

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 Sho-ichi KITAJIMA Norito ISHIKAWA

¹⁾電力中央研究所 ²⁾原子力機構

(概要)

軽水炉燃料被覆管中の水素化物形成、照射欠陥の蓄積過程とそれらの相互作用を明らかにするために、水素予注入を行った被覆管材およびそのアーカイブ材に 12MeV Zr⁺⁴ セルファイオン照射を実施した。照射温度 400°C では 10dpa から 18dpa の間に最大損傷領域に C 成分転位が形成された。同じ領域で析出物からの Fe, Cr, Ni 溶出も観測されたため、中性子照射環境の模擬に Zr セルファイオン照射が有効であることが確認された。照射欠陥と水素化物との相関は観察されなかった。

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

原子力発電の安全性保持および安定的運用には、軽水炉燃料被覆管の健全性の維持が求められる。近年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[1-3]。軽水炉燃料被覆管の更なる健全性向上の為に、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[4, 5]。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（c 成分転位）との相互作用については殆ど情報が無い。本研究では、電中研にて水素を予注入した被覆管材およびそのアーカイブ材にセルファイオン（Zr）照射を行い、照射欠陥の形成過程および水素化物と照射欠陥との相互作用に関する情報を得る事を目的とする。今年度は 400°C での微細組織変化の照射量依存性を明らかにすると共に水素化物との相関を調査した。

2. 方法

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。試料表面に形成された酸化皮膜を取り除くために機械研磨・酸洗した試料を、打ち抜き器にて 3mmφ 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電中研のジーベルツ炉により 350-400°C での水素予注入を実施し、～ 200 ppm の水素予注入を行った。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 のタンデム加速器 TA1 チャンバーにて 12 MeV Zr⁺⁴ セルファイオン照射を実施した。照射速度は照射面積を設定する事で調整し、400°C で 1.1×10^{16} ions/cm² (損傷量：40 dpa)、 5×10^{15} ions/cm² (損傷量：18 dpa)、 2.8×10^{15} ions/cm² (損傷量：10 dpa) の 3 条件での照射試験を実施した。これらの試料を電中研で 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、断面試料を作製した。

3. 結果及び考察

図 1 (a)-(c) に 400°C にて 10、18、40dpa まで 12MeV Zr⁺⁴ セルファイオン照射したジルカロイ-2 のアーカイブ材の代表的な微細組織を示す。10 dpa 照射ではドット状のコントラストのみが観察されるのに対し、18 dpa および 40 dpa 照射では 0002 方向に対し垂直方向に線状の欠陥集合体が形成されているのが観察された。炉内で照射されたジルカロイ-2 の微細組織 [6] から、この線状の欠陥集合体が c 成分転位である事が確認できた。また、この c 成分転位は 12 MeV Zr⁺⁴ イオンによ

り形成される照射損傷が最も蓄積する 1.5~3 μm 深さで観察された。これらより、この最大損傷領域では中性子照射と同様の c 成分転位が形成される事が解った。

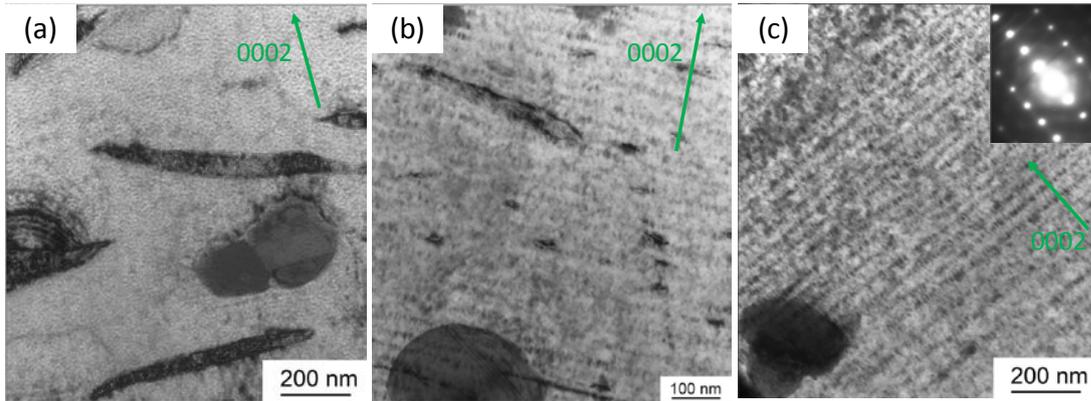


図 1 400°Cにて 12MeV Zr⁺⁴ セルファイオン照射したジルカロイ-2 のアーカイブ材の代表的な微細組織。(a) 10 dpa, (b) 18 dpa, (c) 40 dpa である。

