

JAERI-M

5749

冷却材喪失事故時のジルカロイ被覆管の  
機械的性質におよぼすヘリウムの影響

1974年6月

古田 照夫・川崎 了

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

冷却材喪失事故時のジルカロイ被覆管の機械的性質  
におよぼすヘリウムの影響

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

古田照夫・川崎 了

(1974年6月3日受理)

冷却材喪失事故時のジルカロイ被覆管におよぼす照射の影響のうちとくに $(n, \alpha)$ 反応で生じるヘリウムの影響を、軽水炉運転中に生成される濃度をもとにして加速器でヘリウムをジルカロイ-4に注入し、800℃における応力破断試験をおこなって検討した。

軽水炉運転中に生成されるヘリウム濃度は最終平均燃焼度で数ppmになるが、800℃では0.5ppm以上のヘリウムが存在するとき破断応力の低下および破断寿命の短縮が認められた。しかし、破断伸びは減少せずむしろ増加する傾向が認められた。これらの結果から、冷却材喪失事故時におけるジルカロイの挙動を考えると、ヘリウムの影響を考慮する必要があるが示された。

The Effect of Helium on the Mechanical Properties of  
Zircaloy Cladding during a Loss-of-Coolant Accident

Teruo FURUTA and Satoru KAWASAKI

Division of Reactor Safety, Tokai, JAERI

(Received June 3, 1974)

The effect of helium produced by a  $(n, \alpha)$  reaction on the behavior of zircaloy cladding during a loss-of-coolant accident has been studied. Stress-rupture tests were conducted at 800°C for the zircaloy-4 injected with 0.5 and 5 ppm helium.

In light-water power reactors, the helium yield amounts to a few ppm in normal operation. From the tests, it was found that with over 0.5 ppm of helium in the cladding the rupture strength and the time to rupture of the specimens decreased, but the elongation to rupture increased in spite of helium injection.

## 目 次

1. 緒 言	1
2. 方 法	2
2.1 ヘリウム濃度の評価	2
2.2 ヘリウム注入と注入後試験	2
3. 結 果	3
3.1 ヘリウム濃度	3
3.2 応力破断試験	3
4. 討 論	4
4.1 冷却材喪失事故時のヘリウムの影響	4
4.2 延性変化	5
5. 総 括	6

## 1. 緒言

軽水炉の冷却材喪失事故における燃料被覆管の挙動に対して、軽水炉の安全性評価の面から非常に強い関心が持たれている。この冷却材喪失事故中、被覆管は通常運転時に比べて非常に高い温度にまで急激な温度上昇を受けることが予想され、そのために生ずる酸化現象にもなり被覆管の諸性質の変化が問題となる。そこで冷却材喪失事故時を模擬した研究がいくつか試みられているが、実際に想定するところの冷却材喪失事故は原子炉運転中のときであり、燃料棒のそれまでの照射履歴を考慮したものでなければならぬ。したがって、冷却材喪失事故を完全に模擬するならば、原子炉運転時におこらすべきであるが、それは不可能に近く、よりよく近似させるためには照射済燃料棒を使用する方が、未照射燃料棒を使った場合よりも好ましい。しかし、これとても実施面で困難な問題が残される。そこで、未照射燃料棒を使用するにあたって、照射効果を考慮することが妥当と思われる。

ジルカロイ被覆管の諸性質におよぼす照射の影響に関し、これまで数多くの報告がなされ、中性子照射による原子の弾き出しにもとづく照射効果は、 $450^{\circ}\text{C}$ 以上で回復する<sup>1)</sup>、また電子顕微鏡を用いた組織観察結果からでも $500^{\circ}\text{C}$ 以上で照射欠陥が回復する<sup>2)</sup>ことが認められている。これらの事実から、冷却材喪失事故時では被覆管表面温度が $500^{\circ}\text{C}$ 以上になるものと予想されるので、原子弾き出しに起因する影響は対象外としても差支えなからうと考えられている。しかしながら、Hobsonら<sup>3)</sup>は照射済燃料棒を用いた冷却材喪失模擬試験の結果、照射済燃料棒の場合未照射燃料棒のときよりも延性が低下することを認め、この原因として、(1)原子炉運転中に冷却材から水素、酸素などの元素が侵入したか、(2)高速中性子の影響が完全に無視できないためではなからうか、という二点を示唆した。

照射の影響として挙げられるものに、上記の弾き出しに起因するもの以外に、元素変換にもとづくものと核分裂生成物によるものがある。このうち、核分裂生成物のなかで化学的に活性な元素として主にヨウ素、セシウムなどがあるが、これら元素にもとづく影響に関する詳細は現在のところほとんどわかっていない。一方、元素変換により生成する水素、ヘリウムなどのガス元素のうち、とくにその効果が顕著であるのはヘリウムである。ヘリウムにもとづく機械的性質の変化はステンレス鋼をはじめとする高速炉用材料で脆化する事実が広く認められ、ステンレス鋼ではヘリウム濃度が $0.1\text{ ppm}$ 程度から脆化がおきている<sup>4)</sup>。高速炉材料に対するヘリウムの影響から、ヘリウム脆性の特徴をまとめると、

- (1) 高温で顕著となる。(とくに、絶対温度で表わした融点の $1/2$ 以上の温度)
- (2) 熱処理で消失しない。
- (3) 降伏強さが変らない。
- (4) 歪速度の影響が大きい。
- (5) 試料の履歴で脆化挙動が異なる。

の5点になる。

冷却材喪失事故を考えると、ジルカロイ被覆管に該当する上記特徴として、とくに(1)、(2)が問題となる。

そこで、筆者らは冷却材喪失事故中におけるジルカロイ被覆管の挙動を明らかにするうえで、照射済燃料棒と未照射燃料棒による差異を明確にする目的で、通常運転時中にジルカロイ被覆管に生ずるヘリウム濃度を評価し、その評価をもとにジルカロイ中に加速器を利用してヘリウムを注入し、注入後の機械的性質変化について検討をおこなった。

## 2. 方法

### 2.1 ヘリウム濃度の評価

ヘリウムは $(n, \alpha)$ 反応から生ずるが、一般的にある元素の熱中中性子に対する $(n, \alpha)$ 反応断面積よりも高速中中性子に対する反応断面積の方が大きいから、主として高速中中性子によって生成される。軽水炉の中中性子スペクトルを検討すれば、高速中中性子( $>1\text{MeV}$ )もかなり存在する。しかしながら、各原子炉の中中性子スペクトルは定かでないため、Fission スペクトルで高速中中性子スペクトルを近似し、燃料比出力および最終平均燃焼度については、原子炉設置許可申請書に記載された数値を利用してTable 1 に掲げる各元素の $(n, \alpha)$ 反応断面積<sup>5)</sup>を使って計算をおこなった。

### 2.2 ヘリウム注入と注入後試験

用いたジルカロイ-4 試料は、商用加圧水型発電炉に使用されているものであり、その化学組成はTable 2 に示すとおりである。この供試材からFig.1 中に示される形状および寸法をもつ試験片を製作し、 $850^\circ\text{C}$ 、1時間の真空焼鈍をおこなった。

ヘリウム注入は、筆者らがステンレス鋼でこれまでおこなっている方法<sup>6,7)</sup>で、サイクロトロンを使って $\alpha$ 線照射により注入した。 $\alpha$ 粒子注入については、Fig.2 から求まる物質(Fe)と $\alpha$ 粒子の飛程の関係<sup>8)</sup>から、 $\alpha$ 粒子の飛程が $0.2\text{mm}$ となる加速電圧 $36\text{MeV}$ とし、ジルカロイと鉄との比質量の違いより試料厚さ $0.17\text{mm}$ とした。電流密度は $3\mu\text{A}$ 以下、注入時の温度 $155^\circ\text{C}$ 以下<sup>9)</sup>でおこなった。ヘリウム濃度は以下の計算によって求めた。

