し、He 注入量 30, 100 appm の He 注入試料を作製することを目的とする。

3.13.2 実験方法

本業務において用いるサイクロトロン加速器は放射線発生装置であり、サイクロトロン加速器によって高エネルギーイオン照射された試験片は放射化により放射性同位元素を含む放射性物質となるため、放射線管理区域の設置が義務づけられている。NIMS サイクロトロン加速器施設における放射線管理区域の見取図、サイクロトロン加速器ならびにビームラインに設置された He 注入装置を図 3.13.1 に示す。供試材は東北大学から供給される 12Cr-ODS 鋼の薄板微小試験片を使用する。表 3.13.1 に試験片の化学組成を示す。試験片は SS-J タイプの形状であり、ターゲットホルダーを用いたメカニカル研磨により厚さ 167 μ m まで精密研削し、He 注入試験用試料を作製した。図 3.13.2、3.13.3 にそれぞれ試料寸法、および EBSD 測定された試料組織写真を示す。図 3.13.3 の組織写真に示すように、材料中に直径数 μ m の微細粒と圧延方向に伸びた粗大粒が存在する。作製された試料について、図 3.13.4 に示すような試料固定治具に 8 枚セットしたのち、He 注入試験ステージに装着した。図 3.13.5 に He 注入試験の模式図を示す。ビーム形状は試料 8 枚に均一なビーム強度で照射されるように調整される。サイクロトロン加速器によって加速されるヘリウムイオンは 20MeV の単一エネルギー粒子であるため、ディグレーダーによってエネルギーを分散化し、試料厚さ方向に均一にヘリウム注入が行われた。図 3.13.6 に 1)おもて面から照射した場合、2)裏面から照射した場合のダメージプロファイル、およびヘリウム注入分布をそれぞれ示す。ここで、試料厚さは 167 μ m であり、1 回の照射ではヘリウム注入されない領域があることから、おもて面から照射した後、同じ量を裏面から照射した。He 注入試験は、照射温度 300 、注入量 30appm に設定され、ヘリウム注入量は試料に照射された電流値の積算値によって評価された。

同様に、厚さ 167 μ m まで精密研削した試料表面をさらに EBSD 測定可能なまでに鏡面研磨した試料について、照射温度 300 、注入量 100appm の He 注入試験を行った。

3.13.3 実験結果

H24 年度から H26 年度まで、本業務において作製した試料のうち、注入量 30appm の He 注入試料を 16 枚、He 未注入試料を 16 枚、また、鏡面研磨した試料のうち、注入量 100appm の He 注入試料を 2 枚、注入量 30appm の He 注入試料を 2 枚、He 未注入試料 4 枚をそれぞれ作製した。He 注入試験における平均注入レートは 6.6×10^{-4} appm/s であり、

注入量 30apmm のおもて面照射に平均 12.6 時間、注入量 100apmm のおもて面照射には平均 42 時間を要した。表 3.13.2 に、両面照射後の注入量 30 および 100apmm の He 注入試料について登録した試料 1 枚あたりの放射性同位元素と数量をそれぞれ示す。

3.13.4 考察

本業務における He 注入試験では、サイクロトロン加速器によって加速されるヘリウムイオンは 20MeV の単一エネルギー粒子であるため、図 3.13.6 に示すように、ディグレーダーを用いた片面照射だけでは、試料表面から深さ 80 μm あまりの範囲にしか均一に He を注入することができない。従って、He 注入量を試料厚さに対して均一に注入するには、本業務のように、167 μm の試料に対しておもて面と裏面から同量の He 注入を行うか、試料厚さを 80 μm 以下にするしかないことになる。しかしながら、極端に薄い試料を用いた場合、試料サイズ効果が生じることが知られている。宮崎ら[13.1]によれば、薄板試験片を十分な厚さのバルク試料と同等と見なすためには、試料厚さに対して結晶粒が最低でも 5 個以上並ぶことが必要であるとしている。本業務で用いた 12Cr-ODS 鋼は図 3.13.3 に示すように、材料中に直径数 μm の微細粒のほかに圧延方向に伸びた粗大粒が存在するため、試料厚さを 80 μm 以下とした場合に、試料サイズ効果が現れる恐れがある。従って、本業務のように、He 注入を試料両面から行い、試料厚さを 167 μm としたことは高温クリープ試験の信頼性を担保する上で正しい選択であったと考えられる。また、試料厚さに制限はあるものの、He 注入量 30apmm の試験に片面で平均 12.6 時間（両面で 25.2 時間）、He 注入量 100apmm であっても片面で平均 42 時間（両面で 84 時間）というように、短時間で簡便に He 注入試験を実施することができ、なおかつ、照射試料の放射線量は表 3.13.1 に示すように、試験後すぐに L 型輸送物として輸送できるほどに小さいことから、サイクロトロン加速器を用いた He 注入は、他の He 注入試験手段に比べて非常に有用な方法の一つであると考えられる。

3.13.5 まとめ

H24 年度から H26 年度まで、本業務において作製した試料のうち、注入量 30apmm の He 注入試料を 16 枚、He 未注入試料を 16 枚、また、鏡面研磨した試料のうち、注入量 100apmm の He 注入試料を 2 枚、注入量 30apmm の He 注入試料を 2 枚、He 未注入試料 4 枚をそれぞれ作製した。サイクロトロン加速器を用いた He 注入は、他の He 注入試験手段に比べて非常に有用な方法の一つであると考えられる。

参考文献

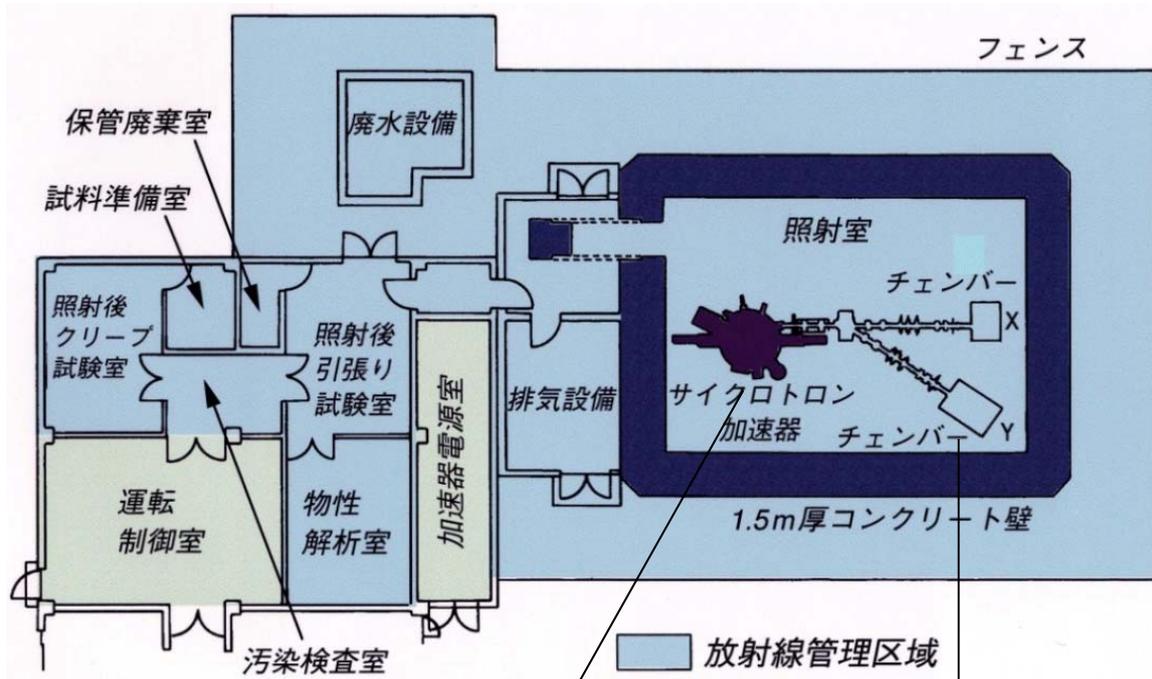
- [13.1] S. Miyazaki, K. Shibata, H. Fujita, " Effect of Specimen Thickness on Mechanical Properties of Polycrystalline Aggregates with Various Grain Sizes ", Acta Metallurgica Vol.27, pp855-862 (1979).

表 3.13.1 12Cr-ODS 鋼の化学組成

	C	Si	Mn	S	Cr	W	Ti	Y	O	Fe
wt. %	0.033	0.06	0.06	0.006	12.01	1.91	0.31	0.20	0.117	balance

表 3.13.2 He 注入試料の放射性同位元素核種と数量 (登録時 1 枚あたり, kBq)

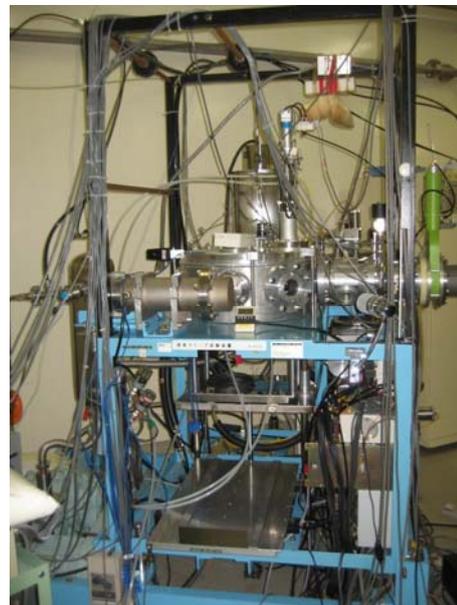
He 注入試料	⁵⁷ Co	⁵⁸ Co	⁵⁵ Fe	⁵⁴ Mn
30appm	4.654	14.71	1.184	0.825
100appm	15.34	47.10	3.952	2.725



1) 放射線管理区域見取図



2) NIMS サイクロトロン加速器



3) He 注入試験装置

図 3.13.1 放射線管理区域内の NIMS サイクロトロン加速器と He 注入試験装置

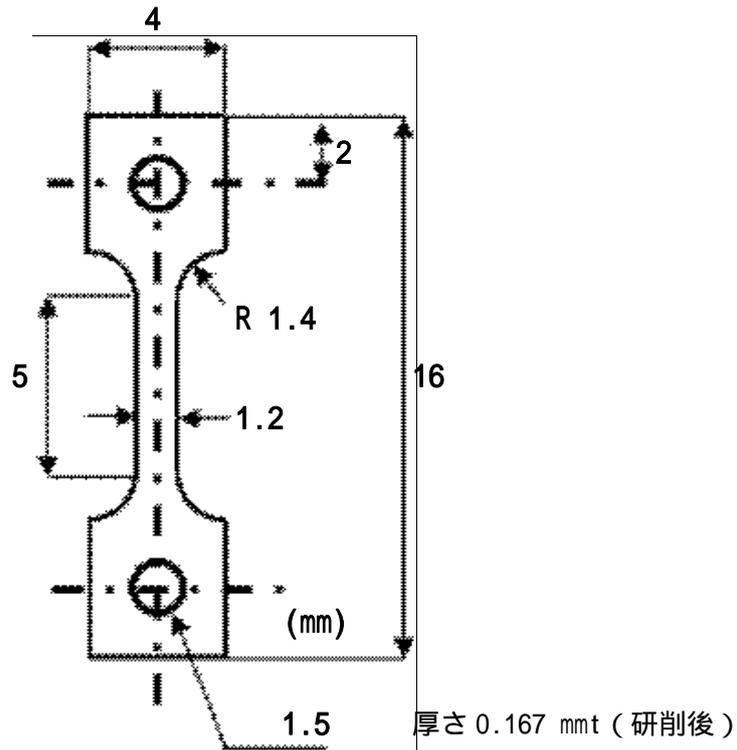


図 3.13.2 He 注入試験用試料形状

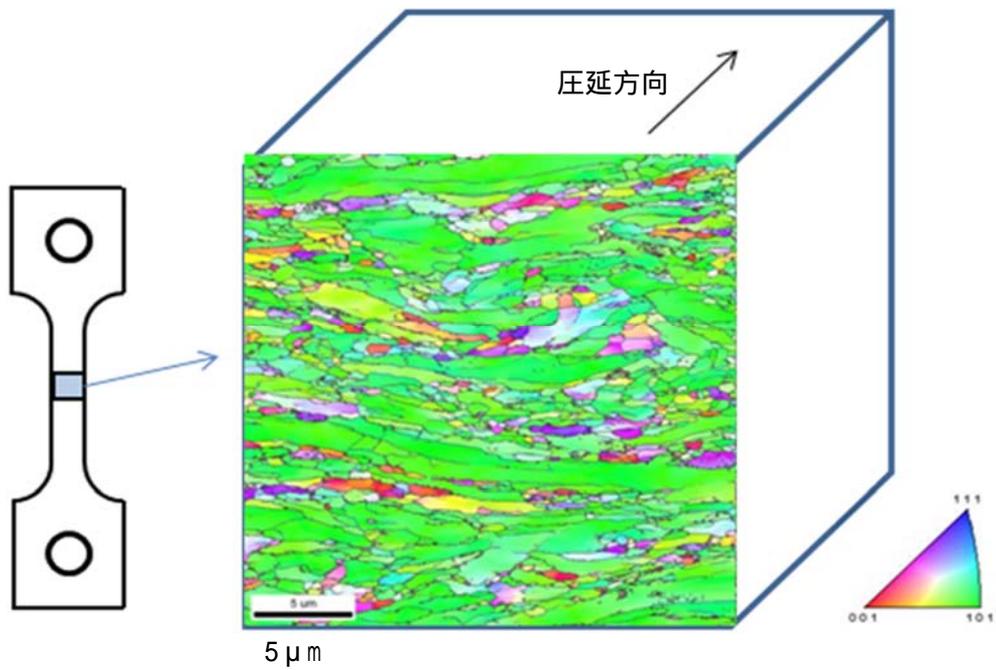
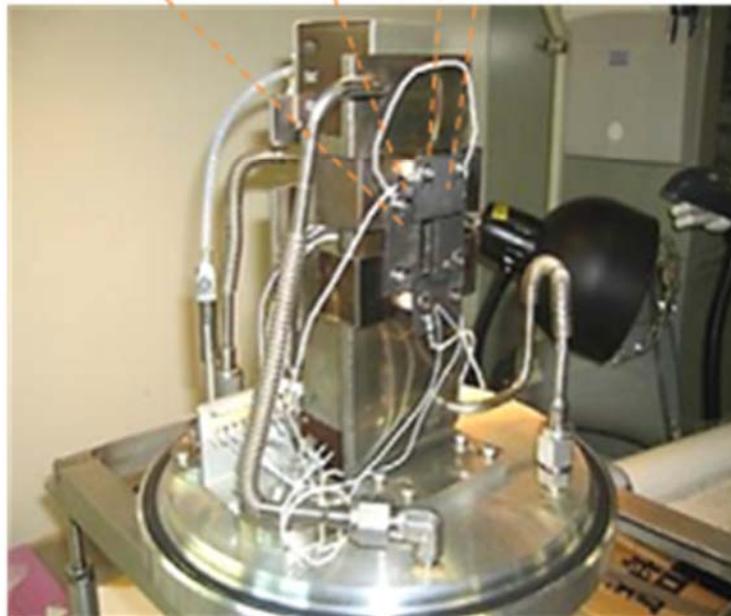
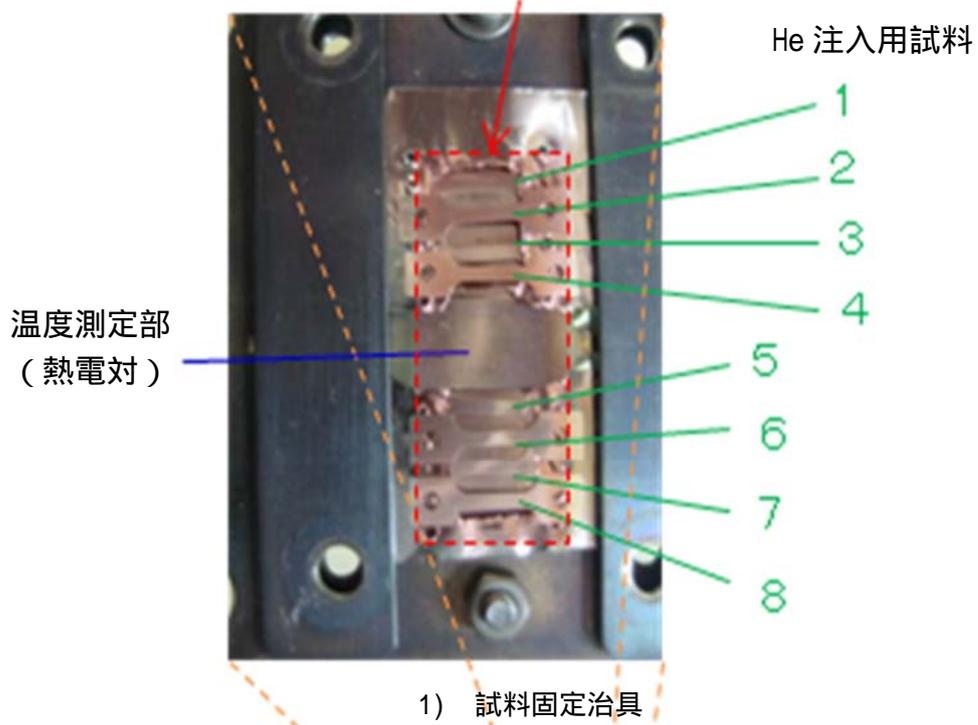


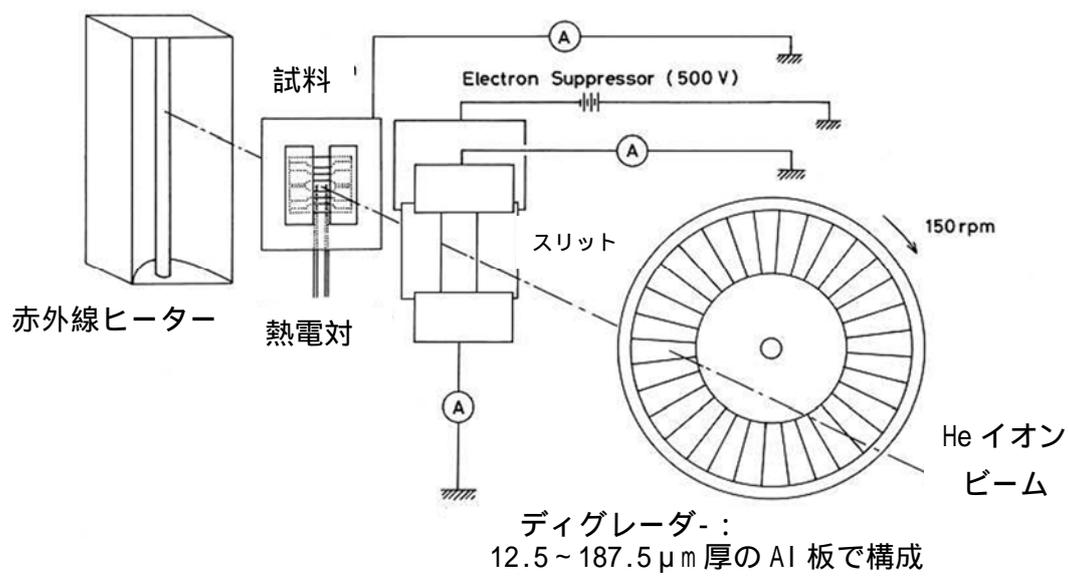
図 3.13.3 He 注入試験用試料組織写真

照射範囲：11mm × 25mm

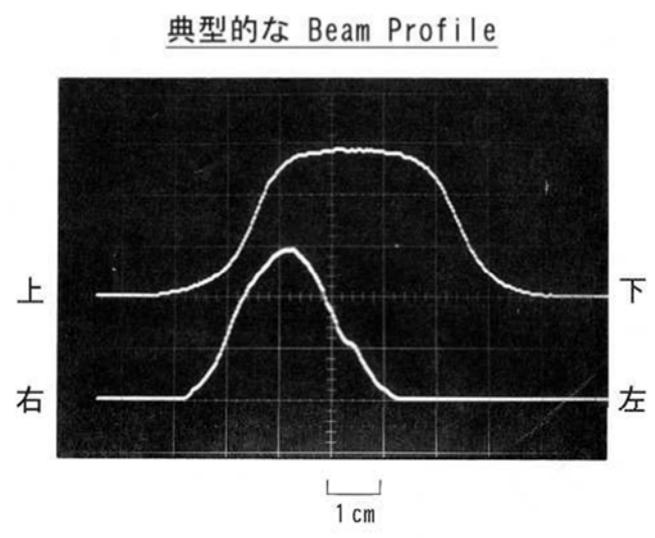


2) 試料照射ステージ

図 3.13.4 He 注入試験用試料の装着

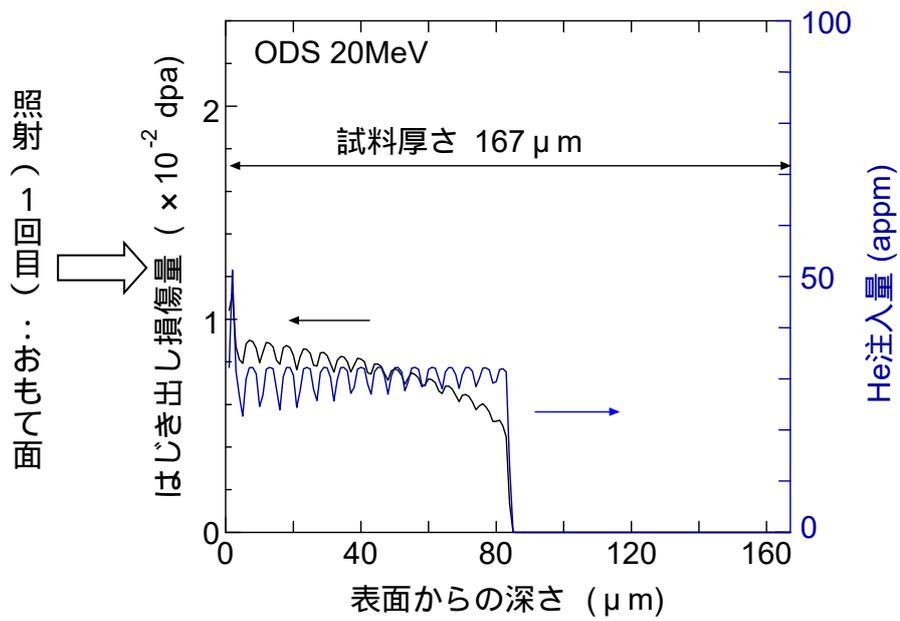


1) He 注入試験模式図

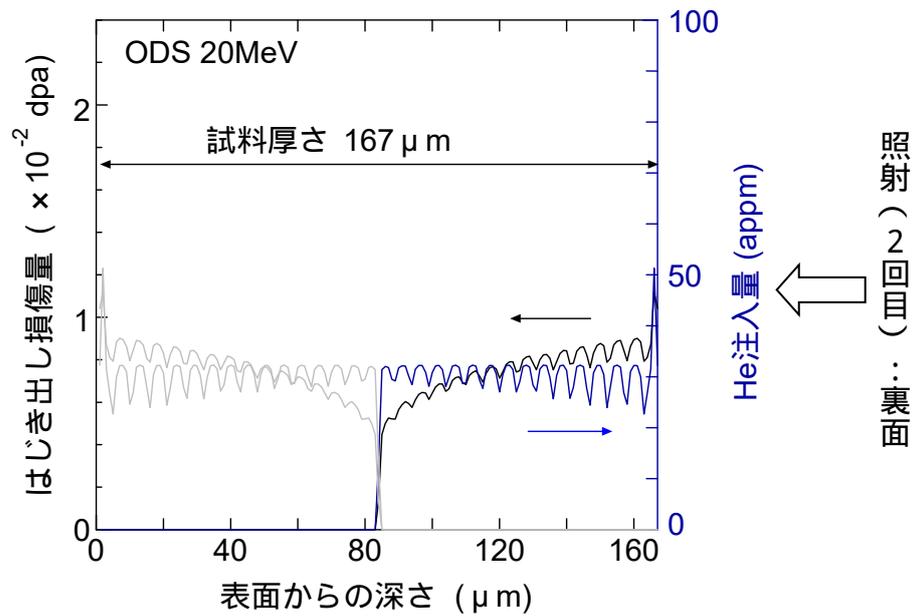


2) He イオンビーム形状

図 3.13.5 He 注入試験模式図と He イオンビーム形状



1) 試料のダメージプロファイルと He 注入分布 (おもて面照射)



2) 試料のダメージプロファイルと He 注入分布 (裏面照射)

図 3.13.6 試料のダメージプロファイルと He 注入分布

3.14 高エネルギーイオン照射試験

3.14.1 目的

燃料被覆管材料は燃料直近下において使用されることから、炉内劣化の重要因子である照射下における強度特性は燃料設計に対して重要因子である。そこで、本研究グループでは、次世代燃料被覆管材料として注目されている Zr-Nb 系合金を対象に、照射劣化と機械強度の相関を解明することを目的とし、冷間圧延ならびに再結晶化処理を施した平板の引張試験片に対し、東北大サイクロトン加速器(以後、CYRIC と称する)を使用した、140 MeV の炭素イオン(C^{4+})の照射実験、その後の室温における引張試験を実施した。その結果、当該鋼の照射特性は PWR (Pressure Water Reactor) の従来鋼であるジルカロイ-4 に比べ優れた耐照射特性を示すことを明らかとした [3.14.1]。これまでの試験では、引張方向が平板試験片の冷間圧延方向 (RD) と平行となるような条件下のものであるが、当該材料は製造時に施される冷間加工、再結晶化処理によって、特融の集合組織を呈している。このような組織では、結晶構造のみならず、強度特性に対し異方性を生じることから、この種々の特性異方性への照射影響を評価することは、材料健全性評価の観点から重要であると考えられる。

また、燃料被覆管材は燃料ペレット-被覆管相互作用 (PCI) による燃料被覆管損傷防止や環境劣化による機械強度の保持などの性能が要求されるが、当該材料は管形状を有していることから、リング引張 [3.14.2] やバースト試験 [3.14.3] 等が機械強度評価手法として用いられている。これらの試験体系では、試験中に試料にせん断ないし曲げ応力が付加されることや、応力状態が不均一であり、燃料設計に必要な単軸応力-ひずみ曲線を評価できる試験方でない。また、上述の試験では、Zr-Nb 系合金の基礎的な照射特性を理解することに注力していたことから、照射試験は平板材を使用していた。しかし、実機環境下において当該鋼は管状形状で使用されるため、材料の健全性評価には、3.8 章で述べた中子拡張 (Expansion Due to Compression : EDC) 試験等による機械特性評価が必要となる。そこで、本研では、管状試料に均一な損傷組織の導入が可能な照射体系の構築を目的し、東北大サイクロトン加速器を用いた管状試料への照射試験を実施した。

3.14.2 実験方法

3.14.2.1 試験片作製方法

図 3.14.1 に平板引張試験片の作製手順を示す。本研究では供試材として Zr-1.8Nb を使用した。この化学組成を表 3.5.1 に示す。なお、本研究では管状形状の J1 合金をスタートマテリアルとして使用し、図に示すように約 50% の冷間圧延、ならびに 853 K x 24 hr の再結晶化処理を施し、平板状に成形した。この平板から、引張方向と RD が平行ならびに垂直となるように引張試験片 (SSJ タイプ形状 : 16 x 4 x 0.2 mm) を打ち抜き加工によって作製した。なお、以後、引張方向が RD に対して平行な試料を RD 材、垂直方向のものを TD 材と称する。

また、管状試料の照射実験には管状試料の J1 (Zr-1.8Nb) を使用した。試験片形状は後述するが、試験片長さ 85 mm の管状試料ならびに長さ 50 mm の段付き管状試験片を使用した。

3.14.2.2 平板状試験片への高エネルギーイオン照射試験

平板引張試験片への照射方法を図 3.14.1 にまとめて示す。照射は、CYRIC より 140 MeV- C^{4+} イオンを本研究グループの照射チェンバーが据え付けられている 34 コースに輸送し、試料直前に設置したアルミニウム (Al) 箔製のエネルギーディグレーダーにイオンビームを透過させることで、離散的に入射粒子エネルギーを減少させ、試料の厚さ方向に均一な照射分布を導入した。なお、照射チェンバーの直前に遠隔操作可能なエネルギーファラデーカップが備え付けられており、ここで、ビーム電流量を計測し、試料への照射量を算出した。また、図 3.14.3 は、(a) エネルギーディグレーダーの設計図と、(b) SRIM コード [3.14.4] を使用して計算した、当照射条件で試験した際に生じる Zr 組織に導入される損傷量の深さ依存性を示した。なお、Al と Zr のはじき出し閾エネルギーはそれぞれ、17 [3.14.5]、40 eV [3.14.6] を使用した。これらより、本研究では、2 枚のエネルギーディグレーダーを使用し、24 段階の離散的に入射粒子エネルギーでの照射を行っている。さらに、SRIM 計算結果より、当エネルギーディグレーダーでは、試料表面側での損傷量は試料内部に比べ若干高くなる傾向にあった。一般に、SRIM 計算では、結晶構造や組織を持たないアモルファスにイオンを照射した際のイオン飛程や空孔の形成頻度等を実証評価することが出来る。しかし、実際の材料中には粒界や転位、析出物界面、試料表面などが存在し、これらは照射によって形成された照射欠陥のシンクサイトとして機能する。粒界や転位、析出物界面については材料中に均一に存在するため、損傷量の深さ依存性へのこれらの影響度は相対的变化として考えれば良い。一方で、試料表面に関しては、表面付近で生じた照射欠陥の消滅割合のみが高くなるため、照射後の微細組織観察ないし機械特性評価で確認される照射効果は試料内部に比べ少なくなる傾向にあることが分かっており、このため、やや大まかな見積もりではあるが、当エネルギーディグレーダーを使用することによって試料の厚さ方向に均一な損傷組織を導入することが出来ることが分かった。

図 3.14.3 に平板引張試験片用の照射ステージを示す。1 個の照射ステージに 3 枚の試験片が装着でき、ステージ裏面からヒーターで加熱することで照射温度を制御できる。また、試料の表面、裏面、ヒーター部の温度を熱電対によって計測でき、かつ、この温度はターゲットルームに設置したカメラを通し、サイクロトロンコントロールにてモニターできる仕組みになっている。なお、一例として、平成 28 年度に実施した照射試験における温度履歴結果を図 3.14.5 に示す。試料の表面、裏面、ヒーター部の 3 系統における温度推移結果を図示しておいた。これより、試料表面が高くかつ、そのバラつきが大きいことが分かる。これは、試料表面部では高エネルギーイオンビームによる加熱が生じるため、試料裏面部よりも高温に晒されることになる。また、このビームヒーティングはビーム電流量にも依るが、大よそ 150 K 程度であることが分かっており、このため、照射温度を 573 K で実施するためには、ヒーターによって 423 K 程度まで加熱することで、温度を制御した照射実験が達成される。

なお、照射試験後の試料は東北大学 金属材料研究所のアルファ放射体実験室に移送し、平成 24 年度に納品した納品した島津社製の AG-Xplus を用いて、室温で引張試験を実施した。ひずみ速度は 10^{-3} s^{-1} で実施し、ひずみはレーザー変位計で測定した。また、得られた応力-ひずみ曲線 (- 曲線) より、0.2% 耐力 ($\sigma_{0.2}$) や最大引張応力 (σ_{UTS})、均一伸び (ϵ_{UTS})、破断伸び (

r_p) 加工硬化指数 (n) 加工硬化率 () 等の種々の引張特性を評価し、これの照射量依存性を評価した。

3.14.2.3 管状試験片への高エネルギーイオン照射試験

管状試験片への照射方法を図 3.14.6 にまとめて示す。照射試験は、図 3.14.1 に示した平板状試験片と同じ体系で実施しているが、管状形状の試料を使用することから、これに合った照射ステージを平成 26 年度に作製した。その外観写真(図 3.14.7(a))ならびに設計図(図 3.14.7(b))を図 3.14.7 に示す。試料は照射ステージの下部に装着しており、このステージをチャンバー内に固定した際に試料がビームラインの中央に位置するように設計されている。また、管状試料の全体に均一な照射組織を導入する必要がある。そのため、この照射ステージには、試料の回転機構を設けており、照射試験中に試料が回転することで、管状試料の全面に均一な照射が実施できる。なお、この回転速度は任意で制御可能であり、本研究では 20 rpm (Revolution Per Minute) で実施した。また、冷却水の循環ラインが試料の裏面にあり、試料加熱用のヒーターが管状試料の内側にある。これらの冷却水流量やヒーター出力を制御することによって試料温度を調整できる仕組みとなっている。

3.14.3 結果と考察

3.14.3.1 平板引張試験片への高エネルギーイオン照射試験

平板試験片の微細組織特徴 ((a)逆局点図と(b)透過型電子顕微鏡写真) を図 3.14.8 にまとめて示す。ここで使用した試料は 3.5 章で使用した Zr-1.8Nb の平板引張試験片と同様であり、平均結晶粒径が 2.99 μm の再結晶化処理材であり、結晶粒内には Nb 析出物が分散析出し、この平均サイズ、数密度はそれぞれ、49 nm、 $6.9 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ であった。

また、これまでに実施した照射試験の代表的な(a)照射量と照射時間との関係、(b)温度履歴をそれぞれ図 3.14.9 にまとめて示す。この時の平均ビーム電流量は大よそ 2.2 μA であり、損傷速度は $11 \times 10^{-8} \text{ dpa/s}$ であった。実機環境下における損傷速度は約 $1-3 \times 10^{-8} \text{ dpa/s}$ であることから [3.14.7]、本照射条件は、原子炉での損傷速度を 10 倍程度加速した試験であることが分かった。また、温度履歴は試料表面温度を示したものであるが、この時のビームヒーティングは 80 K であり、ヒーター加熱によって照射ステージを昇温することで、PWR の一般的なイオン照射条件の 573 K 近傍でイオン照射実験を達成できた。

図 3.14.10 に高エネルギーイオン照射した TD 材ならびに RD 材の $\sigma - \epsilon$ 曲線を示し、また、表 3.14.2 に種々の引張特性をまとめて示す。TD 材では、照射量の増加に伴って $\sigma_{0.2}$ や σ_{UTS} の材料強度が上昇し、かつ、 r_p が照射量の増加に伴い低下することが分かった。さらに、照射量が 3.0 dpa 以上では、弾性域の線形加工後に急激な軟化を示す、いわゆる転位チャネリングによる破壊が生じた [3.14.8]。既往研究結果では、High Flux Isotope Reactor (HFIR) にておいて <373 K で中性子照射した再結晶化 Zircal-4 では、転位チャネリングによる破壊が >0.01 dpa で確認されており、また、SILOE 炉において 553 K におて約 1dpa 照射した再結晶化高スズ-Zircal-4 においても [3.14.9]、明瞭な照射チャネリングが確認されている。これらの結果から、当該材料における照

射チャネリングの発生は >3 dpa であることから、Zr-Nb 合金では、従来材料よりも転位チャネリングの発生が抑制されることが分かった。一方で、RD 材では連続降伏型の σ - ϵ 曲線を示し、TD 材で確認された降伏点は確認出来なかった。降伏現象の一般的な理解としてはコットレル・ロッキング機構が有望であるが[3.14.11]、これは、転位の持つ弾性ひずみ場に侵入型原子が偏析する（コットレル雰囲気）ことで、転位の運動に必要なポテンシャルが高くなり、一旦、転位運動が生じると、転位の弾性ひずみ場には侵入型原子がいなくなるため、そのポテンシャルが低下し、低い応力レベルで変形が進行する。これが組織全体で一斉に生じると、応力の急激な低下として観察されると考えるものである[3.14.11]。しかしながら、非照射材（0 dpa）では、同一試料を異なる引張方向で試験していることから、TD と RD 材におけるコットレル雰囲気の程度は同一と解釈される。そのため、この引張方向に応じた降伏現象ないし σ - ϵ 曲線の違いは、コットレル雰囲気のすべり系依存性が生じていると考察される。つまり、詳細は 3.5 章に記したが、TD と RD 材では活動するすべり系が大きく異なり、RD 材において、比較的に低応力下では、主に Prismatic- $\langle a \rangle$ 型の転位が活動するのに対し、TD 材では $\langle a \rangle$ 型だけでなく、 $\langle c \rangle$ や $\langle c+a \rangle$ 型、さらに双晶変形が生じることから[3.14.12]、これらにはコットレル雰囲気から逸脱するために適当なポテンシャルが存在するが、一方で、Prismatic- $\langle a \rangle$ 型の転位には存在しない、もしくは無視できる程度であると考えられる。なお、TD 材では、照射量の増加に伴い降伏点が明瞭でなくなることから、この降伏点現象は照射欠陥の蓄積に伴う照射硬化とも関連した現象であると推測された。

$\sigma_{0.2}$ の照射硬化量の照射量依存性を図 3.14.11 に示す。TD 材における $\sigma_{0.2}$ は、0-2 dpa の範囲内で立ち上がり、その程度は ≈ 170 MPa であった。その後は、増加傾向が比較的に緩やかになり、5.5 dpa の照射で ≈ 200 MPa の照射硬化を生じた。また、RD 材では、 ≈ 1 dpa までの試験結果であるのだが、 $\sigma_{0.2}$ の増加傾向は TD 材比べ小さいことが分かった。これらより、照射硬化挙動は RD 材に比べ TD 材で顕著に生じることから明らかとなった。さらに、図 3.14.15 に σ_{UTS} の照射硬化量の照射量依存性を示す。先の $\sigma_{0.2}$ の傾向と概ね同様の照射硬化挙動を示したが、TD と RD 材における照射硬化挙動の違いは減少することが分かった。これは、加工硬化域における転位と照射欠陥との相互作用が TD と RD 材で異なるためであると考察される。

図 3.14.16 に n の照射硬化量の照射量依存性を示す。TD 材における n は照射量の増加に伴い減少した。また、3 dpa 程度の照射により、転位チャネリングによる変形が生じていることから、これ以上では、 $n = 0$ となった。一方で、RD 材では、1 dpa までの照射結果であるが、 n は照射量の増加に伴い減少した。このように、当該材料では、 $\sigma_{0.2}$ に代表されるような照射硬化量だけでなく、加工硬化域の材料特性への照射量依存性が生じることが分かった。そのため、加工硬化域における材料特性を詳細に検討するため、各照射材の真応力-真ひずみ曲線（ σ - ϵ 曲線）から加工硬化率（ $\sigma : d\epsilon / d\epsilon$ ）を評価した。その結果を図 3.14.17 に示す。ここに示した結果は TD 材であるが、当該材料では 2 段階の硬化領域が存在することが分かった。1 段階目はひずみが 0-0.03 の範囲の線形減少域であり、ここは、図 3.14.10 に示した σ - ϵ 曲線上における弾性域から塑性域への推移域に相当している。一方で、2 段階目は σ が一定となる領域であり、ここは、 σ - ϵ 曲線における塑性域に相当している。なお、2 段階目以降の放物線状に減少する領域が確認されたが、これは、本研究では、試験片の平行部体積が常に一定であると仮定し、真応力-真ひずみを算出している。そのため、 σ_{UTS} までは、試料は均一な変形を生じるが、それ以降のネッ

キングが生じ始める段階に達すると、局所的な変形が主となり、体積一定の仮定から逸脱し、適切な σ - ϵ 曲線が得られなくなり、その結果、2段階目以降の σ の放物線状に減少する領域は材料学的な意味を有していない。これらより、1段階目の d ならびに2段階目の d の照射量依存性を評価した。その結果を図 3.14.17 にまとめて示す。図 3.14.17 (a)に示した1段階目の弾性域と塑性域の推移域における d の照射量依存性は、0-1 dpa の範囲で急激な増加を示した後、飽和する傾向を示した。これは、非照射ならびに低照射量 (<1 dpa) の TD 材では、明瞭な降伏点が確認されているが、照射量の増加に伴い消失したことから、 d は降伏現象の有無を表現した結果であると理解される。また、図 3.14.17 (b)に示した2段階目の d の照射量依存性の結果では、 n は照射量増加に伴い低下しており、とりわけ、3 dpa 以上では、加工硬化率が負の値を示すことが分かった。一般金属における n の範囲は、おおそ 0-0.3 であることが知られており[3.14.13]、このため、図 3.14.16 に示したように、3 dpa 以上では照射チャネリングによる変形ないし破壊が生じた試料における n は 0 と見積もられる。よって、 n の照射量依存性は 3 dpa 以上で飽和することになるのだが、 n の評価結果からは、照射材の加工硬化ないし加工軟化特性は照射量に対して線形的に減少しており、より定性的な理解を得ることが出来た。

3.14.3.2 管状試験片への高エネルギーイオン照射試験

平成 26 年度に実施した照射試験片の形状を図 3.14.18 に示す。図 3.14.3 に示したように、140MeV- C^{4+} イオンの飛程は大よそ 0.2-0.18 mm であるのに対し、燃料被覆管の肉厚は 0.55 mm 程度であることから、受入ままの管形状試料に対して均一な照射組織を導入する事が出来ない。そのため、本研究では、長さ 50 mm の試料の中央部に肉厚 0.2 mm の薄肉部ならびに、その上下箇所肉厚 0.4 mm の中肉部を旋盤加工によって作製し、これを照射試験に供した。図 3.14.19 に照射試験結果をまとめて示す。(a)が照射試験中の温度履歴であり、また、(b)は照射試験後の試料外観写真を示した。T1、T2、T3 の測定箇所は、それぞれ試料上端、照射領域、試料下端である。T1、T3 部での計測温度は 423 K 程度であったのに対し、T2 部では 348 K 程度であり、測定箇所に依存した温度差が確認された。平板引張試験片への照射試験結果より、T2 部では、ビームヒーティングによる加熱が生じていると考えられるが、ここでは、計測されなかった。これは、当実験では、回転させた試料に熱電対を接触させながら温度計測を行っているのだが、試料と熱電対との密な接触が担保されていれば、正確な温度を評価できるのだが、非接触状態では、真空断熱効果によって計測温度が著しく低下する。このため、T3 が T1 と T2 に比べ低く計測されたのは、試料との接触が不十分であったためであると考えられる。よって、温度計測方法については、更なる改善が必要であることが分かった。また、試験後の外観写真より試験薄肉加工部で試験片の捻じれ(変形)と金属光沢の消失が確認された。これは、この試験方法では、ビームヒーティングによる加熱に対して除熱が不十分であったことから、照射に伴い試料温度が上昇し、これに伴う試料の軟化、最終的に回転機構の駆動力によって試料に変形が生じたと考えられる。また、金属光沢が消失した機構に関しては、試料の酸化や δ 変態(マルテンサイト変態)による表面起伏の形成等が考えられるが、詳細を明らかにするためには、微細組織評価が必要である。これらより、本照射ステージでは照射試験中の温度計測方法が不適切であり、且つ、除熱方法についても改良が必要であることが分かった。さらに、図 3.14.19 (a)に示したように、T2 では、経過時

間 24 hr 付近で T2 温度が急激に上昇したが、これは、試験片が変形したことで、試験片と熱電対との接触が改善され、熱伝導性が増加したことに由来していると考えられる。

この結果を踏まえ、平成 27 年度は照射ステージならびに試験片の更なる改良を行った。それらの改良点をまとめとして図 3.14.20 に示す。まず、(a)照射ステージは、ビームヒーティングを適当に除熱するため、管状試験片の上端と下端部に照射ステージ冷却ブロックと接続した Cu 製の帯 (Cu-バンド) を据付、これと試料が接触することで、熱伝導性を向上させる機構を設けた。また、(b)試料形状を長さ 85mm とし、従来までに実施していた段付き加工せずに照射試験に供した。これは、この照射実験では、熱伝導性を確保する目的から、試料と Cu - バンドと接触させた状態で照射試験を実施するが、ここでの摩擦力が生じ、試料にはせん断変形が付与される可能性がある。さらに、照射実験中は高温環境に曝されることから、材料強度が低下する。このため、試料強度を確保し、かつ、試験中の試料の変形を抑制する目的から、試験片に薄肉部を設けない形状へと変更を行った。なお、この試験片の上端と下端部には切欠きを設けて、ここにネジを通すことで、回転部機構部と固定した。なお、平成 26 年度に実施した試験では、管の内側からヒーター加熱出来るような設計となっていたが、平成 27 年度は、照射によるビーム加熱を適切に評価すること特化し、この加熱機構を除去した設計とした。さらに、試料回転数は 20 rpm とし、300 K 程度の冷却水を流量 5 l/min にて照射ステージ内を循環させながら照射試験を行った。

これらより、新たに作製した照射ステージで照射試験結果 (温度履歴) を図 3.14.21 に示す。前年度と同様に、照射領域上部 (T1)、照射領域 (T2)、照射領域下部 (T3) の 3 箇所の温度履歴を評価した。その結果、T1 および T2、T3 では異なる温度応答を示した。これは、T1 部では試料と熱電対が接触した状態で温度を評価できていたが、T2 と T3 では、試料回転に伴って、熱電対と試料が離れた状態になり、真空中断熱影響によって、T1 に比べ T2 と T3 温度が低く計測されたと考えられる。これより、温度計測には T1 の結果を参照し、照射試験中の温度変化を評価した。照射試験開始前の試料温度は約 300 K であり、ここに、ビーム電流量が約 0.8 μ A での照射試験によって、試料温度が約 330 K まで上昇した。その後、ビーム電流量が 1.5 μ A では、試料温度が約 360 K に到達し、さらに、平板状引張試験片への照射の際に使用されている平均的なビーム電流量の 2 μ A で照射では、試料温度は最大 450 K まで上昇することが分かった。これらより、ビーム電流量の増加に伴い試料温度が上昇し、すなわち、ビーム電流量の増加に伴ってビームヒーティングが増加した。なお、このビーム電流量とビームヒーティング量の関係を図 3.14.22 に示す。プロット点は平均値であり、エラーバーの長さは最大、最小値を示す。これより、ビームヒーティング量は放物線状の増加を示すことが明らかとなった。これらより、照射領域箇所の温度については正確に評価できていないものの、金属中の熱伝導性が高いことから、ビームヒーティングは T1 部においても、適切に計測できていると考え、PWR 条件を模擬した環境下での照射実験には、約 150 K 程度のヒーター加熱を施すことで、573-593 K の照射温度において試験できる見通しを得た。

図 3.14.23 に照射試験前後での試験片の概観写真を示す。照射試験後の試料表面は図 3.14.19(b) に示したような試験片の変形や変色等が確認されなかった。また、照射領域の上端ないし下端部には無数の引掻き傷が確認された。これらは、照射実験中に試料が回転することで、照射ステージや Cu-バンドと擦れたことによって生じたものであるのだが、ここから、照射試験領

域の幾何学的な位置関係を整理することが出来る。これらより、本試験体系にヒーターによる加熱機構を導入することで、管状形状を有した試料に対し、実機を模擬した環境下において照射試験が出来る見通しを得た。

3.14.4 まとめ

次世代型の軽水炉燃料被覆管として使用が予定されている Zr-Nb 合金の照射特性を明らかにすることを目的として、平板状および管状試料に対して均一な損傷組織の導が可能な照射ステージを作製し、さらに、照射材の機械特性変化を評価するための照射後試験を実施した。得られた結果は以下の通りである。

- (1) 本研究事業で製作した照射試験チェンバーによって、所望の照射試験が達成された。
- (2) 平板形状の照射試験では、TD 材において ≈ 6 dpa まで、RD 材では ≈ 1 dpa までの照射を行った。両試料とも、照射量の増加に伴う 0.2%耐力 ($\sigma_{0.2}$)、最大引張応力 (σ_{UTS}) の増加を確認し、この増加傾向は TD 材に比べ RD 材で低いことを明らかにした。また、TD 材では 3 dpa 以上から照射チャネリングによる材料の破壊挙動が確認された。さらに、加工硬化指数 (n) の照射量依存性を評価した結果、両試料とも照射量の増加に伴い n が減少することを確認した。
- (3) 平成 27 年度までに実施した管状試料への照射試験においては、温度計測やビームヒーティングの除熱機構等の課題が残されていたが、この改良を施した照射ステージを用いた照射試験 (平成 28 年度実施) により、管状試料の肉厚方向に均一な損傷組織の導が可能な照射体系を構築した。しかしながら、試料形状の最適化ならびに温度計測機構については、未だ改良の余地が残されていることから、引き続き、この対策を講じることにより、管状形状の試料へのイオン照射実験という、他に類を見ないユニークな照射設備を構築する。

3.14.5 次年度計画

3.14.5.1 照射材の照射後試験

これまでに、照射後試験として機械強度試験に特化した評価を実施し、種々の引張特性が照射によって形成されたと思われる照射欠陥の蓄積によって変化することが分かった。とりわけ、3.5 章に示した結果より、Zr-Nb 合金中の Nb 析出物と加工硬化指数 (n) が線形関係にあり、また、図 3.14.16 に示したように、TD と RD 材において n の照射量依存性を確認している。このため、照射材における照射欠陥のサイズや数密度の評価を進めることにより、当該材料の機械特性と微細組織との相関を図る。

3.14.5.2 照射ステージの改良

図 3.14.19(a)ならびに 3.14.21 に示したように、管状試料への照射試験では、試料と熱電対との接触の有無によって温度計測結果が大きく変化した。これは、当照射試験体系では、試料を回転させながら照射を行う必要がることから、熱電対と試料との接触が不安定な状態にある。この

ため、照射試験中の変化を安定して計測するため、放射温度計や多接触型の熱電対の使用について検討し、最適な温度計測方法を模索する。

また、平成 28 年度に実施した照射試験では、ビームヒーティング計測ないし、材料変形を抑制する目的から、受入れままの管状試料を使用した。しかしながら、本文中でも述べたように、140MeV-C⁴⁺のイオンビームでは、その飛程は約 0.2mm であり、現行の燃料被覆管材に均一な照射欠陥を導入するためには、イオンビームないし試料形状の改良が必要である。イオンビームの改良については加速器の制限があるため、その実施は困難である。一方で、試料形状に関しては、平成 27 年度に実施したような薄肉加工が可能であるのだが、加工によって試料にひずみ付与されることから、これの照射影響の評価ならびに、試料加工方法の最適を実施する。

3.14.5.3 照射材の中子拡管試験

上述にも関係するが、管状形状試料に高エネルギーイオン照射した試料の照射後試験として、3.8 章で述べた改良型中子拡管試験を実施する。

参考文献

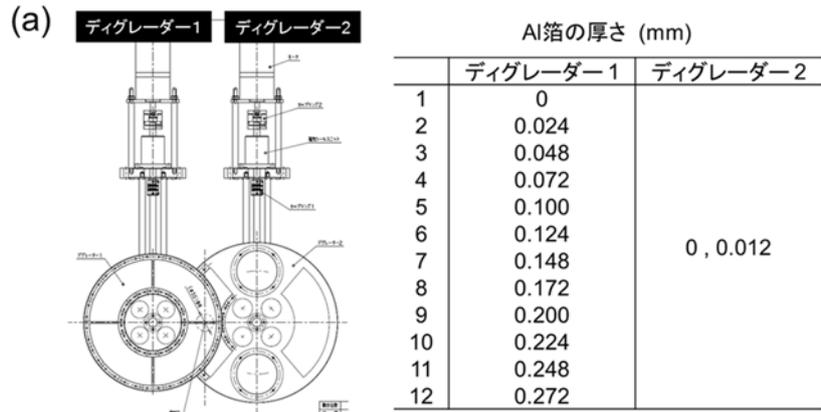
- [3.14.1] H. Yang, S. Kano et.al., AZW (2015)
- [3.14.2] S. Arsène, J. Bai, J. Test. Eval. 26 (1998) 26-30.
- [3.14.3] A.M. Garde, et.al., 11th International Symposium on Zr in the Nuclear Industry, ASTM, STP 1295, (1996) 407-430.
- [3.14.4] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, The Stopping and Range of Ions in Solids, Pergamon, New York, (1985).
- [3.14.5] K. Kamada, A. Sagara, H. Kinoshita, H. Takahashi, Radiation Effects, 106 (1988) 219-227.
- [3.14.6] 石野 稔：照射損傷，東京大学出版 (1979)。
- [3.14.7] G.P. Sabol, G.D. Moan, Zirconium in the Nuclear Industry, Twelfth International Symposium, ASTM, STP 1354 (2000).
- [3.14.8] K. Farrel, et.al., JNM 335 (2004) 471-486.
- [3.14.9] F. Onimus et.al., JNM 328 (2004) 165-179.
- [3.14.10] J.B. Bailey, J. Nucl. Mater., 7 (1962)300-310.
- [3.14.11] T.S. Byun, N. Hashimoto, Nucl.Eng. Tech., 38 (2006) 619-638.
- [3.14.12] I.J. Beyerlein, Int. J. Plasticity, 24 (2008) 867-895.
- [3.14.13] 木村宏，材料強度の考え方，アグネ技術センター (2002) 229-267.

