JAEA-Research 2022-001 DOI:10.11484/jaea-research-2022-001



ナノインデンテーション法による LOCA 模擬試験後 ジルカロイ被覆管の機械特性評価 (共同研究)

Mechanical Property Evaluation of Zircaloy Cladding Tube after LOCA-simulated Experiment Using Nanoindentation Method (Joint Research)

垣内 一雄 宇田川 豊 山内 紹裕

Kazuo KAKIUCHI, Yutaka UDAGAWA and Akihiro YAMAUCHI

安全研究・防災支援部門 安全研究センター 原子炉安全研究ディビジョン

Reactor Safety Research Division Nuclear Safety Research Center Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness

June 2022

Japan Atomic Energy Agency 日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。 本レポートの成果(データを含む)に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の 条件で利用してください。(<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</u>) なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4 電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency. This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en</u>). Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under

the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan

Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2022

ナノインデンテーション法による LOCA 模擬試験後 ジルカロイ被覆管の機械特性評価 (共同研究)

日本原子力研究開発機構 安全研究・防災支援部門 安全研究センター 原子炉安全研究ディビジョン

垣内 一雄、宇田川 豊、山内 紹裕*

(2022年1月7日受理)

冷却材喪失事故(LOCA)時想定される被覆管脆化の主たる要因は、高温酸化に伴う金属層中酸素濃度の増大とこれに起因する微細組織の変化である。被覆管が破裂した場合には、燃料棒内に侵入した水蒸気によって生じる被覆管内面の酸化及びこれに伴う燃料棒内水素分圧の上昇の結果、破裂開口部からやや離れた軸方向位置で局所的な水素吸収が起こり(二次水素化)、二次水素化部では水素脆化による延性低下も重畳する。これら微細組織の変化が LOCA 条件下における燃料棒の機械特性に及ぼす影響をより詳細かつ定量的に把握するため、LOCA 模擬試験後試料の破裂開口部及び二次水素化部の延性評価にナノインデンテーション法を適用した。硬さやヤング率に加えて、押込み荷重一変位曲線から算出される塑性仕事割合を評価したところ、二次水素化部の金属層(prior-β相)における塑性仕事割合は、被覆管外周の ZrO₂層とα-Zr(0)層に近い水準であり、破裂開口部に比べて酸素濃度が低いにもかかわらず、水素の影響により 有意に延性が低下していることが示唆された。

本研究は、日本原子力研究開発機構と原子力規制庁との共同研究に基づいて実施したものである。 原子力科学研究所 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2-4 *原子力規制庁長官官房技術基盤グループ

i

Mechanical Property Evaluation of Zircaloy Cladding Tube after LOCA-simulated Experiment Using Nanoindentation Method (Joint Research)

Kazuo KAKIUCHI, Yutaka UDAGAWA and Akihiro YAMAUCHI*

Reactor Safety Research Division, Nuclear Safety Research Center, Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness, Japan Atomic Energy Agency Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 7, 2022)

The primary cause of cladding embrittlement during loss-of-coolant accident (LOCA) is the increase in oxygen concentration in the metallic layer and associated microstructural change due to oxidation. In the case of cladding high temperature rupture, inner surface oxidation by the steam ingress and the consequent increase in hydrogen partial pressure result in hydrogen absorption (secondary hydriding) localized in the axial direction at the distance apart from the rupture opening as is well known from preceding studies. In order to understand the effect of cladding microstructural changes on mechanical property of a fuel rod under LOCA conditions in a more precise and quantitative manner, the nanoindentation method has been applied to evaluation of mechanical properties of a cladding specimen after a LOCA simulated test; results for two samples taken from the rupture opening part and secondary hydriding part were compared with each other. The fraction of plastic work during the indentation was evaluated from the load-displacement curve in addition to hardness and Young's modulus. The plastic work fraction at the secondary hydriding part was found to be clearly lower than that at the rupture opening part and rather close to that in the ZrO_2 and $\alpha - Zr(0)$ layers, suggesting the significant ductility reduction of the secondary hydriding part despite its relatively low oxygen concentration.

Keywords: Nanoindentation Method, Fuel Cladding Tube, Mechanical Property, Zircaloy, Zr Alloy

This work has been performed in Japan Atomic Energy Agency as a joint research with Secretariat of Nuclear Regulation Authority.

