



JAEA安全研究センター報告会

高燃焼度燃料被覆管中に析出した半径方向水素化物による
300°Cにおける巨視的な延性-脆性遷移に関する研究

令和2年11月27日

原子力規制庁長官官房技術基盤グループ

システム安全研究部門 山内



目次

1. 背景・目的
2. 試験手法
3. 試験結果
4. まとめ
5. 今後の計画



背景・目的



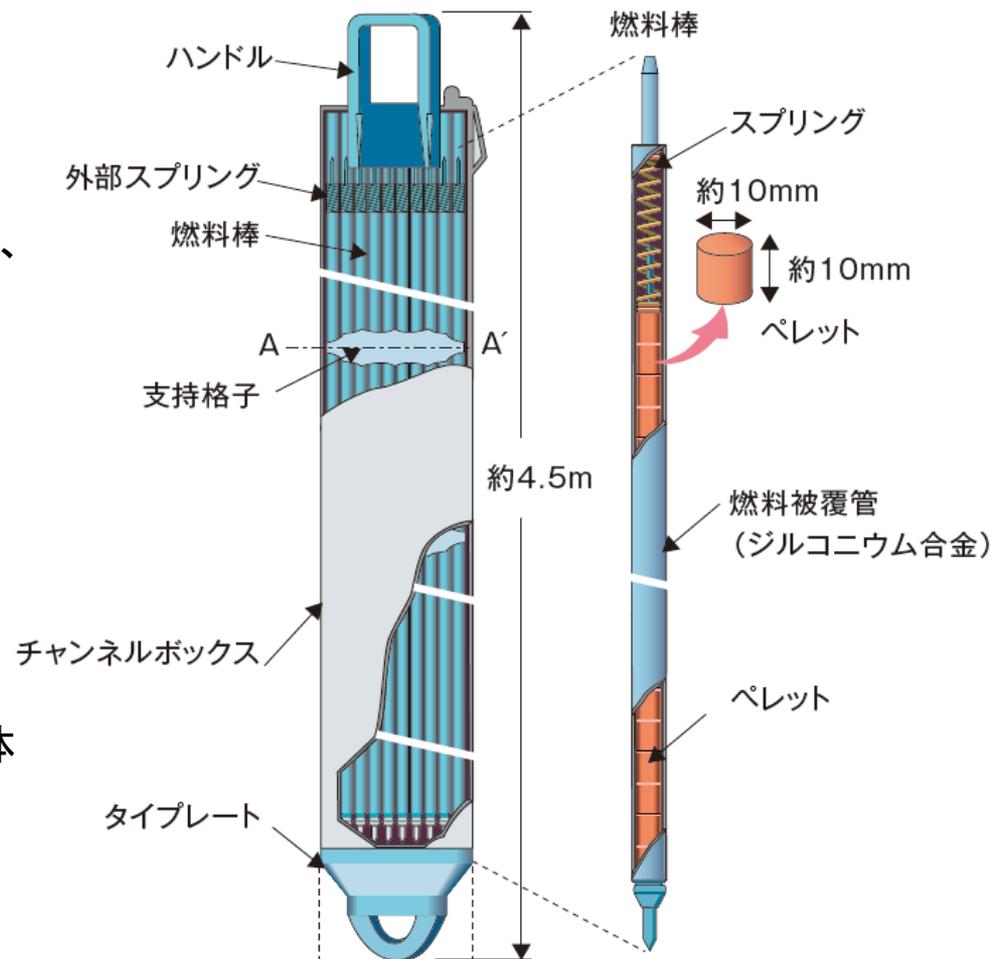
背景① 軽水炉燃料について

- 燃料棒 : 燃料ペレットをジルコニウム合金製被覆管に封入したもの
- 燃料集合体 : 燃料棒を格子状に束ねたもの
- 原子炉の(通常)運転中、燃料ペレットは核分裂連鎖反応により発熱し、ペレットから被覆管、冷却水へと伝達

【燃料棒／集合体に求められる機能】

- 「止める機能」
 - 制御棒の挿入を障害しないよう、燃料集合体に過大な変形が生じないこと
- 「冷やす機能」
 - 冷却機能を障害するような燃料棒／集合体の形状変化が生じないこと
- 「閉じ込める機能」
 - 発生した放射性同位元素を燃料棒内に閉じ込められるよう、被覆管が破損しないこと

燃料集合体



燃料ペレット、燃料棒、燃料集合体の概略図(BWR)

出典：日本原子力文化財団 原子力・エネルギー図面集
<https://www.ene100.jp/zumen/5-1-7>

背景② 過渡時の燃料挙動に関連する規制基準類

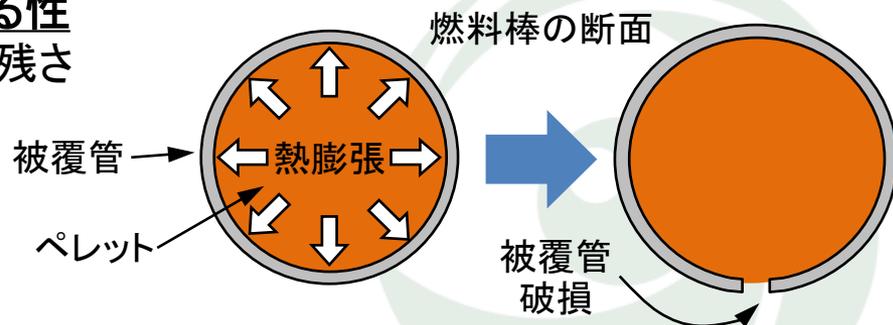
- 原子炉は、安全性確保の観点から異常な過渡事象発生時にもそれが拡大せず収束できるよう設計され、事業者はその妥当性について安全評価を行う。
- 上記安全評価は、適合性審査において、規制基準に基づきその妥当性確認が行われる。



過渡時の燃料挙動に関連する規制基準は...

