

軽水炉保全高度化のためのモデリング研究

山本 泰功

目次

第1章 序論	
1.1 エネルギー情勢	2
1.2 原子力安全	4
1.3 材料破損メカニズムの展開	7
1.4 被覆管材料破損後の対応	9
1.5 本研究の目的と論文の構成	13
第2章 燃料被覆管酸化挙動の理論解析	
2.1 燃料被覆管の経年劣化	17
2.2 被覆管の酸化反応	18
2.3 評価方法	20
2.3.1 評価プロセスの概要	20
2.3.2 第一原理量子計算	21
2.4 結果・考察	22
2.4.1 結晶構造の最適化	22
2.4.2 空孔形成エネルギーの応力依存性	24
2.4.3 移動エネルギーの応力依存性	27
2.4.4 拡散係数の応力依存性	29
2.4.5 酸化膜成長速度の応力依存性	30
2.5 第2章のまとめ	32
第3章 材料照射損傷モデル	
3.1 炉内材料の照射損傷	36
3.2 照射損傷プロセス	36
3.3 欠陥エネルギー論	38
3.4 ボイド核生成のモンテカルロモデル	40
3.4.1 評価手法	41
3.4.2 ボイド核生成の潜伏期間・潜伏照射量	45
3.4.3 核生成率の評価	47
3.4.4 定常核生成理論との比較	48
3.5 反応速度論モデル	50
3.5.1 欠陥濃度の時間変化	53
3.5.2 転位ループ形成の照射場依存性	57
3.5.3 ボイド形成の照射場依存性	59

3.6 第3章のまとめ	61
第4章 破損燃料管理の有効性の評価	
4.1 燃料リーク問題	64
4.2 方法	65
4.2.1 モデル	65
4.2.2 燃料管理最適化のロジック	69
4.3 結果・考察	70
4.4 第4章のまとめ	75
第5章 総括	
5.1 研究成果のまとめ	78
5.2 材料学と保全学の融合	79
研究業績目録	82
謝辞	91

第1章 序論

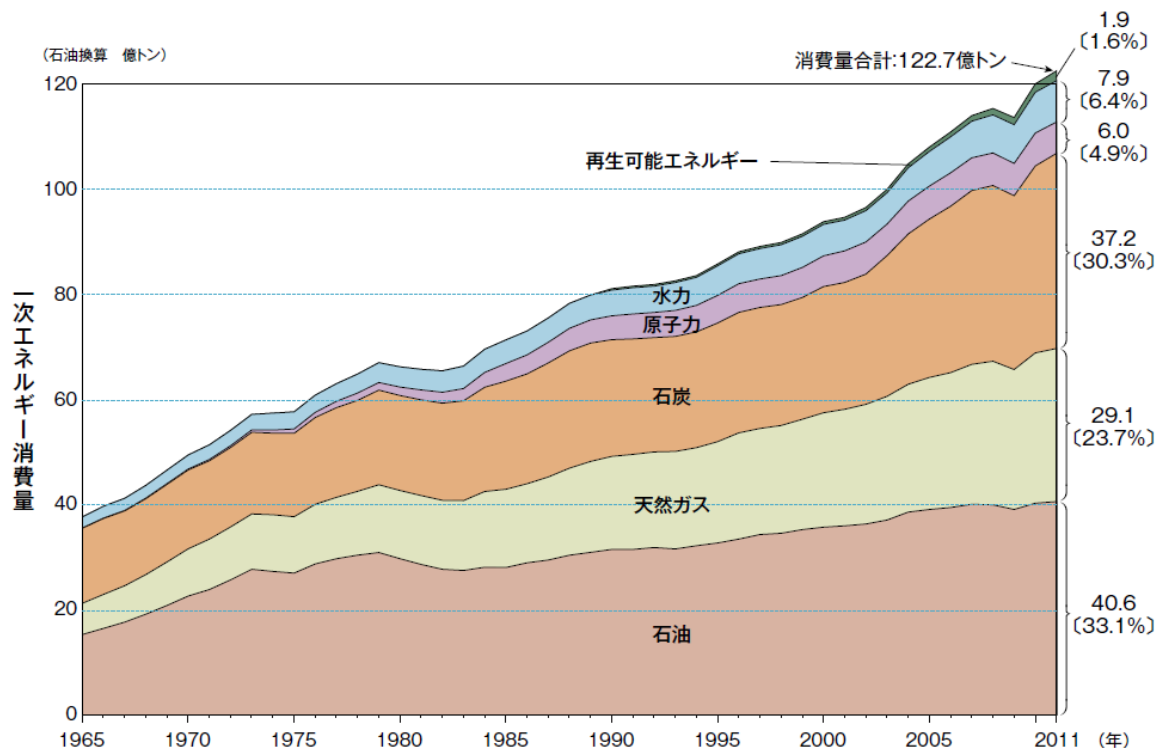
本章では、研究の背景および原子力安全の観点からの本研究の位置付けについて述べた。原子力安全を達成するには、原子炉施設に係るあらゆる段階で深層防護の概念が実装される必要がある。運用段階では、原子炉機器の状態が刻々と変化し、その状況に応じた保全が求められる。原子炉機器の性能を低下させる主要な要因が材料の経年劣化であり、保全の高度化のためには、材料学的な視点が不可欠である。本研究では、材料学的な視点から深層防護の実装につながる知見を取得し、軽水炉保全の高度化について論じることを目的とした。

1.1 エネルギー情勢

世界の一次エネルギー消費量は経済成長と共に増加し続けており、1965年の38億トン(石油換算)から2011年には122.7億トンへと大幅に増加した(図1.1-1)。2009年にはリーマンショックから発した世界的金融危機の影響で一時的に減少したものの、その後増加傾向を取り戻している。今後も人口増加と発展途上国の経済成長等を背景にさらに増加し続けると予想されており、国際エネルギー機関(IAE)によると^[1]、2010年から2035年までに世界の一次エネルギー需要は35%程度増加する見込みである。また、一次エネルギー消費の大部分は化石燃料によって賄われており、2011年時点では全体の87.1%(石油33.1%、石炭30.3%、天然ガス23.7%)を占めている。化石燃料は有限な資源であり、今後も大量消費を続けていけば価格の高騰や燃料の供給不足につながる懸念される。また、発電時に発生するCO₂による気候変動リスクも懸念されている。気候変動に関する政府間パネル(IPCC)の第5次評価報告書では^[2]、「地球温暖化の主な要因が人間活動である可能性は極めて高い(95~100%)」と記されており、地球温暖化を引き起こしている最大の要因はCO₂濃度の増加であると説明している。地球温暖化を含む気候変動リスクは世界規模の問題であると共に問題が深刻化してからでは対処が困難となる可能性があるため、予防原則の観点からもCO₂排出を抑制するために化石燃料への依存度を下げることへの努力が必要である。代替エネルギーとしては、バイオマスやその他の再生可能エネルギーの増加が見込まれているが、2035年までの見通しでは化石燃料への依存度を大きく減らすほどの供給量の増加には至っていない^[1]。一方で、発電コストが安価で優れたエネルギーの安定供給性を有する原子力の需要は中国やインド等の急速な経済成長を遂げる国々を中心に高まっており、2035年には2010年と比較して原子力発電量は全世界で約60%程度増加する見通しである^[1]。このように、世界的には増え続けるエネルギー需要を満たすために、今後も原子力エネルギーは重要なエネルギー源として使用されると考えられる。

我が国では、1973年と1979年の2度の石油危機を経験し、石油代替エネルギーの導入促進にエネルギー政策の重点が置かれてきた。一次エネルギーの石油依存度は1979年度時点では71%を占めていたが、2010年度には40%まで大きく減少しエネルギー源の多様化が進んだ^[3]。特にエネルギーの多様化が著しいのは発電分野で、石油火力の割合は2010年には8%まで減少しており、天然ガス、石炭、原子力の割合が大幅に増加している(図1.1-2)。中でも原子力発電は2010年度時点では国内の発電量全体の29%を占めており、化石燃料の代替エネルギーとして国内の電力の安定供給のために重要な役割を担っていた。しかし、2011年3月11日に発生した東日本大震災における福島第一原子力発電所事故によって原子力発電に対する国民の信頼は大きく揺らぎ、原子力発電を推進してきた我が国のエネルギー政策は見直しを迫られた。民主党政権下では、2012年9月14日に関係閣僚からなるエネルギー・環境会議で「革新的エネルギー・環境戦略」が決められた。そこには、「2030

年代に原発稼働ゼロを可能とするよう、あらゆる政策資源を投入する」と記されており、原発ゼロありきの極端な政策目標が掲げられた。原子力に代わるエネルギーとして短期的には、LNG火力や石炭火力発電所の増設、中長期的には風力、太陽光などの再生可能エネルギーの開発と省エネルギーの推進などが掲げられている。しかし、原子力発電の代替電源と位置付けられている再生可能エネルギーの開発は経済的にも量的にも未知数な部分が大きく、経済規模の大きい我が国のエネルギー需要を満たすことは容易ではない。また、天然ガスや石炭への依存度が高まれば発電時のCO₂排出量増加等による環境面の影響が懸念されるだけでなく、発電単価に占める燃料費の割合が増加することにつながり、エネルギー自給率の低い我が国では貿易収支を悪化させる要因ともなる。2014年3月現在では、政府は国の中長期的なエネルギー政策の方向性を決める「エネルギー基本計画」の原案をまとめた。そこでは原発を重要なベースロード電源と位置付けて再稼働を進め、一定規模を活用していく方針が明記されている。今後も我が国の電力供給を支える重要なエネルギー源として期待されている。エネルギーの安定供給性、発電コスト、発電量当たりのCO₂排出量等多くの面で利点を有する原子力エネルギーを有効に活用していくためにも事故の反省を真摯に受け止め、更なる安全性向上のための努力が求められる。



(注) 四捨五入の関係で合計値が合わない場合がある
 ()内は全体に占める割合

図 1.1-1 世界の一次エネルギー消費量の推移 出典：原子力図面集 2013 1-1-7

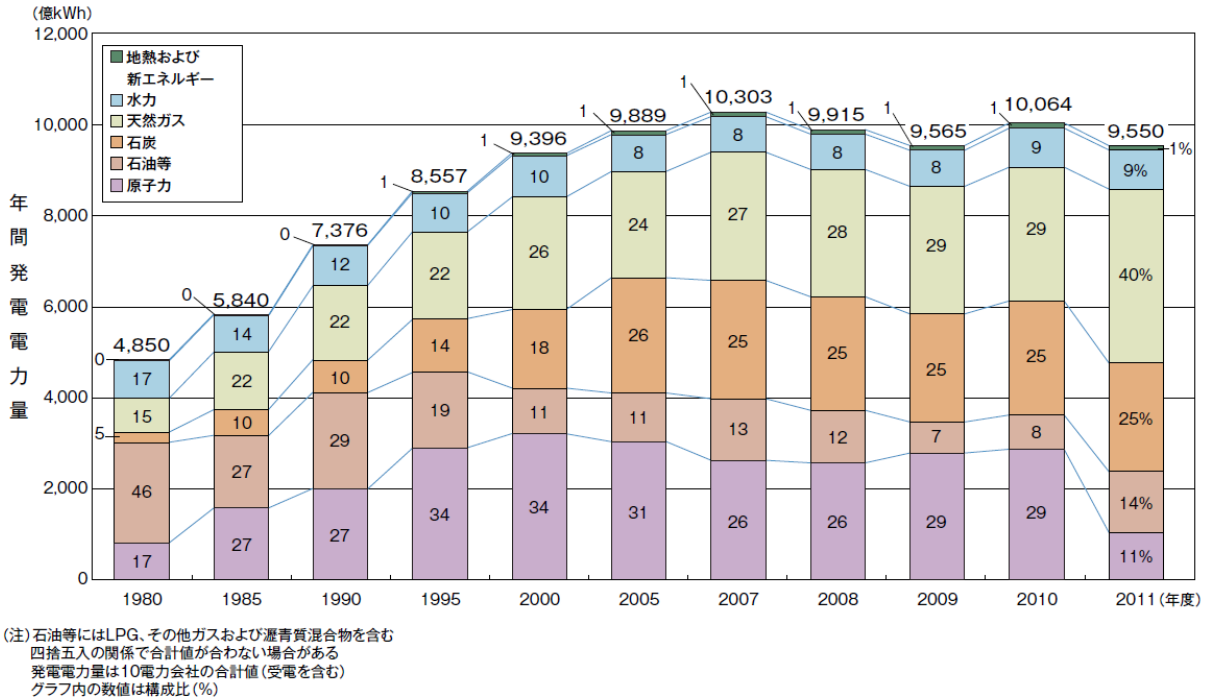


図 1.1-2 日本国内の電源別発電電力量の実績 出典：原子力図面集 2013 1-2-7

1.2 原子力安全

原子力施設の安全性が他の産業施設と比べて特徴的なことは、「人」と「環境」を放射線の有害な影響から守らなければならないことである。放射線防護の考え方については国際放射線防護委員会(ICRP)の勧告が尊重されている。1977年勧告^[4]では、以下の3つの原則で表される線量制限体系を提示した。

- ①いかなる行為も、その導入が正味でプラスの利益を生むのでなければ採用してはならない。(放射線利用の正当化)
- ②すべての被ばくは、経済的及び社会的な要因を考慮に入れながら、合理的に達成できる限り低く保たねばならない(ALARA: as low as reasonably achievable)。(放射線防護の最適化)
- ③個人に対する線量は、委員会がそれぞれの状況に応じて勧告する限度を超えてはならない。(個人の線量限度)

このうち「放射線防護の最適化」は実際の放射線防護を考える上での主要な要素であるとされた。2007年勧告^[5]では、どんなに低い線量でも確率的影響があると仮定して防護活動を行うこと、医療被ばくを除いて平常時に線量限度以下に線量拘束値を設定し、それを目安に合理的に可能な限り被ばくを低減するための対策を講じることが最適化の基本概念であると示されており、被ばく線量低減のためのより高い目標が求められている。IAEAはINSAG-24^[6]で、「人」、「社会」、「環境」の防護を原子力安全の目的であると述べており、防護対象である「人」と「環境」という言葉の定義や意

味は、時代や社会の変遷と共に変化していくと考えられる。一方で、原子力を利用する上で恒常的に重要なのは、最新知見を取り入れながら ALARA の概念に基づき、放射線リスクを合理的に可能な限り抑制するための継続的な努力が求められることである。

原子炉を運転すれば必然的に放射性物質が発生し、蓄積する。その意味では、原子炉は常に潜在的な危険性を有していることになる。しかし、放射性物質と環境の間に幾重もの障壁を設け、放射性物質を適切に管理することで、「人」と「環境」を放射線の影響から守ることが出来る。そのために重要な概念が深層防護（Defense in Depth）である。深層防護の概念は単なる物理障壁の多重性に留まらず、障壁を守るための相補的な手段や複数の防護レベルにより構成される。IAEA による深層防護レベルの定義を表 1.2-1 に示す^[7]。レベル 1 では異常の発生防止、レベル 2 では、異常の制御・検出、レベル 3 では事故の制御・制圧というように防護レベルごとに目的が設定されている。このように、幾重もの異常発生防止策を準備し、万一何らかの異常が発生した場合でも、それを検知し、影響を緩和し、異常事態を収束へと向かわせることが意図されて複数の防護レベルが設定されている。こうした深層防護の概念は、原子炉の設計段階のみに留まらず幅広く適用される。図 1.2-1 に示すように、原子力発電に係るあらゆるフェーズ、すなわち、立地、設計、建設、試運転、通常運転（定格出力運転、低出力運転、炉停止）、使用済み燃料管理、炉廃止措置等のいずれにおいても、深層防護の概念は適用されるべきである^[8]。しかし、実際に深層防護の観点から、原子力発電に係るあらゆる段階において網羅的な対策を整備することは容易ではない。OECD/NEA の福島第一原発事故調査報告書^[9]でも指摘されているように、深層防護の概念は妥当であるが、その実装に問題があったと考えられる。原子力発電の安全性を向上させるためには、深層防護の観点から運用段階を含めた原子力発電に係るあらゆる段階において網羅的な対策を整備するための継続的な努力が必要である。

運転期間中に原子炉を安全な状態に保つためには、設計・製造段階における努力だけでなく、保全によって原子炉システムが正常な状態を維持するための努力が重要となる。また、深層防護の観点から、保全においても異常発生防止策と異常発生後の影響緩和策を併せて整備する必要がある。原子炉内は高温・高圧・高エネルギー粒子の照射を受ける過酷な環境であり、使用される材料の経年劣化が原子炉システムの健全性を低下させる主要な要因の 1 つである。そのため、使用期間中に変化する原子炉機器の状態に応じた高度な保全を行うためには、材料学の観点を取り入れることが重要である。

表 1.2-1 IAEA 深層防護レベルの区分^[7]

深層防護レベル	目的	目的を達成するために不可欠な手段
レベル 1	異常運転および故障の防止	保守的な設計，および建設段階と運転段階の高い品質
レベル 2	異常運転の制御および故障の検出	制御システム，制限システム，防護システム，およびその他の監視設備
レベル 3	事故の制御/制圧（設計ベースで想定された過酷レベル以下）	工学的安全施設および事故時対応手順書
レベル 4	事故への発展の防止および過酷事故の緩和を含むプラントの状態制御	補完的な手段および事故時対応管理（アクシデントマネジメント）
レベル 5	放射性物質が大量に放出されることによる放射線影響の緩和	所外緊急時対応