*Regulatory Standard and Research Department, Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

ii

目 次

| 1. | はじめに | 1 |
|----|-------------------------------|---|
| 2. | 実験方法 | 2 |
| 2 | .1 ナノインデンテーション法について | 2 |
| 2 | .2 LOCA 模擬被覆管について | 3 |
| 3. | 結果及び考察 | 3 |
| 3 | .1 LOCA 模擬被覆管の硬さ分布 | 3 |
| 3 | .2 二次水素化部の延性低下について | 4 |
| 3 | .3 LOCA 模擬試験後被覆管の曲げ試験結果に関する考察 | 5 |
| 4. | まとめ | 7 |
| 参考 | 夸文献 | 9 |

Contents

| 1. | Ι | Introduction | 1 | |
|------|------------|---|---|--|
| 2. | E | Experimental method | 2 | |
| 2. | 1 | Nanoindentation technique | 2 | |
| 2. | 2 | LOCA simulated cladding | 3 | |
| 3. | F | Results and discussion | 3 | |
| 3. | 1 | Hardness distribution of LOCA simulated cladding | 3 | |
| 3. | 2 | Ductility degradation of secondary hydriding part | 4 | |
| 3. | 3 | Discussion on bending test results of cladding after LOCA simulated | | |
| | | test | 5 | |
| 4. | S | Summary | 7 | |
| Refe | leferences | | | |

This is a blank page.

1. はじめに

軽水炉の設計基準事象として想定される冷却材喪失事故(LOCA)条件下で被覆管の延性に影響を及ぼす要因として、高温水蒸気との接触により生じる外面からの酸化、被覆管の破裂による減肉、破裂に伴い燃料棒内に侵入した高温水蒸気による被覆管内面からの酸化や二次水素化が挙げられる。これらは、再冠水過程で生じるクエンチ(急冷)時の燃料棒破断挙動に影響を与えるだけでなく、LOCA後の冷却期間中に想定される地震荷重下の破断挙動、すなわち事故後の長期冷却期間に亘る燃料棒の冷却可能形状維持にも影響する。

ジルカロイ被覆管と高温水蒸気の酸化反応が進行すると、被覆管の微細組織は、表面側から 順に、酸化膜(ZrO₂)層、酸素安定化 α 相(α -Zr(0)相)及び変態 β 相(冷却後は prior- β 相) の複層構造を形成する。この内、表面側に位置する ZrO₂や α -Zr(0)相は相対的に脆く、LOCA 後 の燃料被覆管の機械特性、特に延性を維持しているのは prior- β 相であると考えられている。 prior- β 相の微細組織と延性の関係に関して、Udagawa ら¹⁻²⁾は、高温酸化後の徐冷速度をパラ メータとした LOCA 模擬試験を実施し、試験後の試料について微小ビッカース硬さ試験やリン グ圧縮試験を実施することで、prior- β 相中では徐冷期間中に α -Zr(0)相の析出が進むこと、 また α -Zr(0)相の面積率増大に伴い肉厚方向に亀裂が伝播しやすくなり、被覆管の延性が低下 することを明らかにした。

このように、LOCA 時の被覆管脆化の主たる要因は酸化に伴う prior-β相中の酸素濃度増大 とこれに起因する微細組織の変化であるが、被覆管が破裂した場合、燃料棒内に侵入した水蒸 気によって生じる被覆管内面の酸化及びこれに伴う燃料棒内水素分圧の上昇の結果、破裂開口 部からやや離れた軸方向位置で局所的な水素吸収が起こり(二次水素化)、二次水素化が生じた 位置では水素脆化による延性低下も重畳する。Okada ら³⁻⁴⁾は、LOCA 後長期冷却期間中の燃料棒 の破損限界に及ぼす二次水素化の影響を正確に評価するため、予め複数の開口部を設けた被覆 管試料を LOCA 模擬試験に供することで、膨れ破裂を伴わずに二次水素化を生じた試料を準備 し、4 点曲げ試験によりその強度を評価した。その結果、二次水素化部の曲げ強度は、破裂開 口部(非二次水素化部)と同様に prior-β相厚さ及び prior-β相の酸素濃度に依存する傾向が 見られ、またこれらの条件が同程度の試料同士を比較した場合、二次水素化した箇所の曲げ強 度は、破裂開口部の半分程度と顕著に低下すると報告している。