- 設置許可基準規則* 第十三条の一**では、運転時の異常な過渡変化防止のため、異常な過渡変化時に「**燃料被覆材が破損しない**」ことを満たさなければならないとされている。
 - 過渡時には燃料ペレットの熱膨張により被覆管が押し広げられる等の事象が生じる。
- 具体的な判断基準としては、安全審査指針類**において「**被覆管の円周方向の平均塑性歪が1%以下であること**」と制限値が設定されている。(歪-ひずみ:変形の度合いを表す量)

- すなわち、被覆管には種々の要因による性能劣化を考慮しても一定程度の延性が残されている必要がある。

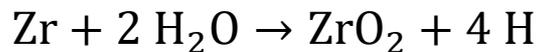


*「実用発電用原子炉及びその附属施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則」

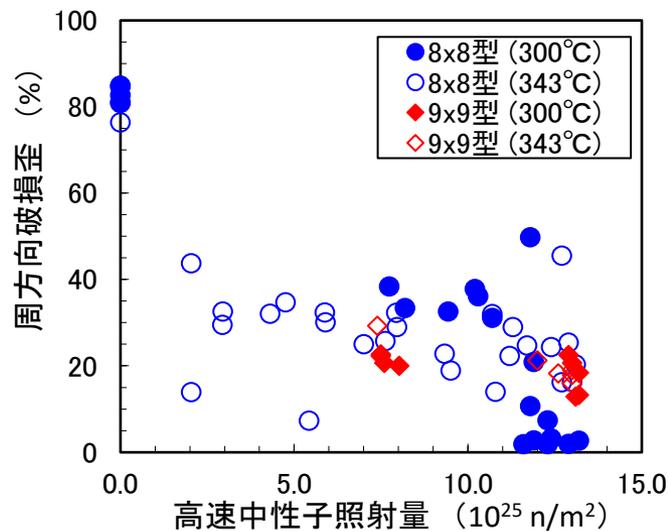
**「『燃料被覆管は機械的に破損しないこと』の解釈の明確化について」（昭和60年7月18日原子力安全委員会了承）

背景③ 燃焼に伴う被覆管の性能劣化について

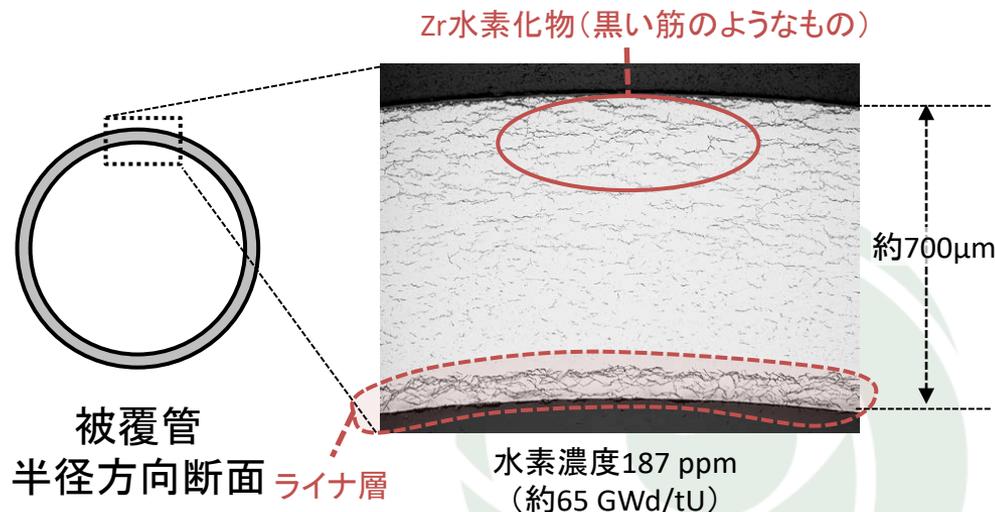
- 中性子照射により結晶内に欠陥が蓄積し、延性(破損歪)が低下する(下左図)。
- また、通常運転中は燃料被覆管の表面温度は約300°Cであり、冷却水と酸化反応を起こす。



- この腐食によって発生した水素の一部は、燃料被覆管に吸収される。
- 水素濃度が増大すると、被覆管中に溶けきれなくなった水素がZr水素化物(ZrH_x)として析出する。(下右図)
- Zr水素化物は母層と比べて脆く、被覆管の破損歪低下をもたらす(水素脆化)。