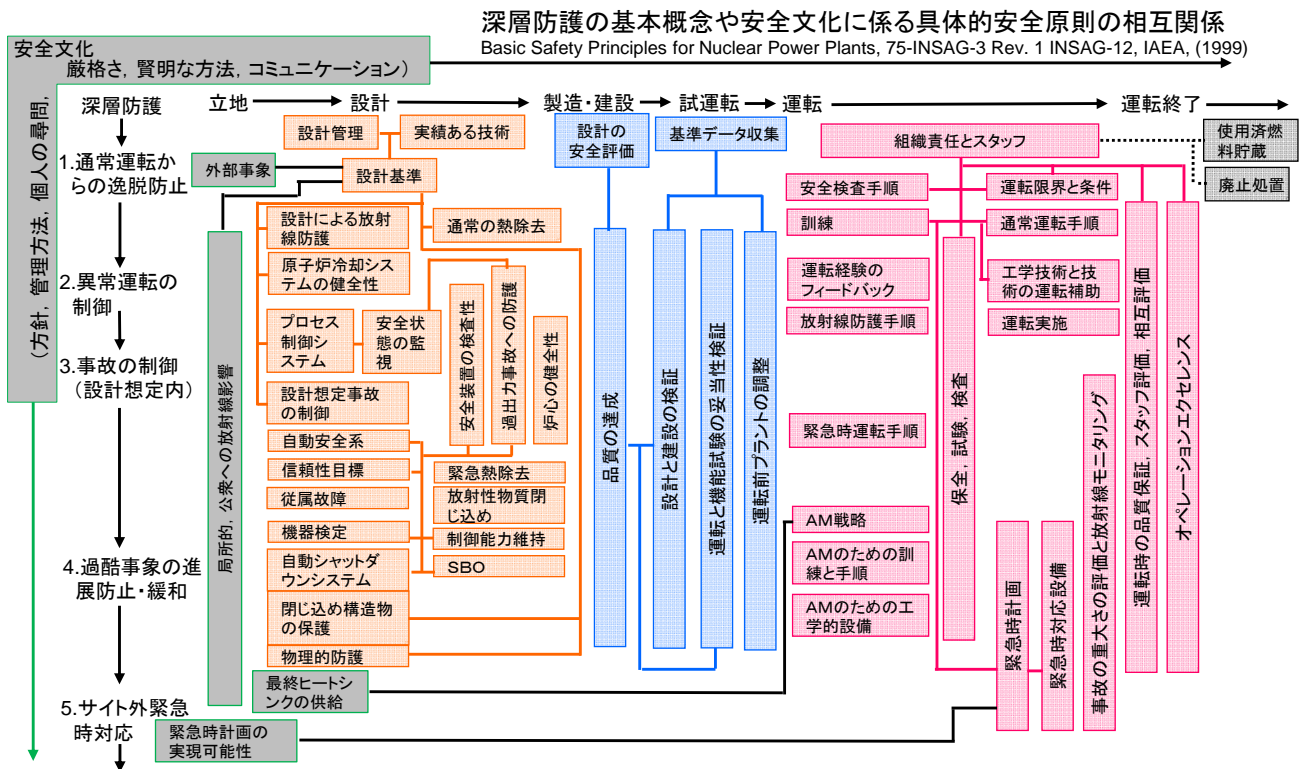


図 1.2-1 深層防護の基本概念や安全文化に係る具体的安全原則の相互関係^[8]

1.3 材料破損メカニズムの展開

深層防護上バランスがとれた対策が行えているかを確認する方法としてオブジェクトブツリーと呼ばれる工学設計手法がある^[10]。図 1.3-1 に示すように、オブジェクトブツリーには、まず、対象とする「深層防護レベル」があり、その下に防護レベルに応じた「目的」とその目的に対応する「安全機能」が記載される。基本的な安全機能としては「止める、冷やす、閉じ込める」があるが、これらはより詳細な安全機能（例えば、燃料被覆管の健全性を維持する等）へと展開される。この安全機能が満たされていなければ問題は無いが、実際には安全機能を阻害する可能性がある「脅威」が存在し、その脅威が発現する「メカニズム」が存在する。ツリーの最下層にはこのメカニズムが働かないようにするための「対策」が記載される。対策には、設備や装置で対応するものの他に、設計仕様、安全裕度、基準類、作業員の力量、訓練などで対応するものがある。こうした階層構造をツリーとして展開し、対応すべき事象の発生メカニズムまで掘り下げて整理することで、深層防護の観点から網羅的な対策が用意されているかを評価することが出来る。

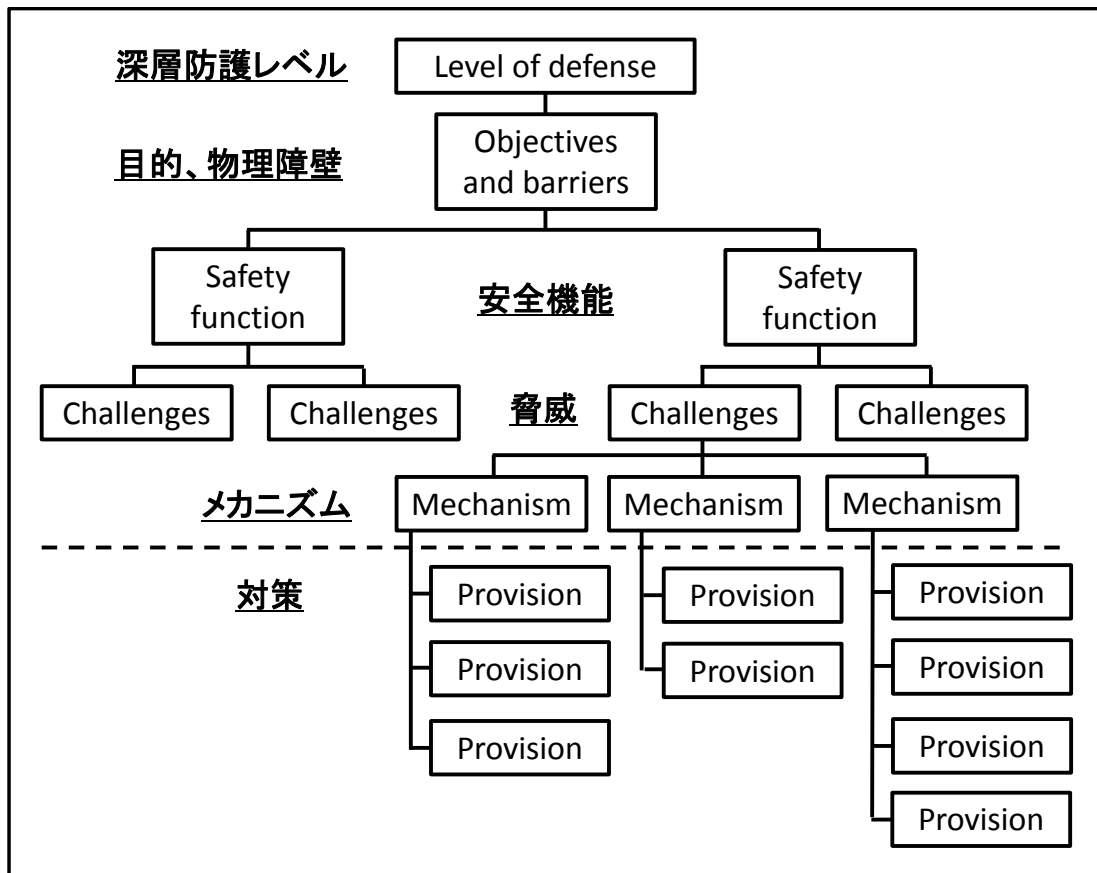


図 1.3-1 オブジェクトブツリーの構造^[10]

放射能閉じ込め機能を有する物理障壁としては、 UO_2 焼結ペレット、燃料被覆管、冷却材圧力バウンダリ、原子炉格納容器、原子炉建屋があり、閉じ込め機能を喪失する脅威としてそれぞれの材料破損が挙げられる。このうち燃料被覆管の閉じ込め機能に関するオブジェクトツリーの例を図 1.3-2 に示す。被覆管に求められる機能は炉内での使用期間中に貫通性の損傷が起こらないことである。その機能を脅かす被覆管の破損メカニズムと破損形態については、表 1.3-1 に示したように損傷モードとして系統的に整理されている。破損メカニズムの多くは、被覆管材料の酸化や照射影響等の材料劣化に起因することがわかる。そのため、炉内で変化する原子炉機器の状態に応じた対策をとるためには、材料劣化の予測技術が重要である。本研究では、原子力燃料材料の経年劣化を把握するために重要な燃料被覆管の酸化及び、照射損傷を対象として予測技術高度化のための研究を行った。

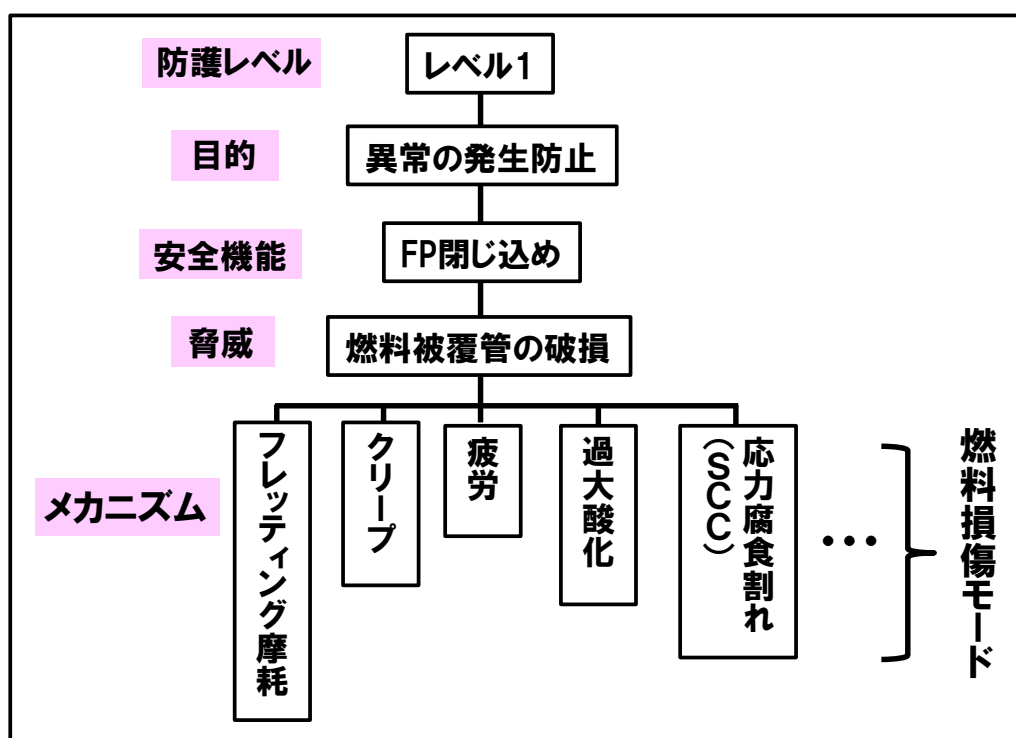


図 1.3-2 燃料被覆管閉じ込め機能に関するオブジェクトツリーの例

表 1.3-1 燃料損傷モード^[11]

メカニズム	損傷モード
熱的	酸化に伴う脆化
機械的	塑性変形 クリープ変形 クリープ・コラプス 疲労 フレットィング摩耗
化学的	過大腐食
複合要因	応力腐食割れ (SCC) 水素脆化割れ

1.4 被覆管材料破損後の対応

深層防護の観点から、バランスのいい対策を整備するためには材料破損の防止策だけでなく、材料破損発生後の影響緩和策についても併せて検討しておく必要がある。本節では、燃料被覆管を例にとり、材料破損後の対応について説明する。

軽水炉で使用されている燃料棒は、ジルコニウム合金の被覆管の中に UO_2 焼結ペレットを詰め、その両端を溶接・密閉して製造されている。燃料被覆管は反応度制御、冷却性能維持のために重要な燃料位置を保持する機能だけでなく、核分裂反応によって発生した放射性物質を燃料棒内に閉じ込める機能（放射能閉じ込め機能）も有している。そのため、設計上は炉内での使用期間中に被覆管に貫通性の損傷が生じないことが求められている。しかし実際には表 1.3-1 に示したように、フレットィング摩耗、過大腐食、応力腐食割れ (SCC)、水素脆化割れ等の様々な要因で使用期間中に燃料被覆管が破損し、放射性物質が炉水へと漏えいする燃料リークが発生し、問題となることがある。

燃料は数年で取り替えられる消耗品であるため、継続的に改良していくことが可能である。原子炉の実用化が本格化した 1970 年代には製造欠陥に起因する燃料破損が多く見られたが、燃料製造技術の向上や炉水の水質管理の強化によって年々製造欠陥に起因するとみられる燃料破損は減少し、1990 年代以降はほとんど報告されなくなった^[12,13]。一方で、原子力エネルギーの高効率利用を目的として 1980 年代後半から進められた燃料の高燃焼度化や運転条件の変更等により、燃料にとっては

より厳しい使用条件となった。図 1.4-1 に、原子力施設情報公開ライブラリー (NUCIA) ^[14] に報告された日本国内の原子炉における燃料リーク発生件数を示す。このように使用期間中の被覆管破損は国内で年間 2 件程度発生しており、燃料破損に関する報告件数は近年ほとんど減少していない。また、図 1.4-2 に示すように、稼働プラントあたりの燃料リーク報告件数でも燃料の破損率は 1980 年代よりは減少しているものの、その後飽和している傾向が見られる。我が国の被覆管製造技術は非常に優れており、日本を除く世界の燃料棒の破損率は平均で 10^{-5} 程度である^[16]、一方で、日本における破損率はわずかに 10^{-6} 程度である。しかし、燃料リーク発生時の対応が厳しいのも我が国の特徴である。

図 1.4-3 に、燃料リーク発生時の発電所への影響を示す。1980 年代には燃料リークが発生しても特別な対応が取られていなかったが、近年では燃料リーク発生時により厳しい対応が取られるようになってきている。最近 10 年ほどでは、破損燃料の取替を行うための原子炉の計画外停止件数が増加しており、燃料リーク問題がプラント全体に与える影響は非常に大きくなっている。表 1.4-1 に燃料リーク発生時の炉水ヨウ素濃度と発電所の対応を示す。近年原子炉停止の判断が行われたリーク事象は、1980 年代～90 年代前半の事象と比べて放射性物質の漏えい量が多いわけではなく、保安規定で定められている運転上の制限値 (LCO: Limiting Condition of Operation) よりも数桁も低い段階で保守的な判断によって対応が行われていることがわかる。このような保守的な判断が行われることによって、燃料リークが発電所全体へ与える影響は大きくなっている。原子炉を停止する際には、通常運転時以上の応力が材料に負荷されるため、材料健全性の観点からも計画外停止件数の増加は必ずしも望ましいものではない。そのため、燃料被覆管破損後の対応についても最適化するための検討を行い、破損の防止策と併せて合理的な対策を整備する必要がある。

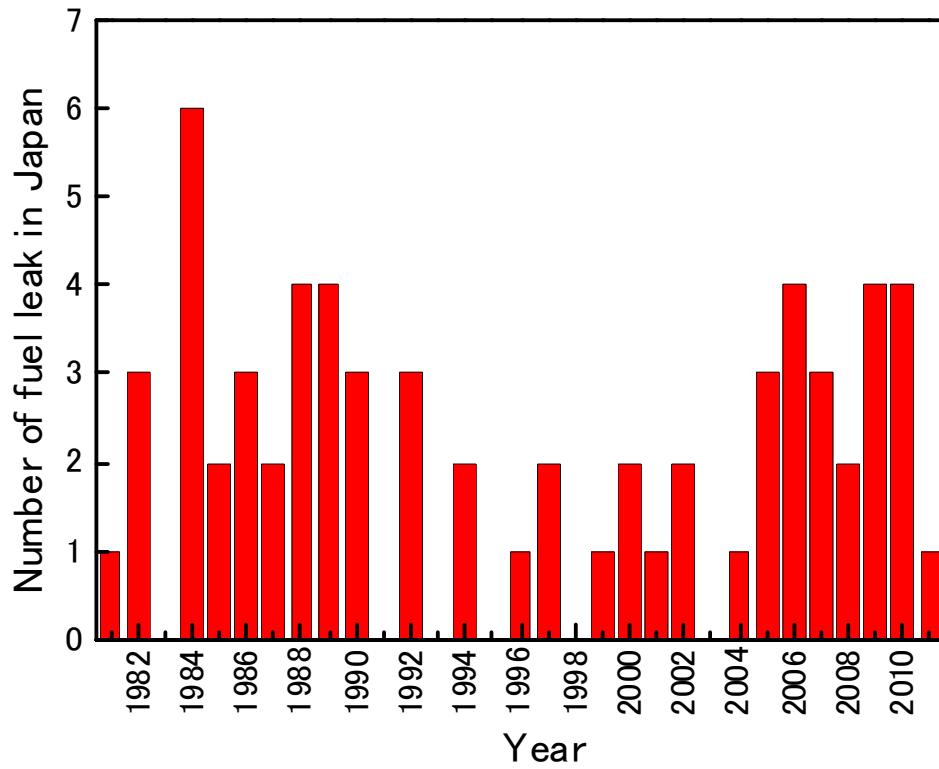


図 1.4-1 日本国内の原子炉における燃料リーク発生件数^[14]