ジルコニウムの比重は $6.5\text{g}/\text{cm}^3$ であるから、試験片 $0.17\text{mm}$ 厚さの単位面積当りの重量は $110\text{mg}/\text{cm}^2$ となる。ジルカロイ $1\text{cm}^3$ 当りの原子数はジルコニウム $100\%$ とすると、ジルコニウムの質量 $91$ 、アボガドロ数 $6 \times 10^{23}$ であるから、

$$6 \times 10^{23} \text{ケ} \times 6.5 \text{g}/\text{cm}^3 \times 1/91 \text{g} = 4.3 \times 10^{22} \text{ケ}/\text{cm}^3$$

となる。一方、Fig.1 の照射装置からビーム照射面積は $1.5\text{cm} \times 1.5\text{cm} = 2.25\text{cm}^2$ であるから、ヘリウム濃度 $1\text{ppm}$ を試料内に注入するのに必要なクーロン数は

$$4.3 \times 10^{22} \text{ケ}/\text{cm}^3 \times 1.7 \times 10^{-2} \text{cm} \times 10^{-6} \times 3.2 \times 10^{-19} \text{C}/\text{ケ} \times 2.25 \text{cm}^2 \\ = 620 \mu\text{C}$$

$$(\text{但し、}\alpha\text{粒子: } 3.2 \times 10^{-19} \text{Coulomb}/\text{ケ})$$

と求まる。

そこで、筆者らは冷却材喪失事故中におけるジルカロイ被覆管の挙動を明らかにするうえで、照射済燃料棒と未照射燃料棒による差異を明確にする目的で、通常運転時中にジルカロイ被覆管に生ずるヘリウム濃度を評価し、その評価をもとにジルカロイ中に加速器を利用してヘリウムを注入し、注入後の機械的性質変化について検討をおこなった。

## 2. 方法

### 2.1 ヘリウム濃度の評価

ヘリウムは $(n, \alpha)$ 反応から生ずるが、一般的にある元素の熱中中性子に対する $(n, \alpha)$ 反応断面積よりも高速中中性子に対する反応断面積の方が大きいから、主として高速中中性子によって生成される。軽水炉の中中性子スペクトルを検討すれば、高速中中性子( $>1\text{MeV}$ )もかなり存在する。しかしながら、各原子炉の中中性子スペクトルは定かでないため、Fission スペクトルで高速中中性子スペクトルを近似し、燃料比出力および最終平均燃焼度については、原子炉設置許可申請書に記載された数値を利用してTable 1に掲げる各元素の $(n, \alpha)$ 反応断面積<sup>5)</sup>を使って計算をおこなった。

### 2.2 ヘリウム注入と注入後試験

用いたジルカロイ-4試料は、商用加圧水型発電炉に使用されているものであり、その化学組成はTable 2に示すとおりである。この供試材からFig.1中に示される形状および寸法をもつ試験片を製作し、 $850^\circ\text{C}$ 、1時間の真空焼鈍をおこなった。

ヘリウム注入は、筆者らがステンレス鋼でこれまでおこなっている方法<sup>6,7)</sup>で、サイクロトロンを使って $\alpha$ 線照射により注入した。 $\alpha$ 粒子注入については、Fig.2から求まる物質(Fe)と $\alpha$ 粒子の飛程の関係<sup>8)</sup>から、 $\alpha$ 粒子の飛程が $0.2\text{mm}$ となる加速電圧 $36\text{MeV}$ とし、ジルカロイと鉄との比質量の違いより試料厚さ $0.17\text{mm}$ とした。電流密度は $3\mu\text{A}$ 以下、注入時の温度 $155^\circ\text{C}$ 以下<sup>9)</sup>でおこなった。ヘリウム濃度は以下の計算によって求めた。

ジルコニウムの比重は $6.5\text{g}/\text{cm}^3$ であるから、試験片 $0.17\text{mm}$ 厚さの単位面積当りの重量は $110\text{mg}/\text{cm}^2$ となる。ジルカロイ $1\text{cm}^3$ 当りの原子数はジルコニウム $100\%$ とすると、ジルコニウムの質量 $91$ 、アボガドロ数 $6 \times 10^{23}$ であるから、

$$6 \times 10^{23} \text{ケ} \times 6.5 \text{g}/\text{cm}^3 \times 1/91 \text{g} = 4.3 \times 10^{22} \text{ケ}/\text{cm}^3$$

となる。一方、Fig.1の照射装置からビーム照射面積は $1.5\text{cm} \times 1.5\text{cm} = 2.25\text{cm}^2$ であるから、ヘリウム濃度 $1\text{ppm}$ を試料内に注入するのに必要なクーロン数は

$$4.3 \times 10^{22} \text{ケ}/\text{cm}^3 \times 1.7 \times 10^{-2} \text{cm} \times 10^{-6} \times 3.2 \times 10^{-19} \text{C}/\text{ケ} \times 2.25 \text{cm}^2 \\ = 620 \mu\text{C}$$

$$(\text{但し、}\alpha\text{粒子: } 3.2 \times 10^{-19} \text{Coulomb}/\text{ケ})$$

と求まる。



ヘリウム注入濃度は2.1より推定される濃度 (Table 3)を参考にして、0.5 ppmおよび5 ppm(計算値)の2種とした。

注入後の応力破断試験は、800°C、 $1 \times 10^{-4}$  torr以下の条件でおこない、試験時の伸び測定は望遠鏡方式によって10  $\mu$ m(0.1%)まで検出し、破断後の伸びは試料突合せによって求めた。

破断後は、弗酸(10%)・硝酸(10%)腐食液を用いて腐食し光学顕微鏡による組織観察をおこなった。

### 3. 結果

#### 3.1 ヘリウム濃度

ヘリウム濃度を計算するにあたり、国内の原子炉を取上げ、沸騰水型の代表としてJPDR-IIとFukushima-I炉を、加圧水型としてMihama-II炉を選んだ。計算の結果をTable 3にまとめた。この表から、軽水炉被覆管中に生成するヘリウム濃度は1 ppm以上に達し、とくに高速中性子束が高いFukushima-I炉では4 ppmにもなることが予想される。この計算に用いられた値は燃料集合体の平均であるから、局部的にはもっと高い値を示す可能性がある。<sup>\*</sup>

以上の計算結果とステンレス鋼では0.1 ppm程度のヘリウム濃度でさえ、高温においてヘリウムの影響が認められている事実<sup>4)</sup>を考え合せたとき、冷却材喪失事故時の被覆管の挙動を検討するうえでヘリウムの影響を無視することが出来なからう。

#### 3.2 応力破断試験

ヘリウム注入前後の組織は、注入時の温度が155°C以下と低温であるため両者の間における組織のちがいは認められなかった。

800°Cでおこなった応力破断試験の時間-伸び曲線の代表例をFig. 3に示す。ヘリウム注入材(B)は比較材(A)に比べて早く変形が進むのが認められる。このため、ヘリウム注入はジルカロイ被覆管の変形速度を試験時間全般にわたり早めていると考えられる。

Fig. 4は応力破断試験結果の初期応力と破断寿命との関係を示したもので、ヘリウム注入をおこなった試料では比較材に比べて破断応力の低下と破断寿命の短縮が生じ、その低下と短縮の程度はヘリウムの濃度が増えるにつれて大きくなっている。すなわち、初期応力一定のとき0.5 ppmでは比較材の破断寿命の60%程度であり、5 ppmと濃度が10倍になると50%程度にまで低下する。このようなヘリウム濃度とともに破断寿命が短くなる傾向はステンレス鋼などで認められている結果とよく一致する。<sup>6,7,10,11)</sup>

