

## 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

研究代表者 阿部 弘亨 国立大学法人東北大学金属材料研究所  
参画機関 国立大学法人東北大学、国立大学法人東京大学、国立大学法人大阪大学、  
独立行政法人物質・材料研究開発機構、ニュークリア・デベロップメント株式会社  
研究開発期間 平成24年度～27年度

### 1. 研究開発の背景とねらい

原子炉燃料では、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図1に示すような劣化が複合して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つた。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、機構論に則った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

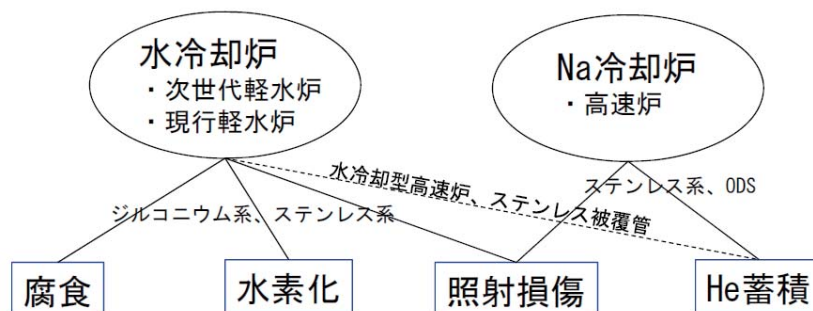


図1. 各種原子炉における材料の劣化

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。

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、劣化と負荷を図2に示すように整理し、(1)腐食、水素化、He蓄積、照射脆化などの炉内劣化を模擬した環境劣化試験を実施し、(2)定常条件

および異常過渡条件における機械強度の劣化量依存性として整理する。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、劣化のマイ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こととした。

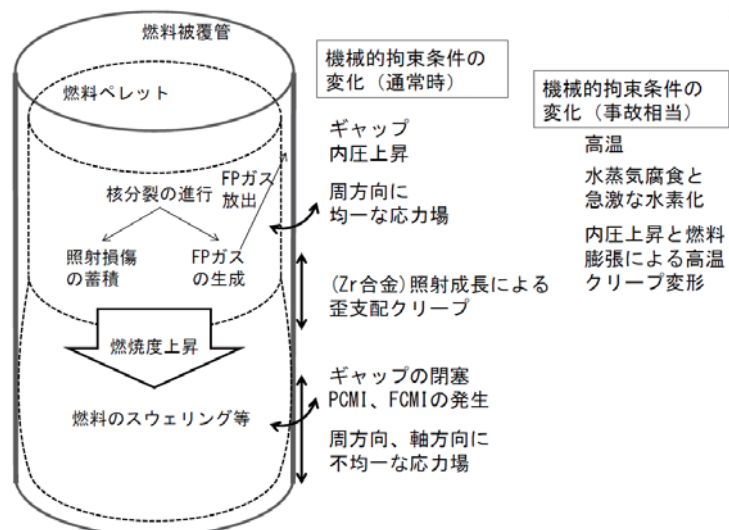


図2. 燃料被覆管の劣化と負荷の整理

## 2. 研究開発成果

### 2. 1 材料作製

本研究では、次世代軽水炉、現行軽水炉、高速増殖炉を対象炉型とし、これらに使用されている、または候補材料とされている材料を研究対象とする。具体的にはZr-Nb合金（J合金3鋼種）、ジルカロイ-4、および酸化物分散強化型フェライト鋼（Fe-12Cr-2W-0.3Ti-0.26Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [wt.%]、以下 ODS 鋼）である。ODS 鋼は、ブレアロイ法で配合した粉末原料をアトライターボールミルでメカニカルアロイングし、熱間押出、熱間鍛造、熱処理、冷間加工等を行って作製した。これらの材料から、機械試験用 SSJ 試験片形状（ゲージ長さ 5mm）、ならびに電子顕微鏡用 3mm φ ディスク形状試料を作製した。

### 2. 2 材料劣化試験（腐食）

高燃焼度燃料における腐食状態を模擬した腐食材を得るべく、実機冷却材模擬水中での循環式オートクレーブ腐食試験を実施中である。これまで、図3のような腐食データを取得するとともに、得られた腐食材の一部を「マイクロ組織観察」に供給している。腐食試験を継続し、また、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の腐食試験を実施し、高燃焼度における腐食状態を模擬し、または、事故時を模擬した腐食材を作製し、他の試験に供給する。