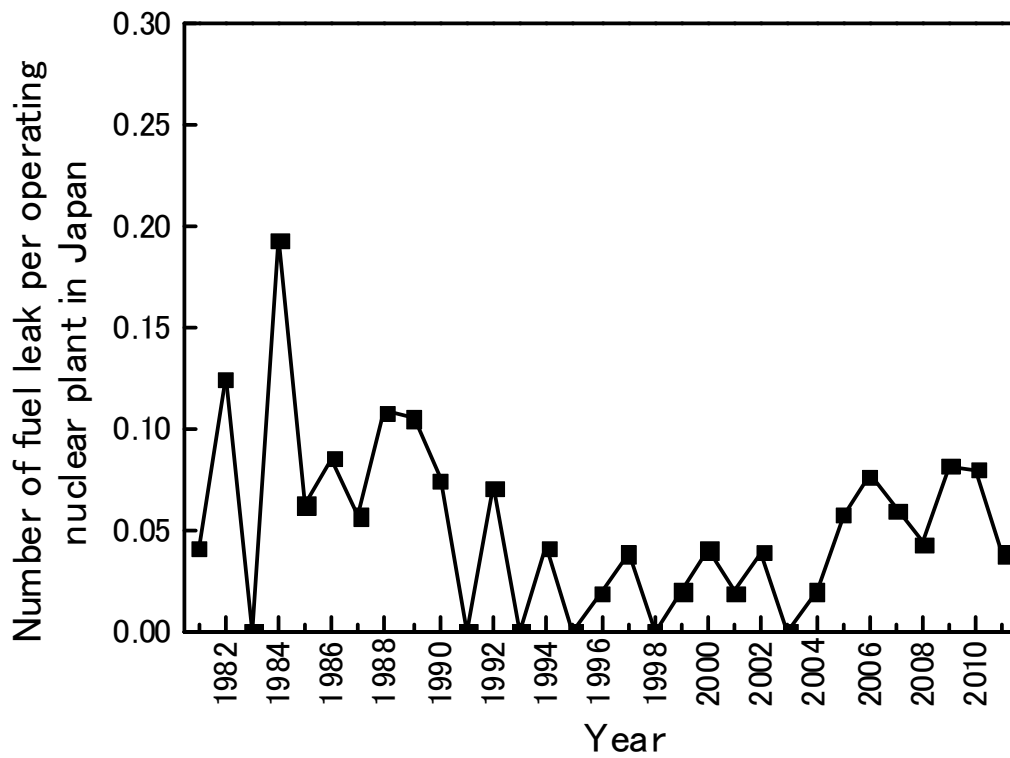


図 1.4-2 発電所 1 基当たりの燃料リーク報告件数^[14,15]

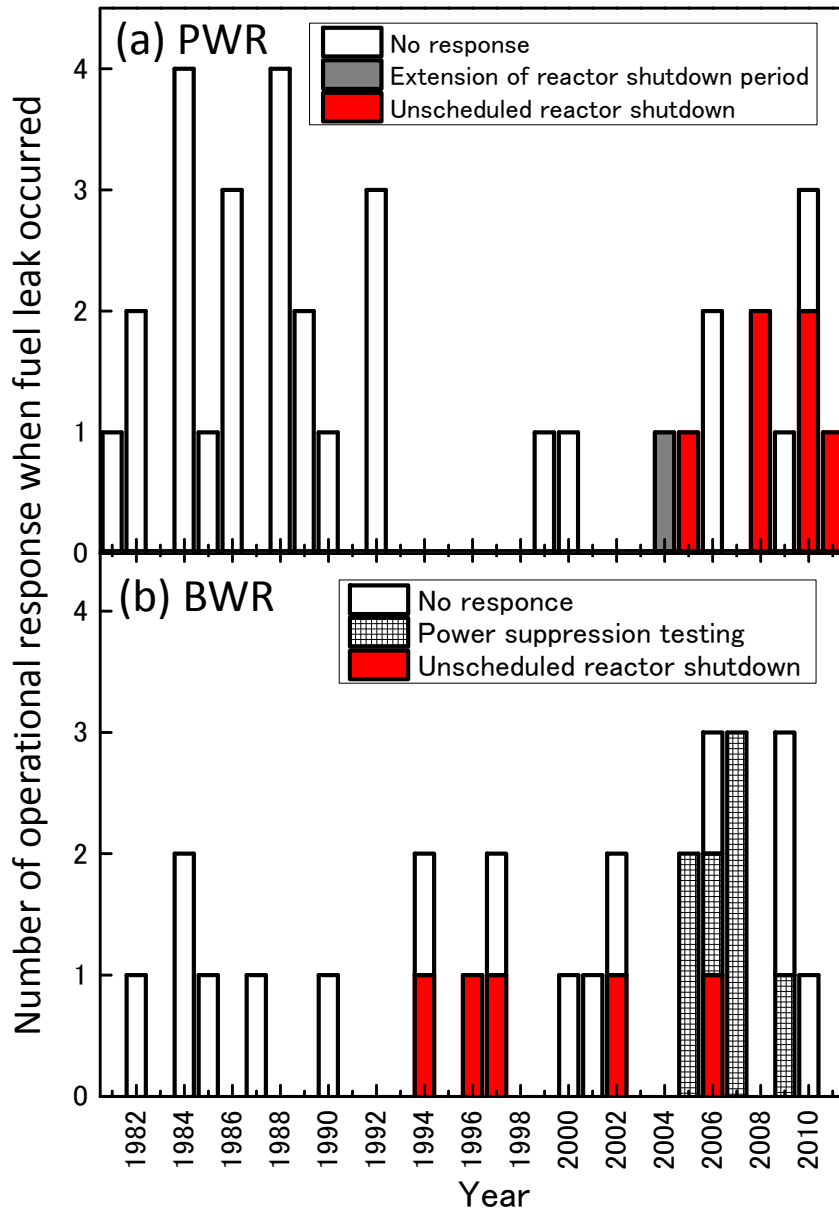


図 1.4-3 日本国内の燃料リーク発生時の発電所への影響^[14]

表 1.4-1 燃料リーク発生時の I-131 の漏えい量と発電所への影響^[14]

事象発生日	発電所	運転上の制限値	炉水中の I-131 濃度	発電所への影響
1982年 10月 21日	伊方発電所1号	1.44 μ Ci/cc	$10^{-5} \sim 10^{-3} \mu$ Ci/cc 台	-
1984年 07月 09日	伊方発電所2号	1.44 μ Ci/cc	$10^{-5} \sim 10^{-3} \mu$ Ci/cc	-
1990年 10月 08日	浜岡発電所1号	7.7×10^3 Bq/g	約 1.5 Bq/g	-
1992年 05月 08日	伊方発電所2号	5.1×10^4 Bq/cm ³	最大 350 Bq/cm ³	-
1999年 01月 20日	玄海発電所3号	6.3×10^4 Bq/cm ³	32 Bq/cm ³	-
2004年 02月 25日	大飯発電所3号	4.0×10^4 Bq/cm ³	0.87~1.1 Bq/cm ³	停止期間延長
2006年 11月 01日	玄海発電所2号	5.2×10^4 Bq/cm ³	1.2~1.4 Bq/cm ³	-
2008年 01月 09日	高浜発電所1号	5.7×10^4 Bq/cm ³	1.5~2.0 Bq/cm ³	手動停止
2008年 08月 19日	大飯発電所4号	4.0×10^4 Bq/cm ³	約 $8.8 \times 10^{-1} \sim$ 約 1.1 Bq/cm ³	手動停止
2009年 04月 12日	志賀発電所2号	1.3×10^3 Bq/g	最大 3.8×10^{-2} Bq/g	出力低下
2009年 08月 31日	大飯発電所2号	6.3×10^4 Bq/cm ³	$4.9 \times 10^{-1} \sim 1.0$ Bq/cm ³	手動停止
2009年 11月 19日	伊方発電所3号	3.2×10^4 Bq/cm ³	約 0.2 Bq/cm ³	-
2010年 02月 01日	大飯発電所1号	6.3×10^4 Bq/cm ³	0.682 Bq/cm ³	手動停止
2010年 04月 19日	美浜発電所2号	4.5×10^4 Bq/cm ³	$1.40 \sim 7.82 \times 10$ Bq/cm ³	手動停止
2010年 12月 10日	玄海発電所3号	6.3×10^4 Bq/cm ³	0.15~0.59 Bq/cm ³	手動停止
2011年 05月 02日	敦賀発電所2号	4.0×10^4 Bq/cm ³	$1.6 \times 10^{-1} \sim 6.3 \times 10^{-1}$ Bq/cm ³	手動停止

1.5 本研究の目的と論文の構成

運用期間中に原子炉システムの安全性を維持するためには、変化するシステムの状態に応じた適切な保全が継続的に行われる必要がある。原子炉システムの健全性を低下させる主要な要因の1つが炉内の過酷な環境で使用される材料の経年劣化である。そのため、刻々と変化する原子炉システムの状態に応じた保全を行うためには、材料学的な視点が不可欠である。炉内の材料の状態を継続的にモニタリングすることは出来ないため、保全の高度化を実現するためには、限られた情報から変化する材料の状態を予測するための材料劣化予測技術の向上が求められる。また、深層防護の観点から材料損傷の未然防止策と共に、損傷した場合の影響緩和策についても併せて検討する必要がある。本研究の目的は、原子力材料の劣化予測技術向上と材料損傷の管理の最適化のためのモデリング研究を通じて、原子力安全の深層防護の実装につながる知見を材料学の視点から取得し、軽水

炉保全の高度化について論じることである。

材料の経年劣化は、格子欠陥の生成や原子の拡散といった時間的にも空間的にも微小スケールの現象に起因している。そのため、劣化メカニズム解明や理論的根拠に基づいた材料劣化予測モデルを構築するためには、実験的手法では取得が困難である微視的な情報を補完する必要がある。第一原理計算や分子動力学法に代表される種々の計算機シミュレーション手法が有効である。しかし、材料の経年劣化は時間的にも空間的にもマルチスケールな現象であるため、対象とする現象に応じた解析手法を使い分け、また、異なるスケール間で上手く情報を引き継ぎながら評価を行う必要がある。本研究では、原子力燃料材料の劣化予測技術の高度化に資するために、種々の数値解析手法を用いて軽水炉燃料被覆管の酸化メカニズムの究明及び、照射下材料マイクロ構造変化に関するマルチスケール解析手法の高度化のためのモデルの提案を行った。さらに、材料破損に備えた対策として、確率論的リスク評価手法の援用による保全管理戦略の分析を行った。

本論文は全5章から構成される。第1章は、序論であり本研究の背景及び位置付けについて述べた。第2章では、第一原理量子計算による燃料被覆管酸化メカニズムの理論解析について述べる。第3章では、材料経年劣化事象である照射損傷について、分子動力学法やモンテカルロ法による解析結果を相補的に用いて、反応速度論に基づく解析を行った。第4章では、確率論的リスク評価手法に着目し、事象の発生頻度とその検査保全頻度の関係を論じ、軽水炉燃料被覆管破損と保全対応について分析した。第5章では、本研究で得られた結果を総括する。

[第 1 章の参考文献]

- [1] International Energy Agency, World Energy Outlook 2012 (2012).
- [2] 気候変動に関する政府間パネル (IPCC), 第 5 次評価報告書 (2013).
- [3] 資源エネルギー庁, 平成 22 年度 (2010 年度) エネルギー需給実績 (2011).
- [4] ICRP: Publication 26 (1977).
- [5] ICRP: Publication 103 (2007).
- [6] International Nuclear Safety Group, INSAG-24: The Interface between Safety and Security at Nuclear Power Plants (2010).
- [7] IAEA Safety Reports Series No. 46, Assessment of defense in depth for nuclear power plants (2005).
- [8] Basic Safety Principles for Nuclear Power Plants, 75-INSAG-3 Rev. 1 INSAG-12, IAEA (1999).
- [9] OECA/NEA report, “The Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident: OECD/NEA Nuclear Safety Response and Lessons Learnt”, NEA No. 7161 (2013).
- [10] IAEA Safety Reports Series No. 46, Assessment of defense in depth for nuclear power plants (2005).
- [11] 燃料関連指針類検討小委員会, 「燃料関連指針類における要求事項の整理並びに明確化について」 (2010).
- [12] Y. Otsuka, H. Kitamura, Current Fuel Performance and Future Trends at Japanese Boiling Water Reactors, Proc. ENS/ANS Topical Meeting on LWR Fuel Performance (2004).
- [13] K. Ishiguma, The Japanese PWR Fuel Performance Past, Present and Future, Proc. ENS/ANS Topical Meeting on LWR Fuel Performance (2004).
- [14] 原子力安全推進協会, 原子力施設情報公開ライブラリー (NUCIA: Nuclear Information Archives), <http://www.nucia.jp>.
- [15] 一般財団法人日本原子力技術協会, 原子力発電所運転実績, <http://www.gengikyo.jp/facility/index.html>.
- [16] IAEA Nuclear Energy Series No. NF-T-2.1, Review of Fuel Failures in Water Cooled Reactors (2010).

第2章 燃料被覆管酸化メカニズムの理論解析

これまでに燃料の高燃焼度化が段階的に進められており、炉内での使用期間の長期化に伴い被覆管酸化量の増加が燃料健全性の低下を引き起こす問題となっている。被覆管酸化の予測技術に関しては、酸化反応の律速過程の理解が十分に得られておらず、実験事実に基づいた経験的な予測式が用いられている。本研究では、第一原理量子計算によって ZrO_2 酸化膜中の酸素拡散の活性化エネルギーについて応力依存性を評価し、その解析結果をもとに、1次元拡散モデルによって酸化速度の応力依存性について考察した。本研究によって、これまで明らかになっていなかった実験的に報告されている被覆管の酸化速度が、酸素拡散の応力依存性によって説明し得ることが示された。

2.1 燃料被覆管の経年劣化

軽水炉燃料は一定期間使用して取り替えられるため、必要に応じて改良することが可能である。これまでに、燃料の経済性の向上や使用済燃料の発生量低減を目的として、沸騰水型原子炉(BWR)、加圧水型原子炉(PWR)共に燃料の高燃焼度化が1980年代後半から段階的に進められてきた(表2.1-1, 表2.1-2)。今後の情勢は不透明ではあるが、これまでに高燃焼度化の次段階(燃料集合体燃焼度60-70GWd/t)を視野に入れた研究開発が行われている^[2]。高燃焼度化が進めばウラン資源の高効率利用が可能になる一方で、燃料の原子炉内における使用期間を長期化させる必要があり、材料にとってはより過酷な使用条件となる。このような炉内滞在期間の長期化によって問題となるのが燃料被覆管の酸化量の増加である^[3]。

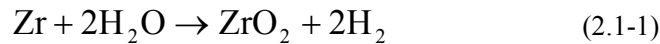
表 2.1-1 国内 BWR 燃料の高燃焼度化実績^[1]

BWR 高燃焼度化ステップ	I	II	III
²³⁵ U 平均濃縮度 (wt%)	3.0	3.4	3.7
燃料集合体平均燃焼度(GWd/tU)	33.0	39.5	45.0
燃料経済性向上目標	10%	20%	30%
使用済燃料低減目標	10%	25%	33%
導入時期	1987年	1991年	1999年

表 2.2-2 国内 PWR 燃料の高燃焼度化実績

PWR 高燃焼度化ステップ	I	II
²³⁵ U 最高濃縮度 (wt%)	4.1	4.8
燃料集合体最高燃焼度(GWd/tU)	48	55
導入時期	1990年	2004年

燃料被覆管材料として使用されているジルコニウムは高温高压の冷却水あるいは水蒸気と反応し、次式で表せるように二酸化ジルコニウムを形成する。



酸化反応の結果として生成した水素の一部は被覆管材料中に吸収され、固溶限を越えるとジルコニウム水素化物として析出し、材料強度を低下させる原因となる。また、被覆管表面に形成される二酸化ジルコニウム自体も材料強度が低く、脆化の原因となる。反応度事故（RIA: Reactivity Initiated Accident）や冷却材喪失事故（LOCA: Loss Of Coolant Accident）を模擬した実験では、被覆管の腐食に起因すると考えられる燃料破損限界値の低下が報告されている^[4-6]。さらに、ジルコニウム酸化膜は金属ジルコニウムと比べて熱伝導率が1桁程度低いため、酸化膜が厚くなるにつれて燃料の熱を逃がしにくくなり、 UO_2 ペレットや被覆管の温度上昇につながる懸念される。そのため、燃料の健全性を維持するためには、被覆管の酸化量を出来るだけ低い水準に抑えておく必要がある。

2.2 被覆管の酸化反応

ジルコニウム合金の酸化反応は熱活性化プロセスであると考えられ、被覆管の酸化速度は主に温度の関数として表されている。また、酸化速度は酸化膜厚さが2~2.7 μm 前後に達すると変化することが実験的に知られている^[7]。図2.2-1に経験的に知られているジルコニウム合金酸化量の時間変化を示す。このように経験的には酸化速度が変化する遷移前は、酸化量は時間の1/3乗に比例し、遷移後は1乗に比例する。実際に、軽水炉燃料の設計段階において燃料の健全性を評価するために使用されているFEMAXI-6コード^[8]でも、酸化膜厚さ S は時間 t の関数として次式で与えられている。

遷移前：

$$S(t) = \left\{ 7.464 \times 10^{-3} \cdot t \cdot \exp\left(-\frac{15660}{T}\right) + S_0^3 \right\}^{\frac{1}{3}} \quad (2.2-1)$$

遷移後：

$$S(t) = 124.32 \cdot t \cdot \exp\left(-\frac{14080}{T}\right) + S_{TRAN} \quad (2.2-2)$$

ここで、 S_0 は初期の酸化膜厚、 S_{TRAN} は遷移時の酸化膜厚、 T は酸化膜と金属層の界面温度を表す。

ただし、ここで用いられている酸化予測式は経験式であり、酸化過程を律速するメカニズムについては明らかになっていない。被覆管酸化量の予測精度を向上させるには、こうした経験的な知見に加えて、酸化挙動の機構論的な理解が必要となる。