<sup>\*</sup> ただし、各炉の中性子スペクトルが明らかでないから、高速中性子のスペクトルをFissionスペクトルで近似している。もちろん、用いた(n,  $\alpha$ )反応断面積もFissionスペクトルに対して求められたものであり、<sup>5)</sup>この結果Table 3に求められたヘリウム濃度は実際に比べ高くなっているものと思われる。

ヘリウム注入濃度は2.1より推定される濃度 (Table 3)を参考にして、0.5 ppmおよび5 ppm(計算値)の2種とした。

注入後の応力破断試験は、800°C、 $1 \times 10^{-4}$  torr以下の条件でおこない、試験時の伸び測定は望遠鏡方式によって10 $\mu$ m(0.1%)まで検出し、破断後の伸びは試料突合せによって求めた。

破断後は、弗酸(10%)・硝酸(10%)腐食液を用いて腐食し光学顕微鏡による組織観察をおこなった。

### 3. 結果

#### 3.1 ヘリウム濃度

ヘリウム濃度を計算するにあたり、国内の原子炉を取上げ、沸騰水型の代表としてJPDR-IIとFukushima-I炉を、加圧水型としてMihama-II炉を選んだ。計算の結果をTable 3にまとめた。この表から、軽水炉被覆管中に生成するヘリウム濃度は1 ppm以上に達し、とくに高速中性子束が高いFukushima-I炉では4 ppmにもなることが予想される。この計算に用いられた値は燃料集合体の平均であるから、局部的にはもっと高い値を示す可能性がある。<sup>\*</sup>

以上の計算結果とステンレス鋼では0.1 ppm程度のヘリウム濃度でさえ、高温においてヘリウムの影響が認められている事実<sup>4)</sup>を考え合せたとき、冷却材喪失事故時の被覆管の挙動を検討するうえでヘリウムの影響を無視することが出来なからう。

#### 3.2 応力破断試験

ヘリウム注入前後の組織は、注入時の温度が155°C以下と低温であるため両者の間における組織のちがいは認められなかった。

800°Cでおこなった応力破断試験の時間-伸び曲線の代表例をFig. 3に示す。ヘリウム注入材(B)は比較材(A)に比べて早く変形が進むのが認められる。このため、ヘリウム注入はジルカロイ被覆管の変形速度を試験時間全般にわたり早めていると考えられる。

Fig. 4は応力破断試験結果の初期応力と破断寿命との関係を示したもので、ヘリウム注入をおこなった試料では比較材に比べて破断応力の低下と破断寿命の短縮が生じ、その低下と短縮の程度はヘリウムの濃度が増えるにつれて大きくなっている。すなわち、初期応力一定のとき0.5 ppmでは比較材の破断寿命の60%程度であり、5 ppmと濃度が10倍になると50%程度にまで低下する。このようなヘリウム濃度とともに破断寿命が短くなる傾向はステンレス鋼などで認められている結果とよく一致する。<sup>6,7,10,11)</sup>

<sup>\*</sup> ただし、各炉の中性子スペクトルが明らかでないから、高速中性子のスペクトルをFissionスペクトルで近似している。もちろん、用いた(n,  $\alpha$ )反応断面積もFissionスペクトルに対して求められたものであり、<sup>5)</sup>この結果Table 3に求められたヘリウム濃度は実際に比べ高くなっているものと思われる。

破断寿命と破断伸びの関係を Fig.5 にまとめた。この結果、ヘリウム注入材は比較材と比較して破断伸びが減少せずむしろ増加する傾向がみられる。また、ヘリウム濃度 0.5 ppm と 5 ppm との差はあまり明確でない。破断伸びが減少せずむしろ増加する傾向を示す点は、Fig. 3 から予想されるが、ステンレス鋼などで認められる傾向<sup>6,7,10,11)</sup>とは違っている。

Fig. 6 に初期応力に対する破断伸びの変化を示したが、Fig. 5 同様にヘリウム注入材は比較材よりも伸びが増加することを示している。

以上 800°C におけるヘリウム注入材の応力破断試験の結果から、ヘリウムのジルカロイ-4 に及ぼす影響は、破断応力、破断寿命を低下させるが破断伸びを増加させる傾向を与えることとまとめられる。

破断後の破面近傍観察を Photo. 1 に示す。ヘリウムを注入されたステンレス鋼で特徴的にみられる粒界に沿ったクラックは、Photo. (1-b), (1-c) からわかるように明瞭には認められない。また、これらの写真から、比較材(a)の結晶粒の大きさはほぼ 40 μm であるのに対して、ヘリウム注入材 (b, c) は約 25 μm と小さくなっているのがみられる。

## 4. 討 論

### 4.1 冷却材喪失事故時被覆管に対するヘリウムの影響

冷却材喪失事故を模擬する研究において、被覆管の照射履歴とその照射効果をどのように評価すべきかは重要な問題である。原子弾き出しにもとづく照射効果は、450~500°C で回復する事実<sup>1,2,12,13)</sup>が認められ、冷却材喪失事故直後に回復するものと考えることができる。しかし、元素変換反応から生ずるヘリウムは、Table 3 に与えられたように 1 ppm 以上に達し、ステンレス鋼では 0.1 ppm 以上でヘリウムの影響がみられる事実<sup>4)</sup>や、冷却材喪失事故ではヘリウム脆性の特徴である高温に達し、しかもヘリウム脆化は熱によって回復しないからジルカロイ被覆管にもその影響が現われることが予想される。

ヘリウムの影響が顕著となる絶対温度で表わした融点の 1/2 なる温度は、ジルカロイでは 790°C 付近となるが、一方、冷却材喪失事故中の被覆管表面温度は Fig. 7 (WASH-1250) のように予測され、すべてを過大評価した過大評価モデルによる計算では事故後 10 秒以降に 800°C 以上に達し、より現実的なモデルで計算されたときでも 70~90 秒後の約 20 秒程が 800°C 付近に達する。したがって、ヘリウムの影響が顕著となると思われる温度に冷却材喪失事故中の被覆管はさらされることになる。

ジルカロイ被覆管中に生成するヘリウムは Table 1 で明らかにより主としてジルコニウムから生じるので、冷却材中の元素から生成されたヘリウムが被覆管表面に侵入し被覆管の冷却材と接する面から 20 μm 程度内側までの濃度は、それより内側の濃度に比べて高くなる<sup>14)</sup>という報告もあるが、生成したヘリウム濃度は被覆管中ほぼ均一であると考えてよい。さらに、ジルコニウム中のヘリウムの拡散定数は、1000°C で  $10^{-10}$  cm<sup>2</sup>/sec 程度<sup>15)</sup>であり、冷却材喪失事故時温度を約 800°C と仮定すればほとんど移動しない。したがって、加速器を利用してヘリウムを均一に注入した試料で十分ヘリウムによる影響を評価することができる。

破断寿命と破断伸びの関係を Fig. 5 にまとめた。この結果、ヘリウム注入材は比較材と比較して破断伸びが減少せずむしろ増加する傾向がみられる。また、ヘリウム濃度 0.5 ppm と 5 ppm との差はあまり明確でない。破断伸びが減少せずむしろ増加する傾向を示す点は、Fig. 3 から予想されるが、ステンレス鋼などで認められる傾向<sup>6,7,10,11)</sup>とは違っている。

Fig. 6 に初期応力に対する破断伸びの変化を示したが、Fig. 5 同様にヘリウム注入材は比較材よりも伸びが増加することを示している。

以上 800°C におけるヘリウム注入材の応力破断試験の結果から、ヘリウムのジルカロイ-4 に及ぼす影響は、破断応力、破断寿命を低下させるが破断伸びを増加させる傾向を与えることとまとめられる。