表 3.14.1 供試材の化学組成 (at.%)

	Zr	Nb	O
Zr-1.8Nb	Bal.	1.8	0.1

表 3.14.2 照射した TD および RD 材の引張特性

	Displacement damage (dpa)	$\sigma_{0.2}$ (MPa)	σ_{UTS} (MPa)	ϵ_{UTS}	ϵ_{rp}	n
TD	0	347.8	392.9	0.088	0.252	0.116
	0.23	466.7	472.2	0.065	0.180	0.052
	0.49	424.8	427.4	0.067	0.211	0.072
	1.76	519.5	539.3	0.062	0.170	0.056
	3.06	528.3	532.7	0.022	0.122	0.000
	5.31	543.7	559.1	0.023	0.108	0.000
RD	0	347.8	467.2	0.122	0.224	0.176
	0.49	429.3	534.0	0.121	0.249	0.160
	0.69	435.9	546.5	0.131	0.236	0.146
	1.1	444.7	568.6	0.132	0.241	0.155



※ 2枚のエネルギーディグレーダーを使用し、Al薄膜の厚さを0-0.284 mmまで変化させることで、試料中のイオンビームの飛程を変化させた

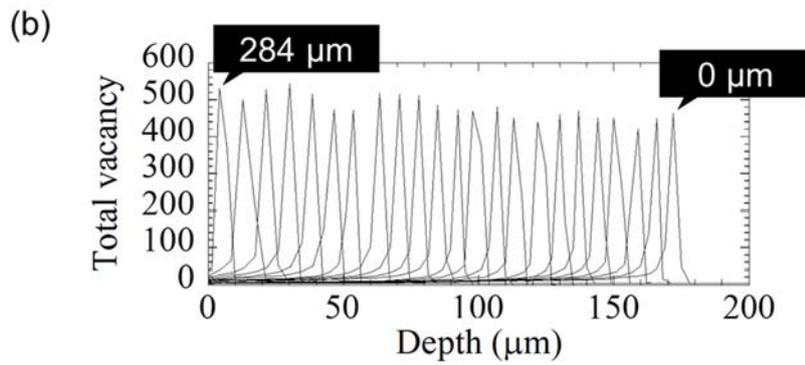


図 3.14.3 (a)エネルギーディグレーダーの設計図と、(b) SRIM コードを使用して計算した、当照射条件で試験した際に生じる Zr 組織に導入される損傷量の深さ依存性

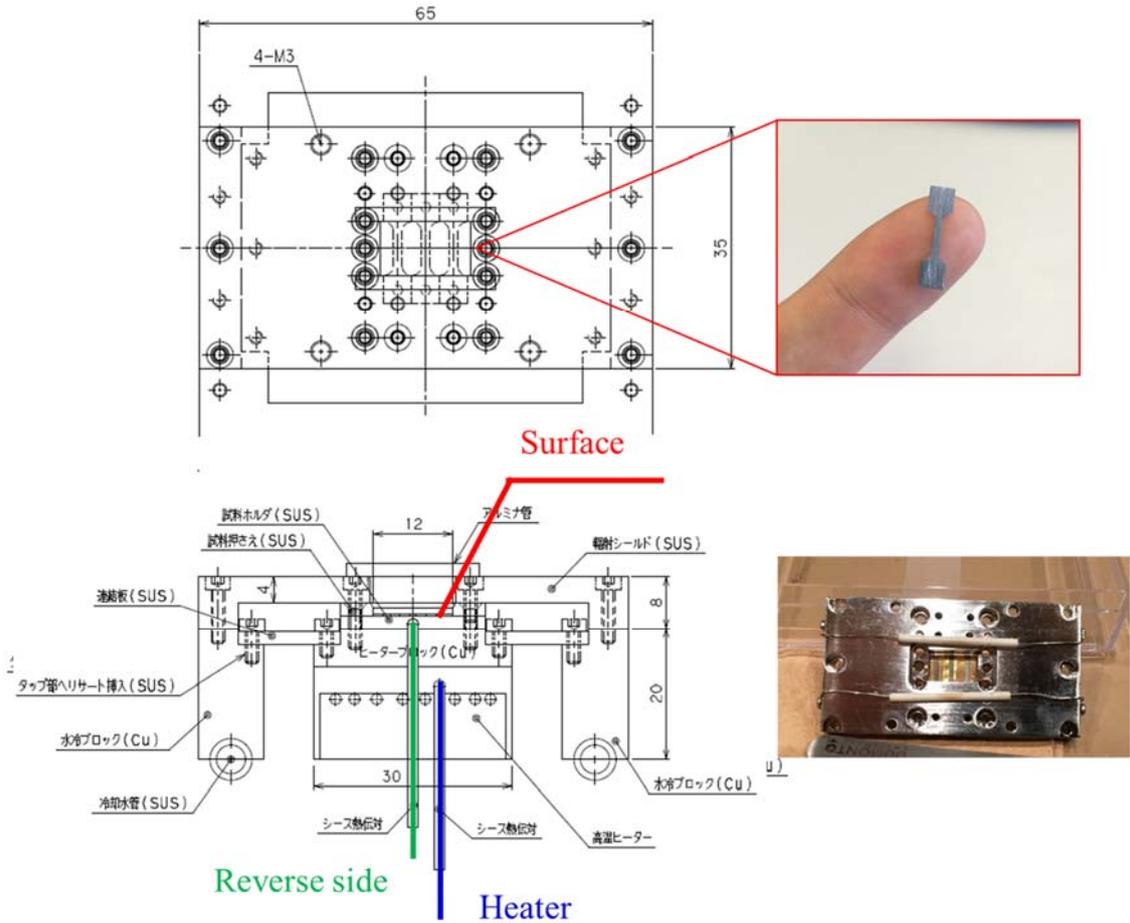


図 3.14.4 平板引張試験片用の照射ステージの設計図

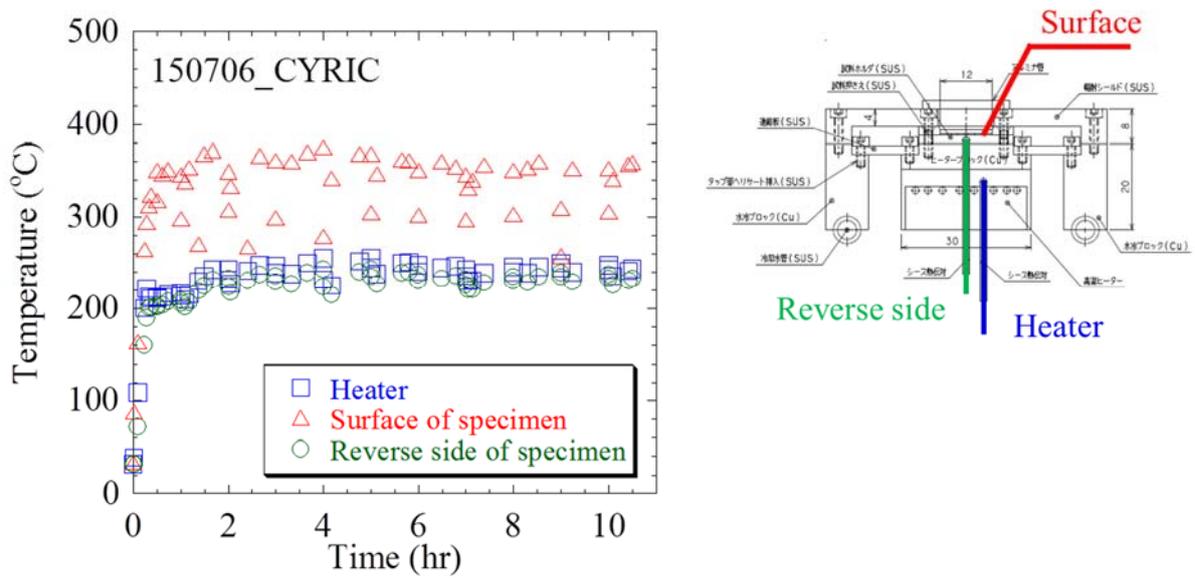


図 3.14.5 平板引張試験片への照射試験中の温度履歴

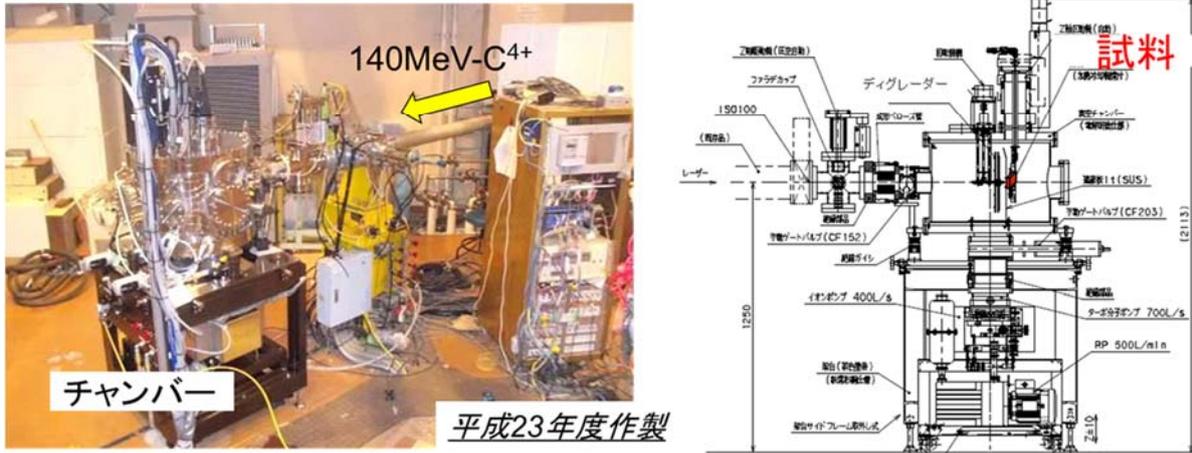
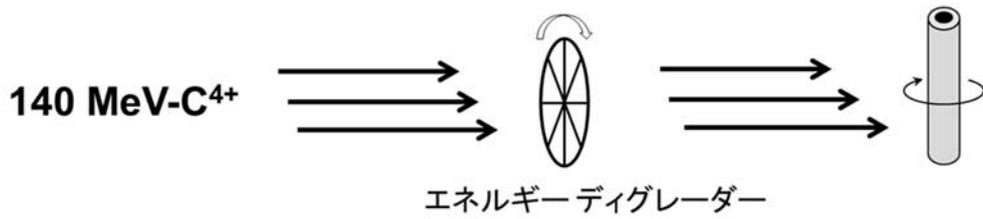


図 3.14.6 管状試験片への高エネルギーイオン照射実験体系

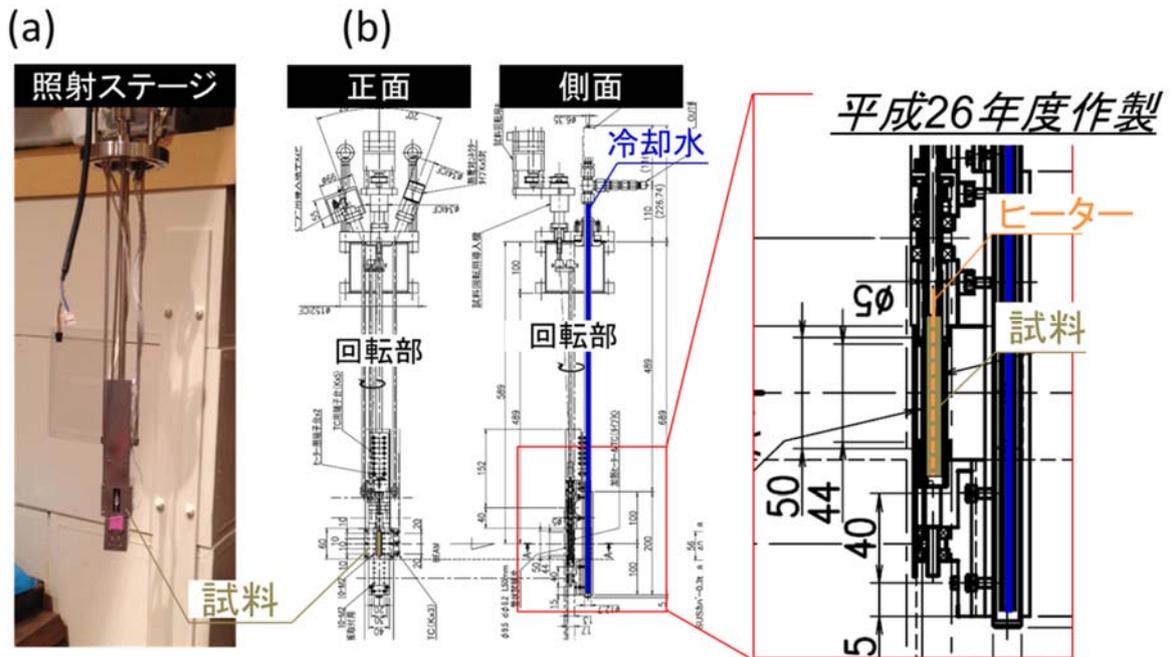


図 3.14.7 (a)管状試験片への高エネルギーイオン照射のための照射ステージの外観写真と、(b) その設計図

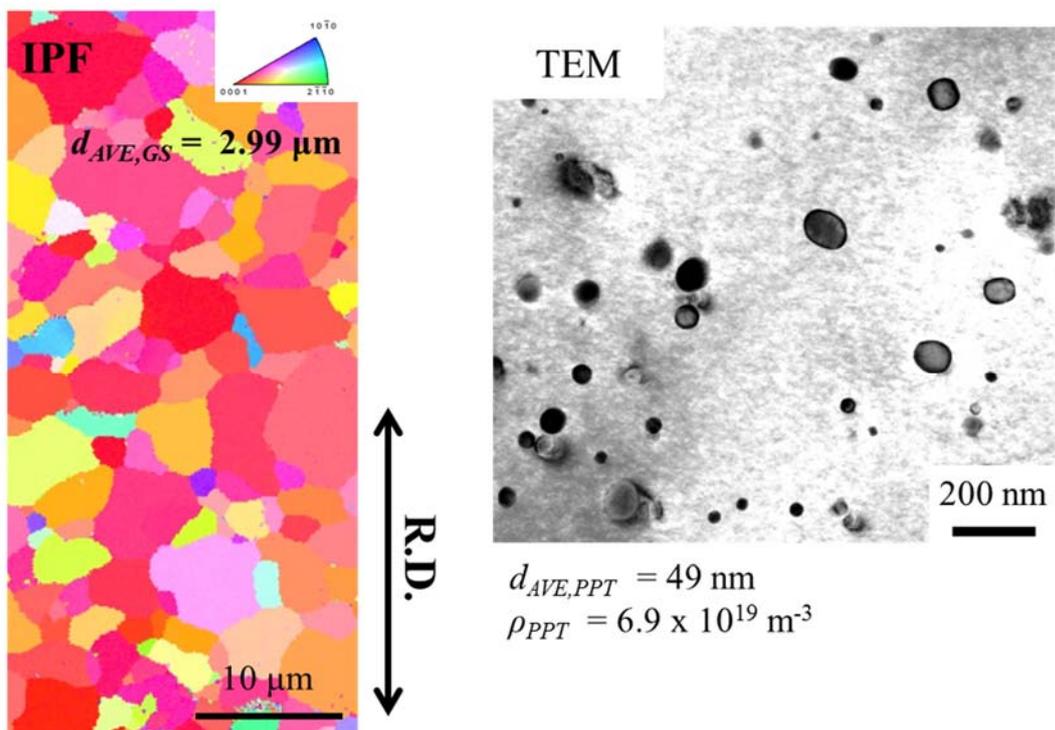


図 3.14.8 平板引張試験片の微細組織特徴

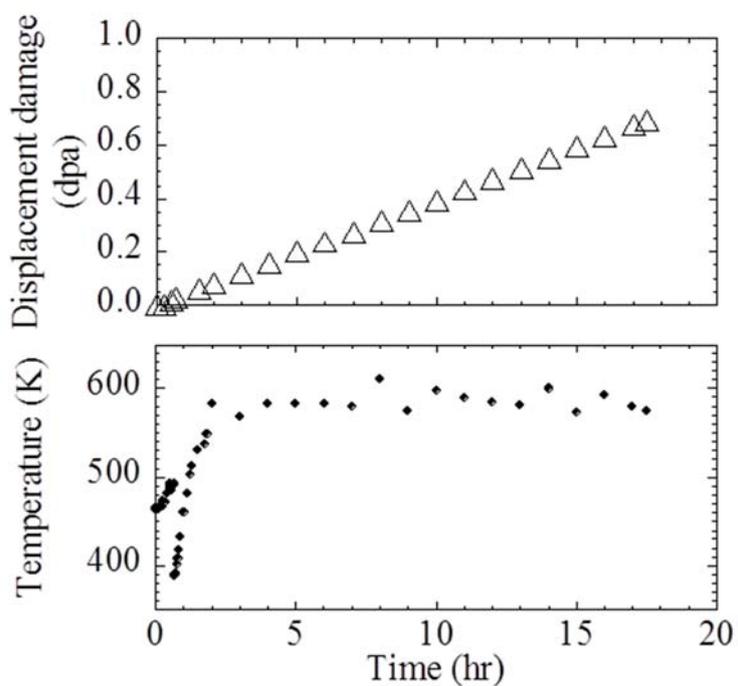


図 3.14.9 平板引張試験片への照射試験中の照射量の推移と温度履歴

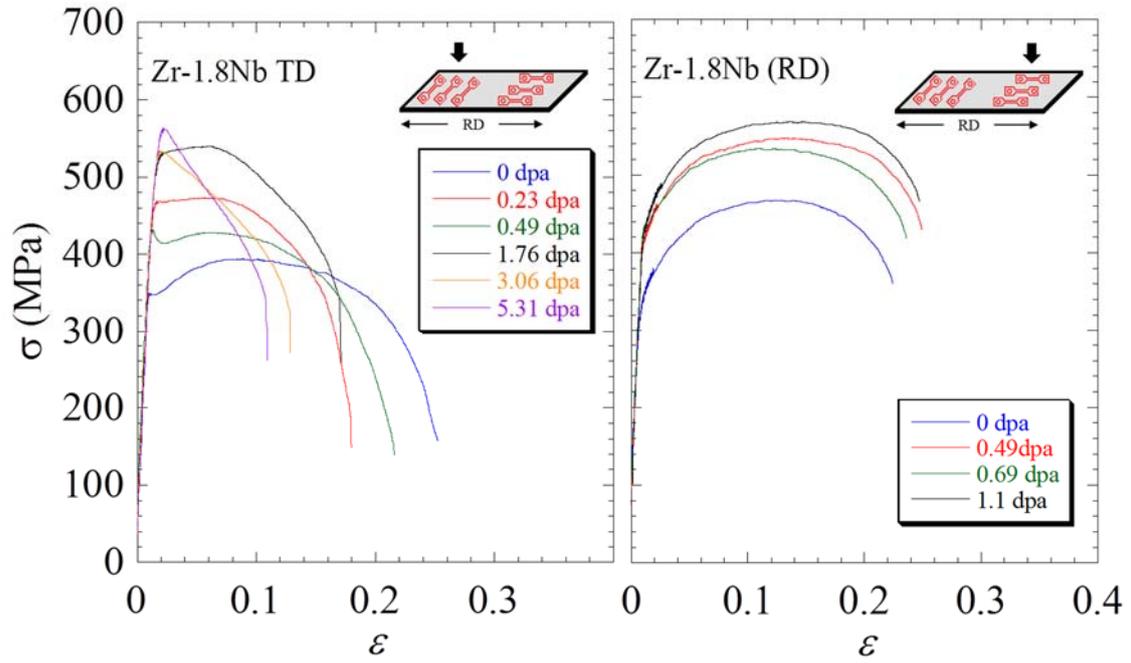


図 3.14.10 照射した TD および RD 材の応力-ひずみ曲線

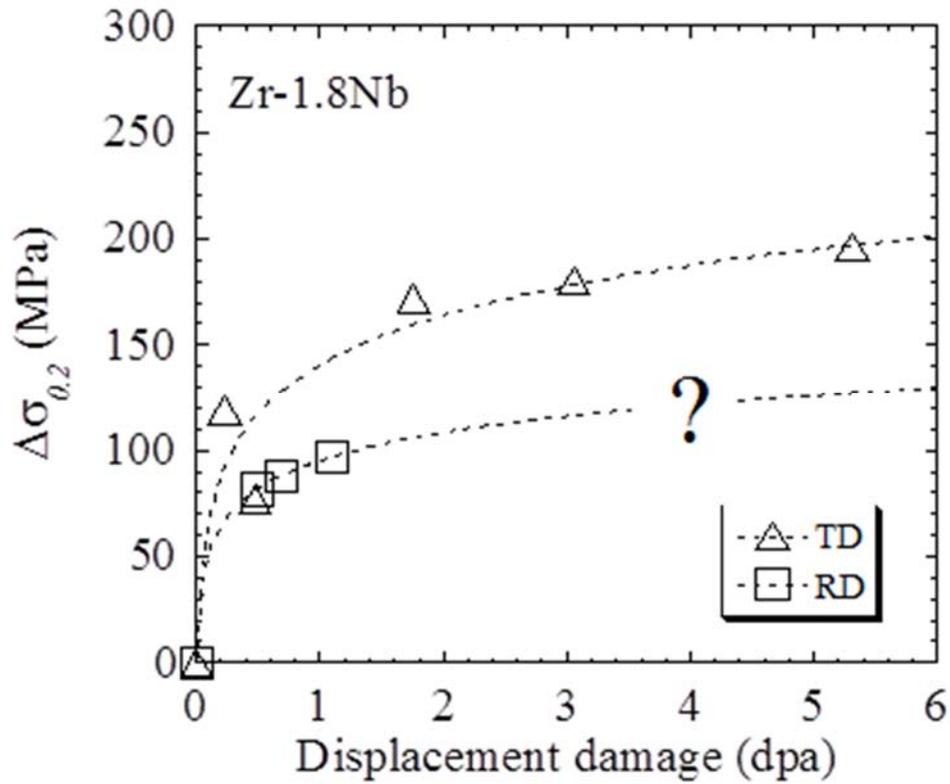


図 3.14.11 0.2%耐力の照射量依存性

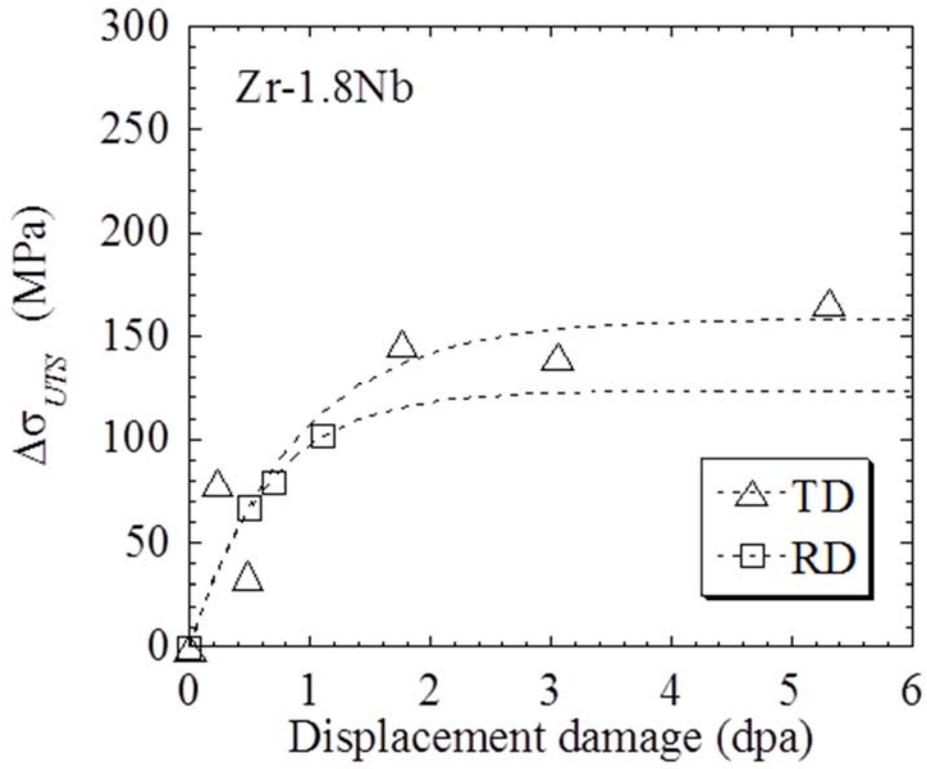


図 3.14.15 最大引張応力の照射量依存性

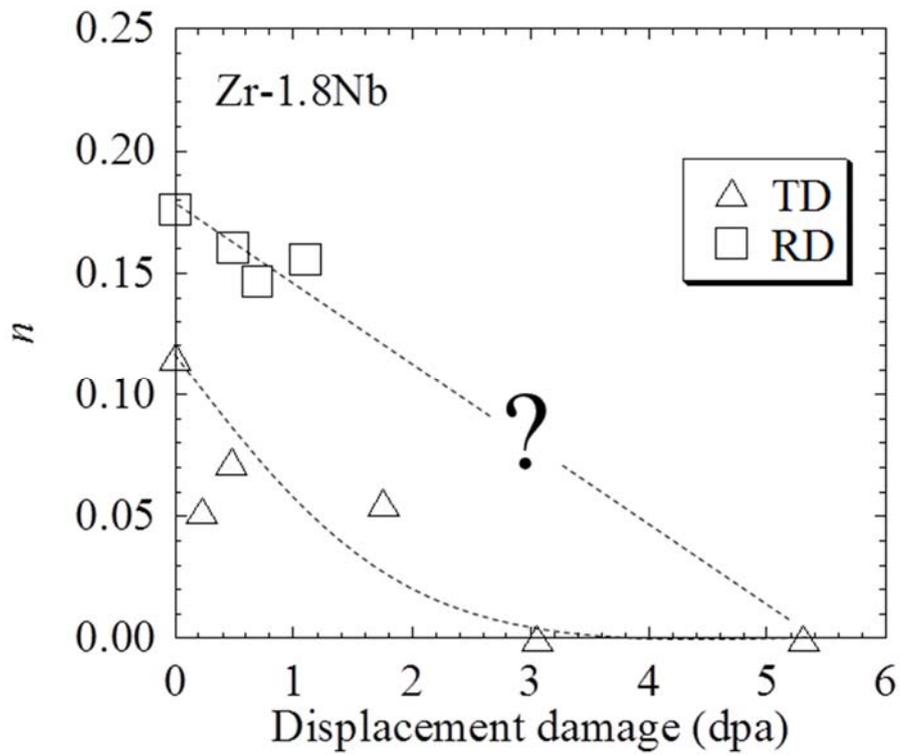


図 3.14.16 加工硬化指数の応力依存性

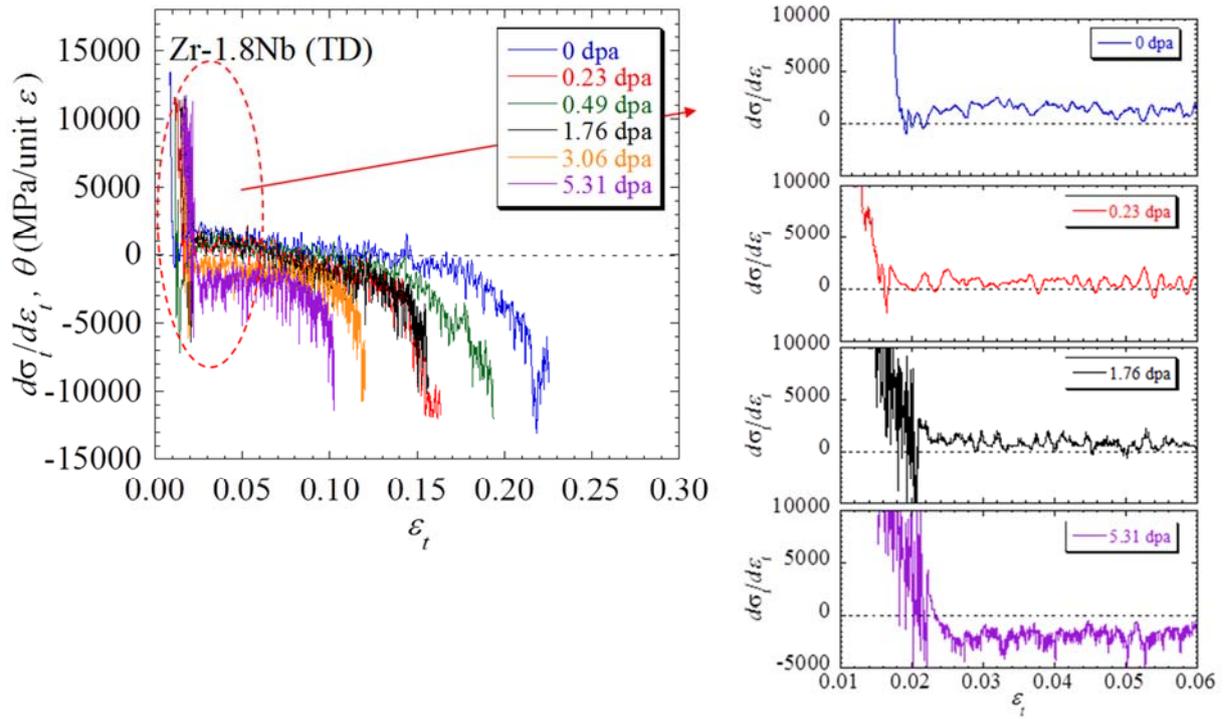


図 3.14.17 加工硬化率の照射量依存性

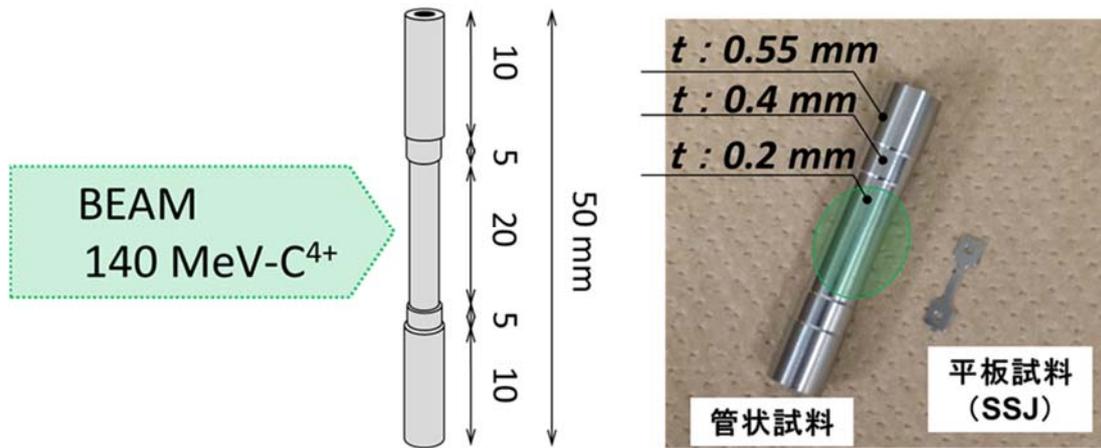


図 3.14.18 平成 26 年度に実施した照射材の形状ならびに外観写真

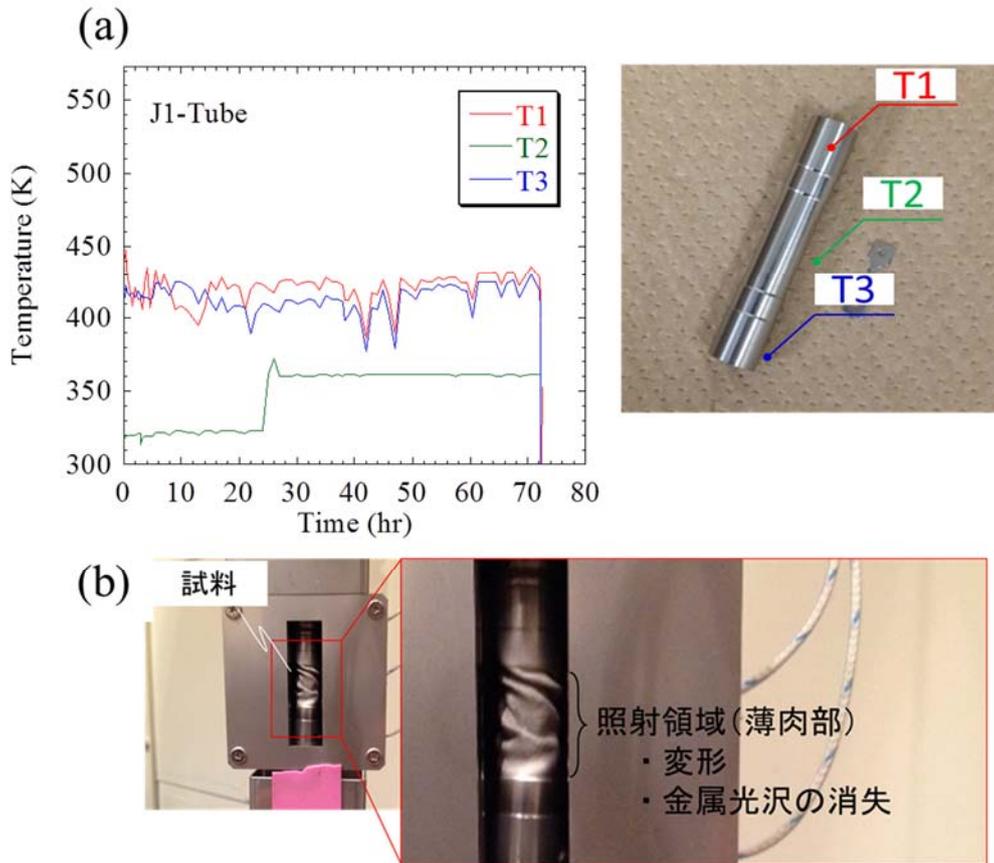


図 3.14.19 平成 26 年度に実施した照射試験の(a)温度履歴と、(b)照射試験後の外観写真

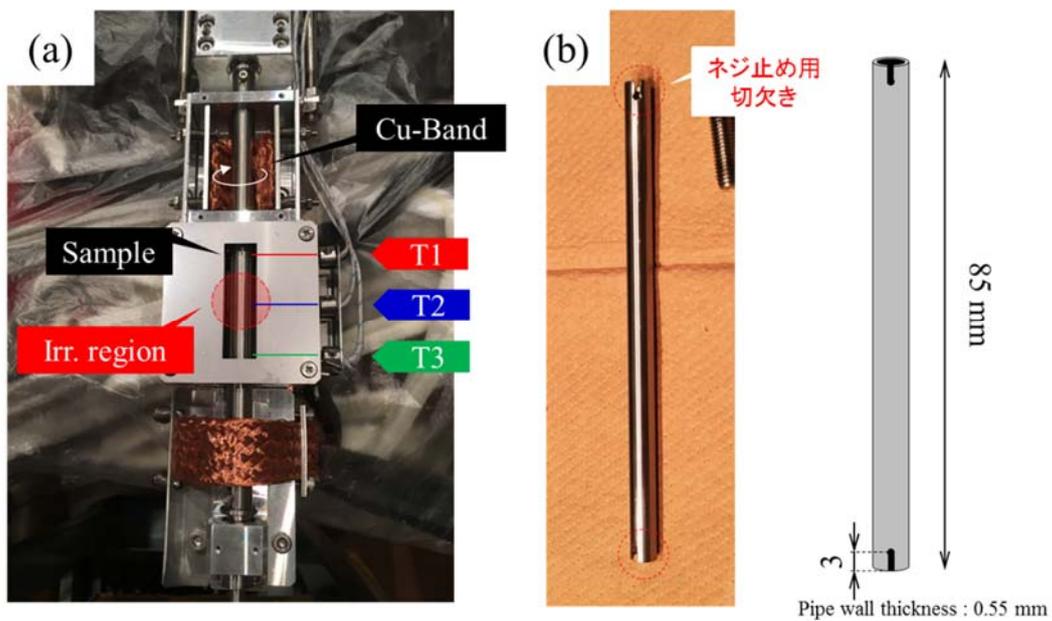


図 3.14.20 平成 27 年度に実施した(a)改良型の照射ステージの外観写真と、(b)試料写真およびその形状。

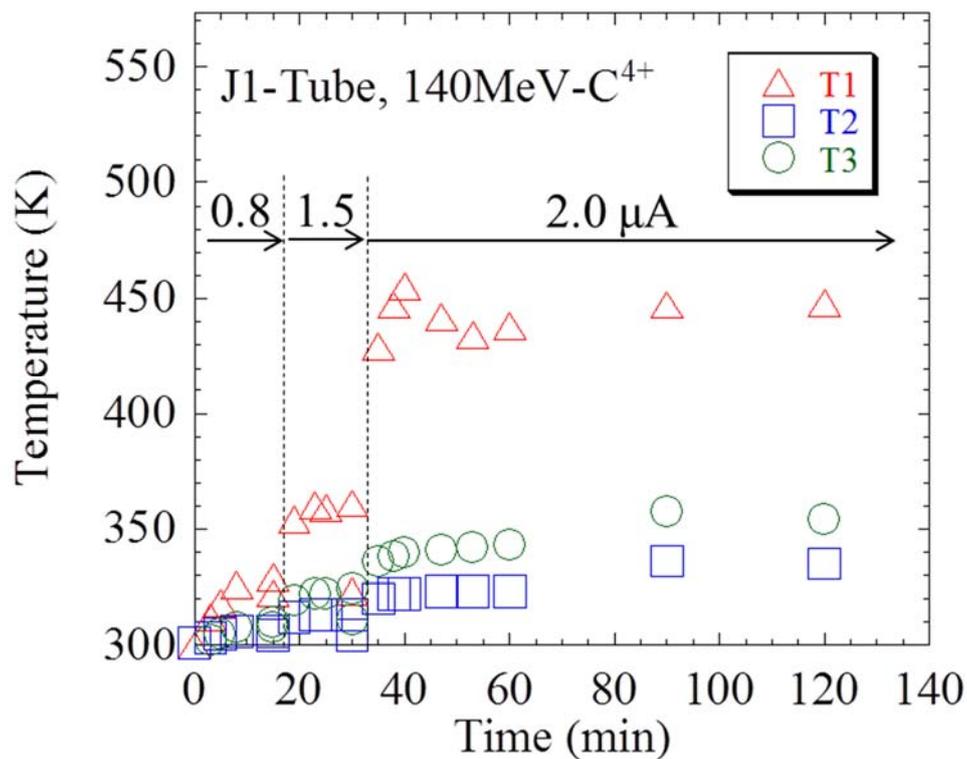


図 3.14.21 平成 27 年度に実施した照射試験の温度履歴

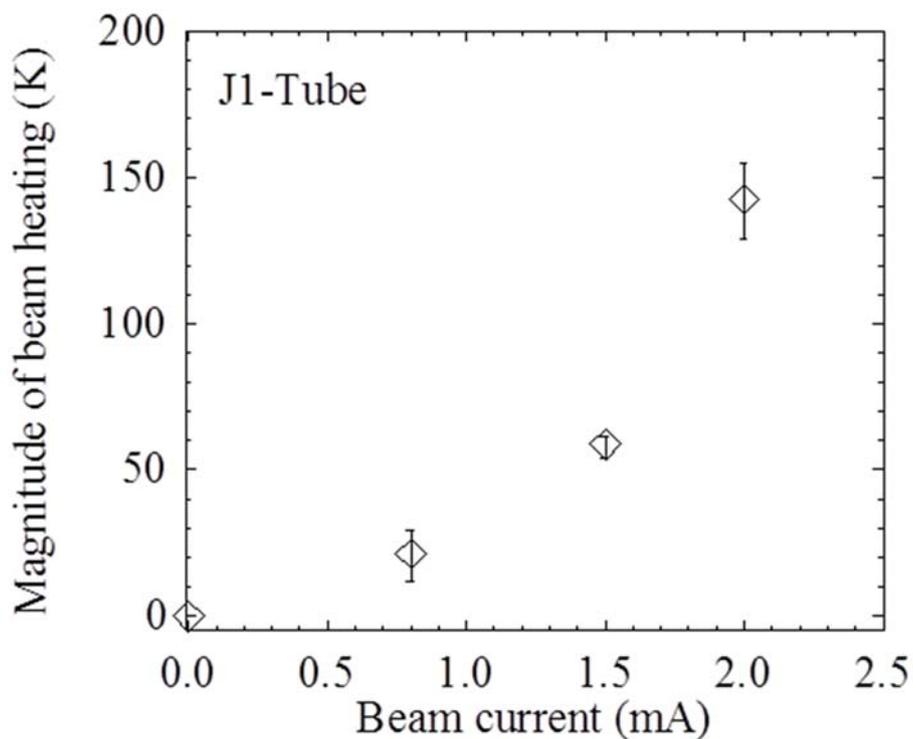


図 3.14.22 平成 27 年度に実施した照射試験におけるビームヒーティングのビーム電流量依存性



図 3.14.23 平成 27 年度に実施した照射試験における照射前後の試験片形状

3.15 中エネルギーイオン照射試験

3.15.1 緒言

本項では国立大学法人東北大学が受託した文部科学省受託原子力システム研究開発事業「原子炉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」(以後、プロジェクト)のうち東京大学が再委託を受けて担当した「中エネルギーイオン照射試験」の成果を記載する。

プロジェクト全体において、軽水炉および高速増殖炉の燃料被覆管を対象として、(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する。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、劣化のミクロ機構を明らかにする。そしてこれらを総合して、(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。本項は、(1)照射脆化などの炉内劣化を模擬した環境劣化試験の一つであり、得られた試料は主に(3)微細組織観察/分析および組織形成観察試験に供される。

中性子照射による材料の様々な変化を把握するためには中性子照射を用いて、照射条件を実機相当の環境を中心に幅広く変化させて実験を行うことが望ましいが、中性子照射材では照射施設や照射条件に限られることに加え、放射化した試料を用いた試験を数多く実施することは困難である。したがって、本プロジェクトでは照射量や照射温度が高精度かつ容易に変更でき、短期間に照射が完了して冷却期間なしに照射後試験まで実施可能なイオン照射により、中性子照射の模擬実験を行う。プロジェクト全体としては、サイクロトロン加速器を用いた $\sim 250\text{MeV}$ の高エネルギーイオン照射試験も実施し、被照射試料に対する機械試験を系統的に実施するが、この試験では数 dpa を超えるような高い損傷量に到達することが本質的に困難である。そこで、数 MeV 程度の重イオンを照射して、試料表面近傍に対して高い損傷量までのはじき出し損傷を効率的に導入することが、中エネルギーイオン放射試験の目的である。この試験では、中性子照射同様カスケード損傷を導入でき、損傷速度も大きく短時間に高照射量を達成できるという長所がある一方、損傷領域が浅い、また損傷率勾配が比較的大きいという短所もあるので、注意が必要である。従って、中エネルギーイオン照射された試料は主に微細組織観察に供され、機構論的な観点から高照射量における燃料被覆管候補材の耐照射性を検討するために使用される。

中エネルギーイオン照射材の TEM 観察試験等への供給は、平成 25 年度に高温照射用の照射ステージコントローラを更新してから、継続的に行ってきた。平成 27 年度は、サイクロトロン照射されたジルコニウム系新型燃料被覆管模擬材の引張試験において、転位チャネリングと呼ばれる変形挙動に照射量依存性が発現するとの報告を踏まえ、高照射量における転位チャネリングの発生を一つの指標として中エネルギー照射試験と機械的特性を結びつけるための照射実験を実施した。転位チャネリングとは、照射欠陥などの障害物が転位との相互作用によって消失することにより転位運動が局在化することであり[3.15.1]、マクロには降伏後の延性低下を引き起こす現象である。[3.15.2] 中エネルギーイオン照射を用いて、0.4 dpa および 4 dpa 相当のはじき出し損傷を導入し、転位チャネリングの様子を観察可能な試料を作成した。さらに、これらの試料に対して引張試験機にて約 2% の塑性ひずみを加え、変形挙動を光学顕微鏡、原子間力顕微鏡、走査電子顕微鏡で観察した。

また、プロジェクトでは、高照射の影響を機構論的に評価するために、上記の中エネルギーイ

オン加速器と透過電子顕微鏡を連結させることにより、その場観察装置の開発に取り組んでいる。平成26年度までに、その場観察用ビームラインおよびイオンビーム導入可能な電子顕微鏡試料室を開発し、動画撮影のための電荷結合措置(CCD: Charge-Coupled Device)イメージセンサを用いたカメラ装置を導入して、その場観察システムを構築した。平成27年度は、装置の改良と、ジルコニウム系の新型核燃料被覆管模擬材の照射その場観察を実施した。耐食性に強い影響を与えると考えられているニオブ析出相に着目し、照射下安定性を評価した。

3.15.2 使用した加速器の構成

照射試験には、東京大学大学院工学系研究科原子力専攻(東海村キャンパス:茨城県那珂郡東海村白方白根2-22)の重照射損傷研究設備(HIT: High Fluence Irradiation Facility, the University of Tokyo) [3.15.3] に設置された High Voltage Engineering Europe (以後、HVEE社)製 1.7MV タンデトロンを使用した。この加速器は、もともとは東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻原子力別館(浅野キャンパス)においてRAPID (Rutherford Backscattering Spectroscopic Analyzer with Particle Induced X-ray Emission and Ion Implantation Devices) [3.15.4]として使用されていたものであるが、HITの1MV タンデトロンが東北地方太平洋沖地震で被災して使用不能になったため、後継機として移設したものである[3.15.5]。この加速器はタンデム型コッククロフト・ワルトン加速器で、旧名称が示す通りラザフォード後方散乱法(RBS: Rutherford Backscattering Spectroscopy)や粒子励起X線分光(PIXE: Particle Induced X-ray Emission)などのイオンビーム分析を主目的として1994年に設置されたものである。昇圧方式はシエンケル型の倍電圧昇圧方式を採用している。使用した加速器の外観を図3.15.1に、主な運転性能を表3.15.1にそれぞれ示す。

負イオン源は固体用のセシウムスパッター型と気体用のデュオプラズマトロン型のデュアルイオン源であり、水素、ヘリウムなどの軽元素から重金属イオンまで幅広いイオン種を選択が可能である。今回は、高い損傷量を得ることを目的としたことから、酸化鉄ターゲットを使用して Fe^0 イオンを引き出し、Striper Gasにより荷電変換して Fe^{2+} イオンを照射する事にした。

この加速器は、三つのビームラインが接続されている。右10°には従来の重照射研究設備で使用していた二重イオン照射用ビームライン(BL5と呼称)が接続されている。主にBL5を用いてTEM観察等へ供給する中エネルギーイオン照射材の作成を行った。左10°はイオン注入ビームライン(BL6と呼称)である。平成25年度にはBL6で照射試験を実施したが、ビームプロファイルを正確に得られないことから、平成26年度以降はBL5の使用に切り替えた。左30°はRBS用ビームライン(BL7と呼称)であったが、平成25年度までにRBS測定用チャンバの下流側にイオン照射その場観察用ビームラインを接続している。

表 3.15.1 1.7MV タンデトロンの運転性能

<u>負イオン源</u> ・セシウムスパッター型 引出電圧 ・デュオプラズマトロン型 引出電圧	20kV 20kV
<u>加速器</u> 最大加速電圧 安定度 リップル	0.1-1.7MV < 80 Vrms < 30 Vrms
<u>偏向電磁石能力</u> 左右 10° 左 30°	< 285amu·MeV < 32amu·MeV



図 3.15.1 東大・HITの1.7MV タンデトロン

3.15.3 中エネルギーイオン照射試験

(1) 照射ステージの構成

中エネルギーイオン照射に使用したビームライン(BL5)は磁気レンズおよびビームステアラ、ならびにスキャナを有しており、ビーム形状の制御性が良好である。

ビームライン終端には、~800度まで加熱可能な照射ステージを有している。このステージの試料駆動装置の構成を図2に示す。駆動装置には36mm間隔で3つのターゲットホルダが配置されている。各試料ステージには最大20個の3TEMディスクをマウントすることができる。駆動装置はサーボモータで制御しており、必要に応じて遠隔制御し、所定のステージあるいはファラデーカップをビームラインの中心に移動させる。

試料の温度制御には電子線加熱方式を採用している。電子線加熱方式の概要を図3.15.3に示す。試料は、25の試料ホルダ上に固定される。試料ホルダは試料ステージの絶縁碍子の上に固定することになっており、試料ホルダの背面にはタングステンフィラメントがある。約450Vに加速した電子線をホルダ背面に照射することにより、試料をビーム加熱で昇温する。温度は、試料ホルダ内部に挿入した二つの熱電対で常時モニタリングする。温度が設定値を越えたときは、グリッドに電圧を印加することにより電子線のビーム量を低減することにより、加熱を和らげる。この方法の利点としては、電熱線等を用いた場合と比較して試料ステージを小さくできることから昇温や降温に要する時間が短いこと、試料を両側から加熱することにより照射方向の温度勾配が小さくなることからイオンビームによる試料表面温度上昇の影響を低減できること、が挙げられる。試料表面に熱電対を溶着して既設の熱電対と比較した所、照射直後には5程度の温度差がみられるものの、約1分でほぼ同じ値に落ち着くことを確認している。また、二つの既設熱電対の間の温度差も常時5以下である。従って、試料ステージ上の温度は概ね均一である。平成27年度に試料ステージの絶縁碍子およびフィラメントを交換することにより、より安定して長期間の過熱が実施できるようにした。図3.15.4に交換した絶縁碍子の外観を示す。

ビームプロファイルは20個のファラデーカップを使って定期的に測定する。ファラデーカップ用のステージには、アパーチャ径が2のファラデーカップが縦方向に4mm間隔で4つ、横方向に4mm間隔で5つ、合計20個の配置されている。それぞれのファラデーカップで読みとった電流はアンプで増幅してデジタル変換されたのち制御用コンピュータへと送られる。

BL5は、磁気レンズおよびステアラを有しており、ビーム径を4以下に集束する事が可能である。また、200~2000Vの三角波を出力するスキャナを有しており、見かけのビーム径を均等に広げることが可能である。スキャン速度はX方向が10kHz、Y方向が1kHzである。これにより、2.8 MeV Fe²⁺イオンの場合、約25mm程度の広さにスキャンすることが可能である。

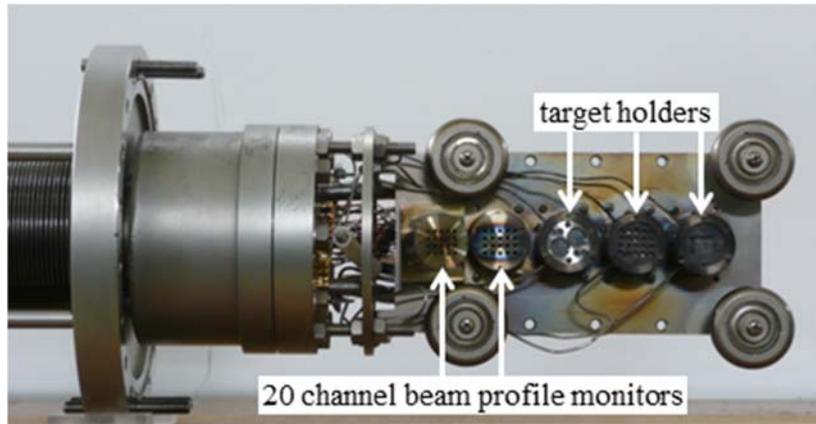


図 3.15.2 BL5用照射ステージ。

右から順にターゲットホルダ1、2、3、BL5用のビームプロファイルモニタ。
左端は二重照射実施時に使用するBL4用のビームプロファイルモニタ。

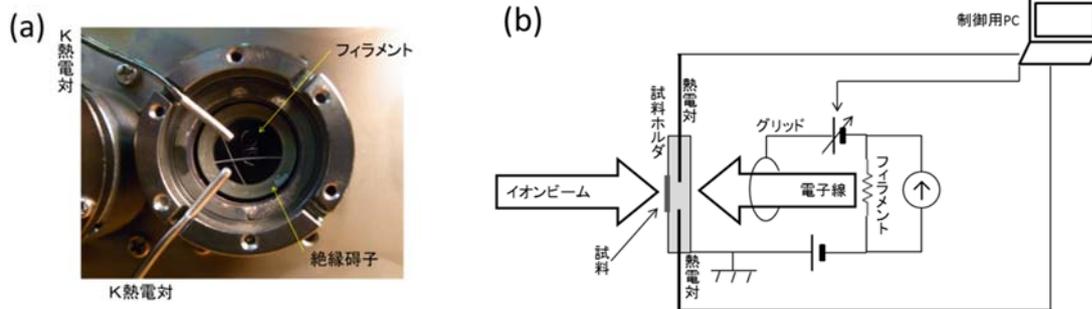


図 3.15.3 BL5用加熱システム

(a) フィラメントと熱電対; (b) 温度制御システムの概要



図 3.15.4 電子線加熱用の絶縁碍子の外観

(2) 照射材の作成

本項の中エネルギーイオン照射試験において、照射イオンは原則として 2.8 MeV Fe²⁺ を使用してきた。これまでに B L 5 を使用して作成した試料の一覧を (TEM 観察等に失敗したものも含めて) 表 3.15.2 に示す。中エネルギーイオン照射試験において、照射温度は 300 ~ 400 とした。試料形状は 平成 26 年度までは、3 の TEM ディスク状のものを使用した。平成 27 年度は局所変形挙動に着目した観察を実施することから、SSJ3 ミニチュアサイズ引張試験片を使用した。

試料に対するイオン束は $2.4 \times 10^{10} \sim 2.3 \times 10^{11}$ ions/cm²s であり、一日の照射で 10^{15} ions/cm² 程度のフルエンスを得ることができる。このイオンによるはじき出しは鉄系合金において試料表面から深さ 0.8 μm の位置にピークを持ち、この位置では 10^{15} ions/cm² のフルエンスに対して約 1.1 dpa のはじき出し損傷に相当する。ジルコニウム系合金の場合、はじき出しが最大となるのは試料表面から深さ 1.1 μm の位置であり、この位置では 10^{15} ions/cm² のフルエンスによって約 0.8 dpa のはじき出し損傷が得られる。はじき出し損傷量の評価には SRIM コード [3.15.6] を使用し、はじき出しの実効閾値エネルギーを 40 eV [3.15.7] と仮定して NRT モデル [3.15.8] に基づくモンテカルロシミュレーション [3.15.9] を行った。その結果を図 3.15.5 に示す。

照射期間中の試料温度はほぼ一定であり、変動幅は ±5 より十分小さい。図 3.15.6 に平成 27 年度に取得した温度履歴の一例を示している。

表 3.15.2 B L 5 で中エネルギーイオン照射した試料一覧

年度	形状	種類	温度 ()	平均イオン束 (ions/cm ² s)	フルエンス (ions/cm ²)	ピーク位置の損傷量 (dpa)
27 年度	3	ODS	400	5.4×10^{10}	6.8×10^{14}	0.68
				2.1×10^{11}	1.1×10^{15}	4.4
			300	2.4×10^{10}	9.3×10^{14}	0.75
		Fe-Ta-C	400	5.4×10^{10}	6.8×10^{14}	0.68
				2.1×10^{11}	1.1×10^{15}	4.4
			300	2.4×10^{10}	9.3×10^{14}	0.75
		Zr-1.8Nb	400	2.3×10^{11}	6.8×10^{15}	5.3
				2.8×10^{10}	1.1×10^{15}	0.86
			300	7.7×10^{10}	9.3×10^{14}	0.73
Zr-Nb-Mo	300	7.7×10^{10}	9.3×10^{14}	0.73		
28 年度	SSJ3	Zr-1.8Nb	300	1.59×10^{11}	3.03×10^{15}	4.0
				1.49×10^{10}	2.84×10^{14}	0.37

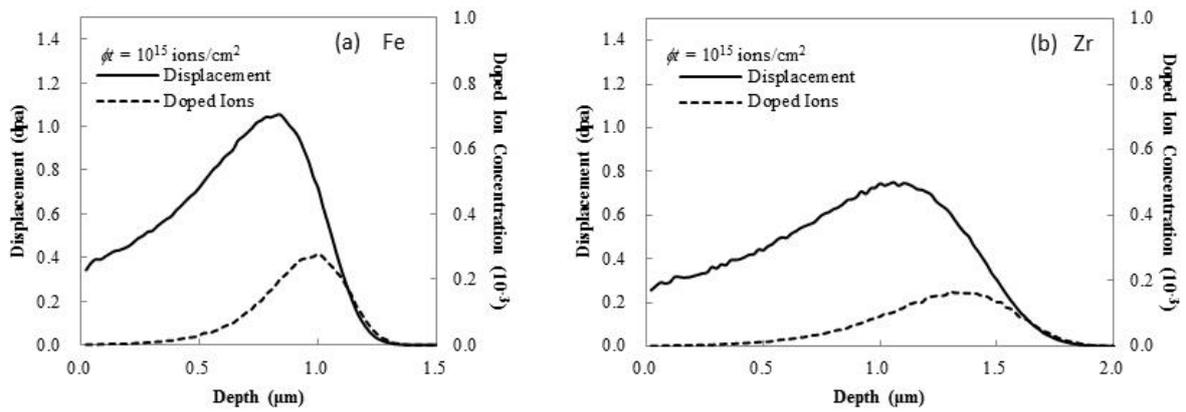


図 3.15.5 鉄イオン (2.8MeV) によるはじき出し損傷量の評価。
 (a) 純鉄 (b) 純ジルコニウム

計算には SRIM 2008 コード [3.15.6] を使用した。

はじき出しの実効閾値エネルギーは Fe, Zr のいずれも 40 eV と仮定して計算した [3.15.7]。

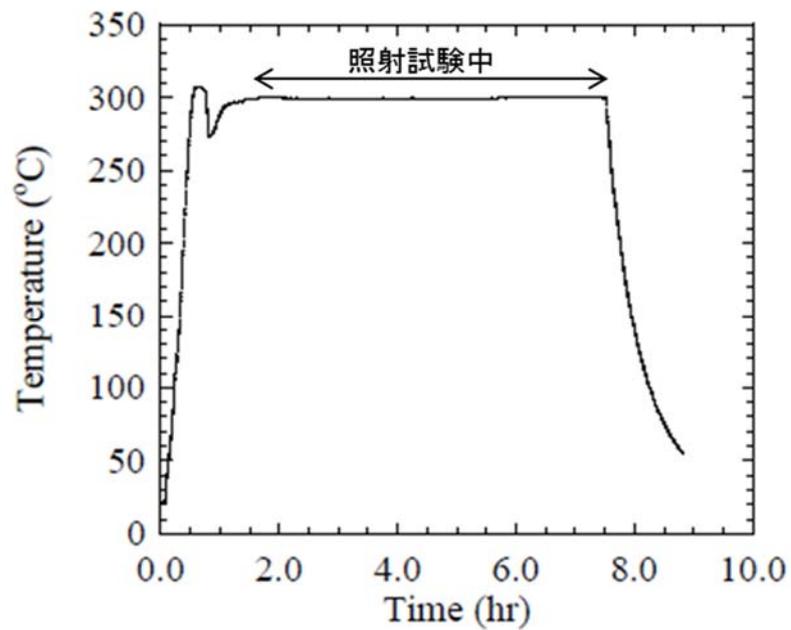


図 3.15.6 照射試験における試料温度履歴 (SSJ 照射時)

3.15.4 中エネルギーイオン照射材の局所変形挙動の評価

(1) 試料の作成

使用した試料は、1.8 at. % のニオブを添加したジルコニウム合金製新型被覆管の模擬材であり高エネルギーイオン照射試験と同じ方法で作成した。原料として J1 と呼ばれる新型燃料被覆管材の供給を受けた。これを軸方向に二つに切断して、軸方向に 50 % 冷間圧延して薄い板材としてから、853 K で 24 時間焼鈍した。この板材から、引張方向が軸方向と等しくなるように SSJ3 ミニチュア引張試験片（全長 $16 \times 4 \times 0.38$ mm, ゲージ部 $5 \times 1.2 \times 0.38$ mm）を打ち抜いた。試料表面を #800 の耐水研磨紙で機械研磨したのち、照射後の表面観察を容易にするためゲージ部のおおよそ 3 の領域に対してテヌポールを使用して短時間の電解研磨を施し、比較的平滑な表面を得た。

作成した SSJ3 試験片 2 本を、前項で説明した東京大学 H I T の B L 5 を使用して 2.8 MeV Fe^{2+} イオン照射に供した。照射温度はいずれも 573 K とし、高照射量のものと同照射量のもの、それぞれ 1 本ずつ作成した。高照射量の試料に対しては、ゲージ部の電解研磨された領域に対して平均イオンフラックス 1.59×10^{11} ions/cm²s で照射して、 3.03×10^{15} ions/cm² のフルエンスを与えた。この時のはじき出し損傷量は、損傷量が最大となる表面から 1.1 μm の位置で 4 dpa である。低照射量の試料に対しては、平均イオンフラックス 1.49×10^{10} ions/cm²s で照射して、 2.84×10^{14} ions/cm² のフルエンスを与えた。この時ののはじき出し損傷量は、損傷量が最大となる表面から 1.1 μm の位置で 0.4 dpa である。