### 2. 3 材料劣化試験（水素化）

最大 1500ppm 程度の水素濃度を目標として水素化試験を実施し、水素化材を作製するとともに、得られた水素化材をマイクロ組織観察試験等に供給した。

### 2. 4 イオン照射試験、イオン注入試験

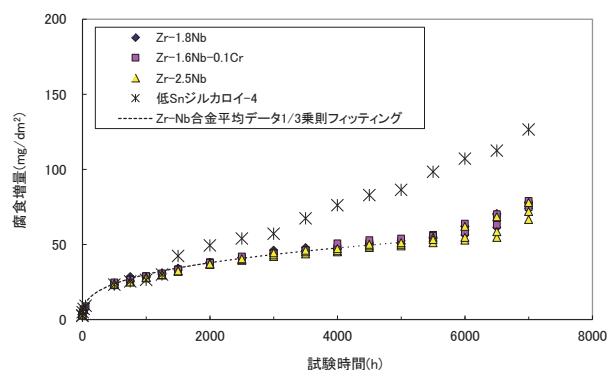


図3. 実機冷却材模擬水中の腐食試験結果

東北大学サイクロトロン RI センターおよび物質・材料研究開発機構 (NIMS) においてイオン照射試験と He 注入試験を実施した。高エネルギーイオン照射のために新規にチャンバーを導入し、現時点で最大約 3dpa 程度の照射試料を作製した。He イオン注入では 50appmHe 注入材を作製した。これらの試料は現在東北大にて冷却中である。

## 2. 5 中エネルギーイオン照射試験

本項目ではタンデム型イオン加速器を TEM に連結したイオン照射その場 TEM 観察実験装置を開発し、イオン照射に伴う組織変化を観察することで、照射劣化事象の機構論的理解を測ることとしている。平成 24 年度に TEM (JEM-2000EX) を移設し、偏向電磁石を作製した。今年度は TEM 試料室の改造およびビームラインの製造を行っている。図 1 にビームラインの模式図を示す。加速器結合型 TEM としては世界最高のエネルギーのイオン照射が可能となる予定である。次年度以降は、母相や析出粒子、水素化物やヘリウム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。

中エネルギー加速器を利用して、サイクロトロン照射では達成できない数十 dpa 程度までの高温イオン照射試験を実施し、高照射量領域までのマイクロ組織変化を観察する。使用予定の照射チャンバにおいて、軽水炉環境を模擬した温度領域 (300°C~) で精緻に温度制御しながら照射試験が実施可能であることを確認した。

## 2. 6 高温クリープ試験

高温クリープ試験機 (株式会社インテスコ製微小試験片用高真空クリープ試験機 M-100) を導入した。本装置は  $10^{-6}$  Torr 台の真空雰囲気中で最高 800°C での試験が可能で、リニア可変差動トランスを設置し高精度の変位測定を実現した。未照射材の ODS 鋼の 973 K におけるクリープ試験結果を図 4 に示す。応力指数が 11 となることが分かった。これは、ODS 鋼の応力指数の文献値と同等である。また、図 5 から応力の低下とともに破断時間の伸長傾向が示された。なお、これら図内の白丸は中断材の試験結果を示し、黒丸が破断試験を行った結果を示している。今後は 673-873 K の試験を実施し、変形機構領域図の作成を行う予定である。

NIMS の高温クリープ試験機を用いて 2.4 の He 注入試験で作製した 50appmHe 注入材に対し 700°C、180MPa の条件にて高温クリープ試験を実施した。その結果、破断時間  $t$ 、破断伸び  $l$  および最小クリープ速度  $R$  はそれぞれ、未照射材で  $t=23,880s$ 、 $l=2.69\%$ 、 $R=8.97 \times 10^{-7}/s$ 、また He 注入材では  $t=15,840s$ 、 $l=2.87\%$ 、 $R=1.25 \times 10^{-6}$  であった。非照射材と He 注入材で破断時間等に違いがみられるものの、SEM による破面観察からは大きな差異はみられず He 注入の影響は現時点では抽出できていない。現在、高温クリープ試験を継続中である。

## 2. 7 中子拡管試験

中子拡管 (EDC) 試験は被覆管の評価法の一つであるが種々の問題点が指摘されている。一方、照射体積減などの要請もある。そこでリング形状試験片を対象とした改良型 EDC 試験法を開発す