中性子照射量及び周方向破損歪の関係*

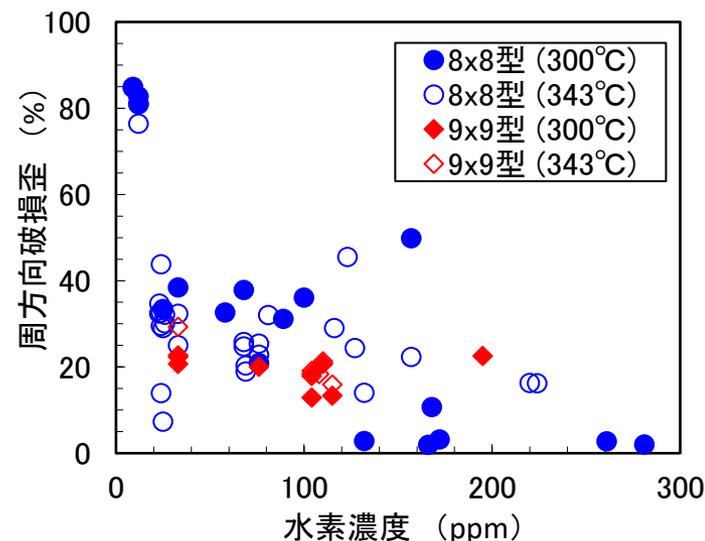


高燃焼度燃料被覆管の断面

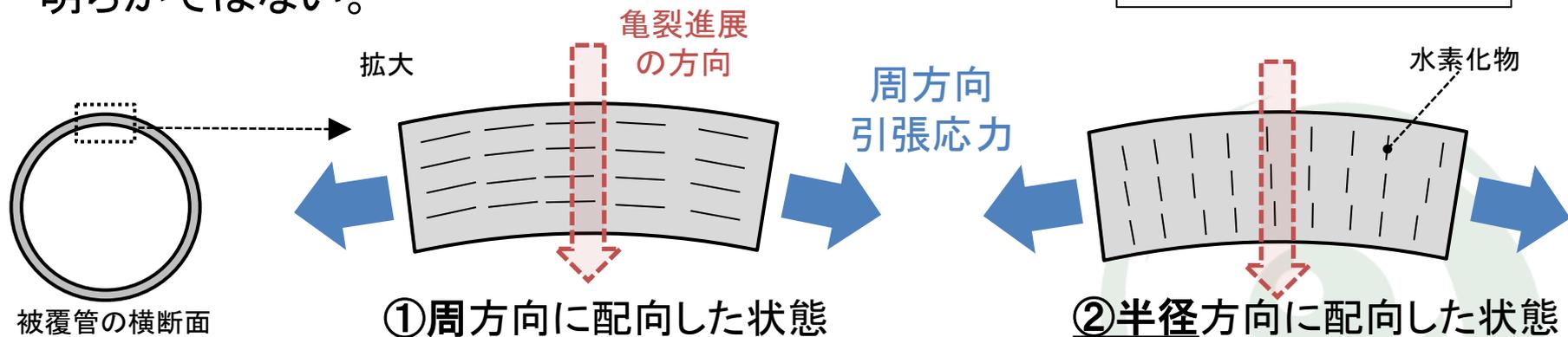
*Ogata K et al. "Effect of increased hydrogen content on the mechanical performance of irradiated cladding tubes" Proc.: Top Fuel 2012; 2012 Sep 2-6.

背景④ 水素脆化に関する既往の知見・課題

- 水素濃度の増加に伴いジルコニウム合金材料の破損歪は低下する傾向がある(右図)。
- また、水素濃度のみならず水素化物の方位等も機械的性質に影響する(下図)。
- 高温では金属部分の延性が高くなるが、水素化物の析出状態によっては300°Cにおいてもマクロな破損挙動が脆性に転じる(破損歪が極めて小さくなる)可能性がある。
- しかし、その条件及びその際の破損歪の値は明らかではない。



被覆管中の水素濃度及び周方向破損歪の関係*



水素化物析出方位が異なる場合の模式図

研究の目的

運転時の異常な過渡変化時の安全裕度確認に資するため、通常運転中の被覆管温度(300°C)において、半径方向水素化物の析出により被覆管のマクロな破損挙動が脆性に転じる条件を明らかにする。

なお、本研究は安全研究プロジェクト「燃料健全性に関する規制高度化研究」(H19年度～R2年度)において実施した。

また、本研究の成果は日本原子力学会英文誌において論文として公開されている。

A. Yamauchi and K. Ogata, “A study on macroscopic fuel cladding ductile-to-brittle transition at 300°C induced by radial hydrides”, J. Nucl. Sci. Technol. 3 (57) 301-311