被照射試料は、放射化がないことを確認したのち管理区域から持ち出して、東北大学が所有する万能試験機 AG-Xplus（島津製作所）にて引張試験に供した。引張速度はひずみ速度 10^{-3} s⁻¹ で制御し、公称ひずみ 2 % で除荷した。試験結果を（参考のため未照射材の破断までの応力 ひずみ線図と共に）図 3.15.7 に示す。マクロな引張特性は照射によって変化していないが、これは被照射領域が表層に限定されており、マクロには未照射の引張特性が観察されているからである。表面近傍の変形挙動に対する照射の影響を観察するために、表面観察および電子線後方散乱回折法（EBSD: Electron Back Scattering Diffraction pattern）による観察を実施した。

(2) 表面観察

2 % 公称ひずみを加えた試料表面には、4 dpa まで照射した試料にのみ有意な表面ステップが観察された。図 3.15.8 は光学顕微鏡で観察した試料表面の様子を示している。結晶方位の違いがコントラストとして現れている。また黒い輪状のコントラストは、電解研磨の際に結晶粒が剥離した等の理由で形成されたくぼみの端部を意味する。観察領域の長手方向がおおよそ引張方向に対応している。興味深いことに、4 dpa 照射材では比較的サイズの大きな結晶粒において粒あたり 2~5 本程度の線状のコントラストが結晶粒を横切るように現れている。線は粒毎に並行であり、引張方向に対しておおよそ 45° 傾いている。図 3.15.9 に原子間力顕微鏡による表面観察の結果を示している。原子間力顕微鏡によって得られるコントラストは直接試料の凹凸に対応するが、やはり 4 dpa 照射材において線状のコントラストが発現している。従って、引張試験後に現れる線状のコントラストはすべり変形が局所化したことによる表面ステップであると推定できる。このコントラストは結晶粒毎に数本現れており、光学顕微鏡で見られた線状のコントラストが表面ス

トップであることを裏付けている。表面の段差の大きさを原子間力顕微鏡で測定した結果が図 3.15.10 である。線状のコントラストの幅は、 $0.1 \sim 0.27 \mu\text{m}$ にわたっており、この間に約 $6 \sim 32 \text{ nm}$ の段差が生じていると評価された。今回試験した合金の平均粒径は約 $3 \mu\text{m}$ であり、結晶粒の大半がイオン照射の影響に晒されている。従って、表面ステップは試料表層の結晶粒の変形挙動の指標になると考えられる。この手票を使えば、試料表層のみに照射欠陥を導入する中エネルギー照射試験においても、機械的特性変化を評価できると考えられる。

高エネルギーイオン照射されたジルコニウム合金の引張試験では 1.7 dpa 照射材までは加工硬化に相当する公称ひずみと公称応力の正の相関が見られる領域が存在するが、 3 dpa を超える照射を受けた試料では、局所変形に伴う公称応力の低下が降伏直後から見られるようになる。これは照射によって転位チャネリングが生じることを示している。中エネルギーイオン照射材の場合、照射後に 2% の公称ひずみを与えることにより、 0.4 dpa では光学顕微鏡で認識可能な表面段差が生じないのに対して、 4 dpa 照射材で表面段差が生じ、変形が局所化することが示された。このことは、イオン照射による照射欠陥の導入がジルコニウム合金の変形挙動に与える影響を評価する際に、損傷量 (dpa) による整理が第一段階としては十分合理的であることを示唆している。

(3) 走査電子顕微鏡観察

原子間力顕微鏡より広い範囲で高分解能な表面観察を行うために走査電子顕微鏡による表面観察も実施した。観察は東京大学が本郷キャンパスに所有する JSM-7001F (日本電子) を使用し、二次電子像の観察と、3.10 項でも使用されていた EBSD を使用した。

表面観察の結果、 4 dpa 照射材に加え 0.4 dpa 照射材にも局所的に線状のコントラストが現れることがあることが明らかになった。また線状のコントラストの現れ方が異なることも示された。図 3.15.11 に典型的な例を示す。 0 dpa 照射材には線状のコントラストは殆ど見られない。 0.4 dpa 照射材では多くの結晶粒内に $\ll 1 \mu\text{m}$ の狭い間隔で多数の線状コントラストが見られるが、個々のコントラストは弱く、段差は非常に小さいと考えられる。一方、 4 dpa 照射材の線状のコントラストは、一部の結晶粒に発現しており、 $1 \mu\text{m}$ 程度の間隔で結晶粒につき数個見られる。

EBSD 分析をしたところ、未照射材と 0.4 dpa 照射材には有意な差異がみられた。結晶方位差 (GOS: Grain Orientation Spread) は一つの結晶粒内における方位の違いを表す指標であり、一つの結晶のひずみ量に対応している。図 3.15.12 に示すとおり、未照射材では GOS は試料全域で低く、おおよそ 1° 以下程度であるのに対し、 1 dpa 照射材ではやや高い GOS が試料全域で観察された。また、幾つかの結晶粒では 5° 近い値を示すものもあった。高い GOS を示した結晶粒表面を走査電子顕微鏡で観察したところ、表面ステップと考えられる線状のコントラストが、他の粒より短い間隔 ($0.1 \mu\text{m}$ 程度) で大量に生じている様子が見られた。 4 dpa 照射材にはコンタミが見られており、EBSD の Image Quality が低く、十分に信頼性のあるデータが得られなかった。試料表面のコンタミは試料調整の段階で形成されたと考えられる。ただし、比較的 Image Quality の高い結晶粒について GOS を評価すると、 0.4 dpa 照射材と同程度、あるいはやや高い値が得られた。これらの結果から、照射による転位チャネリングの形成は比較的 low 損傷量でも生じるが、 4 dpa までの照射を行うと、特定のチャネルを通過する転位の数が激増し、局所的な変形が進行すると考えられる。

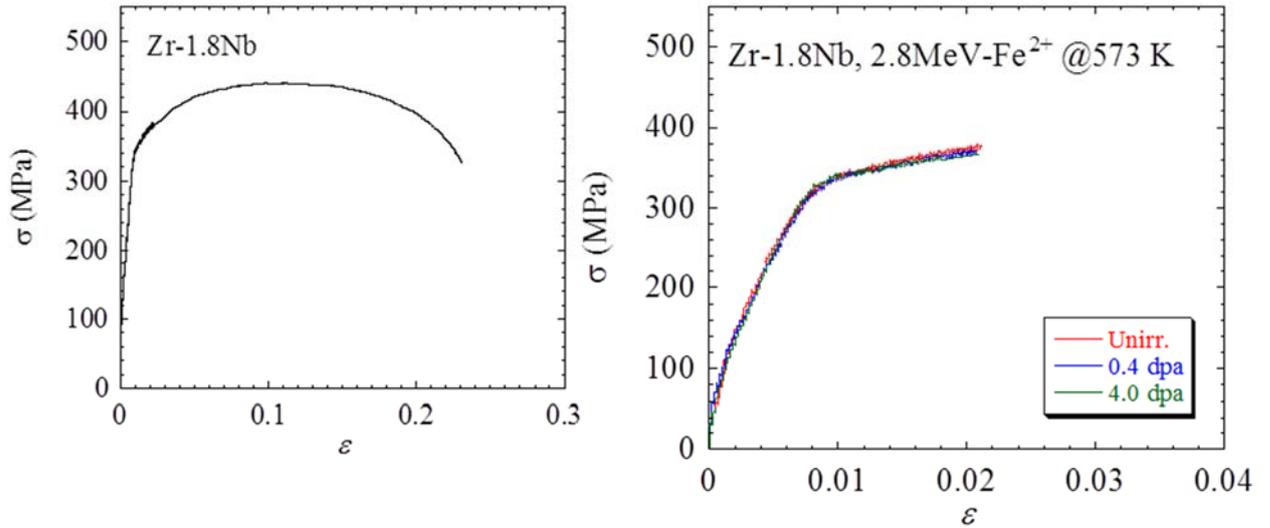


図 3.15.7 Zr-1.8Nb 合金(未照射材、中エネルギーイオン照射材)の引張特性

右：未照射材の破断までの引張特性

左：2.8 MeV Fe イオン照射材の公称ひずみ 2%までの引張特性

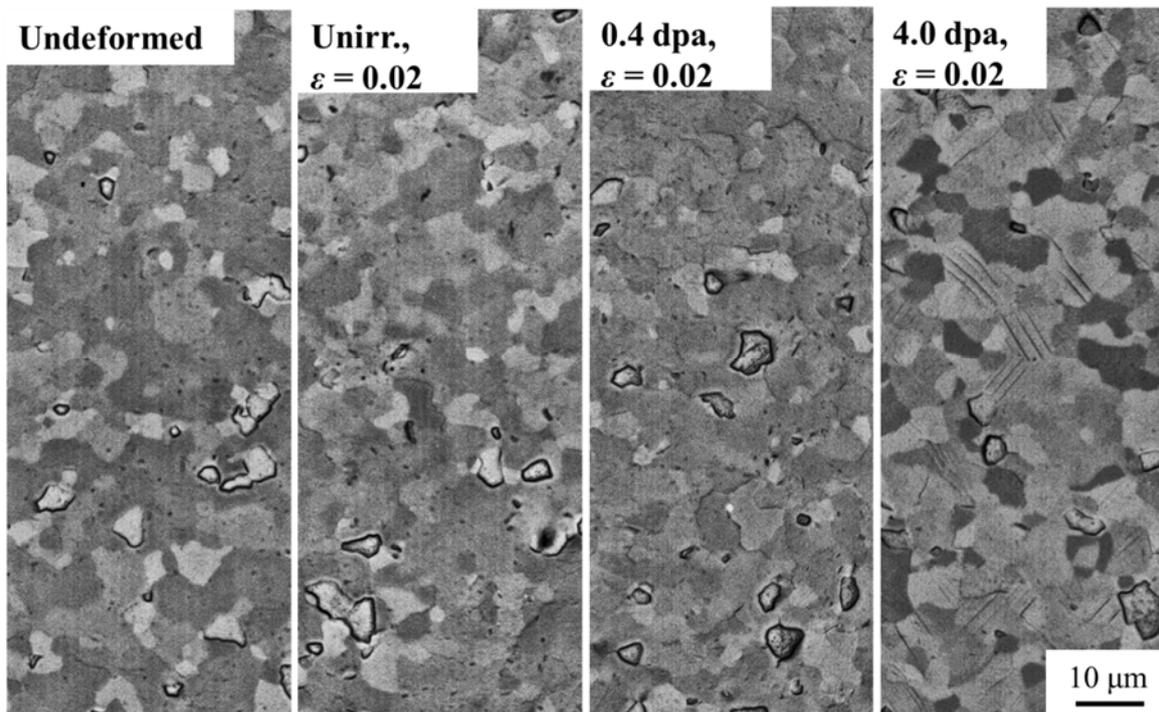


図 3.15.8 光学顕微鏡を用いた変形挙動の照射影響比較

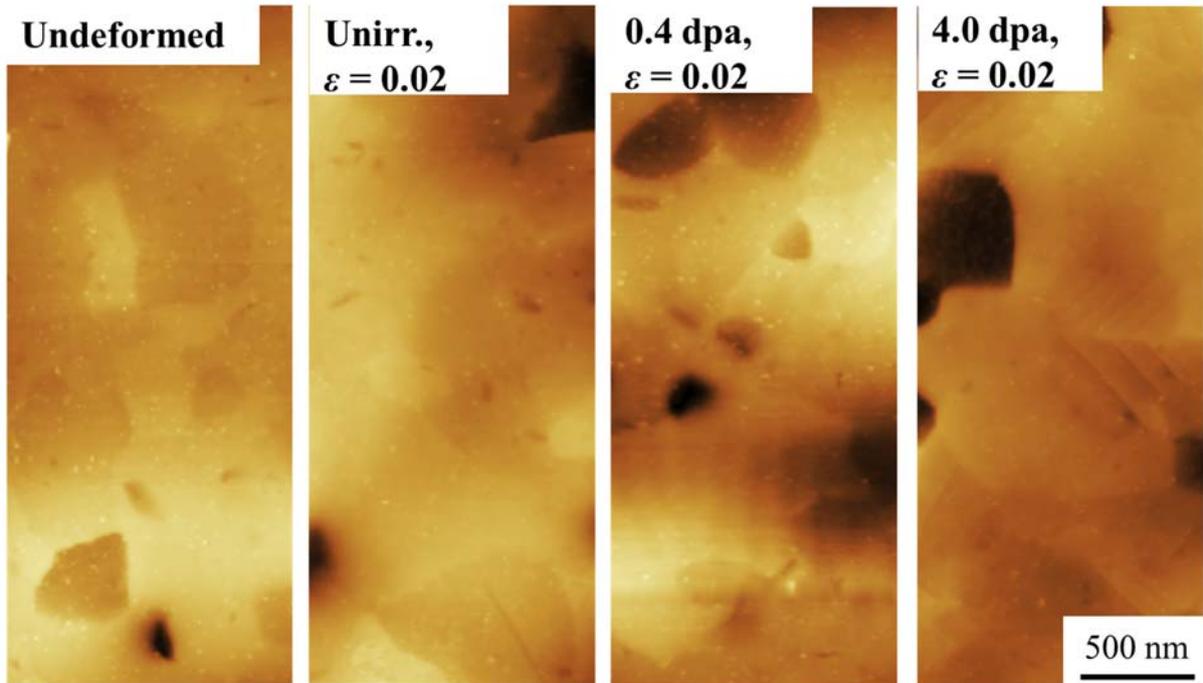


図 3.15.9 原子間力顕微鏡を用いた変形挙動の照射影響比較

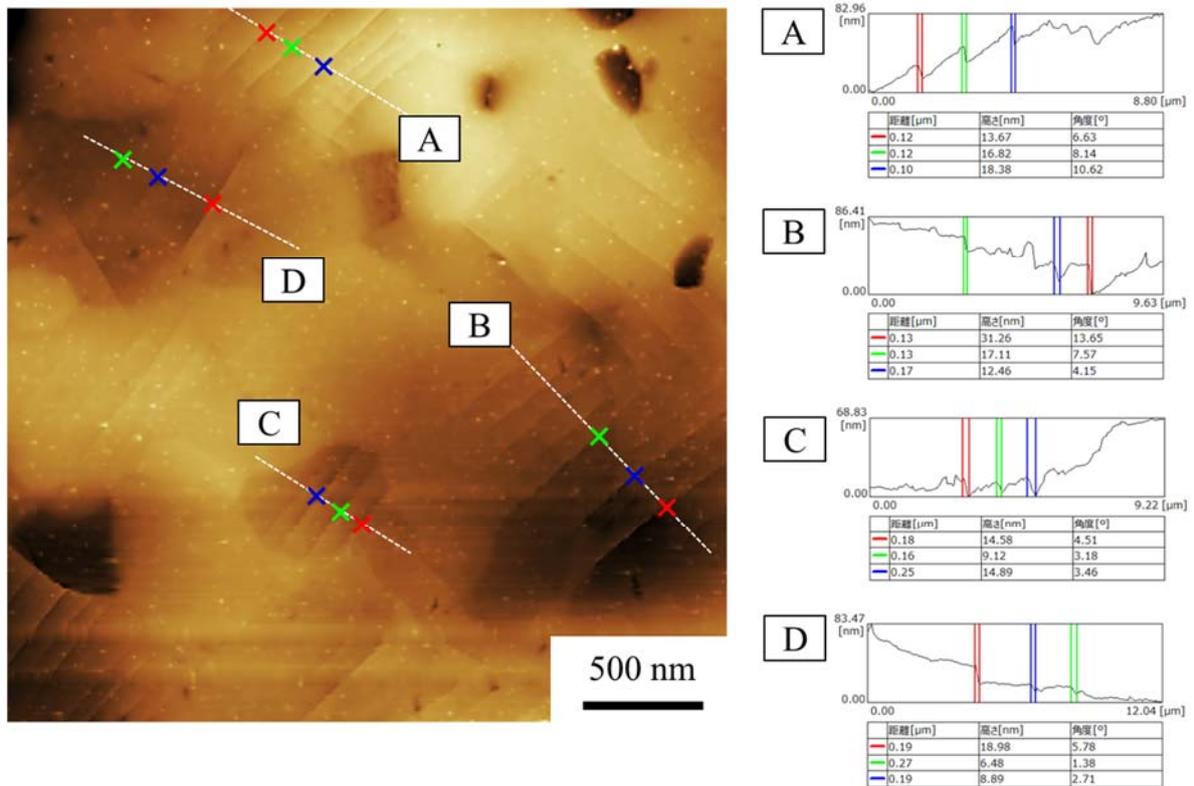


図 3.15.10 原子間力顕微鏡を用いた 4 dpa 照射材の表面段差測定

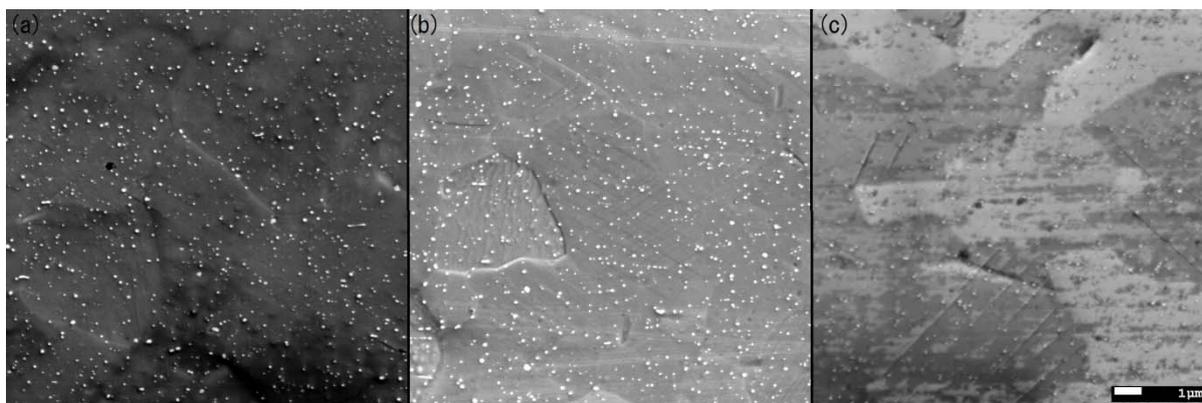


図 3.15.11 試料表面の走査電子顕微鏡写真

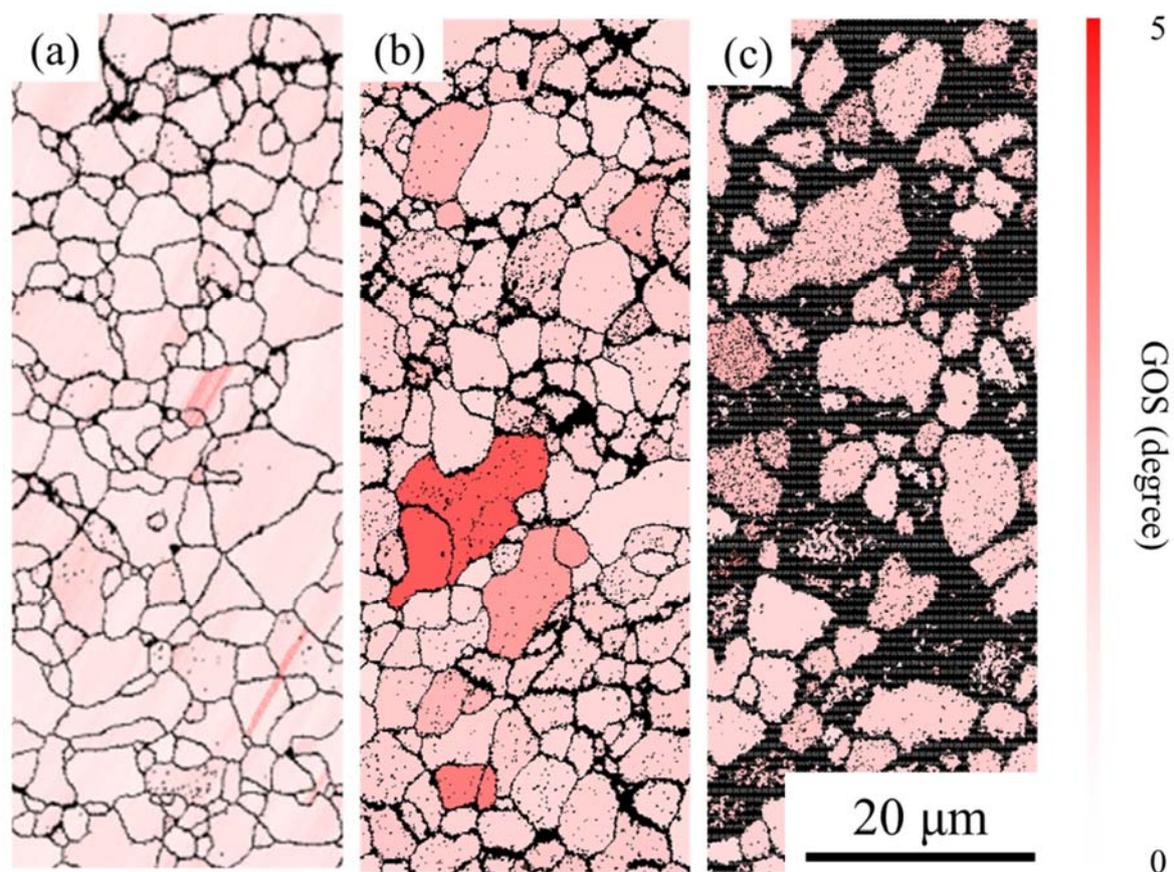


図 3.15.12 結晶方位差(GOS)の比較

(a) : 非照射材、(b) : 0.4 dpa 材、(c) : 4.0 dpa 材

3.15.5 イオン加速器連結顕微鏡法の開発

(1) 開発コンセプト

イオン加速器連結顕微鏡法とは、イオン加速器によって発生させたイオンビームを透過電子顕微鏡の試料室へ入射させ、照射その場での顕微鏡観察を行う手法である。この手法は、カスケード損傷の二次生成物の直接観察や、照射誘起相変態の評価手法として、1980年代から活発に実施された。その後、一次下火になったが、照射下等の過酷な環境での材料挙動を評価手法として再注目されており、主に原子モデリングとの比較の観点からの活用が望まれており、各国で研究プロジェクトが推進されている。本プロジェクトでは、照射劣化を効率的に模擬するためにサイクロトロンを用いた高エネルギーイオン照射を実施しているが、その機構論的な妥当性を検証して実験結果を高照射量へと外装するためには、高い一次はじき出し原子 (PKA: Primary Knock-on Atom) エネルギーを付与できる照射場を用いたイオン照射を行って、照射損傷に起因する材料特性変化の機構論的な考察を行うことが求められる。そこで、本プロジェクトにおいて中エネルギーイオン加速器に透過電子顕微鏡を結合したその場観察装置を構築し、新型燃料被覆管模擬材の照射下での安定性を考察することにした。

実験システムの構築にあたって先行研究を調査し、最近のその場観察装置開発の傾向を考察した。現時点では、米国アルゴンヌ国立研究所の装置[3.15.10-11]を用いている研究グループのアクティビティが高く、ジルコニウム系被覆管材や UO_2 の照射損傷のその場観察など、原子炉炉心材料の研究も精力的に行われている[3.15.12-15]。この装置は1995年に更新されており、Texas Nuclear 製の300keV イオン加速器あるいは NEC 製の2MV タンデム加速器で発生させたイオンビームが、透過電子顕微鏡 H-9000NAR (日立ハイテクノロジーズ製、300 kV) の光軸に対して 30° の角度で入射するようになっている。2000年代には、フランスの JANNUS (Joint Accelerators for Nanosciences and Nuclear Simulation) プロジェクトで、オルセーの CSNSM (Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière) に構築されたその場観察装置[3.15.16-17]や、中国の武漢大学で開発された装置[3.15.18]がある。いずれも、MeV オーダのイオンビームを入射できることが特徴である。電子線とイオンビームの光軸同士のなす角が大きいため照射中のその場観察には適していないものの、一つのミクロ組織の成長挙動を継続的に追跡する実験などは実施することができる[3.15.19-20]。2011年からは、米国サンディア国立研究所で I^3 TEM (In situ Ion Irradiation TEM) の開発が開始されている[3.15.21]。この装置は、10kV イオン銃 (Colutron) と 6MV バンデグラフ・タンデム加速器を JEM 2100 (日本電子製、200 kV 透過電子顕微鏡) に接続する構成となっている。高温ステージや液体混合ステージ、TEM 内引張ステージ等を導入してさまざまなナノプロセッシングを行おうという野心的なプロジェクトであり、装置の報告と前後して幾つかの実験結果が速報されている[3.15.22-23]。まとめると、最近のその場観察装置の開発は既存の中エネルギーイオン加速器設備に電子顕微鏡を導入するのが主流であるが、装置のレイアウトの関係から、照射その場での観察に適した構成のものは限られていることが伺える。

これらを踏まえて、本プロジェクトにおけるその場観察装置の開発では、以下の点を目標とすることにした。イオン照射中に透過電子顕微鏡観察が可能となるように、電子線とイオンビームの光軸のなす角は小さく設計する； 加速器システムが供給できる最高エネルギーのイオンビームを入射可能な設計にする； 入射するイオンビームのフラックスは、一つのイオンと材料の

相互作用の影響が観察可能な低密度から 1 日で 10^{-1} dpa 以上のはじき出し損傷を与える高密度まで可変する；カスケード損傷の二次生成物の観察を可能にするためにビデオレート程度の CCD (Charge-Coupled Device: 電荷結合素子) カメラを搭載する。

その場観察システムは、東京大学 H I T の B L 7 を延長して隣接する電子線構造測定室へイオンビームを輸送し、東京大学が所有する透過電子顕微鏡 JEM 2000EX (日本電子) を分解して、イオンビームを入射可能な試料室を新たに組み込むことによって構築することにした。イオンビームを電子顕微鏡に導くには幾つかの方法がある[3.15.24]。ポールピースに穿孔して入射口を作成する手法もあるが、電子顕微鏡の根本的な改造となるため採用しなかった。低エネルギーイオン加速器と電子顕微鏡の連結装置では、電子顕微鏡内部に小さな静電プリズムを組み込んで、鏡筒内でイオンビームを曲げてポールピース上部から試料位置へとイオンビームを入射する方法が一般的であるが、この方法では入射するイオンビームのエネルギーに制限が生じ、加速器システムの能力を十分に生かせないことが考えられたことから、この方法も採用されなかった。検討の結果、イオンビームを入射可能な試料室を新たに製作してポールピースと集束レンズの間に十分な空間を作り、ポールピースの上部から 30° でイオンビームを入射することにした。

電子顕微鏡の設置室へイオンを導くには、ビームを水平および垂直方向に変更させる必要がある。H I T のタンデトロンの高圧側の分析電磁石は、電子顕微鏡設置室に近い B L 7 に対して 32 MeV amu の偏向性能を有している。そこで、B L 7 の終端から電子顕微鏡までビームラインを延長するに当たり、ビームの偏向に使用する電磁石の性能は、水平および垂直の方向にそれぞれ 32 MeV amu で設計することにした。可能な限り高フラックスなイオンビームを輸送するために、偏向電磁石はエッジフォーカスが最大となるように偏向経路を設計した。

ビデオレートでのその場観察を行うため、観察用 CCD カメラとして MegaView 2 (オリンパス) を採用した。このカメラの視野は、JEM-2000EX のフィルム位置とほぼ対応しており、解像度は 1376×1032 である。フレームレートは binning $\times 2$ で最大 25 fps を達成可能であり、短寿命の照射欠陥集合体の観察に適している。ただし、蛍光場の上部へ側面から挿入されるタイプのカメラであることから、高倍率での撮影には向いていない。

(2) 実験装置の構築

本プロジェクトで構築したその場観察システムの構成を図 3.15.13 に示す。また加速器側の室および顕微鏡側の室におけるビームラインの外観を図 3.15.14 に示す。加速器から射出されたイオンは高圧端側の分析電磁石によって左 30° に偏向して B L 7 へと入射する。B L 7 の従来の終端は RBS 用のチャンバであったが、このチャンバのフランジを加工して、ビームラインの延長部分を取り付けた。始めに水平偏向電磁石によって更に左へ 45° 偏向させて、加速器を設置している重イオン加速器兼照射室から電子顕微鏡を設置している電子線構造測定室へとイオンビームを輸送する。水平偏向部のストレートポートには固定式のファラデーカップを取り付ける。偏向部の出口位置には挿入式のファラデーカップを取り付ける。電子線構造測定室へと入射したイオンビームは垂直偏向電磁石によって下向きへ 60° 偏向され、その後電子顕微鏡へ向かって直線的に輸送される。ビーム位置の微調整のために、垂直偏向電磁石と電子顕微鏡の間には、1 組の静電レンズおよび X Y 方向に各 2 組の静電ディフレクタが設けられている。ビームラインの終端近傍

には挿入式のファラデーカップを設けており、ビームラインの終端および電子顕微鏡の入射部にはそれぞれゲートバルブを設け、その間を溶接ベローズで接続している。機械的な振動を抑制するため、ビームラインは3台のスパッタイオンポンプで排気する。上記の構成のうち、水平偏向電磁石用電源、静電レンズ、静電ディフレクタおよび高圧電源、そしてスパッタイオンポンプ2台は東京大学で以前所有していた400 kV 静電加速器に使用されたもの等を利用した。

電子顕微鏡内に入射したイオンビームは、内部で不要な照射をすることを避けるため、導入管の内部を通して試料位置近傍まで導かれる。導入の直径は段階的に小さくなり、最終的に2.5のビームが試料位置へ照射されることになる。導入管は基本的に地絡されるが、一部は電氣的に区分されており、電流検出のために使用することができる。電子顕微鏡への入射部分の外観を図3.15.15に示す。

その場観察装置の施工にあたっては、ビームラインに対して精緻に電子顕微鏡を設置することに技術的な課題がある。一般的にビームラインは長大で剛性のある構造物である。イオンビームは効率的に損傷量を得るためにはなるべくビームの収束率が高くなるような設計が望まれ、本プロジェクトで使用するイオンビームの直径も高々数 mm である。このビームを数段の絞りで切り取って2.5の試料位置に入射させるには、試料位置すなわち電子顕微鏡の厳密な位置決めが求められる。一方、電子顕微鏡は観察中の振動を抑えるために除振台の上に置かれており、鏡筒が鉛直方向に対して垂直か否かはあまり問題にされない。仮に水平な基盤上に顕微鏡を設置したとしても、自身の質量でダンパが収縮するため、完全な鉛直を保証できない。これらの問題を解決するために、電子顕微鏡内のイオンビーム導入中心軸の延長線上にレーザービームを射出する装置を作成して鏡筒フランジ部に取付け、このレーザーがビームラインの中心軸を通っていることを確認しながら電子顕微鏡の位置を決定するという方法を取った。図3.15.16に示すように、試行錯誤しながら軸を揃えてイオンビームを入射し、試料位置に取付けたカプトンフォイルに焼き目を付けることでビームプロファイルを確認した。おおよそ2の領域にイオンビームの入射が確認できた時点で調整完了とした。この条件のビームプロファイルを絞り径0.21のファラデーカップで測定した結果を図3.15.17に示す。おおよそ2の領域でほぼ均一なイオンビームが得られていることが確認できた。

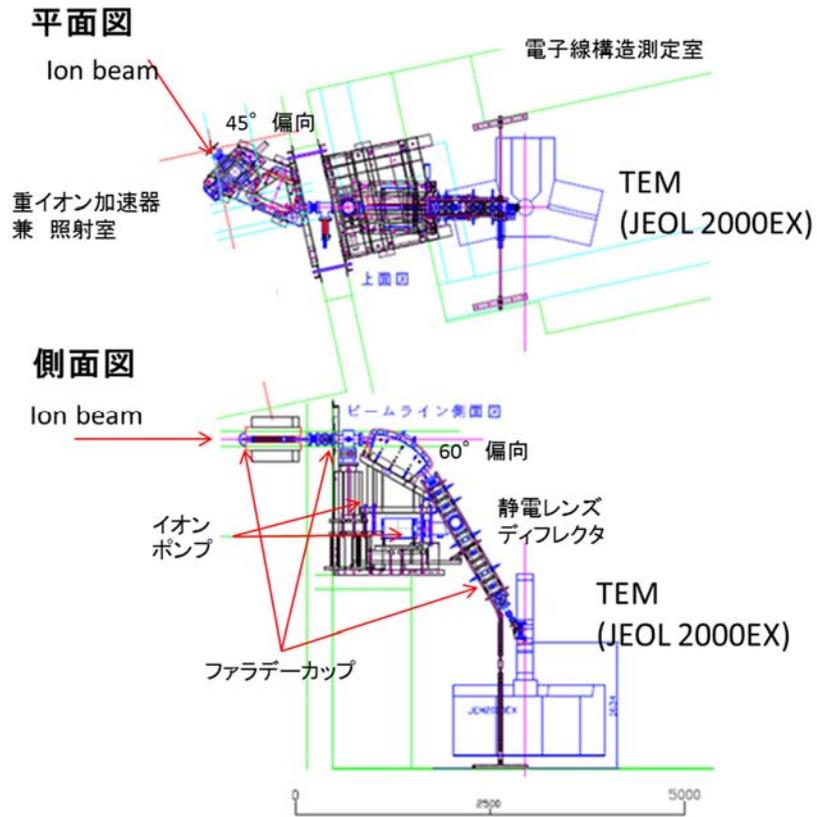


図 3.15.13 その場観察ビームラインの概要

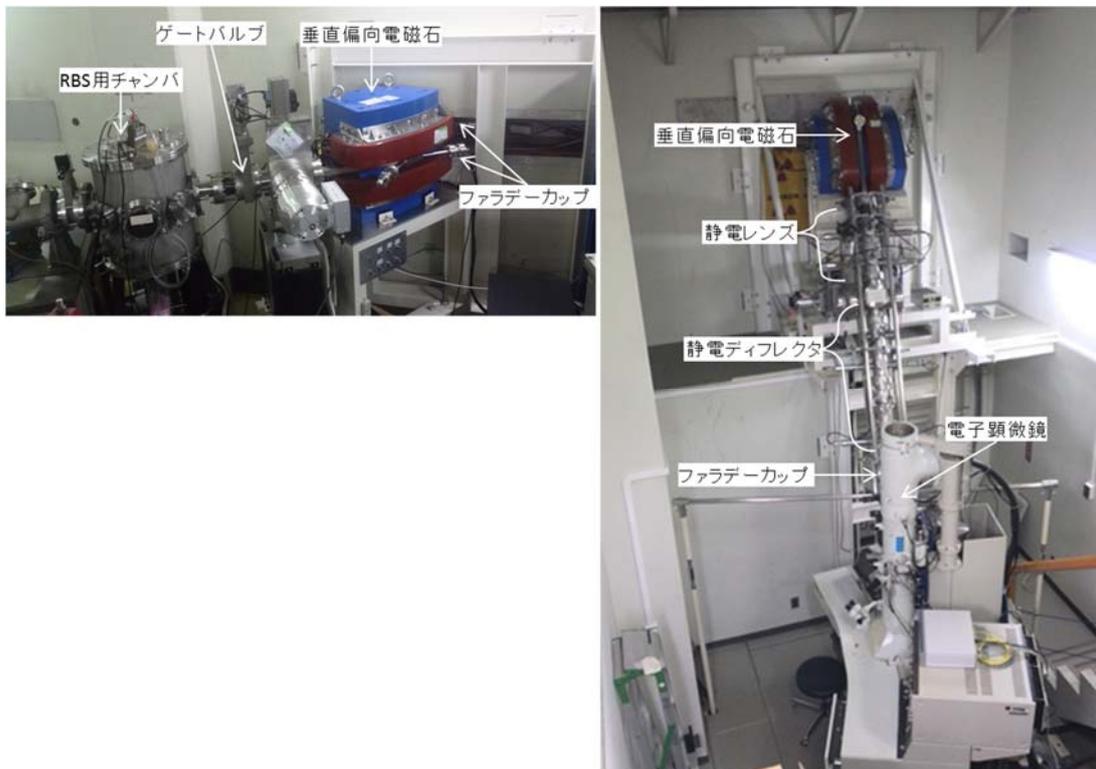


図 3.15.14 その場観察ビームラインの外観

左：重イオン加速器兼照射室側 右：電子線構造測定室側

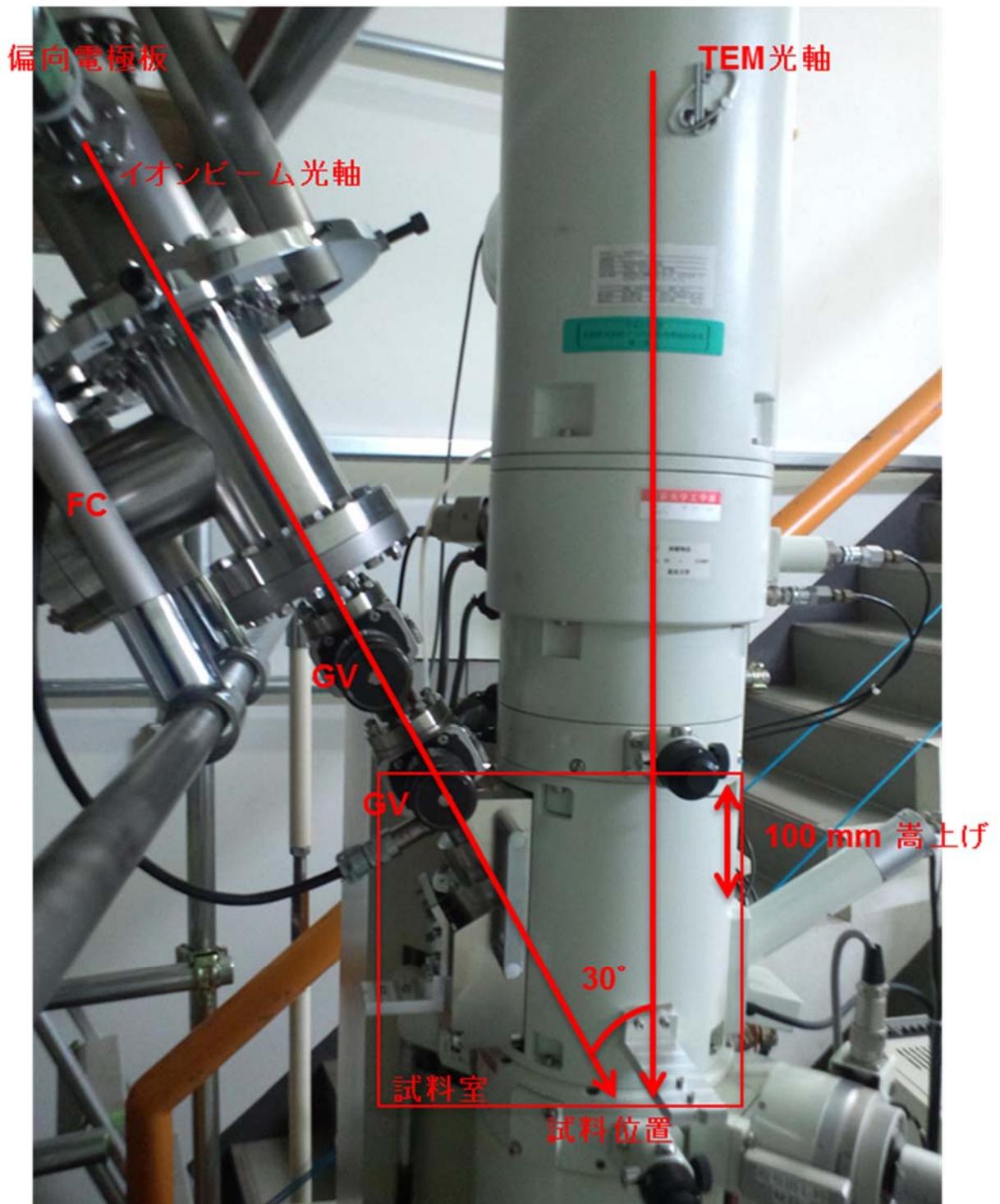


図 3.15.15 ビームラインと電子顕微鏡の接合部の外観



図 3.15.16 照射領域を確認するために使用したカプトンフォイルの一部

被照射部はイオンビームによって変色している。左から右に向かって調整を進めている。上下方向は試料ホルダの挿入方向。イオンビームは試料ホルダの挿入方向と光軸を含む面に対して 45° 傾いて入射される。

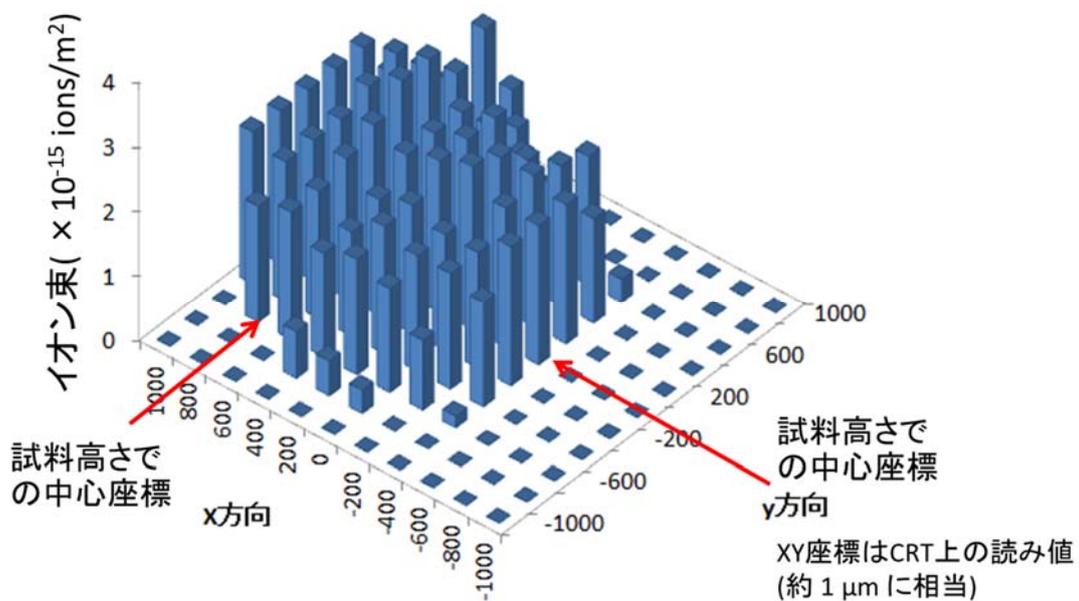


図 3.15.17 試料位置におけるビームプロファイル

ファラデーカップ (0.21) 付き試料ホルダを用いて、Y 軸方向に 22° 回転させて測定した。

3.15.6 ジルコニウム合金系新型燃料被覆管模擬材の照射特性のその場観察

(1) 目的

ジルコニウムにニオブを添加することによる加圧水型軽水炉環境での耐食性向上が期待されている。ニオブはジルコニウム中で体心立方構造の相として析出することが知られている。照射材では微細な析出物が新たに析出することが知られている[3.15.25]が、粗大化した析出物の照射下での安定性（収縮あるいは成長）もマトリクス中のニオブ濃度を变化させることから耐食性に影響を与える可能性がある。そこで、ジルコニウム・ニオブ系新型燃料被覆管材の耐食性に与える照射の影響を機構論的に考察するために、ニオブ析出物の挙動をイオン照射その場で電子顕微鏡観察することにした。

(2) 実験

実験に使用した試料は、東北大学より供給を受けた Zr-1.8 at. %Nb 合金である。J1 被覆管材を軸方向に二つに切断して、軸方向に 50 % 冷間圧延して薄い板材としてから、853 K で 24 時間焼鈍することにより板材を作成し、それを 3 で打ち抜いて、テヌポールにて薄膜化している。

照射下その場観察は、前項で説明したその場観察装置を用いて実施した。試料ホルダには SHH（日本電子）を使用し、573 K で 2.0 MeV Fe イオンを照射した。この時のイオン束は 5×10^{14} ions/cm² である。薄膜におけるはじき出し損傷量の評価は試料形状に大きく依存するため難しいが、図 3.15.18 のように 100 nm の薄膜に 2.0 MeV Fe イオンが 30 ° で入射したと仮定すると 4×10^{-5} dpa/s となる。

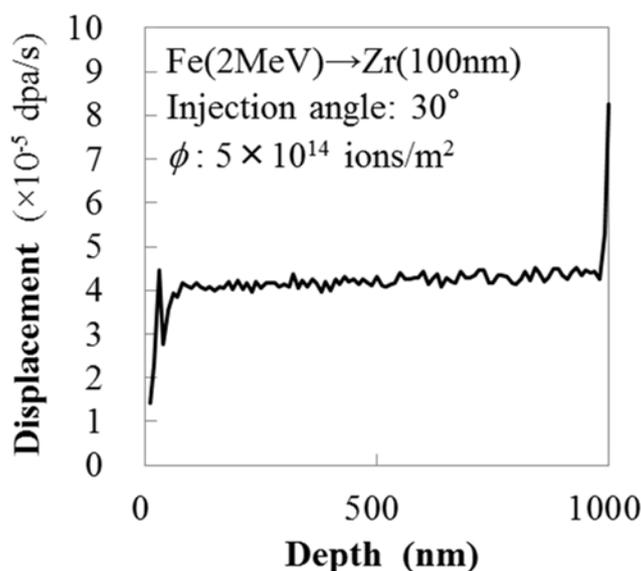


図 3.15.18 Fe(2MeV)照射された Zr 薄膜 (100 nm) のはじき出し損傷量分布
はじき出しの実行しきい値エネルギーは 40 eV とし、NRT モデルに基づいて計算した。

試料厚さは 100 nm とし試料後方は真空と仮定した。

また鉄イオンの入射方向は試料深さ方向に対して 30 ° 傾斜させた。

(3) 結果

図 3.15.19 に明視野像の時間変化を示す。特定の g ベクトルを励起しない回折条件を選択している。視野中には長軸方向が 100 nm を超える楕円形のコントラストが 1 つ、直径 60 nm の円形のコントラストが 1 つそれぞれ明瞭に現れており、これらは析出物と予想される。また、視野の中央部に三つ、下部にひとつ、いずれも直径 50 nm を超えない不明瞭なコントラストが現れており、これらも析出物であると考えられる。明瞭な二つのコントラストについては、 5×10^{18} ions/cm² (約 0.4 dpa) までの照射で有意なサイズの変化は見られなかった。一方、不明瞭なコントラストの析出物については照射とともにコントラストがより不鮮明になる様子が観察されたが、これらは試料の湾曲による回折条件の変化が原因である可能性がある。低倍率で取得した明視野像も図 3.15.20 に示すが、広い視野を探索しても、未照射時にある程度の大きさに達していた明瞭なコントラストが照射によって更に大きくなるような現象は観察されなかった。

当初の予想に反して、析出物のサイズが照射と共に大きくならなかったことは、観察対象としていた粗大な析出物が安定であり、マトリクスからこれらの析出物への二オプの移行は生じにくいことを示唆するものである。

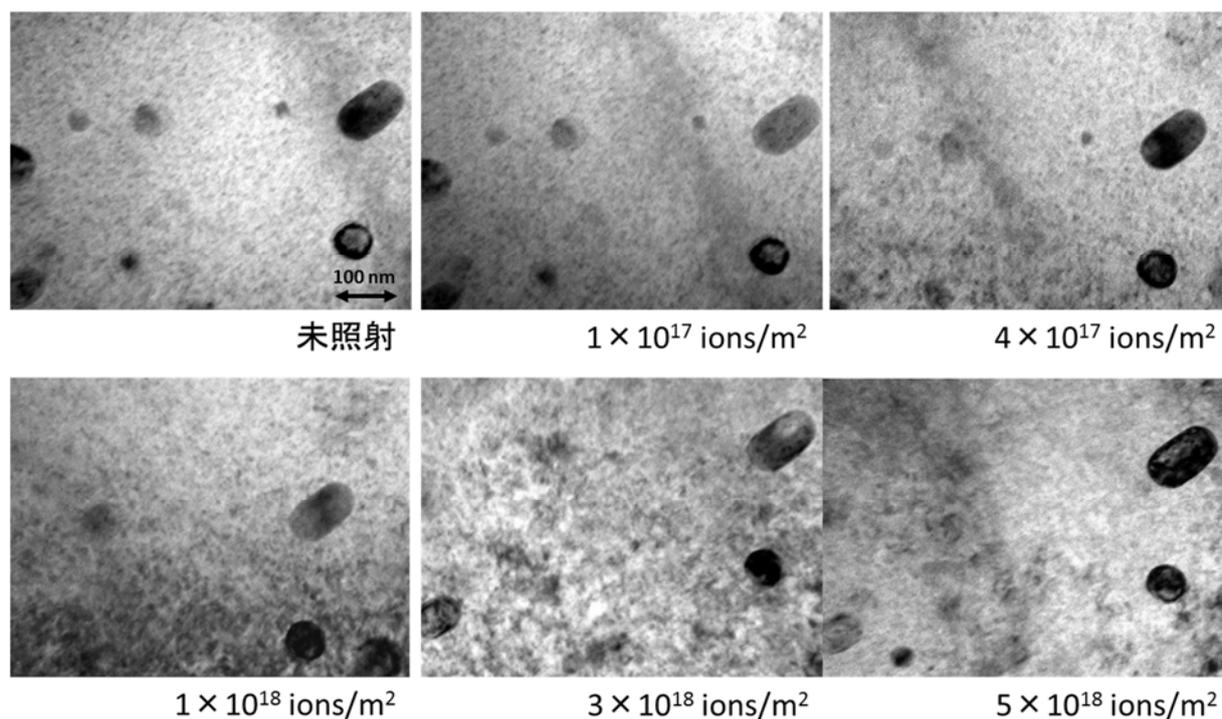


図 3.15.19 Zr-1.8Nb 合金の照射その場観察結果

イオン束 5×10^{14} ions/cm² の 2.0 MeV Fe²⁺ イオンを 573 K で照射した。

顕微鏡写真は、特定の g ベクトルを励起しない条件で明視野像を撮影した。

照射中に試料は少しずつ湾曲するのでなるべく同じ条件になるように位置等を少し調整している。

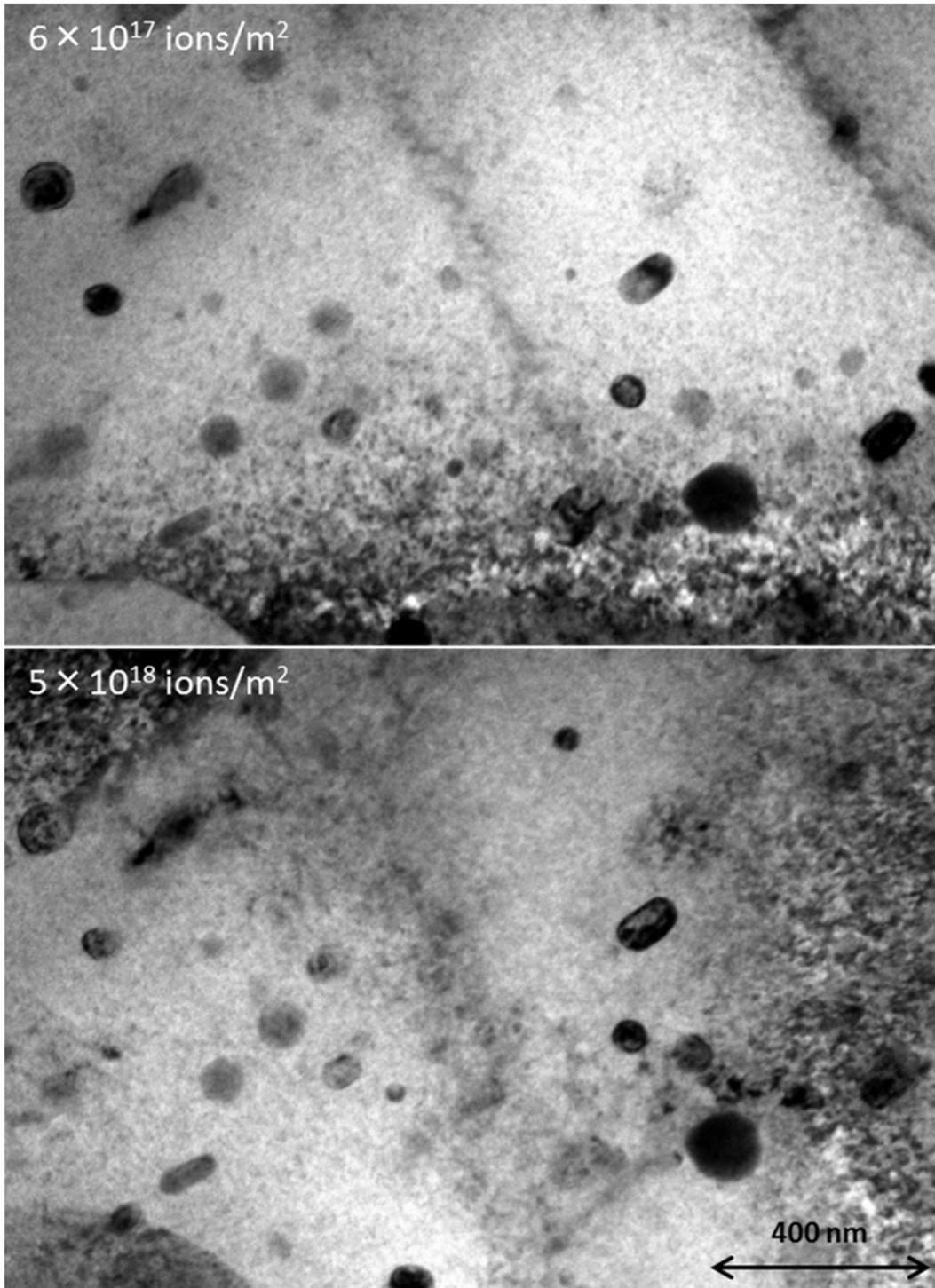


図 3.15.20 Zr-1.8Nb 合金の照射その場観察結果

イオン束 5×10^{14} ions/cm² の 2.0 MeV Fe²⁺ イオンを 573 K で照射した。
顕微鏡写真は、特定の g ベクトルを励起しない条件で明視野像を撮影した。
照射中に試料は少しずつ湾曲するのでなるべく同じ条件になるように位置等を少し調整している
が、回折条件が少し変化している。

3.15.7 結言

中エネルギーイオン照射試験では、東京大学HITのタンデロン加速器を使用し、ジルコニウム合金製およびODS鋼製の新型燃料被覆管模擬材に対して数 dpa までの鉄イオン照射を施し、TEM観察等に供給した。平成27年度は、中エネルギーイオン照射後に2%公称ひずみを加えて表面観察を行い、変形挙動の局所化に対する照射量依存性を評価した。その結果、未照射および0.4 dpa 程度の中エネルギーイオン照射材では比較的均一な変形挙動を示し、表面に著しい凹凸が現れないのに対し、4 dpa 照射材では結晶粒あたり2~5箇所程度のすべり帯に変形が局所化し、その領域に段差が形成されることが明らかになった。また照射後にわずかに塑性変形させた試料を走査電子顕微鏡観察することによって、結晶粒のひずみを意味するEBSDのGOS値の増加が生じる可能性が示唆された。

また、中エネルギーイオン加速器を透過電子顕微鏡と結合したその場観察装置を開発した。この装置は、照射その場での透過電子顕微鏡観察が可能なその場観察装置としては、世界最高レベルのエネルギーでイオンを入射できる。この装置を使用して、ジルコニウム・ニオブ合金系の新型燃料被覆管模擬材における γ -Nb相の照射下安定性評価を実施した。0.4 dpa 程度までのはじき出し損傷に対して、被覆管の製造過程で形成した大きなニオブ析出物のサイズはほとんど変化せず、安定に存在し続けることが明らかになった。このことは、ニオブ添加に起因する耐食性が照射によって影響を受けにくいことを示唆している。また、実験の成功に至る試行錯誤の過程を経て、新たなその場観察装置の特性に習熟し、原子モデリングと対応可能なさまざまな照射下その場観察実験を行うための技術基盤を構築できた。

参考文献

- [3.15.1] F. Onimus; I. Monnet; J.L. Bechade; C. Prioul; P. Pilvin: "A statistical TEM investigation of dislocation channeling mechanism in neutron irradiated zirconium alloys" *Journal of Nuclear Materials* 328 (2004) 165-179.
- [3.15.2] D. D. Himbeault; C. K. Chow; M. P. Puls: "Deformation behavior of irradiated Zr-2.5Nb pressure tube material" *Metallurgical and Materials Transactions A* 25 (1994) 135-145.
- [3.15.3] Y. Kohno; K. Asano; A. Kohyama; K. Hasegawa; N. Igata: "New dual-ion irradiation station at the University of Tokyo" *Journal of Nuclear Materials* 141-143 (1986) 794-798.
- [3.15.4] S. Ito; H. Matsuzaki; A. Morita; Y. Tsuchiya (Sunohara); C. Nakano; Y. Miyairi: "STATUS REPORT ON RAPID, 1.7MV TANDEM ACCELERATOR SYSTM, THE UNIVERSITY OF TOKYO" *Proc. of IPAC '10, Kyoto, Japan, (2010)*
<http://epaper.kek.jp/IPAC10/papers/mopea061.pdf>
- [3.15.5] 岩井岳夫、尾亦孝男、上坂 充 「東大HITにおける東日本大震災被害状況報告」第24回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会報告集 (2011) 25-28.
- [3.15.6] J.F. Ziegler; J. Biersack, U. Littmark "The Stopping and Range of Ions in Matter "

- Pergamon Press, Morrisville, North Carolina, U.S. (1985)
- [3.15.7] ASTM E521, Standard Practice for Neutron Radiation Damage Simulation by Charged-Particle Irradiation, Annual Book of ASTM Standards, Vol. 12.02, ASTM International, West Conshohocken, PA, 2009
- [3.15.8] M. J. Norgett; M. T. Robinson; I. M. Torrens: "A proposed method of calculating displacement dose rate" Nuclear Engineering and Design 33 (1975) 50-54.
- [3.15.9] R.E. Stoller; M.B. Toloczko; G.S. Was; A.G. Certain; S. Dwaraknath; F.A. Garner: "On the use of SRIM for computing radiation damage exposure" Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 310 (2013) 75-80.
- [3.15.10] C. W. Allen; L. L. Funk; E.A. Ryan; and S.T. Ockers: "The HVEM-tandem accelerator facility at Argonne National Laboratory" Nuclear Instruments and Methods in Physical Research B 40-41 (1989) 553-556.
- [3.15.11] C.W. Allen: "In situ ion- and electron-irradiation effects studies in transmission electron microscopes" Ultramicroscopy 56 (1994) 200-210.
- [3.15.12] R. M. Hengstler-Eger; P. Baldo, L. Beck; J. Dorner; K. Ertl; P.B. Hoffmann; C. Hugenschmidt; M.A. Kirk; W. Petry; P. Pikart; A. Rempel: "Heavy ion irradiation induced dislocation loops in AREVA's M5a alloy" Journal of Nuclear Materials 423 (2012) 170-182.
- [3.15.13] Y. Idrees; Z. Yao; M. A. Kirk; M. R. Daymond: "In situ study of defect accumulation in zirconium under heavy ion irradiation" Journal of Nuclear Materials 433 (2013) 95-107.
- [3.15.14] Y. Idrees; Z. Yao; M. Sattari; M. A. Kirk; M. R. Daymond: "Irradiation induced microstructural changes in Zr-Excel alloy" Journal of Nuclear Materials 441 (2013) 138-151.
- [3.15.15] L. F. He; B. Valderrama; A.-R. Hassan; J. Yu; M. Gupta; J. Pakarinen; H.B. Henderson; J. Gan; M.A. Kirk; A.T. Nelson; M.V. Manuel; A. El-Azab; T.R. Allen: "Bubble formation and Kr distribution in Kr-irradiated UO₂" Journal of Nuclear Materials 456 (2015) 125-132.
- [3.15.16] Y. Serruys; M.-O. Ruault; P. Trocellier; S. Henry; O. Kaitasov; Ph. Trouslard: "Multiple ion beam irradiation and implantation: JANNUS project" Nuclear Instruments and Methods in Physics research Section B 240 (2005) 124-127.
- [3.15.17] Y. Serruys; M.-O. Ruault; P. Trocellier; S. Miro; A. Barbu; L. Boulanger; O. Kaitasov; S. Henry; O. Leseigneur; P. Trouslard; S. Pellegrino; S. Vaubailon: "JANNUS: experimental validation at the scale of atomic modelling", C. R. Physique 9(2008) 437-444.
- [3.15.18] L.P. Guo; C.S. Liu; M. Li; B. Song; M.S. Ye; D.J. Fu; X.J. Fan: "Establishment of in situ TEM-implanter/accelerator interface facility at Wuhan University" Nuclear

- Instruments and Methods in Physics Research A 586 (2008) 143-147.
- [3.15.19] M-L. Lescoat; J. Ribis; A. Gentils; O. Kaitasov; Y. de Carlan; A. Legris: “ *In situ* TEM study of the stability of nano-oxides in ODS steels under ion-irradiation ” Journal of Nuclear Materials 428 (2012)176-182.
- [3.15.20] C. Sabathier; G. Martin; A. Michel; G. Carlot; S. Maillard; C. Bachelet; F. Fortuna; O. Kaitasov; E. Oliviero; P. Garcia: “ In-situ TEM observation of nano-void formation in UO₂ under irradiation ” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 326 (2014) 247-250.
- [3.15.21] K. Hattar; D.C. Bufford; D.L. Buller: “ Concurrent in situ ion irradiation transmission electron microscope ” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 338 (2014) 56-65.
- [3.15.22] C. Chisholm; K. Hattar; A. M. Minor: “ *In Situ* TEM Concurrent and Successive Au Self-Ion Irradiation and He Implantation ” Materials Transactions 55 (2014) 418-422.
- [3.15.23] D. Bufford; S. H. Pratt; T. J. Boyle; K. Hattar: “ In situ TEM ion irradiation and implantation effects on Au nanoparticle morphologies ” Chemical Communications 50 (2014) 7593-7596.
- [3.15.24] J. A. Hinks: “ A review of transmission electron microscopes with in situ ion irradiation ” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 267, 3652-3662, 2009.
- [3.15.25] T. Toyama; Y. Matsukawa; K. Saito; Y. Satoh; H. Abe; Y. Shinohara; Y. Nagai: “ Microstructural analysis of impurity segregation around δ -Nb precipitates in Zr-Nb alloy using positron annihilation spectroscopy and atom probe tomography ” Scripta Materialia 108 (2015) 156-159.