破断後の破面近傍観察を Photo. 1 に示す。ヘリウムを注入されたステンレス鋼で特徴的にみられる粒界に沿ったクラックは、Photo. (1-b), (1-c) からわかるように明瞭には認められない。また、これらの写真から、比較材(a)の結晶粒の大きさはほぼ 40 μm であるのに対して、ヘリウム注入材(b, c)は約 25 μm と小さくなっているのがみられる。

## 4. 討 論

### 4.1 冷却材喪失事故時被覆管に対するヘリウムの影響

冷却材喪失事故を模擬する研究において、被覆管の照射履歴とその照射効果をどのように評価すべきかは重要な問題である。原子弾き出しにもとづく照射効果は、450~500°C で回復する事実<sup>1,2,12,13)</sup>が認められ、冷却材喪失事故直後に回復するものと考えることができる。しかし、元素交換反応から生ずるヘリウムは、Table 3 に与えられたように 1 ppm 以上に達し、ステンレス鋼では 0.1 ppm 以上でヘリウムの影響がみられる事実<sup>4)</sup>や、冷却材喪失事故ではヘリウム脆性の特徴である高温に達し、しかもヘリウム脆化は熱によって回復しないからジルカロイ被覆管にもその影響が現われることが予想される。

ヘリウムの影響が顕著となる絶対温度で表わした融点の 1/2 なる温度は、ジルカロイでは 790°C 付近となるが、一方、冷却材喪失事故中の被覆管表面温度は Fig. 7(WASH-1250) のように予測され、すべてを過大評価した過大評価モデルによる計算では事故後 10 秒以降に 800°C 以上に達し、より現実的なモデルで計算されたときでも 70~90 秒後の約 20 秒程が 800°C 付近に達する。したがって、ヘリウムの影響が顕著となると思われる温度に冷却材喪失事故中の被覆管はさらされることになる。

ジルカロイ被覆管中に生成するヘリウムは Table 1 で明らかなように主としてジルコニウムから生じるので、冷却材中の元素から生成されたヘリウムが被覆管表面に侵入し被覆管の冷却材と接する面から 20 μm 程度内側までの濃度は、それより内側の濃度に比べて高くなる<sup>14)</sup>という報告もあるが、生成したヘリウム濃度は被覆管中ほぼ均一であると考えてよい。さらに、ジルコニウム中のヘリウムの拡散定数は、1000°C で  $10^{-10}$  cm<sup>2</sup>/sec 程度<sup>15)</sup>であり、冷却材喪失事故時温度を約 800°C と仮定すればほとんど移動しない。したがって、加速器を利用してヘリウムを均一に注入した試料で十分ヘリウムによる影響を評価することができる。

Fig. 4 の 800°C における応力破断試験の結果、ヘリウムが 0.5 ppm 以上存在すれば、破断応力と破断寿命の低下が起る。すなわち、被覆管内圧が一定のとき破断がヘリウム濃度の増加、換言すれば照射履歴とともに早く起ることを示唆している。また、破断伸びがヘリウムの存在によって増加するので、Fig. 6 からわかるように被覆管内圧を一定と仮定すれば、変形量が大きく冷却材の blockage に影響を与える。

ここで被覆管内圧を簡単に評価してみると、加圧水型燃料棒には室温で 24~34 kg/cm<sup>2</sup> の初期圧力が存在し、燃料の燃焼度とともに増加する核分裂生成ガスの圧力を最終燃焼度で 100 kg/cm<sup>2</sup> 程度までとすると、内圧は 400°C で 150 kg/cm<sup>2</sup> 以下とみなせる。つぎに、被覆管の体積が変わらないとして、800°C における内圧を計算すると、内圧 150 kg/cm<sup>2</sup> (400°C) が 240 kg/cm<sup>2</sup> になる。さらに、加圧水型炉の被覆管の一例として、内径 9.30 mm、最小肉厚 0.7 mm とすれば、径方向の応力は 16 kg/mm<sup>2</sup>、軸方向の応力で 8 kg/cm<sup>2</sup> となる。Fig. 4-6 をもとにしてヘリウムの影響を考えるため、燃料の燃焼度が最終燃焼度の 1/10、すなわち、ヘリウム濃度 0.5 ppm で内圧 50 kg/cm<sup>2</sup>、応力は径方向で 2.7 kg/mm<sup>2</sup> の場合を考えると、1 時間程度で破断を生じ、0.7 mm 以上の変形が起ることが予想される。したがって、被覆管内面酸化および冷却材の blockage に影響が現われるものと思われる。

ヘリウムにもとづく機械的性質の変化に対する特徴として、歪速度の影響が大きいことが挙げられる。ステンレス鋼や Hastelloy などでは、歪速度 0.1%/h 付近で延性の低下が著しく、それ以上または以下の歪速度では延性低下がやや小さくなる。<sup>16,17)</sup> 冷却材喪失事故中のジルカロイ被覆管に与えられる内圧の変化は温度上昇が急激であるために大きく、歪速度もそれに伴って早くなる。したがって、歪速度の影響はジルカロイ被覆管にはあまり影響を与えないと考えられる。

以上、冷却材喪失事故中のジルカロイ被覆管に対するヘリウムの影響を検討してきたが、冷却材喪失事故時の温度上昇を考慮した試験温度の影響、事故に出会ったときの被覆管の組織を考えた試験やヘリウム濃度を变化させた試験などが今後必要だと考えられる。

## 4.2 延性変化

Fig. 5.6 で認められるヘリウム注入材が比較材に比べて、延性が低下していない事実は、ステンレス鋼<sup>4,6,7,9-11)</sup>、Ni 基合金<sup>18)</sup>、バナジウム<sup>19)</sup>そしてベリリウム<sup>20)</sup>などで知られている延性低下とは全く逆の結果となっている。この結果はジルカロイに特有なものであるかどうか今後の検討を必要とする。

つぎに、ジルカロイのこの試験温度に特有なものであるかどうか問題となる。Brassfield ら<sup>1)</sup>により、800°C 引張試験の結果、最大引張応力 2.5 kg/mm<sup>2</sup> のとき 80% 程度の伸びを示すことが報告されており、Fig. 6 の応力-破断伸びとの関係における比較材の値はほぼ一致している。したがって、比較材の伸びの値がとくに小さく、異常であったとは考えにくい。

筆者ら<sup>21)</sup>はヘリウム注入をおこなったステンレス鋼では注入しない場合よりも、再結晶が遅くかつ同じ温度なら結晶粒が小さくなることを報告した。この事実は、Photo. 1 でみられるヘリウム注入をおこなったジルカロイ-4 の結晶粒 (Photo. 1-b, 1-c) は、注入しないもの (Photo. 1-a) に比較して細かいことに対応している。すなわち、応力破断中に負荷さ

れた応力のもとで再結晶が進み、ヘリウムが存在するときには再結晶が遅くれ結晶粒も小さくなる。再結晶が遅くれるならば、クリープ歪速度が小さくなると思われるが、Fig. 3 中の時間-歪曲線ではこの点は明らかでない。しかし、クリープ歪速度が明確に求まるような場合、ステンレス鋼でクリープ歪速度がやや遅くなる傾向が認められる<sup>9)</sup>ごとくクリープ歪速度が遅くれるかもしれない。クリープ歪速度が遅くなっても、ヘリウムがクリープ変形に対してもっとも影響を与える加速クリープ段階を早く開始させるため破断寿命の短縮は生ずるだろう。