以上のように、LOCA 時の燃料被覆管の機械特性は、酸化や水素吸収により生じた被覆管金属 層微細組織の変化に支配されることが知られているが、微細組織の状態の時間発展は金属層中 の局所的な酸素濃度や水素濃度に加え、高温酸化や徐冷等各フェーズの温度履歴にも強く依存 する上、機械特性の異なる prior- β 相と析出 α 相の二領域からなる非均質組織でもあることか ら、これら微視的レベルでの現象理解や、取得データを想定される荷重に対応する巨視的な延 性低下の評価に結びつける手法は確立していない。特に従来多くの研究で利用されてきた微小 ビッカース硬さ試験では、prior- β 相と析出 α 相で構成される微細組織の非均質性の粒度に対 して圧子のサイズが大きく、相/領域毎の局所的な機械特性を定量的に把握する手段としては 限界があった。 微細組織の機械特性をより高い分解能で評価する手法として、ナノインデンテーション法が ある。ナノインデンテーション法は、ビッカース硬さ試験と同様な押し込み硬さ試験の一種で、 圧子を材料表面に極微小荷重で押し付け、押込み深さを高分解能の変位計で測定することによ り極めて微小な領域の硬さやヤング率の機械特性を評価する手法であり、ISO 14577-1⁵⁾におい て既に標準化されている。軽水炉被覆管への適用についても近年研究例が報告されており、 Stern⁶⁾らは LOCA 模擬試験後試料を対象に、酸素濃度をパラメータとしてナノインデンテーシ ョン試験及びリング圧縮試験を実施し、prior-β相の延性-脆性のしきい酸素濃度を 0.5wt%と 報告している。

軽水炉燃料の機械特性評価に関するナノインデンテーション法の有効性を示すこれら先行事 例も受け、原子力規制庁と日本原子力研究開発機構(以下、「原子力機構」という)の共同研究 として、ナノインデンテーション法によるジルコニウム合金被覆管微細組織の機械特性評価手 法について令和元年より検討・開発を開始した。本共同研究では、通常運転時の燃料健全性や 事故時の燃料挙動に及ぼす微細組織の機械特性の影響把握を目的として、室温条件から知見の 乏しい高温条件(700℃程度)までをカバーする装置・手法の整備を進めている。本報告では、 研究の一環として、LOCA 模擬試験後被覆管の破裂開口部及び二次水素化が顕著になる位置から 採取した試料に対して、それぞれナノインデンテーション法による硬さ測定を実施し、押込み 荷重一押込み変位曲線からヤング率や塑性仕事割合等の特性を評価した。また、得られた結果 をもとに、0kada ら³⁻⁴⁾が実施した LOCA 模擬試験後の被覆管曲げ試験結果について考察した。

2. 実験方法

2.1 ナノインデンテーション法について

ナノインデンテーション法の原理については既に多くの報告⁷⁻¹¹⁾があるように、圧子が試料 へ侵入する押し込み深さをナノメートルオーダーでの測定分解能をもつ変位計を用いて測定し、 圧子(Berkovich;ダイヤモンド製の三角錐形状)の幾何学的形状を用いて圧痕の投影面積を求 める方法である。Fig.1に荷重-押し込み深さ曲線のイメージ図、Fig.2に装置の外観を示す。 装置は、Micro Materials 社製 Vacuum Ready を用いた。本試験装置では電磁コイルにより荷 重を制御しながら圧子を押し込み、静電容量方式により押込み変位を計測する。

荷重-押し込み深さ曲線より、下記式を用いて硬さ(H) やヤング率(E) を評価する。圧痕 の投影面積を評価するにあたり、実際の圧子の先端部分は理想形状より丸みを帯びているため に、それを考慮する必要があるが、ここでは溶融シリカ及びタングステンの標準試料を用いて 面積関数を校正した。また、ヤング率を算出する際、被覆管試料及び圧子のポアソン比、圧子 のヤング率の物性値が必要となるが、文献¹¹⁾に基づき、それぞれ 0.33、0.07、1141 GPa とし た。

$$H = \frac{P_{max}}{A(h_c)}$$

-2-

$$E = \frac{1 - v_s^2}{\frac{2\sqrt{A(h_c)}}{S\sqrt{\pi}} - \frac{1 - v_i^2}{E_i}}$$
H : 硬さ (GPa)
E : ヤング率(GPa)
P_{max} : 最大荷重 (mN)
A : 圧痕の投影面積 (nm²)
h_c : 接触深さ (nm)
v_s, v_i : 試料及び圧子のポアソン比
E_i : 圧子のヤング率 (GPa)
S : 接触剛性 (mN/nm)