3.16 委員会

本事業に関する研究検討委員会を毎年開催した。平成 24 年度はキックオフミーティングとして 1 回、また初年度の成果報告としての委員会を 1 回開催した。その後、平成 25 年度から 27 年度にかけては年一回のペースで開催した。委員会は事業参画者 13~15 名、外部委員とオブザーバー（大学、研究所、規制庁 5 名、電力、メーカー 11~12 名、および当事業 P0）から構成される。これ以外に委員会出席者には学生及び大学院生を含む。

まず第一回委員会として平成 24 年 11 月にキックオフミーティングを開催し、事業参画者が出席した。事業の全体像について研究代表者から説明され、参画機関における使用予定の研究インフラと予測される成果について説明があり、これらについて質疑がなされた。主な議論として、ジルコニウム系合金については平成 23 年度までの原子力イニシアチブ事業で作製した腐食試験材の有効活用が重要であること、東北大と物材機構のサイクロトロン加速器の状況認識、および東大 HIT の現在の状況と今後の予測について議論がなされた。

第二回委員会は事業参画者と外部委員とオブザーバーが出席して平成 25 年 3 月に開催された。本委員会では事業の全体像と目標に関する説明、各機関における研究の進捗状況についての説明がなされた。これらの委員会において改善を求められた項目は無かったが、議論として、材料組成の考え方、変形機構領域図の試験範囲の設定、クリープ試験法、改良型 EDC 試験条件、Zr-Nb 合金の酸化被膜の安定性、加速器結合型電子顕微鏡のビームライン作製、照射条件の考え方に関するアドバイスや議論等、有益な情報を取得することができた。

第三回委員会は平成 26 年 2 月に開催された。全体の進捗について説明がなされた後、質疑応答が行われ、材料組成および熱処理方法の設定、クリープ試験では FBR 条件達成のためのアドバイス、変形機構領域図の試験範囲の決定、改良型 EDC 試験に関し中子と被覆管の摩擦の制御、ODS 鋼の結晶粒径と照射下安定性の関連、加速器結合型電子顕微鏡のビームライン調整のノウハウ、今後の研究の方向性に関するアドバイス等多数の有益な情報を取得することができた。これら議論を通じ改善を求められた項目は特には無かった。ただし研究項目が多岐に渡ることもあって結果がうまく集約されていないとの印象を持った委員もいた。これについては事業の目的が劣化を取り込んだ評価手法の開発であること、平成 25 年度が事業二年目でありやや発散気味に映ること、次年度以降には事業目的の達成に向けた集約がなされる予定であること、を説明し理解を得た。一方このコメントに対して別の委員からは、軽水炉と高速増殖炉の両者を対象としていてグループ内で互いに良い刺激を与えて高めあっているとの評価もあった。また材料開発へのフィードバックの方法や規制への反映など、当事業の成果に期待する声もあった。

第四回委員会は平成 27 年 3 月に開催された。本委員会において、まず事業の全体に関する説明が研究代表者からなされた。平成 26 年度に実施された中間ヒアリングについての概況を説明すると共に、機械試験方法の開発に大きな進展があり当初の予想を超えた良い成果が出ていることが説明された。特に改良型中子拡管（A-EDC）試験では手法の最適化が進み再現性が非常に良いことが判明し、管形状を有する材料の周方向の応力ひずみ曲線の取得に初めて成功したこと、等が説明された。これらの成果は、被覆管の性能評価法が大きく前進したのものとして更なる発展が期待される。そして、今後当事業を当初予定通り機械試験法開発を中心として平成 27 年度に纏め上げていく予定である旨説明され了承された。これに対して委員およびオブザーバーから、

プロジェクトの成果が順調であることを評価する意見や、全体の指向性が明瞭になり良くまとまってきたとの感想などが出された。また多軸応力試験における局所変形の可視化法について新しいアイデアに基づいた発展的議論、サイズ効果、材料組成と熱処理法による粒径制御や組織制御の考え方、FBR 条件達成のための He 濃度設定の考え方についてのアドバイス、ODS 鋼の変形機構領域図の作成上の考え方についての議論、加速器結合型電子顕微鏡の構築に成功したことへの賞賛とその場観察実験への期待など多数の有益な情報を取得、交換することができた。今年度の委員会では、前述のように予定を上回る成果を上げることができ、これらを中心とした指向性のあるシャープな内容となり、良い評価を得ることができた。

第五回委員会は平成 28 年 3 月に開催された。事業全体の成果の概況の報告がなされ、当初計画を超えた成果として、改良型中子拡管 (A-EDC) 試験法を用いた周方向応力ひずみ曲線の高精度評価、多軸応力試験法と RIA 評価への応用、Zr-Nb 合金の腐食メカニズムの解明等、報告され良い評価を受けた。その他の腐食試験、水素化試験、微細組織観察試験、クリープ試験や加速器結合型電子顕微鏡による照射損傷基礎過程の直接観察、サイクロトロン照射 / 注入試験なども順調に進捗し 4 年間の研究事業としてまとめられた。委員およびオブザーバーからは、プロジェクトの成果が順調であること、指向性が明瞭になりまとまった成果となっているという評価があった。また、A-EDC 試験について形状等の最適化、試験法の高温試験や照射後試験等への拡張に関する質問があり、いずれも検討が進んでおり結論を得ていることが説明された。特に照射後試験への拡張に期待が寄せられた。多軸試験については特に水素化物の形態との関連で今後の発展に興味があるとの意見があった。照射影響に関しては Zr-Nb 被覆管の軸方向と周方向で照射硬化の度合いや降伏現象が異なることが初めて明らかになり、今後の発展に期待が寄せられた。ODS 鋼の変形機構領域図についても限定的ではあるものの変形機構図の構築と破壊のメカニズムの解明への貢献が評価された。

これらを通じて、4 年間の研究事業として当初掲げた目標を上回る成果をあげることができたと評価された。

4. 結言

軽水炉や高速増殖炉の燃料被覆管は、腐食、水素化、照射影響、He脆化等の劣化の進行と、燃料-被覆管相互作用等の機械的負荷が重畳する環境に置かれ、このような条件下での機械的健全性に関する科学的機構論的な知識の構築が求められる。また原子炉事故を踏まえ高温腐食と機械的負荷という異常条件下での材料挙動についても知見の蓄積が求められる。

本業務では、次世代軽水炉燃料被覆管材料に関するこれまでの研究を発展させ、材料劣化を腐食、水素化、イオン照射により模擬し、定常および異常条件における強度測定と微細組織観察を組み合わせ、燃料被覆管健全性評価に反映可能な劣化評価手法を開発することを目的とする。

4.1 平成 27 年度事業のまとめ

以下に 4 ヶ年計画の最終年度である本年の業務の実績をまとめる。

(1) 材料選定と材料劣化試験

材料供給 1 (再委託先：NDC)

平成 26 年度に引き続き本業務にて使用する材料を供給した。材料はジルカロイ 4 および Zr-Nb 合金 (以下、Zr 系材料) とした。

材料供給 2

平成 25 年度に引き続き本業務にて使用する材料を供給した。材料は 12Cr-ODS 鋼 (以下、ODS 鋼) とした。

腐食試験 (再委託先：NDC)

平成 26 年度に引き続き実機冷却材模擬水および事故時挙動を模擬した高温水蒸気雰囲気を含む環境下で腐食試験を実施した。腐食材の腐食量ならびに吸収水素量を測定し、また金相観察試験を実施した。腐食材を(2)および(3)に供給した。

水素化試験 (再委託先：NDC)

最大 1800ppm 程度の水素化試験を実施する。水素化材の吸収水素量を測定し、また金相観察試験を実施する。水素化材を(2)および(3)に供給した。

(2) 劣化材料の機械的性質評価

引張試験およびナノ硬度試験

Zr 系材料、ODS 鋼、腐食材、水素化材に対し、ガス置換型高温炉付き材料強度試験システム (リース)、引張試験機 (既存) および超微小硬度計 (既存) を用いて引張試験およびナノ硬度試験を実施した。引張試験により破断した材料を(3) に供給した。

高温クリープ試験 1

微小試験片用高温高真空クリープ試験機 (平成 24 年度導入) 引張試験装置 (既存)、ガス置換型クリープ試験装置 (既存) を用いクリープ試験を実施した。

高温クリープ試験 2 (再委託先：NIMS)

NIMS で作製された He 注入材について、NIMS 照射後クリープ試験装置を用いてクリープ破断試験を実施した。

中子拡管試験

ガス置換型高温炉付き材料強度試験システム (リース) を用い、平成 26 年度までに開発した改

良型中子拡管試験を実施し、有限要素解析と比較検討した。Zr系被覆管無垢材および水素化材、腐食材に対し同試験を実施した。

多軸応力機械試験（再委託先：NDC）

平成26年度までに開発した手法を踏まえた多軸応力機械試験を実施し、有限要素解析と比較検討した。Zr系被覆管無垢材および水素化材に対し同試験を実施した。

(3)劣化材料のミクロ組織観察試験

SEM/EBSD観察（再委託先：大阪大学）

平成26年度に引き続き無垢材、腐食材、水素化材、機械試験材に対し、走査型電子顕微鏡/電子線後方散乱回折装置(SEM/EBSD)（既存）を用いて観察試験を実施した。計算機を導入し材料中のひずみを評価した。一部の試験は東北大学金属材料研究所量子エネルギー材料科学国際研究センターの管理区域内に設置されているSEM/EBSDを用いた。

TEM観察

無垢材、腐食材、水素化材を観察用試料に適宜加工し、光学顕微鏡（既存）およびTEM（リース）を用いた観察試験を実施した。イメージングプレートシステムを導入し、電子回折像の詳細解析を行った。

(4)イオン照射試験

He注入試験1

機械研磨装置を用いて、He注入試験用のODS鋼製引張試験片の表面研磨を実施した。このODS鋼製引張試験片に対して、東北大学サイクロトロン加速器（既存）を用いてHe注入試験を実施した。注入量は最大70appm（ ）とした。照射試料は(2)および(3)に供した。（ appmとは物質の原子濃度を表す単位である。）

高エネルギーイオン照射試験

東北大学サイクロトロン加速器（既存）および高エネルギー重イオン照射チャンバー（平成24年度導入）を用いて、高エネルギーイオン照射試験を実施した。平成26年度に導入したTEMディスク試料用照射ステージおよび管状試料用照射ステージを用いた照射試験を実施した。照射試料は(2)および(3)に供した。

中エネルギーイオン照射試験（再委託先：東京大学）

平成26年度までに設置したイオンビーム照射下組織その場観察ライン装置の真空排気系を更新し、電子顕微鏡内に設置した試料に対し照射実験を行う。照射した試料の電子顕微鏡観察実験を行った。また、イオン照射材を作製した。照射試料は(2)および(3)に供した。一部の試料は集束イオンビーム加工装置（既存）を用いて断面観察試料を作製し、(3) TEM観察へ供した。

(5)研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、広く意見を聴きながら研究を進めるため委員会を開催した。

以上、本年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

4.2 全体のまとめ

4.2.1 目標

本研究では、軽水炉および高速増殖炉の燃料被覆管を対象として、(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する。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、劣化のミクロ機構を明らかにする。そしてこれらを総合して、(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。

4.2.2 事業推進の具体的方法

軽水炉では腐食、水素化、照射損傷、また高速炉では照射損傷と核反応 He の蓄積が、それぞれの環境での代表的材料劣化事象であり、これら事象の進行に対して FP ガス蓄積による内圧上昇や燃料-被覆管機械的相互作用に伴う機械力や変位が重畳する。従ってこのような劣化と負荷に対応した環境劣化試験、機械強度試験およびミクロ分析試験を実施することとし、以下の5つのタスクを設定した。

これらをまとめ、燃料被覆管材料に関し、これまでの実炉照射による実力ベースでの健全性説明に加えて、機構論に基づいた科学的説明を行うために以下の目標を掲げる。すなわち、腐食、水素化、イオン照射により環境劣化材を作製し、事故時挙動を含めた機械試験により管の強度や変形/破壊挙動と様相を明らかにする。現行材に対する試験結果を既往研究データと対比させ、当該試験の妥当性を検証する。そして改良材や次期材に対し同様の試験を行い十分な性能を確認するとともに、安全裕度を示す。これらの挙動は詳細な観察分析やその場観察等を駆使し機構モデルを構築する。燃料専門家から構成される検討委員会にて多角的視点から成果を検討し規制や開発に反映可能な知見としてまとめ上げる。

タスク1：材料選定と劣化モード

現行の軽水炉用燃料被覆管材料（ジルカロイ 2 または 4）を対象として腐食試験、水素化試験、イオン照射試験を実施する。当該材料では多くの知見の蓄積があり、耐力や破断伸びの中性子照射量依存性[1]等、炉内挙動が既知であることから本事業で採用する試験法の妥当性評価に用いる。また比較材として改良被覆管材や次世代被覆管材(Zr-Nb 合金)を用いる。特に Zr-Nb 合金については平成 21-23 年度に実施したイニシアティブ事業[2]において実機適用性に優れた材料であるとの結論を得ており、これの確証を更に深める試験となる。

これらの通常時健全性に対応した試験に加えて、本研究では事故時挙動模擬試験として、上記の劣化試料を高温水蒸気雰囲気中に曝し腐食速度を計測する試験を実施する。

また、高速増殖炉用燃料被覆管材料としては日本の知見蓄積がされている Cr と Ni を富化したステンレス鋼（PNC316 等）や酸化物分散型ステンレス鋼（ODS 鋼）を用いる。これらの材料は 400～700 の温度域にて、原型炉で 130GWd/t（照射量換算で 115dpa）、実証炉では 250GWd/t（同、250dpa）までの照射により健全性を保持することが要求されている[3,4]。これを模擬したイオン照射および He 注入試験により劣化を評価する。

尚、供試材は三菱原子燃料(株)および日本原子力研究開発機構（JAEA）より入手する。腐食試

験と水素化試験はニュークリア・デベロップメント(株)にて実施する。イオン照射試験は、He 注入試験を東北大(長谷川 G) および物材機構にて実施し、事故時挙動模擬試験および高エネルギー重イオン照射試験は東北大(阿部 G)にて実施する。

タスク 2：劣化の評価（マクロ試験）

本項目ではタスク 1 で環境劣化させた材料に対して以下の機械試験を実施する。以下の試験項目は東北大(阿部 G)にて実施する。

(a) 引張試験およびナノ硬度試験により、一般的な材料特性を把握する。ジルカロイおよび PNC316 鋼に関しては豊富な既往研究データとの比較により本手法の妥当性を評価する。これを基準とし他の材料の性能を評価する。

(b) 通常運転以上の温度域における高温クリープ試験から変形機構図を作成し、通常条件における劣化挙動、異常/事故条件における破損挙動を評価する。この時、被覆管形状と異方性のある応力負荷と材料の劣化の度合いを考慮に入れて整理することで、事故時挙動をより明確にすることができる。

(c) 内圧上昇や PCMI、FCMI をより正確に表現するために、中子拡管法を用いて周方向応力負荷条件でのクリープ試験により材料の脆化を評価する。中子拡管法でこれまでに指摘されている、実機との応力条件の違い（多軸条件、または応力支配か歪支配か）を考慮に入れて当該手法を改良した新しい手法を提案する。

タスク 3：劣化の評価（ミクロ組織観察）

本項目ではタスク 1 で環境劣化させた材料、およびタスク 2 で機械試験を施した材料に対して以下の観察/分析試験を実施する。

(a) 試料縦横断面および機械試験後の破面を SEM/EBSD 法を用いて観察する。そして腐食被膜、水素化物、He バブルに起因した割れの起点などを観察し、被覆管集合組織等との組織学的関係および結晶学的関係を明らかにする。本項目は阪大が担当する。

(b) 試料縦横断面および機械試験後の破面を光学顕微鏡法および透過電子顕微鏡法も用いて観察する。そして腐食被膜、水素化物、He バブルなどを観察し、被覆管集合組織等との組織学的関係および結晶学的関係を明らかにする。本項目は東北大(阿部 G)が担当する。

タスク 4：ミクロ組織形成

本項目では、中エネルギー加速器を用いてタスク 1 の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する。材料としては、無垢材だけでなく、劣化の進んだ被覆管の照射効果を模擬するため水素化材、He 注入材に対する照射試験も実施する。本項目は東大および東北大(阿部 G)で担当する。

(a) イオン照射試験を実施し、照射試料をタスク 3 に供する。広範囲の温度域、照射領域にわたって組織形成過程を詳細に記述するべく照射マトリックスを大きくとる。そしてタスク 1～3 の試験と合わせ劣化の機構論を構築する。

(b) 中エネルギー加速器を電子顕微鏡に接続させ、イオン照射その場観察実験を実施する。そして母相や析出粒子、水素化物や He バブル等の組織の照射下安定性を明らかにする。これにより

組織形成の動的過程を詳細に記述し、劣化モデルを精緻化する。

タスク 5：研究検討委員会

上記タスクの成果を統合し、機構論の検討と実機適用を視野に入れた工学的評価を実施する。また、本研究グループのみにとどめず、関連研究者、開発担当者、電力、規制担当者等を本事業の外部評価委員として招へいし、単に研究進捗を評価するだけでなく、燃料開発及び規制に対する本事業成果の適用性について検討し、より合理性のある開発基準と規制の考え方についての議論を進める。この議論の内容は、研究代表者が参画する燃料ロードマップ関連委員会等へも報告し、より高い視点からの意見を受け、議論を進める。本タスクは、代表者が H21-23 年に実施した原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ事業[2]においてその有効性が強く認識されており、本提案においても引き続き開催することとした。

4.2.3 事業進捗の総括

当事業は期間中順調に進捗し、上に示した多くの研究項目で予想を上回る成果をあげた。以下にこれら各点についてまとめる。尚、(1) および (2) については。

(1) 材料選定と材料劣化試験

(1) 材料供給 1、2

滞りなく材料を供給した。研究項目ではないので特記事項なし。

(1) 腐食試験

Zr-Nb 合金およびジルコニウム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達成し、予想以上の成果を挙げた。そして、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 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 合金はジルカロイ合金の 1/4 以下程度であることを明らかにした。これにより当該被覆管の性能の良さを確認した。

これらの科学的知見は今までに類似報告が無く独自性の高い成果を挙げたと評価される。

(1) 水素化試験

Zr-Nb 合金およびジルコニウム合金に対して 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を確立した。通常の水素吸収試験法では水素化物が表面に近い領域に偏析している傾向が確認されたため、肉厚方向への水素化物分布の平坦化を目的にアルゴンガス気流中で追加熱処理を実施した。また冷却時水素化物配向が機械強度に大きく影響することを受け徐冷熱処理も実施した。

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。

これらの知見は当初計画通りに取得され、目標通りの成果を得た、と評価される。

(2) 劣化材料の機械的性質評価

(2) 引張試験及びナノ硬度試験

材料の機械的性質の情報取得のため、機械試験装置を導入した。本装置は(2)においても利用するため、引張と圧縮の双方の試験が可能である。また 700 までの高温試験ができるよう密閉型電気炉を付属している。Zr-Nb 合金やジルカロイ合金、ODS 鋼について降伏強度、最大引張応力を測定し、破断面を観察し、既往研究の再現を確認した。これにより A-EDC 試験のための試験機性能を確認し、またクリープ試験、A-EDC 試験、多軸応力試験のための補助的試験を行った。

また、ナノ硬度試験では Zr-Nb 合金の無垢材、水素化材、腐食材の硬度を調査し、この順で硬度が上昇することを明らかにした。

さらに、イオン照射材の放射化を考慮して、ナノ硬度と、降伏応力や最大引張応力の相関式を構築した。イオン照射材の強度試験を行い、照射硬化と約 3%強のひずみ域での塑性不安定化(チャネリング変形)を確認した。これにより、当該鋼が現行 1%塑性歪基準を上回る性能を有することを明らかにした。

これらの知見は当初計画通りに取得され、目標通りの成果が得られた。

(2) 高温クリープ試験 1 および 2

高温クリープ試験装置を導入し、また平成 25 年度より NIMS のクリープ試験装置も活用したクリープ試験を追加した。

ODS 鋼の高温クリープ試験により高速炉定常条件という限定的な温度域ではあるものの 973K までの変形機構領域図を構築した。クリープ速度と規格化応力の両対数プロットから得られる応力指数が $n=11$ であって、既往研究と同程度であることと、本実験の精度が良好であることを確認した。そして、(4) He 注入試験 2 で実施した He 注入材についてクリープ試験を実施し、一定応力下では He 注入材のほうが破断時間は短いものの、応力指数はほぼ同程度であることが分かった。ODS 鋼イオン照射材へのクリープ試験の適用は初めてのものである。

(2) 中子拡管試験

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るが、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 試験の開発を行い、以下の成果と知見を得た。

まず改良型 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、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)となることを示した。そして改良型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。尚、

本項目については前 P0 の山名教授の助言により有限要素解析を加えており、これによって改良型 EDC 試験が優れた手法であることを証明することができ、研究が大きく進捗した。また 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。

改良型 EDC 試験の開発に当たり、有限要素解析を実施することで、試料内の応力分布などの詳細な情報を取得した。これにより、試料の破断に至るまで周方向単純引張状態が維持されることを確認した。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遷移が無い、理想的な試験方法であることが証明された。また、既往研究と多軸応力試験（次項）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、水素化材や腐食材へ適用した。

この成果は国際会議での招待講演として発表され高く評価された。さらにこの手法は、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ことを明らかにした。

以上の成果から、本項目については当初目標以上の成果をあげたと評価する。

（ 2 ） 多軸応力機械試験

光学顕微鏡内引張試験装置を導入し、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、改良型 EDC 試験と同じ傾向を確認した。また有限要素解析を行い、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して挙げられる。

（ 3 ） 劣化材料のミクロ組織観察試験

（ 3 ） SEM/EBSD 観察

ジルコニウム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。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。そして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。

当初は水素化物と強度の相関を計画していたが、局所的歪が水素化物形成に影響する可能性が当事業担当者間および委員会にて指摘され、計画を拡張した。これにより水素化物の形成にかかる要素を詳細に調査することが可能となり、今後の発展が期待される。

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。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。

以上の理由から、本項目については当初目標以上の成果をあげたと評価する。

(3) TEM 観察

管理区域に透過電子顕微鏡および放射化試料を取り扱うための機器を導入した。本 TEM は磁性材料の観察を可能とする改良型である。本装置を用いて、Zr 合金の強度と組織の相関をとり、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 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た。

中性子吸収断面積の小さな Mo を添加元素として用いることで Zr-Nb 二元合金の強度因子を定量的に明らかにすることに成功した。その副産物としてより高性能な合金を開発することに成功した。

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。そして、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。

以上の理由から、本項目については当初目標以上の成果をあげたと評価する。

(4) イオン照射試験

(4) He 注入試験 1 および 2

東北大学サイクロトロン加速器を用いて ODS 鋼に対する He 注入試験を行った。照射温度 300 にて 5ppm-He 注入材を作製した。一部は照射後試験に向けて放射化量の低減待ちであり、残りは追照射を実施した。

NIMS サイクロトロン加速器を用いて ODS 鋼に対する He 注入試験を行った。照射温度 300 にて H24 年度は 10ppm、平成 25 年度は 30ppm-He 注入材を作製した。照射試料の照射後機械試験を実施した((2) 高温クリープ試験 2 に既述)。

以上から、目標通りの成果を得たと評価する。

(4) 高エネルギーイオン照射試験

東北大学サイクロトロン加速器を用い、現行の軽水炉用燃料被覆管ならびに高速増殖炉用燃料被覆管といったバルク材料を対象とした高エネルギーイオン照射試験を実施する。そのためにサイクロトロン加速器にて高エネルギー重イオンを開発し、またバルク試料用照射チャンバーを作製した(H24 報告書図 3.13.3~8)。そして、JIS S52 微小試験片を試料として温度 300 にて照射量 0.22~1.8dpa(試料厚さ平均)の照射を行った(H25 報告書表 3.14.1)。試料は放射化低減待ちであり平成 26 年度に機械試験を行うこととしている。

管状試料を対象とした照射技術については発想としては良かったが、その技術開発は非常に困難であった。そのため事業期間終了直前になって完成することができ、0.1~0.2dpa 程度の照射材を作製し、現在は冷却中である。

以上から、目標通りの成果を得たと評価する。

(4) 中エネルギーイオン照射試験

サイクロトロン加速器では達成不可能な高照射量の照射を実施するため、中エネルギー加速器を用いた照射試験を行った。そして試料表面から約 800nm 深部までの平均照射量 1.5dpa (ピーク位置の照射量 2.3dpa) 以下の照射試料を作製した。

また、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)とタンデム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 程度まではじき出し損傷に対して、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。

以上から、目標通りの成果を得たと評価する。

(5) 研究推進

< 研究開発項目：研究推進 >

4 年間の研究事業に対して、種々のコメントやアドバイス等を頂き、これらは事業内容に適宜フィードバックして研究を進めた。当初は発散気味と評価する委員もいたが、これは代表者も含めて当初から織り込んでいたことであり、また最終的には指向性を明瞭にすることでまとまった成果との評価を受けた。また当初計画以上の成果が得られたことについても相応の評価を得た。当事業終了後の発展についても議論があり、開発した種々の試験法の拡張や国際的な展開に関して有益なコメントを得た。

以上の理由から、当事業全体について当初目標以上の成果をあげたと評価する。

4.2.4 研究成果

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 件である。

特許出願については 2 件を準備中としているが、今のところ論文に力を入れており、普及活動として標準化を目指している。

本事業に関連した受賞は優秀ポスター賞 2 件 (いずれも国内) である。

また本事業では下表に示すように毎年 90~100 百万円の投資を四年間受け、延べ 100 名弱の研

究者（大学院生を含む）が事業に従事した。

	研究経費	研究者数
平成 24 年度	100 百万円	20 人
平成 25 年度	97 百万円	22 人
平成 26 年度	97 百万円	27 人
平成 27 年度	90 百万円	25 人

事業の人材育成効果としては、

学位（学士） 7 名

（修士） 8 名

（博士） 4 名（取得見込み 2 名）

であり、新規に雇用されたポスドク 3 名、新規雇用された教員 1 名の他、原子力関連企業、研究所等への就職者 6 名である。

4.2.5 結論

原子燃料は放射性物質閉じ込めの要であり、また今回の原子炉事故も踏まえて、被覆管に対しては通常運転時及び異常過渡時において破損しないことの科学的説明性が要求される。すなわち、種々の劣化事象の機構論的記述とそれを明確にするための評価手法の開発は重要である。これにより、安全性向上の観点で、事故時挙動と安全裕度を明確にすること、燃焼度等の運用制限に対する科学的根拠を明確にすること、また新材料の適用性に関する説明性を確かなものにする、などの効果がある。

特に本事業の成果は、燃焼度制限に対する科学的根拠と新材料の適用性に関する説明性に対して直接的に効果のある以下の成果をあげることができた。

まず、改良型中子拡管（A-EDC）試験は、管形状を有する燃料被覆管の応力や歪状態をより正確に記述する手法として開発を進め、実験的に手法を最適化し、これを有限要素解析により破断に至るまでの大変形領域に至るまで周方向単純引張条件であることを確認した。そして、周方向応力-周方向ひずみ曲線を取得することに成功した。本手法は純粋に周方向の引張応力場を達成できる理想的な手法であることから、材料や原子燃料に限定されない幅広い応用を目指すことができる。また、リング形状試験片を用いた多軸引張試験の開発にも成功した。この試験法も同様に有限要素解析による確認を行った。これらにより、周方向単純引張条件から RIA 時の平面ひずみ引張条件、等二軸引張条件への相関式について検討し、通常、異常過渡、事故時の燃料挙動の定量的知見を得ることを可能とした。

高温クリープ試験を用い、変形機構領域図（どの温度でどのような負荷がかかると変形速度がどうなるかを示した図）を ODS 鋼被覆管に対して作成した。研究期間とインフラの制限のため高速炉通常条件という限定された温度領域について無垢材と He 注入材のクリープ変形挙動を調査し、一般の鉄鋼材料との違いや He 脆化の影響を確認した。

劣化に関しては腐食、水素化、He 脆化、照射の要件を独立に調査対象とし、それぞれの劣化材

の作製と強度評価を進めた。そして世界最長クラスの腐食を行い、Zr-Nb 合金の良好な性能を確認した。さらに非点補正型走査型透過電子顕微鏡を用いた原子レベルの観察と化学分析から Zr-Nb 合金の腐食の機構を解明し、一般的なジルカロイとの差異を明らかにした。電子後方散乱回折法 (SEM/EBSD 法) を用いた分析により Zr 合金水素化の基礎過程を明らかにした。

イオン照射のその場組織観察のため加速器結合型電子顕微鏡の開発、引張試験片レベルのマクロ材へのイオン照射技術開発、管形状試料に対するイオン照射技術を開発した。いずれも世界的に見ても特徴のある手法であり、既に海外からの問い合わせがあるなど、新しい実験技術としての今後の発展が期待される。また、上記項目に関連して、Zr-Nb 合金に対する第三元素の影響を調べ、Mo 添加が有効な手段であることやその最適添加量や加工に向けた熱処理法などを明らかにした。今後の新材料、新被覆管としての提言が期待される。

総じて、本事業では当初目標を上回る成果を得ることができ、論文発表や学会発表、人材育成も大変好調であったと評価する。

4.2.6 今後の展望

当該事業は PWR 燃料を念頭に進めている。ここから派生する今後の課題としては以下のような課題をあげることができる。

まず、関電を中心として産学で開発した Zr-Nb 合金の実用化への適用であり、当該研究成果では Zr-Nb 合金の劣化に対する耐性を明らかにし、それに対する科学的根拠を明確に示した。さらに当該材料は現行の 1%塑性歪基準を十分に上回るという性能を有するという示すことができた。これらを活用して科学的説明性の高いより安全な被覆管材料としての確立を図る。当該材料は海外炉での照射試験と照射後試験の一部が進んでおり、これとの積極的な協調を図ることを希望している。さらに、東北大金研大洗の共同利用を活用してベルギー-BR2 炉での照射試験を本プロジェクトとは別枠で既に進めており、これにより中性子照射試験と炉外試験の相関を明確にすることとしている。

本事業では PWR 環境に特化した Zr-Nb 系合金は BWR でも開発が進んでいる。現在、別枠で BWR 燃料会社との共同研究も進めており、本プロジェクトの知見の活用が可能な段階にある。JAEA の JMTR が再稼動の際には BWR 腐食環境における材料劣化の評価にも活用が見込まれる。

さらに改良型中子拡管試験法 (A-EDC 法) は、材料破断に至るまでの純粋な周方向引張応力場が達成できる理想的な手法であることから、原子燃料に限定されず、蒸気発生器、火力発電所、石油パイプライン、動力エンジンなどにおいて管として使用される様々な材料の健全性評価に応用が可能であり、広い応用が見込まれる。合わせて開発した多軸応力試験との組み合わせにより、より複雑な変形挙動のシミュレーションとしても発展が期待される。

この他にも、高エネルギーイオン照射技術、イオン照射その場観察技術等、より広い分野での適用が見込まれる技術も開発し、これらの発展にも期待している。

今回の事業では、収差補正型走査型透過電子顕微鏡などの最先端機器を用いた原子分子レベルでの化学分析を行い、腐食のメカニズムを明らかにした。今後、本手法をより広範な材料や劣化に適用していく所存である。

160501委員会アジェンダ.txt Page 1

----- Original Message -----

From: Hiroaki Abe <abe.hiroaki@n.t.u-tokyo.ac.jp>

Date: Sun, 06 Mar 2016 17:49:57 +0900

Subject: 【原子カシステム】3月14日検討委員会アジェンダについて

原子カシステム事業関係者各位

cc: 検討委員会委員の皆様

東大の阿部です

お世話になります

3月14日の研究検討委員会ですが、当日のアジェンダ案を以下に示します
ご報告等の準備よろしくお願ひします

日にち 平成28年3月14日（月）

時間 13時から17時

場所 東北大学 金属材料研究所 1号館7階 セミナー室1

議題 本プロジェクトに関する説明
平成27年度進捗報告

スケジュール（発表20分、質疑10分を目安）

時間	題目（仮）	発表者
13:00-13:30	挨拶、事業全体の進捗概要	（阿部）
13:30-14:00	機械的性質（A-EDC）	（國井）
14:00-14:30	機械的性質（+腐食、水素化試験）	（篠原）
14:30-15:00	微細組織解析	（牟田）
15:00-15:15	（休憩）	
15:15-15:45	微細組織解析	（松川）
15:45-16:15	微細組織解析	（叶野）
16:15-16:45	機械的性質（クリープ、He注入）	（叶野、村瀬、長谷川）
16:45-17:15	微細組織解析（加速器TEM）	（村上）
17:15-17:45	総合討論	

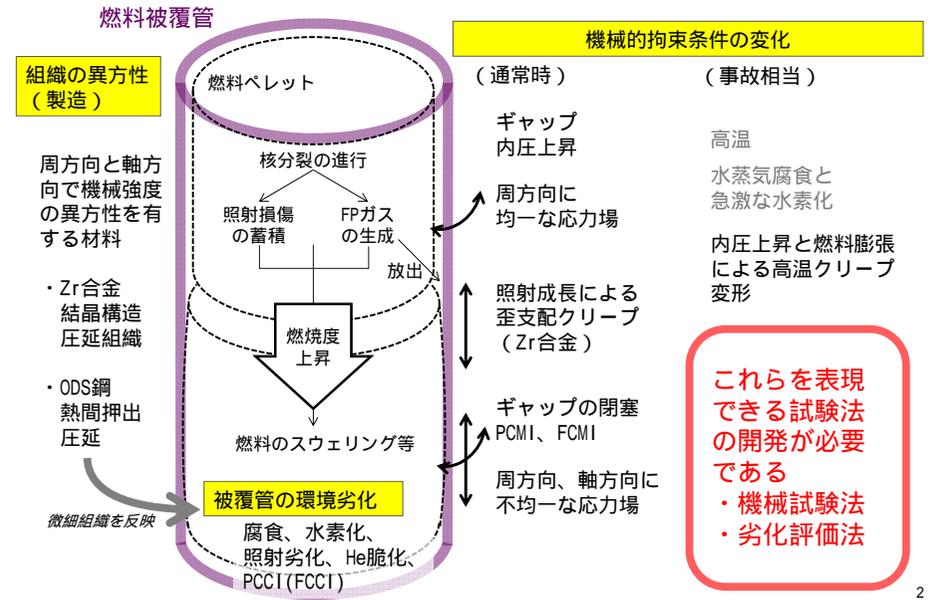
※学会発表の内容をメインとして、付加的情報はその後追加する形として
ください（特に篠原様はその対象となると思います）※機械的性質（クリープ、He注入）については、叶野先生に取りまとめを
お願ひします。村瀬様、長谷川先生Gは資料のご提供よろしくお願ひします

原子炉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

東北大学
東北大学
東京大学*
大阪大学
物材機構
NDC

阿部弘亨*、叶野 翔*、松川義孝、佐藤裕樹
長谷川晃、藪内聖皓
関村直人、村上健太
牟田浩明
村瀬義治
篠原靖周

物性、製造、環境劣化に起因した機械強度の異方性

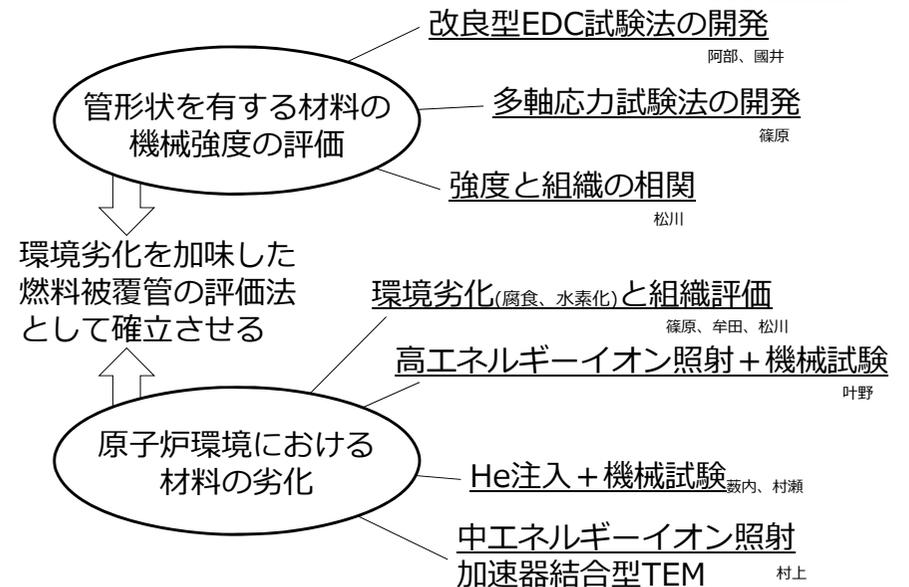


目的

軽水炉、高速炉、新型炉、第四世代炉など管形状を有する燃料が用いられるが、このような特殊な形状の材料の評価法が必ずしも確立されているわけではない。

本事業では、次世代軽水炉と高速炉の燃料被覆管材料を対象として、実機相当の劣化と負荷を模擬し、通常運転での材料健全性および事故模擬条件での材料裕度を評価する手法を開発することを目的とする。

研究の構成



全体計画とまとめの方向性

題目 「原子炉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」 年度別全体計画

業務項目	平成24年度	平成25年度	平成26年度	平成27年度
(1) 材料選定と材料劣化試験				
材料供給1 (NDC)		Zr系材料の入手、試料加工、供給		
材料供給2		Fe系材料の作製、試料加工、供給		
腐食試験 (NDC)		腐食試験と腐食材の分析、供給 (中間食量)	(高腐食量)	
水素化試験 (NDC)		水素化試験と水素化材の分析、供給 (中水素化量)	(高水素化量)	
(2) 劣化材料の機械的性質評価				
引張試験およびナノ硬度試験	装置導入	技術開発 (1)および(4)	より供給を受けた材料の機械試験	
高温クリープ試験	装置導入	技術開発 (1)および(4)	より供給を受けた材料の機械試験	
中子伝管試験	装置導入	技術開発 (1)	および(4)より供給を受けた材料の機械試験	
多軸応力機械試験 (NDC)	装置導入	技術開発 (1)	より供給を受けた材料の機械試験	
(3) 劣化材料のミクロ組織観察試験				
SEM/EBSD観察 (大阪大学)	機器整備	(1)および(2)	より供給を受けた材料の組織観察/分析試験	
TEM観察	機器整備	(1)、(2)	および(4)より供給を受けた材料の組織観察/分析試験	
(4) イオン照射試験				
He注入試験1	技術開発	He注入 (低注入量)	(中注入量)	(高注入量)
He注入試験2 (NIMS)	技術開発	He注入 (低注入量)	(中注入量)	(高注入量)
高エネルギーイオン照射試験	技術開発	イオン照射 (低照射量)	(中間照射量)	(高照射量)
中エネルギーイオン照射試験 (東京大学)	技術開発	イオン照射試験、およびその他の腐蝕試験 (無腐材)	(水素化材)	
(5) 委員会		まとめ 委員会	まとめ 委員会	まとめ 委員会

5

プロジェクト全体の進捗評価

別表参照

6

まとめ：材料開発への反映

・ Zr-Nb合金の高い機能性とその機構の解明

耐水素化
耐食性
腐食のメカニズム
照射耐性



詳細は
本日発表にて

・ 更なる高機能化

Zr-Nb-Mo合金の開発

7

まとめ：規制への反映

- ・ 管形状材料に対する周方向強度評価法 (A-EDC法) の開発
- ・ 周方向応力-周方向ひずみ曲線の取得法の確立
- ・ Zr-Nb合金の腐食の機構、耐食性、耐水素化性、耐照射性



・ 1%塑性歪基準：

水素化Zr-Nb合金ではフープ破断ひずみが14% (暫定値)、イオン照射した同鋼では、10%@5.3dpaあり、十分に保守的 (過度の保守性?)

・ 1200℃-15%ECR： (ただし、本事業の対象ではない)

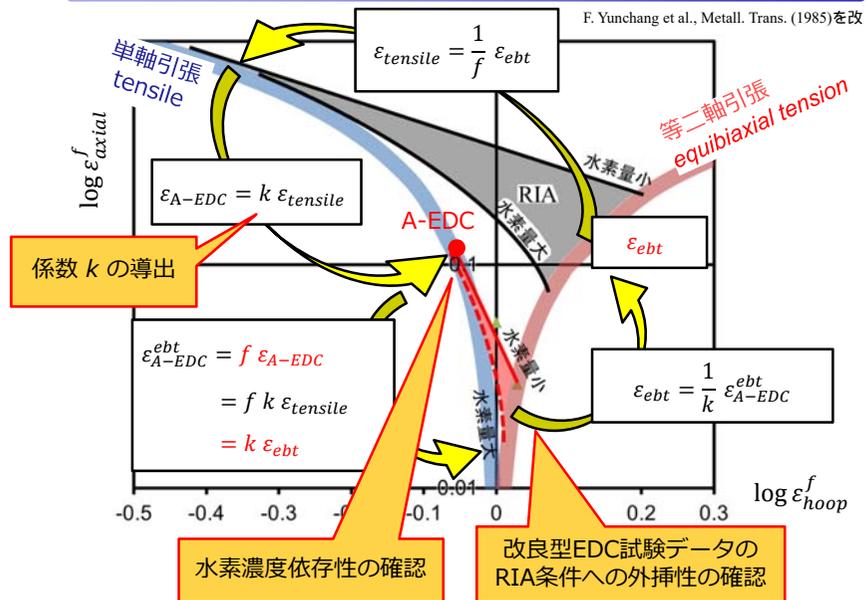
Zr-Nb合金は耐食性に優れることからZryを凌ぐと予想

・ RIA

A-EDCの適用性を検討 (次頁)

8

RIAへのA-EDC試験の適用性



9

まとめ

当事業では、管形状を有する材料の強度評価手法を確立し、材料劣化機構に基づいた強度変化として記述することにより、規制と開発の双方に資する科学的知見としてまとめた。

10

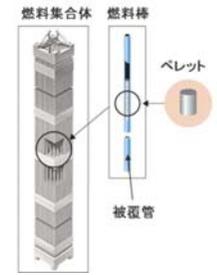
管形状材料の周方向機械強度の評価 (改良型中子拡管試験法の開発)

東北大学
國井大地

燃料被覆管

役割: 燃料ペレットを直に保護、放射性物質を閉じ込める

劣化の要因: 照射損傷、水素脆化、腐食減肉
ペレット-被覆管機械的相互作用(PCMI)



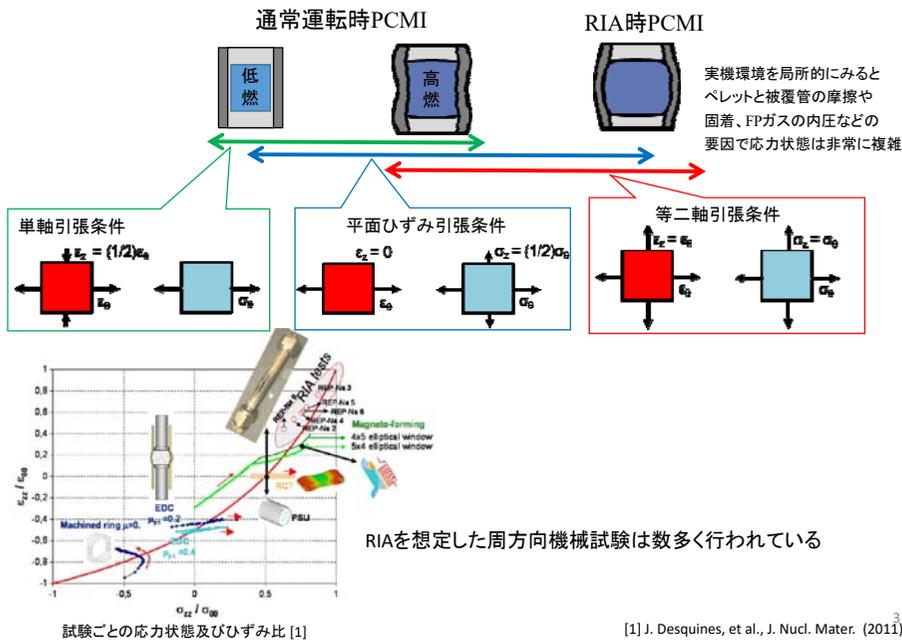
~安全評価上の要求事項~

通常運転時の異常過渡変化時に機械的に破損しないこと

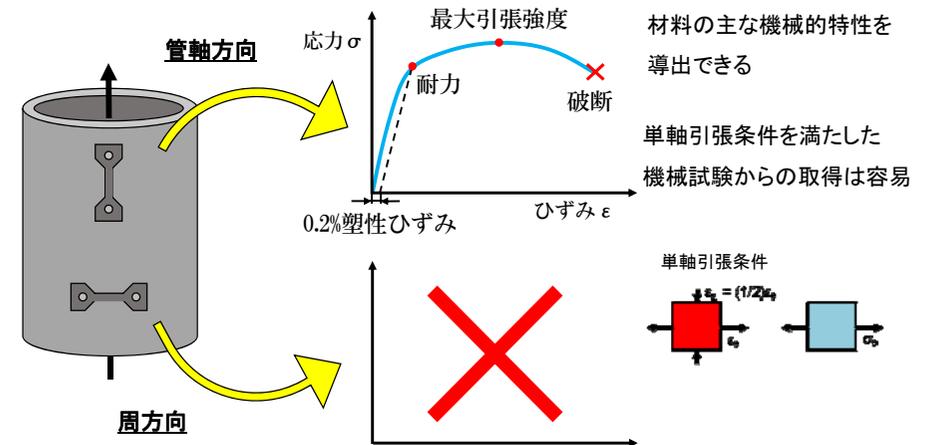
被覆管の円周方向の平均塑性ひずみが1%以下であること

周方向機械強度を評価する手法の確立は重要である

PCMIにおける被覆管の応力状態



材料評価における応力-ひずみ曲線の重要性



単軸引張条件を満たした機械試験から基礎データ(周方向応力-周方向ひずみ曲線)を導出する手法は確立されていない

本研究の目的

周方向における単軸引張条件を満足する試験を開発し

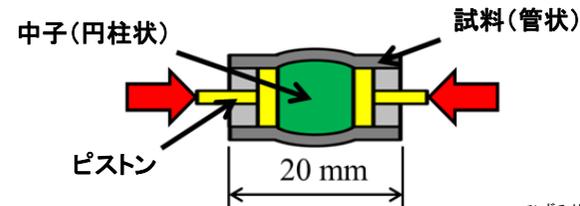
周方向応力-周方向ひずみ曲線を導出する手法を確立する

得られた機械強度から試験再現性及び妥当性を検証する

試験開発の経緯①

中子拡管(Expansion Due to Compression: EDC)試験に着目

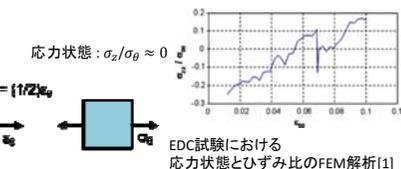
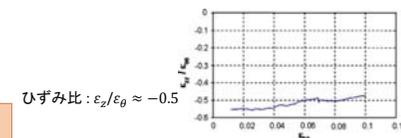
円柱状の中子を圧縮し、径方向へ膨張させることで管状試料に周方向応力を負荷させる



○ 径方向に均一に押し広げることが可能

○ 単軸引張条件を達成(一部)

✗ 応力状態が安定しない



破断まで安定した単軸引張条件を達成していない

試験開発の経緯②

A-EDC(Advanced-Expansion Due to Compression)試験の開発

試料をリングとすることで
摩擦箇所及び試料体積の
減少を達成

中子を銅にし
高温での試験が可能

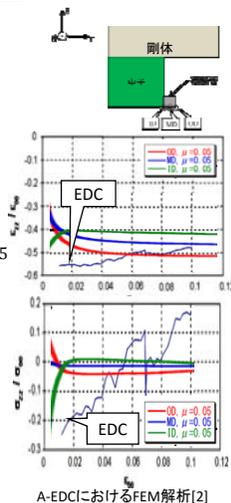


安定した応力状態、ひずみ比を達成

破断まで安定した単軸引張条件を達成

ひずみ比: $\varepsilon_z/\varepsilon_\theta \approx -0.5$

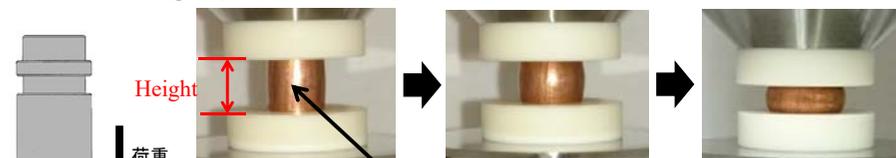
応力状態: $\sigma_z/\sigma_\theta \approx 0$



信頼性の高い周方向応力-周方向ひずみ曲線を導出できる可能性がある

試験方法

① 中子圧縮試験



中子 (円柱)
材質: Cu
形状: φ8mm × 高さ8mm

② A-EDC試験



試料 (リング)
材質: Zry-4
形状: 高さ1mm, 外径9.5mm, 内径8.3mm

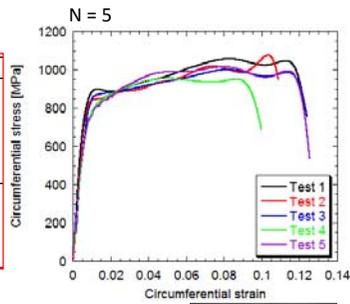
摩擦効果
箇所: 中子-リング試料間
摩擦係数: 0.05 (潤滑剤による摩擦低減処理)

単軸引張条件を達成

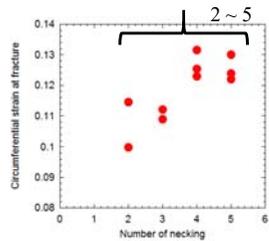
高さ変位[mm]、外径変位[mm]、荷重[kN]を取得

A-EDC試験再現性の考察

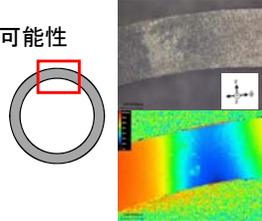
	ヤング率[GPa]	0.2%耐力[MPa]	最大引張強度[MPa]	破断ひずみ
Test 1	107.7	877.7	1057.1	0.1230
Test 2	104.0	842.7	1075.3	0.1088
Test 3	96.6	860.5	1000.0	0.1240
Test 4	102.5	760.1	955.9	0.0999
Test 5	94.8	760.4	1015.5	0.1254
平均値	101	820.3	1021	0.116
標準偏差	4.77	50.25	42.35	0.0101
変動係数	4.72	6.13	4.15	8.71
ばらつき[%]	12.8	14.3	11.7	22.0



- ✓ 試験再現性を示すヤング率は約13%以内に収まる
- ✓ 破断ひずみはばらつきが大きい ← 複数のくびれが原因の可能性



試験ごとにくびれの数はばらつく

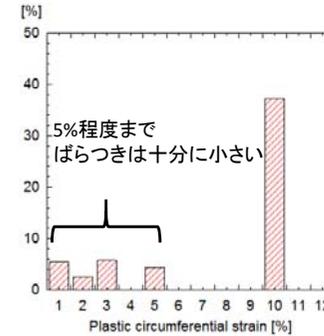
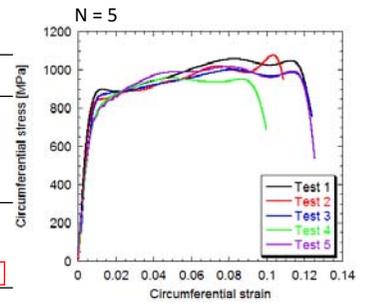


くびれの数と破断ひずみは相関性がある

破断ひずみ値はばらつきが大きくなる可能性がある

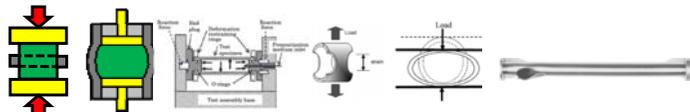
A-EDC試験の妥当範囲

	1%塑性歪	2%塑性歪	3%塑性歪	5%塑性歪	10%塑性歪
test 1	889.3	900.9	935.9	994.0	1034.4
test 2	857.2	886.4	904.4	960.2	1002.9
test 3	879.4	893.5	916.4	954.9	975.0
test 4	846.4	897.7	928.3	950.9	686.7
test 5	841.8	909.4	958.3	989.5	971.5
平均値	862.8	897.6	928.7	969.9	934.1
標準偏差	18.56	7.65	18.27	18.17	125.76
変動係数	2.15	0.85	1.97	1.87	13.46
ばらつき[%]	5.5	2.6	5.8	4.5	37.2



➡ A-EDC試験は5%塑性歪領域内では十分な再現性を持つ試験である

他試験との比較



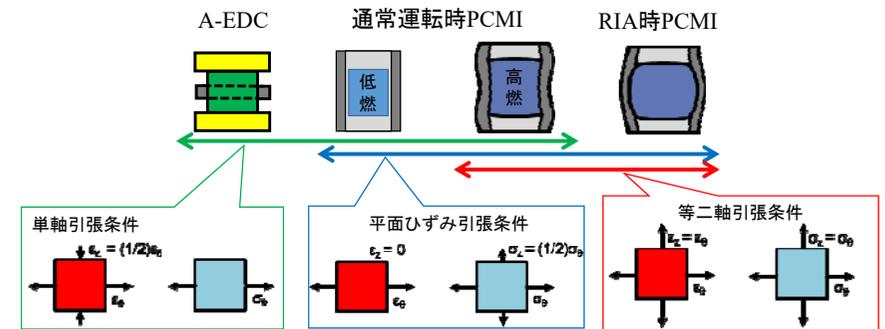
	A-EDC	EDC	OEB	リング引張	PST	リング圧縮	バースト	板状引張(管軸方向)
ヤング率	101.0	90	-	85	-	99	-	97
0.2%耐力	820.3	670	740	700	830	718	530	480
最大引張強度	1021.0	-	765	765	950	765	560	530
破断ひずみ	0.116	-	-	0.36	0.5	0.1	0.42	0.07
応力比	0	-	-	-0.5	0.5	0.5	0.5	-
ひずみ比	-0.5	-	-	-0.7	0	0	0.2	-

- ✓ ヤング率は周方向、管軸方向ともあまり変化しない
- ✓ 0.2%耐力及び最大引張強度は周方向において高くなった

周方向と管軸方向は機械的性質がまったく異なる

➡ 周方向試験の重要性を再確認した

A-EDC試験の今後の応用の方向性



- ✓ RIA模擬試験 ... 応力状態の異なる試験として、データを補助
- ✓ 新材料 ... 周方向における基礎データ取得のために非常に有用
- ✓ 他分野材料 ... 室温において管が膨張する環境で使用されるすべての材料に対して基礎データ取得の際に非常に有用。管状材料は成形時に集合組織が形成されるため、周方向の機械的特性の調査は重要。

ご清聴ありがとうございました

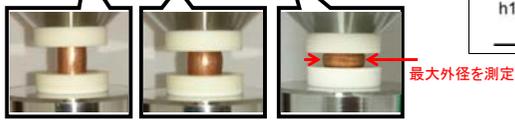
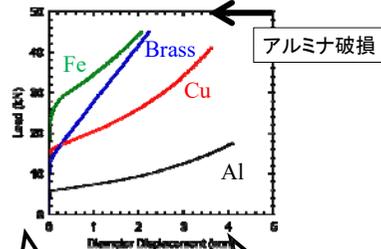
補足スライド

中子の選定

材質

要求条件

- 被覆管が破断するまで十分な変形が付与出来ること
- 剛体(アルミナ)の破損が生じないこと



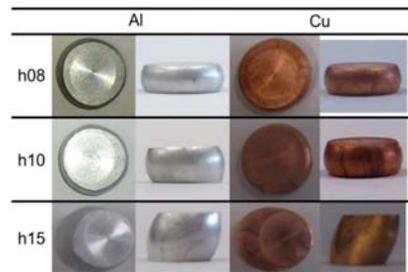
剛体が破損しない範囲でフープ方向に30%程度の変形を与える。

Al, Cuが選定

形状

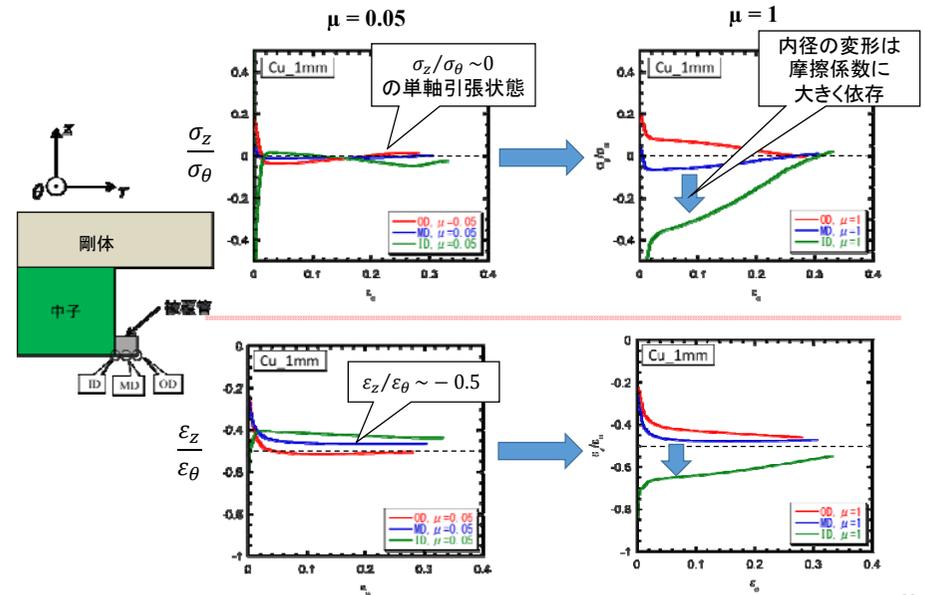
要求条件

- 再現性が高く、均一な変形であること



高さ8 mmを選定

応力状態 ひずみ比



従来の試験法との比較

改良型に関してはリング幅1 mm, 摩擦係数の $\mu = 0.05$ で議論する.