Fig. 8<sup>22)</sup> に筆者らによってなされたステンレス鋼のヘリウム脆性と結晶粒の大きさとの関係を示す。このような関係がジルカロイでも同様に起るとすれば、Fig. 5-6 の延性低下が認められたかった点を説明できる。すなわち、Fig. 8 はヘリウム注入と再結晶処理の前後関係で延性低下の様相が異なり、しかも条件一定のもとではその延性低下が結晶粒の大きさのみ依存することを意味している。換言すれば Fig. 5-6 では、Fig. 8 におけるヘリウム注入後に再結晶させた細粒のもの (Photo. 1-b, 1-c) と、それより粗粒であるヘリウム注入をおこなわなかったもの (Photo. 1-a) を比較したことになり、それら両者の延性に差がなかったものと考えられる。もちろん、ヘリウムが存在するとき存在しない場合に比べ延性がよくなるかどうかの疑問は残り、今後この点に関する知見が得られることを期待したい。

## 5. 総 括

軽水炉冷却材喪失事故時におけるジルカロイ被覆管の挙動を解明するため、被覆管に対する照射の影響について検討をおこなった結果、次のような点が明らかにされた。

- (1) 冷却材喪失事故時、被覆管に対する照射の影響として、とくに  $Zr(n, \alpha)Sr$  で生成されるヘリウムの影響を考慮する必要がある。
- (2) 軽水炉の通常運転中に、ジルカロイ被覆管中に生成するヘリウム濃度は数 ppm 程度までに達する。
- (3) ジルカロイ-4 の 800°C における応力破断特性は、ヘリウム濃度 0.5 ppm 以上で、破断応力の低下と破断寿命の短縮が認められた。しかし、破断伸びは減少せずむしろ増加する傾向が認められた。
- (4) (3) よりジルカロイ被覆管の破断が促進されることで被覆管の内面酸化に、また変形が一層進むことから冷却材の blockage に問題が生ずる可能性があり、今後、この点について詳細な検討が必要である。

## 謝 辞

サイクロトロン照射について、お世話になった名古屋大学工学部 加藤敏郎教授にお礼申し上げますとともに、照射実験にひとかたならぬ御協力をしていただいた理化学研究所サイクロトロン研究室 河野功氏に感謝の意をここに表します。

れた応力のもとで再結晶が進み、ヘリウムが存在するときには再結晶が遅く結晶粒も小さくなる。再結晶が遅くれば、クリープ歪速度が小さくなると思われるが、Fig. 3 中の時間-歪曲線ではこの点は明らかでない。しかし、クリープ歪速度が明確に求まるような場合、ステンレス鋼でクリープ歪速度がやや遅くなる傾向が認められる<sup>9)</sup> ごとくクリープ歪速度が遅くてもよい。クリープ歪速度が遅くても、ヘリウムがクリープ変形に対してもっとも影響を与える加速クリープ段階を早く開始させるため破断寿命の短縮は生ずるだろう。

Fig. 8<sup>22)</sup> に筆者らによってなされたステンレス鋼のヘリウム脆性と結晶粒の大きさとの関係を示す。このような関係がジルカロイでも同様に起るとすれば、Fig. 5-6 の延性低下が認められなかった点を説明できる。すなわち、Fig. 8 はヘリウム注入と再結晶処理の前後関係で延性低下の様相が異なり、しかも条件一定のもとではその延性低下が結晶粒の大きさのみ依存することを意味している。換言すれば Fig. 5-6 では、Fig. 8 におけるヘリウム注入後に再結晶させた細粒のもの (Photo. 1-b, 1-c) と、それより粗粒であるヘリウム注入をおこなわなかったもの (Photo. 1-a) を比較したことになり、それら両者の延性に差がなかったものと考えられる。もちろん、ヘリウムが存在するとき存在しない場合に比べ延性がよくなるかどうかの疑問は残り、今後この点に関する知見が得られることを期待したい。

## 5. 総 括

軽水炉冷却材喪失事故時におけるジルカロイ被覆管の挙動を解明するため、被覆管に対する照射の影響について検討をおこなった結果、次のような点が明らかにされた。

- (1) 冷却材喪失事故時、被覆管に対する照射の影響として、とくに  $Zr(n, \alpha)Sr$  で生成されるヘリウムの影響を考慮する必要がある。
- (2) 軽水炉の通常運転中に、ジルカロイ被覆管中に生成するヘリウム濃度は数 ppm 程度までに達する。
- (3) ジルカロイ-4 の 800°C における応力破断特性は、ヘリウム濃度 0.5 ppm 以上で、破断応力の低下と破断寿命の短縮が認められた。しかし、破断伸びは減少せずむしろ増加する傾向が認められた。
- (4) (3) よりジルカロイ被覆管の破断が促進されることで被覆管の内面酸化に、また変形が一層進むことから冷却材の blockage に問題が生ずる可能性があり、今後、この点について詳細な検討が必要である。

## 謝 辞

サイクロトロン照射について、お世話になった名古屋大学工学部 加藤敏郎教授にお礼申し上げますとともに、照射実験にひとかたならぬ御協力をしていただいた理化学研究所サイクロトロン研究室 河野功氏に感謝の意をここに表します。

Table 1 (n, $\alpha$ ) cross section data and helium produced per ppm constituent in zircaloy<sup>14)</sup>

Element	A	% of A	$\bar{\sigma}$ (mb)	$\bar{\sigma}$ -element (mb)	ppm $\bar{\sigma}$ const.	Atoms helium $10^6$ atoms Zircaloy <sup>5)</sup>
B	10	19.6				
	11	20.4	0.24	-----	5-7	2.6-3.7
C	12	98.9	0.45	0.47	150-200	0.34-0.51
	13	1.1	2.6			
N	14	99.6	41.0	93.0	60-70	10-12
	15	0.37	0.013			
O	16	99.76	6.0	7.0	1350-1490	29-32
	18	0.2	1.5			
Al	27	100	0.65	0.65	75-200	0.1-0-3
Si	28	92.2	0.74			
	29	4.7	6.4	0.98	200-300	0.3-0.4
	30	3.1	0.1			
Cr	50	4.4	0.65			
	52	83.7	0.07	0.2	100-300	0.04-0.13
	53	9.5	3.0			
	54	2.4	0.05			
Mn	55	100	0.13	0.13	100	0.014
Fe	54	5.9	0.74			
	56	91.6	0.35	0.23	1500	0.7
	57	2.2	3.5			
	58	0.33	0.01			
Sn <sup>5)</sup>	112	0.95	0.065			
	114	0.65	0.019			
	115	0.34	0.29			
	116	14.24	0.0021			
	117	7.57	0.054			
	118	24.01	0.0002		7800-	0.05-
	119	8.58	0.035		13800	0.083
	120	32.97	<0.0001			
	122	4.71	<0.0001			
	124	5.98	<0.0001			
Zr	90	51.6	0.0035			
	91	11.0	1.5			
	92	17.1	0.074	0.18	986,000-	115-
	94	17.5	0.014		981,000	114
	96	2.8	< $\mu$ b			



Table 2 Chemical composition of Zircaloy - 4

Element	Sn	Fe	Cr	Fe+Cr+Ni	Al	B	Cd	Co	Cu	Hf	Mn	Si
Content(Wb)	1.46	0.22	0.10	0.32	0.0063	<0.00005	<0.00005	<0.0005	0.0010	0.0083	<0.0010	0.0030
Element	Ti	W	U	Pb	Cd	Mg	Ca	C	O	H	N	Zr
Content(Wb)	0.0010	<0.0010	<0.00035	<0.0010	<0.0020	<0.0005	<0.0005	0.0080	0.1280	0.0020	0.0018	Bal.