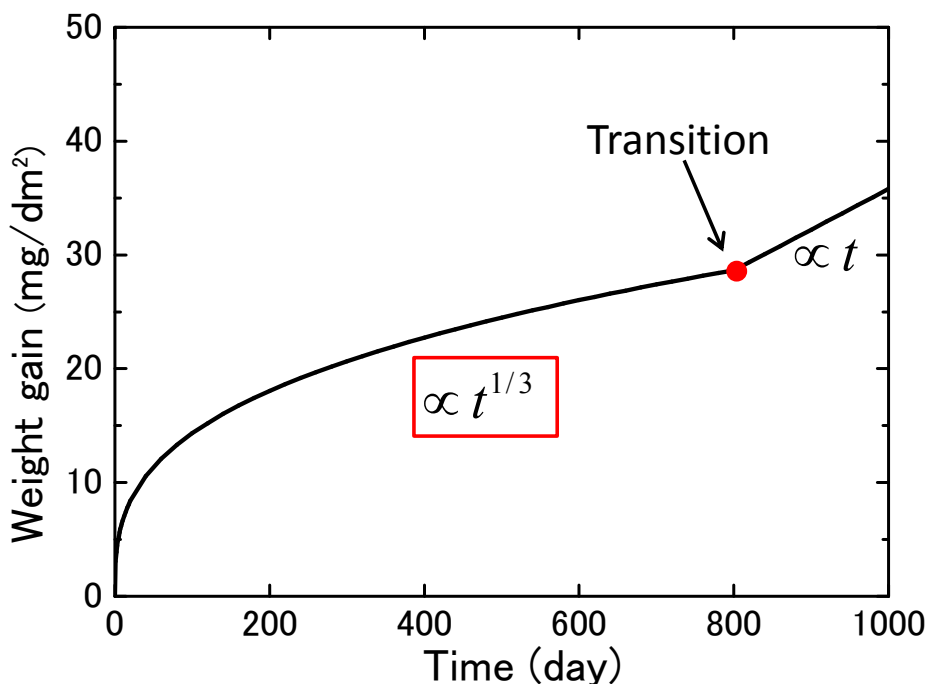


図 2.2-1 ジルカロイの腐食増量曲線^[7]

酸化膜の成長は、陽イオン（金属イオン）の移動によって成長する場合と、陰イオン（酸素イオン）の移動によって成長する場合に分けられる。ジルコニウム合金の酸化膜は陰イオンの移動により成長するため、酸化膜は金属/酸化膜界面付近で形成される^[9]。遷移前のジルコニウム合金は緻密な酸化膜に覆われており、酸化膜が成長するためには、被覆管表面（酸化膜/冷却水界面）付近に存在する酸素イオンが酸化膜/金属界面まで拡散によって移動する必要がある。そのため、酸化反応は酸化膜中の酸素の拡散過程に強く依存すると考えられる。しかし、拡散律速反応では通常、反応量は反応時間の 1/2 乗に比例することから、上述の遷移前の 1/3 乗則とは矛盾することになる。そのため酸素イオンの拡散を阻害する何らかの因子が作用していると考えられる。

ジルコニウム合金の酸化反応に及ぼす影響因子は図 2.2-2 に示す通り、材料の組成等の材料因子と照射、水質等の環境因子に分けることが出来る。これらの因子が酸化速度に影響を及ぼすと考えられ、様々な実験が行われている。水質に関しては、酸化の初期段階において pH を 1~13 と変化させても酸化速度に変化が見られず、遷移前の酸化反応は酸化膜の表面反応に律速されているわけでは

ないと報告されている^[11]。また、炉外かつ純ジルコニウムを用いた試験においても、酸化量は時間の 1/3 乗に比例する傾向が報告されている^[12]ことから、照射影響やジルカロイの添加元素の影響がなくても 1/3 乗則が成立すると考えられる。これまでの研究から遷移前の段階における酸化反応を律速するのは酸化膜中の酸素の拡散過程であるという見方が有力であり^[13]、本研究では拡散過程に及ぼす金属と酸化膜の平衡体積差に起因して作用する圧縮応力の影響に着目した。酸素の拡散は原子レベルの現象であり、第一原理量子計算による解析によって ZrO_2 酸化膜中の酸素の拡散プロセスに及ぼす応力の影響を評価した。

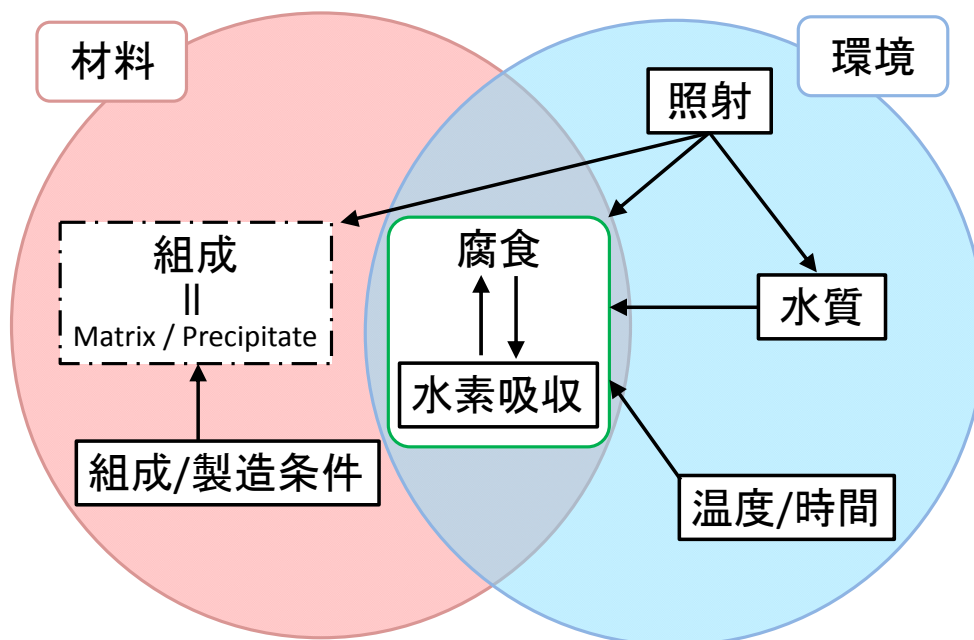


図 2.2-2 ジルカロイの水中腐食に及ぼす影響因子^[10]

2.3 評価方法

2.3.1 評価プロセスの概要

ZrO_2 酸化膜中の酸素の拡散は熱活性化プロセスであり、酸素が移動するためにはポテンシャルエネルギーの障壁を越える必要がある。そのため、空孔拡散機構を仮定すると応力が作用していない状態と応力が作用した状態における酸素の拡散係数は次式で表せる。

$$D_0 = \frac{1}{6} z \nu \lambda^2 \exp\left(-\frac{E_{IV}}{kT}\right) \exp\left(-\frac{E_m}{kT}\right) \quad (2.3-1)$$

$$D = \frac{1}{6} z \nu \lambda^2 \exp\left(-\frac{E_{IV} + \Delta E_{IV}}{kT}\right) \exp\left(-\frac{E_m + \Delta E_m}{kT}\right) \quad (2.3-2)$$

ここで、 D_0 と D は応力が作用していない条件の拡散係数と応力が負荷された状態の拡散係数をそれぞれ表す。 z は配位数、 ν はデバイ振動数、 λ は拡散パスの距離、 E_{IV} は空孔形成エネルギー、 E_m は酸素の移動エネルギー、 k はボルツマン定数、 T は温度を表す。また、 ΔE_{IV} と ΔE_m は応力が負荷されたことによる空孔形成エネルギーと移動エネルギーの変化量をそれぞれ表す。

式(2.3-1)と式(2.3-2)より、応力が負荷されたことによる拡散係数の変化率は次式で記述できる。

$$\frac{D}{D_0} = \exp\left(-\frac{\Delta E_{IV} + \Delta E_m}{kT}\right) \quad (2.3-3)$$

本研究では電子状態計算によって、空孔形成エネルギーと移動エネルギーの応力依存性を評価し、その結果を基に酸化膜成長速度に及ぼす応力の影響について考察した。

2.3.2 第一原理量子計算

LCAO 基底を用いた密度汎関数法コードである SIESTA3.0^[14]を用いて第一原理量子計算を行った。各原子についてはノルム保存型 Troullier-Martins 擬ポテンシャル^[15]を用いており、Kohn-Sham 方程式における交換相関項には Perdew-Burke-Ernzerhof型^[16]の一般化された密度勾配近似(GGA)を用いた。基底関数としては Split Valence 基底関数と分極基底関数を併せて用いた。

本研究では、ジルコニウム酸化膜で観察される典型的な結晶構造である単斜晶 ZrO_2 と正方晶 ZrO_2 ^[17]を対象として計算を行った。単斜晶 ZrO_2 は空間群 P21/c(No.14)に帰属し、ユニットセルは原子 12 個で構成される。一方、正方晶 ZrO_2 は空間群 P42/nmc(No.137)に帰属し、ユニットセルは原子 6 個で構成される (図 2.3-1)。

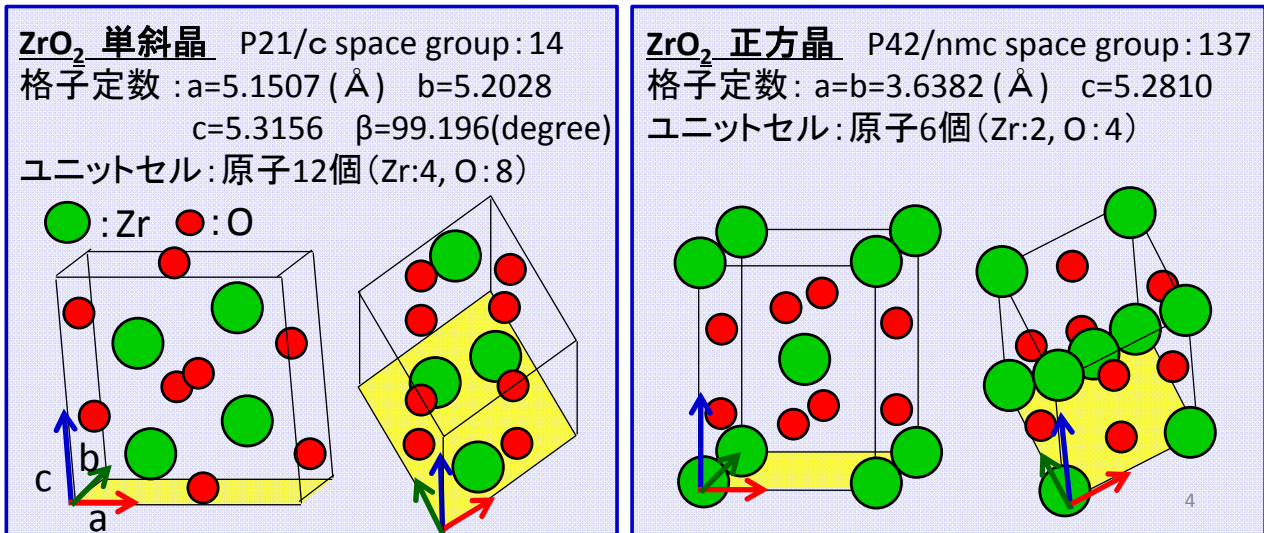


図 2.3-1 単斜晶 ZrO₂ と正方晶 ZrO₂ の結晶構造

2.4 結果・考察

2.4.1 結晶構造の最適化

まず、ユニットセルの結晶構造を最適化するために、BZ (Brillouin Zone) 内積分における k 点サンプリングは Monkhorst-Pack 法^[18]で、単斜晶 ZrO₂ と正方晶 ZrO₂ に対して 10×10×10 と 16×16×16 の条件でそれぞれ計算を行った。図 2.4-1 に凝集エネルギーの体積依存性を示す。これは温度 0K における計算結果であり、1449K 以下の温度では単斜晶 ZrO₂ が正方晶 ZrO₂ よりも安定な相であるという実験事実^[19]とも一致している。この計算データを次式の Murnaghan の状態方程式^[20]でフィッティングすることによって体積弾性率を算出することが出来る。

$$E_{\text{tot}}(V) = \frac{BV}{B'(B'-1)} \left[B' \left(1 - \frac{V_0}{V} \right) + \left(\frac{V_0}{V} \right)^{B'} - 1 \right] + E_{\text{tot}}(V_0) \quad (2.4-1)$$

$$B' = \left(\frac{\partial B}{\partial P} \right)_T \quad (2.4-2)$$

ここで、 E_{tot} はスーパーセルのトータルエネルギー、 V は体積、 V_0 は平衡体積、 B は体積弾性率、 P は圧力を表す。表 2.4-1 と表 2.4-2 に単斜晶 ZrO₂ と正方晶 ZrO₂ における本研究の緩和計算によって得られた物性値と VASP コードを用いて算出された計算値、実験値との比較をそれぞれ示す。単斜

晶 ZrO_2 については、平衡格子定数、体積弾性率とも実験値とよく一致している。一方で、正方晶 ZrO_2 は、高压安定層であり、常温・常圧の条件では安定に存在しないため、今回の計算値と実験値を比較することは出来ない。

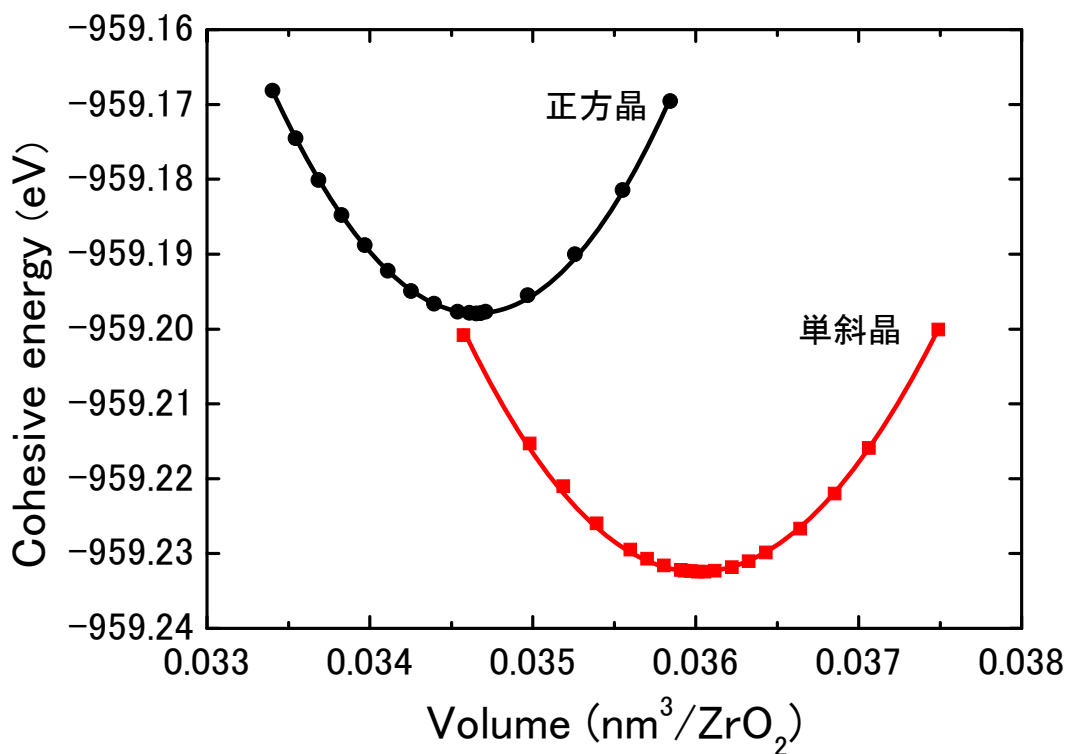


図 2.4-1 凝集エネルギーの体積依存性

表 2.4-1 単斜晶 ZrO_2 の物性値

	平衡格子定数				平衡体積 $V_0/\text{ZrO}_2(\text{nm}^3)$	体積弾性率 B (GPa)
	a (Å)	b (Å)	c (Å)	β (degree)		
本研究	5.186	5.232	5.372	99.58	0.0359	175.5
VASP ^[21]	5.209	5.272	5.377	99.23	0.0364	162.8
実験値 ^[22]	5.1505	5.2116	5.3173	99.230	0.0352	172 ^[23]

表 2.4-2 正方晶 ZrO_2 の物性値

	平衡格子定数 $a = b$ (Å)	c/a 比	平衡体積 $V_0/\text{ZrO}_2(\text{nm}^3)$	体積弾性率 B (GPa)
本研究	3.618	1.462	0.0346	217.6
VASP ^[21]	3.623	1.443	0.0346	179.9

2.4.2 空孔形成エネルギーの応力依存性

最適化したユニットセルを用いて、単斜晶 ZrO_2 と正方晶 ZrO_2 で酸素空孔を 1 つ導入した原子 47 個 (Zr : 16 個, O : 31 個) のスーパーセルを作成した. k 点サンプリングは Monkhorst-Pack 法で $5 \times 5 \times 5$ の条件で計算を行った. ここで, 図 2.4-2 に示したように単斜晶 ZrO_2 には 2 種類の酸素空孔の配置が考えられるため, O1 空孔と O2 空孔と区別してそれぞれ評価を行った.

まず, それぞれのスーパーセルの体積を等方的に変化させ, 空孔形成エネルギーの応力依存性を評価した. ここで, 応力が作用した条件と作用していない条件における空孔を配置したスーパーセルのトータルエネルギーの差を空孔形成エネルギーの変化量と定義した. 図 2.4-3 に等方的に体積を変化させた時の空孔形成エネルギーの応力依存性を示す. 圧縮応力, 引張応力共に系のエネルギーを上昇させる傾向が見られる. 次に, スーパーセルを軸方向に変形させて, それぞれの応力と空孔形成エネルギーの変化量の関係性を評価した. 図 2.4-4 に軸方向にスーパーセルを変形させた時の空孔形成エネルギーの応力依存性を示す. 等方的に体積を変化させた場合と同様に応力が強くなるほど系のエネルギーが上昇する傾向が見られた. ジルコニウムは, 金属と酸化物の平衡体積の比である Pilling-Bedworth 比が 1.56 と高く, 酸化膜には平衡体積差に起因する強い圧縮応力が作用する. この圧縮応力は酸化膜の成長と共に増加し, 最大で 1GPa 程度になると実験的に評価されている^[24,25]. 表 2.4-3 に 1 GPa の圧縮応力が作用した時の空孔形成エネルギーの変化量を示す. 応力が作用する方向によってエネルギー変化量に違いが見られ, 最大で 0.032eV 程度のエネルギー上昇が見られた.