変形法について

改良型: 中子の不均一な変形によりひびれを複数発生

従来型: 多数のせん断帯が観察

→破断フープひずみ値を過小に評価している可能性

機械的特性に関して

改良型: 誤差も小さく, 安定したひずみ値(標準偏差: 0.007)

従来型: 破断ひずみ値は約0.55から0.75に分布

但し, ひずみ速度が異なるため比較は行えない.

破断に関して

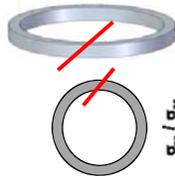
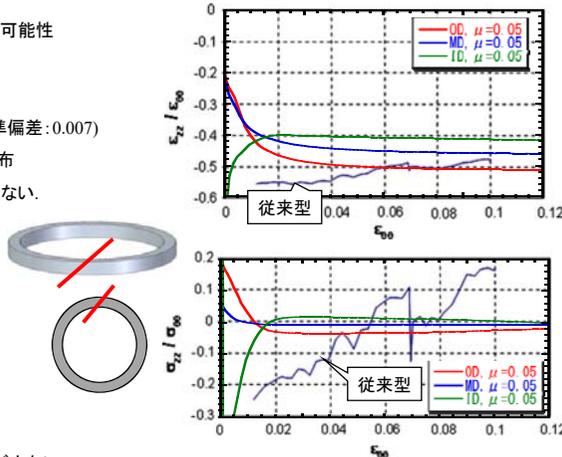
改良型: 径方向から見て45° 傾く

従来型: 管軸方向から見て45° 傾く[5]

応力状態, ひずみ比

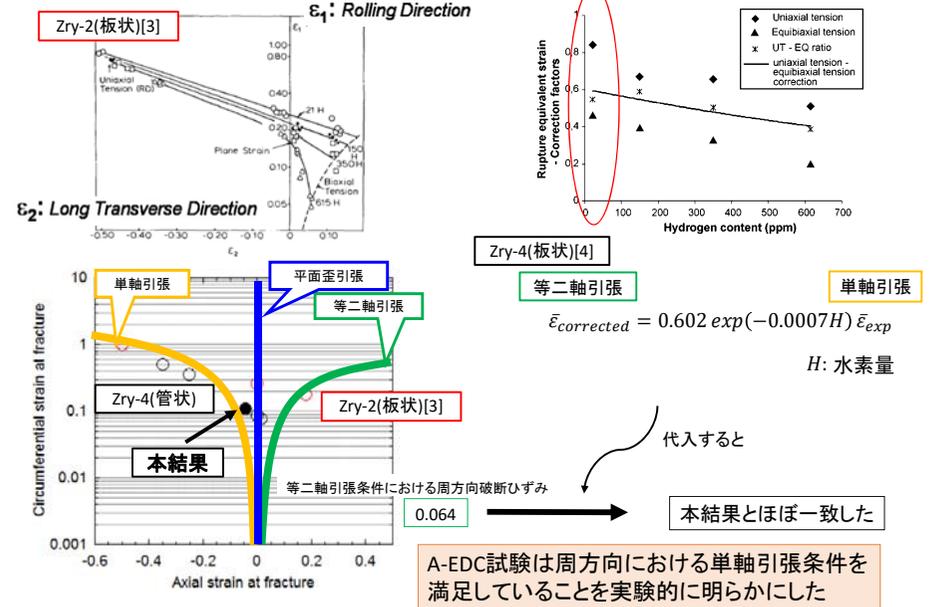
従来型: $\frac{\sigma_z}{\sigma_\theta} \approx -0.5$ $\frac{\sigma_r}{\sigma_\theta} \approx 0$ 単軸引張状態

改良型: より安定した単軸引張状態で, 変動が少ない.



[5] M. Le Saux et al., Engineering Failure Analysis 17 (2010) 683–700.

応力状態の異なる試験 破断時ひずみ比較



[3] F. Yunchang, et al., Metallurgical Transactions A (1985)

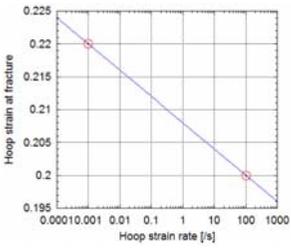
[4] S. Leclercq, et al., Nuclear Engineering and Design (2008)

破断ひずみのひずみ速度依存

	A-EDC	EDC	OEB	リング引張	PST	リング圧縮	パースト	板状引張(管軸方向)
ヤング率	101.0	90	-	85	-	99	-	97
0.2%耐力	820.3	670	740	700	830	718	530	480
最大引張強度	1021.0	-	-	765	950	765	560	530
破断ひずみ	0.116	-	-	0.36	0.5	0.08	0.42	0.07
ひずみ速度	10^{-2} - 10^{-3}	-	-	10^{-2}	10^{-2}	10^{-3}	-	1
応力比	0	-	-	-0.5	-	0.5	-	0.5
ひずみ比	-0.5	-	-	-0.7	-	0	-	0.2
軸方向ひずみ	-0.048	-	-	-0.252	-0.35	0	0.0156	-

破断後試料を測定
ひずみ比は-0.41

破断ひずみとひずみ比から算出

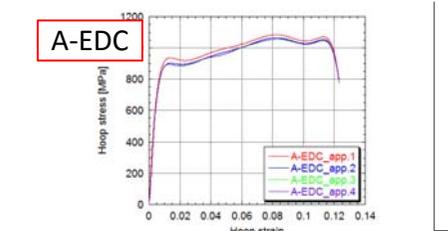


室温におけるZry-4周方向破断ひずみの速度依存[5]

[5] T.M. Link, et al., Nuclear Engineering and Design (1998)

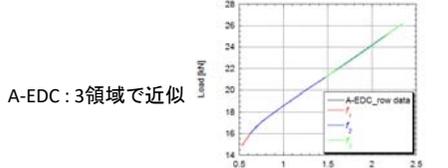
フィッティングの考察

最適な近似曲線を決定するため
近似曲線の領域及び本数をかえてS-Sカーブを導出した

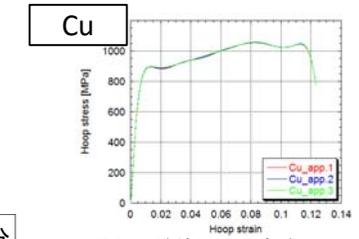
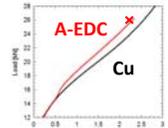


近似1,2は弾性域及び降伏近傍で近似が不十分

	ヤング率[GPa]	0.2%耐力[MPa]	最大引張強度[GPa]
近似1	123.5	900.0	1084.1
近似2	115.3	878.3	1065.2
近似3	107.7	876.1	1055.4
近似4	108.0	877.8	1057.5

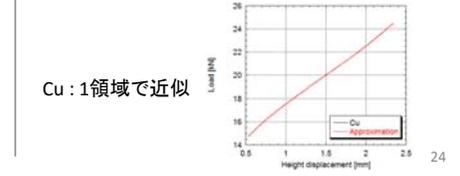


A-EDC: 3領域で近似



ほとんど差はみられない

	ヤング率[GPa]	0.2%耐力[MPa]	最大引張強度[GPa]
近似1	107.7	876.1	1055.4
近似2	107.4	875.5	1056.0
近似3	107.8	875.7	1059.1



Cu: 1領域で近似

原子炉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

多軸応力機械試験、腐食および水素化試験

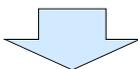
NDC 篠原 靖周

2016.03.14 燃料・炉心研究部 材料技術開発室

多軸応力機械試験

背景および目的

- 被覆管の変形/破損がPCMI起因の場合、変形は主に周/軸方向に引張応力が負荷される多軸応力場によって進行する。
- 多軸応力場は破損歪に影響することが知られており、PCMI時の機械挙動の理解進展のためには、多軸応力場の変形/破壊挙動への影響を把握することが重要。
- 燃料被覆管材での多軸応力場における機械特性に関する報告は限られており、試験/評価手法の開発が必要。



- 本研究では、多軸応力下における燃料被覆管材の機械試験手法を開発し、腐食や水素化等の材料劣化因子と併せ、燃料被覆管材の機械特性への多軸応力場の影響を検討することを目的とした。

<参考: Zry2シート材の多軸応力下破損限界>

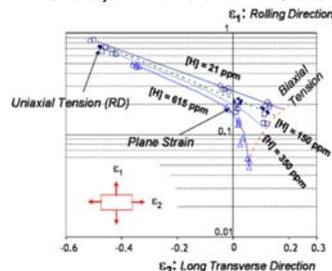


Fig. 3. A room temperature fracture limit diagram for recrystallized Zircaloy-2 sheet at four levels of hydrogen content. The values of ϵ_1 and ϵ_2 refer to the major and minor principal strains respectively in the plane of the sheet at fracture. After Yunchang and Koss [16].

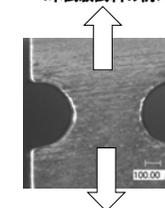
J.Desquines, et al., J.Nucl.Mat.412 (2011).

検討方針

切欠き付試料を用いた多軸応力試験の開発

- 切欠き形状寸法をパラメータとすることにより多軸応力度ある程度の範囲で変化させることが可能。
- 試料寸法を小さくでき、試験体系がシンプル。

<本試験試料の例>



項目	H24-25年度	H26年度	H27年度
1. 切欠き効果の概要把握、準備 ✓ ロッド状、板状および管状での挙動確認 ✓ 試料寸法形状（切欠き半径、リガメント幅）による影響確認 ✓ 装置準備等			
2. 試料形状パラメータの影響評価 ✓ 切欠き半径、切欠き深さ、およびリガメント幅の多軸応力度に対する影響の詳細確認			
3. 試験体系確立、試験および評価			

➤ 受取材を用いた試験・評価手法の確立

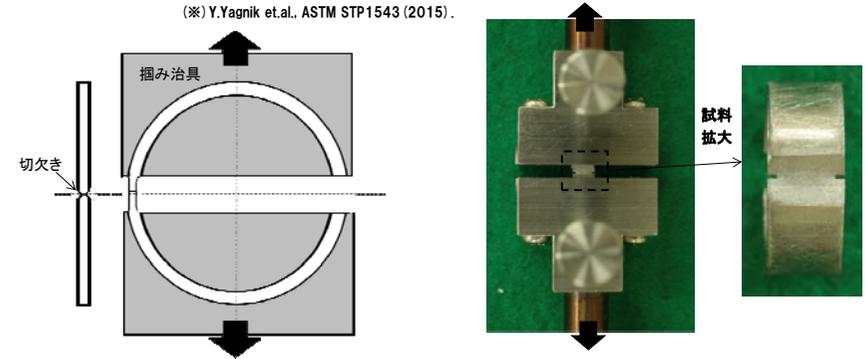
- ✓ 試料形状、試験体系の検討
- ✓ ひずみ分布測定、FEM解析による応力評価
- ✓ 応力多軸度合と延性の関係評価

➤ 水素化および高温酸化の機械特性への影響確認

- ✓ 上記で確立した手法を用いて、水素化材および高温酸化材の試験実施

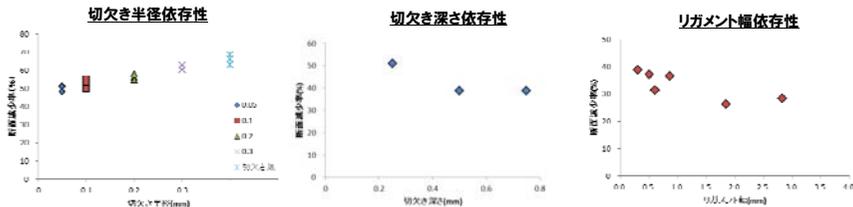
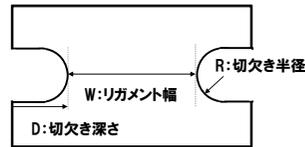
➤ 試験体系

ISATP法(※) ベースの切欠き付試料引張試験
 (ISATP: Internally Slotted Arc Tension specimen with Parallel gauge section)
 (※) Y.Yagnik et al., ASTM STP1543 (2015).

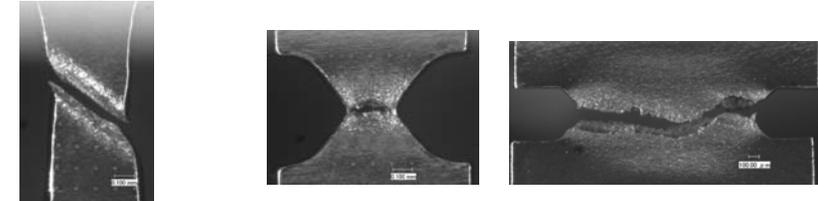
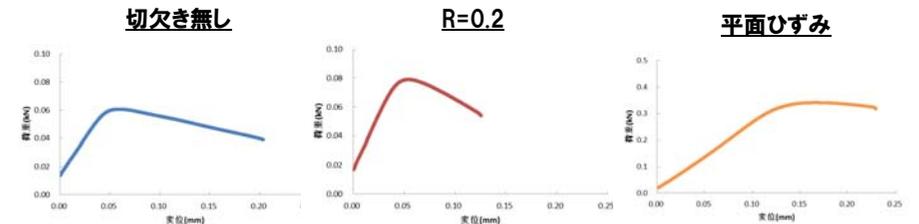
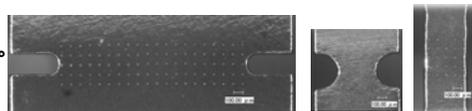


- 曲げや摩擦の影響を除外し、周方向に比較的均一な応力負荷が可能な周方向引張試験体系をベースとして試料ゲージ部に軸方向の切欠きを加工。
- 切欠きに挟まれた領域において、変形に伴って形成されるひずみ分布を把握するために試料変形の様子を観察を実施。

- 材料: 低Snジルカロイ4被覆管
- 試験温度: 室温
- 引張速度: 1×10^{-3} mm/sec
- 試料寸法形状: 以下の断面減少率データを踏まえて設定 (昨年度成果)



⇒ 多軸度合と延性の関係より、できるだけ低延性状態(平面ひずみ状態に近づける)ことを指向し、R=0.1mm、D=0.5mm、W=2.0mmとした(以降、平面ひずみ試料と称称)。比較のため、切欠き無しおよびR=0.2mm (D=0.25W=0.5mm) についても供試した。

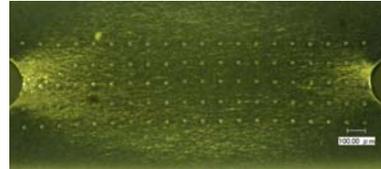


- 切欠き効果(応力集中効果)により、塑性変形量が減少する傾向。
- 平面ひずみ試料では塑性変形領域での荷重低下が小さく、破面が肉厚方向に対して傾斜しており、単軸引張(切欠き無し)からの破壊モードの変化が伺える。

ひずみ分布測定手法

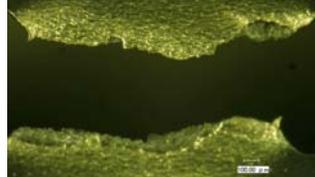
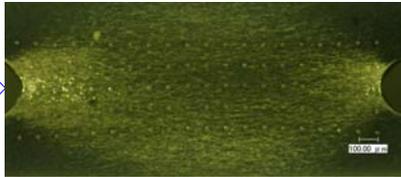
試験前

最大荷重時



クラック発生時

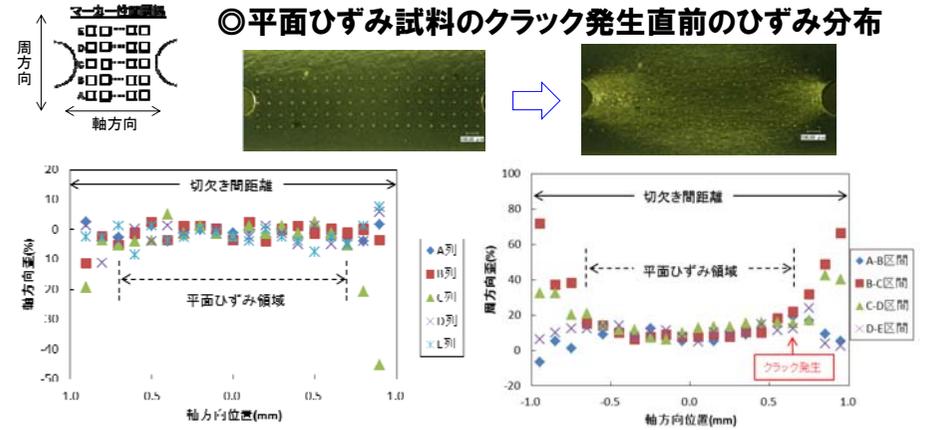
破断



- リガメント領域に、0.1mm間隔でFIBを用いたタングステンデポジットによりマーカーを配列加工した。
- 引張試験中に動画撮影を行い、試験後に各マーカーの変位をキャプチャ画像で求め、周および軸方向のひずみ分布を測定した。

ひずみ分布測定結果

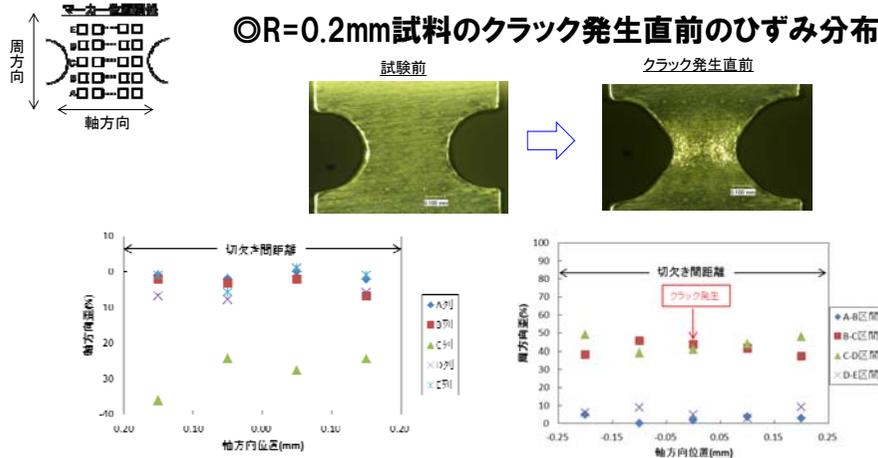
◎平面ひずみ試料のクラック発生直前のひずみ分布



- リガメント幅中央70%程度の領域でネットキングが無く、平面ひずみ場(軸/周応力比 ≈ 0.5)が形成されていることが確認された。
- クラックは、平面ひずみ場内の端部で発生する傾向。
⇒当該位置でのクラック発生直前の周方向歪(以降、破壊ひずみと呼称)は17%程度

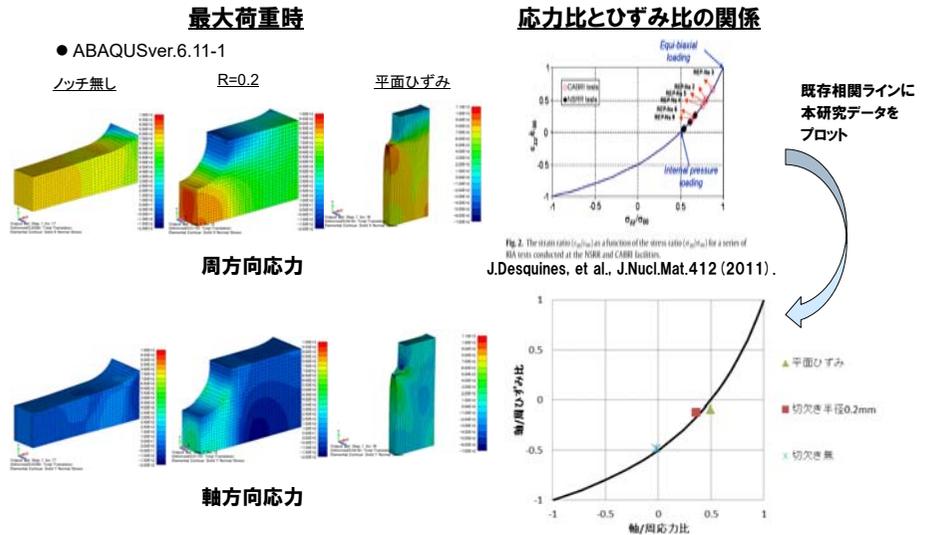
ひずみ分布測定結果

◎R=0.2mm試料のクラック発生直前のひずみ分布



- 周方向中央部で顕著なネットキング(圧縮歪:30%程度)が確認された。
- クラックは、軸方向中央部にて発生。破壊ひずみは42%程度

FEM解析による応力多軸度(軸/周応力比)の評価



- 軸/周応力比が約0(単軸引張)~約0.5(平面ひずみ)の範囲となることを確認

◎多軸応力度の変化と破壊ひずみの関係

<Zry2シート材の多軸応力下破壊限界>

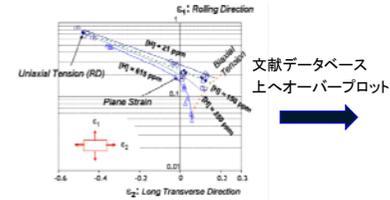
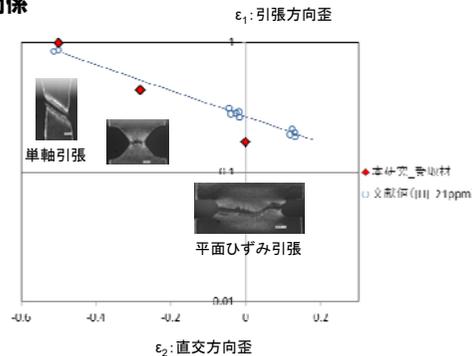


Fig. 3. A room temperature fracture limit diagram for recrystallized Zircaloy-2 sheet at four levels of hydrogen content. The values of ϵ_1 and ϵ_2 refer to the major and minor principal strains respectively in the plane of the sheet at fracture. After Yonsheng and Kato [16].

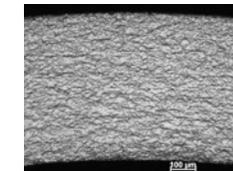
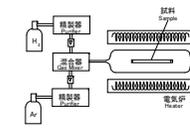


単軸引張の破壊ひずみ(ε₁)は、断面減少率(φ)の値を用いて、 $\ln(1/(1-\phi))$ より導出

- 本試験で得られた破壊ひずみは、従来データと概ね同様の傾向であり、多軸応力度の増大とともに低下する傾向を示した。
- 従来知見の傾向に比べ、平面ひずみ条件での破壊ひずみがやや小さい傾向。
⇒ 集合組織状態、熱処理条件の相違の影響等について、今後更なる検討要。

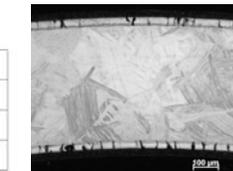
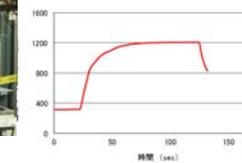
◎水素化材

- 材料: ジルカロイ4
- 水素量: 600ppm目標
- 試料形状: 切欠き無、R=0.2mm、平面ひずみ



◎高温酸化材

- 材料: ジルカロイ4
- 酸化条件: 1200℃×60sec
- 試料形状: R=0.2mm



- 上記の脆化状態を模擬した各材料に対し、本検討手法を適用。

◎多軸応力度の変化と破壊ひずみの関係(水素化材、高温酸化材)

<Zry2シート材の多軸応力下破壊限界>

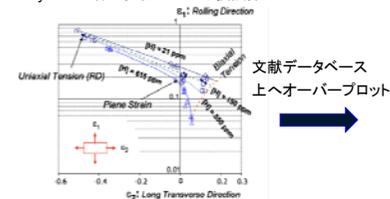
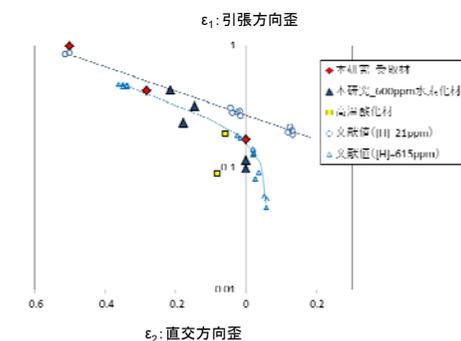


Fig. 3. A room temperature fracture limit diagram for recrystallized Zircaloy-2 sheet at four levels of hydrogen content. The values of ϵ_1 and ϵ_2 refer to the major and minor principal strains respectively in the plane of the sheet at fracture. After Yonsheng and Kato [16].



- 600ppm水素化材は、従来データと概ね同様の傾向であるが、平面ひずみ条件でやや低い破壊ひずみとなる傾向。
- 高温酸化材では、バラツキが比較的大きく、高温組織の不均一性が反映されたものと推察。

- 多軸応力試験として、切欠き付試料の引張試験を検討した。

- 引張体系は曲げおよび摩擦の影響を除外可能な体系とし、試料形状パラメータ(切欠き半径、切欠き深さ、およびリガメント幅)を振った試験により、軸/周応力比が約0(単軸引張)~約0.5(平面ひずみ)となる形状を把握した。

- 試料中のひずみ分布の測定およびFEM解析による応力比の確認を行った。

- 本試験に供試したジルカロイ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、概ね従来知見の傾向と一致していた。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して挙げられる。

腐食・水素化試験

腐食試験条件

供試材

- ✓ Zr-1.8Nb、Zr-1.6Nb-0.1Cr、Zr-2.5Nb
- ✓ 低Snジルカ洛伊-4(参照用)
- ✓ 形状・寸法: 管状、50/100mm長

温度、圧力

- ✓ 360℃、18.7MPa以上
- ✓ →PWR被覆管表面温度に近く、非沸騰条件

水質

- ✓ 純水+2.2ppmLi/500ppmB
⇒PWR一次冷却材環境模擬、
- ✓ 現行水質の代表条件

試験時間

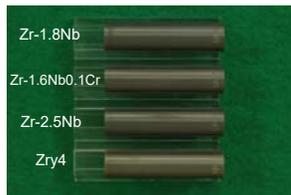
- ✓ 初年度(イニシアティブ事業)からの累積16450h



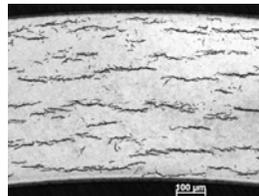
腐食試験装置

腐食試験後(16500h後) 外観・金相観察

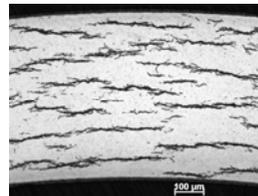
外観



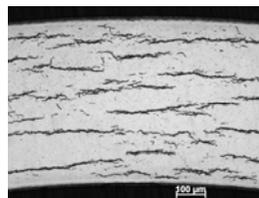
Zr-1.8Nb



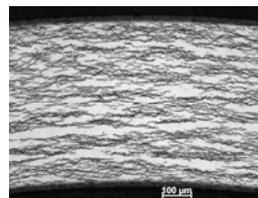
Zr-1.6Nb-0.1Cr



Zr-2.5Nb

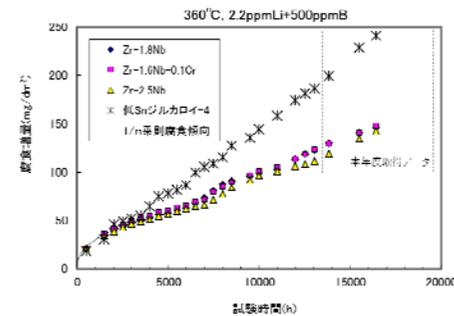


低Snジルカ洛伊-4

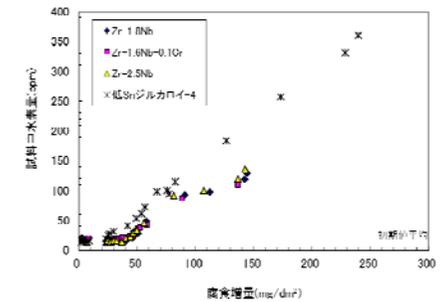


重量変化、水素吸収量変化

◎腐食増量の経時変化



◎試料中水素量と腐食増量の関係



➤ Zr-Nbの高耐食性、耐水素吸収特性を確認

水素化試験条件



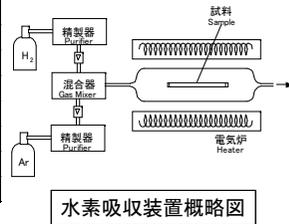
◎試験条件

- ✓ Zr-1.8Nb、Zr-2.5Nb
- ✓ 目標水素量、製作数
右表
- ✓ 温度、保持時間
400~420、0~2h程度
- ✓ ガス流量
アルゴン(99.999%) : ~0.5l/min
水素(99.99999%) : ~25ml/min
- ✓ 冷却速度
炉冷(約100 /h)

材料	目標水素量	本数
Zr-1.8Nb	200ppm	2
	500ppm	2
	800ppm	2
	1000ppm	2
	1200ppm	2
	1500ppm	2
Zr-2.5Nb	200ppm	2
	500ppm	2
	800ppm	2
	1000ppm	2
	1200ppm	2
	1500ppm	2



水素吸収装置外観

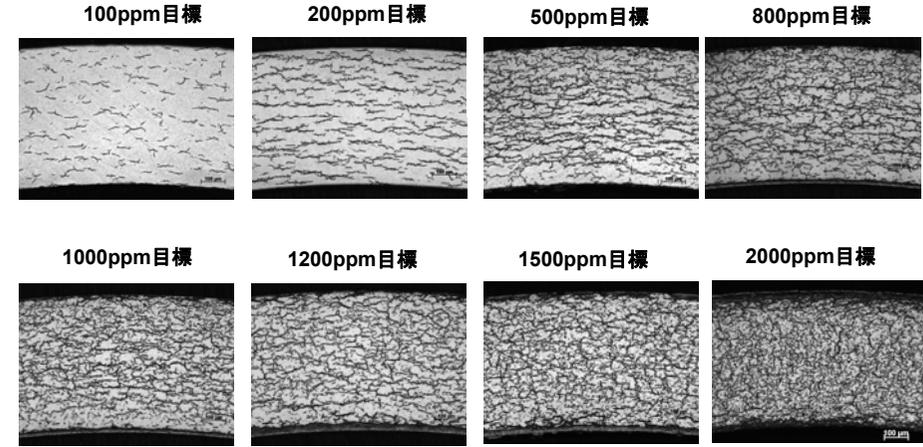


水素吸収装置概略図

水素化試験後金相観察



◎Zr-2.5Nb



➤ 予定数量を東北大へ完納

腐食、水素化試験 まとめ



- 累積時間16450時間の長期腐食試験を実施し、Zr-Nb合金の良好な耐食性および耐水素吸収特性を確認した。
- 水素化試験を実施し、所定数量の水素化材を作製し、東北大へ送付した。
一部については、NDCにおける機械試験に適用した。

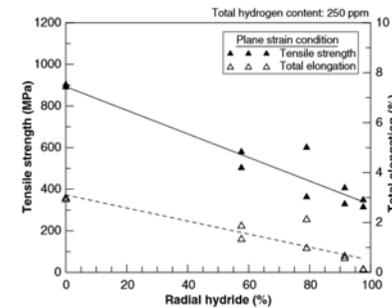
原子燃料被覆管の安全設計基準に資する環境劣化評価手法開発 (3)劣化材料のミクロ組織観察 SEM/EBSD観察

(原子力学会での発表内容について述べさせていただきます)

Yamanaka Laboratory
muta@see.eng.osaka-u.ac.jp
http://www.see.eng.osaka-u.ac.jp/seems/seems/

東北大学 松川 義孝
大阪大学 牟田 浩明

研究背景



引張強度および伸びの水素化物配向性依存性*
(Zry-4 SR材、250 ppmH)

*H.C. Chu, et al, J. Nucl. Mater., 362 (2007) 93.

■ 軽水炉被覆管では水素化物の析出による脆化が強度劣化の主要な要因のひとつとなっている

■ しかしマクロな被覆管の強度の劣化は水素化物の配向性、組織に強く依存しており、定量的な評価は難しい



後方散乱電子回折 (EBSD) 法により、微小領域でのZr粒のひずみ量を評価し、ここから破損についての知見を得る

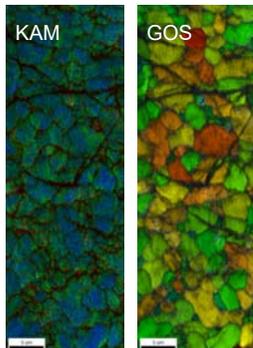
- ひずみ量-GOS関係のデータ追加
- 水素化+機械試験材のEBSD観察

EBSD法による局所ひずみ評価

■ EBSD法による局所ひずみ量の評価は鉄系材料で多く報告があり*、KAM, GOSなど様々な指標がひずみ量と比例することが知られている

*M. Kamaya, et al, Nucl. Eng. Design, 235 (2005) 713.

■ 本研究では粒ごとの値が得られるGOS (Grain Orientation Spread: 結晶粒方位分散) に着目した



引張試験材のIQ+KAM/GOSマップ

局所方位差KAM:

$$KAM_i = \frac{\sum_{j=1}^6 \alpha_{ij}}{6}$$

隣り合うピクセル同士の、局所的な方位差を評価する

結晶粒方位分散GOS:

$$GOS_i = \frac{\sum_{j=1}^n \alpha_{ij}}{n(n-1)}$$

粒内の広い範囲にわたる方位差を評価する

実験: ひずみ量-GOS関係データの取得

■ 試料準備

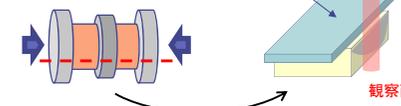
- NDC/MNFより製造、また東北大学においてAEDC試験を施されたZr-2.5Nbリング材について表面をイオンミリングし、EBSD観察を行った

材質	塑性ひずみ量
Zr-2.5Nb	0 %, 2.3 %, 4.0 %, 8.7 %, 10.5 %, 16 %, 21 %

青字は新規試料、黒字はデータ追加

■ 表面調整

- 銅製中子ごと切断

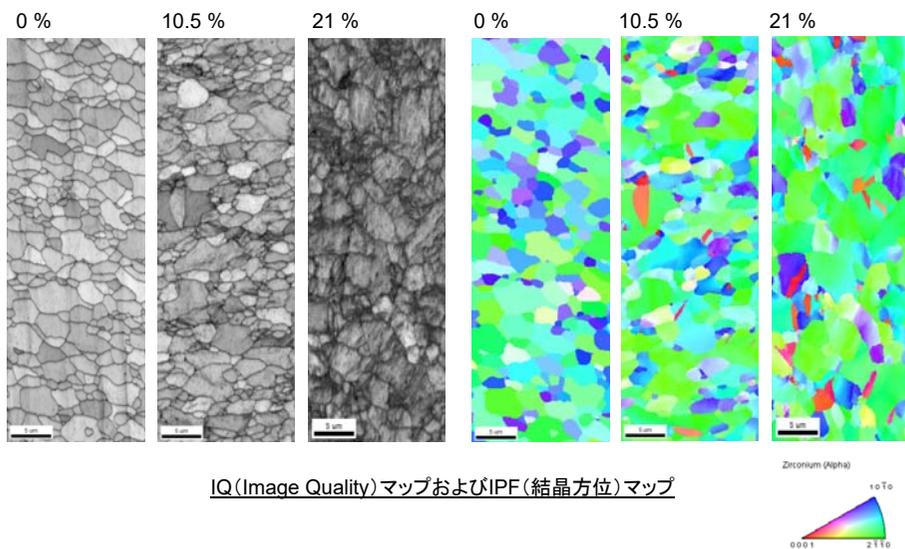


- 樹脂埋め後にクロスセクショナルポリリッシャによるArイオンミリング (加速電圧3.6 kV)

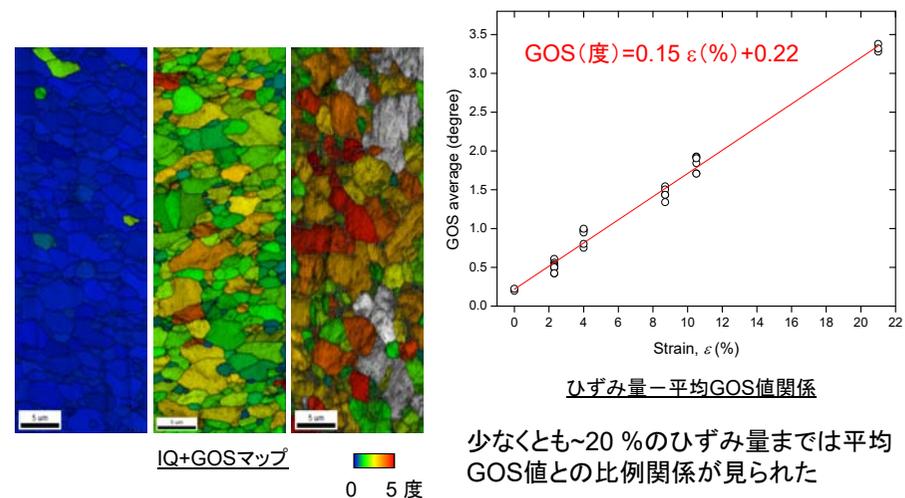
■ EBSD観察条件

- JEOL製JSM-6500Fを使用
- ステップサイズ: 0.1 μm
- 加速電圧: 30 kV
- α-Zrのみを対象

結果:ひずみ量-GOS関係データの取得 5/12



結果:ひずみ量-GOS関係データの取得 6/12



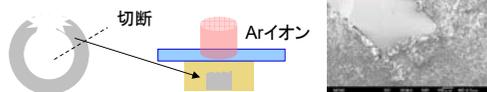
実験:水素化+機械試験材の観察 7/12

■ 試料準備

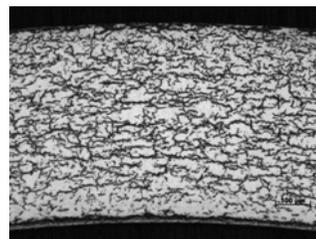
- 1000 ppm水素化Zr-Nbリング材について、AEDC試験により破断させた試料についてEBSD観察を行った

材質	実験条件等
Zr-2.5Nb	水素量: 1000 ppm (360°Cでガス吸収後550°Cにて60時間熱処理) 破断ひずみ量: X %

■ 表面調整

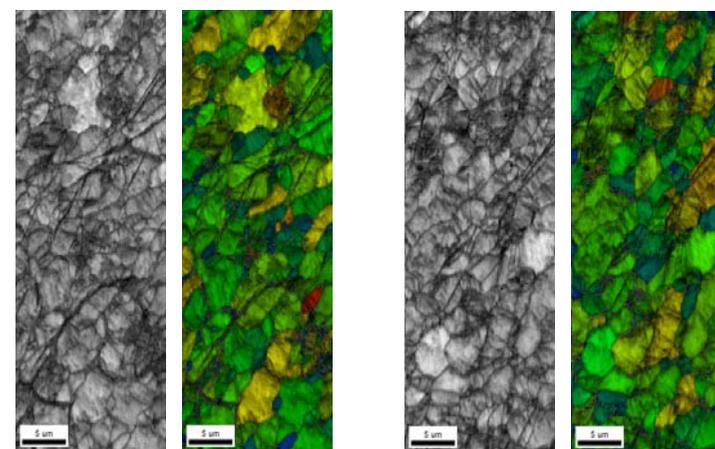


- 導電性樹脂に埋め込み後切断し、クロスセクショナルポリッシュによるArイオンミリングにより表面処理を施した



水素化後の金相写真 (NDC/MNF)

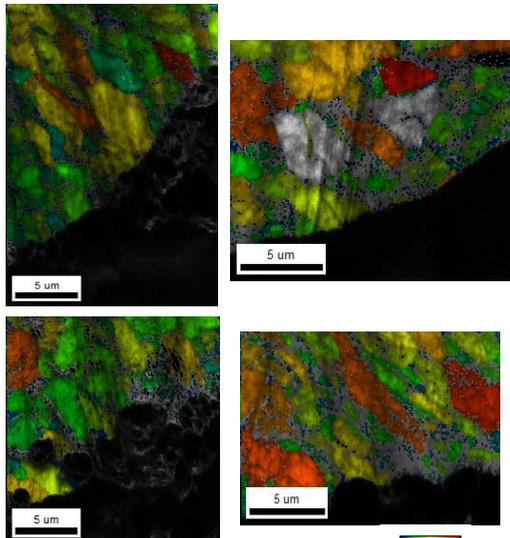
結果:水素化+機械試験材の観察 8/12



破断面から離れた場所でのIQ+GOSマップ 黒色部分は水素化物
平均GOS値: ~3.3度からの換算ひずみ量は
~20%程度となり、**実験結果とXXX** (範囲が異なることに注意)

結果:水素化+機械試験材の観察

9/12



- 破断面が滑らか
→隣接した水素化物による脆性破断面?

GOS値は2.5~3.0度
→ひずみ量15~19%

- 破断面が粗い
→延性破壊した断面?

GOS値は~3.7度
→ひずみ量~24%*

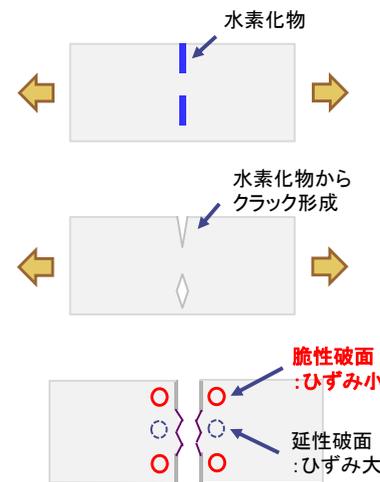
断面形状によって値が異なる傾向が見られた

破断面近傍のIQ+GOSマップ 0 10度

*適用範囲内が確かめられていない

考察:水素化物の破壊

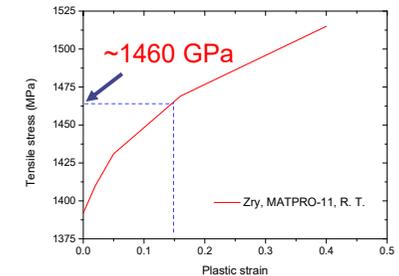
10/12



AEDC試験での破断に至るまでの流れ

AEDC試験ではある引張応力の時点で水素化物からクラックが形成され、これが進展・連結し破断したと思われる

脆性破面で見られた小さいひずみ量は、水素化物が割れ、クラックに変化するときの応力に対応していると思われる

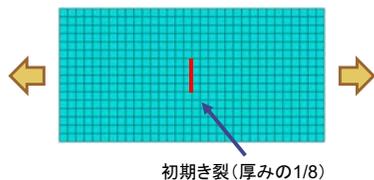


室温でのジルコイの真応力-真ひずみ関係

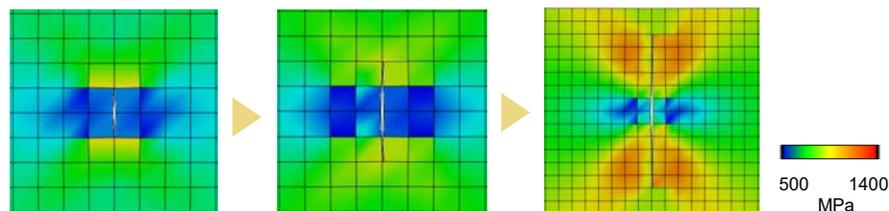
考察:有限要素法への応用

11/12

得られた応力をき裂損傷モデルの最大主応力パラメータとして使用



- ABAQUS student edition ver. 6.14
- き裂としてXFEMを使用
- Zr弾塑性データはMATPRO11を使用
- 初期き裂を配置、き裂損傷の最大主応力に1460 MPaを使用



き裂の進展挙動・被覆管強度の評価に用いられる

まとめ

12/12

Zr-2.5Nb合金のAEDC試験材および1000 ppm水素化材のAEDC試験片について、EBSD観察を行った

- およそひずみ量20%までGOSの平均値とひずみ量は線形関係を示し、ここからEBSD法によるジルコニウム合金の局所ひずみ量評価は20%以上まで可能であることが確かめられた
- 水素化および機械試験を施した試料において、その破断面を垂直方向から観察したところ、滑らかな破断面と粗い破断面にわかれる傾向が見られた
- 滑らかな破断面に沿った粒のひずみ量は15~19%程度、粗いほうは~24%と見積もられ、前者からZr粒に囲まれた水素化物が損傷する応力は1460 MPaと見積もられた

得られた値はき裂を含む被覆管の有限要素法計算のパラメータなどに使用できると思われる

ひずみ指標の適用範囲

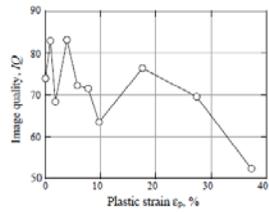


Fig. 2.13. Change of IQ with plastic strain.

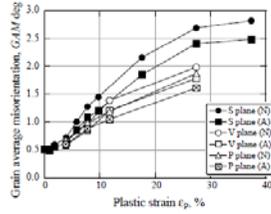


Fig. 2.14. Change of GAM with plastic strain.

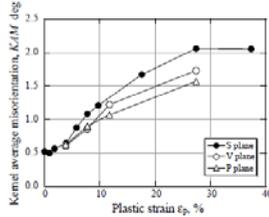


Fig. 2.15. Change of KAM with plastic strain.

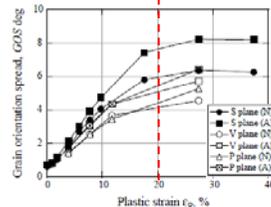


Fig. 2.16. Change of GOS with plastic strain.

20%はほぼ
比例限界

王 昀 氏の博士論文「オーステナイト系ステンレス鋼の塑性変形および初期疲労損傷に関する微視的研究」(2007)より

参考: α-Zrの変形系

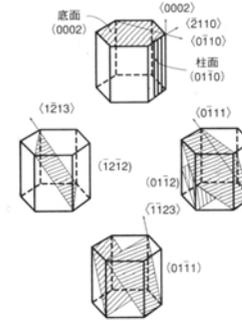


表 4.1.1-1 ジルコニウムの塑性変形モード¹⁾—製造の成型段階で作用するすべりと双晶系

システム	活発な温度域	応力状態	備考
{1010} <1120> すべり	<862℃	a-軸引張 または、圧縮	共通
{0002} <1120> すべり	>500℃	a-軸引張 または、圧縮	共通
{1011} <1120> すべり	>500℃	a-またはc-軸引張 または、圧縮	高応力が必要
<c+a> すべり		c-軸引張 または、圧縮	面と方向が不明
{1012} <1011> 双晶	<862℃	c-軸引張	共通
{1121} <1126> 双晶	<862℃	c-軸引張	まれに
{1122} <1123> 双晶	<862℃	c-軸引張	共通
{1011} <1012> 双晶	>400℃	c-軸圧縮	主に高温

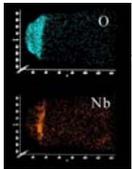
図 3.1.1-7 ちょう密六方晶ジルコニウムの変形系¹⁾

TEMによる組織観察試験

東北大 松川 喜多山 東大 村上(FIB) 阿部

本年度の重点検討項目： J合金 腐食材 の分析

- ・ JST原子カイニシアティブの成果を土台にした研究課題
- ・ アトムプローブでは解明できなかった問題を、TEMで解明する



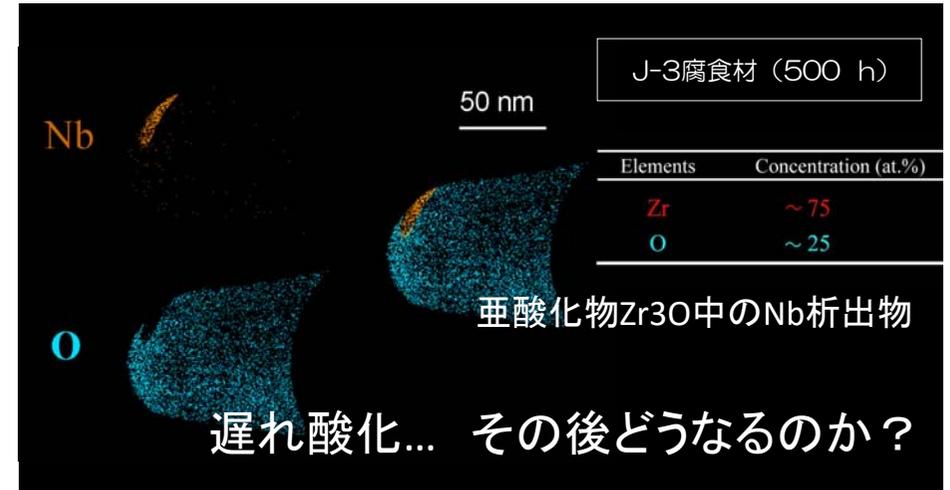
酸化被膜 = 水素の侵入口
被膜の構造、元素の偏析 → 水素の拡散に影響



Nb添加によって耐食性が向上するメカニズム？

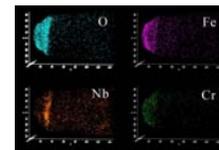
アトムプローブの未解決問題

“ Nb析出物のふるまい ”



アトムプローブの分析結果 (J3腐食材 500 h)

	酸化物	亜酸化物			金属母相
	ZrO ₂	ZrO	Zr ₂ O	Zr ₃ O	hcp-Zr
Zr	28.4	51.8 (48.7)	67.6	73.7	99.48
O	71.4	48.1 (51.3)	32.3	26.0	-
Nb	0.18	0.09 (-)	0.01	0.29	0.51
Fe	0.02	0.01 (0.01)	0.07	0.08	0.01



酸化物 & 亜酸化物の結晶粒内では、Nb濃度が低い
→ Nbは何処かに偏析している？

アトムプローブで分析したのは、主にoxide/Metal界面付近。最表面付近は？



Zr-matrix → ZrO₂

ZrM₂, Zr₂M → ZrO₂

析出物はマトリックスと同化する

ジルカロイの析出物

Feなど、
溶質元素が
再固溶・再分布 (偏析)



bcc-Nb → NbO₂ ?

