

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials : 502-1 Nuclear Materials, Degradation, Radiation Effects, and Related Technology

📅 Fri. Sep 8, 2023 10:55 AM - 12:00 PM JST | Fri. Sep 8, 2023 1:55 AM - 3:00 AM UTC | 🏢 Room A 1B
Bildg.1F IB013

[3A06-09] Fuel Cladding Materials 2

Chair:Hiroaki ABE(UTokyo)

10:55 AM - 11:10 AM JST | 1:55 AM - 2:10 AM UTC

[3A06] The effect of applied tensile stress on microstructure evolution under high dose ion irradiation in Zry-2

*Luwei XUE¹, Hideo Watanabe¹ (1. KYUSHU UNIVERSITY)

11:10 AM - 11:25 AM JST | 2:10 AM - 2:25 AM UTC

[3A07] Hydrogen absorption of Zircaloy-2 oxide layer before and after kinetic transition

*Rin Suzuki¹, Kana Suzuki¹, Kan Sakamoto², Masaki Aomi³, Katsuhito Takahashi⁴, Ikuji Takagi¹ (1. Kyoto Univ., 2. NFD, 3. GNF-J, 4. Hitachi)

11:25 AM - 11:40 AM JST | 2:25 AM - 2:40 AM UTC

[3A08] R&D for Introducing Silicon Carbide Materials to Safety Improvement of BWR's Core

(10) Joint Strength Evaluation of End-plug Joints in SiC Tubes at a Simulated Severe Accident (3)

*Ryo Ishibashi¹, Kazuma Hirosaka¹, Masatoshi Shibata¹, Masana Sasaki¹, Yoshiyuki Nemoto² (1. HGNE, 2. JAEA)

11:40 AM - 11:55 AM JST | 2:40 AM - 2:55 AM UTC

[3A09] Dissolution of FeCrAl in nitric acid and its impact on vitrification process

*Kazuyoshi Uruga¹, Tsuyoshi Murakami¹ (1. CRIEPI)

11:55 AM - 12:00 PM JST | 2:55 AM - 3:00 AM UTC

Time reserved for Chair

The effect of applied tensile stress on microstructure evolution under high dose ion irradiation in Zry-2

*Luwei XUE¹, Hideo WATANABE²

¹Interdisciplinary Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu Univ.,

²Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu Univ.

Abstract: To understand the degradation behavior of Zircaloy-2 under neutron irradiation, it is useful to elucidate the mechanisms of dislocation loop formation, precipitate dissolution under service environment. At high-dose irradiation level, c-loops nucleate were observed at 400 °C. The dissolution of Fe atoms from Zr (Fe, Cr)₂ precipitates due to irradiation was detected using EDS. However, the effect of stress on dissolution rate of Fe-rich precipitates was minor.

Keywords: zirconium alloy, applied stress, ion irradiation, irradiation effects, energy-dispersive spectroscopy

1. Introduction

Zircaloy-2 serves as the fuel cladding tube closest to the fuel in BWRs. During reactor operation, fuel cladding tubes are subjected to stress due to UO₂ pellet-cladding interactions. Our previous experimental results showed the formation and evolution of a-loops during the initial stages of low dose irradiation. However, substantial challenges arise in effectively managing and maintaining optimal values of temperature and stress for extended durations during high dose irradiation. In this study, we conducted high dose irradiation under applied stress. To understand the behavior of material, EDS analysis and observation of microstructural changes were conducted on samples after different ion irradiation conditions.

2. Experimental

Zircaloy-2 was used with an alloy composition of 1.38 Sn, 0.15 Fe, 0.09 Cr, and 0.05 Ni in wt.%. The specimens were annealed at 630 °C for 2 h, followed by air cooling and then irradiated with 3.2 MeV Ni³⁺ ion at 300 °C and 400 °C under applied stress. The temperature and stress recording during irradiation at 400 °C are shown in Figure 1. During the irradiation, applied stress was induced nearly parallel to c plane. Thin foils for TEM were prepared with FIB to observe the microstructure after the irradiation. The samples were milling by a low-energy Ar ion at 1.5-3.0 kV to minimize the damage of FIB. The dissolution of precipitates was analyzed using a spherical aberration (Cs)-corrected STEM combined with EDS.