表 1 に図 1 で示した 3 照射条件下での Zr(Fe, Cr)₂ および Zr₂(Fe, Ni) 析出物の組成を EDX にて計測した結果を示す。これより 10 dpa 照射では Zr(Fe, Cr)₂ からの Fe の溶出が測定された。18 dpa 照射では Zr(Fe, Cr)₂ からの Fe の溶出がより一層顕著となり、40 dpa 照射では Zr(Fe, Cr)₂ からの Fe, Cr の溶出、加えて Zr₂(Fe, Ni) からの Fe, Ni の溶出が観察された。低照射量の段階からの Zr(Fe, Cr)₂ からの Fe の溶出、そして高照射量では Zr₂(Fe, Ni) からの Fe, Ni の溶出が起こる現象は、中性子照射でも観察されている[4]事から、被覆管中の金属析出物の挙動についても 12MeV Zr⁺⁴ セルファイオン照射が中性子照射を模擬出来ている事が明らかとなった。

図 2 に 400°C・40 dpa の照射を行った水素予注入材 (170 wtppm) の最大損傷領域近辺の微細組織を示す。水素予注入材の中で観察される黒い帯状のコントラストが水素化物を示している。アーカイブ材 (図 1 (c)) および水素予注入材の両方に C 成分転位が形成されており、双方の欠陥形成状態に大きな違いは観察されなかった。また、水素化物と C 成分転位との相関も全く観察されなかった事から、本条件では水素化物の影響は観察されなかった。

以上より、照射温度 400°C では 10dpa から 18 dpa の間で C 成分転位が形成されることが解った。また、最大損傷領域 (2-3mm 深さ) では中性子照射と同様の照射欠陥蓄積・析出物変化が観察されたことから、照射欠陥蓄積および析出物変化の解明には Zr セルファイオン照射が有効であることが確認された。

今後、C 成分転位形成の照射温度依存性や水素化物と照射欠陥との相関の解明を進めると共に、より実環境に近い応力下での照射欠陥蓄積、析出物挙動、水素化物変化の解明を進める。

表 1 照射後のジルカロイ-2 中の金属析出物の組成変化

	Zr ₂ (Fe, Ni) (at%)					Zr(Fe, Cr) ₂ (at%)				
	Zr	Fe	Cr	Ni	Si	Zr	Fe	Cr	Ni	Si
10 dpa	68.1	15.6	1.1	12.3	2.4	70.9	4.7	22.1	1.3	0
18 dpa	76.3	12.8	1.0	9.1	0.8	83.9	3.1	11.8	0.8	0.1
40 dpa	82.0	7.3	0.8	6.6	2.4	82.3	3.7	12.7	0.9	0

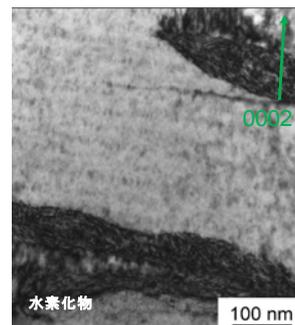


図 2 400°C・40 dpa の照射を行った水素予注入材の微細組織

4. 引用 (参照) 文献等

[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—高度化の現状と展望—」、社団法人 日本原子力学会、(2001).
 [3] F. Garzarolli, et al., ASTM STP 1245, 1994, p709.
 [4] Y. Etoh et al, J. Nucl. Mater., 200, 1993, p59.
 [5] D. Lee and E.F. Koch, J. Nucl. Mater., 50, 1974, p162.
 [6] 山田進、亀山高範、電力中央研究所報告 Q06020, 2007.