Table 3 Helium production for zircaloy cladding in Light-Water Reactor

Name	Reactor Type	Fuel Specific Power (kw/kg UO <sub>2</sub> )	Burn-up final average (MWD/Tu)	Fast neutron <sup>13</sup> flux (<math>10^{14}</math>(>1MeV))	Fast neutron fluence (<math>10^{21}</math>nvt)	Helium Concentration (ppm)
JPDR - II	BWR	18.8	10300	8.6	4.0	1.1
Fukushima - I	BWR	15.5	21500	13	16.0	4.4
Mihama - II	PWR	25.8	27100	7	6.3	1.8

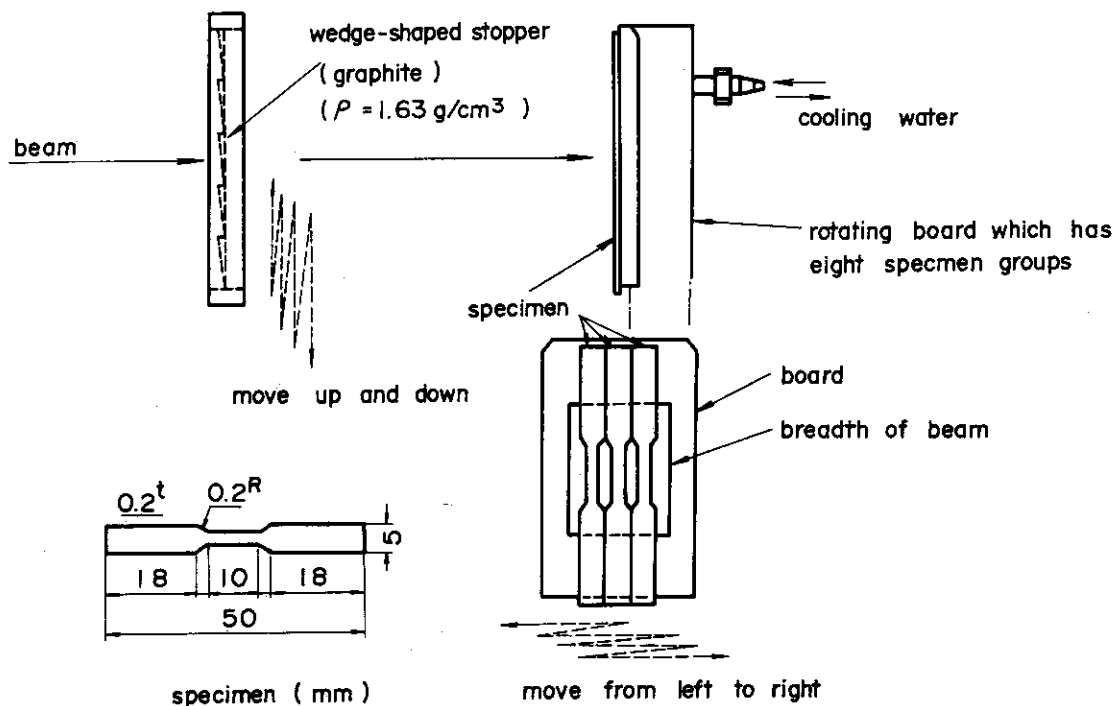


Fig.1 Schematic diagram of a cyclotron bombardment.

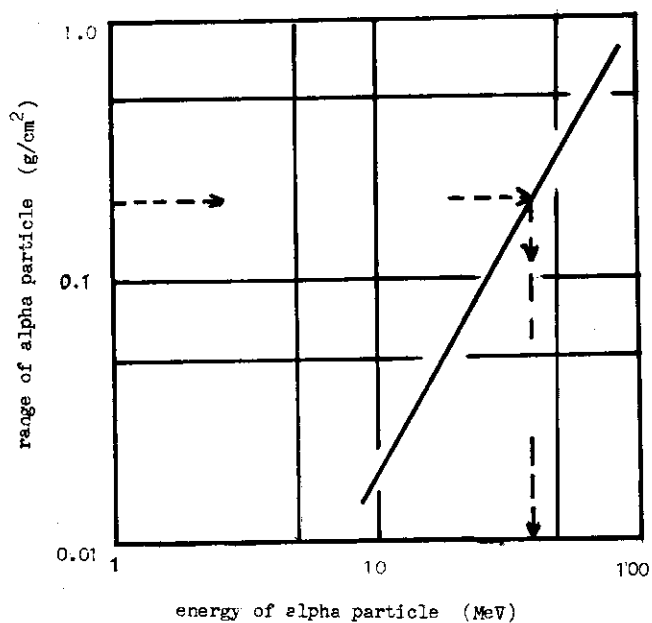


Fig.2 Variation of range with energy of alpha particle (8)

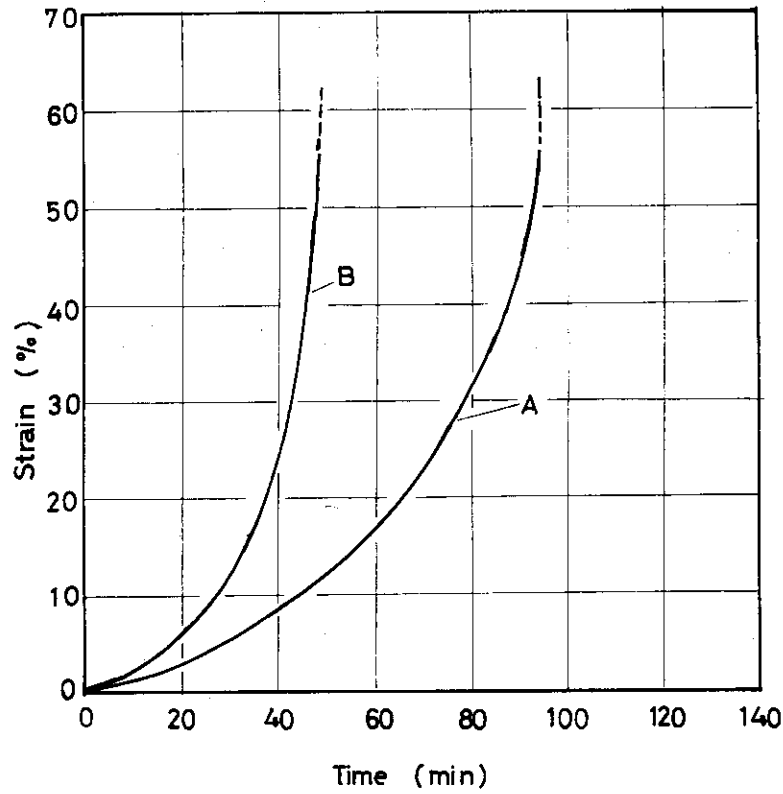


Fig.3 Strain - Time curves for Zircaloy-4 at 800°C

A; non-injected, B;  $5 \times 10^{-6}$  atomic fraction He

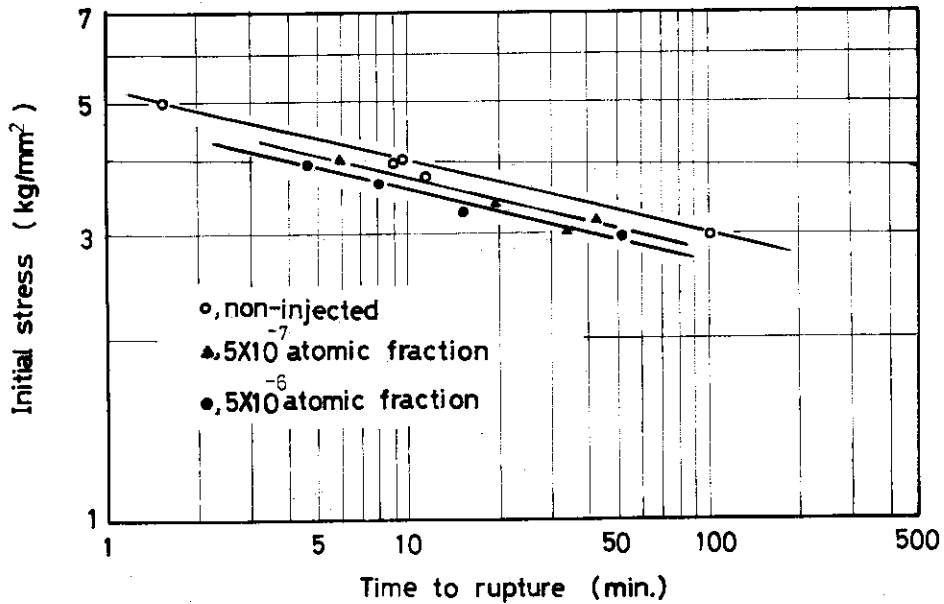


Fig.4 Variation of rupture life with stress for helium-injected Zircaloy-4 at 800°C