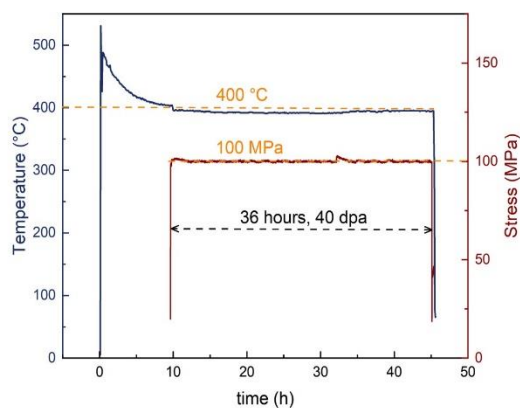


Fig.1 Temperature and stress recording during the high dose irradiation

3. Conclusion

TEM observation indicate the nucleation of c-loops both in the presence and absence of applied stress at 400°C. Additionally, the dissolution of Fe atoms from Zr (Fe,Cr)₂ precipitates due to irradiation was detected with EDS. However, the influence of stress on the dissolution of Fe-rich precipitates was found to be minimal. It is necessary to apply higher stress at 400°C to determine the impact of stress on the dissolution process.

遷移前後における Zircaloy-2 酸化膜の水素吸収

Hydrogen absorption of Zircaloy-2 oxide layer before and after kinetic transition

*鈴木 凜¹, 鈴木 華那¹, 坂本 寛², 青見 雅樹³, 高橋 克仁⁴, 高木 郁二¹

¹京都大学, ²NFD, ³GNF-J, ⁴日立製作所

Zircaloy-2 の表面酸化膜内への水素吸収挙動を炉外試験により調べた。試料は水蒸気中でオートクレーブ処理し腐食酸化させた。遷移後は重水素の吸収速度が著しく増加することが分かり、様々な環境で重水素を放出させた結果、酸化膜表面における交換反応が放出を支配していることが示唆された。

キーワード：ジルコニウム合金、酸化膜、水素吸収、遷移

1. 緒言

ジルコニウム合金酸化に特徴的な遷移現象に着目し、遷移前後における酸化膜の重水素吸収挙動を調べた。また、様々な環境での重水素放出挙動から、酸化膜内での水素の化学形態を検討した。

2. 実験方法

板状の Zircaloy-2 試料を 400 °C、6 MPa の軽水水蒸気中でオートクレーブ処理し、表面に酸化膜を形成させた。次に、この試料を重水水蒸気中で追加腐食して酸化膜内に重水素を導入し、重水素の深さ方向の濃度分布を D(³He,p)⁴He の反応を利用した核反応分析 (NRA) により測定した。

3. 結果・考察

遷移は酸化開始 610–790 時間後に確認された。遷移の有無は、腐食速度の変化から確認できた。図 1 に、例として遷移前の酸化膜厚 2.7 μm の試料と、遷移後の酸化膜厚 3.1 μm の試料を 1 時間重水腐食したときの酸化膜の重水深さ方向分布を示す。図から、遷移前では重水素は深さ 1 μm 程度までしか侵入しなかったが、遷移後では酸化膜境界の 3.1 μm 近くまで重水素が侵入していることが分かる。このときの重水腐食時間は 1 時間であるが、10 分の腐食時間でも重水素は境界まで侵入しており、酸化膜内の重水素の移動が十分速いことがわかった。次に、遷移後の酸化膜に重水素を導入した試料を異なる環境で加熱したところ、図 2 に示すように、真空中や乾燥空気中では重水素は有意に残るが、水蒸気中や大気中ではほとんど残らず、大半が放出されたことが分かった。これらの結果から、重水素の放出は酸化膜中の移動が律速ではなく、表面における交換反応が支配的であること、酸化膜内の重水素は水と容易に交換する化学形態で存在していることが示唆された。発表では、重水酸化量に対応する重水素面密度と、実験で得られた重水素面密度の比である重水素の吸収率などについても報告する。