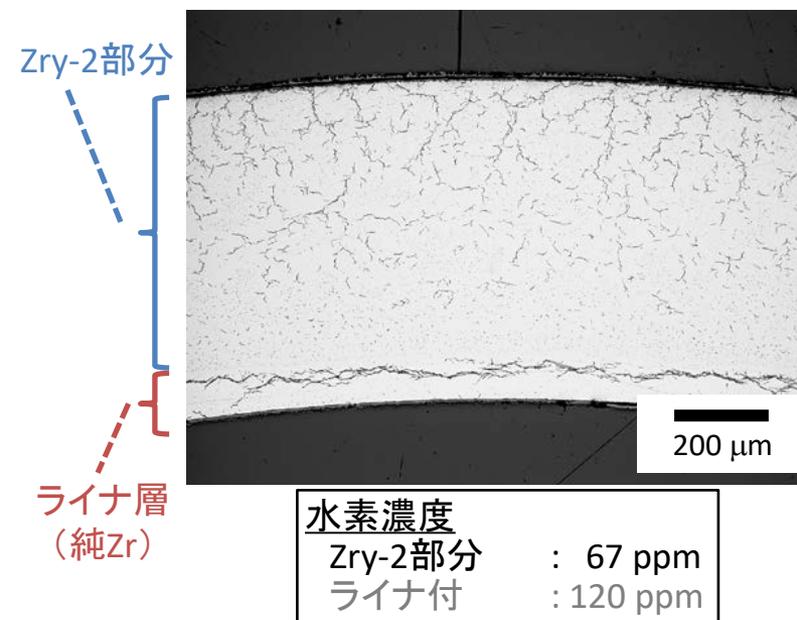
試験手法



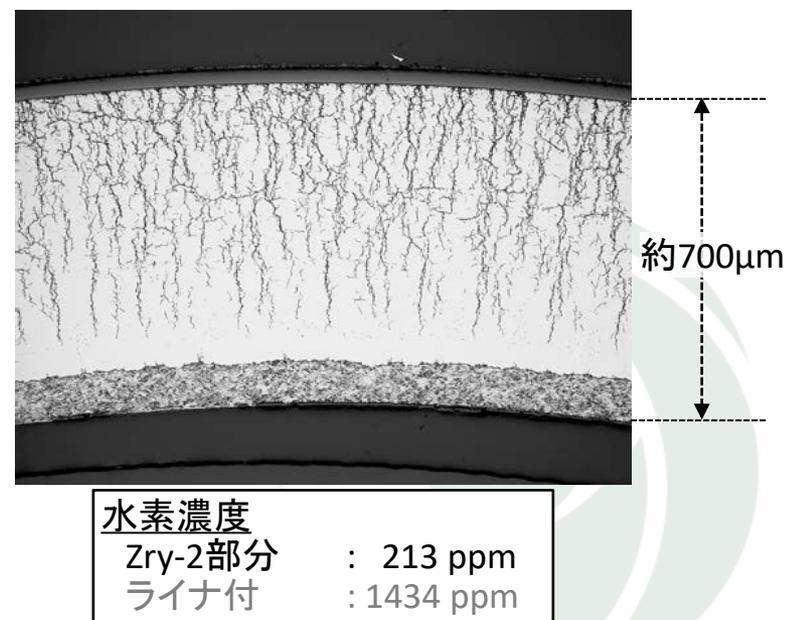
試験手法① 供試材

- 商用炉で使用した高燃焼度BWR燃料棒から採取したジルカロイ-2製被覆管(約45mm)を供試材とした。(照射まま材)
- 燃焼度: 52.1-68.8 GWd/tU
- 半径方向へ析出した水素化物の量等をパラメータとするため、照射まま材に水素添加及び水素化物の半径方向への析出方位調整を施した*ものも供試材とした。(水素添加再配向処理材)

*被覆管に内圧を負荷した状態で290°CでLiOH水溶液に一定時間(3~21日間)浸漬



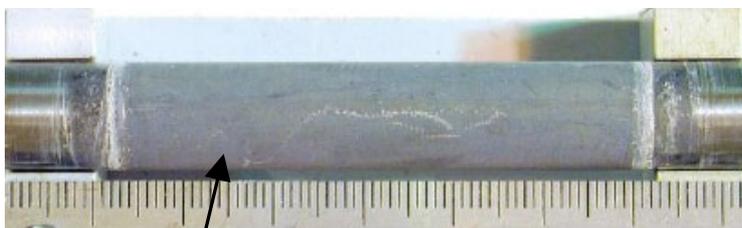
水素添加
+
水素化物
析出方位調整



試験手法② 内圧破裂試験

- 作製した被覆管試料を300°C (BWRの通常運転時の被覆管温度を模擬) でシリコンオイルにより内部から加圧し、破損限界を調べた。
- 試験中は内圧をオンラインでモニターし、強度の評価等に使用。