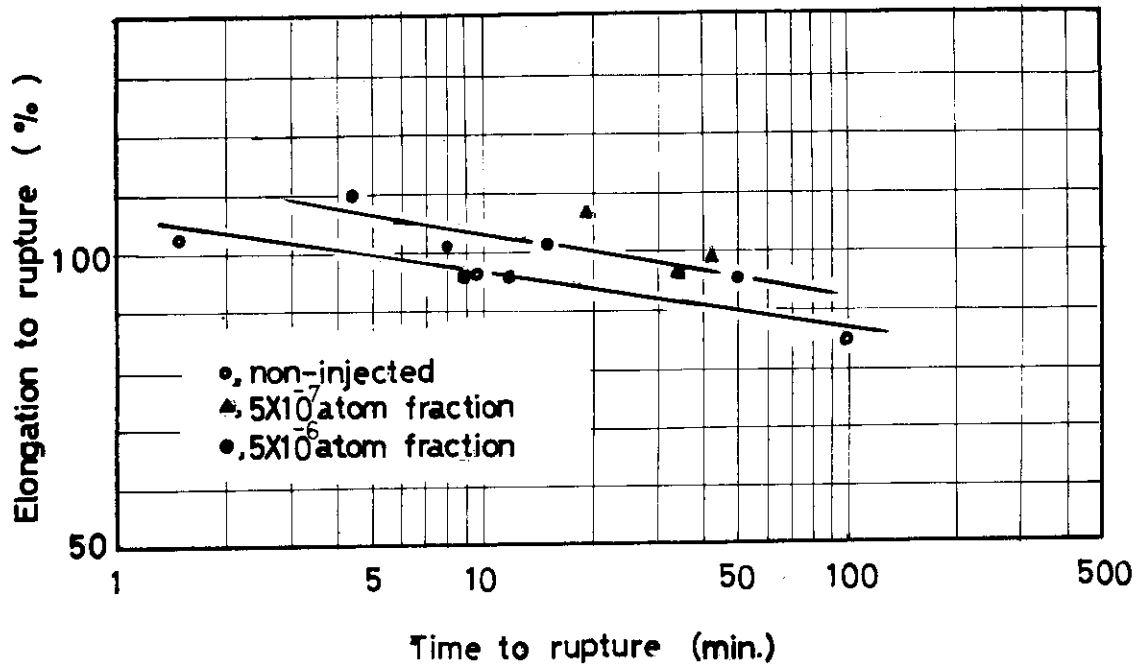


Fig.5 Variation of rupture elongation with rupture life for helium-injected Zircaloy-4 at 800°C

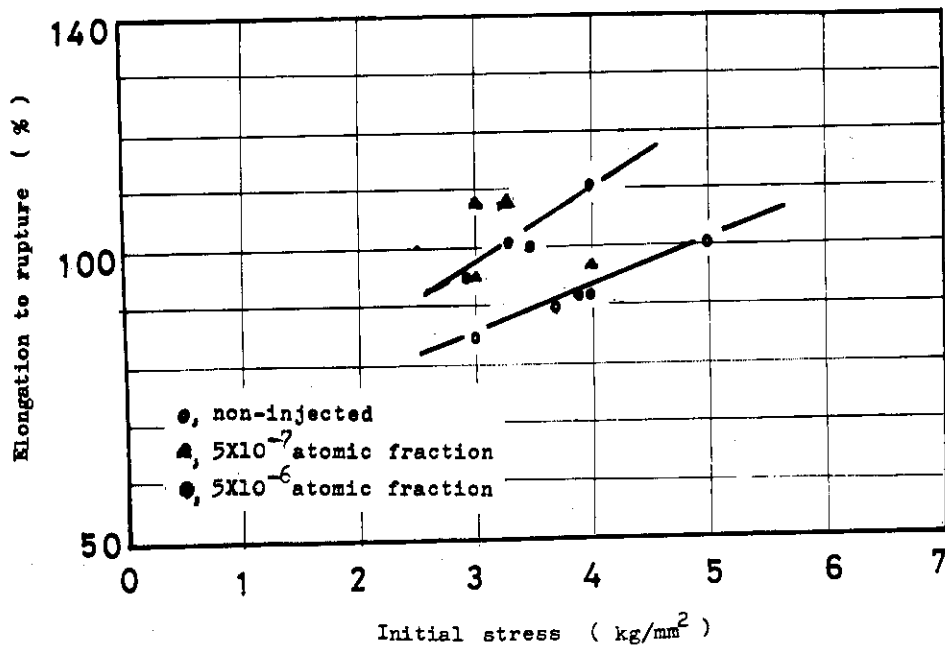


Fig.6 Variation of rupture elongation with initial stress for helium-injected Zircaloy-4 at 800°C

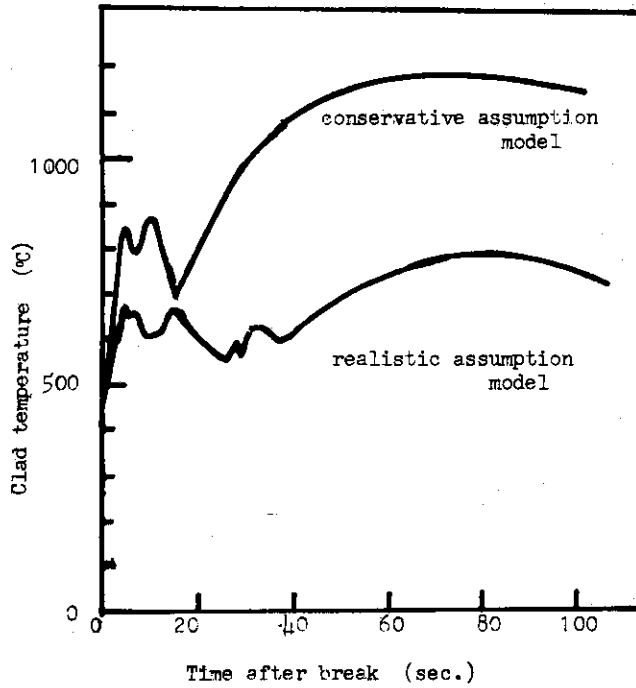


Fig.7 Comparison of FWR clad temperatures during a postulated loss of coolant event (WASH-1250)

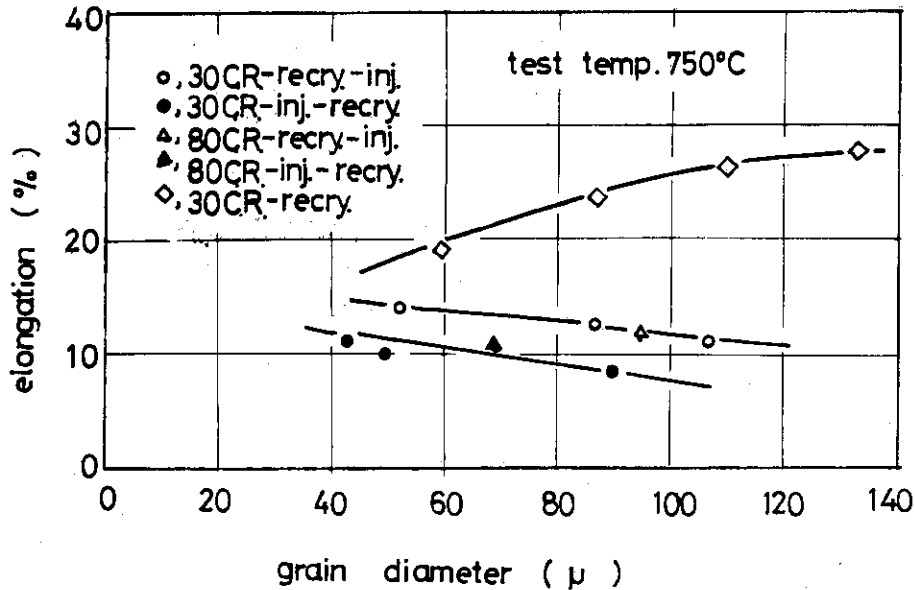


Fig.8 The effect of grain size on the tensile ductility for each metallurgical history of AISI type 316 austenitic steel tested at 750 °C.