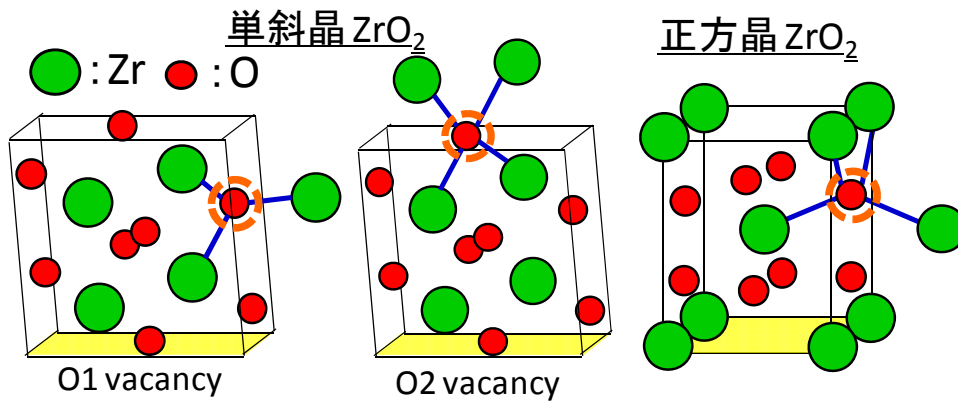


図 2.4-2 单斜晶 ZrO_2 及び正方晶 ZrO_2 における酸素空孔の配置

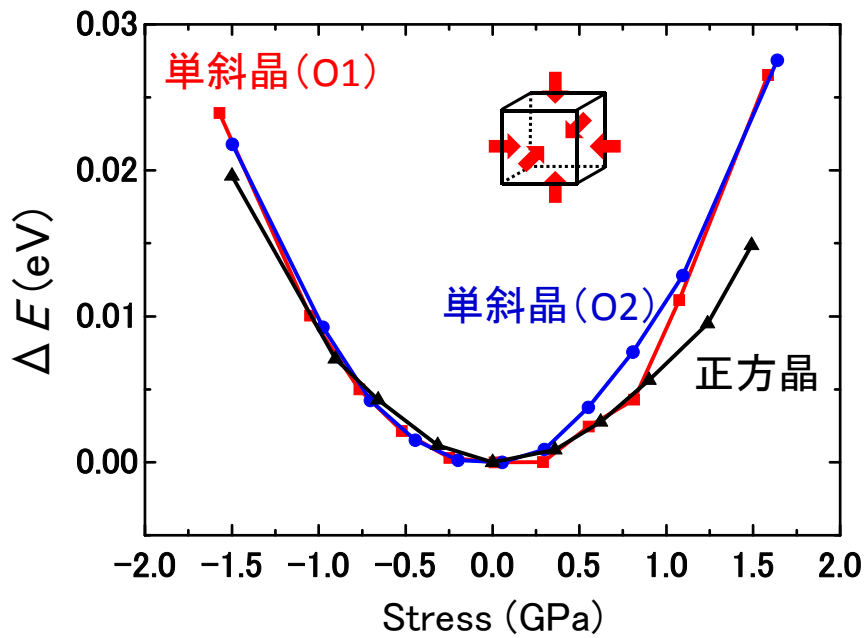


図 2.4-3 等方的に応力を作用させた時の空孔形成エネルギーの応力依存性

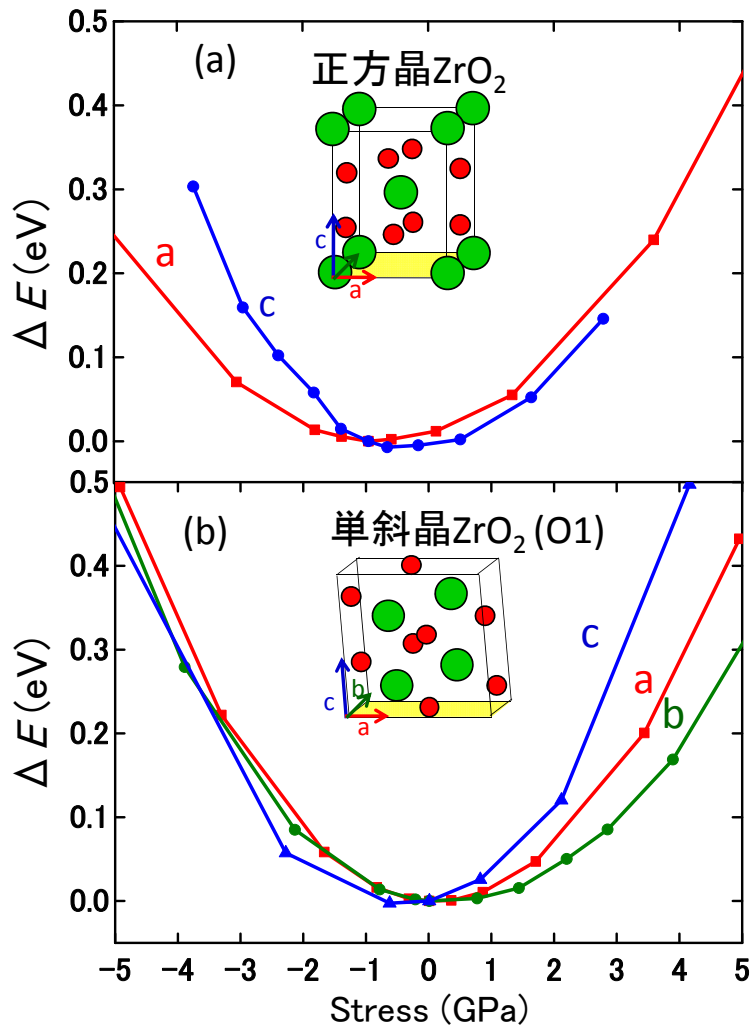


図 2.4-4 軸方向に応力を作用させた時の空孔形成エネルギーの応力依存性

表 2.4-3 1GPa の圧縮応力が作用した時の空孔形成エネルギーの変化量

	静水圧	a 軸方向	b 軸方向	c 軸方向
単斜晶 $ZrO_2(O1)$	0.010eV	0.012eV	0.011eV	0.032eV
単斜晶 $ZrO_2(O2)$	0.012eV	0.016eV	0.010eV	0.022eV
正方晶 ZrO_2	0.015eV	0.011eV	-	0.006eV

2.4.3 移動エネルギーの応力依存性

正方晶 ZrO_2 は高压安定層であり、応力が強く作用する環境でよく観察される結晶構造である^[17]。本研究では、分子動力学研究^[26]によって最もエネルギー障壁の低い拡散パスであると評価されている。図 2.4-5 に示す正方晶 ZrO_2 の酸素空孔の拡散パス A について移動エネルギーの応力依存性を評価した。図 2.4-6 は酸素イオンが拡散パス A を通る時のエネルギー変化量を位置の関数として表している。エネルギー上昇の最大値から移動エネルギーは 2.32eV と算出された。ここでは、酸素原子を ab 面内で固定し、さらにスーパーセルの境界原子の座標を固定して緩和計算を行っている。拡散パス A を通過した時の a 座標、 b 座標の軌跡を図 2.4-7 に示す。 a 軸方向に対してはほとんど移動しておらず、 b 軸方向には 2 つの Zr 原子の間を通過する際に Zr から遠ざかるように移動している。次に、等方的及び軸方向に 1GPa の圧縮応力を作用させた状態で酸素空孔の移動エネルギーを算出した。表 2.4-4 に応力を作用させたことによる移動エネルギーの変化量を示す。作用する応力の方位依存性が強く、 a 軸方向に応力を作用させた時に最大で 0.041eV のエネルギー上昇が見られた。また、空孔形成エネルギーよりも強い応力依存性を示している。

図 2.4-8 に正方晶 ZrO_2 の拡散パス A について、正方晶の a 軸方向に圧縮応力が作用した時の、空孔形成エネルギーと移動エネルギーの応力依存性を示す。応力とエネルギー変化量には比例関係がみられ、応力が 1GPa のときのエネルギー上昇量は 0.052eV だった。弾性論では、エネルギーと応力の中に比例関係が成立するため、結晶構造が変わっても移動の活性化エネルギーの応力依存性には同様に比例関係が見られると考えられる。

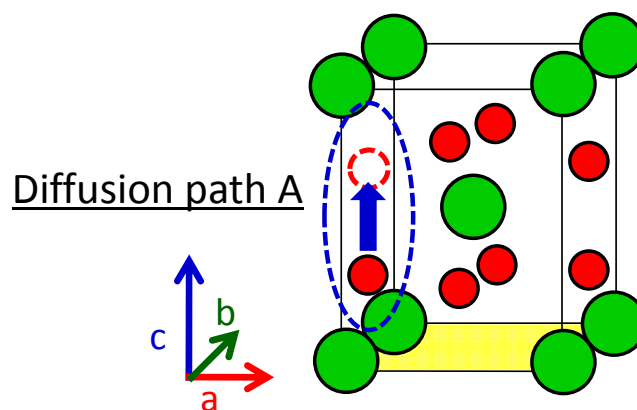


図 2.4-5 酸素の拡散パス A

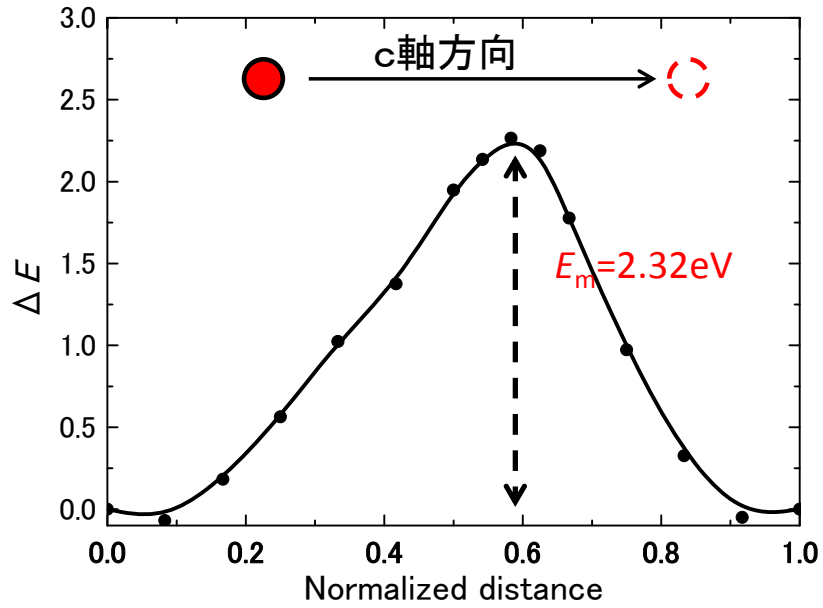


図 2.4-6 酸素空孔が拡散パス A を通る時のエネルギー上昇

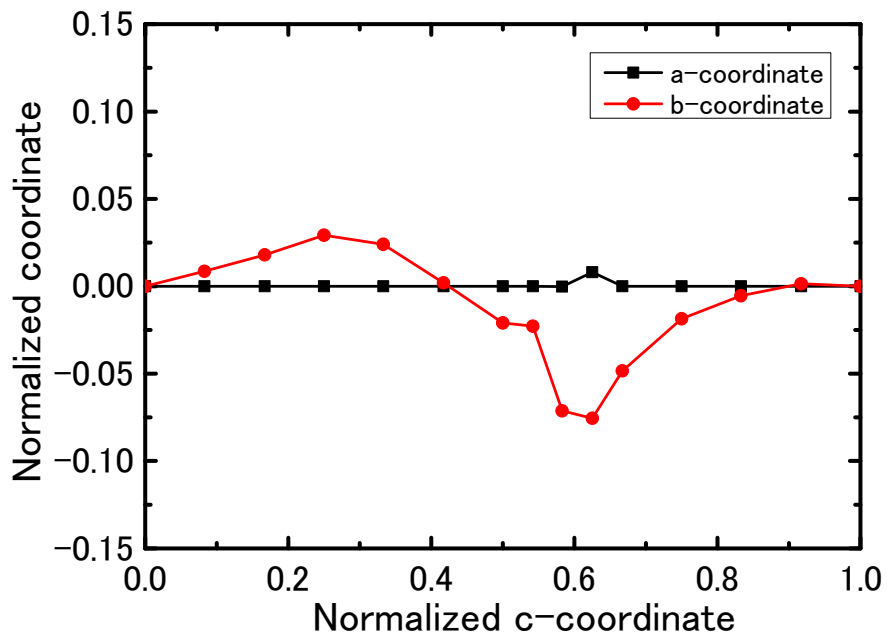


図 2.4-7 酸素空孔が拡散パス A を通る時の a 座標, b 座標の変化

表 2.4-4 1Gpa の圧縮応力が作用した時の移動エネルギーの変化量

	静水圧	a 軸方向	b 軸方向	c 軸方向
ΔE_m	0.033eV	0.041eV	0.016eV	0.023eV

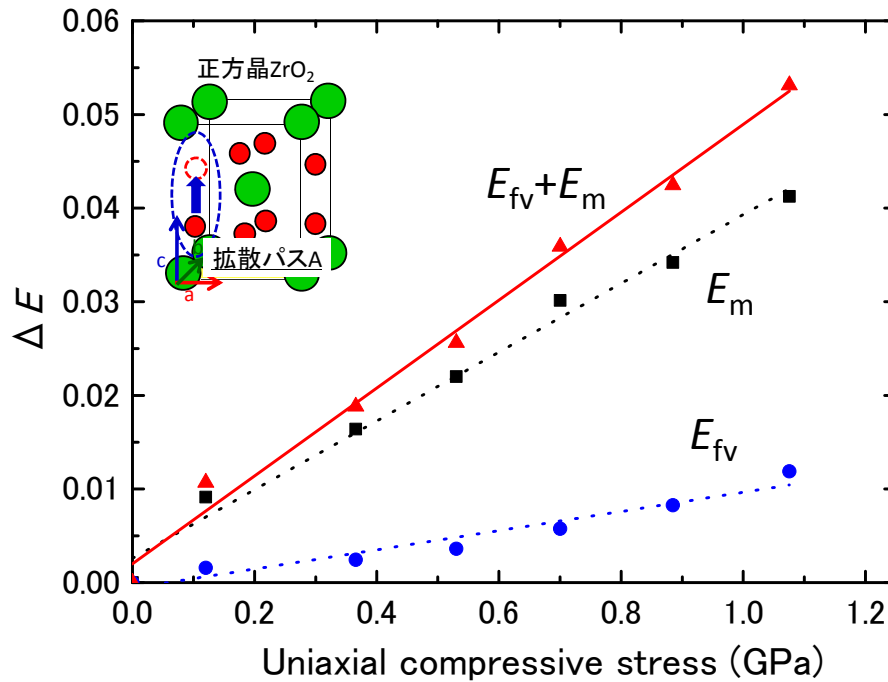


図 2.4-8 酸素空孔の移動エネルギーと空孔形成エネルギーの応力依存性

2.4.4 拡散係数の応力依存性

第一原理量子計算の評価結果をもとに式 (2.4-1) から応力が作用したことによる拡散係数の変化率を算出した. 図 2.4-9 に a 軸方向に応力が作用した時の拡散係数の応力依存性と温度依存性を示す. 圧縮応力の増加と共に拡散係数が低下する. また, 温度が低い条件ほど拡散係数の低下率が大きい. さらに, 表 2.4-5 に炉内の使用環境を想定して温度 300°C の条件において 1GPa の圧縮応力が作用した時の拡散係数の変化率を示す. 最も影響が大きかったのは a 軸方向に応力が作用した時であり, 応力が作用したことによる拡散係数の変化率が 0.347 であり, 拡散係数を 1/3 程度まで減少させるほどの影響が見られた.