試験前



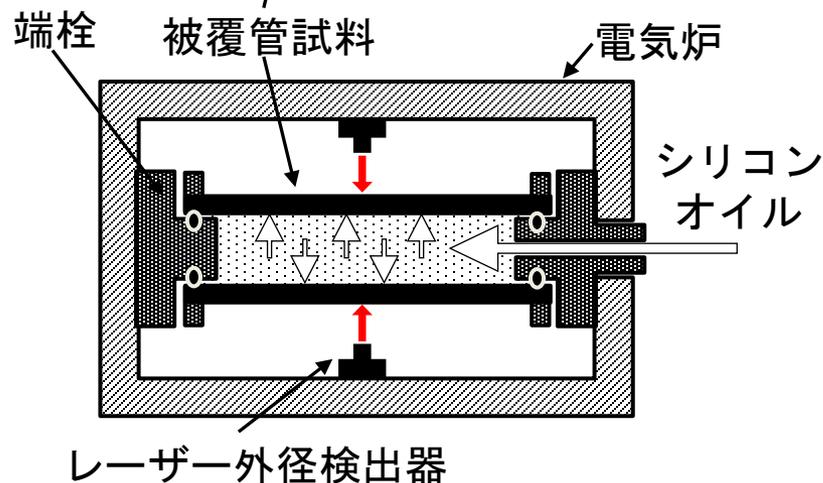
試験後



周方向破損歪: 27.4%



周方向破損歪: 0.9%



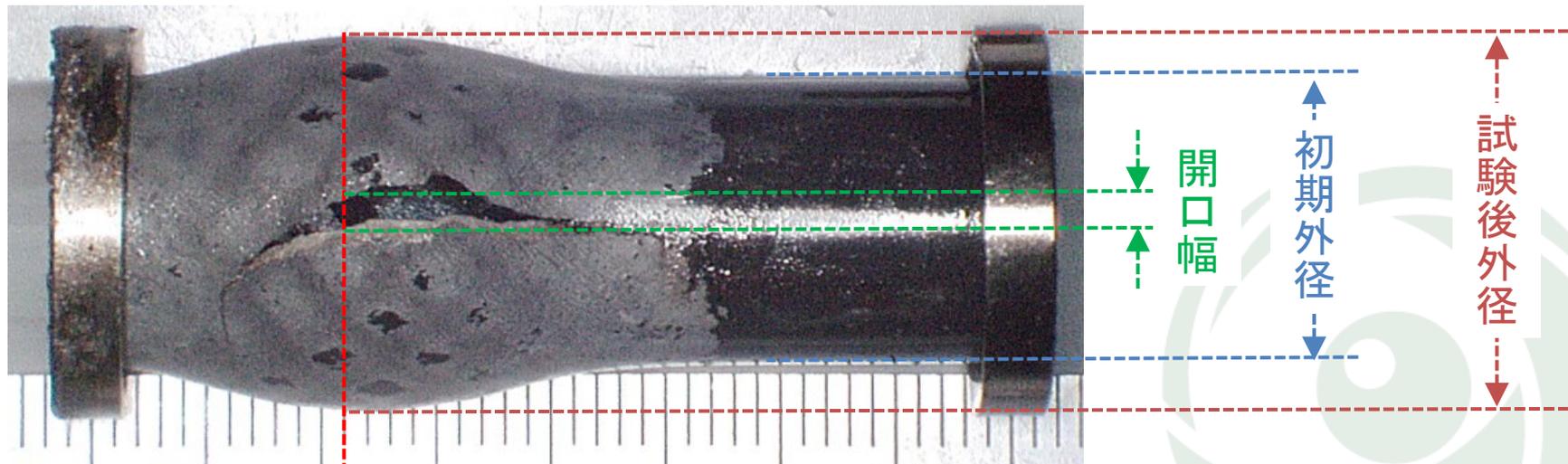
試験装置の模式図

試験前後の試料外観写真の例

試験手法③ 周方向破損歪の算出

- 周方向破損歪は以下により算出した。

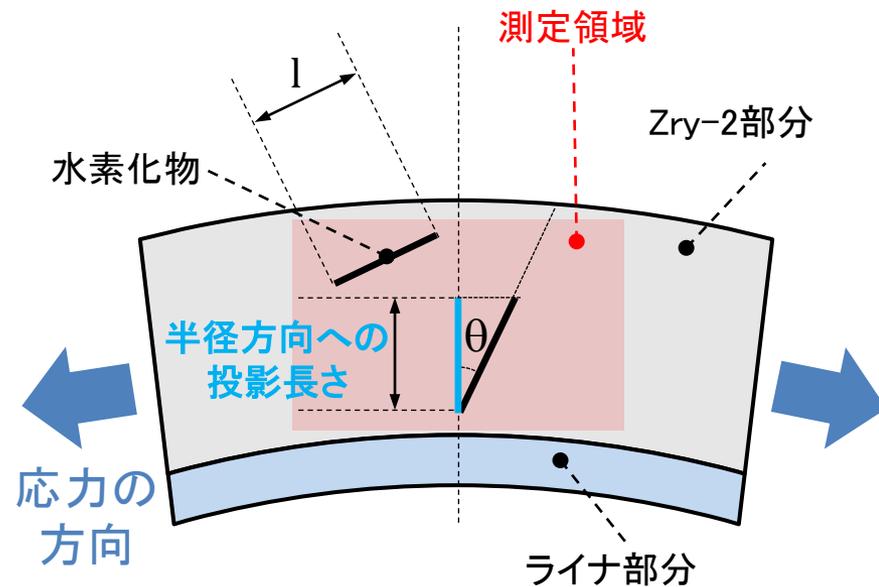
$$\begin{aligned} \text{周方向破損歪} &= \frac{\left((\text{試験後外径} - \text{初期外径}) \times \pi - \text{開口幅} \right)}{\text{初期外径} \times \pi} \times 100 \\ &= \frac{\left(\text{円周長さ増分} - \text{開口幅} \right)}{\text{初期円周長さ}} \times 100 \end{aligned}$$



最大変形部

試験手法④ 半径方向水素化物の析出状態定量化

- より多くの水素化物がより長く、より半径方向に配向しているほど延性低下への寄与が大きいと考えられる。
- そのため、水素化物の半径方向への投影長さに着目した。(右図青線部)
- 測定領域(右図赤色部)の金相写真を水素化物と母材部に2値化(白黒化)し、個別の水素化物の長さ l_i 及び半径方向に対する角度 θ_i を取得
- 各水素化物の半径方向への投影長さ $l_i \cos \theta_i$ を算出
- その総和を測定領域面積で除し、指標値とした。



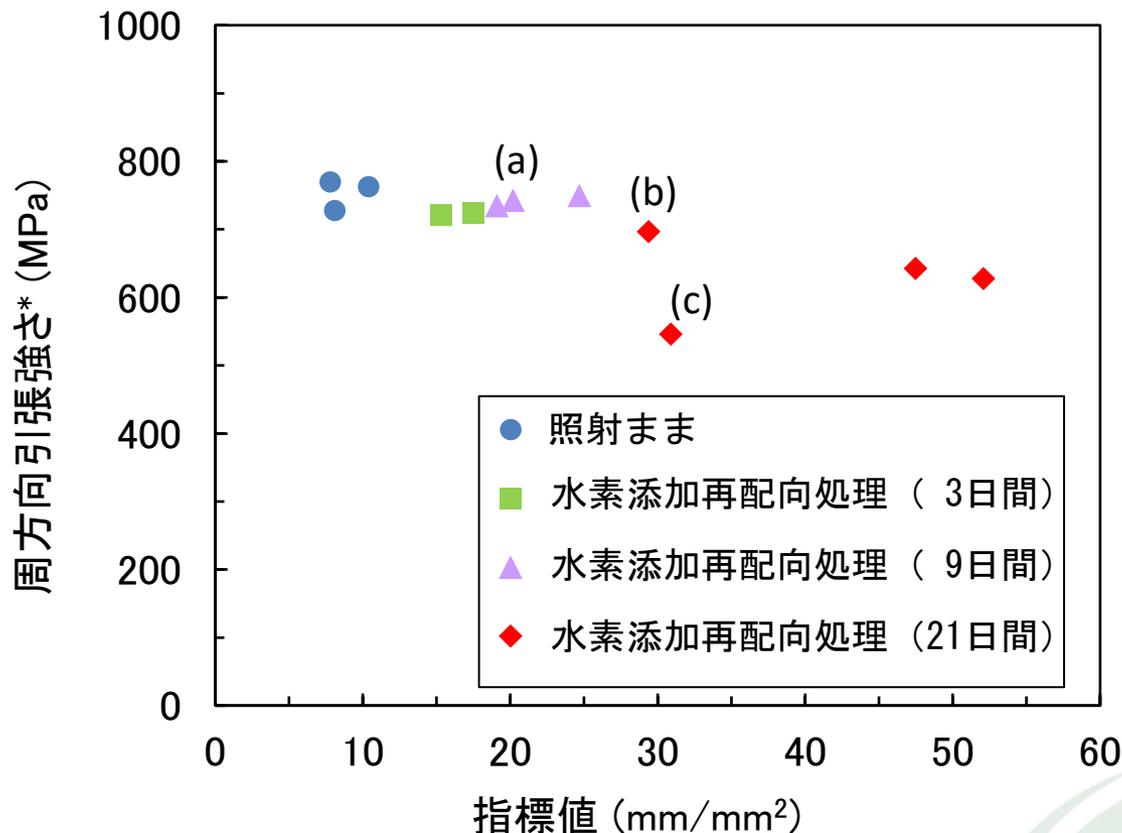
$$\text{指標値} = \frac{\sum (l_i \times \cos \theta_i)}{\text{測定領域面積}} = \frac{\text{半径方向へ投影した水素化物長さの総和}}{\text{測定領域面積}}$$



