

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

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 Zr⁴⁺セルフイオン照射を実施した。本年度は TIARA にて 2 回の照射試験を実施し、最高 42dpa の照射を行った。試料輸送後、電中研にて透過型電子顕微鏡を用いた微細組織観察を実施した。

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[1-4]。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。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い。そこで本研究では、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。

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の殆ど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る 400°C・50hr での水素予注入を実施し、～ 500 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 に輸送し、タンデム加速器の TA1 チャンバーにて 12 MeV Zr⁴⁺セルフ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、今年度は 300°C・1.2x10¹⁶ ions/cm²（損傷量：42 dpa）、400°C・5x10¹⁵ ions/cm²（損傷量：18 dpa）の 2 条件での照射試験を実施した。これら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、断面試料を作製した。

3. 結果及び考察

図 1 に 12 MeV Zr⁴⁺セルフイオンを 300°C・1.2x10¹⁶ ions/cm²（損傷量：42 dpa）の条件で照射したジルカロイ-2 材（アーカイブ材）の微細組織を示す。本試料では a 成分転位と思われるドット状欠陥集合体は観察されたが、照射欠陥が最も蓄積すると考えられる 2~3μm 深さの領域に c 成分転位は確認されなかった。c 成分転位を観察するには特定の結晶方位からの観察（g=0002）が必須であるが、FIB 試料の観察領域は結晶粒が最大でも 2,3 個に限られ、電子顕微鏡中での試料の傾斜角度も限られている為に、最適な結晶方位での観察が難しい事がある。以前に電中研が実施した類似の照射試験では 300°C・20dpa で部分的に c 成分転位が観察されたとの報告[5]があり（図 2 参照）、今後、複数の FIB 試料を観察する事で c 成分転位の有無を確認する予定である。

図3 (a) (b) に $400^{\circ}\text{C} \cdot 5 \times 10^{15}$ ions/cm² (損傷量: 18 dpa) の条件で照射したジルカロイ-2材 (アーカイブ材) の微細組織を示す。本試料では $2 \sim 3 \mu\text{m}$ 深さの同一領域に2種類の線状の欠陥集合体が観察された。逆格子像との比較より (b) は c 成分転位の可能性が高い。今後、各々の欠陥の性状を評価し、c 成分転位の有無を確定する。

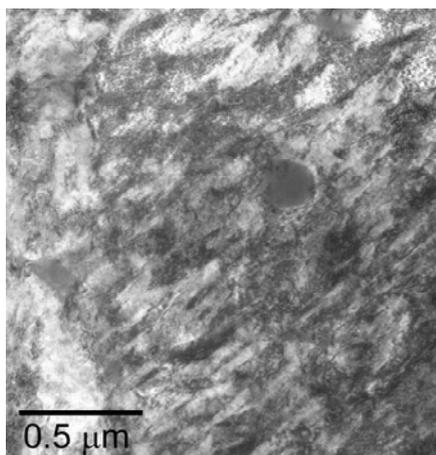


図1 12 MeV Zr⁴⁺セルフイオンを300°C・42 dpa の条件で照射したジルカロイ-2材 (アーカイブ材) のTEM像。

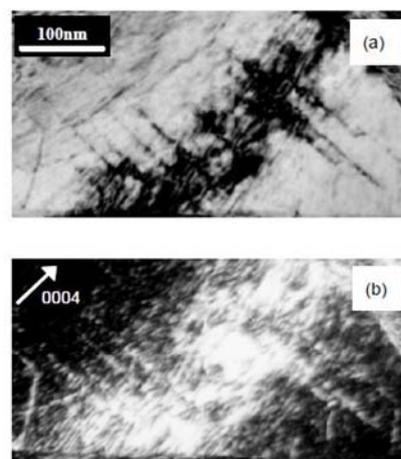


図2 12 MeV Zr⁴⁺セルフイオンを300°C・20 dpa の条件で照射したジルカロイ-2材の (a) 明視野像、(b) 暗視野像。[5]

図4 に $400^{\circ}\text{C} \cdot 5 \times 10^{15}$ ions/cm² (損傷量: 18 dpa) の条件で照射したジルカロイ-2材 (水素予注入材: 500 ppm) の微細組織を示す。この図より本試料中に多量の水素化物が形成されていることが確認されたが、本試料で c 成分転位は確認されなかった。理由は図1と同様に FIB 試料の特性で最適な結晶方位での観察が厳しいためと考えられる。今後、複数の FIB 試料を観察する事で、c 成分転位の有無を確認すると共に、c 成分転位と水素化物の相関を明らかにする予定である。

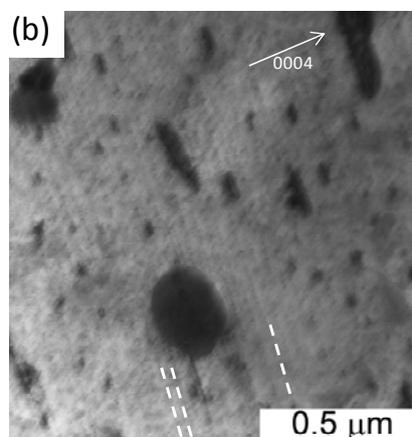
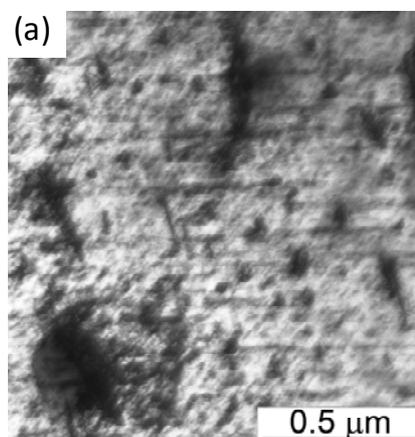


図3 12 MeV Zr⁴⁺セルフイオンを400°C・18 dpa の条件で照射したジルカロイ-2材 (アーカイブ材) で観察された2種類の線状欠陥 (a) (b)。

また、水素化物は応力負荷時にその配向性が変化する事が報告[6]されており、水素化物の配向性の変化と照射欠陥との相関も明らかになっていない。そこで2012年度は応力を負荷した状態で照射試験を行うため、照射ジグの改良を行う予定である。

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] Etoh Y., et al, J. Nucl. Mater., 200, 1993, p59.
- [5] 山田進、亀山高範、電力中央研究所報告 Q06020, 2007.
- [6] S. I. Hong, K. W. Lee, J. Nucl. Mater., 340, 2005, pp203-208.

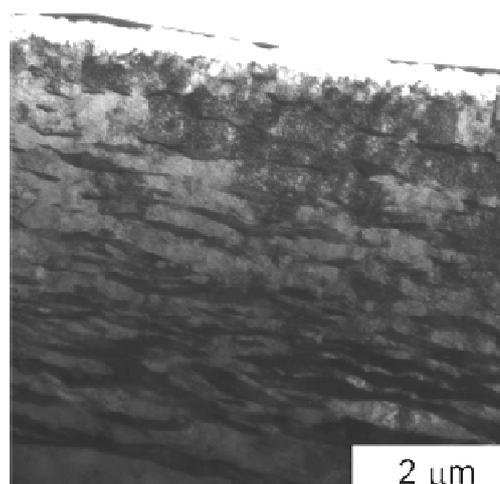


図4 12 MeV Zr⁴⁺セルフイオンを400°C 18 dpa の条件で照射したジルカロイ-2材 (水素予注入材: 500 ppm) の微細組織。