(P_{max}、h_c、SについてはFig.1を参照)

2.2 LOCA 模擬被覆管について

LOCA 模擬試験後試料として、昇温破裂後に 1200 °Cにて ECR (Equivalent Cladding Reacted; 酸化量) で約 20 %まで高温酸化し、700 °Cまで徐冷後に注水により急冷したジルカロイ-4 被 覆管試料を用いた。LOCA 模擬試験の温度履歴及び試験後の外観を Fig. 3 に示す。外観より軸方 向のほぼ中心付近で破裂していることが分かる。ナノインデンテーション試験に供する試験片 は、①破裂開口部、②破裂開口部から軸方向に上部側約 20 nm に位置し二次水素化が発生して いると考えられる領域(以下、「二次水素化部」という。)の二箇所から採取した。試料表面の 研磨条件は、表面硬化層が影響しない条件を検討し、最終研磨条件は OP-U 研磨剤(シリカ懸濁 液)とした。これらの試験片に対して、圧痕のサイズが 1 μ m 程度で、隣接圧痕の影響を受け ないことを考慮して、荷重 10 mN、測定間隔を 5 μ m とした。測定は、横方向及び縦方向にそ れぞれ 20 個ずつ、測定面積 100 μ m²に対して 400 点の測定を複数箇所について実施し、合計 1200 点以上のデータを取得した。Fig. 4 にデータの一例として押込み荷重一押込み深さデータ (400 点)を示す。押込み深さは 100~200 nm 程度であった。

被覆管中の水素濃度を定量するために、堀場製作所製の EMGA-930 を用い、ナノインデンテーション試験後の破裂開口部及び二次水素化部の試験片全体を対象に水素濃度を測定した。

3. 結果及び考察

3.1 LOCA 模擬被覆管の硬さ分布

破裂開口部及び二次水素化部において prior-β相領域で測定された硬さの水平断面内分布

をそれぞれ Fig. 5、Fig. 6 に示す。図中には、測定対象とした被覆管水平断面の金相写真、測定 後の圧痕の金相写真及び硬さのコンター図を併せて示す。金相写真において、被覆管の内外表 面付近について、最外表面には濃い灰色に見えている ZrO_2 層があり、その内側に安定化 α – Zr(0)相領域、prior- β 相領域が層構造をなしている。また、prior- β 相中に白色に近い析出相 が観察され、これは、Zr-O 擬二元系状態図 ¹⁻²⁾から分かるように、1200 ℃から 700 ℃までの徐 冷の間に析出した α –Zr(0)相と考えられる。圧痕の金相写真とコンター図の比較より、硬さの 大きい箇所は白色に近い領域に概ね対応していることが分かる。

二次水素化部では、破裂開口部と比較して、より明瞭な硬さのコントラストが見られる。Fig.7 に度数分布を示す。二次水素化部での硬さは、全体に破裂開口部よりも大きい。また、その中 でも硬さが比較的小さく7 GPa 周辺に度数分布の大きい群とそれ以外の2つの群からなってい る。前述のコントラストと硬さ分布の関係を踏まえると、硬さ6~8 GPa の領域が prior- β 相、 硬さ8~12 GPa の領域が析出 α -Zr(0)相(白色に近い領域)に対応していると考えられる。累 積度数分布より、二次水素化部における prior- β 相の占める割合は、約70%と見積もられる。 破裂開口部では、これらとは対照的に、硬さの度数分布は約6 GPa をピークとして連続的な変 化を示した。

Prior- β 中の析出 α -Zr(0)相(白色に近い領域)と被覆管外周部の酸化膜層の硬さを比較す るために、破裂開口部の被覆管外周部付近、すなわち、ZrO₂酸化膜層、 α -Zr(0)層領域、prior- β 相領域を跨いでの被覆管径方向硬さ分布を測定した結果をFig.8に示す。 α -Zr(0)層の領域 での硬さは、外表面側から離れるに従い減少傾向を示した。ジルカロイの硬さは酸素濃度の増 加に伴い大きくなることが知られており¹²⁾、Fig.8の α -Zr(0)層の硬さ分布は、 α -Zr(0)層内 に形成される酸素拡散による酸素濃度分布に対応していると考えられる。