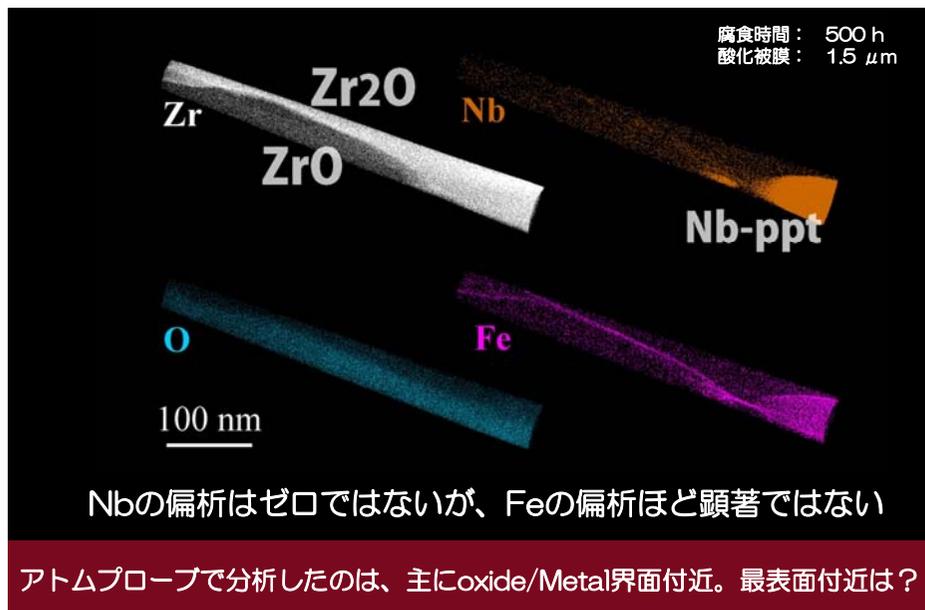
ZrO₂ ?

析出物はマトリックスと同化するのか？

J合金の析出物

Nbは
再固溶・再分布 (偏析)
するのか？

アトムプローブの分析結果 (J3腐食材 500 h)



【実験方法】

J3腐食材 (PWR模擬水、360C、最大13,000 h) → FIBで試料作製 → TEM観察

FIB: Hitachi FB2000 @ 東大 東海村キャンパス

TEM: JEOL AEM-ARM200F @ 東北大 大洗キャンパス
イメージCsコレクター、30 mm SDD EDS、EELSは長期故障中

JEOL AEM-ARM200F @ 九大 病院キャンパス (応力研)
プローブCsコレクター、100 mm SDD EDS、EELSは未だ使用不可

JEOL AEM-ARM200F @ 九大 筑紫キャンパス (HVEM)
ダブルCsコレクター、100 mm x2 SDD EDS、GIF EELS

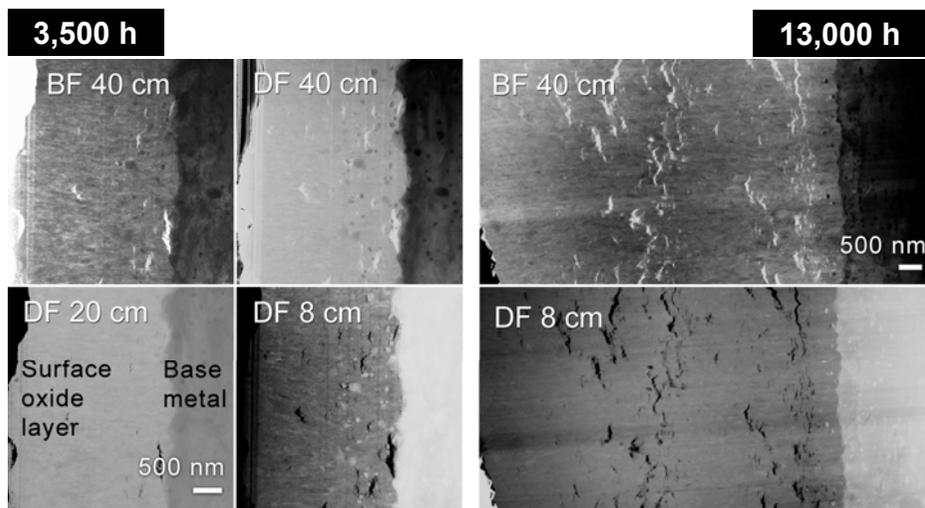


JEOL JEM-2100LaB6 @ 東北大 仙台キャンパス
本プロジェクトで導入したTEM

JEOL JEM-2200F @ 京大宇治キャンパス
オメガフィルター EELS

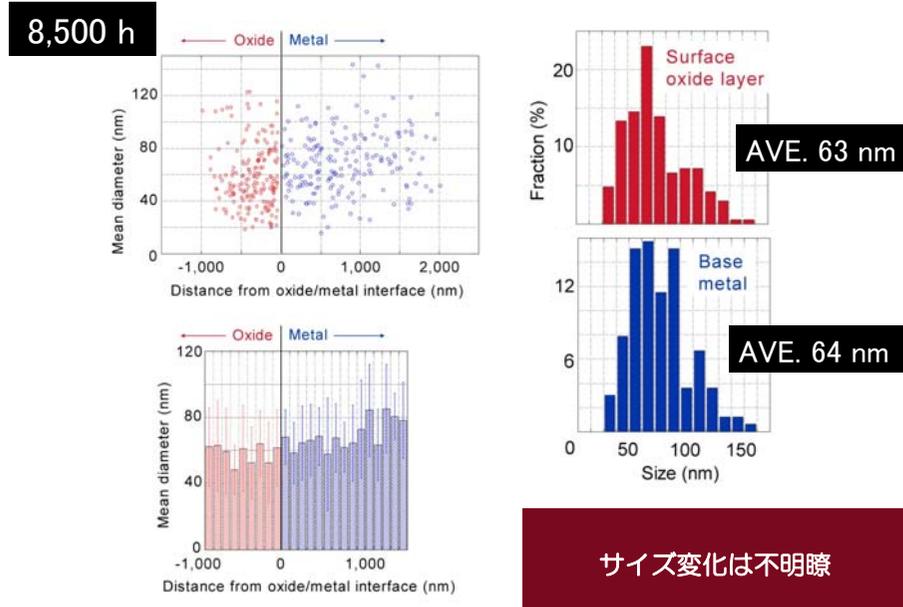
JEOL JEM-2010LaB6, FEI Titan 30-800 @ 北大

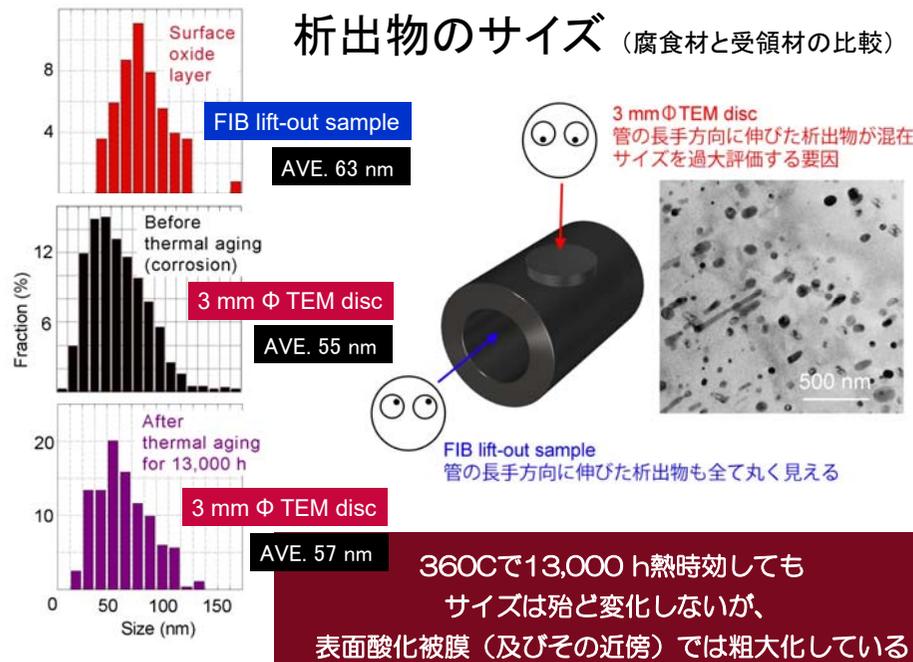
【実験結果】 表面酸化被膜のSTEM像



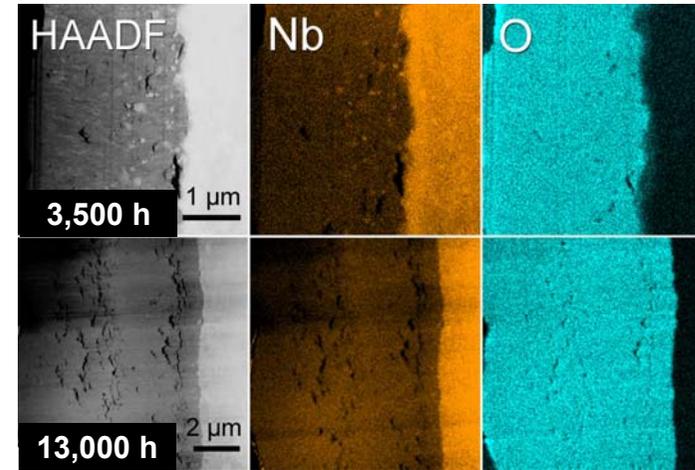
腐食時間によらず、析出物は界面近傍 (~1 μm以内) にのみ存在
→ 析出物は腐食に伴い再固溶した?

析出物のサイズ (表面酸化被膜とその直下の金属母相の比較)



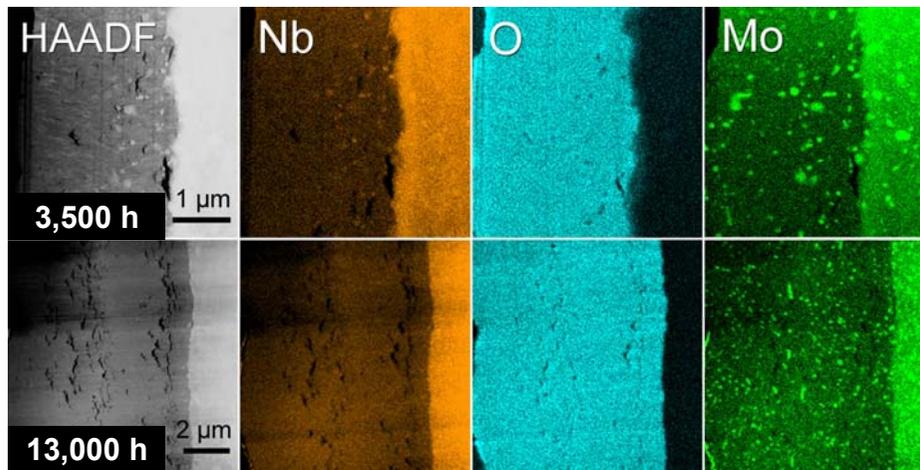


EDSマップ



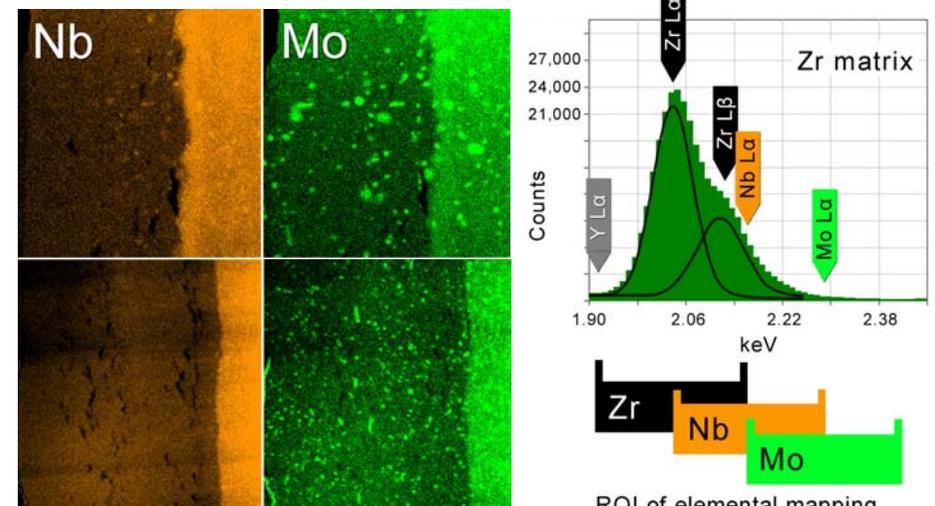
STEM像で確認できる析出物以外、Nbは濃化していない
→ 析出物はやはり、腐食に伴い再固溶した？

EDSマップ



析出物はやはり腐食に伴い再固溶した？ → 再固溶していない
Nbマップでは見えないが、Moマップで見える

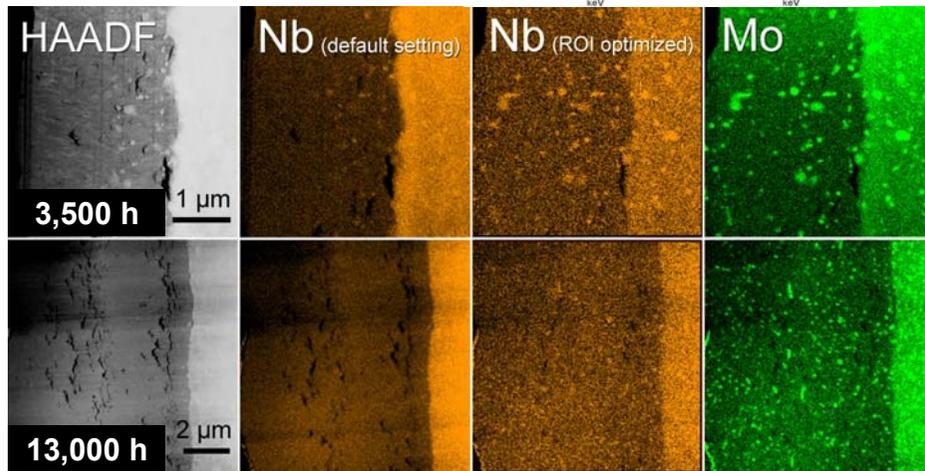
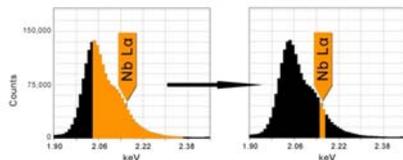
Nbマップでは識別不能なNb析出物が
Moマップで可視化される原因



試料メッシュはCu

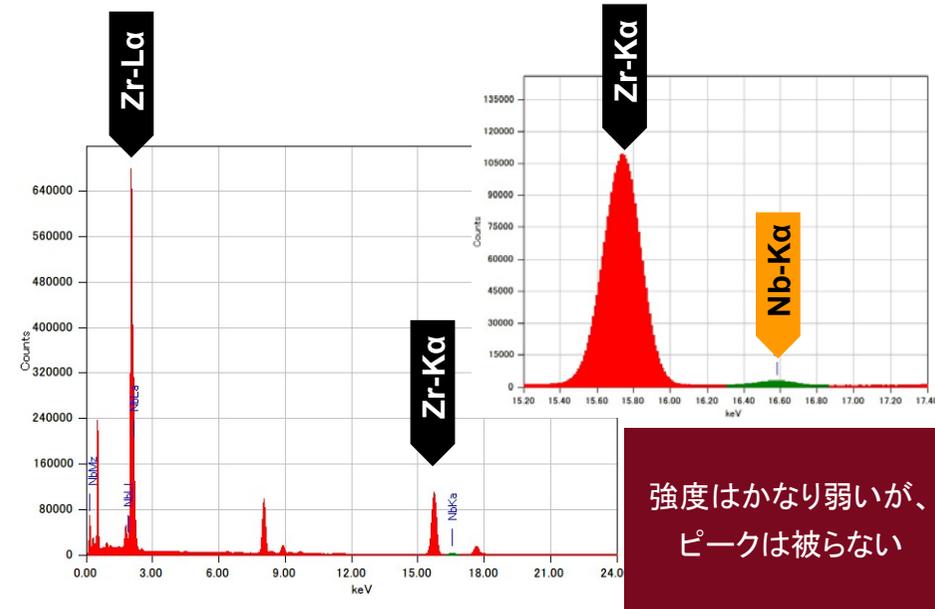
ROI of elemental mapping
in the default setting

ROIの最適化

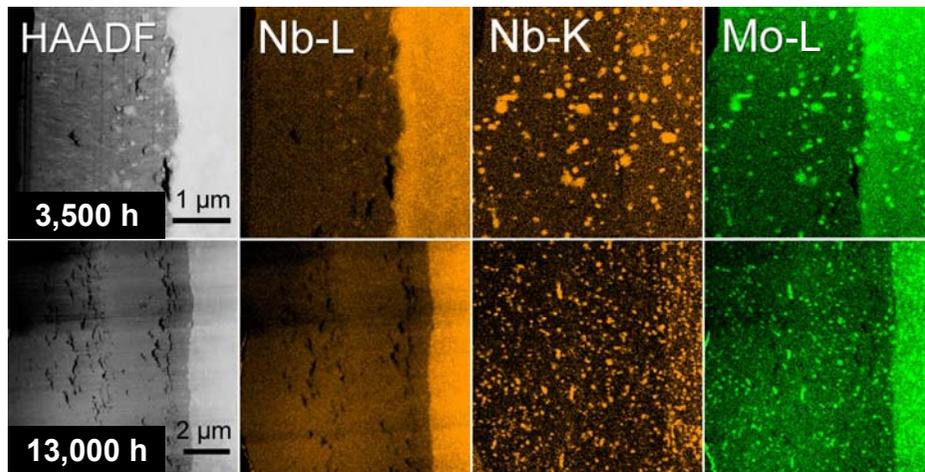


試料の厚さによっては、これでも見えない場合がある

L線(デフォルト)ではなくK線でマッピング



L線(デフォルト)ではなくK線でマッピング



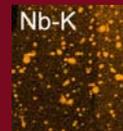
なぜ、デフォルトはKではなく、Lなのか？
Kを使うと、何か問題があるのか？

ソフトウェア設計担当者の回答
JEOLのEDSは、元々SEM用に開発された
少なくともSEMでは、最外殻の電子の方が定量精度が高い

ここまで(前半)のまとめ

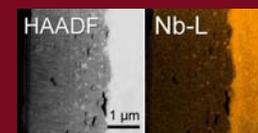
【1】 13,000 h腐食させても、Nb析出物は消滅しない

→ Nb添加による耐食性の向上に、析出物の再固溶はおそらく無関係



【2】 界面近傍の析出物は、最表面近傍のものより、STEM像及びEDSマップで識別が容易

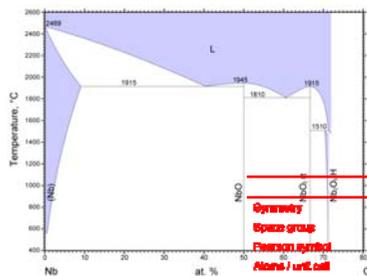
→ 界面から~1 μmを境に、S/N比が大幅に変化



この場合のBGノイズはZrマトリックスからのシグナル

- STEM像の HAADF Zコントラスト：
析出物とマトリックスの電子密度の比
- EDSマップのコントラスト：
(析出物に含まれる) Nbと (マトリックスに含まれる) Zrの原子密度の比

STEM像とEDSマップのS/N比変化についての考察



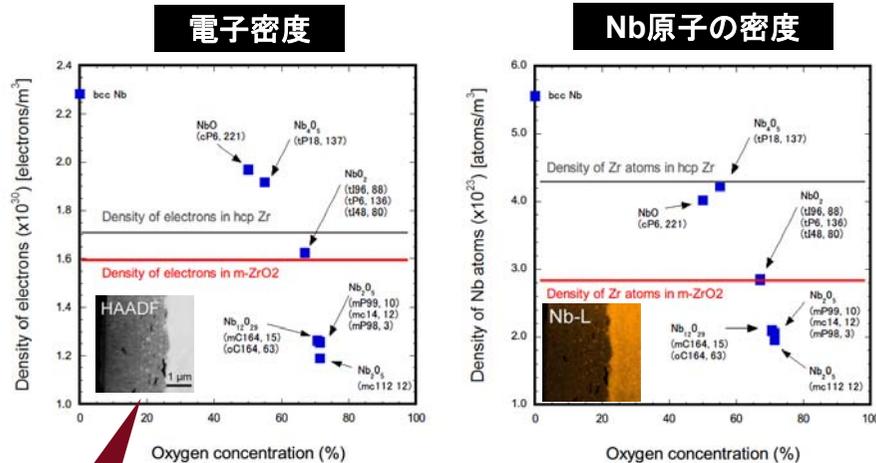
“Nb酸化物”のJCPDSカードは99枚
 NbO、Nb4O5、NbO2 (3種類)
 Nb12O29 (2種類)、Nb2O5 (4種類以上) など

	hcp-Zr	m-ZrO ₂	bcc-Nb	NbO	Nb ₂ O ₅	bct-Nb ₂ O ₅	tNb ₂ O ₅	Nb ₂ O ₃	H-Nb ₂ O ₅
System	Pb/mmc	P4/mc	Im-3m	Pnma	P23mc	I4/m	P432/mc	C2/c	P6/m
Space group	194	14	229	262	197	88	128	16	10
Element symbol	NbZr	NbZr	OZr	OZr	NbO	Nb ₂ O ₅	Nb ₂ O ₅	Nb ₂ O ₃	Nb ₂ O ₅
Atoms / unit cell	2	12	2	6	18	96	6	184	96
Electrons / unit cell	80	224	82	147	485	1824	114	2895	1708
a [nm]	323	514	350	421	685	1370	485	2072	2115
b [nm]	323	514	350	421	685	1370	485	2072	2115
c [nm]	618	618	350	421	491	685	285	3725	1690
α [degree]	120	90	90	90	90	90	90	119	90
β [degree]	90	90.2	90	90	90	90	90	80	118.5
Unit cell volume [nm ³]	4.7x10 ²⁸	1.4x10 ²⁹	3.7x10 ²⁸	7.5x10 ²⁸	2.1x10 ²⁹	1.7x10 ²⁹	8.1x10 ²⁸	2.3x10 ²⁹	1.4x10 ²⁹
Atomic density [n ⁻³]	4.3x10 ²⁸	5.6x10 ²⁸	6.0x10 ²⁸	6.0x10 ²⁸	5.6x10 ²⁸	5.6x10 ²⁸	5.6x10 ²⁸	7.2x10 ²⁸	7.2x10 ²⁸
Density of Zr atoms	4.3x10 ²⁸	2.8x10 ²⁸	-	-	-	-	-	-	-
Density of Nb atoms	-	-	5.6x10 ²⁸	4.0x10 ²⁸	4.2x10 ²⁸	2.9x10 ²⁸	2.8x10 ²⁸	2.1x10 ²⁸	2.1x10 ²⁸
Electron density [e ⁻]	1.7x10 ²⁸	1.8x10 ²⁸	2.3x10 ²⁸	2.0x10 ²⁸	1.8x10 ²⁸	1.8x10 ²⁸	1.8x10 ²⁸	1.3x10 ²⁸	1.3x10 ²⁸

平衡状態図に記載されているのは、NbO、NbO2、Nb2O5の3種類のみ

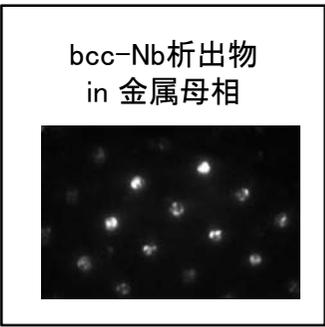
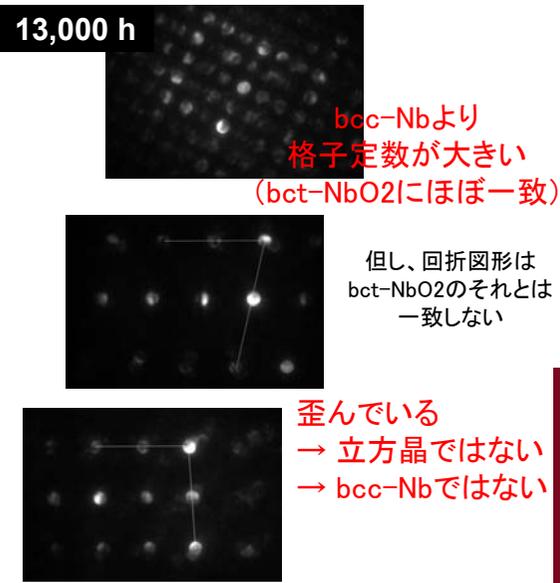
結晶データを元に、“電子密度”と“Nb原子の密度”を計算

STEM像とEDSマップのS/N比変化についての考察



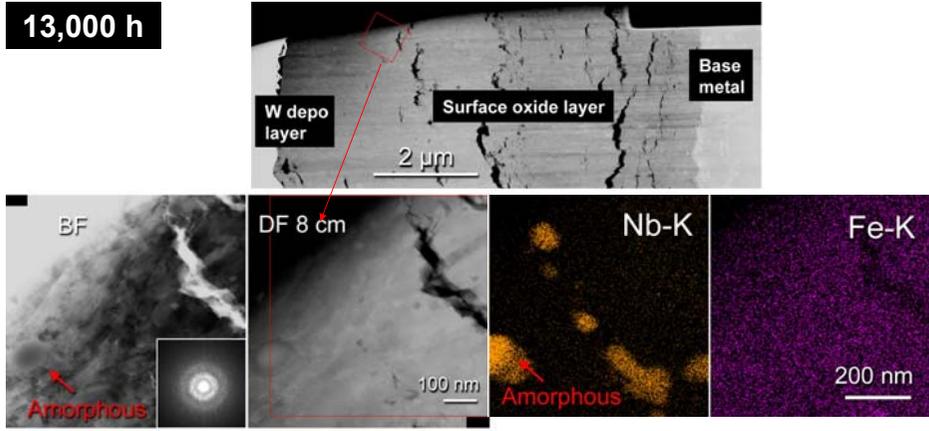
m-ZrO₂とZrコントラストが等しくなるのはNbO₂
 それより酸化が進行すると、逆に黒いコントラストがつくのでは？

STEMで容易に識別できる(界面近傍の)析出物の結晶構造



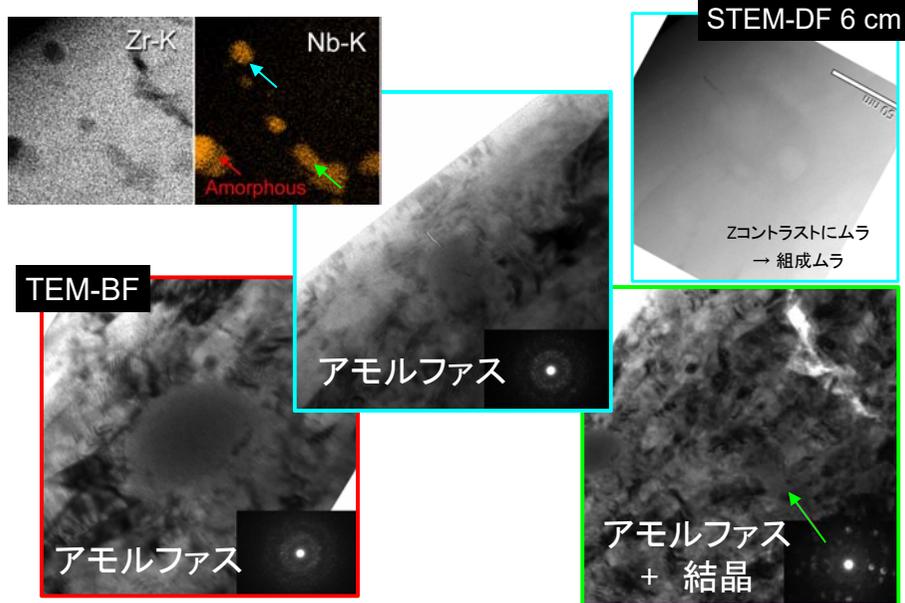
酸化被膜中の析出物は bcc-Nbではない
 bct-Nb? 現在検討中

STEMで識別困難な(界面から離れた)析出物の結晶構造

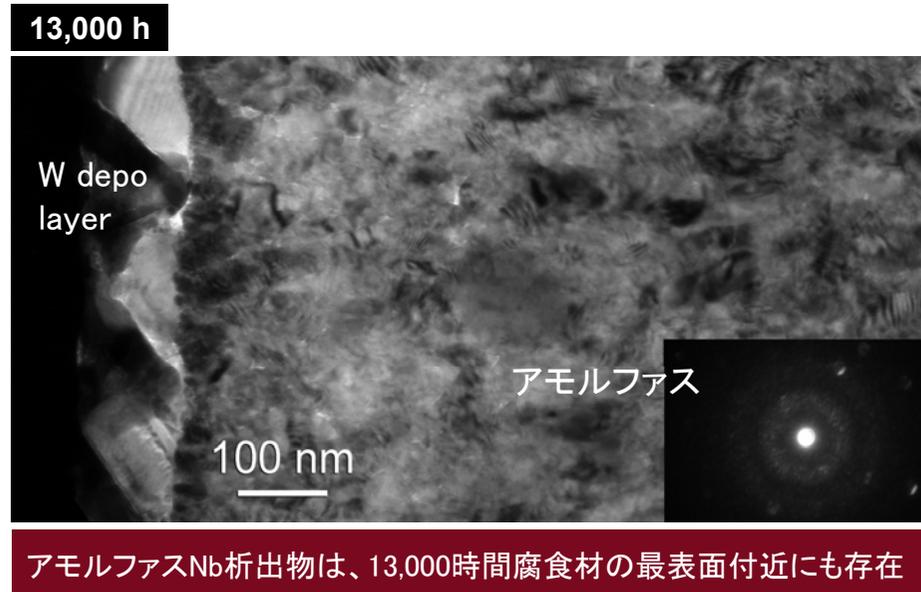


回折コントラスト像でアモルファスNb析出物を発見
 それはSTEM像でもかろうじて識別可能
 それ以外にもSTEM像で識別できないNb析出物が多数あり

STEMで識別困難な(界面から離れた)析出物の結晶構造

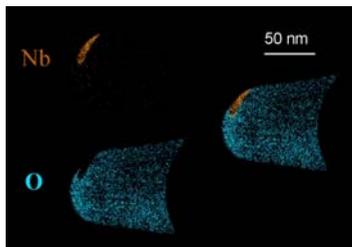


STEMで識別困難な(界面から離れた)析出物の結晶構造

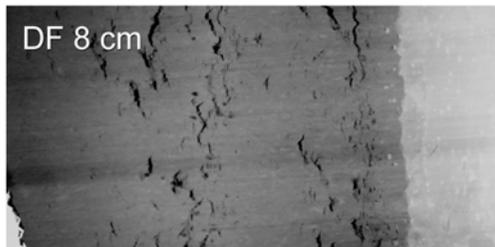


後半のまとめ

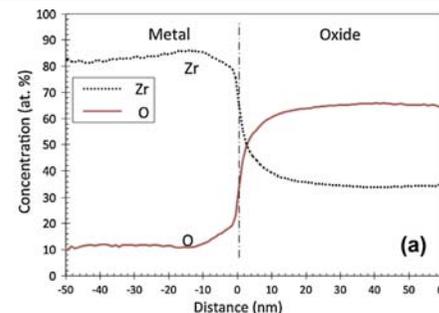
- 【3】 STEMで識別し易い(界面近傍の)析出物は、bcc-Nbではない
→ 酸化していることは間違いないが、構造は未だ検討中
- 【4】 STEMで識別困難な(界面から遠い)析出物は、主にアモルファス
→ 結晶化しているものもあるが、微細なため、構造は未だ解析中



Nb析出物の遅れ酸化
in Zr3O

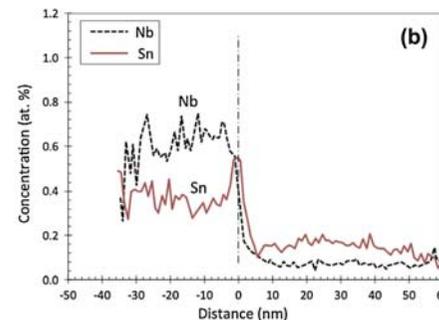


Reference



ZIRLO腐食材の アトムプローブ分析

Wei et al.
(Oxfordのグループ)
Acta Mater. 61, 4200 (2013).



- ・ 酸化被膜/金属母相界面に
Nbは偏析しない
Snは偏析する
- ・ 酸化被膜中のNb・Sn濃度は
金属母相中の濃度より低い

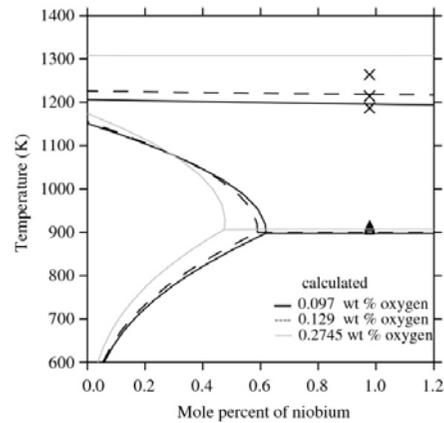
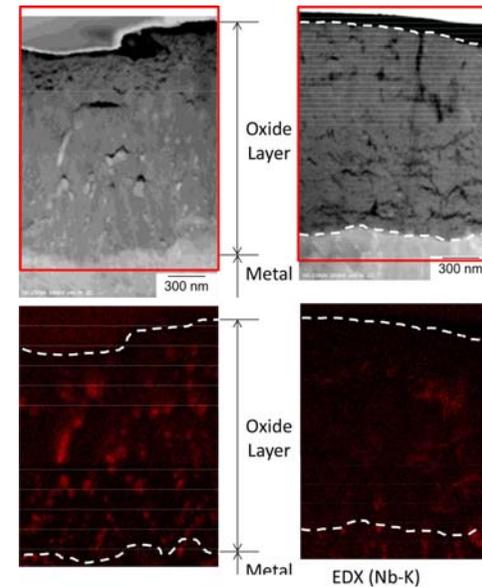


Fig. 13. Calculated isoplethal section of Zr-rich portion of the Zr-O-Nb system and measured data of Toffolon et al. [24]. The symbols denote measured data: $\Delta = \alpha \rightarrow (\alpha + \beta)$ temperature; $x = (\alpha + \beta) \rightarrow \beta$ temperature. The lines are calculated by Thermo-Calc: grey lines are for 0.2745 wt%O, dashed lines for 0.129 wt%O, black lines for 0.097 wt%O.

Zr-Nb-O擬三元系の状態図計算

Pérez et al.
(Swedenのグループ)
J. Nucl. Mater. 360, 242 (2007).

- Zr中に酸素が固溶するとNbの固溶限が減少する



Zr-2.5Nb合金酸化被膜のSTEM-EDS分析

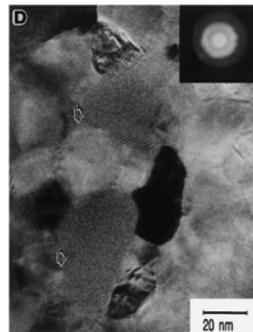
Sakamoto et al. & Une et al.
Proc. Of Top Fuel, (2012).

- Nb析出物は酸化に伴い再固溶
最表面では完全に消失
- Liありの条件だと、析出物は最初から完全消失
- 本研究とは矛盾

Nb-Kでマッピングしたと書いてあるが、本当か？

Steam corrosion
400C, 10 days

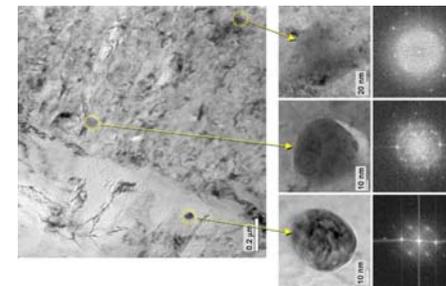
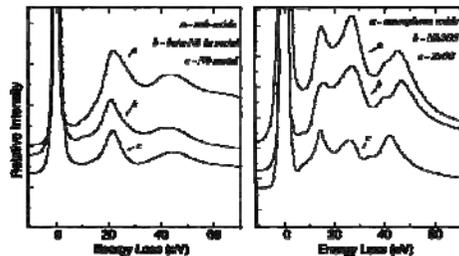
1M LiOH containing water
360C, 1 day



Zr-2.5Nb合金酸化被膜のナノ電子回折とEELS分析

Lin & Woo
(カナダのオンタリオ州のグループ)
J Nucl. Mater. 277, 11 (2000).

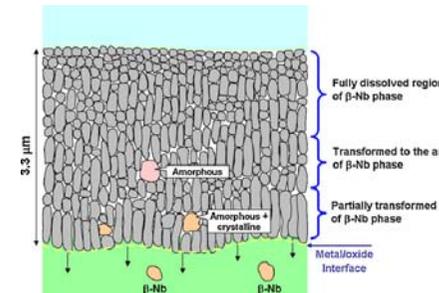
- 析出物のアモルファス化
(最初の報告)
- アモルファス析出物のEELSスペクトラムの特徴は、金属的ではなく酸化物的
- HR-TEMと回折コントラストのみ
STEM-HAADFとEDSはなし



Zr-1.5Nb合金酸化被膜のHR-TEM観察

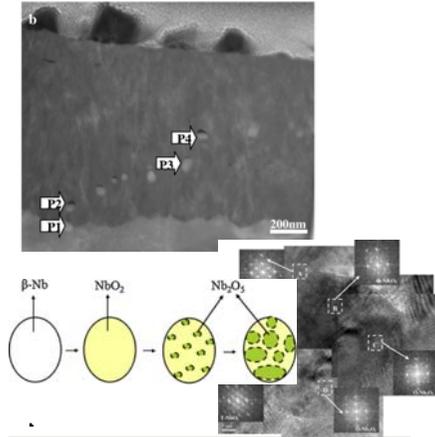
Kim et al.
(韓国KAERIのグループ)
J Nucl. Mater. 481, 867 (2009).

- 析出物のアモルファス化
(但し、格子縞で判定)
- 最表面には析出物が
見つからなかったということで、
再固溶説を主張
(根拠は弱い、最初の報告)
- HR-TEMと回折コントラストのみ
STEM-HAADFとEDSはなし



Zr-1Nb-0.2Bi合金酸化被膜のHR-TEM観察

Yao et al.
 (中国の上海大学のグループ)
 Corros. Sci. 100, 169 (2015).



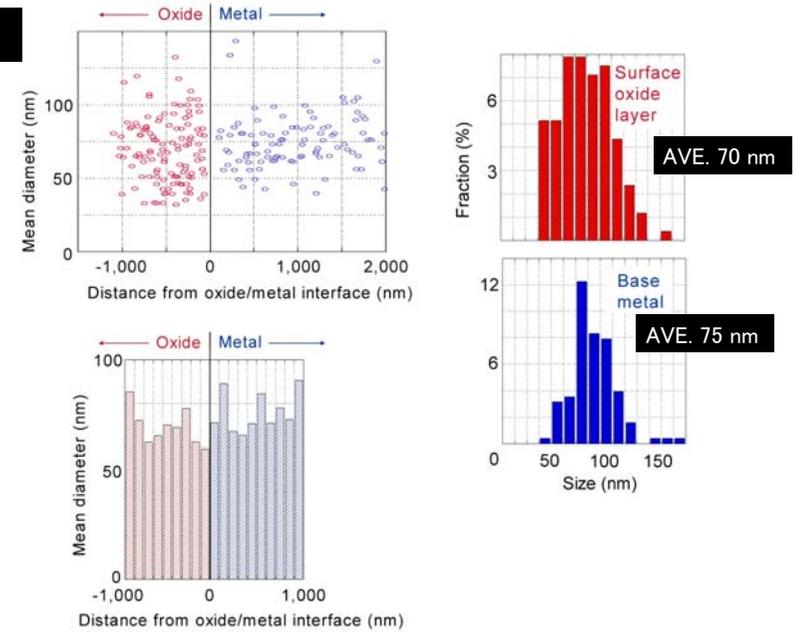
β -Nb precipitate	Oxidation products
P1	T-NbO ₂
P2	T-NbO ₂ , O-Nb ₂ O ₅
P3	T-NbO ₂ , M-Nb ₂ O ₅
P4	T-NbO ₂ , mixture of T-NbO ₂ and M-Nb ₂ O ₅

• STEMで確認できた析出物をHR-TEM格子縞で構造解析

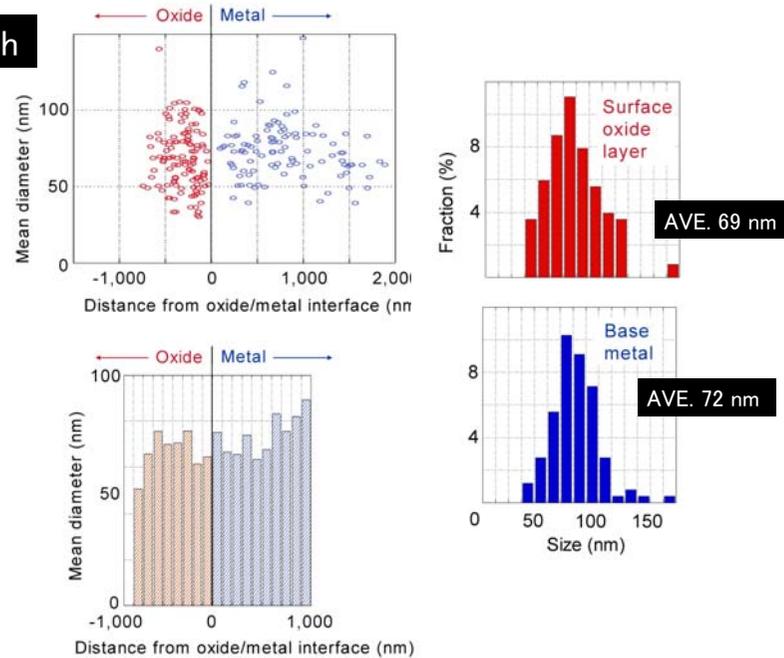
• アモルファス化していない
 (本研究とは矛盾しない)

• NbO₂とNb₂O₅が混在
 (ZコントラストでNb₂O₅が明るく見えるのはおかしいのでは?)

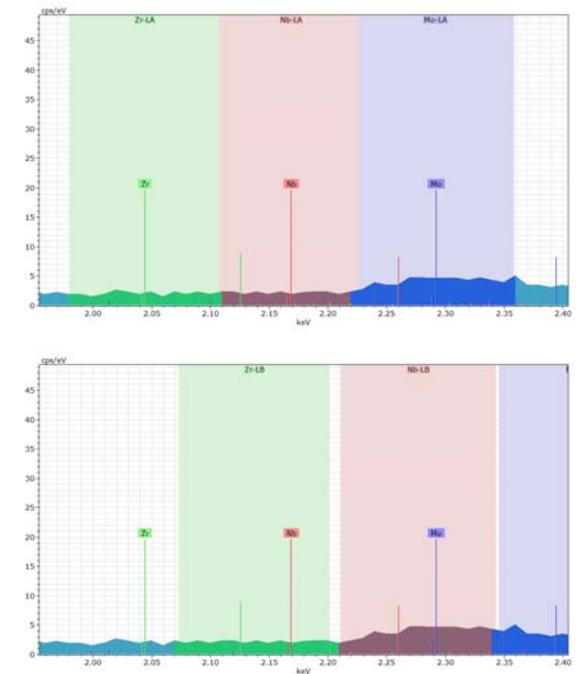
3,500 h



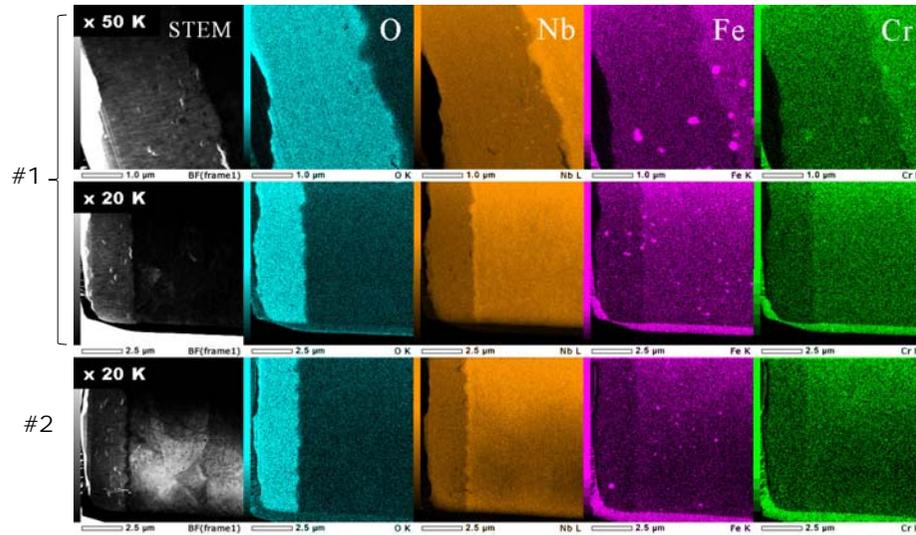
13,000 h



FEI Titan 60-300のEDS (Bruker社製)のデフォルトROI (L線)

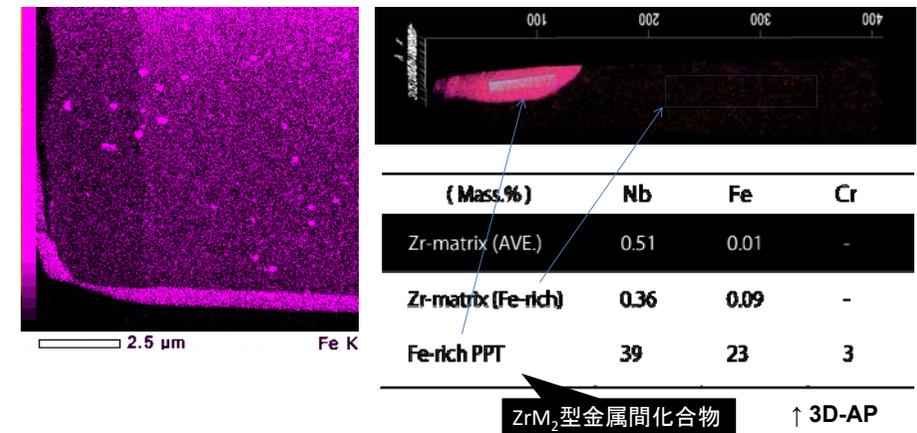


J3腐食材 (3500 h) のEDSマップ Fe-richラーベス相析出物



(1) 亜酸化物は同定不可 (2) Nb析出消滅 & Nb界面偏析? (3) Fe-rich析出物多数!

Fe-richラーベス相析出物について



Fe-rich析出物は、3D-APでも検出されたことがあった (一度だけ)

周囲のFe濃度は、通常の10倍

J3受領材の表面近傍

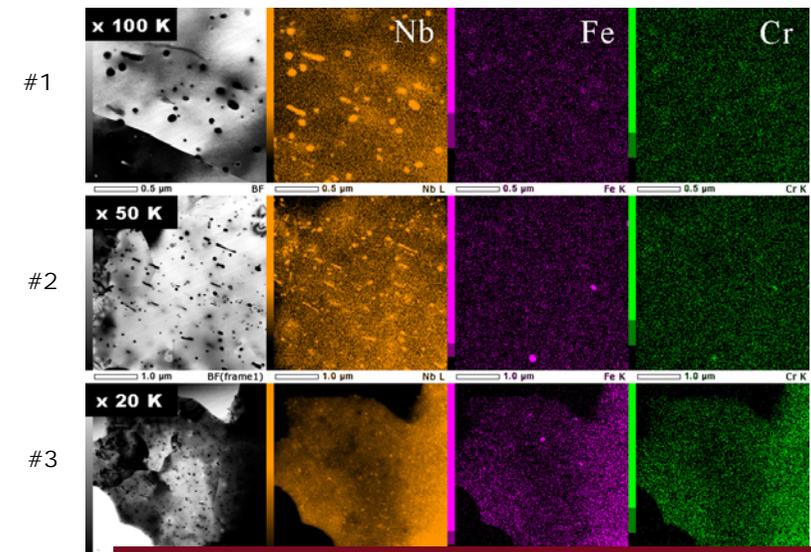
J3受領材の化学分析 (表面と内部で比較)

↓ 化学分析結果

(Mass.%)	Nb	Fe	Cr
J3-Nominal	2.50	?	?
J3-Bulk	2.35	0.03	<0.01
J3-Surface (Powder)	1.94	0.17	<0.02
J3-Interior (Powder)	1.68	0.10	<0.02

Powder: エメリー紙で削った粉末

J3受領材のEDSマップ



受領材の内部にも Fe-rich析出物がある (ZIRLO™ や M5™ と同様)

化学分析結果は解釈困難 受領材の表面をTEM観察する必要あり

短軸引張ならびにA-EDC試験下におけるZr-Nb合金の 変形組織評価と照射影響

Deformation microstructure analysis of Zr-Nb alloy under uniaxial tensile and A-EDC test, and irradiation effect

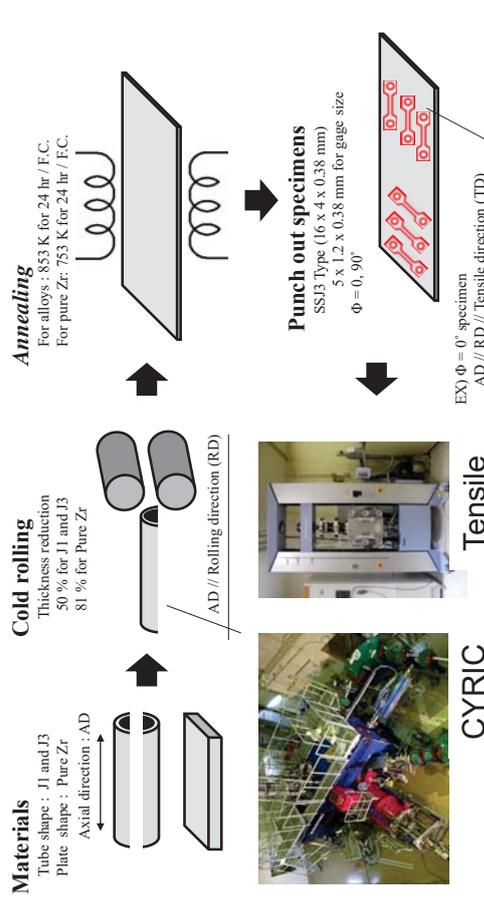
東京大学：叶野 翔, 村上 健太, 阿部 弘亨
 東北大学：楊 会龍, 趙 子寿, 國井 大地, 小林 明博
 大阪大学：牟田 浩明,
 ニュークリア・デベロップメント株式会社：篠原 靖周

1. 諸言

本発表は、**Zr-Nb合金の強度特性とその材料劣化影響を機械試験ならびに微細組織学的観点から明らかにすることを目的とし、東北大CYRIC加速器を用いたイオン照射試験ならびに、引張試験を行い、当該材料の強度と組織との関係ならびに、その照射影響について調査した。**

2. 実験方法

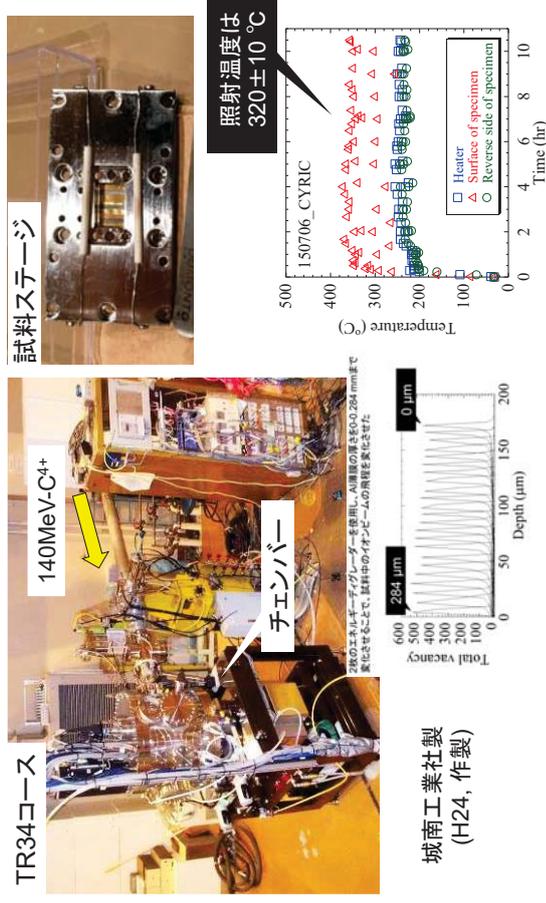
2-1. 供試材 (引張、照射試験)



発表の構成

1. 諸言
2. 実験方法
 - 2-1. 供試材
 - 2-2. イオン照射試験
 - 2-3. 引張、A-EDC試験
 - 2-4. 転位組織評価方法
3. 結果
 - 3-1. 照射材の引張特性
 - 3-2. 引張試験中の転位組織発達ならびにNb添加影響
 - ... 照射材
 - ... 非照射材
 - ... A-EDC材
 - 3-3. A-EDC試験中の転位組織発達
4. 考察
- 4-1. 引張試験における加工硬化指数と微細組織との関係
5. 結言

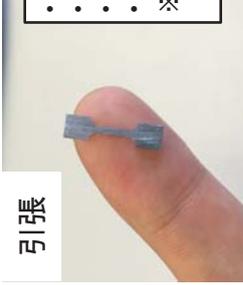
2-2. イオン照射試験



2-3. 引張、A-EDC試験

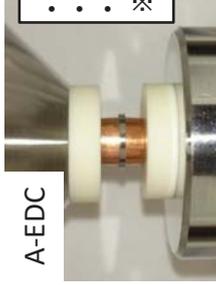


島津製作所製 AG-Xplus
(H25, 納入)



引張

- 形状 : SSJ型
 - 試験温度 : 室温
 - 変位測定 : レーザ—
 - 引張速度 : 10^{-3} s^{-1}
- ※ 試料表面を#800で研磨
シヨルダ—部を保持



A-EDC

- 試験温度 : 室温
 - 変位測定 : レーザ—
 - 引張速度 : $\sim 3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$
- ※ 実験条件は国井らと同様

5

2-4. 転位組織評価方法

CRS評価による各すべり系の活性化頻度解析

臨界分解せん断応力 (CRSS , τ_{CR}) は、
臨界分解応力 (CRS , σ_{CR}) と、
Schmid因子 ($\cos\phi \cdot \cos\lambda$) によって、
以下のように表される。

$$\tau_{CR} = \sigma_{CR} / (\cos\phi \cdot \cos\lambda)$$

なお、考慮したすべり系は以下の通り^{[1]-[4])}。

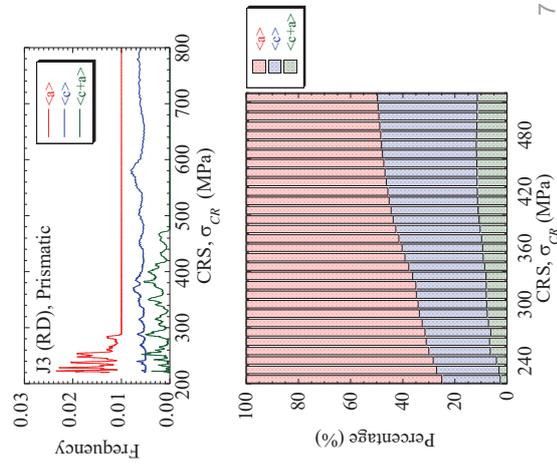
Basal : $\tau_{CR,Ba} = 440 \text{ MPa}$

Prismatic : $\tau_{CR,Pr} = 110 \text{ MPa}$

Pyramidal : $\tau_{CR,Py} = 248 \text{ MPa}$

各応力 (CRS) 下における $\langle a \rangle$, $\langle c \rangle$,
 $\langle c+a \rangle$ 型のすべり系の活性化頻度を
右図に示した。

※ J3材の結果を示した。

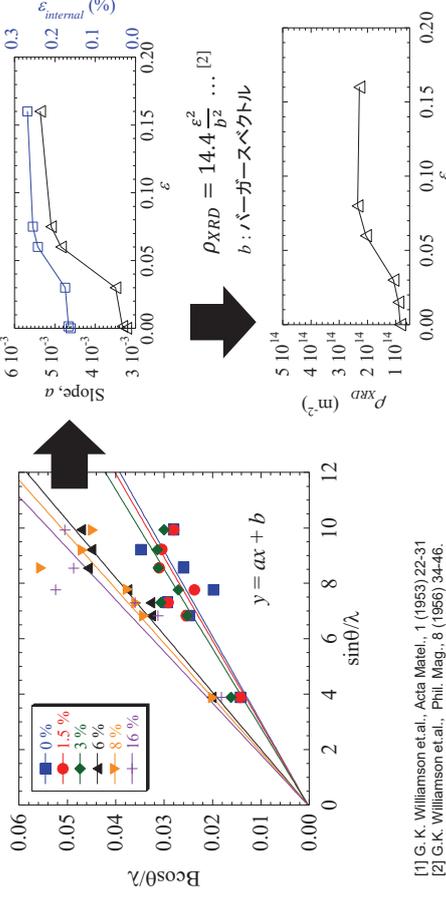


7

[1] M. Knezevic et al., Acta Mater., 88(2015)55-73
[2] L.J. Beyeler et al., Int. J. Plasticity, 24(2008)867-895
[3] P. A. TURNER et al., Acta Mater., 42(1994)143-145.
[4] T.B. Britton et al., Proc. R. Soc. A, 471(2015)20140881

2-4. 転位組織評価方法 Williamson-Hall法

Williamson-Hall (WH) method : $\frac{\text{Bcos}\theta}{\lambda} = \frac{0.9}{D} + 2\epsilon \frac{\sin\theta}{\lambda} \dots$ [1]

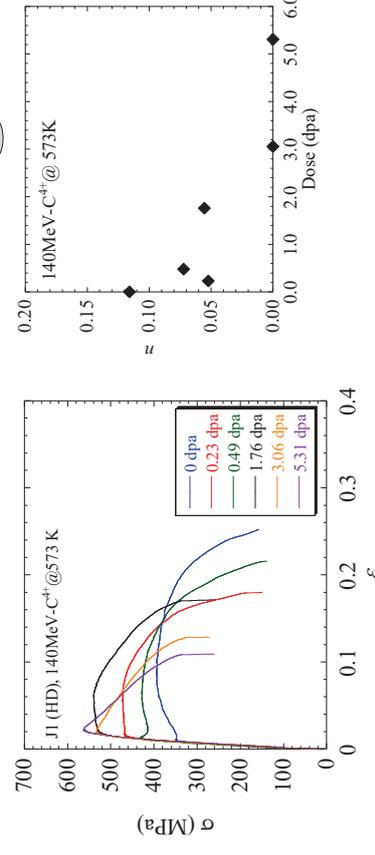
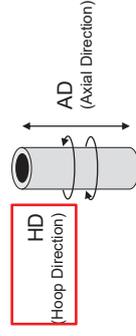


[1] G.K. Williamson et al., Acta Mater., 1(1953) 22-31
[2] G.K. Williamson et al., Phil. Mag., 8(1956) 34-46.