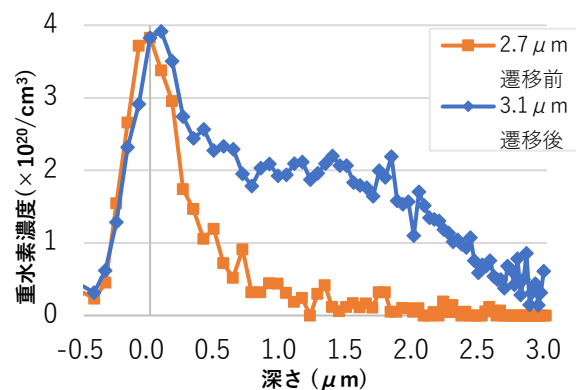


図1 遷移前後での酸化膜の重水素深さ方向分布

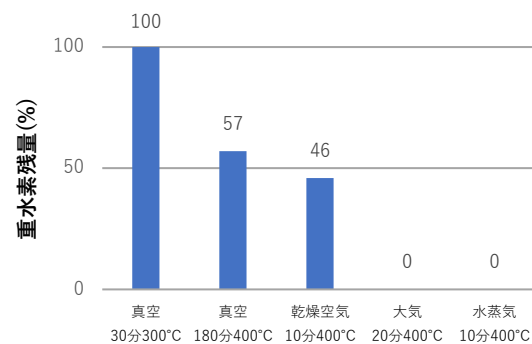


図2 放出環境と重水素残量の比較

*Rin Suzuki¹, Kana Suzuki¹, Kan Sakamoto², Masaki Aomi³, Katsuhito Takahashi⁴ and Ikuji Takagi¹

¹Kyoto Univ., ²NFD, ³GNF-J, ⁴Hitachi Ltd.

BWR 炉心安全性向上のための SiC 材料適用に向けた研究開発

(10) 事故時を想定した SiC 円管端栓接合部の強度評価 (3)

R&D for Introducing Silicon Carbide Materials to Safety Improvement of BWR's Core

(10) Joint Strength Evaluation of End-plug Joints in SiC Tubes at a Simulated Severe Accident (3)

*石橋 良¹, 廣坂 和馬¹, 柴田 昌利¹, 佐々木 政名¹, 根本 義之²

¹ 日立 GE ニュークリア・エナジー, ² 日本原子力研究開発機構

炭化ケイ素 (SiC) 製燃料被覆管には事故時に高い耐熱性を期待している。強度上の課題となりうる端栓接合部に対して事故時を想定した高温荷重に対する健全性の評価を目的に、解析により荷重負荷時の端栓接合部での変形挙動に及ぼす製造時における詳細構造寸法のばらつきの影響を検討した。

キーワード：事故耐性燃料，炭化ケイ素，端栓接合，過酷事故，高温強度

1. 背景と目的

従来の Zr 合金と比べて水素発生速度および水蒸気酸化の反応熱が低い SiC は事故耐性燃料材料として有望だが、SiC を燃料被覆管に実際に適用するにあたって多くの課題がある。その一つが端栓接合である^[1]。燃料棒の端栓接合部には、気密性、強度などが要求され、溶接のできない SiC 被覆管に対して様々な方法が検討されている。その中で、少なくとも最終接合部は局所的な加熱プロセスが必要であることから、ロウ付け法を検討してきた^[2]。耐熱性の優れる SiC 被覆管を適用して燃料棒の事故耐性を向上させるにあたって、事故時における温度と内圧の上昇に対する端栓接合部の健全性も重要である。そこで、事故時を想定した端栓接合部の強度評価を目的に、試作した接合試験片に対して高温引張試験により少なくとも軸方向の荷重に対して強度が十分であることを確認するとともに、事故時を想定した内圧負荷により端栓接合部の健全性を評価する試験方法および端栓接合部の変形挙動解析モデルの検討を進めてきた^[3,4]。本研究では、端栓接合部の変形挙動解析モデルを用いて、荷重負荷時の端栓接合部での変形挙動に及ぼす製造時に生じる詳細構造寸法のばらつきの影響を検討した。