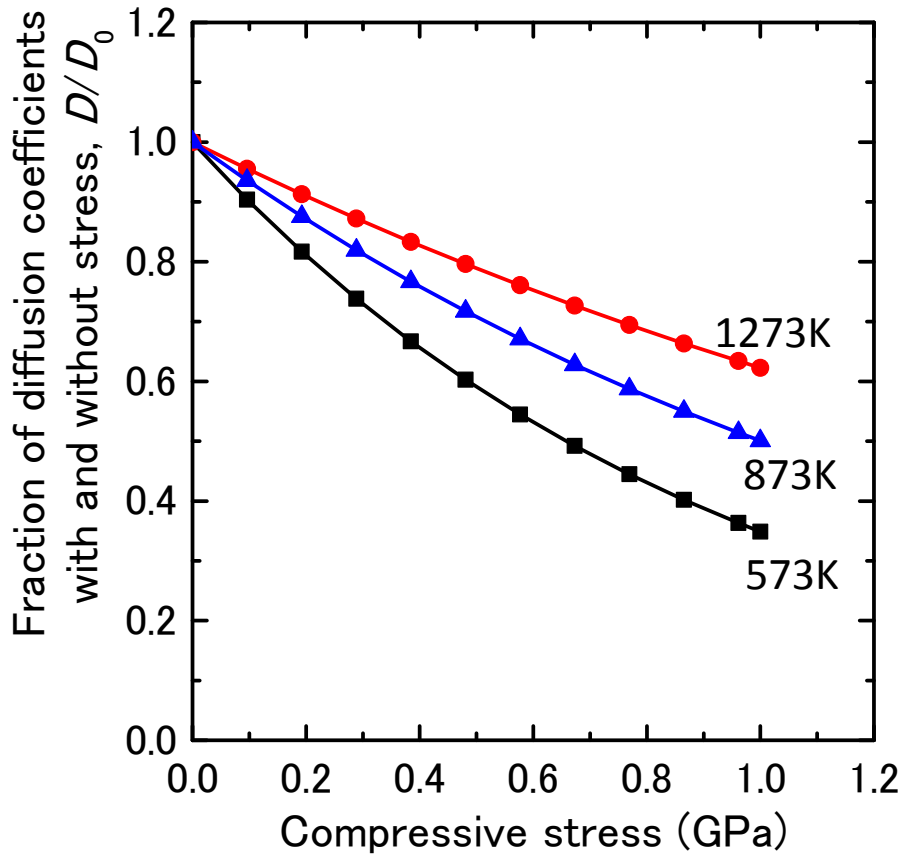


図 2.4-9 a 軸方向に応力が作用した時の拡散係数の温度，応力依存性

表 2.4-5 温度 300°Cにおける 1GPa の圧縮応力が作用した時の拡散係数の変化率

	Isotropic	a-axial	b-axial	c-axial
D/D₀	0.376	0.347	0.581	0.559

2.4.5 酸化膜成長速度の応力依存性

酸素イオンが酸化膜表面から酸化膜/金属界面へ拡散する 1 次元の拡散モデルを用いて，被覆管酸化膜の成長速度を評価した．被覆管の径方向にメッシュを区切り，それぞれのメッシュの酸素濃度の時間変化を下記の拡散方程式を解くことで算出した．

$$\frac{dC}{dt} = D \frac{d^2C}{dx^2} \quad (2.4-3)$$

ここで、 C はそれぞれのメッシュの酸素濃度、 t は時間、 x は酸化膜表面（水側）から被覆管内側への距離を表す。また、酸素の拡散係数 D は酸化膜の成長と共に圧縮応力の影響で低下する。圧縮応力については、実験知見^[24-27]をもとに酸化膜厚さに比例し、厚さ $2\mu\text{m}$ のとき最大値 1GPa になると仮定した。

図 2.4-10 は実際に拡散方程式を解き、酸化膜厚さの成長速度を評価した結果である。ただし、本研究では拡散係数の定量的な値は評価していないため、ここでは、拡散係数の低下率を基に酸化膜成長速度の応力依存性を定性的に評価している。応力が作用していない条件では、拡散係数が一定であり、酸化膜厚さが時間の $1/2$ 乗に比例する一般的な拡散律速過程の条件を満たしている。拡散係数の応力依存性を考慮した条件では、酸化膜の成長と共に拡散係数が低下し、結果として酸化膜の成長速度も低下する。応力を考慮した条件では酸化膜厚さは、時間の $1/3$ 乗との比例関係に近づいており、実験的に得られる結果と定性的に一致している。本研究結果から、 ZrO_2 酸化膜に作用する応力の影響による拡散係数の低下を考慮することで、実験的に知られている遷移前の $1/3$ 乗則を説明し得ることが示された。

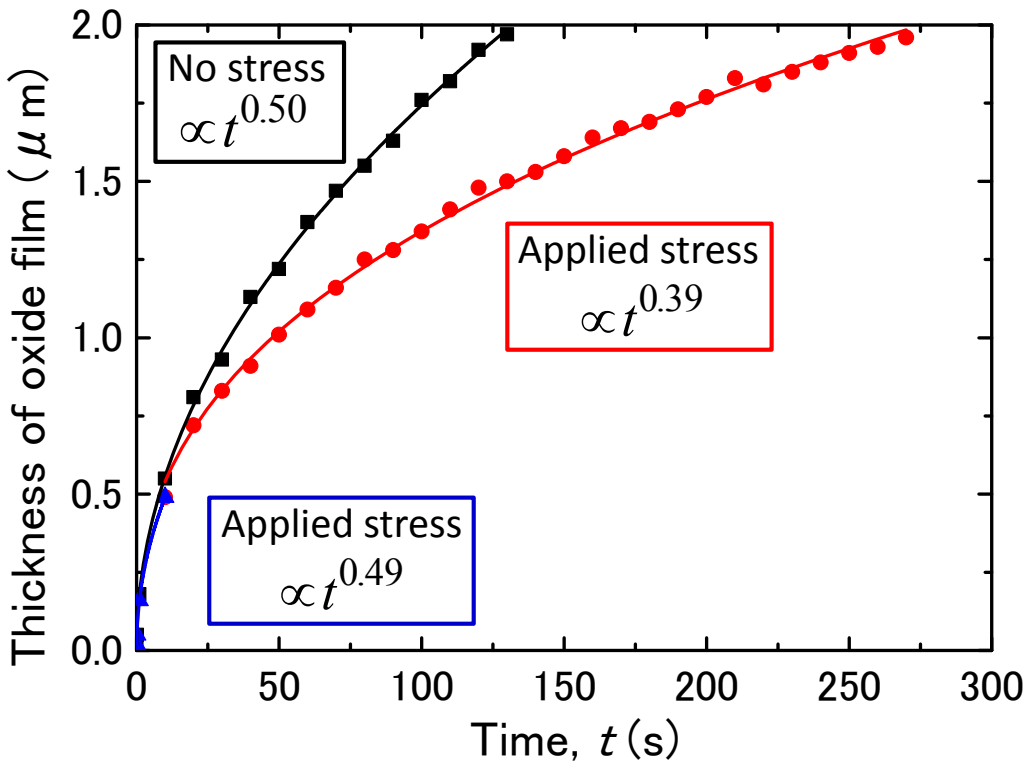


図 2.4-10 ZrO_2 酸化膜厚の経時変化

2.5 第2章のまとめ

燃料健全性を評価するために重要な燃料被覆管の酸化プロセスについて、第一原理量子計算による原子レベルの解析によって律速過程の解明を試みた。得られた成果を以下に示す。

- 空孔形成エネルギー、移動エネルギー共に圧縮応力が作用するとエネルギーが上昇する。
- ZrO_2 酸化膜で想定される 1GPa 程度の圧縮応力が作用した条件では、エネルギー上昇は、わずか 0.052eV 程度だった。しかし、使用環境で想定される温度 300°C の条件では拡散係数を 1/3 程度に低下させるほどの影響が見られた。
- 拡散係数の応力依存性を考慮して酸化膜の成長速度を評価した結果、応力の影響によって酸化膜の成長速度が低下し、実験的に評価されている遷移前の 1/3 乗則に近づくことが示唆された。
- 本成果は、燃料被覆管の遷移前の酸化速度における 1/3 乗則に理論的な根拠を与え得るものである。この予測式と遷移に関する実験的知見を合わせることで、遷移時期を高い精度で予測することも可能となり、燃料の破損率を低く抑えることが出来る使用期間の検討につながる事が期待できる。

[第 2 章の参考文献]

- [1] 山本有紀 他, 原子力発電 BWR の燃料・炉心技術, 東芝レビュー, 50(11), 815 (1995).
- [2] 日本原子力学会核燃料部会, 燃料高度化技術戦略マップ 2008-2009 (2008).
- [3] A. B. Johnson, Jr., J. E. Lesurf, R. A. Proebstle, ASTM STP 551, 495 (1974).
- [4] F. Nagase, T. Fuketa, J. Nucl. Sci. Tech., 42, 2, 209 (2005).
- [5] F. Nagase, T. Fuketa, J. Nucl. Sci. Tech., 41, 7, 723(2004).
- [6] S. Shimada, E. Etoh, H. Hayashi, Y. Tukuta, J. Nucl. Mater., 327, 97 (2004).
- [7] E.Hillner, ASTM STP, 663,211 (1977) .
- [8] M. Suzuki, H. Saitou,, JAEA-Data/Code 2005-003, Japan Atomic Energy Agency (JAEA) (2005).
- [9]原子力安全研究協会, 軽水炉燃料のふるまい, (1998).
- [10] 日本機械学会, ジルコニウム合金ハンドブック, 日刊工業新聞社 (1997).
- [11] B. Cox, J. Nucl. Mater., 28, 1 (1968).
- [12] K. Hauffe, Oxidation of Metals, Plenum, N. Y., (1965).
- [13] B. Cox, in: M. G. Fontana, R. W. Staehle (Eds.), Advances in Corrosion Science and Technology, 5, 173 (1976).
- [14] J. M. Soler, E. Artacho, J. D. Gale, A. Garcia, J. Junquera, P. Ordejon, D. Sanchez-Portal, J. Phys.: Condens. Matter, 14, 2745 (2002).
- [15] N.Troullier, J. L. Martins, Phys. Rev. B, 43 1993 (1991).
- [16] L. Kleinman, D. M. Bylander, Phys. Rev. Lett., 48 1425 (1982).
- [17] J. Y. Park, H. G. Kim, Y. H. Jeong, Y. H. Jung, J. Nucl. Mater., 335, 433 (2004) .
- [18] H. J. Monkhorst, J. D. Pack, Phys. Rev., B13, 5188 (1976).
- [19] C. B. Alcock, K. T. Jacob, S. Zador, O. K. Goldbeck, A. Novotny, K. Sefert, O. Kubashevski., Atomic Energy Review, Special Issue No. 6, O. Kubaschewski (Ed.), IAEA, Vienna (1976).
- [20] F. D. Murnaghan, Am. J. Math., 59, 235 (1937).
- [21] Xu-Shan Zhao, Shun-Li Shang, Zi-Kui Liu, Jian-Yun Shen, Journal of nuclear materials, 415, 13, (2011)
- [22] C. J. Howard, R. J. Hill, B. E. Reichert, Acta Cryst., B44, 116 (1988).
- [23] S. K. Chan, Y. Fang, M. Grimsditch, Z. Li, M. V. Nevitt, W. M. Robertson, E. S. Zouboulis, J. Am. Ceram. Soc., 74 , 1742 (1991).
- [24] J. Godlewski, Tenth International Symposium ASTM STP, 1245, 663 (1994).
- [25] H. J. Beie, A. Mitwalski, F. Garzarolli, H. Ruhman, H. J. Sell, Tenth International Symposium ASTM

STP, 1245, 615 (1994).

[26] Xian-Ming Bai, Yongfeng Zhang, Michael R. Tonks, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 15, 19438 (2013).

[27] D.H.Bradhurst, P.M. Heur, *J.Nucl.Mater*, 37, 35 (1970).

第3章 材料照射損傷モデル

原子力材料は一般の工業材料とは異なり、高エネルギー粒子の照射を受ける過酷な環境で使用され劣化する。そのため、原子力材料の健全性を予測するためには材料照射損傷の進展を精確に予測することが重要である。また、材料の照射損傷プロセスは時間的・空間的にマルチスケールな現象であり、様々な数値解析手法を相補的に用いた評価が必要である。本研究では、分子動力学法やモンテカルロ法による解析結果を相補的に用い、これまで理論的な扱いが困難であった欠陥集合体形成過程を、“定常核生成の仮定”を用いずに記述しうるモデリングの方法論を示した。これにより、集合体形成に関するモデルの適用範囲を高温側へと拡張することに成功した。

3.1 炉内材料の照射損傷

原子炉で使用される材料が一般的な構造材料と比べて大きく異なる点は、核分裂反応によって生成される中性子等の高エネルギー粒子の照射環境下で使用される点である。高エネルギー粒子の衝突によって材料構成原子は正規の格子位置からはじき出され、格子間原子や原子空孔といった照射欠陥が生成される。格子間原子が円盤状に集合化した転位ループの形成は材料強度の変化に寄与することが知られている。また、空孔の集合体であるボイドが形成されるとそこに含まれる格子点の数に対応する分だけ体積が増加し、材料の寸法安定性に悪影響を及ぼす。そのため、炉内で使用される材料の経年劣化を予測するためには、材料の照射損傷プロセスを正しく考慮する必要がある。

3.2 照射損傷プロセス

材料の照射損傷プロセスは、材料構成原子のはじき出しや不純物原子の生成といった原子レベルの現象に起因し、時間の経過と共に欠陥が材料中を拡散し、相互作用するスケールを広げながら欠陥集合体の形成、材料の微細構造変化、さらにはマクロな材料特性変化へとつながる。図 3.2-1 に材料照射損傷プロセスの時間スケール・空間スケールの概略を示す。このように、材料の照射損傷プロセスは対象とする現象が時間的にも空間的にも非常に幅広く、多様な物理を内包している。このようなマルチスケールな現象を単一の手法で評価することは不可能であり、様々な実験手法や数値解析手法を相補的に用いて評価を行う必要がある。

照射場を定量化するための指標として、単位原子当たりのはじき出し数を表す dpa (displacement per atom) が一般的に用いられている。しかし、単位時間当たりのはじき出し数である損傷速度 (dpa/s) は商用炉や材料試験炉等の照射施設によって大きく異なり、同一の照射施設でも材料が配置される場所によって桁違いである。また、損傷速度に代表される照射能力を定量化する指標は、マルチスケールな材料照射損傷プロセスにおける初期の欠陥形成プロセスに関する情報に過ぎない。問題となる材料のミクロ組織変化や機械特性変化といったマクロな情報とは大きな隔たりがある。そのため、材料の照射条件と材料劣化を結び付けるための方法論が必要である。モデリング手法は、実験的手法のみでは取得が困難な微視的な情報を補完する手段として有効である。本研究では、分子動力学法やモンテカルロ法による解析結果を相補的に用いて、欠陥集合体の形成プロセスを理論的に取り扱うことができるモデルを構築した。

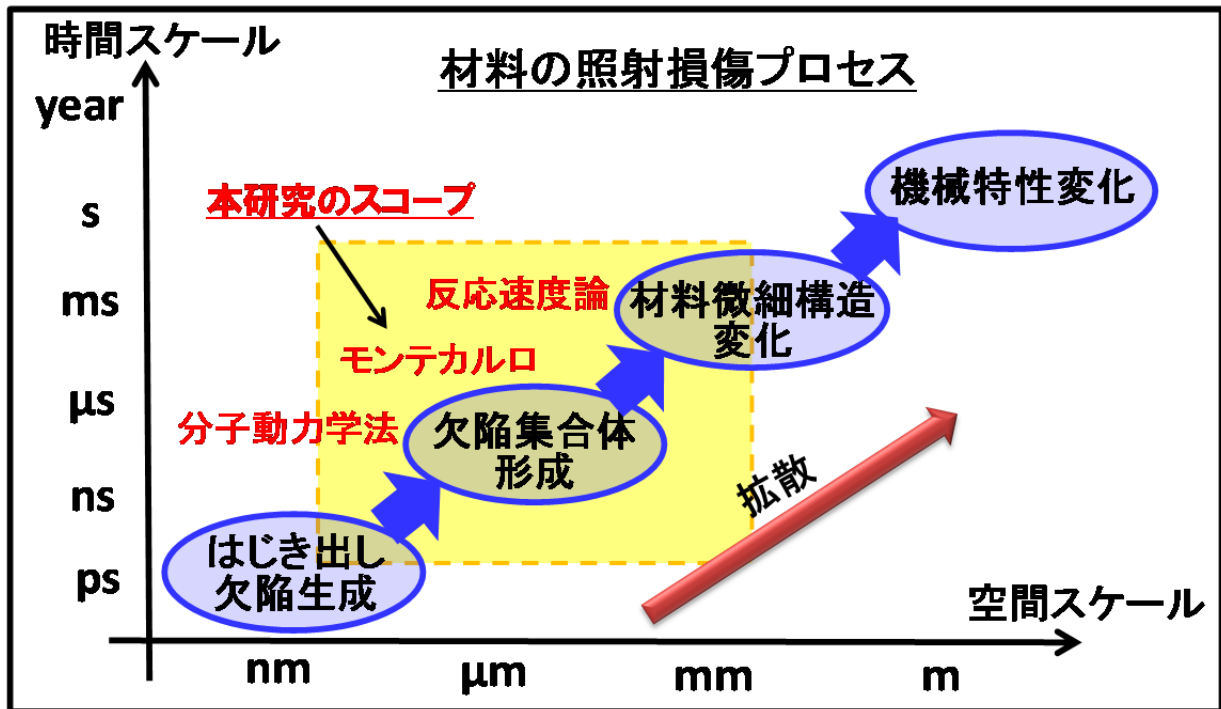


図 3.2-1 照射損傷プロセスのマルチスケール性

結晶中の欠陥集合体形成プロセスを解析的に評価する手法として反応速度論的手法が用いられる。この手法は点欠陥濃度の時間変化を反応速度式で記述し、差分法によって、欠陥濃度の時間変化を求める手法であり実験結果との比較が容易である。しかし、反応速度式を構築するためには数多くのパラメータを設定する必要があり、そのために数値解析手法をもとに得られた結果や実験結果が用いられる。反応速度論モデルにおける取り扱いが困難なプロセスとして、欠陥集合体の核生成プロセスが挙げられる。ボイドや転位ループ等の欠陥集合体が形成されると、材料の機械特性や寸法安定性に影響を与えることが知られており、これまでに転位ループやボイドの核生成・成長プロセスを評価するために数多くのモデルが提案されてきた^[1-6,7-8]。欠陥集合体の形成プロセスは、欠陥集合体がある程度大きなサイズに成長するまでエネルギー的に不安定であり平均的には収縮する（図 3.2-3）。この欠陥集合体が安定な核に成長するまでの核生成プロセスは温度や損傷速度（dpa/s）等の照射条件に強く依存するが、平均的な取り扱いが困難であり、反応速度論解析においては欠陥集合体の臨界サイズなど多くの仮定を置かざるを得なかった。本研究では、分子動力学法を用いて評価された欠陥エネルギー論を取り入れ、ボイド核生成プロセスを取り扱うモンテカルロモデルを構築し、従来の“定常核生成モデル”との比較を行った。さらに、ボイドと転位ループの核生成・成長を取り扱うことが出来る反応速度論モデルを構築し、解析を行った。