6

3. 結果

3-1. 照射材の引張特性 ① (TD//HD)

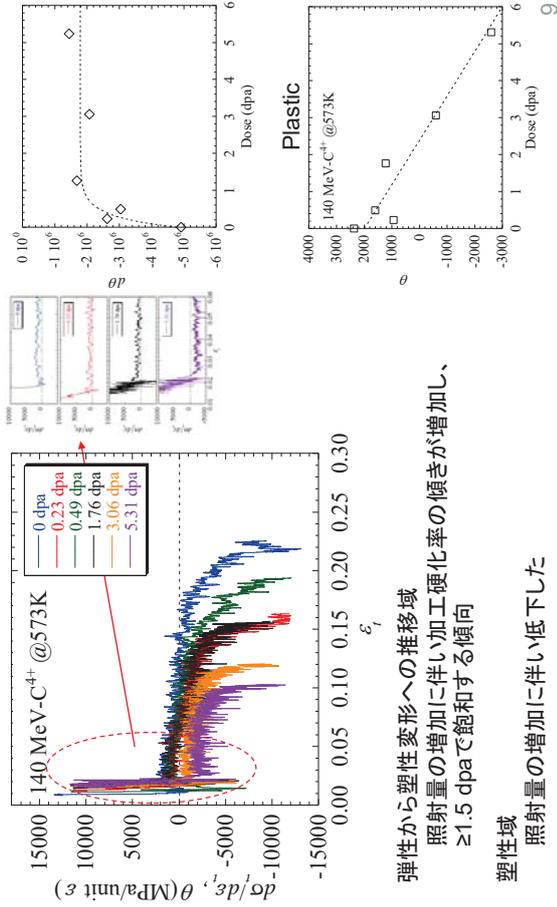


• Zr-Nb系合金においても、照射量の増加に伴い転位チャネリングによる破壊(≧3dpa)が生じることを明らかにした。

照射欠陥の蓄積によって生じたと考えられる。
照射量の増加に伴い加工硬化指数(n)が低下しない傾向を確認した。

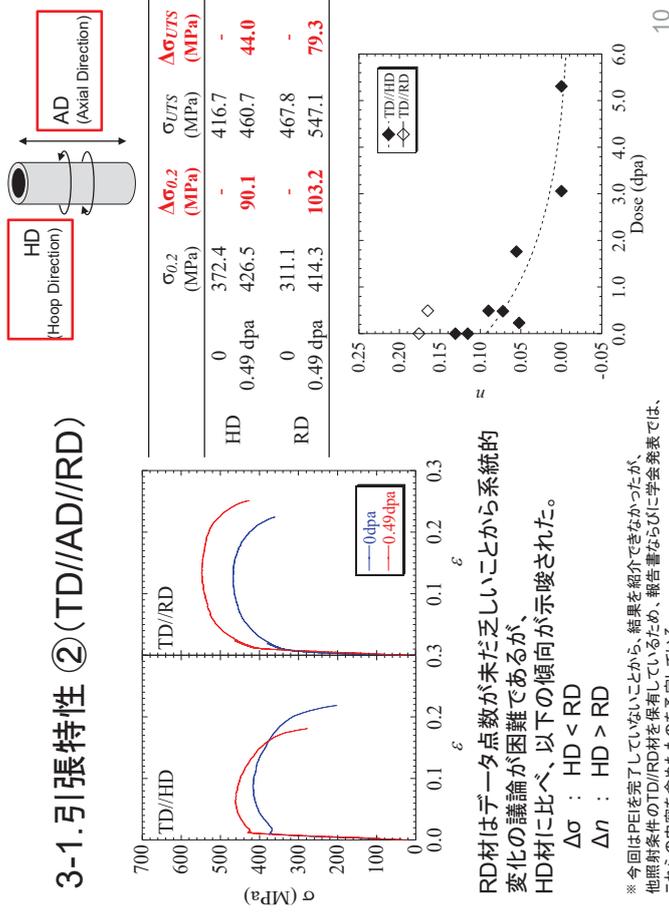
8

3-1. 加工硬化率 ($\theta : d\sigma_t / d\epsilon_t$) の照射量依存性



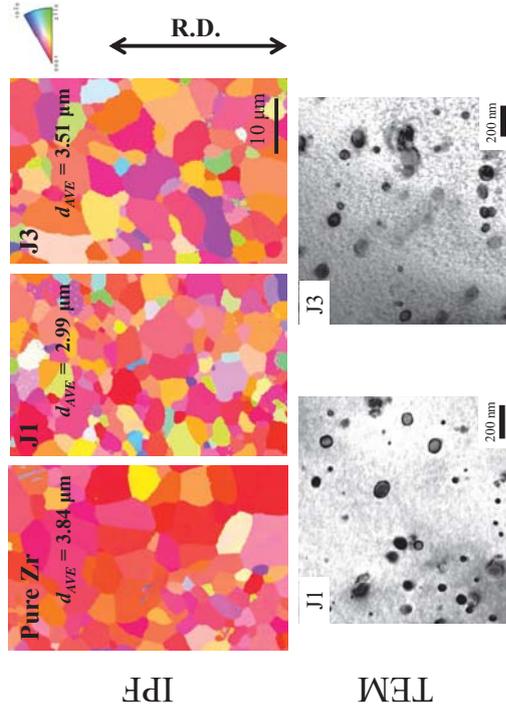
9

3-1. 引張特性 ② (TD//AD//RD)



10

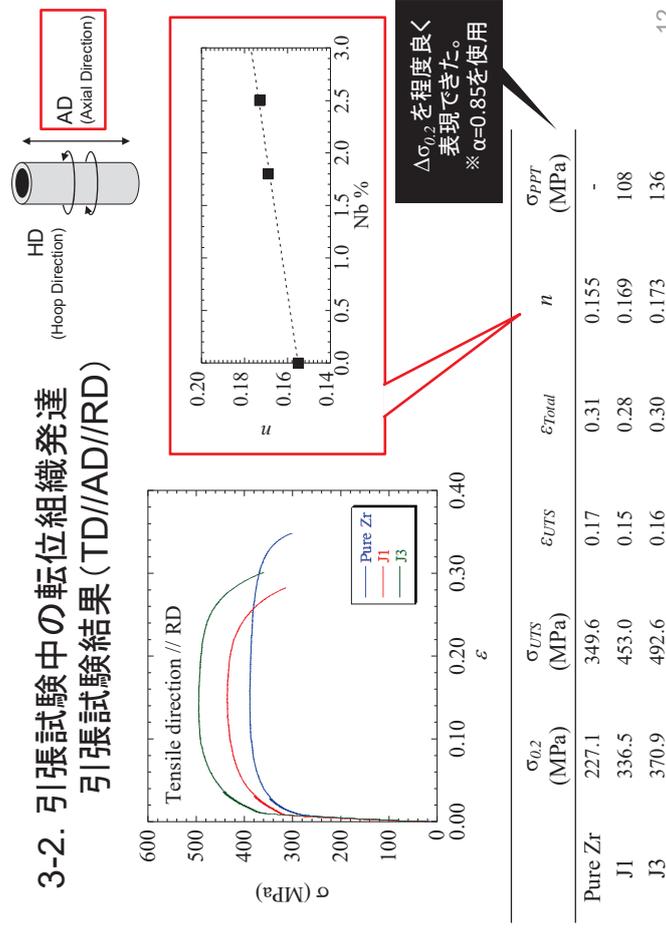
3-2. 引張試験中の転位組織発達 微細組織特徴 (As-annealed)



$d_{AVE} = 49 \text{ nm} / \rho_{PPT} = 6.9 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ $d_{AVE} = 55 \text{ nm} / \rho_{PPT} = 9.7 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$

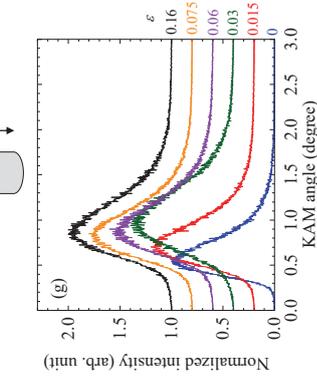
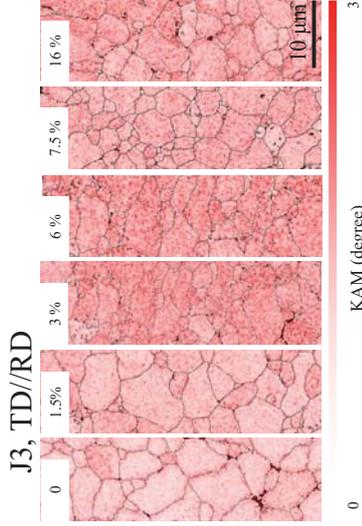
11

3-2. 引張試験中の転位組織発達 引張試験結果 (TD//AD//RD)



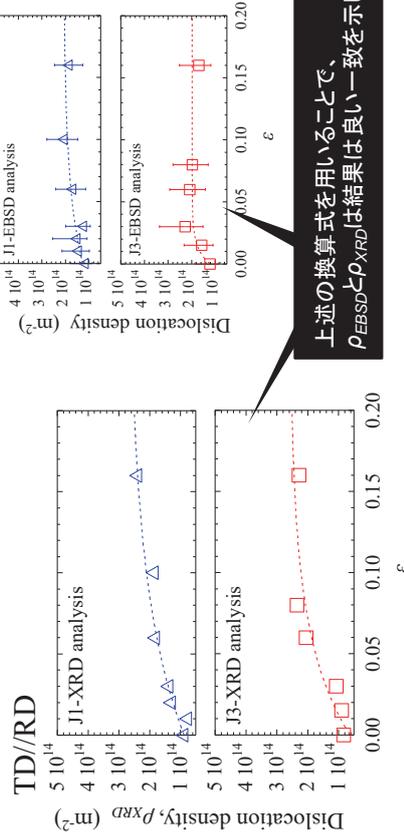
12

3-2. 転位組織発達のNb添加影響 EBSD解析結果 ①



- ひずみの増加に伴いKAM (Intensity or Contrast) が増加した。局所的に蓄積するのではなく、組織全体に渡って均一に蓄積していた。
- KAMのピーク値はひずみの増加に増加したが、 $\epsilon > 0.03$ では飽和傾向にあった。KAMのもつ材料学的な意味(KAMのピーク値や分布と組織との関係)については不明確であるが、変形組織の指標としてKAMのピーク値とFWHMを採用した。

3-2. 転位組織発達のNb添加影響 XRD解析結果

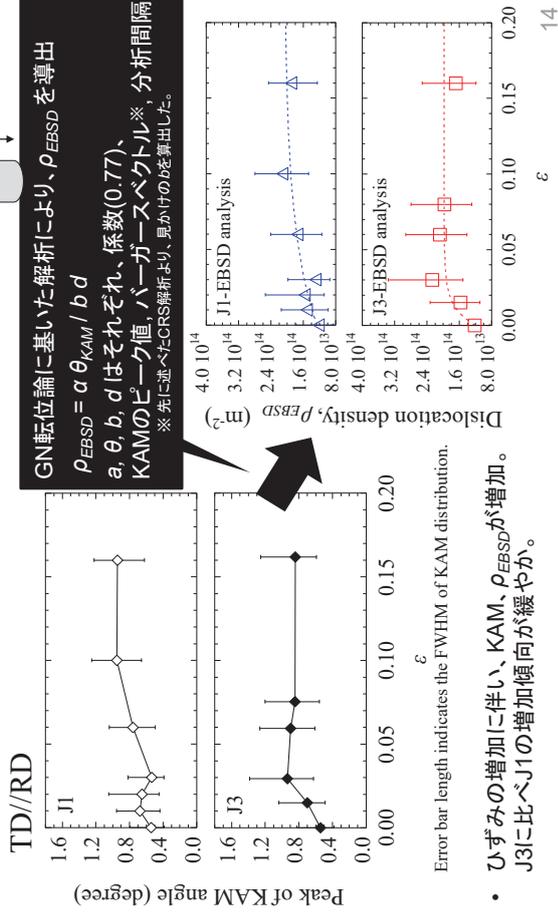


上述の換算式を用いることで、 ρ_{EBSD} と ρ_{XRD} の結果は良い一致を示した。

- ひずみの増加に伴い、転位密度が増加し、 $\epsilon > 0.05$ では増加傾向が緩やか(飽和)。Ungerらは(Zircaloy-2, in situ XRD)^[1]、 $\epsilon = 0.15$ (Tensile deformed)におけるは転位密度は $\approx 1.2 \times 10^{16} \text{ m}^{-2}$ と報告しており、本研究と大きな差異があった。In situ試験ならびに添加元素の違いが影響している。

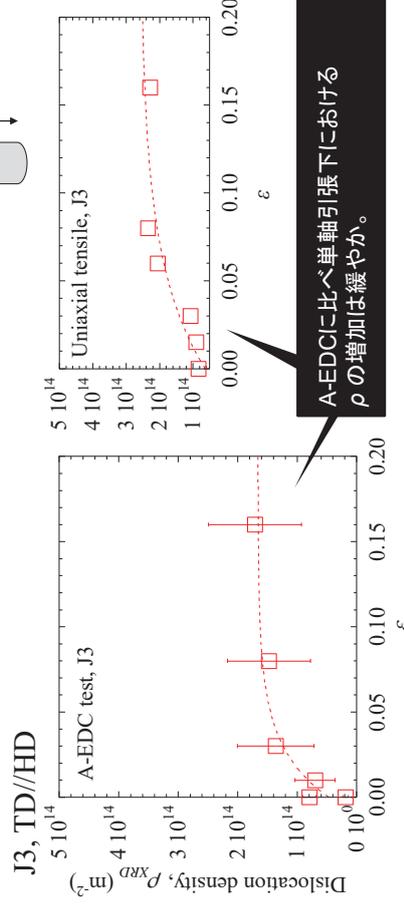
[1] Unger et al., Acta Mater., 55(2007)1117-1127.

3-2. 転位組織発達のNb添加影響 EBSD解析結果 ②



- ひずみの増加に伴い、KAM、 ρ_{EBSD} が増加。J3に比べJ1の増加傾向が緩やか。

3-3. A-EDC下における転位組織発達 XRD解析結果

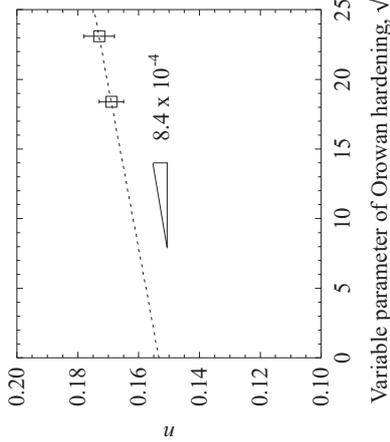


A-EDCに比べ単軸引張下における ρ の増加は緩やか。

- ひずみの増加に伴い、転位密度が増加し、 $\epsilon > 0.05$ では飽和傾向になった。
- 本研究の単軸引張試験とは微細組織や応力付加方向がA-EDC試験との異なるため、直接比較は困難であるが、引張方向の違いが転位組織発達に影響することが分かった。

4. 考察

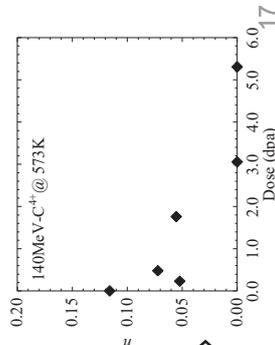
4-1. 引張試験における n と微細組織との関係



測定点が過小ではあるものの、 n はOrowan硬化機構のパラメタ(\sqrt{Nd})との間で以下の関係式があることが示唆

$$y = 8.4 \times 10^{-4}x + 0.155$$

※ 無添加材 (Pure Zr) の n は 0.155 である
熱時効によって析出物特徴を変化させた
試料を作製し、これにおける析出物と
加工硬化指数との関係を調査中



照射量の増加に伴い n が低下することから、
照射欠陥と n との関係を整理することで、
照射、非照射材の加工硬化域における機械特性
と微細組織との関係を定量的に明らかにできる。

5. 結言

本発表では、Zr-Nb合金の強度特性とその材料劣化影響を機械試験ならびに微細組織学的観点から明らかにすることを目的とし、東北大CYRIC加速器を用いたイオン照射試験ならびに、引張試験を行い、当該材料の強度と組織との関係ならびに、その照射影響について調査した。

1. J1合金の引張特性の照射影響を評価し、 σ と n 、 θ の照射量依存性を明らかにした。
2. 非照射材を用いた微細組織観察ならびに引張試験を通して、 $\Delta\sigma_{0.2}$ がNb析出物の析出強化によって説明できることを示した。
3. 単軸引張変形中の ρ 評価より、ひずみ付与に伴い ρ は増加したが、これのNb添加影響は確認できなかった。
4. A-EDC試験下における ρ 評価より、引張方向が変化することで転位の蓄積頻度(挙動)が変化することを示唆した。
5. n と析出物による転位運動との阻害効果との相関関係を見出した。

12Cr-ODS鋼のクリープ特性のHe注入影響

Effect of He implantation on creep properties in 12Cr-ODS steel

東京大: 叶野 翔, 阿部 弘亨
 東北大 金研: 楊 会龍, 艶 芬 李
 東北大 工: 福田 誠, 長谷川 晃
 NIMS: 村瀬 義治, 山本 徳和

1. 諸言

本発表は、高速増殖炉の燃料被覆管材料として使用が検討されている**12Cr-ODS鋼**に対し、**He注入影響**を明らかにすることを目的とし、東北大ならびにNIMS所有の加速器を用いたHe注入試験ならびに、その試料のクリープ試験を通し、**クリープ寿命**や**変形機構**、**破壊モード**等へのHe影響を評価した。

発表の構成

1. 諸言
2. 実験方法
 - 2-1. 供試材
 - 2-2. He注入試験
 - 2-3. クリープ試験
3. 結果
 - 3-1. He未注入材のクリープ特性
 - 3-2. He注入材のクリープ特性
 - 3-3. クリープ特性へのHe影響 (微細組織学的観点)
4. 考察
 - 4-1. 12Cr-ODS鋼の変形機構領域図
 - 4-2. クリープ寿命とHe注入との関係
5. 結言

2. 実験方法

2-1. 供試材

Chemical composition (wt.%)

Fe	Cr	W	Mn	Ti	C	O	N	Y ₂ O ₃
Bal.	12.01	1.91	0.06	0.31	0.033	0.117	0.008	0.25

粉末配合

メカニカルアロイング

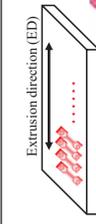
熱間押出 (1150°C)

鍛造 (1150°C)

熱処理 (1100°C/1hr)

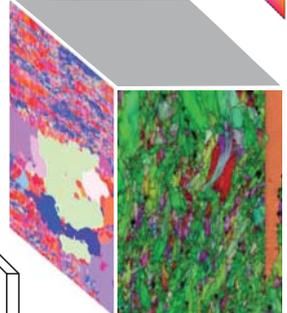
冷間加工 (40%)

熱処理 (1050°C/1hr)



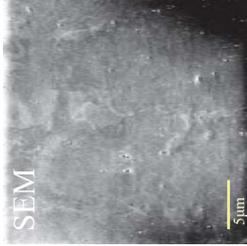
Extrusion direction (ED)

※ 詳細条件は割愛

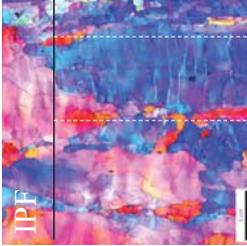


10 μm

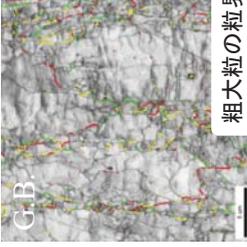
2-1. 供試材



SEM
5 μm

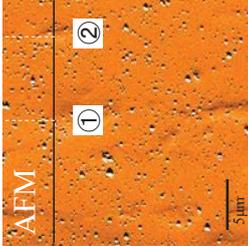


IPF
5 μm

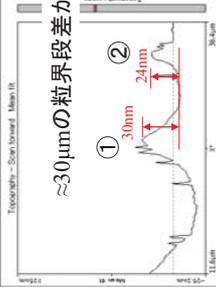


G.B.
Σ19 (26.5±3°)
Σ9 (38.9±3°)
Σ11 (50.5±3°)

粗大粒の粒界は、特性の対応粒界の割合が高い
 ※ 微細粒の粗界からも確認された



AFM
5 μm



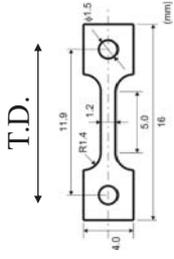
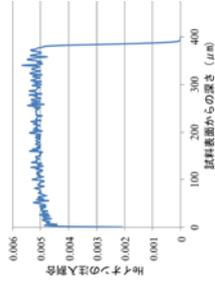
表面
段差
測定
ライン
~30μmの粒界段差が存在

2-2. He注入試験

東北大 CYRIC



50 MeV@573 K

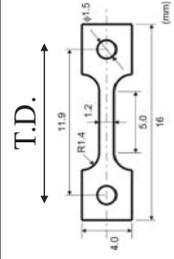
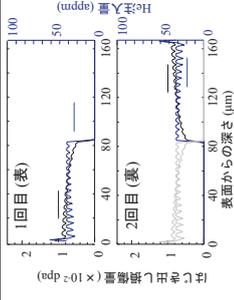


Thickness : $\approx 0.3 \mu\text{m}$

NIMSサイクロトロン



20 MeV@473 K



Thickness : $0.167 \mu\text{m}$

2-3. クリープ試験

東北大 CYRIC



Temp (K)	Stress (MPa)
973	120, 140, 160, 180, 200
873	280, 320, 360, 380, 400
773	480, 540, 560

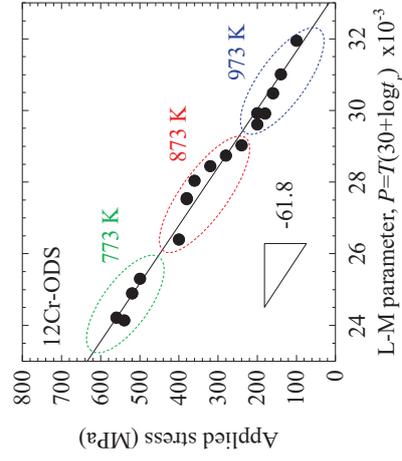
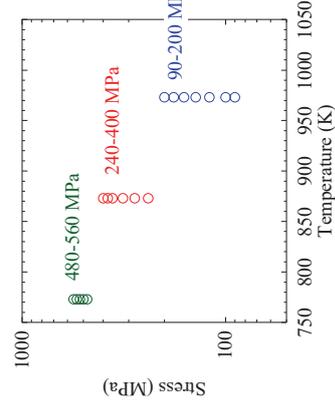
※平成25年納品
インテスコ社製 M100

NIMSサイクロトロン

Temp (K)	Stress (MPa)
973	90, 100, 120, 140, 160, 180
873	300
773	500, 520, 560

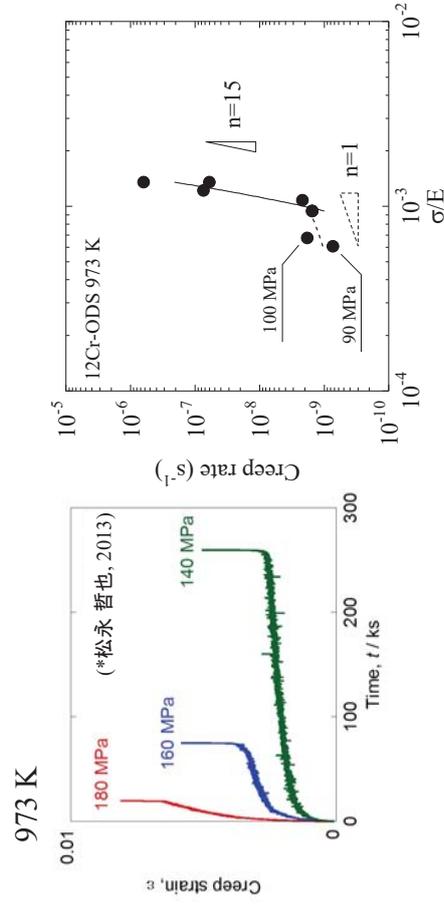
3. 結果

3-1. He未注入材のクリープ特性



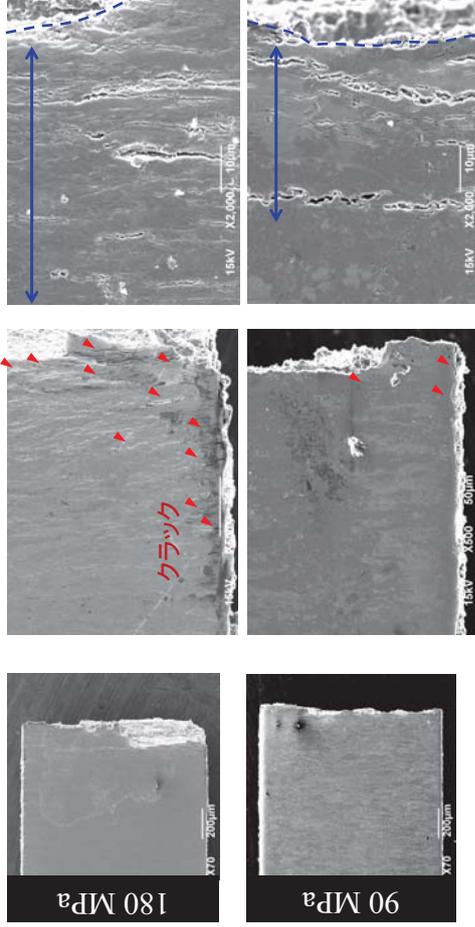
- He未注入材のクリープ破断時間ないクリープ寿命はラーソン・ミラーパラメタによって、程度よく説明できた。

3-1. He未注入材のクリープ特性 (変形機構)



- 低応力付加条件で試験した試料は、高応力 ($\geq 120 \text{MPa}$) に比べ、応力指数が低下した。100 MPaを境にして変形機構が変化することが示唆された。

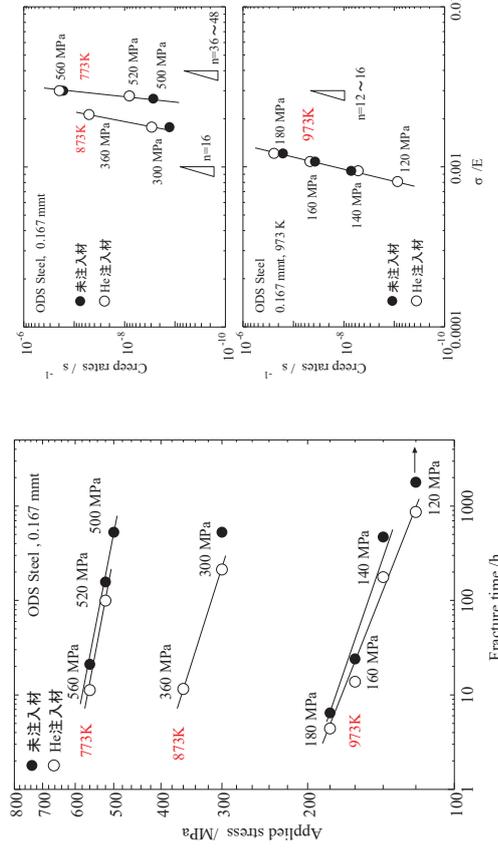
3-1. He未注入材のクリープ特性 973 Kクリープ材の破面観察



- 変形機構の違いに依存した破面(試験片表面)が観察された。
高応力付加条件(転位クリープ)で変形したもので、多くのクラックが確認された。

9

3-2. He注入材のクリープ特性 (NIMS, 30 appmHe)



- He注入によってクリープ寿命が低下したが、変形機構へのHe影響は当試験条件範囲では確認されなかった。

11

3-2. He注入材のクリープ特性 東北大 CYRIC (5, 35, 70 appmHe)



Temp (K)	Stress (MPa)
973	35 appmHe : 90, 140, 160, 180
873	70appmHe : 300, 340 35 appmHe : 300, 340, 380 5 appmHe : 300, 340
773	-



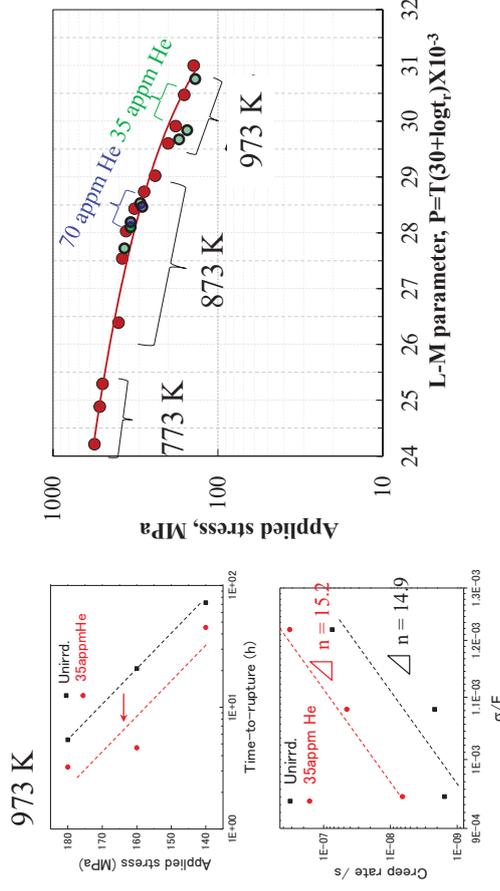
※ これまでに、長谷川研Gr.から上記以外の70 appmHe材を6本作製(提供)して頂いており、今後、これらのクリープ試験(973K)を実施予定にある。

NIMSサイクロトロン (30 appmHe)

Temp (K)	Stress (MPa)
973	180, 160, 140, 120※ ※ +100 appmHe
873	300
773	500, 520, 560

10

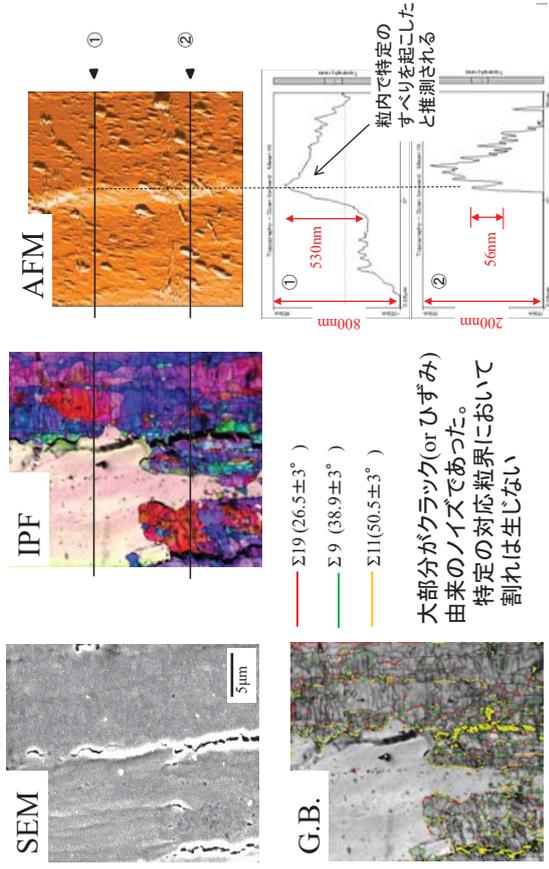
3-2. He注入材のクリープ特性 (東北大)



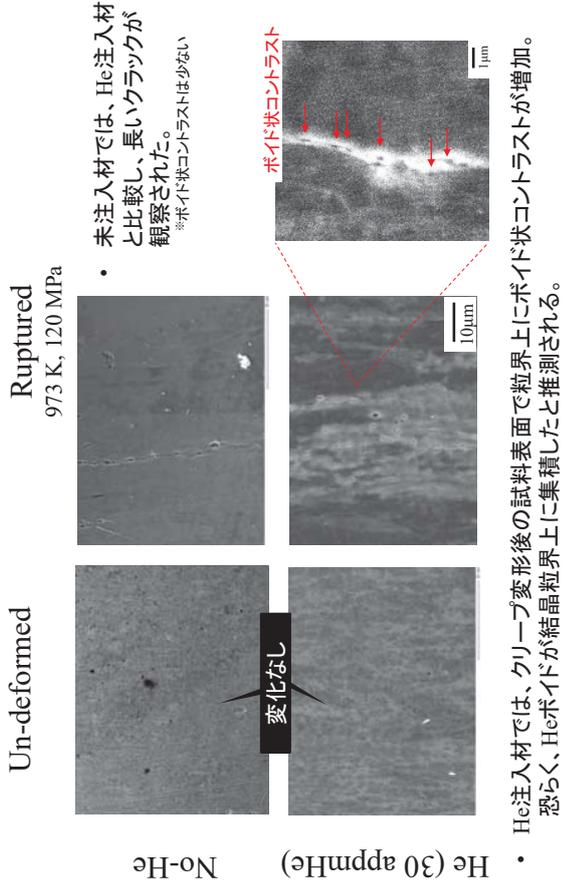
- NIMS結果と同様。当試験条件の範囲内では、He注入影響は高温クリープ条件下で顕著であった。

12

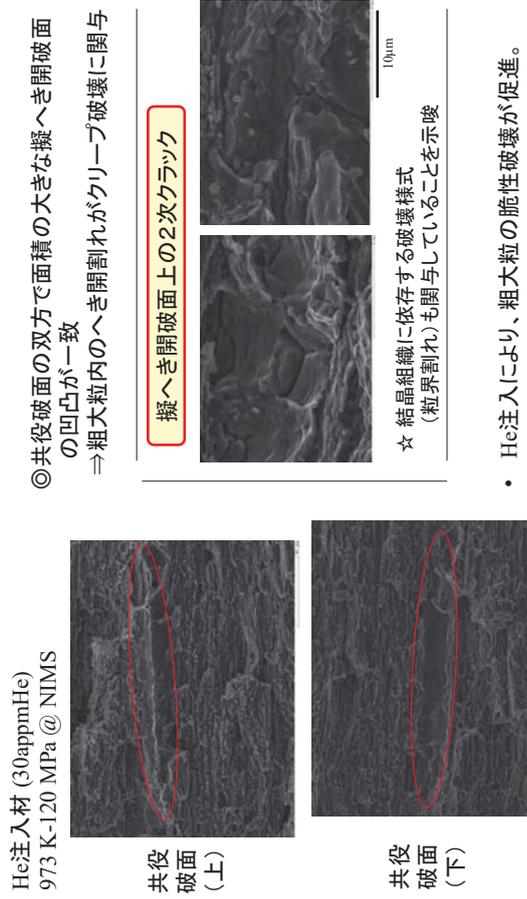
3-3. クリープ特性へのHe影響（微細組織学的観点）



3-3. クリープ特性へのHe影響（微細組織学的観点）

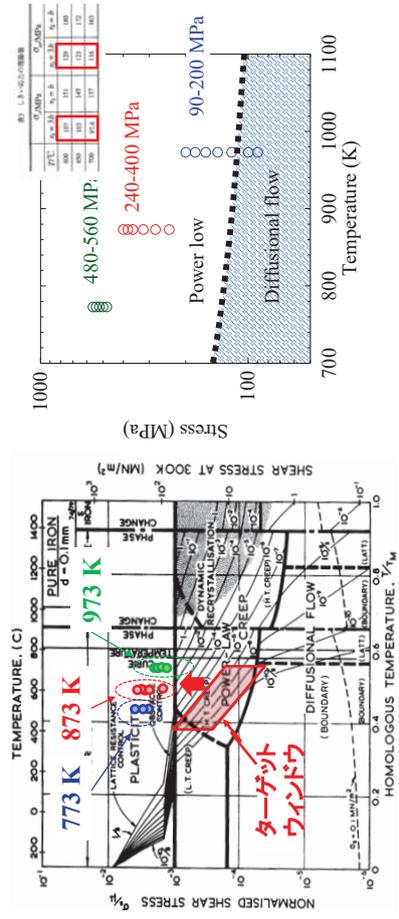


3-3. クリープ特性へのHe影響（微細組織学的観点）



4. 考察

4-1. 12Cr-ODS鋼の変形機構領域図

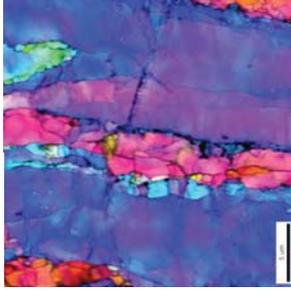
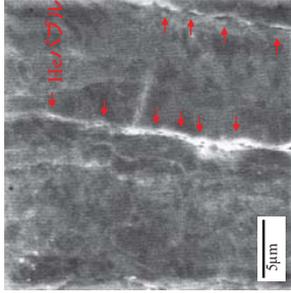


- ・ 当該鋼は酸化物ならびに結晶粒径微細強化によって、純鉄の変形機構領域図よりも高応力側にシフト(σ/μ ≈ 10倍)することが分かった。
- ・ 酸化物に対する転位のクライム運動の有無が、変形機構の違い(転位と拡散クリープ)に影響することを実験的に示した。

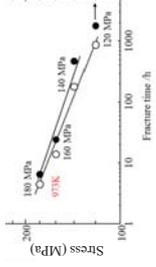
4. 考察

4-2. クリープ寿命とHe注入との関係

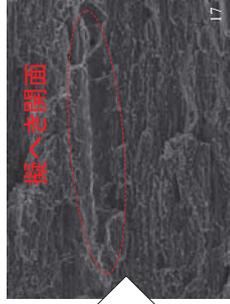
30appmHe, 973K, 120 MPa



粗大粒内において擬へき開破壊が生じていることから、これらの破壊は、結晶粒界から粒内へと進展したと推測される。



- Heバブルと思われるコントラストが粒界上に多く確認された。Heバブルの連結により、クラック進展速度が、未注入材に比べ増加し、クリープ寿命が低下したと考えられる。



5. 結言

高速増殖炉の燃料被覆管材料として使用が検討されている12Cr-ODS鋼へのHe注入影響を明らかにすることを目的とし、東北大学ならびにNIMS所有の加速器を用いたHe注入試験ならびに、そのクリープ試験を実施し、クリープ寿命や変形機構、破壊モード等へのHe影響を評価した。

1. 973Kのクリープ試験において、100 MPaを境にして変形機構が変化しており、これは、酸化物の転位のクライム運動によって説明出来た。なお、変形機構に依存した破面(クラック)が確認された。
2. He注入によってクリープ寿命が短時間化することが分かった。また、この傾向は高温で顕著であった。
3. クリープ破断させたHe注入材において、粗大粒内の擬へき開破面が確認された。また、He注入材では、クリープ変形によって結晶粒界上にHeバブルが集積する傾向にあったことから、Heバブルが連結することで、クラックの進展速度が増加し、その結果、寿命低下に影響していると推測された。

(2) 劣化材料の機械的性質評価 ③ 高温クリープ試験2

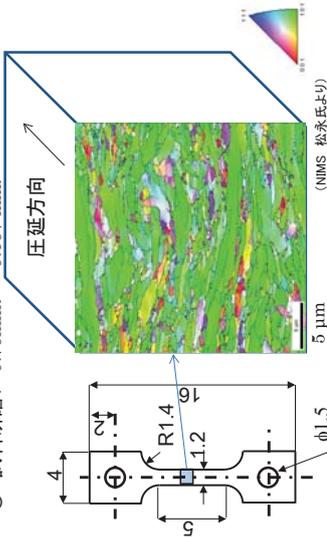
物質・材料研究機構 (NIMS)
環境・エネルギー材料部門
材料信頼性評価ユニット耐環境特性グループ
村瀬 義治

高温クリープ試験片準備

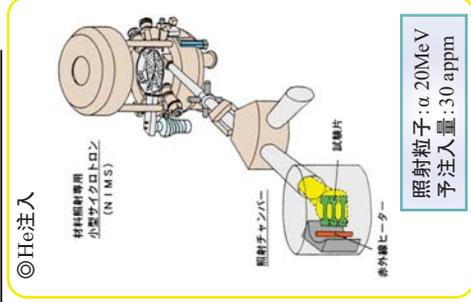
◎ 東北大供給材 12Cr-ODS鋼

C	Si	Mn	S	Cr	W	Ti	Y	O	Fe
ODS 0.033	0.06	0.06	0.006	12.01	1.91	0.31	0.20	0.117	balance

◎ 試料研磨: 0.70mmt → 0.167 mm



試料: SS-Jサイズ
試料厚さ: 0.167mm
Normalizing: 1050°C, 60min
Grain size: 0.60 μm (horizontal)
: 0.34 μm (vertical)



H27年度実行計画

- 1) 高温クリープ試験結果のまとめ
~He注入試料(30appm)、未注入試料~
973K(120~180MPa)
873K(300, 360MPa)
773K(500~560MPa)

- 応力-Creep速度評価
- SEM破面解析

- 2) 973K, 120MPa クリープ破壊挙動解析
※SEM破面観察から、He注入試料で脆性破壊促進を示唆
○SEM、AFM、EBSD解析

高温クリープ試験 ~試験結果まとめ~

973K (H25, 26年度)

sample no.	stress	Time to rupture (s)	Creep rate (s-1)
9C09	180 MPa	15840	2.44E-07
He injected (30 appm)	160 MPa	49687	4.70E-08
9C11	140 MPa	636960	5.20E-09
9C12	120 MPa	3108960	8.64E-10
9C17	180 MPa	23880	1.61E-07
no He	160 MPa	86780	3.73E-08
9C20	140 MPa	166882	7.17E-09
9C22	120 MPa	> 6436800	< 8.36E-10 ← unfractured

873K (H27年度)

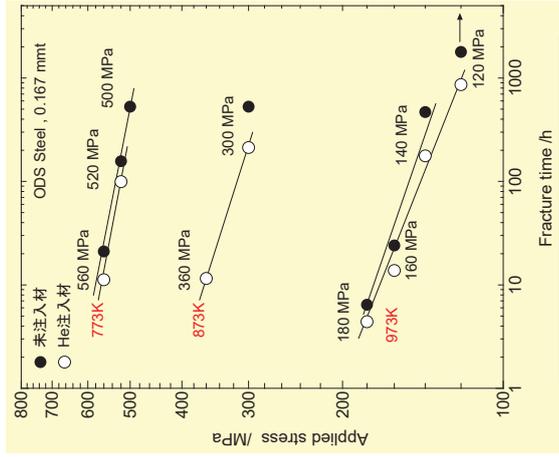
sample no.	stress	Time to rupture (s)	Creep rate (s-1)
He injected (30 appm)	360 MPa	41619	5.08E-08
9C29	300 MPa	766380	7.40E-09
no He	300 MPa	2102640	2.00E-09

773K (H26年度)

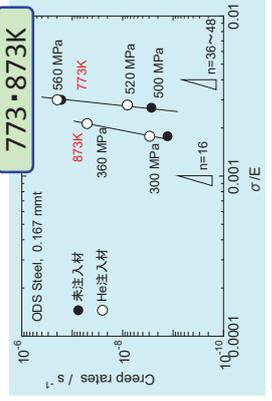
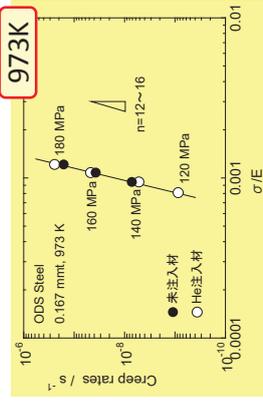
sample no.	stress	Time to rupture (s)	Creep rate (s-1)
He injected (30 appm)	560 MPa	40440	1.97E-07
9C14	520 MPa	358690	8.07E-09
9C19	560 MPa	75820	1.66E-07
no He	520 MPa	564810	7.93E-09
9C18	500 MPa	1904082	2.69E-09

・各温度の同一応力条件で、He注入によるクリープ破壊寿命短縮

高温クリープ試験 ～試験結果まとめ・その2～



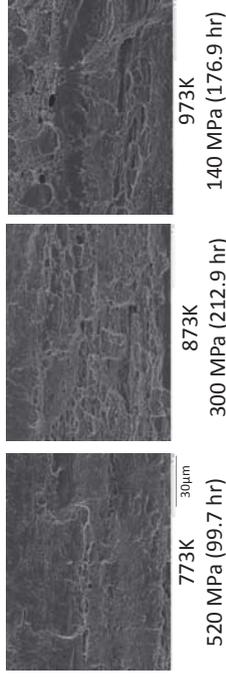
・各温度ともHe注入材で短寿命



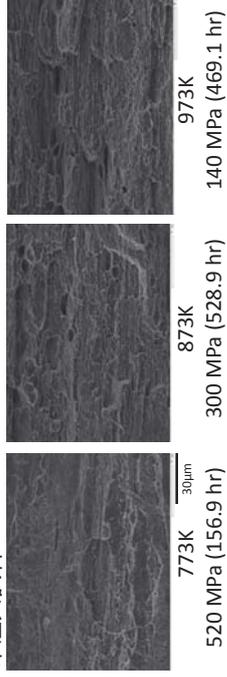
・応力指数の値にHe影響は確認できず

高温クリープ試験 ～試験結果まとめ・その3 SEM破面観察～

He注入試料



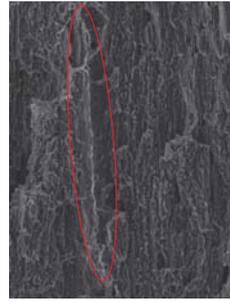
未注入試料



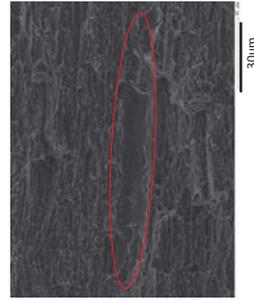
・He注入試料、未注入試料とも、破面形態はラス状や板状組織、擬へき開、一部にディングブルがみられる様相を示す

高温クリープ試験 (973K) ～試験結果まとめ・その4 SEM破面観察～

He注入試料, 120 MPa (863.6 hr)



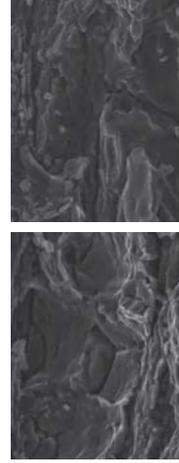
共役破面 (上)



共役破面 (下)

◎ 共役破面の双方で面積の大きな擬へき開破面の凹凸が一致
⇒粗大粒内のへき開割れがクリープ破壊に関与

擬へき開破面上の2次クラック



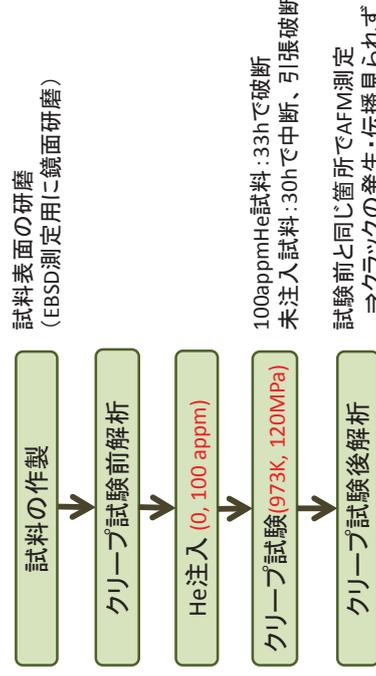
☆ 結晶組織に依存する破壊様式 (粒界割れ)も関与していることを示唆

破面観察から、特に粗大粒においてHe注入による脆性破壊の促進が示唆される

◎目的

・クラック発生箇所、および伝播経路の組織依存性、ならびにHe注入効果を調べる

○解析の流れ

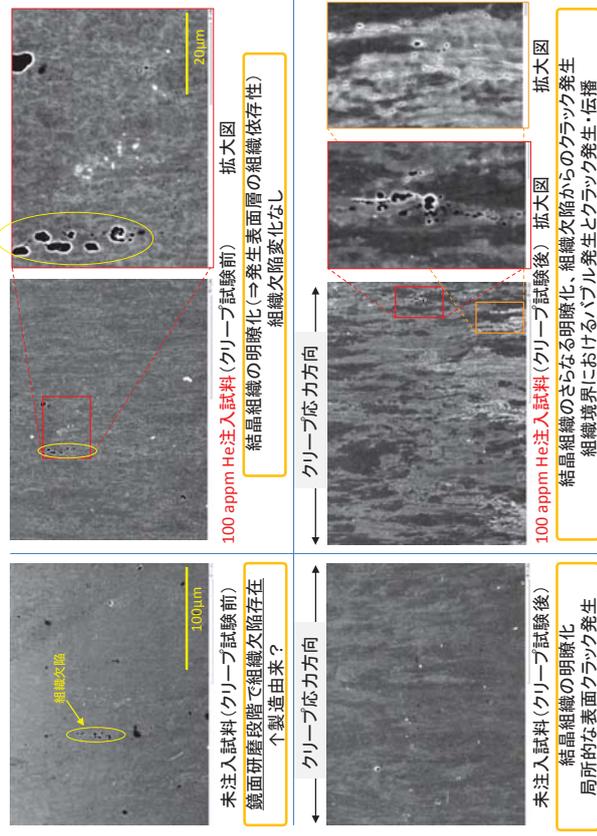


100appmHe試料:33hで破断
未注入試料:30hで中断、引張破断
試験前と同じ箇所でのAFM測定
⇒クラックの発生・伝播見られず

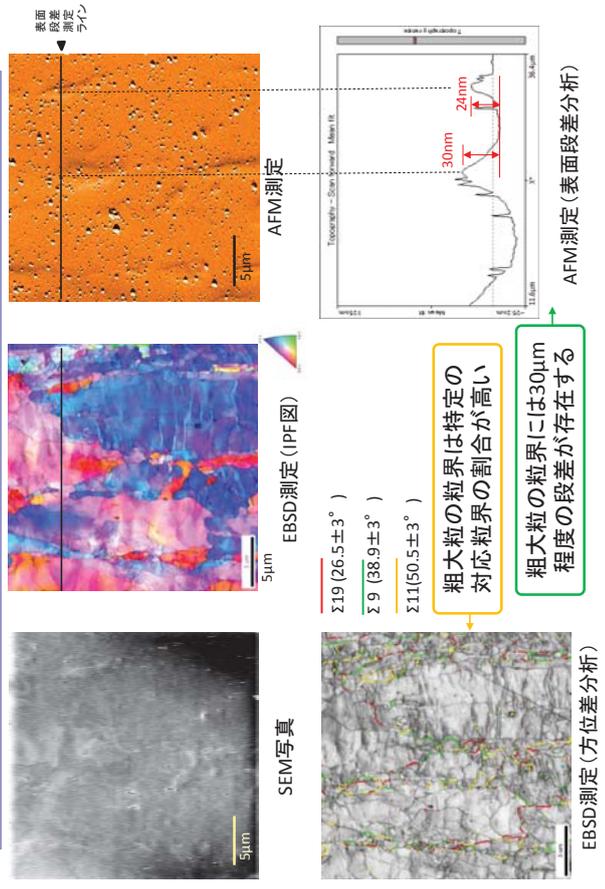
クラック発生・伝播箇所でのAFM, EBSD測定

高温クリープ破壊挙動解析 ～はじめに～

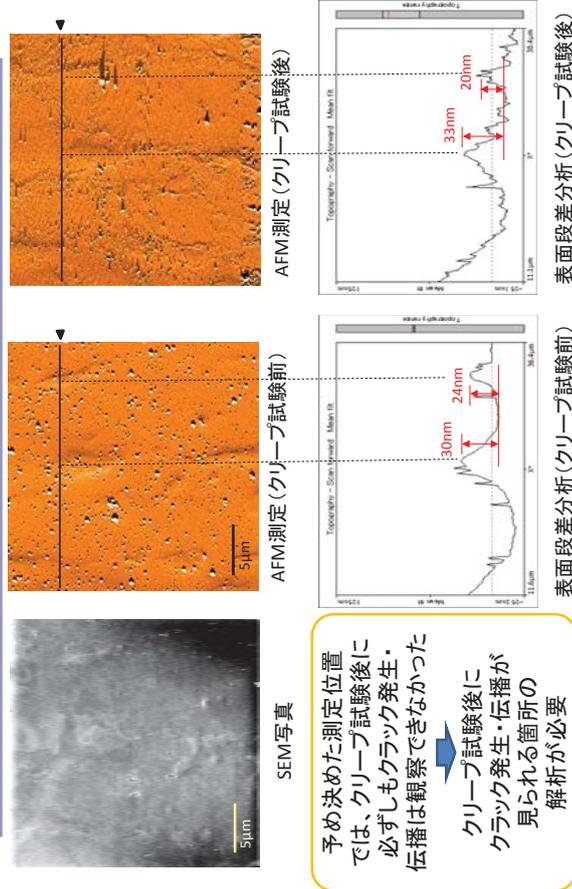
高温クリープ破壊挙動解析 ~ He注入試料表面SEM観察 ~



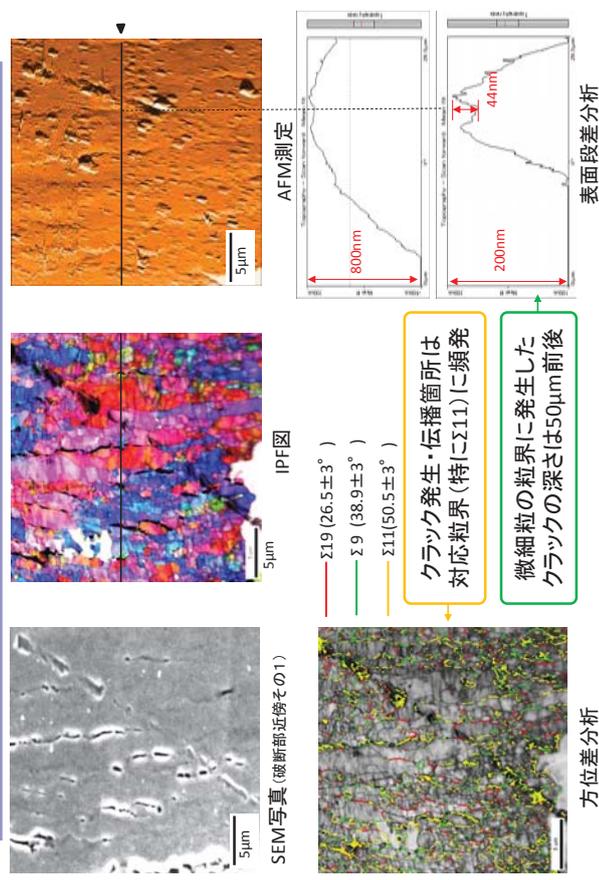
高温クリープ破壊挙動解析 ~ 未注入試料: クリープ試験前 EBSD, AFM解析 ~



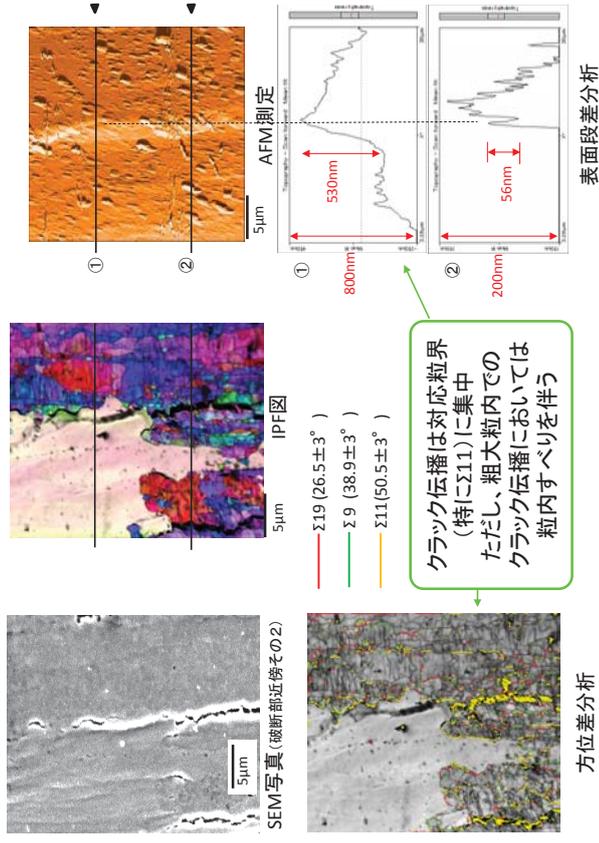
高温クリープ破壊挙動解析 ~ 未注入試料: クリープ試験前後比較 ~



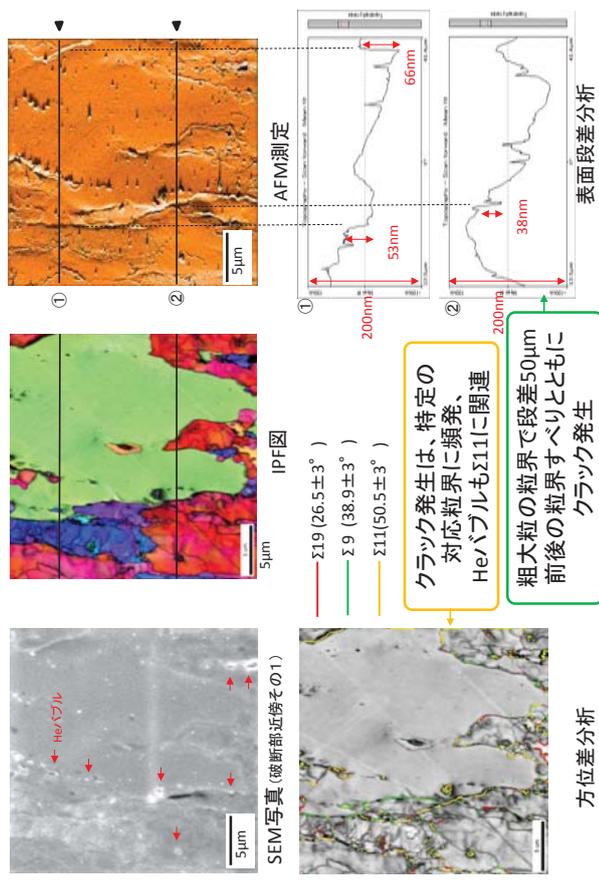
高温クリープ破壊挙動解析 ~ 未注入試料: 試験後 EBSD, AFM解析その1 ~



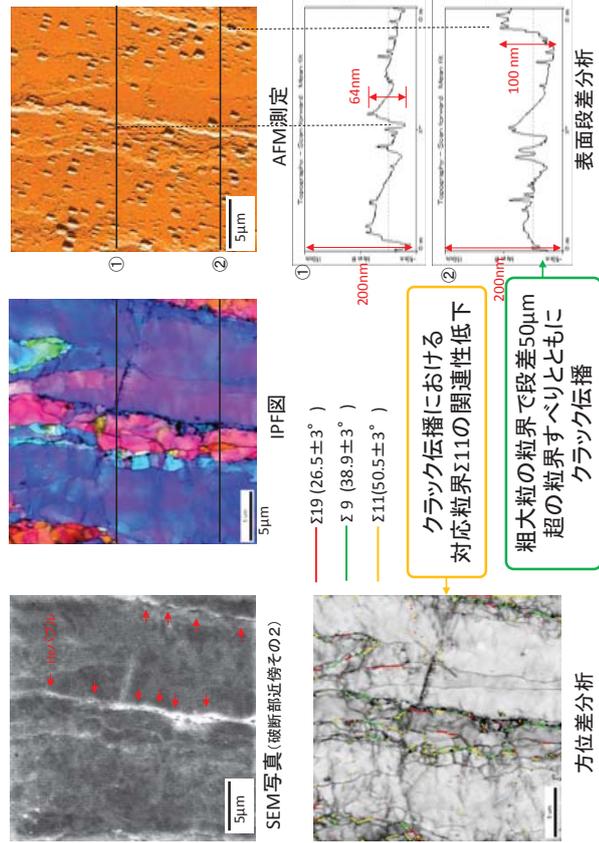
高温クリープ破壊挙動解析 ～未注入試料:試験後EBSD,AFM解析その2～



高温クリープ破壊挙動解析 ～He注入試料:試験後EBSD,AFM解析その1～



高温クリープ破壊挙動解析 ～He注入試料:試験後EBSD,AFM解析その2～



考察

解析結果から

- 粗大粒(δ フェライト相)と周辺領域に段差あり
 - \uparrow δ 相(高密度の酸化物分散粒子が存在)の硬度が高く、研磨速度が小さいため
- 粗大粒粒界は特定の対応粒界($\Sigma 9, 11, 19$)を形成している割合が高い(特に $\Sigma 11$)
- 特定の対応粒界($\Sigma 9, 11, 19$, 特に $\Sigma 11$)においてクラック発生・伝播頻度が高い
 - \uparrow これらの粒界で粒界すべりが発生しやすい*1)ことが原因であると考えられる
- クラックが粗大粒内を伝播する際には粒内すべりを伴う
 - \Rightarrow 粗大粒内の擬へき開割れ破面の形成へ

・He注入試料

- 対応粒界(特に $\Sigma 11$)におけるクラック発生とともにHeバブルの形成
 - \Rightarrow He注入材において、クラック伝播が促進され、クリープ寿命短縮へ
- クラック伝播における対応粒界 $\Sigma 11$ の関連性低下
 - \uparrow Heバブル間の weakest link によるクラック伝播が関与

参考文献: 1) S. Ukai et al., "Characterization of High Temperature Creep Properties in Recrystallized 12Cr-ODS Ferritic Steel Chadding", J. Nucl. Sci. Technol. Vol.39, No.8, pp.872-879 (2002).

