加速器を用いた軽水炉燃料被覆管の脆化機構の解明

Clarification of embrittlement mechanism of nuclear fuel claddings by use of ion accelerator

園田 健¹⁾ 澤部孝史¹⁾ 北島庄一¹⁾ 石川法人²⁾

Takeshi SONODA Takashi SAWABE Syo-ichi KITAJIMA Norito ISHIKAWA

¹⁾電力中央研究所 ²⁾原子力機構

軽水炉燃料被覆管の脆化機構、特に被覆管中での水素化物形成、照射欠陥の蓄積過程とそれらの 相互作用、そして被覆管中の析出物の照射挙動を明らかにするために、水素予注入を行った被覆 管材に 12MeV Zr⁺⁴ セルフイオン照射を実施した。被覆管が経験する可能性のある照射温度(~ 1000℃)までの温度模擬が可能な照射リグを製作し、照射を行う事に成功した。本年度は 1 回の 照射試験を実施し、最高 10dpa の照射を行った。電中研での透過型電子顕微鏡を用いた微細組織 観察の結果、10dpa の照射量ではドット状の欠陥集合体しか観察されなかった。

キーワード:

軽水炉、燃料被覆管、ジルカロイ-2、水素化物、照射欠陥、析出物

1. 目的

軽水炉燃料の高燃焼度化は、燃料サイクル費の低減および使用済燃料体数の削減のため、世界的 に推進されている。この高燃焼度化に伴い、被覆管では腐食・水素吸収が増大し、機械的性質に 影響を及ぼす事例が報告されている[1-4]。高燃焼度化を推進するためにはこの腐食・水素吸収 挙動を解明し対策を講じる事が必要であり、様々な研究機関がこれまでにも使用済み被覆管やイ オン照射した被覆管の析出物挙動や照射欠陥蓄積過程の究明を行ってきた。しかし、特に高燃焼 度化に伴い被覆管中に形成される水素化物と照射欠陥(a 成分転位および c 成分転位)との相互 作用については殆ど情報が無く、また被覆管性能を大きく左右する添加元素(多くは金属析出物 として分布)の照射挙動についても明らかになっていない。そこで本研究では、電力中央研究所 にて水素を予注入した被覆管材や様々な種類の被覆管材にセルフイオン(Zr)照射を行い、水素化 物と照射欠陥との相互作用、そして析出物の照射挙動に関する情報を得る事を目的とする。

<u>2.方法</u>

試料として BWR 燃料被覆管として使用されているジルカロイ-2 を使用した。本試料は機械研磨した後に酸洗を実施し、試料表面に形成された酸化皮膜の殆どを取り除いた。この試料を打ち抜き器にて 3mm φのディスク試料に加工し、イオン照射用試料とした。また一部の試料には当所のジーベルツ炉による 350℃~400℃での水素予注入を実施し、50~200 ppm の水素予注入に成功した。これらの試料を JAEA 高崎量子応用研究所にある複合照射施設 TIARA に輸送し、タンデム加速器の TA1 チャンバーにて 12 MeV Zr⁺⁴ セルフイオン照射を実施した。なお、本試験では事故時も含めて燃料被覆管が経験する照射温度を十分に再現できる専用リグを新たに構築した(図 1)。

今回は300℃での照射を実施し、最大10dpaの照射を行った。この試料を電中研に輸送し、300kV FE-TEM(Hitachi HF-3000) を用いて微細組織観察を 実施した。なお、TEM 試料 作製には集束イオンビ ーム装置(Hitachi FB-2000A)を使用し、断



図1 高エネルギーイオン照射用専用ジグ

面試料を作成した。

3. 研究成果

今年度は 300°Cにて 12MeV Zr⁺⁴ セル フイオン照射を実施した。最大照射量 は 2.8x10¹⁵ ions/cm² であり、導入さ れた最大損傷量は 10 dpa であった。 図 2 に SRIM コード[5]にて計算した 12MeV Zr⁺⁴イオンの飛程を示す。これ より飛程はおよそ 3 μ m であり、照射 欠陥が最も蓄積する領域は~2 μ m 深 さの領域と推定される。

ジルカロイ-2 に 12MeV Zr⁺⁴ セルフ イオンを照射温度 300℃にて 2.8x10¹⁵ ions/cm² まで照射した時の微細組織 を図 3 に示す。照射欠陥が最も蓄積す る~2µm 深さの領域ではドット状の 欠陥集合体しか観察されず、高燃焼度 燃料で観察される c 成分転位 (空孔型 欠陥)は観察されなかった。以上より、 10 dpa の照射量では c 成分転位は形 成されない事が確認された。

また、水素を注入したジルカロイ-2 では水素化物の形成が確認された。

<u>4. 結論と今後の予定</u>

被覆管の照射挙動を解明する為に JAEA 高崎量子応用研究所の複合イオン照射 施設 TIARA の TA1 チャンバーにて被覆管 の照射温度を模擬できる専用照射ジグ を製作し、イオン照射試験の体制を整え た。また初回の試験より、照射温度 300℃ において 10 dpa の Zr イオン照射では C 成分転位は形成されない事が解った。 今後 Zr セルフイオン照射試験を継続し、 高照射時の被覆管中の微細組織変化を 解明すると共に、水素を予注入した試料 への Zr セルフイオン照射を実施し、照 射欠陥と水素化物の相関を明らかにす る。また、照射と水素化による被覆管中 の析出物の変化についても解明を進め る。



図 2 12 MeV Zr⁺⁴ イオンのジルコニウム中の飛程



図 3 ジルカロイ-2 に 12MeV Zr⁺⁴イオンを照射温度 300°Cに て 2.8x10¹⁵ ions/cm²まで照射した時の TEM 明視野像。

<u>5. 引用(参照)文献等</u>

[1] 実務テキストシリーズ No. 3「軽水炉燃料のふるまい第4版」、(財)原子力安全研究協会、(1998).

- [2] 「最新核燃料工学ー高度化の現状と展望ー」、社団法人 日本原子力学会、(2001).
- [3] F. Garzarolli, et al., ASTM STP 1245, 1994, p709.
- [4] Etoh Y., et al, J. Nucl. Mater., 200, 1993, p59.
- [5] <u>www.srim.org</u>