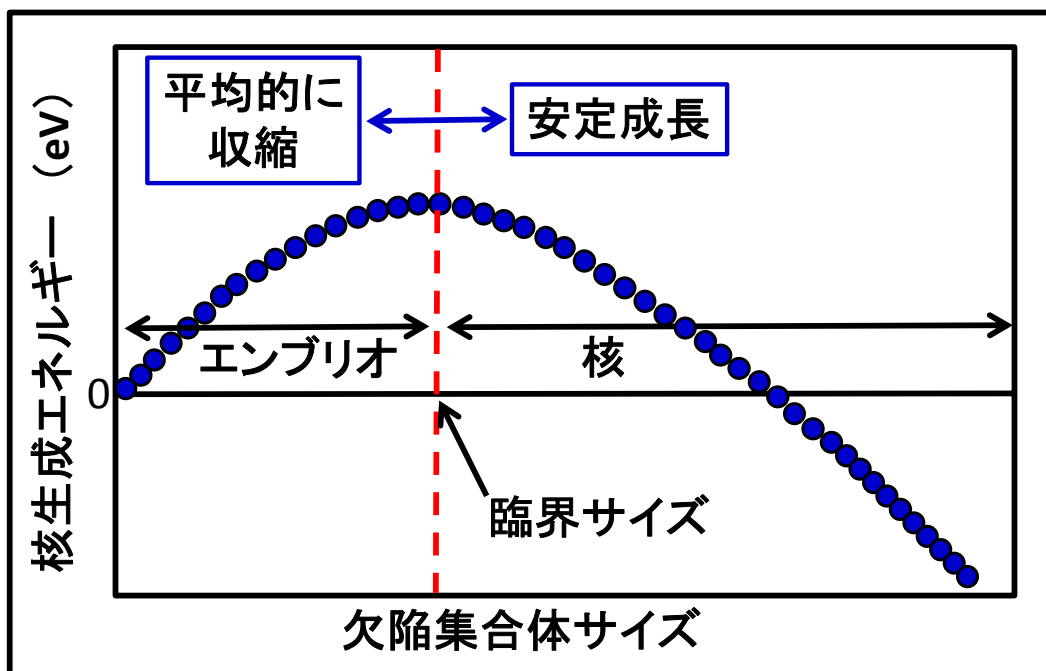


図 3.2-3 欠陥集合体核生成エネルギーのサイズ依存性

3.3 欠陥エネルギー論

核生成プロセスを理論的に取り扱うためには、欠陥集合体の熱的安定性を考慮したモデルを構築する必要がある。本研究では、分子動力学法によって評価された α -Fe 中の転位ループとボイドの形成エネルギーの情報をもとに構築された連続体モデルを用いた。欠陥集合体の形成エネルギーは集合体サイズ n の関数として以下のように記述することが出来る^[9]。

$$E_m^f = 1.1392n + 4.7035n^{1/2} \quad (3.3-1)$$

$$E_{nV}^f = 2.7906n^{2/3} - 0.75526n^{1/3} \quad (3.3-2)$$

E^f は欠陥集合体の形成エネルギー、下付き文字 nI , nV はサイズ n (n 個の単欠陥から成る) の転位ループおよびボイドをそれぞれ表す。図 3.3-1 に欠陥集合体形成エネルギーのサイズ依存性を示す。サイズに対する増加関数であり、転位ループの方がボイドよりも形成エネルギーが高い。さらに、欠陥集合体の形成エネルギーの情報をもとに欠陥集合体と単欠陥の結合エネルギーを次式で記述できる。

$$E_{I,nI}^b = E_I^f - \frac{\partial E_{nI}^f}{\partial n} \quad (3.3-3)$$

$$E_{V,nV}^b = E_V^f - \frac{\partial E_{nV}^f}{\partial n} \quad (3.3-4)$$

$E_{I,nI}^b$ はサイズ n の転位ループと SIA の結合エネルギー, $E_{V,nV}^b$ はサイズ n のボイドと空孔の結合エネルギー, E_I^f は SIA 形成エネルギー, E_V^f は空孔形成エネルギーをそれぞれ表す. ここでいう結合エネルギーとは, 欠陥集合体の中から単欠陥を 1 個取り除いてマトリクス中に置くために必要なエネルギーを指す. 図 3.3-2 に結合エネルギーのサイズ依存性を示す. 結合エネルギーは欠陥集合体サイズが大きくなるほど高くなり, 集合体が安定になる. また, 転位ループと SIA の結合エネルギーはボイドと空孔の結合エネルギーよりも非常に高く, 転位ループの方が材料中に安定に存在することが分かる. このような分子動力学法によって評価された欠陥エネルギー論の情報を取り入れることで, 核生成プロセスを理論的に取り扱うことが出来るモデルを構築することが可能である.

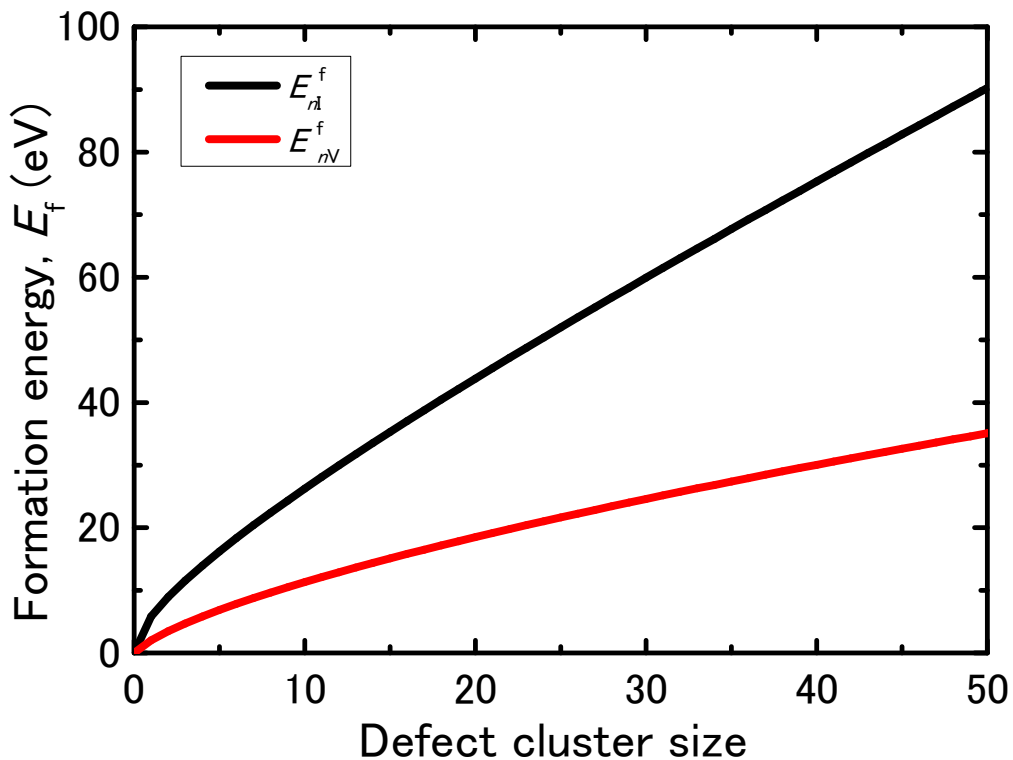


図 3.3-1 欠陥集合体形成エネルギーのサイズ依存性

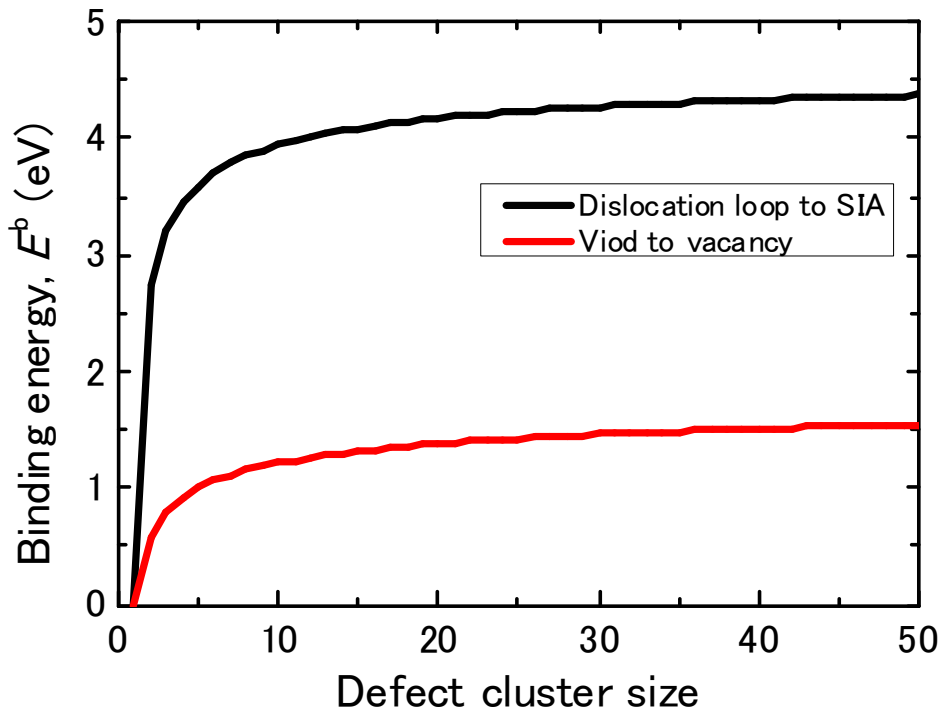


図 3.3-2 欠陥集合体と単欠陥の結合エネルギーのサイズ依存性

3.4 ボイド核生成のモンテカルロモデル

本節では分子動力学法で得られた欠陥エネルギー論をもとに構築したボイドの核生成・成長プロセスを取り扱うモンテカルロモデル^[10]を用いた評価について紹介する。照射環境下では、材料中に空孔や格子間原子、核変換生成物等の非平衡欠陥が数多く生成する。このような非平衡な系を幅広く一様に取り扱うことは困難である。本研究モデルでは、1つのボイドに着目し、ボイドに対する照射欠陥（空孔、自己格子間原子（SIA））の流入及び流出を考慮することでボイドの核生成・成長プロセスを取り扱うことができる。モデルとして以下のことを仮定する。

- ボイドの成長と収縮は空孔と格子間原子の流入・流出によって決まる。
- ボイドに対する欠陥フラックスは、ボイドから無限遠に離れたマトリクス中とボイド近傍の欠陥の濃度勾配によって決まる。
- 系の中に、転位ループが存在するとし、バイアス効果（格子間原子の方が空孔より転位ループに吸われやすく、残った空孔によってボイドが形成する）が働くとする。
- マトリクス中の空孔と SIA は定常濃度に達しているとする。
- ボイドは球体として扱う。

3.4.1 評価手法

3.4.1.1 欠陥フラックス

ボイドに対する欠陥フラックスは次式で表すことができる。

$$J_v^{\text{IN}} = \frac{4\pi R}{\Omega} D_v C_v \quad (3.4-1)$$

$$J_v^{\text{OUT}} = \frac{4\pi R}{\Omega} D_v C_v^0 \quad (3.4-2)$$

$$J_1^{\text{IN}} = \frac{4\pi R}{\Omega} D_1 C_1 \quad (3.4-3)$$

$$J_1^{\text{OUT}} = \frac{4\pi R}{\Omega} D_1 C_1^0 \quad (3.4-4)$$

ここで、 R はボイド半径、 Ω は原子体積、 D は拡散係数、 C はマトリクス中の欠陥濃度、 C^0 はボイド近傍の欠陥濃度である。添え字の v 、 1 はそれぞれ空孔、格子間原子を表す。

また、 J_v^{IN} はボイドへの空孔流入フラックス、 J_v^{OUT} はボイドからの空孔流出フラックスであり、空孔が流入すればボイドは成長し、流出すればボイドは収縮する。 J_1^{IN} はボイドへのSIA流入フラックス、 J_1^{OUT} はボイドからのSIA流出フラックスで、SIAが流入すればボイドは収縮し、流出すればボイドは成長する。これらの欠陥フラックスの値を求めるためには、ボイド近傍の欠陥濃度とボイドから無限遠に離れたマトリクス中の欠陥濃度を導出する必要がある。

3.4.1.2 ボイド近傍の欠陥濃度

局所平衡を仮定すると、ボイド近傍の欠陥濃度はボイドに対する欠陥の結合エネルギーを用いて以下のように記述できる。

$$C_v^0 = \exp\left(-\frac{E_v^{\text{bind}}}{kT}\right) \quad (3.4-5)$$

$$C_1^0 = \exp\left(-\frac{E_1^{\text{bind}}}{kT}\right) \quad (3.4-6)$$

式(3.3-2)を用いて評価されるエネルギーとの比較から、ボイドの形成エネルギーは表面エネルギーを用いて次式で近似できる^[9].

$$E_{nV}^f = \gamma S \left(1 - \frac{\delta}{R} \right) \quad (3.4-7)$$

$$n\Omega = \frac{4}{3} \pi R^3 \quad (3.4-8)$$

γ は表面エネルギー、 S はボイドの表面積、 δ は未定定数である。 π は円周率、 R はボイドの半径を表す。これによって、ボイド形成エネルギーはボイドサイズの関数として表すことができ、幅広い材料に適用が可能となる。本研究で計算対象とした α -Feの物性値を表3.4-1に示す^[9,11].

表 3.4-1 材料物性値

	Fe(bcc)
空孔形成エネルギー, E_{fv} (eV)	2.03 ^[9]
SIA 形成エネルギー, E_{fi} (eV)	5.84 ^[9]
表面エネルギー, γ (eV/nm ²)	11.15 ^[9]
格子定数, a_0 (Å)	2.867 ^[11]
空孔移動エネルギー, E_{mv} (eV)	0.74 ^[11]
SIA 移動エネルギー, E_{mi} (eV)	0.058 ^[11]
転位密度, ρ (m ⁻²)	10 ¹⁴

3.4.1.3 マトリクス中の欠陥濃度

マトリクス中の欠陥濃度は、定常濃度を仮定した条件で以下の反応速度式から求められる。

$$\frac{dC_I}{dt} = P - \frac{4\pi r_0}{\Omega} (D_I + D_V) C_I C_V - K_{sl} D_I C_I \quad (3.4-9)$$

$$\frac{dC_V}{dt} = P - \frac{4\pi r_0}{\Omega} (D_I + D_V) C_I C_V - K_{sv} D_V C_V \quad (3.4-10)$$

$$B = \frac{Z_{sl} - Z_{sv}}{Z_{sl}} \quad (3.4-11)$$

P は損傷速度、 r_0 は原子半径、 K_s はシンク強度、 Z_s は転位線を想定したシンクの欠陥捕獲率、 B は転位バイアスを表している。式(3.4-9)、(3.4-10)の右辺第一項は欠陥の生成率、第二項は空孔と格子間原子の再結合による消滅率、第三項は転位ループに吸われることによる欠陥の消滅率をそれぞれ表している。式(3.4-11)は転位線のバイアス効果^[12]を表しており、格子間原子と空孔の転位ループへの吸われやすさの違いを表している。このように、マトリクス中の欠陥濃度は損傷速度や温度、シンク強度の関数となっており、ボイドへの欠陥の流入フラックスは照射条件とシンク強度によって決まる。

3.4.1.4 モンテカルロ計算

空孔と格子間原子の流入・流出フラックスから、ボイドが成長するか収縮するかを決定する。考えるべき事象は4つあり、それぞれの事象が起こる確率は欠陥フラックスの割合に比例する。ボイドに空孔が流入する確率を P_1 、空孔が流出する確率を P_2 、格子間原子が流入する確率を P_3 、格子間原子が流出する確率を P_4 とすると、これらは以下のように表される。

$$P_1 = \frac{J_V^{IN}}{J_V^{IN} + J_V^{OUT} + J_I^{IN} + J_I^{OUT}} \quad (3.4-12)$$

$$P_2 = \frac{J_V^{OUT}}{J_V^{IN} + J_V^{OUT} + J_I^{IN} + J_I^{OUT}} \quad (3.4-13)$$

$$P_3 = \frac{J_1^{\text{IN}}}{J_V^{\text{IN}} + J_V^{\text{OUT}} + J_1^{\text{IN}} + J_1^{\text{OUT}}} \quad (3.4-14)$$

$$P_4 = \frac{J_1^{\text{OUT}}}{J_V^{\text{IN}} + J_V^{\text{OUT}} + J_1^{\text{IN}} + J_1^{\text{OUT}}} \quad (3.4-15)$$

$P_1 \sim P_4$ は0~1となり，総和は1である．ここで，乱数 rn を0から1の間でとり，乱数 rn が

$$0 \leq rn \leq P_1 \quad (3.4-16)$$

であれば，空孔が流入してボイドは成長，

$$P_1 < rn \leq P_1 + P_2 \quad (3.4-17)$$

であれば，空孔が流出してボイドは収縮，

$$P_1 + P_2 < rn \leq P_1 + P_2 + P_3 \quad (3.4-18)$$

であれば，格子間原子が流入してボイドは収縮，

$$P_1 + P_2 + P_3 < rn \leq 1 \quad (3.4-19)$$

であれば，格子間原子が流出してボイドは成長する．図 3.4-1 に乱数と発生事象の対応関係を示す．この作業を繰り返し，各サイズでボイドが成長するか収縮するかを決めていく．また，各事象にかかるタイムステップ Δt は

$$\Delta t = -\frac{\ln(rn)}{J_V^{\text{IN}} + J_V^{\text{OUT}} + J_1^{\text{IN}} + J_1^{\text{OUT}}} \quad (3.4-20)$$

と表され^[13]，このタイムステップの臨界核に達するまでの総和がボイド核生成の潜伏期間となる．また，ボイドサイズが1のときに，格子間原子が流入した場合は，そのボイドは消滅したものとして，試行をやめる．試行を1回とカウントした後，再びボイドサイズ1から計算を開始する．この作業をボイド核が10000回生成するまで繰り返し，潜伏期間や核生成率等を算出した．

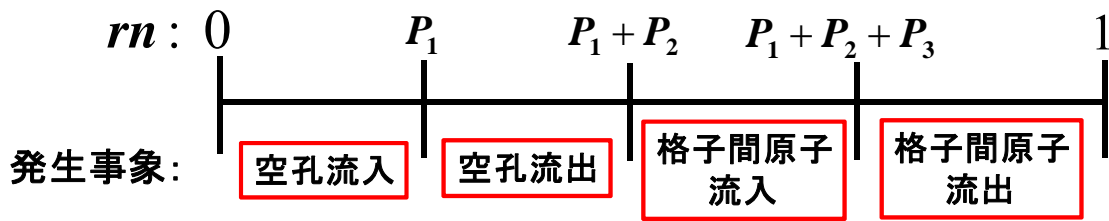


図 3.4-1 乱数と発生事象の対応

3.4.2 ボイド核生成の潜伏期間・潜伏照射量

照射環境下におけるボイド核生成・成長プロセスのモンテカルロ計算を行った。空孔と格子間原子の再結合によって多くの事象では、ボイド核が形成されることなく消滅する。本研究では特にボイドが臨界サイズに達するまでの核生成プロセスに着目した評価を行った。ボイドの臨界サイズは欠陥フラックスを用いて次式から算出できる。

$$J^{\text{Net}} = J_{\text{V}}^{\text{IN}} - J_{\text{V}}^{\text{OUT}} - J_{\text{I}}^{\text{IN}} + J_{\text{I}}^{\text{OUT}} \quad (3.4-21)$$