試験結果



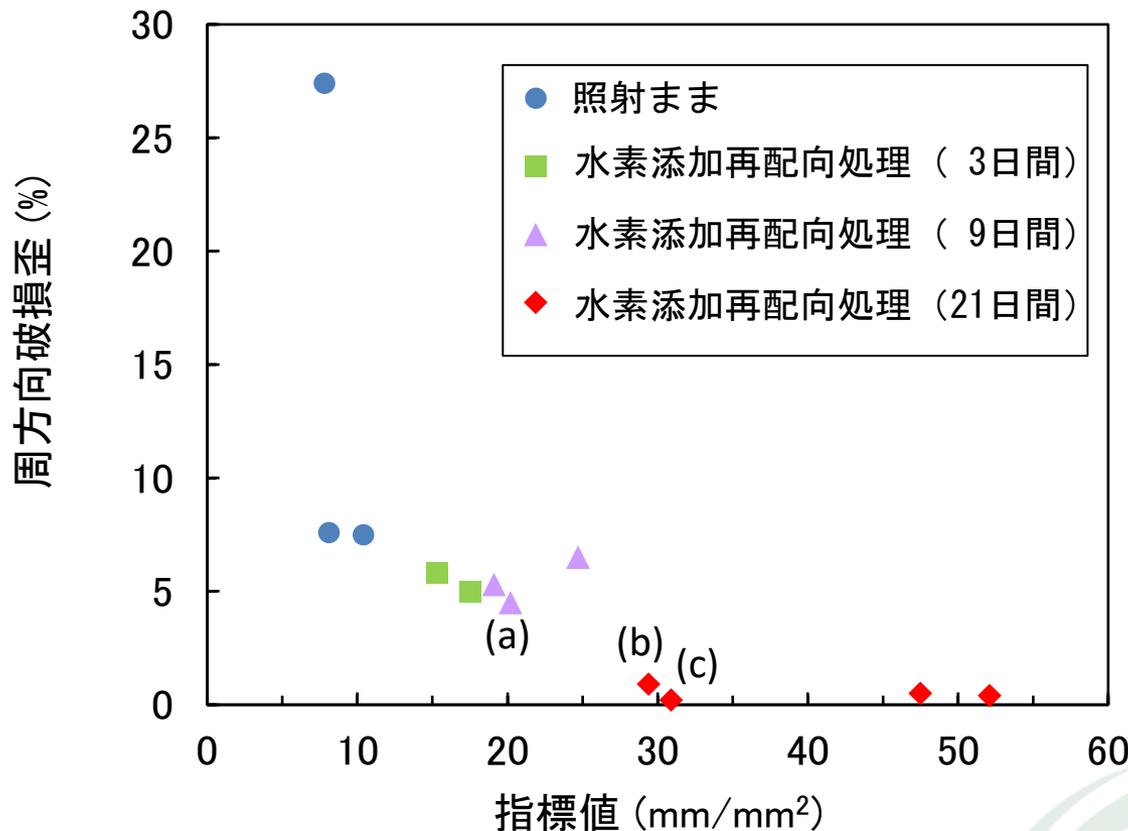
試験結果① 内圧破裂試験結果(強度)



- (c)は降伏前に破損したため結果として強度が低い値となったが(後述)、水素化物の析出状態と強度に顕著な相関は見られなかった。
- 水素化物は、被覆管が延性を失うまでは強度に対して大きな影響を及ぼさないと考えられる。

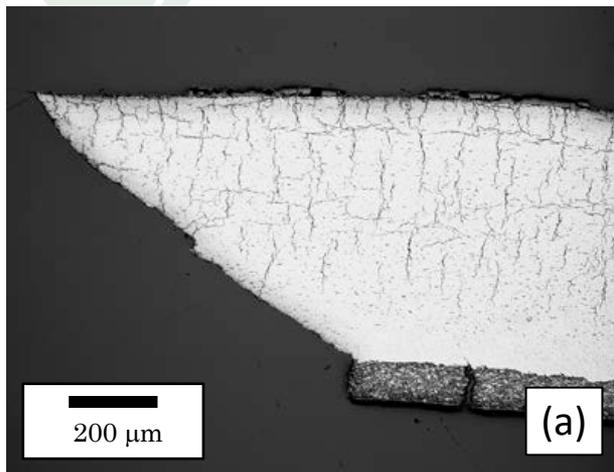
* 試験時にモニターした内圧の最大値及び試験前の試料寸法を用いて薄肉円筒の式: (圧力) × (半径) / (肉厚) により算出した。

