高速炉用 SUS316鋼燃料被覆管のスエリング挙動 に及ぼす照射温度変化の影響

伊 藤 正 彦* 小野瀬 庄 二*

J. Japan Inst. Metals, Vol. 53, No. 11 (1989), pp. 1184-1185

Effects of Irradiation Temperature Change on Swelling Behaviour
of SUS316 Fast Reactor Fuel Cladding

Masahiko Itoh* and Shoji Onose*

Keywords: fast reactor irradiation, post-irradiation examination, SUS316, cavity, swelling, critical radius, helium bubble, transmission electron microscope

オーステナイト系ステンレス鋼は高速増殖炉の炉心材料として注目され、実用化に向けて様々な研究が行われてきた⁽¹⁾⁻⁽³⁾。中でも SUS316 ステンレス鋼は既存の高速炉の燃料被覆管やラッパ管の材料として実用に供されている。この場合、材料の照射による変形が燃料集合体の寿命を決める因子となっている。この変形の主たる原因はスエリングと照射クリープである。従って、これらの挙動を評価し、変形の律速因子を明確化することは炉心材料の開発にとって避けて通ることの出来ない課題となっている。スエリング挙動と照射クリープ挙動はとくに照射温度に敏感な特性であり、照射温度の効果に対する知見を得ることは重要なことである。これまで、照射量や照射温度をパラメータとした様々な照射試験が実施され多くの知見が得られている。

一方、炉内使用時の燃料被覆管では、これまでに実施された等温照射試験の場合と異なり、使用期間中に照射温度の変化が生じる。すなわち、その使用初期に高く、燃料の燃焼が進む使用末期で温度が低下する。従って、燃料被覆管のスエリング挙動や照射クリープ挙動に対する温度変化の効果を解明することは燃料被覆管や燃料集合体の設計上重要なことである。これまで供用中の燃料被覆管の照射温度変化のスエリング挙動への影響を調べた照射試験研究は少なく⁽⁴⁾⁽⁵⁾、その挙動は必ずしも明らかにされていない。このような観点から、最大 95 dpa の高照射量まで照射した燃料被覆管について、照射中の照射温度低下の効果を調べ新しい知見を得たので報告する。

本研究に用いた試料は 20% の冷間加工を施した SUS316 ステンレス鋼 (18Cr-14Ni-2.5Mo-1.7Mn-0.06C-0.5Si-0.03P-0.002B) 製の燃料被覆管である。照射はフランスの高速原型炉 Phenix 炉を利用して行った。照射温度は 670 K ~ 920 K の範囲で、照射量は最大 95 dpa であった。照射後の被覆管より透過型電子顕微鏡試料を採取した⁽⁶⁾。組織の観察は 200 kV 透過走査型電子顕微鏡により加速電圧 200 kV で行い、スエリングの評価および転位密度の測定を実施した。

キャビティの観察より求めた SUS316 鋼のスエリングの照射量依存性を Fig. 1 に示す。図中×印は照射期間中一定の温度で照射され、他(○, □, △印)は照射初期に温度が高く、照射末期で低くなる。図中には照射初期の温度と照射末期の温度を示した。照射量が 50 dpa を超える試料のスエリングは被覆管の初期温度が 870 K 以上の場合が最大で、照射初期温度が 750 K 以下の場合に最小となった。なお、この材料のスエリングのピーク温度は約 850 K であった⁽⁷⁾。50~65 dpa の等温照射試料について、キャビティの分布状態を調べた結果、照射温度が 870 K

Fig. 1 Dose dependance of swelling for SUS316 stainless steel.

の試料では He 気泡とボイドが混在していることが判明し、920 K で照射された試料では He 気泡のみが形成されていた。この状態を Fig. 2(a), (b) に示す。この図には 890 (初期) ~ 800 K (末期) で 85 dpa まで照射された試料のキャビティの分布状態(c) もあわせて示す。この試料(Fig. 2(c)) ではボイドが支配的で 870 K で照射した試料から予想されたスエリングより遙かに大きなスエリングを示した。これら試料のキャビティの分布状況を Fig. 3 に示す。図中で試料 a の He 気泡の最大径は 16 nm で、試料 b の He 気泡の最大径は約 20 nm であった。

照射により生成したキャビティは照射初期に He 気泡として現れ、この気泡がある大きさ、すなわち臨界径を越えるとボイドに変わり急激に成長する⁽⁶⁾⁻⁽⁹⁾。このキャビティの成長速度は次式で表される⁽¹⁰⁾。

$$dr_c/dt = (\Omega/r_c) [Z\Omega D_v C_v - Z\Omega D_i C_i - Z\Omega D_c C_c(r_c)]$$