3.2 二次水素化部の延性低下について

ナノインデンテーション試験後に被覆管中の水素分析を実施し、破裂開口部では水素濃度が約50 ppm であるのに対して、二次水素化部では水素濃度が約2000 ppm に達し、当該部位において顕著な二次水素化が生じていたことを確認している。

Fig.9に破裂開口部及び二次水素化部での prior-β相領域における硬さとヤング率の相関を 示す。硬さの増加に伴い、ヤング率も増加しており、二次水素化部では破裂開口部と比較して 有意に剛性が増したことが分かる。一般に、材料の延性低下に伴って硬さは大きくなる傾向を 示すことから、二次水素化部では破裂開口部と比較して延性が低くなっていると考えられる。 ここでは、延性の別の尺度として、全体仕事量に対する塑性仕事割合(PW/(PW+EW))による 整理も試みた。これは ISO 14577-1⁵に定義されているように、押込み荷重-深さ曲線で囲まれ る面積(圧子の仕事に比例)を、Fig.10のように除荷時の曲線に基づき塑性仕事相当分と弾性 仕事相当分に分類して、これらの比を算定することで得られるパラメータである。塑性仕事割 合は、定義から明らかなように、延性が小さいほど小さくなる関係にある。塑性仕事割合(PW/ (PW+EW))と硬さの関係を Fig.10 に併せて示す。図中の赤いシンボルは、Fig.8 の被覆管外 周部のα-Zr(0)層領域から評価した値である。破裂開口部では、硬さの増加に伴い、塑性仕事 割合は単調な減少傾向を示した。二次水素化部では、破裂開口部と比較して塑性仕事割合の変 化幅が非常に小さく、被覆管外周部のα-Zr(0)層領域に近い。また、破裂開口部と比較すると、 二次水素化部の塑性仕事割合は、破裂開口部における塑性仕事割合の下限に相当する低い値と なった。

上記の方法で評価した塑性仕事割合を酸素濃度で整理した結果を Fig.11 に示す。prior-β 相中の酸素濃度は、Okada らの論文³⁻⁴⁾でも用いられている RANNS コードを用いて評価した。こ れは、PRECIP-II コード¹³と同様の境界移動モデル及び酸素拡散モデルにより、各相領域の厚 みや各相領域中の径方向酸素濃度分布を計算するものである。なお、prior-β相領域中の析出 α 相はモデル化されていない。つまり、 α 相析出による prior- β 相領域内での酸素濃度の偏在 化が生じないと仮定しており、算定された酸素濃度は $prior-\beta$ 相領域全体の平均値を示す。水 蒸気中の高温酸化速度に関して概ね妥当な予測を与えることが確認されている標準的な酸素原 子拡散係数¹³を用いて得られた安定化α相領域の厚さを金相観察結果と比較したところ、全体 に過大評価の傾向が見られた。ここで見られた過大評価が、酸素濃度評価の観点ではどの程度 の誤差に対応するかは、この解析単体では見積もることが出来ない。そこで厚さに関する解析 結果と観察結果のずれを計算の主なパラメータである拡散係数の不確かさによるものと仮定し て、各相中の酸素の拡散係数を調整した解析を実施したところ、調整により観察結果を概ね再 現することができた。調整後の解析結果からは、調整前とは異なる prior-β相領域の平均酸素 濃度が得られる。図の横軸としているのは、拡散係数調整前後の2条件について得られた平均 酸素濃度の算術平均値である。上記感度解析による酸素濃度の計算値の変動幅は、二次水素化 部で 20%未満、破裂開口部で 10%未満であった。すなわち、算術平均値に対して見ると、二次水 素化部で±10%未満、破裂開口部で±5%未満の不確かさを伴う酸素濃度評価値と考えるべきで ある。

Fig. 11 中に赤いシンボルで示した prior- β 相のプロット及びエラーバーは、破裂開口部及 び二次水素化部について、測定データの平均値と最小/最大値区間を示す。また、比較として、 LOCA 試験前(受入材)、Fig. 8 より評価した被覆管外周部の ZrO₂層と α -Zr(0)層の値も併せて 示す。これより、二次水素化部の塑性仕事割合は、破裂開口部と比較して酸素濃度が小さいに もかかわらず、ばらつきを考慮しても系統的に低く、かつその値は脆性的な挙動を示すことが 知られている ZrO₂層と α -Zr(0)層に近い。このことより、二次水素化部の延性は、LOCA 試験前 (受入材)と比較して顕著に低下していることが分かる。ジルコニウムの結晶構造に対して酸 素は α 相安定化元素であり、また水素は β 相安定化元素であるため、酸素は析出 α -Zr(0)相に、 水素は析出 α -Zr(0)相を除く prior- β 相の母相に集まる傾向にある¹⁴⁻¹⁵⁾。一方、整理に用いた 酸素濃度(RANNS解析値)は、prior- β 相領域全体の平均値であり、二次水素化部 prior- β 相 の酸素濃度は、破裂開口部と比較して低く、延性低下に占める水素脆化影響の寄与が大きいと 考えられる。