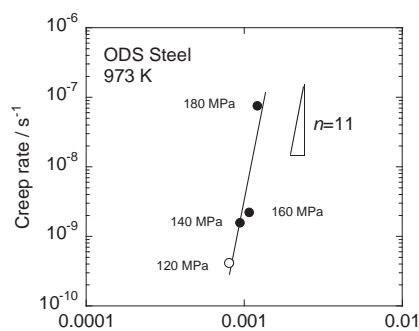


図 4. ODS 鋼のクリープ速度とヤング率で規格化した負荷応力の両対数プロット

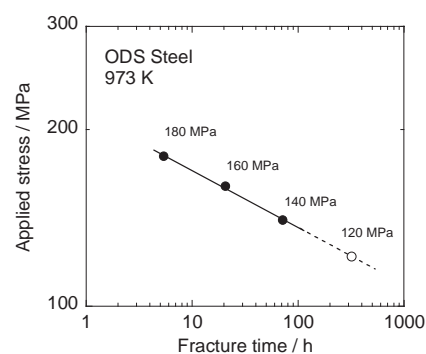


図 5. ODS 鋼の負荷応力と破断時間の関係

る。種々の金属から形状の異なる数種の中子を作製し、これにジルカロイ管から切り出したリング試験片を設置し EDC 試験を実施した。試験温度は室温とし、フープ方向のひずみ速度を  $10^{-4} \sim 10^{-3} \text{ s}^{-1}$  となるように設定した。試験片形状に関しては、リング試験片の高さが大きいほど破断フープひずみが増加する傾向にあった。中子の変形の様相や破断に至った際の中子の形状変化などのデータから、リングの形状は高さ 2mm、中子の材質を Cu とした条件が最適であることが分かった。現在、摩擦の影響など強度評価に係る事項について検討を進めている。

## 2. 8 多軸応力機械試験

多軸応力状態が破壊挙動に与える影響の評価として、ジルカロイ丸棒から、切欠き付試験片(丸棒/板材)を加工し、軸方向引張試験および同一形状での有限要素法解析を実施した。図1に示すように丸棒/板材ともに、応力の多軸度が増すほど、断面減少率が減少、すなわち、少ない変形量で破損に至ったが、その影響は、板材に比べ丸棒で大きいことを確認した。現在、応力状態が破壊挙動に与える影響を被覆管形状について把握すべく、受取材および水素添加した被覆管材料について、切欠き形状が異なる試験片を用いて引張試験を実施中である。また光学顕微鏡内引張試験装置によるその場観察試験から、応力状態や水素化物が変形、破壊へ与える影響に関する知見を取得する。有限要素法解析から応力状態を評価中である。

## 2. 9 劣化材料のマイクロ組織観察試験

1000°C×1分の条件で高温酸化された Zry-4 と Zr-Nb 合金について EBSD 法による組織観察を行い  $\beta \rightarrow \alpha$  相変態に伴う組織が全面にわたって形成されているものの、Zry-4 材と比較して Zr-Nb 合金では明らかに組織のサイズが小さくなった。これは Zr における  $\beta$  相安定化元素である Nb の添加によるものであり、Nb 量が多いほど微細な組織が増加

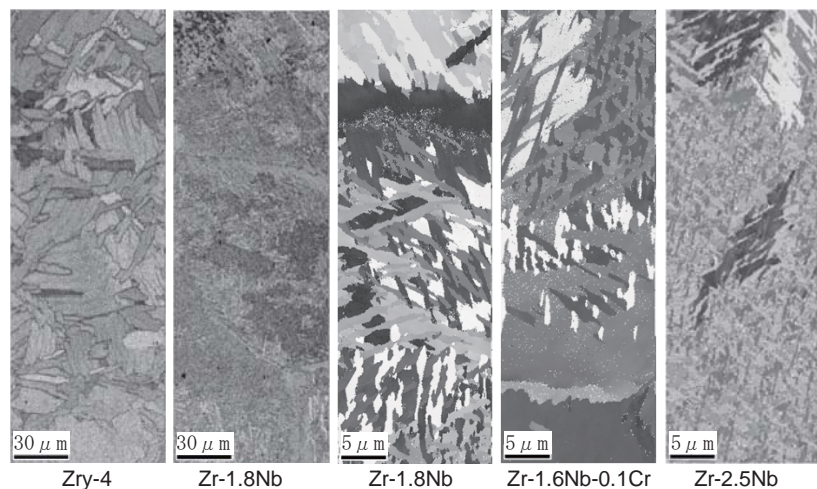


図 8. 1000°C高温酸化材の EBSD 観察結果

し、また粒径が減少した。腐食材の組織観察では配向性や水素化物の癖面関係は Zry 材と Zr-Nb 合金では大きな違いは見られなかった。Zr-Nb 合金においては  $\alpha - \beta$  相変態が関連する高温挙動に注意する必要がある。ODS 鋼については以下の知見を得た。受領材の時点で既に歪 (= 転位) が多量に含まれていることから、現時点では、結晶の配向性を可視化した IPF マップや歪分布を可視化した KAM マップにおいてクリーブ破断材と受領材に差は観察されていない。また、TEM 観察も実施しており組織を評価中である。

## 3. まとめと今後の展望

上記の研究成果は、当事業で立ち上げた研究検討委員会において外部有識者の意見を反映する形で進めている。現時点で進捗は順調である。また平成 26 年 3 月の原子力学会でシリーズ発表を予定している。