ここで、 r_c はキャビティの半径、 Ω は原子容、 $Z\Omega D_{v,i}$ は空孔または格子間原子のキャビティへの捕獲確率、 D_v は空孔または格子間原子の拡散係数、 $C_v(r_c)$ はキャビティ近傍の平衡空孔濃度である。この式より、 $dr_c/dt=0$ として、本研究での臨界半径を求めた結果を Fig. 4 に示す。ここで用いたパラメータの値を Table 1⁽¹¹⁾ に示す。また、損傷率は $G=2 \times 10^{-6}$ dpa/s、転位密度は電顕観察に基づき 720 K で 9×10^{14} m/m³、870 K で 2×10^{14} m/m³ とした。このようにして計算から求めた臨界半径は 820 K 以上の温度で急激に大きくなることが明らかである。照射温度が 920 K の場合、臨界半径が 10 nm を越えるため、試料 b に形成された He 気泡はボイドに成長するに至らなかったため、He 気泡のみが観察された。照射温度が 870 K の試料 a では、キャビティはバイモダル分布であり、He 気

* 動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター (O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, O-arai, Ibaraki)

Fig. 2 Voids and bubbles observed in 20% cold-worked SUS316 stainless steel irradiated in Phenix.

Fig. 3 Cavity size distribution observed in specimen irradiated at a temperature of (a) 870 K and 920 K.

泡の最大半径は 8 nm で、これは臨界半径と一致する。一方、試料 c の場合、照射初期の温度が 890 K と高く、その温度は照射とともに低下し、照射末期で 800 K となる。この試料では試料 a や b から推定されるように、照射の初期では、照射とともに He 気泡が成長し、照射初期の温度の平衡した大きさとなる。照射温度は照射とともに低下するため、初期に成長した He 気泡は温度の低下によって、臨界半径を越えることになる。このため、初期照射温度から予測される照射量より低い照射量で He 気泡はポイドに成長し、スエリングが大きくなったと推定される。これに対して、照射初期温度が 750 K 以下の試料の場合、照射温度の変化による臨界半径の大きさの変化は小さいため、照射過程における温度変化の寄与は小さく、予測されるスエリング (Fig. 2 中×印) の外挿上にあったと推定される。等温照射の場合と比較して、ポイド成長の臨界半径が極端に小さくなるような照射温度の低下は SUS316 ステンレス鋼燃料被覆管のスエリングを増大させることが明らかであり、照射によるスエリングを精度良く評価する場合、照射過程における温度変化の影響を考慮する必要がある。

文 献

- (1) K. Uematsu, T. Kodama, Y. Ishida, K. Suzuki and M. Koyama: *Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials*, M. L. Bleiberg and J. W. Bennett, Eds., Amer. Inst. Mech. Eng., (1977), 571.
- (2) D. R. Harries, J. Standing, W. D. Barns and G. J. Lloyd: *Effects of Radiation on Materials*, 11th Conference, ASTM STP 782, H. R. Brager and J. S. Perrin, Eds., (1982), 1197.
- (3) D. J. Sherwood, A. L. Ward and G. W. Johnson: *Nucl. Tech.*, **78** (1987), 83.
- (4) F. A. Garner, E. R. Gilbert, D. S. Gelles and J. P. Foster: *Effects of Radiation on Materials*, 10th Conference, ASTM STP 725, D. Kramer, H. R. Brager and J. S. Perrin, Eds., (1981), 698.
- (5) D. J. Mazey, T. M. Williams and D. E. J. Bolster: *J. Nucl. Mater.*, **154** (1988), 186.
- (6) M. Itoh, S. Onose and S. Yuhara: *Radiation Induced Changes in Microstructure*, 13th International Symposium (Part I), ASTM STP 955, F. A. Garner, N. H. Packen and A. S. Kumer, Eds., (1987), 114.
- (7) 伊藤正彦, 小野瀬庄二, 柚原俊一: 日本金属学会誌, **49** (1985), 389.
- (8) L. K. Mansur and W. A. Coghlan: *J. Nucl. Mater.*, **119** (1983), 1.
- (9) W. A. Coghlan and L. K. Mansur: *J. Nucl. Mater.*, **122&123** (1984), 495.
- (10) B. B. Glasgow and W. G. Wolfer: *J. Nucl. Mater.*, **122&123** (1984), 503.

(1989年 7 月24日受理)

Table 1 Parameters used for example calculation.

Atomic volume, Ω	$1.09 \times 10^{-29} \text{ m}^3$
Surface energy, γ	2.0 J/m^2
Recombination radius, r_0	$4 \times 10^{-6} \text{ m}$
Diffusion pre-exponential, for vacancy, D_v^0	$1.53 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$
for interstitial, D_i^0	$0.1 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$
Migration energy for vacancy, E_v^m	$1.9 \times 10^{-19} \text{ J} (1.2 \text{ eV})$
for interstitial, E_i^m	$0.24 \times 10^{-19} \text{ J} (0.15 \text{ eV})$
Vacancy formation energy, E_v^f	$2.6 \times 10^{-19} \text{ J} (1.6 \text{ eV})$
Sink efficiencies	$Z_i^d = 1.05$ $Z_v^c = Z_i^c = Z_v^d = 1.00$

Fig. 4 Temperature dependance of minimum critical radius for SUS316 stainless steel.