3.3 LOCA 模擬試験後被覆管の曲げ試験結果に関する考察

Okada ら³⁻⁴⁾による曲げ試験の結果を Fig. 12 に示す。Fig. 12 では、酸化のみが生じた試料及

び二次水素化が生じた試料とも、prior-β相の厚さの増加に伴い、破断時曲げ応力は大きくな る。また、残存 prior-β相厚さに基づく整理及び破断時曲げ応力評価モデル化によれば、同等 の prior-β相の厚さで比較した場合、二次水素化した箇所の曲げ強度(破断時曲げ応力)は、 非二次水素化部の半分程度になるとしている。しかしながら、Okada らの試験においては、試 料調整の制約から、非二次水素化部の試料は破断箇所周辺に開口部が存在し、また、開口部の 存在による力学的な影響(応力集中等)は、破断時曲げ応力評価モデル上考慮されていない点 に注意が必要である。また、破断時の曲げ応力の評価に必要な断面二次モーメントの算定が、 供試被覆管試料の初期寸法の公称値に基づいている点でも近似的な評価モデルとなっている。 実際には、被覆管の酸化が進むほど、肉厚中央部に残る金属層(prior-β相領域)の厚みは減 少するので、曲げ荷重下で応力を受け持つ面積もこれに伴って減少している可能性がある。従 って、当該モデルにより評価された破断時の曲げ応力が、材料の破断が生じた際の真の曲げ応 力とどの程度乖離しているかは、依然として明らかでない。仮に、これら定量的に考慮されて いない要素(開口部の応力集中等)が、実際には破断挙動を評価する上で考慮されるべき重要 な因子である場合は、当該モデルにより予測された二次水素化の影響程度もまた、適切に評価 されていないことになる。以下では、前述したように、prior-β相の厚さの増加に伴い、破断 時曲げ応力は大きくなる結果、つまり prior-β 相領域の延性が大きい程、破断時曲げ応力は大 きくなるとの、Okada らのモデルにも表れている定性的な傾向を踏まえた上で、ナノインデン テーション結果から得られた領域毎の延性の情報を用いて Okada らのモデルの妥当性を検証す る。

今回のナノインデンテーション試験結果によれば、二次水素化を生じた位置での prior-β相 領域の延性は、その酸素濃度の低さにもかかわらず、非二次水素化部に比べ、有意に低い水準 にあった。ここで、ナノインデンテーションに供した二次水素化部試料 (Fig.6) の prior-β 相厚さは約 480 µm (Fig. 6 の金属層の厚み)である。この厚さは、Okada らのモデル³⁻⁴⁾によれ ば(二次水素化を伴う条件、Fig. 12 青カーブ)、約 350 MPa 程度の破断時曲げ応力となる条件 である(Fig. 12赤丸シンボル)。Fig. 11より、対応する塑性仕事割合は二次水素化試料の結果 に相当する約 0.66 である。次に、同モデルによれば、二次水素化を伴わない場合(Fig. 12 黒 カーブ) でかつ 350 MPa 程度で破断する prior-β 相厚さは、約 360 μm 程度(Fig. 12 の赤矢印 部分)である。ところが、prior-β相の厚さ約360 μm程度における領域の平均酸素濃度は、 RANNS 解析結果によれば 0.69 wt%程度である。この条件はほぼ Fig.11の "Prior-β phase at rupture opening position"に相当し、塑性仕事割合は 0.75 をやや下回る程度になると見積 もられる。すなわち、Okada らのモデルと Fig. 11 の本試験結果の双方を受け入れると、塑性仕 事割合にして 0.66 の二次水素化部と 0.75 弱の非二次水素化部が同等の破断時曲げ応力を示す ことになる。前述の通り、0kada らのモデルでは開口部の影響などの効果を定式化上取り込ん でおらず、これらの影響が有意であった、つまり Okada らのモデルの予測値に比べ非二次水素 化条件での真の破断時曲げ応力は高かったと解釈すれば、塑性仕事割合の関係に見られた不整 合を説明することが出来る。