2. 検討方法

2-1. 端栓接合部と製造時に生じる詳細構造寸法の不確かさ

端栓接合部は、被覆管 (円管) 端部に端栓の一部 (胴部) が差し込まれ、円管内面と端栓胴部外面とが凹凸構造により嵌め合い、その間隙が接合材料により充填された構造である。接合部の円管内面と端栓胴部外面との間隔、および、その凹凸構造の嵌め合い位置は、加工時の精度および接合時の位置決めにおいて不確かさを伴う。そこで、これらを対象に接合部の強度に及ぼす影響を確認することにした。

2-2. 変形解析

端栓接合部に対する高温引張試験では、円管内面と端栓胴部外面との間の滑りが原因と推定される荷重と変位の変化が確認された^[3]。この滑りの起点として接合材料の塑性に着目し、接合部の詳細構造に対し有限要素法による静解析を用いて、接合材料領域全体が降伏条件に至った時を接合部の滑りが開始する指標とした解析モデルを構築した^[4]。この解析モデルを用いて、接合部の詳細構造寸法の変化および内圧負荷に対する評価を行った。

3. 結果と考察

接合部の滑りが開始する荷重は、接合部の円管内面と端栓胴部外面との間隔が大きくなると低下するが、間隙に充填された接合材料の量が多くなると上昇した。接合材料を十分に充填することによって、想定される加工精度の範囲で間隔が大きくなっても、事故時の内外圧差 8 MPa 程度に対応する荷重よりも高い強度を得る結果が得られた。また、円管内面と端栓胴部外面との凹凸構造の嵌め合う位置が所定の位置から変化しても、接合部の滑りが開始する荷重は大きく低下することがない結果が得られた。これらのことから、接合材料を十分に充填すれば、製造時に生じる詳細構造寸法のばらつきの影響を受けずに、接合部の健全性を維持するのに必要な強度の設計が可能であると考えられる。

備考：本研究発表は、経済産業省資源エネルギー庁の令和 4 年度原子力の安全性向上に資する技術開発費補助金事業 (沸騰水型原子炉に用いる炭化珪素及び改良ステンレス鋼燃料被覆管の開発事業) の成果である。

参考文献

- [1] Y. Katoh, K. A. Terrani and L. L. Snead, ORNL/TM-2014/210, (2014).
- [2] 石橋, 池側, 柴田, 佐々木, 近藤, 日本原子力学会 2020 年秋の大会予稿集, 1E02, (2020).
- [3] 石橋, 廣坂, 山名, 柴田, 佐々木, 近藤, 日本原子力学会 2021 年秋の大会予稿集, 2D05, (2021).
- [4] 石橋, 廣坂, 柴田, 佐々木, 土屋, 根本, 日本原子力学会 2022 年秋の大会予稿集, 2D01, (2022).

*Ryo Ishibashi¹, Kazuma Hirosaka¹, Masatoshi Shibata¹, Masana Sasaki¹ and Yoshiyuki Nemoto²

¹Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd., ²Japan Atomic Energy Agency

FeCrAl 合金の硝酸溶解性およびガラス固化への影響評価

Dissolution of FeCrAl in nitric acid and its impact on vitrification process

*宇留賀 和義, 村上 毅

電力中央研究所

事故耐性燃料として検討されている FeCrAl 被覆管の再処理影響を評価するため, Cr 含有量を変化させた FeCrAl 合金の硝酸への溶解性および合金溶解時のガラス固化への影響を調べた。

キーワード: 事故耐性燃料, 再処理, 高レベル放射性廃液, ガラス固化, イエローフェーズ

1. 緒言

過酷事故の影響緩和のため, 改良ステンレス鋼を被覆管として用いることが検討されている。本研究では, 同被覆管が使用された場合の再処理への影響を調べるため, 模擬の材料として Fe, Cr, Al から成る 3 元系合金を使用し, 硝酸への溶解試験を行った。また, 再処理工程のうち, これら元素が高レベル放射性廃液に含まれた場合のガラス固化への影響について着目し, ガラス固化体の浸出率および Mo-Cr 酸塩系の水溶性 2 次相 (イエローフェーズ: YP) の形成量の観点から評価した。