試験結果② 内圧破裂試験結果(延性)

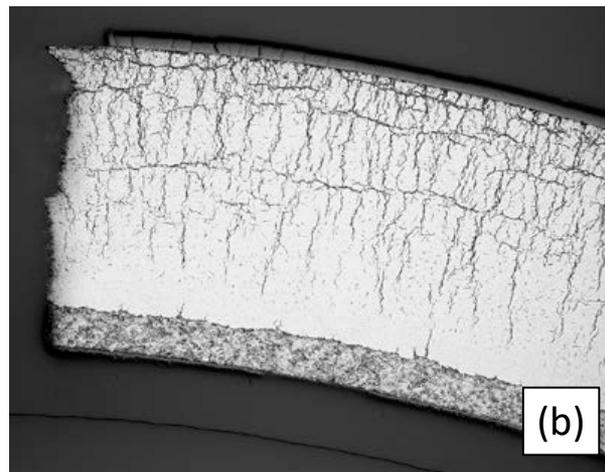


- 指標値増加に伴う延性低下の傾向が比較的良く示された。
- 照射まま材は全て1%以上の周方向破損歪を示した。
- 水素再配向処理を行った試料のうち、指標値29.4 mm/mm²以上のものは1%以下の周方向破損歪を示した。

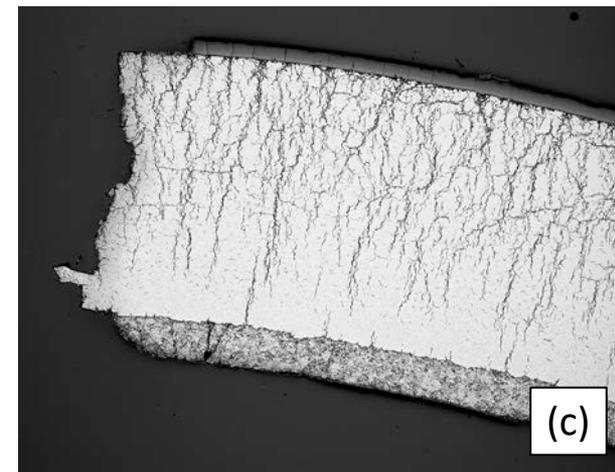
試験結果③ 亀裂部の断面観察結果



水素濃度 : 204 ppm (Zry-2部分)
 指標値 : 20.2 mm/mm²
 周方向破損歪 : 4.5 %
 水素添加再配向処理期間 : 9日間



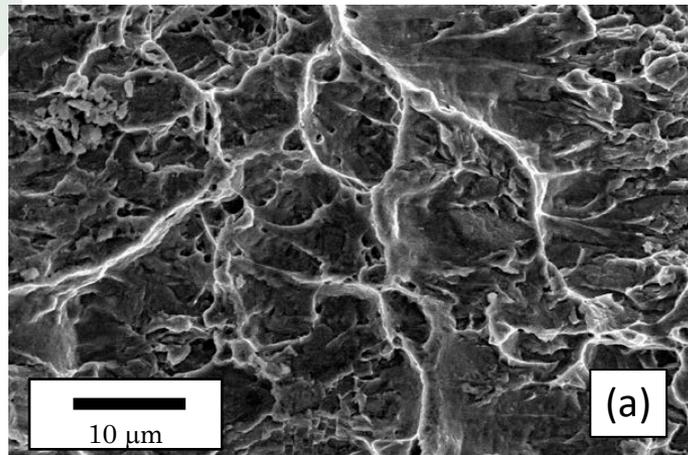
水素濃度 : 213 ppm (Zry-2部分)
 指標値 : 29.4 mm/mm²
 周方向破損歪 : 0.9 %
 水素添加再配向処理期間 : 21日間



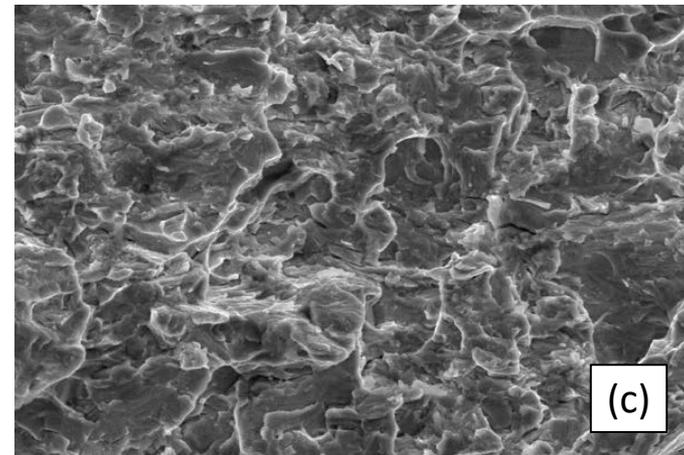
水素濃度 : 315 ppm (Zry-2部分)
 指標値 : 30.9 mm/mm²
 周方向破損歪 : 0.2 %
 水素添加再配向処理期間 : 21日間

- 試験片(a)及び(b)は、Zry-2部分の水素濃度が同程度でも異なる周方向破損歪を示した。
 - 水素濃度が同等であっても、半径方向水素化物の析出程度により異なる周方向破損歪を示すことが確認された。
- 亀裂進展の様子から、試験片(a)は延性的、試験片(b)及び(c)は脆性的に破壊したと考えられる。