以上の分析から、曲げ荷重下で応力を受け持つ領域が実効的に prior-β 相のみとなり得る こと、開口部周辺では応力集中が破断挙動に有意に影響すること等、これまで陽に考慮されて いない要素も破断時曲げ応力の評価上無視できない影響があると考えられる。また、今回評価 した二次水素化部試料では、微細組織の様相からも推測される機械特性の非均質さが硬さ分布 の拡がりによって確認される一方、塑性仕事割合の変化の幅は開口部に比べ小さく、逆にヤン グ率の変化の幅は大きいなど、微細組織に見られた機械特性の非均質性も部位によりその特徴 が異なり、巨視的な機械特性に対し及ぼす影響もこれに対応して異なることが示唆される。LOCA 後の長期炉心冷却性評価への適用を念頭に、破断時曲げ応力の評価モデルとして、より信頼性・ 外挿性に優れたモデルへ発展させる上では、これらの影響を適宜取り入れていくことが重要と 考えられる。

4. まとめ

原子力規制庁・原子力機構共同研究の枠組みの下検討を進めている、ナノインデンテーション法を用いたジルコニウム合金被覆管微細組織の機械特性評価の一環として、LOCA 模擬試験供 試後の被覆管試料の破裂開口部及び二次水素化部を対象にナノインデンテーション試験を実施 し、高温酸化により生じた微細組織の変化が燃料被覆管の機械特性に及ぼす影響を評価し、以 下の知見を得た。

- 二次水素化部での硬さは、全体に破裂開口部よりも硬く、硬さ分布は、下限近い7 GPa 周辺に度数分布の大きい群とそれ以外の2つの群からなり、これらは prior-β相と析出 α-Zr(0)相の硬さ分布に対応していると考えられる。破裂開口部における硬さの度数分 布は、二次水素化部とは対照的に、約6 GPa をピークとして連続的な変化を示した。
- 相対的な延性の指標として、荷重押込みに伴う全体仕事量に対する塑性仕事割合(PW/ (PW+EW))による整理を行ったところ、破裂開口部では、硬さの増加に伴い塑性仕事割 合の単調な減少傾向が見られたのに対し、二次水素化部では、破裂開口部における塑性 仕事割合の下限に相当する低い水準となった。
- 二次水素化部での prior-β 相領域は、酸素濃度の低さにもかかわらず、非二次水素化部
 に比べ塑性仕事割合は有意に低い水準にあり、延性低下に占める水素脆化影響の寄与が
 大きいと考えられる。
- ・ 上記の塑性仕事割合と酸素濃度の相関に基づき 0kada らが実施した LOCA 模擬試験後の 被覆管曲げ試験データ及び同データを整理し提案された破断時曲げ応力モデルを分析し た。この曲げ応力の大きさが破断箇所の延性の変化に対応していると解釈した場合、被 覆管の状態(酸素濃度)と延性の大小の関係は今回ナノインデンテーション試験結果に 基づき得られた塑性仕事割合の傾向と整合せず、このことから、破断時曲げ応力モデル において考慮されていない要素、すなわち曲げ荷重下で応力を受け持つ領域が実効的に は prior-β相領域のみとなりうること、開口部周辺では応力集中が破断の起点となるこ

との影響が強く示唆された。

以上より、ナノインデンテーション法で得られる硬さやヤング率に加えて、押込み荷重-押 込み変位曲線から算出される塑性仕事割合を考慮することで燃料被覆管の延性の程度を評価す ることが可能と考えられる。また、本試験結果で確認されたように、微細組織が有する機械特 性の非均質性も部位によりその特徴が異なり、これらの特性が巨視的な破損等挙動に及ぼす影 響も含めた評価に活用が可能である。本試験手法は、LOCA 時のみならず、通常運転時の被覆管 健全性評価への適用も期待される。