2. 試験方法

使用した合金は重量比 $\text{Fe}_{95-x}\text{Cr}_x\text{Al}_5$ ($x=9, 12, 15, 22$) である。100℃の 3, 6, 9 mol/L 硝酸中で試験片を加熱し, 定期的に硝酸溶液をサンプリングして合金成分の溶出量を分析した。ガラス固化試験では, Fe 濃度を変化させた模擬の高レベル廃液とホウケイ酸ガラスを混合し, アルミナるつぼで 1150℃-10min 加熱した試料を粉碎後, 再度 1150℃-1h 加熱して均質な固化体試料を得た。この試料について PCT 試験を行い, 浸出率を評価した。また, Cr 濃度を変化させた模擬高レベル廃液とホウケイ酸ガラスの混合物を 1000℃まで 90min で昇温後 15min 加熱保持した試料を作製した。試料に含まれる YP 量を評価するため, 試料を粉碎し, 水に浸漬して溶出成分の濃度を定量した。

3. 試験結果

FeCrAl 合金の硝酸溶解速度を調べた結果, Cr 含有割合が 12wt% 以下では低硝酸濃度において溶解速度が増加した (図 1)。このような傾向は Tanno らの結果ともよく一致した。この場合の溶解は調和溶解であり, 結晶粒界から溶解が進行し, 孔食腐食も見られた。一方, Cr 割合が 15wt% 以上では酸濃度の増加に伴い溶解速度が増加し, Al が優先的に溶解した。これらの結果, 特に低 Cr 合金では硝酸溶液中の Fe/FP や Cr/Mo が有意な値となる場合も想定し得ることがわかった。

Fe/FP 比率に対する模擬ガラス固化体の規格化浸出率 (NL) を調べた結果 (図 2), Fe/FP の増加に伴い浸出率はわずかに増加傾向であったが, 顕著ではなかった。Cr/FP に対する水溶性 Mo および Cr の形成量 (すなわち YP 量) を調べた結果 (図 3), Cr/FP の増加に伴って Cr だけでなく, 投入量が一定であった Mo についても水溶性成分量が増加した。このことから, Cr 含有量の多い高レベル廃液のガラス固化では YP の形成に注意する必要があることがわかった。

1) Tanno et al., J. Nucl. Mater., 494, 219-226, (2017).

* Kazuyoshi Uruga, Tsuyoshi Murakami

Central Research Institute of Electric Power Industry

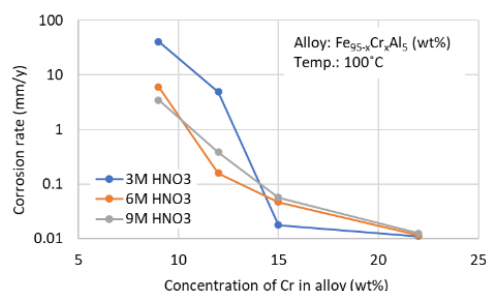


図 1 溶解速度の Cr 濃度依存性

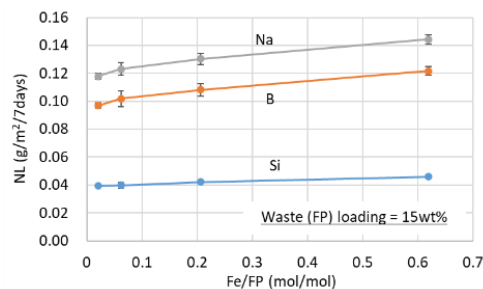


図 2 Fe 添加量とガラス固化体浸出率の関係

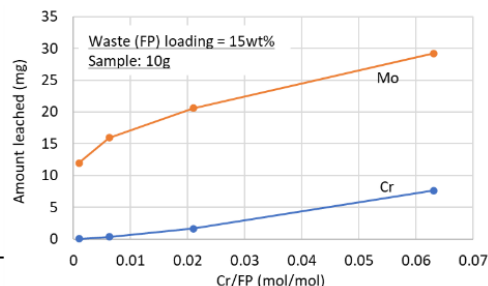


図 3 Cr 添加量と YP 形成量の関係