試験結果④ 破面SEM観察結果



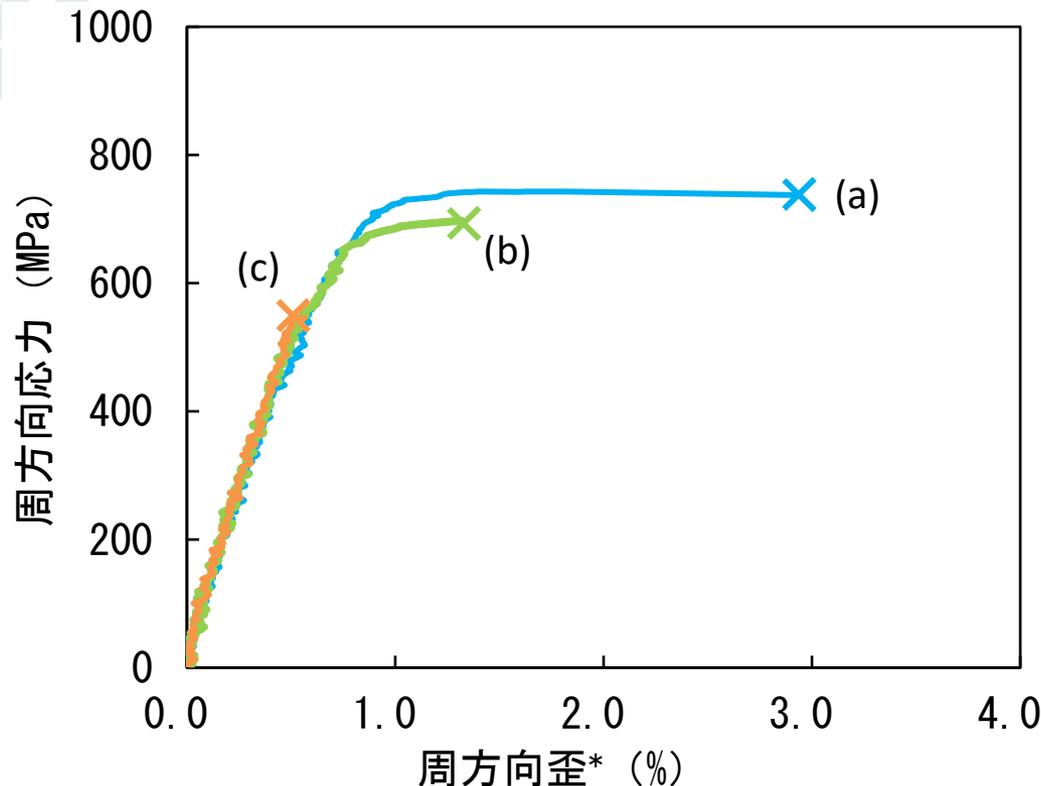
水素濃度 : 204 ppm (Zry-2部分)
 指標値 : 20.2 mm/mm²
 周方向破損歪 : 4.5 %
 水素添加再配向処理期間 : 9日間



水素濃度 : 315 ppm (Zry-2部分)
 指標値 : 30.9 mm/mm²
 周方向破損歪 : 0.2 %
 水素添加再配向処理期間 : 21日間

- 試験片(a)では 延性破面に特徴的なディンプル(カップ状に窪んだ部分)が観察された。
- 一方試験片(c)では脆性破面に特徴的な平面的な破面が主体的となっており、断面金相観察結果と一致する。
- 以上から、水素化物の半径方向への析出の度合いが大きい場合、300°Cにおいても被覆管が脆性的に破壊することがわかった。

試験結果⑤ 応力-歪曲線



(a)	水素濃度 : 204 ppm (Zry-2部分) 指標値 : 20.2 mm/mm ² 周方向破損歪 : 4.5 % 水素添加再配向処理期間 : 9日間
(b)	水素濃度 : 213 ppm (Zry-2部分) 指標値 : 29.4 mm/mm ² 周方向破損歪 : 0.9 % 水素添加再配向処理期間 : 21日間
(c)	水素濃度 : 315 ppm (Zry-2部分) 指標値 : 30.9 mm/mm ² 周方向破損歪 : 0.2 % 水素添加再配向処理期間 : 21日間

- 試料(b)は破壊前に降伏したが、その塑性変形量が非常に限られていたこと、破壊挙動が脆性的であったことから、脆性-延性の境界に相当するケースと考えられる。
- これらの結果から、周方向破損歪約1%を境にして、300°Cにおける被覆管のマクロな破壊挙動が脆性に転じると評価できる。

*試験中に測定した試験片中央の外径変化から算出。周方向破損歪とは必ずしも一致しない。

まとめ

- 水素化物再配向処理を施した高燃焼度使用済BWR燃料被覆管の延性(周方向破損歪)を内圧破裂試験で評価した。
- 指標値が大きくなると、すなわち水素化物の半径方向への析出の割合が増大すると周方向破断伸びは小さくなる傾向を示し、指標値が29 mm/mm²以上の試料は300°Cにおいて脆性的に破壊した。
- また、それら試料の周方向破損歪は全て1%以下であった。
- 本研究の結果から、周方向破損歪1%は、半径方向水素化物析出に起因する被覆管のマクロな脆性-延性遷移に対応するしきい値とみなすことができる。
- なお、照射まま材(指標値:約8 - 10 mm/mm²)は1%以上の周方向破損歪を示した。

今後の展開

- JAEAとの共同研究において、ナノインデンテーション法を用いて水素化物の機械物性を直接測定する手法を検討(平成31年4月～令和3年3月)
- それにより得たデータを基にして水素化物を考慮した破壊挙動モデルを検討
- 過渡のみならず事故時の被覆管破損挙動評価に活用