参考文献

- Y. Udagawa, F. Nagase, T. Fuketa "Effect of cooling history on cladding ductility under LOCA conditions" Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 43, No. 8, (2006) pp. 844-850.
- 2) 宇田川 豊、永瀬 文久、更田 豊志 「冷却材喪失事故時の被覆管延性低下に及ぼす冷却時 温度履歴の影響」JAERI-Research 2005-020, (2005) 40p.
- Y. Okada, M. Amaya "Effects of oxidation and secondary hydriding during simulated loss-of-coolant-accident tests on the bending strength of Zircaloy-4 fuel cladding tube" Annals of Nuclear Energy, Vol. 136 (2020) 107028.
- Y. Okada, M. Amaya "Evaluation of the maximum bending stress of pre-hydrided Zircaloy-4 cladding tube after simulated loss-of-coolant-accident test" Annals of Nuclear Energy, Vol. 145 (2020) 107539.
- 5) ISO, ISO 14577-1 Metallic materials -Instrumented Indentation Test for Hardness and Materials Parameter-Part1: Test Method (2015).
- 6) A. Stern et al. "Investigations of the Microstructure and Mechanical Properties of Prior-β Structure as a Function of the Oxygen Content in Two Zirconium Alloys" Journal of ASTM International, Vol. 5, No. 4, Paper ID JAI101119 (2008).
- 7) 大村 孝仁、津崎 兼彰 「ナノインデンテーションによる材料評価」まてりあ, Vol.46, No.4 (2007) pp.251-258.
- 8)田中 幸美 「ナノインデンテーション法を用いた微小領域の機械特性評価技術に関する調査研究」 産総研計量標準報告, Vol. 10, No. 1 (2019) pp. 7-21.
- 9) W.C. Oliver and G.M. Pharr "An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments" Journal of Materials Research, Vol.7, No. 6, (1992) pp. 1564-1583.
- 10) 小椋 智 「ナノインデンテーションによるナノ・マイクロスケール構造体の機械的特性評価」溶接学会誌, Vol. 81, No. 8, (2012) pp. 671-676.
- 11) K. O. Kese, A.-M. Alvarez, J. K.-H. Karlsson, K. H. Nilsson "Experimental evaluation of nanoindentation as a technique for measuring the hardness and Young's modulus of Zircaloy-2 sheet material" Journal of Nuclear Materials, Vol.507 (2018) pp. 267-275.
- 12) M.E. Sauby et al. "Recovery behavior of cold-worked and quenched Zircaloy with varying oxygen content" Journal of Nuclear Materials, Vol. 50, No. 2, (1974) pp. 175-182.
- 13) 鈴木 元衛、川崎 了、古田 照夫「Zr-H₂0 反応のシミュレーションコード PRECIP-Ⅱの開発 と計算結果および実験値との比較」 JAERI-M 7720, 1978, 101p.

- 14) 永瀬 文久、成川 隆文、天谷 政樹 「軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針の 技術的根拠と高燃焼度燃料への適用性」JAEA-Review 2020-076, (2021) 129p.
- 15) 瀬戸山 大吾、山中 伸介「ジルコニウムー酸素-水素3元系計算状態図」日本原子力学会 和文論文誌, Vol. 2, No. 4 (2003) pp. 452-459.



 $(h_{max} : Maximum depth, h_c : Contact depth)$

Fig. 1 Load-displacement curve of nanoindentation technique



Fig. 2 Appearance of nanoindentation equipment



Fig. 3 Temperature history applied to LOCA-simulated test and post-test appearance of Zircaloy cladding tube



Fig. 4 Load-displacement curves for secondary hydriding part of LOCA-simulated test specimen (400 measurements)



Optical micrograph of cladding tube



Optical micrograph of indentation



Hardness distribution

Fig. 5 Optical micrograph and hardness distribution for prior- β layer at the rupture position



Optical micrograph of cladding tube

White part





Hardness distribution

Fig. 6 Optical micrograph and hardness distribution for prior- β layer at secondary hydriding part



Fig. 7 Frequency distribution of hardness at the rupture opening and secondary hydriding part



Fig. 8 Radial distribution of hardness around the oxide film on the outer surface of the cladding tube at the rupture opening position



Fig. 9 Relation between hardness and Young's modulus



Depth of indentation, h



Fig. 10 Contribution of plastic work to total indentation work obtained from indentation load-depth curve $% \left({\left[{{{\rm{curv}}} \right]_{\rm{curv}}} \right)$



Fig. 11 Relation between plastic work fraction and oxygen concentration (Oxygen concentration calculated by RANNS code)



Fig. 12 Comparison of the results of the bending test by Okada et al. $^{\rm 3-4)}$ with the results of this study

This is a blank page.