まとめ

30 appmHe注入した12Cr-ODS鋼の微小薄板試料(SS-J type, 0.167mmt)について、923K:120~180MPa, 873K:300および360MPa, 773K:500~560MPaの高温クリーブ試験を実施した結果、

1. すべての応力条件でHe注入によるクリーブ破断寿命の低下がみられた。ただし、応力-クリーブ速度関係式の応力指数についてHeの影響はみられなかった。
2. SEM破面観察の結果から、He注入による結晶組織に依存する破壊形式(粒界われ)や、粗大粒内の脆へき開割れなどの脆性破壊の促進が示唆された。100 appmHe注入試料について、923K, 120MPaのクリーブ挙動解析を実施した結果、
3. 粗大粒の粒界は、特定の対応粒界($\Sigma 9, 11, 19$)を形成している割合が高く、これらの粒界では粒界すべりによるクラック発生・伝播が促進されると考えられる。また、クラックが粗大粒内を伝播する際には粒内すべりを伴う。
4. He注入により、特定の対応粒界におけるクラック発生とともにHeバブルの発生がみられた。Heバブルはクラック伝播に関与し、クリーブ寿命短縮に寄与すると考えられる。

再委託業務の目的

- 軽水炉や高速増殖炉の燃料被覆管は、腐食、水素化、照射影響、He脆化等の劣化の進行と、燃料被覆管相互作用等の機械的負荷が重畳する環境に置かれ、このような条件下での**機械的健全性に関する科学的機構論的な知識の構築**が求められる。また原子炉事故を踏まえ高温腐食と機械的負荷という異常条件下での材料挙動についても知見の蓄積が求められる。
- 本研究は、次世代軽水炉燃料被覆管材料に関するこれまでの研究を**発展させ、材料劣化を腐食、水素化、イオン照射により模擬し、定常および異常条件における強度測定と微細組織観察を組み合わせ、燃料被覆管健全性評価に反映可能な劣化評価手法を開発すること**を目的とする。

1

微細組織解析(加速器TEM)

平成28年3月14日
東京大学 村上健太
murakami@tokai.t.u-tokyo.ac.jp

平成27年度の成果の目標および業務の方法

- 平成26年度までに設置したイオンビーム照射下組織その場観察ライン装置の真空排気系を更新し、電子顕微鏡内に設置した試料に対し**照射実験**を行う。照射した試料の**電子顕微鏡観察実験**を行う。
- イオン照射材を作製する。照射試料は劣化材料の機械的性質評価および劣化材料のミクロ組織観察試験に供する。一部の試料は集束イオンビーム加工装置(既存)を用いて**断面観察試料**を作製し、TEM観察へ供する。

3

平成27年度の研究内容

- その場観察装置の改良を引き続き行う
- 以下の3点に着目した微細組織観察を行う
 - カスケード損傷による欠陥形成
 - 析出物の照射下安定性
 - 強度測定結果と関連付けられる微細組織変化
- 腐食材のTEM試料作成に協力する
 - 東北大・松川先生がご発表

4

その場観察装置の改造



現在のその場観察装置(イオンポンプ等更新後)



冷却水系・計装空気系の改良

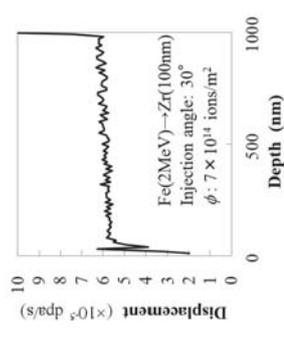


制御盤改良とインターロック

6

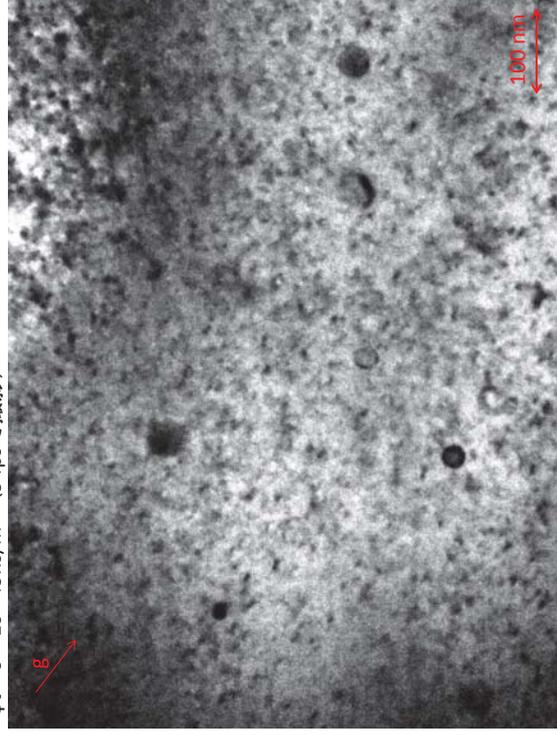
その場観察実験によるカスケード損傷評価

- 試料 : J1 (Zr-1.8Nb); テヌポールで薄膜化
- 照射温度 : 室温、約 200 °C (JEOL SHHホルダ使用)
- イオン種 : 2.0 MeV Fe²⁺
- イオン束 : 7×10^{14} ions/cm²
- 損傷速度 : 6×10^{-5} dpa/s



J1合金による照射欠陥形成のその場観察

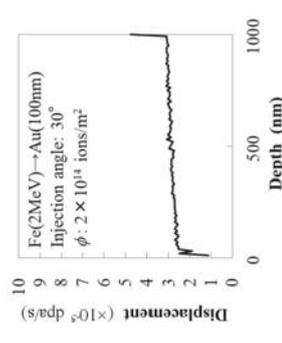
$\phi t = 6 \times 10^{17}$ ions/m² (9 fpsで撮影)



7

(参考) Auのカスケード損傷評価

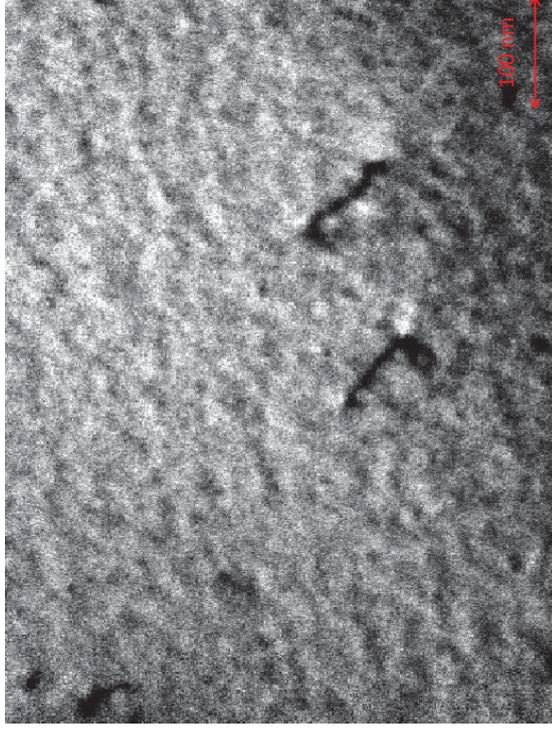
- 試料 : Au(4N); FIBで薄膜化; 500°C 10min 焼鈍
- 照射温度 : 約 200 °C (JEOL SHHホルダ使用)
- イオン種 : 2.0 MeV Fe²⁺
- イオン束 : 2.5×10^{14} ions/cm²
- 損傷速度 : 約 $3-7 \times 10^{-5}$ dpa/s



8

(参考) Auのカスケード損傷評価

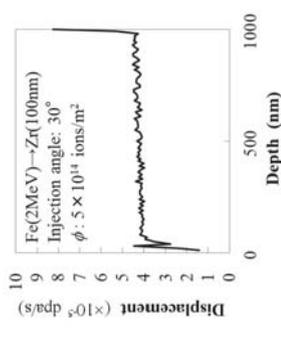
@ 300 °C (19 fpsで撮影)



9

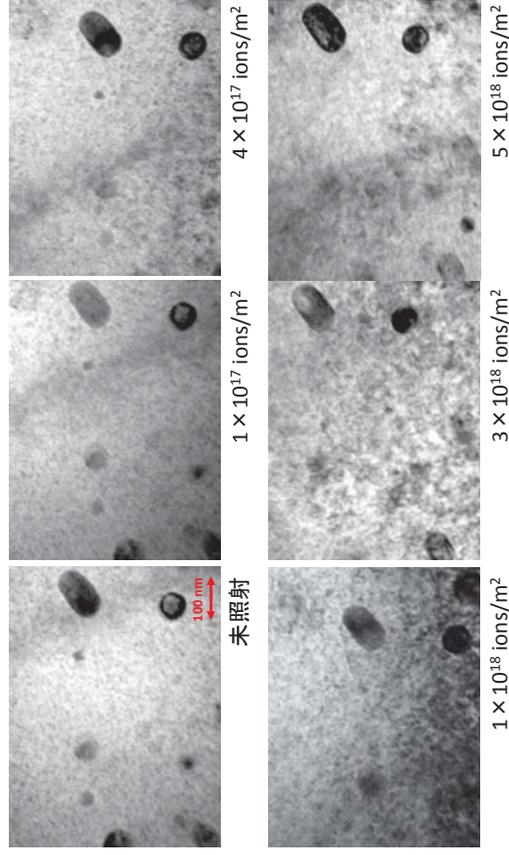
その場観察実験による析出物安定性評価

- 試料 : J1 (Zr-1.8Nb); テンポールで薄膜化
- 照射温度 : 約 100 ~ 300 °C (JEOL SHHホルダ使用)
- イオン種 : 2.0 MeV Fe²⁺
- イオン束 : 5×10^{14} ions/cm²
- 損傷速度 : 約 4×10^{-5} dpa/s



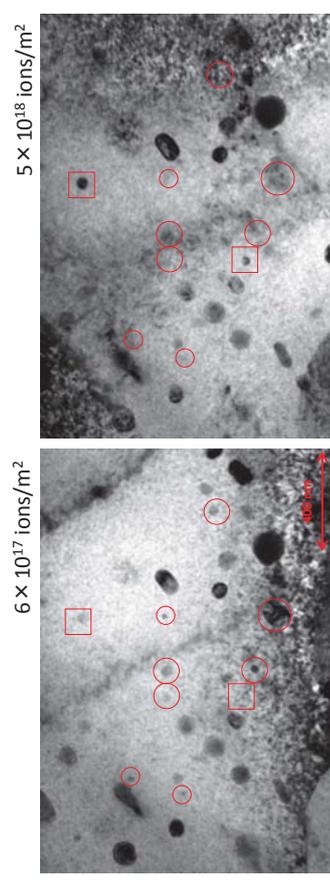
10

J1合金におけるNb析出物の照射下安定性 (1)



11

J1合金におけるNb析出物の照射下安定性 (2)

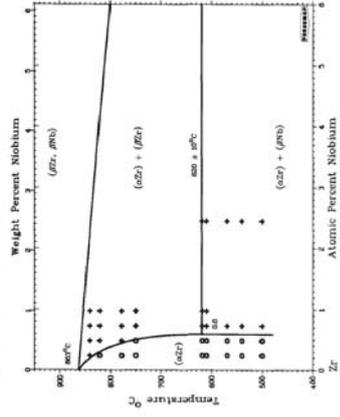


- ○ 照射によってコントラストが弱まる
- □ 照射によってコントラストが強まる

12

Nb析出物の熱的安定性

Fig. 4 Solubility of Nb in α Zr



Nbは>0.6 at%で β 相として析出

J. P. Abriata, J. C. Bollich
Bulletin of Alloy Phase Diagrams
3 (1982) 34-44

O = single-phase (α Zr), + = two-phase (α Zr) and (β Zr) or (α Zr) and (μ Nb). After [72EF].

- 照射で発現したもの → β -Nbの析出
- 照射で消失したものは → Nbの再固溶 or アーティファクト

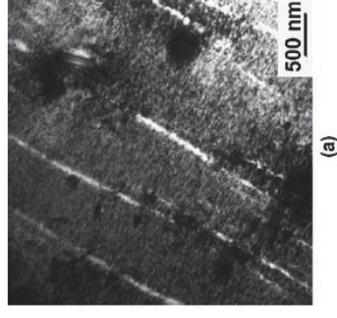
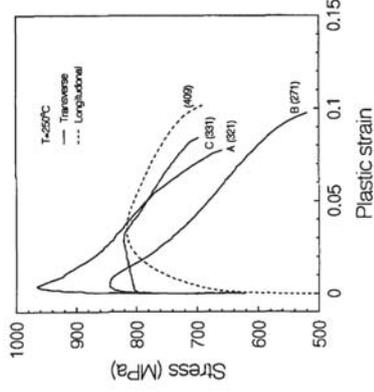
13

J合金の転位チャネリングの観察

- イオン照射 @ 東大HIT
 - 2.8 MeV Fe²⁺; 300 °C; ~4 dpa
- 引張試験 by 叶野先生
 - 2% 塑性ひずみを目標として、途中止め試験片を作成中
- 表面観察
 - SEM, EBSDで局所変形と結晶粒の関係を観察
 - (必要に応じてAFMによる段差測定)
- 微細組織観察
 - FIBで局所変形箇所をふくむ領域をマイクロサンプリング
 - TEMで転位チャネルの幅や間隔を測定

15

強度測定結果と関連付けられる微細組織変化



CANDU圧力管 (Zr-2.5Nb)の引張試験結果
(照射: $\phi t = 7.9 \times 10^{25}$ n/m², T=259-282°C)

Zircaroy-4のBasal Channel
(照射: $\phi t = 0.6 \times 10^{25}$ n/m², T=280°C)

D. D. Himbeault, et al., Metall. Mater. Trans. A, 1994

F. Onimus, et al., JNM, 2004

14

本年度の成果(まとめ)

- その場観察装置の改良を実施した。
 - イオンポンプの更新、制御系・冷却水系の改良
- その場観察装置で照射下微細組織観察を実施した。
 - J1合金のカスケード損傷による欠陥形成
 - (参考)金のカスケード損傷による欠陥形成
 - J1合金のNb析出物の照射下安定性
- J合金のイオン照射材を作成した。
 - 照射材は転位チャネリング観察に供している。
- J3合金(腐食材)の断面観察試料作成を実施した。

16

学 会 等 発 表 実 績

委託業務題目「原子炉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」

機関名 国立大学法人 東北大学

発表した成果（発表題目）	口頭・ポスター発表の別	発表者氏名	発表した学会等名、場所	発表月日等	国内・外の別
1 A Study on Stability of Cu-rich Clusters under Ion Irradiation using In-situ TEM	口頭	村上健太, 陳東鉞, 阿部弘亨, 関村直人	19th meeting of International Group on Radiation Damage Mechanism in Pressure Vessel Steels (IGRDM), Assheville, NC, USA	2016年4月12日	国際
2 PWR条件で腐食させたZr-Nb合金の微細組織変化と高耐食性の知見	口頭	松川義孝, 喜多山周平, 牟田浩明, 村上健太, 篠原靖周, 阿部弘亨	日本原子力学会 2016年春の年会	2016年3月27日	国内
3 管形状を有する原子燃料の機械強度と安全設計基準をどう評価するか	口頭	阿部弘亨, 関村直人, 牟田裕明, 長谷川晃, 村瀬義治, 篠原靖周	日本原子力学会 2016年春の大会	2016年3月27日	国内
4 管形状材料の多軸応力試験による機械強度評価	口頭	篠原靖周, 木戸俊哉, 阿部弘亨	日本原子力学会 2016年春の年会	2016年3月27日	国内
5 水素注入に伴うジルコニウム合金の劣化評価	口頭	牟田浩明, 叶野翔, 楊会龍, 趙子寿, 國井大地, 篠原靖周, 阿部弘亨	日本原子力学会2016年春の年会	2016年3月27日	国内
6 単軸引張ならびにA-EDC試験下におけるZr-Nb合金の変形組織評価と照射影響	口頭	叶野翔, 楊会龍, 趙子寿, 國井大地, 牟田浩明, 村上健太, 篠原靖周, 阿部弘亨	日本原子力学会 2016年春の年会	2016年3月27日	国内
7 Zr-Nb合金腐食材中析出物の酸化過程のTEM/STEM-EDS分析	口頭	喜多山周平, 松川義孝, 吉田健太, 楊会龍, 佐藤裕樹, 篠原靖周, 村上健太, 叶野翔, 阿部弘亨	日本金属学会、東京	2016年3月25日	国内
8 イオン加速器連結顕微鏡法によるカスケード損傷下でのマイクロ組成安定性評価	口頭	村上健太, 陳東鉞, 塚本哲生, 岩井岳夫, 阿部弘亨, 関村直人	日本金属学会	2016年3月24日	国内

9	In-situ observation of the stability of Y2O3 in 9Cr-ODS steel under electron irradiation	ポスター	F. Li, H. Abe, Y.F. Li, T. Matsunaga, Y. Satoh, T. Nagasaka, T. Muroga, T. Nagase, H. Yasuda	2012年日本金属学会秋季大会, 松山	2016年3月18-19日	国内
10	加速器結合型電子顕微鏡技術の活用	口頭	村上健太	東北大学金属材料研究所ワークショップ「原子力材料研究に関する実験・計算技術の新展望」	2015年11月17日	国内
11	Characterization of microstructure and mechanical properties of 12Cr-ODS ferritic steel	ポスター	Yanfen Li, H. Abe, F. Li, J.J. Shen, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, T. Muroga	2014東北大学金属材料研究所ワークショップ [照射材料研究、原子力材料研究のこれから]	2015年10月12-16日	国内
12	Strain Quantification of Zirconium Alloy Cladding by EBSD Analysis	口頭	J. Yamaguchi, H. Muta, Y. Ohishi, K. Kurosaki, S. Yamanaka, Z. Zhao, Y. Matsukawa, H. Abe	3rd Asian Zirconium Workshop	2015年10月9日	国外
13	Stability of Oxide Nano-Particles in 9Cr-ODS Steel under High Energy Electron Irradiation at Elevated Temperature.	口頭	F. Li, H. Abe, T. Ishizaki, Y.F. Li, T. Nagasaka, T. Muroga, T. Nagase, and H. Yasuda,	日本原子力学会2013年秋の大会, 八戸	2015年10月1日	国内
14	Anisotropy in microstructures and mechanical properties of two 12Cr-ODS ferritic steels	ポスター	Yanfen Li, J.J. Shen, F. Li, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, H. Abe, T. Muroga	17th International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM-17), Aachen, Germany	2015年9月16-18日	国外
15	Study on Anisotropy of Mechanical Property and Microstructure of 12Cr Ferritic - Oxide Dispersion Strengthened Steel	ポスター	Yanfen Li, H. Abe, Y. Satoh, Y. Matsukawa, F. Li, J.J. Shen, T. Muroga	2014年度春季第127回金属材料研究所講演会	2015年9月16-18日	国内
16	EBSD法によるZr合金被覆管のひずみ量評価	口頭	山口純、牟田浩明、大石佑治、黒崎健、山中伸介、Zishou Zhao、松川義孝、阿部弘亨	日本原子力学会2015年秋の大会	2015年9月11日	国内

17	J-Alloy TM 腐食材の表面酸化被膜のTEM-EDS分析：FeとNbの偏析について	口頭	松川 義孝、喜多山 周平、楊会龍、外山 健、吉田 健太、叶野 翔、佐藤 裕樹、阿部 弘亨、吉田 健太、外山 健、村上 健太、篠原 靖周、牟田 浩明、山中 伸介	日本原子力学会、静岡	2015年9月11日	国内
18	Effects of excess oxygen level on mechanical properties and microstructure for two 9Cr-ODS steel	ポスター	Yanfen Li, J.J. Shen, F. Li, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, H. Abe and T. Muroga	2015年日本金属学会春季大会, 東京大学	2015年5月29日	国内
19	金属間化合物G相の単相インゴットの作成と機械的性質評価	口頭	松川義孝、叶野翔、佐藤裕樹、阿部弘亨、鈴木知明、山口正剛、牟田浩明、山中伸介	日本金属学会、東京	2015年3月21日	国内
20	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 (1)改良型EDC試験法の開発	口頭	阿部弘亨、木下詩織、阿部友紀、國井大地、叶野翔、松川義孝、佐藤裕樹	日本原子力学会2015年春の大会	2015年3月21日	国内
21	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 (3) 材料特性の環境劣化影響の評価	口頭	叶野翔、楊会龍、艶芬李、松川義孝、佐藤祐樹、藪内聖皓、長谷川晃、阿部弘亨、村瀬義治、山本徳和	日本原子力学会2015年春の大会	2015年3月21日	国内
22	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 (4)EBSD による転位密度の定量評価	口頭	松川義孝、牟田浩明、叶野翔、申晶潔、趙子寿、木下詩織、國井大地、佐藤裕樹、山中伸介、阿部弘亨	日本原子力学会2015年春の大会	2015年3月21日	国内
23	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 (5)加速器連結型電子顕微鏡法の開発	口頭	村上健太、塚本哲生、阿部弘亨、岩井岳夫、関村直人	日本原子力学会2015年春の大会	2015年3月21日	国内
24	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 (2)多軸応力試験法の開発	口頭	篠原靖周、木戸俊哉、阿部弘亨	日本原子力学会2015年春の大会	2015年3月21日	国内

25	Effects of fabrication routes on mechanical properties and microstructure for two 12Cr-ODS ferritic steels	ポスター	Yanfen Li, F. Li, J.J. Shen, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, H. Abe, T. Muroga	材料試験炉に関する国際シンポジウム, 2014年度大洗研究会, 東北大学金属材料研究所	2015年3月18~20日	国外
26	In-situ Observation of Oxide Particles in ODS Steels under Irradiation at High Temperature	口頭	F. Li, H. Abe, T. Ishizaki, Y.F. Li, T. Nagasaka, T.Muroga, T.Nagase, and H. Yasuda,	Workshop On TEM With In Situ Irradiation(WOTWISI-3), at Sapporo	2015年3月18-20日	国外
27	Stability of yttrium oxide particles in 9 Cr-ODS steel under high energy electron irradiation	ポスター	F.Li, H.Abe, Y.F.Li, T.Matsunaga, Y.Satoh, T.Nagasaka, T.Muroga, H.Yasuda,	Nuclear Materials Conference.	2015年3月9-10日	国外
28	Stability of 12Cr-ODS steel during elevated temperature annealing	ポスター	J.J Shen, Y. Li, F. Li, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, H. Abe	日本金属学会2015年秋期講演大会, 九州大学 伊都キャンパス	2014年12月11日-12日	国内
29	ジルカロイ4のクリープに対する固溶水素の影響	口頭	松永哲也, 本郷宏通, 田淵正明, 佐藤裕樹, 阿部弘亨	第52回高温強度シンポジウム	2014年12月4日	国内
30	「Mechanical property and microstructural characterization of 12Cr ferritic oxide dispersion strengthened steel	ポスター	Y.F. Li, H. Abe, F. Li, Y. Satoh, T. Matsukawa, T. Matsunaga, T. Muroga	東北大学金属材料研究所講演会	2014年11月28-29日	国内
31	Microstructure and strengthening mechanism of molybdenum in Zr-Nb alloys	ポスター	H.L. Yang, H. Abe, Y. Satoh, T. Matsunaga	東北大学金属材料研究所講演会	2014年11月28-29日	国内
32	改良型中子拡管試験法による原子炉燃料被覆管炉内挙動の模擬手法の開発	ポスター	阿部友紀、阿部弘亨、木下詩織、佐藤裕樹、松永哲也、松川義孝	東北大学金属材料研究所講演会	2014年11月28-29日	国内
33	焼き戻しフェライト/マルテンサイト鋼の焼き戻し処理中の微細組織形成と微細析出物の析出挙動との相関関係	ポスター	叶野翔、阿部弘亨、松川義孝、酒瀬川英雄、谷川博康	東北大学金属材料研究所講演会	2014年11月28-29日	国内
34	In-situ TEM observation in RPV model alloys under heavy ion irradiation at HIT facility	口頭	K. Murakami, H. Abe, N. Sekimura, T. Iwai, T. Tsukamoto	18th meeting of International Group on Radiation Damage Mechanism in Pressure Vessel Steels、宮崎市シーガイア・コンベンションセンター	2014年11月26日	国際

35	12Cr-ODS鋼の再結晶化に及ぼす中間熱間圧延の影響	ポスター	叶野翔、李艶芬、松川義孝、佐藤裕樹、阿部弘亨、申晶潔、李鋒、酒瀬川英雄、谷川博康、室賀健夫	日本金属学会2014年秋期講演大会	2014年9月24日	国内
36	水素化したZircaloy-4の673Kにおけるクリープ挙動	ポスター	松永哲也、佐藤裕樹、阿部弘亨	日本金属学会2014年秋期講演大会	2014年9月24日	国内
37	不純物をドーブした多結晶金属における粒界組成と粒界構造、粒界破壊の関係調査	ポスター	國井大地、松川義孝、叶野翔、佐藤裕樹、阿部弘亨	日本金属学会、名古屋	2014年9月24日	国内
38	Development of Advanced Expansion Due to Compression (A-EDC) Test Method for Safety Evaluation of Degraded Nuclear Fuel Cladding Materials	口頭招待講演	H. Abe, T. Abe, S. Kishita, S. Kano, Y.F. Li, H.L. Yang, K. Tawara, Y. Matsukawa, Y. Satoh	2nd Asia Nuclear Fuel Conference (ANFC2014)	2014年9月19日	国際
39	Effects of molybdenum on microstructural evolution and mechanical properties in Zr-Nb alloys as nuclear fuel cladding material	口頭	Huilong Yang, Hiroaki Abe, Yoshitaka Matsukawa, Yuhki Satoh, Sho Kano	2nd Asia Nuclear Fuel Conference (ANFC2014)	2014年9月19日	国際
40	FEM analysis of Advanced Expansion Due to Compression Test Method	ポスター	Shiori Kishita, Hiroaki Abe, Tomonori Abe, Kyosuke Tawara, Sho Kano, Yoshitaka Matsukawa, Yuki Satoh	2nd Asia Nuclear Fuel Conference (ANFC2014)	2014年9月19日	国際
41	Comparison of mechanical properties and microstructural characterization of two 12Cr-ODS ferritic steels	口頭	Yanfen Li, Hiroaki Abe, Feng Li, Jingjie Shen, Sho Kano, Yoshi Matsukawa, Yuhki Satoh, Takeo Muroga	12th Japan-China Symposium on Materials for Advanced Energy Systems and Fission & Fusion Engineering (JCS-12)	2014年9月18日	国際
42	Effect of microstructural evolution on the stability of oxide nano-particles in ODS steels under electron irradiation.	口頭	F. Li, H.Abe, T.Ishizaki, Y.F.Li, T.Nagasaki, T.Muroga, T.Nagase and H.Yasuda	日本原子力学会2014年秋の大会, 京都大学吉田キャンパス	2014年9月17-20日	国内
43	Characterization of hydrogenation behavior on Mo-modified Zr-Nb alloys as nuclear fuel cladding materials	ポスター	H.L. Yang, H. Abe, T. Kido, Y. Satoh, Y. Matsukawa, T. Matsunaga	2014 Water Reactor Fuel Performance Meeting/Top Fuel/LWR Fuel Performance Meeting (WRFPM 2014)	2014年9月15日	国際

44	Development of an Advanced Method for Expansion Due to Compression (A-EDC) Testing	口頭	H. Abe, T. Abe, S. Kishita, S. Kano, Y. Satoh, Y. Matsukawa	2014 Water Reactor Fuel Performance Meeting/Top Fuel/LWR Fuel Performance Meeting (WRFPM 2014)	2014年9月15日	国際
45	燃料被覆管材料の脆化寿命評価のための微細組織解析技術の開発：EBSDによる転位密度の定量評価	口頭	松川 義孝、申晶潔、楊会龍、渋谷周平、趙子寿、李艷芬、叶野翔、佐藤裕樹、阿部弘亨、牟田浩明、山中伸介	日本原子力学会、京都	2014年9月10日	国内
46	Anisotropy in mechanical properties and microstructure of 12Cr-ODS ferritic steel	口頭	Yanfen LI, F. Li, J.J. Shen, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, H. Abe, H.Y. Fu, T. Muroga	日本原子力学会2014年秋の大会	2014年9月9日	国内
47	Effect of microstructural evolution on the stability of oxide nano-particles in ODS steels under electron irradiation	口頭	F. Li, H. Abe, T. Ishizaki, Y.F. Li, T. Nagasaka, T. Muroga, T. Nagase and H. Yasuda	日本原子力学会2014年秋の大会	2014年9月9日	国内
48	Effects of alloying elements (Sn, Nb, Cr, and Mo) on the microstructure and Mechanical properties of Zr-based alloys	口頭	H. L Yang, J.J. Shen, Z.S. Zhao, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, H. Abe	日本原子力学会2014年秋の大会	2014年9月9日	国内
49	FEMAXI-7およびANSYSを用いた良型EDC試験の実機適応性に関する検討	口頭	木下詩織、阿部弘亨、阿部友紀、國井大地、宇田川豊、松川義孝、佐藤裕樹	日本原子力学会2014年秋の大会	2014年9月9日	国内
50	Zr-Nb合金リング引張試験材のEBSD観察	口頭	牟田浩明、大石祐治、黒崎健、山中伸介、松川義孝、阿部弘亨	日本原子力学会 2014秋の年会	2014年9月9日	国内
51	リング形状試料を用いた改良型中子拡管試験法の開発	口頭	阿部弘亨、阿部友紀、木下詩織、叶野翔、松川義孝、佐藤裕樹	日本原子力学会2014年秋の大会	2014年9月9日	国内

52	Anisotropy in microstructures and mechanical properties of ODS ferritic steels	ポスター	Yanfen Li, F. Li, J.J. Shen, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, H. Abe, H.Y. Fu, T. Muroga	日本原子力学会2014年秋の大会, 京都大学吉田キャンパス	2014年9月8日～10日	国内
53	Comparison of mechanical properties and microstructural characterization of two 12Cr-ODS ferritic steels	口頭	Yanfen Li, H. Abe, F. Li, J.J. Shen, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, T. Muroga	12th Japan-China Symposium on Materials for Advanced Energy Systems and Fission & Fusion Engineering, Shizuoka, Japan	2014年9月8日～10日	国外
54	Response of Oxide Nanoparticles to High Energy Electron Irradiation in a 12Cr ODS Steel	口頭	F. Li, H. Abe, Y.F. Li, J. Shen, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, T. Nagasaka, T. Muroga, T. Nagase, H. Yasuda	日本金属学会2015年秋期講演大会, 九州大学 伊都キャンパス	2014年9月1日	国内
55	In-situ observations of microstructural evolutions in alloys and ceramics using TEM-Accelerator facilities and HVEMs	口頭招待講演	H. Abe, Y. Satoh, S. Ishino	The 15th IUMRS-International Conference in Asia (IUMRS-ICA 2014)	2014年8月24日	国際
56	Effect of High Energy Electron Irradiation to the Oxide Nanoparticles in 9Cr and 12Cr ODS Steels,	ポスター	F. Li, H. Abe, Y.F. Li, J. Shen, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, T. Nagasaka, T. Muroga, T. Nagase, H. Yasuda	International Conference of fusion Reactor Materials (ICFRM-17), Aachen, Germany	2014年7月31日～8月1日	国外
57	Effect of alloying elements (Sn, Nb, Cr, and Mo) on the microstructure and mechanical properties of Zr-based alloys	ポスター	H.L. Yang, J.J. Shen, Z.S. Zhao, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, H. Abe	日本原子力学会核燃料部会夏期セミナー	2014年7月10日	国内
58	FEMAXI-7を用いた改良型EDC試験の実機適応性に関する検討	ポスター	木下詩織, 阿部友紀, 松川義孝, 佐藤裕樹, 阿部弘亨	日本原子力学会核燃料部会夏期セミナー	2014年7月10日	国内
59	Microstructural characterization and mechanical properties of as-fabricated 12Cr-ODS steel	ポスター & 口頭	J.J. Shen, Y.F. Li, F. Li, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, H. Abe	2015 Annual Meeting of Excellent Graduate Schools for "Materials Integration Center" and "Materials Science Center", Akiu, Sendai	2014年5月28日	国内

60	Mechanical properties and microstructural evolution of 9Cr-ODS steel during thermal aging at 973 K up to 10000 h	ポスター	Y.F. Li, H. Abe, F. Li, Y. Satoh, T. Matsukawa, T. Matsunaga, T. Nagasaka, T. Muroga	東北大学金属材料研究所講演会	2014年5月22-23日	国内
61	Nano-indentation method for the mechanical property evaluation of Zr-based alloys after ion irradiation experiment	ポスター	H.L. Yang, H. Abe, Y. Satoh, T. Matsunaga	東北大学金属材料研究所講演会	2014年5月22-23日	国内
62	Stability of oxide nano-particles in 9Cr-ODS steel under high energy electron irradiation at elevated temperature	ポスター	F. Li, H. Abe, T. Ishizaki, Y.F. Li, T. Nagasaka, T. Muroga, T. Nagase, H. Yasuda	東北大学金属材料研究所講演会	2014年5月22-23日	国内
63	極低炭素鋼における室温での粒界すべり顕在化に及ぼす粒径とひずみ速度の影響	ポスター	伊藤駿、松永哲也、佐藤裕樹、阿部弘亨	東北大学金属材料研究所講演会	2014年5月22-23日	国内
64	原子燃料被覆管の安全設計基準に資する環境劣化手法に関する研究開発 (1)全体計画	口頭	阿部弘亨、長谷川晃、関村直人、山中伸介、村瀬義治、木戸俊哉	日本原子力学会 2014春の年会	2014年3月27日	国内
65	原子燃料被覆管の安全設計基準に資する環境劣化手法に関する研究開発 (2) 高温クリープ試験および多軸応力機械試験	口頭	松永哲也、阿部友紀、申晶潔、李艶芬、阿部弘亨、木戸俊哉、篠原靖周	日本原子力学会 2014春の年会	2014年3月27日	国内
66	原子燃料被覆管の安全設計基準に資する環境劣化手法に関する研究開発 (3)改良型中子拡管試験法開発	口頭	阿部友紀、木下詩織、松永哲也、松川義孝、佐藤裕樹、阿部弘亨	日本原子力学会 2014春の年会	2014年3月27日	国内
67	原子燃料被覆管の安全設計基準に資する環境劣化手法に関する研究開発 (4)環境劣化材の組織観察分析試験	口頭	松川義孝、申晶潔、李艶芬、畠山賢彦、叶野翔、佐藤裕樹、松永哲也、阿部弘亨、牟田浩明、山中伸介	日本原子力学会 2014春の年会	2014年3月27日	国内
68	原子燃料被覆管の安全設計基準に資する環境劣化手法に関する研究開発 (5) 高中エネルギーイオン照射試験法開発	口頭	藪内聖皓、野上修平、長谷川晃、叶野翔、Li Feng、大場彰、Yang Huilong、阿部弘亨、村上健太、岩井岳夫、村瀬義治	日本原子力学会 2014春の年会	2014年3月27日	国内

69	Effect of Mo on recrystallization characteristics and mechanical properties in Zr-Nb alloy	ポスター	H. L. Yang, H. Abe, Y. Satoh, Y. Matsukawa, T. Matsunaga	日本金属学会 2013年春期講演大会	2014年3月21-23日	国内
70	XRD peak analyses to determining the carbides content in martensitic steels as fusion blanket structural materials	ポスター	Yanfen Li, H. Abe, Y. Matsukawa, S. Kano, Y. Satoh, T. Matsunaga, T. Muroga	日本金属学会 2013年春期講演大会	2014年3月21-23日	国内
71	軽水炉圧力容器鋼A533B における照射誘起析出物‘G相’の電子照射その場観察	口頭	松川義孝、J.J. Shen、叶野翔、畠山賢彦、阿部弘亨、永井康介、鈴木知明、山口正剛、永瀬丈嗣、保田英洋、山本琢也	日本金属学会、東京	2014年3月21日	国内
72	Effect of Mo on precipitation characteristics in Zr-Nb alloys	口頭	H.L. Yang	2013 Annual Meeting of Excellent Graduate Schools	2014年3月10-11日	国内
73	MECHANICAL PROPERTIES AND MICROSTRUCTURAL EVOLUTION OF 9CR-ODS STEEL DURING THERMAL AGING AT 973 K UP TO 10,000 H	ポスター	Yanfen Li, H. Abe, Feng Li, Y. Satoh, T. Matsukawa, T. Matsunaga, Takeo Muroga	ICFRM-16	2013年10月20-26日	国外
74	Mechanism of Instability of Carbides in Fe-TaC Alloy under High Energy Electron Irradiation	口頭	H. Abe, T. Ishizaki, S. Kano, F. Li, Y. Satoh, T. Matsunaga, H. Tanigawa, D. Hamaguchi, T. Nagase, H. Yasuda	ICFRM-16	2013年10月20-26日	国外
75	STABILITY OF OXIDE PARTICLES UNDER IRRADIATION IN ODS STEELS AT ELEVATED TEMPERATURE	口頭	F. Li, H. Abe, T. Ishizaki, Y.F. Li, T. Nagasaka, T. Muroga, T. Nagase, H. Yasuda	ICFRM-16	2013年10月20-26日	国外
76	Effect of Mo on Microstructure and Mechanical Properties in Zr-based Alloys	口頭	H. L. Yang, H. Abe, Y. Satoh, Y. Matsukawa, T. Matsunaga	2nd Asian Zirconium Workshop	2013年10月15-19日	国外

77	Effect of Irradiation-Induced Microstructure on the Stability of Oxide Nano-Particles in 9Cr-ODS Steel	ポスター	F. Li, H. Abe, T. Ishizaki, Y.F. Li, T. Nagasaka, T. Muroga, T.Nagase, H. Yasuda	2014年日本金属学会秋季大会, 名古屋	2013年10月1日	国内
78	水素化したZircaloy-4の室温におけるクリープ挙動	ポスター	松永哲也、佐藤裕樹、阿部弘亨	日本金属学会 2013年秋期講演大会	2013年9月17-19日	国内
79	Fabrication and Characterization of Reference 9Cr and 12Cr-ODS Low Activation Ferritic/Martensitic Steels	口頭	T. Muroga, T. Nagasaka, Y. Li, H. Abe, S. Ukai, A. Kimura and T. Okuda	the 11th International Symposium on Fusion Nuclear Technology (ISFNT)	2013年9月16-20日	国外
80	Mechanical Properties and Microstructural Characterization of 12Cr Ferritic Oxide Dispersion Strengthened (ODS) Steel	口頭	Yanfen LI, H. Abe, Y. Satoh, Y. Matsukawa, T. Matsunaga, F. Li, H.Y. Fu, T. Muroga	日本原子力学会 2013秋の年会	2013年9月3-5日	国内
81	Stability of Oxide Nano-Particles in 9Cr-ODS steel under High Energy Electron Irradiation at Elevated Temperature	口頭	F. Li, H. Abe, T. Ishizaki, Y.F. Li, T. Nagasaka, T. Muroga, T.Nagase, H. Yasuda	日本原子力学会 2013秋の年会	2013年9月3-5日	国内
82	高温酸化Zr-Nb合金の微細構造観察	口頭	牟田浩明、阿部弘亨、大石祐治、黒崎健、山中伸介	日本原子力学会 2013春の年会	2013年9月3-5日	国内
83	Recrystallization kinetics and microstructure evolution during annealing of cold rolled 12Cr-ODS steels	ポスター	J.J Shen, Y. Li, F. Li, S. Kano, Y. Matuskawa, Y. Satoh, H. Abe	第129回東北大学金属材料研究所講演会, 東北大学金属材料研究所	2013年9月1日	国内
84	In-situ Observation of Oxide Particles in ODS Steels under irradiation at High Temperature	口頭	F. Li, H. Abe, T. Ishizaki, Y.F. Li, T. Nagasaka, T. Muroga, T.Nagase, H. Yasuda	The Third Workshop on TEM with In Situ Irradiation (WOTWISI-3)	2013年7月11-12日	国内
85	Stability of Precipitates under Electron Irradiation at 673K in Fe-TaC alloy	口頭	T. Ishizaki, H. Abe, Y. Satoh, T. Matsunaga, S. Kano, H. Tanigawa, D. Hamaguchi, T. Nagase, H. Yasuda	The Third Workshop on TEM with In Situ Irradiation (WOTWISI-3)	2013年7月11-12日	国内

86	Recrystallization behavior and microstructure evolution during annealing of a cold-rolled 12Cr-ODS steel	ポスター	J.J Shen, Y. Li, F. Li, S. Kano, Y. Matuskawa, Y. Satoh, H. Abe	日本金属学会2015年春期講演大会, 東京大学駒場 I 地区キャンパス	2013年7月1日	国内
87	Updating the theory of dislocation: In-situ TEM studies exploring the final stage of plastic deformation leading to crack nucleation	口頭	Y. Matsukawa	Summit of Materials Science	2012年11月27-30日	国内
88	Stability of Oxide Particles Under Irradiation in ODS Steels at Elevated Temperature	ポスター	F. Li, H. Abe, T. Ishizaki, Y.F. Li, T. Nagasaka, T.Muroga, T.Nagase, H. Yasuda.	International Conference of Fusion Reactor Materials (ICFRM-16), Beijing, China	2012年10月1日	国外
89	Stability of nanoscale Y-Ti-O particles in 12Cr-ODS steel at high temperatures	ポスター & 口頭	J.J Shen, Y. Li, F. Li, S. Kano, Y. Matuskawa, Y. Satoh, H. Abe	2014 Annual Meeting of Excellent Graduate Schools for "Materials Integration Center" and "Materials Science Center", Akiu, Sendai	2012年9月1日	国内

学会等発表実績

委託業務題目「原子炉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」
 機関名 国立大学法人 東北大学

	掲載した論文	発表者氏名	発表媒体（学会誌・雑誌等名 巻号ページ、発表日時 等）	発表した月	DOI	国内・外の別	査読の有無
1	Study on recrystallization and correlated mechanical properties in Mo-modified Zr-Nb alloys	H.L. Yang, S. Kano, Y. Matsukawa, Y.F. Li, J.J. Shen, Z. Zhao, F. Li, Y. Satoh, H. Abe	Materials Science & Engineering A 661, 9-18 (2016)	2016年3月	10.1016/j.msea.2016.03.014	国外	有
2	The effect of crystallographic mismatch on the obstacle strength of second phase precipitate particles in dispersion strengthening: bcc Nb particles and nanometric Nb clusters embedded in hcp Zr	Y. Matsukawa, H.L. Yang, K. Saito, Y. Murakami, T. Maruyama, T. Iwai, K. Murakami, Y. Shinohara, T. Kido, T. Toyama, Z. Zhao, Y.F. Li, S. Kano, Y. Satoh, Y. Nagai, H. Abe	Acta Materialia 102 (2016) 323-332	2016年1月	10.1016/j.actamat.2015.09.038	国外	有
3	Some remarks on in-situ studies using TEM-heavy-ion accelerator link from the stand point of extracting radiation damage caused by fast neutrons	S. Ishino, N. Sekimura, K. Murakami, Hiroaki Abe	Journal of Nuclear Materials 471 (2016) 167-174	2015年12月	10.1016/j.jnucmat.2015.11.036	国外	有
4	Effects of fabrication processing on the microstructure and mechanical properties of oxide dispersion strengthening steels	Y.F. Li, J.J. Shen, F. Li, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh, H. Fu, H. Abe, T. Muroga	Materials Science & Engineering A 654, 203-216 (2016)	2015年12月	10.1016/j.msea.2015.12.032	国外	有
5	Effects of molybdenum on microstructural evolution and mechanical properties in Zr-Nb alloys as nuclear fuel cladding material	H. L. Yang, H. Abe, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. Satoh	Journal of Nuclear Science and Technology 52, 1265-1273 (2015).	2015年10月	10.1080/00223131.2015.1040863	国外	有
6	The effect of crystallographic mismatch on the obstacle strength of second phase precipitate particles in dispersion strengthening: bcc Nb particles and nanometric Nb clusters embedded in hcp Zr	Y. Matsukawa, H. L. Yang, K. Saito, Y. Murakami, T. Maruyama, T. Iwai, K. Murakami, Y. Shinohara, T. Kido, T. Toyama, Z. Zhao, Y. F. Li, S. Kano, Y. Satoh, Y. Nagai, H. Abe	Acta Materialia 102, 323-332 (2016).	2015年9月	10.1016/j.actamat.2015.09.038	国外	有
7	Development of advanced expansion due to compression (A-EDC) test method for safety evaluation of degraded nuclear fuel cladding materials	H. Abe, T. Abe, S. Kishita, S. Kano, Y.F. Li, H.L. Yang, K. Tawara, Y. Matsukawa, Y. Satoh	Journal of Nuclear Science and Technology 52 (2015) 1232-1239.	2015年7月	10.1080/00223131.2015.1056560	国外	有

8	Microstructural analysis of impurity segregation around β -Nb precipitates in Zr-Nb alloy using positron annihilation spectroscopy and atom probe tomography	T. Toyama, Y. Matsukawa, K. Saito, Y. Satoh, H. Abe, Y. Shinohara, Y. Nagai	Scripta Materialia 108, 156-159 (2015).	2015年7月	10.1016/j.scriptamat.2015.07.005	国外	有
9	Effects of Mo addition on precipitation in Zr-1.2Nb alloys	H. L. Yang, J. J. Shen, S. Kano, Y. Matsukawa, Y. F. Li, Y. Satoh, T. Matsunaga, H. Abe	Materials Letters 158, 88-91 (2015).	2015年5月	10.1016/j.matlet.2015.05.144	国外	有
10	One-dimensional migration of interstitial clusters in SUS316L and its model alloys at elevated temperatures	Y. Satoh, H. Abe, Y. Matsukawa, T. Matsunaga, S. Kano, S. Arai, Y. Yamamoto, N. Tanaka	Philosophical Magazine 95, 1587-1606 (2015).	2015年4月	10.1080/14786435.2015.1040100	国外	有
11	Effects of alloying elements (Sn, Nb, Cr, and Mo) on the microstructure and mechanical properties of zirconium alloys	H.L. Yang, J.J. Shen, Y. Matsukawa, Y. Satoh, S. Kano, Z.S. Zhao, Y.F. Li, F. Li, H. Abe	Journal of Nuclear Science and Technology 52 (2015) 1162-1173.	2015年1月	10.1080/00223131.2014.996622	国外	有
12	Mechanism of Instability of Carbides in Fe-TaC Alloy under High Energy Electron Irradiation	H. Abe, T. Ishizaki, S. Kano, F. Li, Y. Satoh, T. Matsunaga, H. Tanigawa, D. Hamaguchi, T. Nagase, H. Yasuda	Journal of Nuclear Materials 455 (2014) 695-699.	2014年12月	10.1016/j.jnucmat.2014.08.032	国外	有
13	Grain structural characterization of 9Cr-ODS steel aged at 973 K up to 10,000 h by electron backscatter diffraction	Y.F. Li, H. Abe, F. Li, Y. Satoh, Y. Matsukawa, T. Matsunaga, T. Muroga	Journal of Nuclear Materials, 455 (2014) 568-572.	2014年12月	10.1016/j.jnucmat.2014.08.047	国外	有
14	Stability of oxide particles under electron irradiation in a 9Cr ODS steel at 400oC	F. Li, H. Abe, T. Ishizaki, Y.F. Li, T. Nagasaka, T. Muroga, T. Nagase, H. Yasuda	Journal of Nuclear Materials, 455 (2014) 724-727	2014年12月	doi:10.1016/j.jnucmat.2014.09.011	国外	有
15	Characterization of Hydrogenation Behavior on Mo-modified Zr-Nb Alloys as Nuclear Fuel Cladding Materials	H.L. Yang, H. Abe, T. Kido, S. Shibukawa, Y. Satoh, Y. Matsukawa	Proceedings of 2014 Water Reactor Fuel Performance Meeting/Top Fuel / LWR Fuel Performance Meeting (WRFPM 2014)	2014年9月	Paper No. 100166	国外	有
16	Development of an Advanced Method for Expansion Due to Compression Testing	H. Abe, T. Abe, S. Kishita, S. Kano, Y. Satoh, Y. Matsukawa	Proceedings of 2014 Water Reactor Fuel Performance Meeting/Top Fuel / LWR Fuel Performance Meeting (WRFPM 2014)	2014年9月	Paper No. 100165	国外	有
17	New approach to in-situ observation experiments under irradiation in a high voltage electron microscope	H. Abe, T. Ishizaki, F. Li, S. Kano, Y.F. Li, Y. Satoh, T. Nagase, H. Yasuda	Materials Transactions 55 (2014) 423-427.	2014年3月	10.2320/matertrans. MD201315	国外	有

18	Corrosion behavior of 9Cr-ODS steel in stagnant liquid lithium and lead-lithium at 873 K	Y.F. Li, H. Abe, T. Muroga, T. Nagasaka and M. Kondo	Journal of Nuclear Materials. 443 (2013) 200–206	2013年11月	10.1016/j.jnucmat.2013.07.026	国外	有
19	Fabrication and Characterization of Reference 9Cr and 12Cr-ODS Low Activation Ferritic/Martensitic Steels	T. Muroga, T. Nagasaka, Y. Li, H. Abe, S. Ukai, A. Kimura and T. Okuda	Proceedings of International Symposium on Fusion Nuclear Technology (ISFNT)	2013年9月		国外	有
20	Extracted residue analysis of 9Cr-ODS steel aged at 973 K up to 10000 h	Y.F. Li, H. Abe, F. Li, Y. Satoh, Y. Matsukawa, T. Matsunaga, S. Kano, T. Muroga	Journal of Nuclear Materials	印刷中		国外	有
21	Mechanical properties and microstructural evolution of 9Cr-ODS steel aged at 973 K up to 10000 h	Y.F. Li, H. Abe, F. Li, Y. Satoh, Y. Matsukawa, T. Matsunaga, T. Muroga	Journal of Nuclear Materials	印刷中		国外	有
22	Microstructural characterization of 9Cr-ODS steel aged at 973 K up to 10000 h by electron backscatter diffraction	Y.F. Li, H. Abe, et al	Journal of Nuclear Materials	印刷中		国外	有