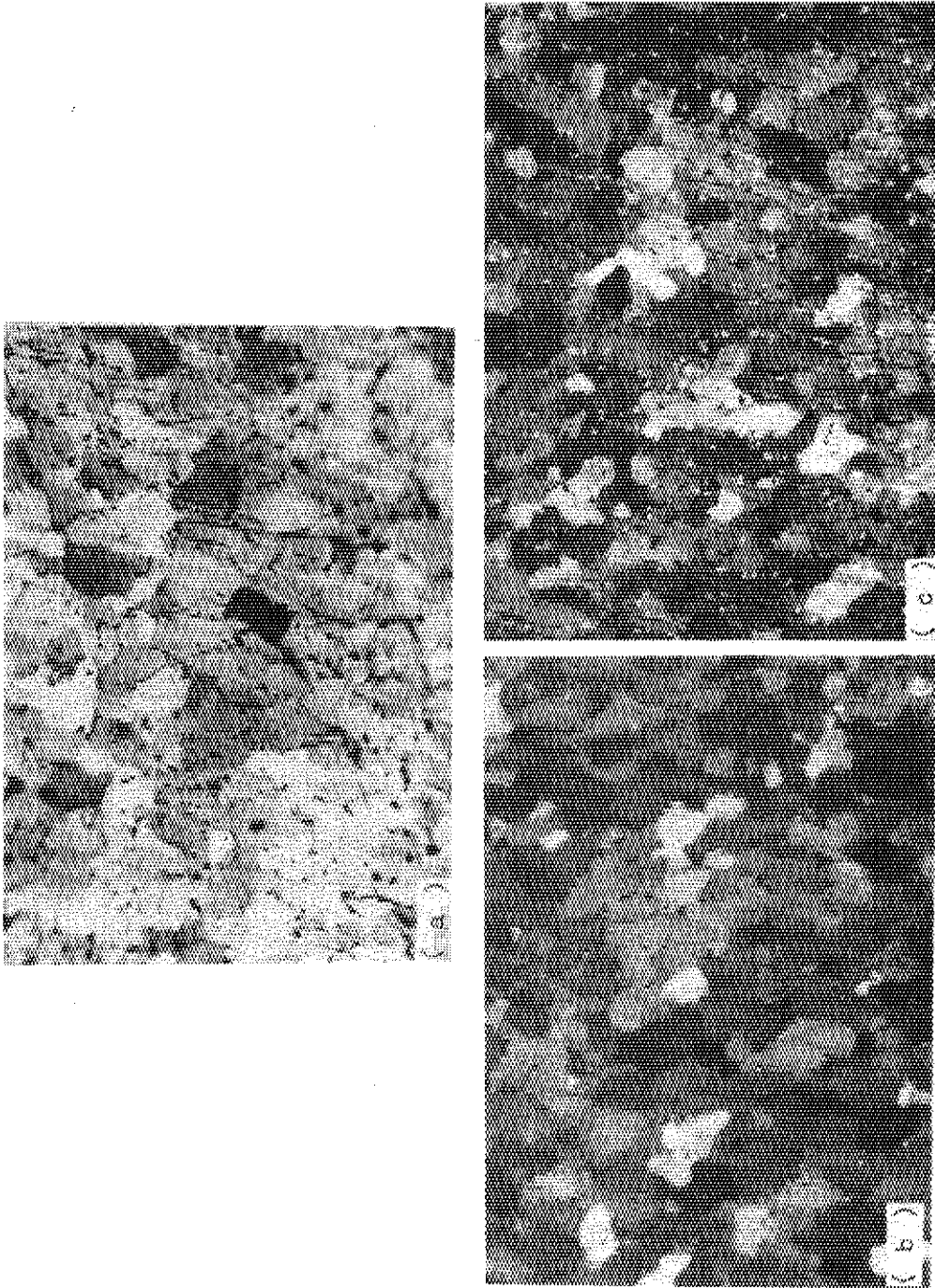


Photo. 1 Surface near fracture of stress-ruptured Zircaloy-4 at 800°C  
( a ) ; non-injected ( b ) ;  $5 \times 10^{-6}$  atomic fraction He  
( c ) ;  $5 \times 10^{-7}$  atomic fraction He

## References

- (1) Brassfield H.C., White J.H., Sjudahl L. and Bittel J.T. : GEMP-482 (1968)
- (2) Juenkee E.F., and White : GEMP-731 (1970)
- (3) Hobson D.O., Osborne M.F. and Parker G.W. : Nucl.Technol., 11, 479 (1971)
- (4) Higgins P.R.B. and Roberts A.C. : Nature, 206, 1249 (1965)
- (5) Alter H. and Weber C.E. : J.Nucl.Mater., 47, 6B (1965)
- (6) Furuta T., Ogawa Y. and Nagasaki R. : J.Iron Steel Inst. Japan, 58, 1117  
(1972)
- (7) Furuta T., Kawasaki S. and Nagasaki R. : J.Nucl.Mater., 47, 65 (1973)
- (8) Hishinuma A., Kawasaki S., Nagasaki R. and Kato T. : JAERI-memo 4223 (1970)
- (9) Furuta T., Kawasaki S., Nagasaki R. and Kato T. : JAERI-memo 5257 (1973)
- (10) Garr K.R., Kramer D. and Rhodes C.G. : Met.Trans., 2, 269 (1971)
- (11) King R.T. : "The Use of Cyclotron in Chemistry, Metallurgy and Biology",  
Butterworths, 294 (1970)
- (12) Howe L.M. : AECL-1024 (1960)
- (13) Howe L.M. and Thomas W.R. : J.Nucl.Mater., 2, 248 (1960)
- (14) Birss I.R. : J.Nucl.Mater., 34, 241 (1970)
- (15) Murray G.T., Kuzuee H. and Klints V. : J.Nucl.Mater., 15, 140 (1965)
- (16) Stiegler J.O. and Weir J.R.Jr. : "Ductility", Am.Soc.Metals, 311 (1968)
- (17) Macoy H.E. and Weir J.R. : "Irradiation Effects on Structural Alloys  
in Thermal and Fast Reactors", ASTM STP 457,  
290 (1968)
- (18) Krammer D. : AI-AEC-12993 (1971)
- (19) Santhanam A.T. : CONF-731114-14 (1973)
- (20) Rich J.B., Walters G.P. and Barnes R.S. : J.Nucl.Mater., 4, 287 (1961)
- (21) Furuta T. and Kawasaki S. : J.Nucl.Mater., 47, 102 (1973)
- (22) Furuta T. and Kawasaki S. : J.Nucl.Mater., 50, 275 (1974)