J^{Net} はボイドの正味の成長フラックスである。正味の成長フラックスが負であればボイドは平均的に収縮し、正であれば平均的に成長する。そして J^{Net} が 0 となるときのボイドサイズがボイド核臨界サイズである。実際には、ボイド中に含まれる空孔の数は整数値で変化するため、本研究では J^{Net} が正に転じるサイズを臨界サイズと定義した。また、ボイドが臨界サイズに達するまでにかかった時間をボイド核生成の潜伏期間と定義して評価を行った。

図 3.4-2 に核生成潜伏期間の温度・損傷速度依存性を示す。温度が高いほど欠陥が動きやすいため潜伏期間は短くなっている。また、同一の温度では損傷速度が速いほど材料中の空孔濃度が高くなるため、潜伏期間が短くなっている。

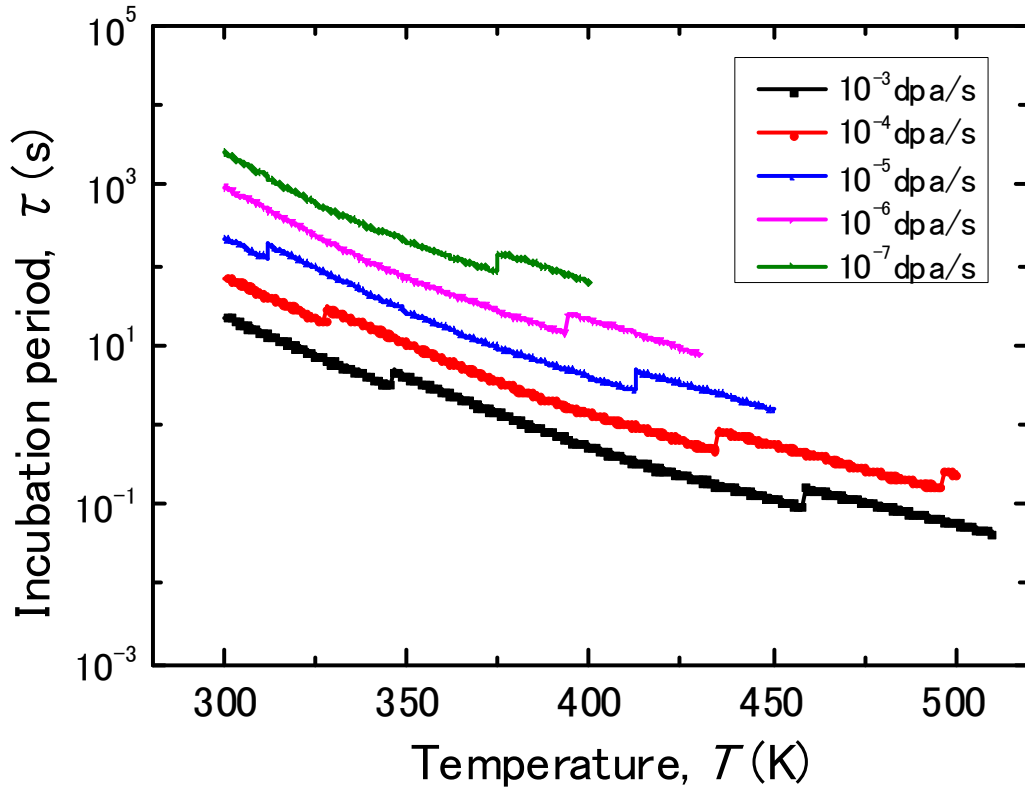


図 3.4-2 核生成潜伏期間の温度・損傷速度依存性

次に、潜伏期間(s)と損傷速度(dpa/s)の積で表される潜伏照射量(dpa)について評価を行った。図 3.4-3 に潜伏照射量の温度・損傷速度依存性を示す。図 3.4-2 に示した潜伏期間のグラフとは損傷速度依存性が逆転したような形状になっており、損傷速度が高いほど潜伏照射量が大きくなっている。これは、反応速度式の再結合項がシンク項よりも大きい再結合優勢の条件では、空孔濃度が損傷速度の 1/2 乗に比例するためである。例えば、損傷速度を 100 倍速くしたとしても空孔濃度は 10 倍程度にしかならず、損傷速度が速いほど照射量当たりの核生成効率が低下することを示している。

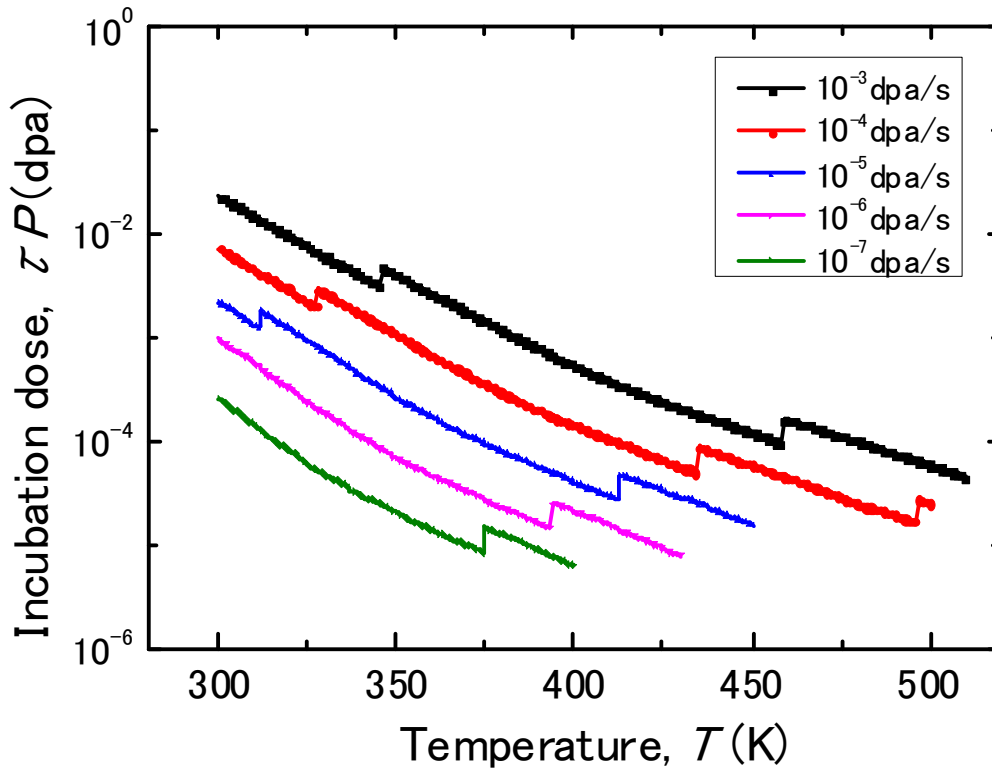


図 3.4-3 潜伏照射量の温度・損傷速度依存性

3.4.3 核生成率の評価

モンテカルロ計算で得られた潜伏期間をもとに、単位時間あたりに生成するボイド核の数（核生成率）を算出した。本研究では、潜伏期間の情報と再結合によってボイドが消滅する確率を考慮して次式で核生成率 I を定義し、評価を行った。

$$I = \frac{n}{m} \times \frac{1}{\tau} \quad (3.4-22)$$

n は核生成した回数(10000 回で統一)、 m は消滅も含めた全試行回数、 τ は核生成した事象の潜伏期間の平均値を表す。図 3.4-4 に核生成率の温度、損傷速度依存性を示す。このようにボイド核生成にはピーク温度が存在する。これは、低温側では欠陥が動きにくく、高温側ではボイドが熱的に不安定になり核生成しにくくなるためである。また、損傷速度が高くなるほどピーク温度は高温側にシフトしている。このようなピーク温度のシフトは、損傷速度が空孔過飽和度を与える影響とボイドの熱的安定性のバランスによって決まる。また、実験観察されるボイドスエリング^[14]や Brailsford らのボイド成長の理論^[8]でも同様のピーク温度のシフトが見られる。

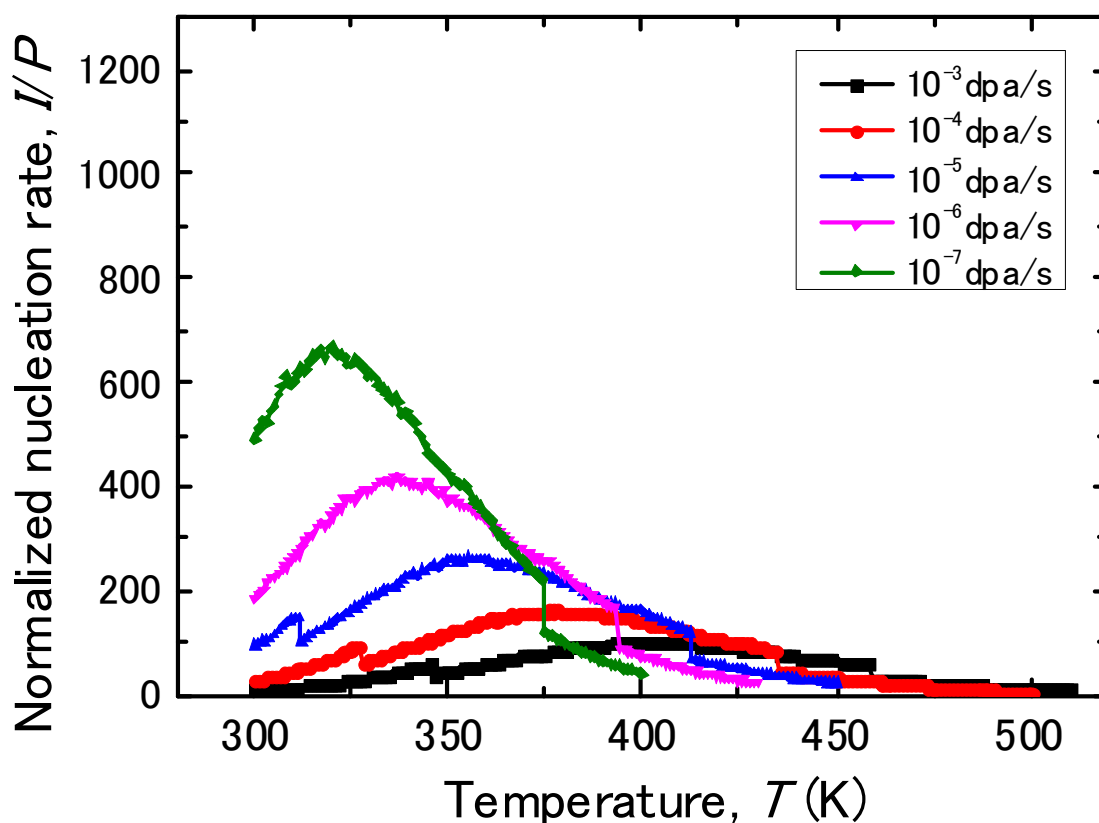


図 3.4-4 核生成率の温度・損傷速度依存性

3.4.4 定常核生成理論との比較

ボイドが臨界核に達するまでのエンブリオの状態では、ボイドはエネルギー的に不安定であり平均的には収縮へと向かう。そのため、ボイドの核生成プロセスを解析することは非常に困難である。Mansur は、対象とする系の中のエンブリオのサイズ分布を一定とし、定常状態での核生成理論を提案している^[8]。定常核生成理論では、以下の関係が成り立つ。

$$M \propto D_V C_V^2 \quad (3.4-23)$$

ここで、 M は核生成率を表す。この関係式は核生成率が、空孔の存在確率 C_V と空孔のフラックス $D_V C_V$ の積、つまり 2 つの空孔が出会う確率に比例することを意味している。また、前項で記述した核生成率 I は 1 つの空孔当たりの核生成率であるため、 M との対応関係は、

$$M \propto IC_v \quad (3.4-24)$$

であり、定常核生成理論が成り立つならば、

$$I \propto D_v C_v \quad (3.4-25)$$

の関係が成り立つと考えられる。式 (3.4-25) の関係を用いて、本研究モデルの計算結果と定常核生成モデルとの比較を行った。

図 3.4-5 は温度ごとに整理した核生成率 I と空孔フラックス $D_v C_v$ の関係を表している。ここで、定常核生成理論が成り立つならば、傾き 1 の直線となる。温度が低い条件では、ほぼ直線の傾きが 1 になっており、定常核生成理論と矛盾がない結果が得られた。これは、低温ではボイドが熱的に安定であり、2 つの空孔が会おうと安定に成長を始めるためである。しかし、温度が高くなるほど傾きのずれが大きくなっており、高温では定常核生成理論とは矛盾が生じた。これは、高温ではボイドが熱的に不安定となりボイドの解離が無視できなくなるためである。そのため、定常核生成理論から矛盾が生じたと考えられる。欠陥集合体の核生成プロセスは、エネルギー的に不安定であり、平均的な取り扱いが困難である。そのため、定常状態を仮定した核生成理論では、集合体が熱的に不安定になる高温での適用に限界がある。本研究モデルは、分子動力学法によって得られたエネルギー論を取り込むことで核生成モデルの高温での適用範囲を広げることが可能である。

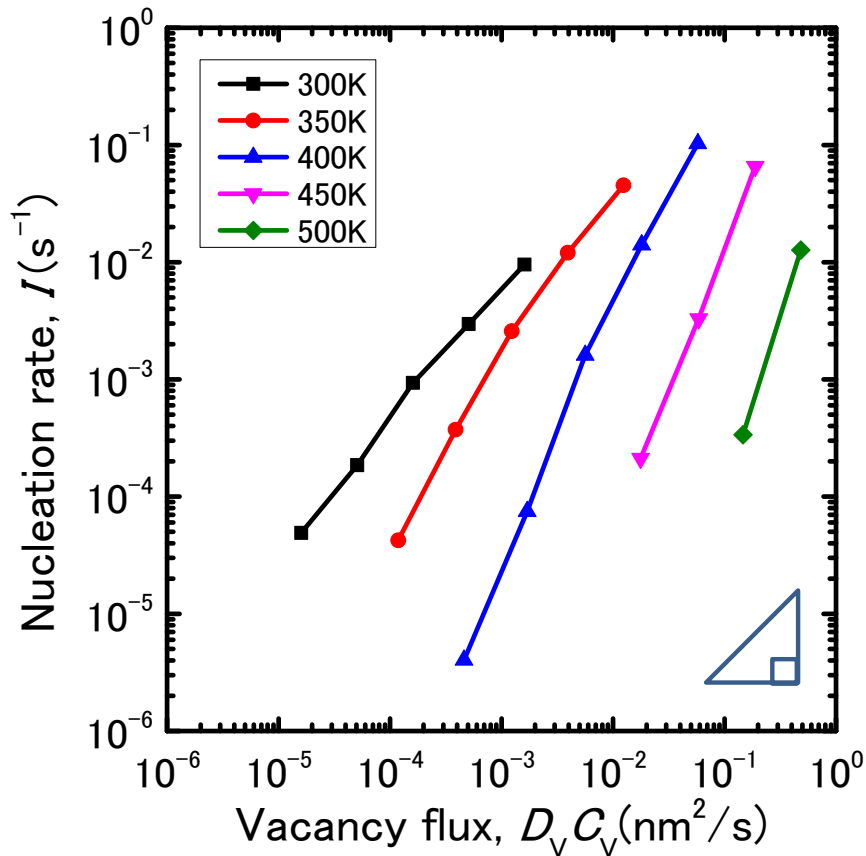


図 3.4-5 核生成率の空孔フラックス依存性

3.5 反応速度論モデル

次に、よりマクロな解析を得意とする反応速度論モデルに分子動力学法を用いて評価されたエネルギー論を取り入れ、核生成プロセスを理論的に取り扱うことが出来るモデルを構築した。本研究モデルは以下の仮定のもと構築された。

- はじき出し損傷によって SIA と原子空孔が同数生成される。
- 単欠陥（SIA，空孔）のみが材料中を移動する。
- SIA と空孔は対消滅する。
- 転位ループ（SIA 集合体）は円盤状，ボイド（空孔集合体）は球状として扱う。

以下に、本研究で用いたモデル式を示す。点欠陥（SIA：I，空孔：V）の反応速度式は次式で記述できる。

$$\begin{aligned}
\frac{dC_1}{dt} = & \eta P_1 (1 - C_V^{\text{tot}}) && \text{: 欠陥生成} \\
& - \frac{4\pi r_0}{\Omega} (D_V + D_I) C_V C_1 && \text{: 再結合消滅} \\
& - K_{SI} D_I C_1 && \text{: シンク消滅} \\
& - 2 \frac{4\pi r_0}{\Omega} D_I C_1 C_1 - \frac{\pi Z_1^{\text{loop}}}{\Omega} D_I C_1 (R_{2I} C_{2I} + R_{3I} C_{3I} + \dots + R_{MI} C_{mI} + R_{\text{ge}(M+1)I} C_{\text{ge}(M+1)I}) && \text{: SIAとループの結合} \\
& - \frac{4\pi}{\Omega} D_I C_1 (R_{2V} C_{2V} + R_{3V} C_{3V} + \dots + R_{MV} C_{MV} + R_{\text{ge}(M+1)V} C_{\text{ge}(M+1)V}) && \text{: SIAとボイドの結合} \\
& + \frac{\pi Z_1^{\text{loop}}}{\Omega} D_I (2R_{2I} C_{2I}^0 C_{2I} + R_{3I} C_{3I}^0 C_{3I} + \dots + R_{MI} C_{MI}^0 C_{MI}) && \text{: ループから SIAの解離} \\
& + \frac{\pi Z_V^{\text{loop}}}{\Omega} R_{2I} D_V C_V C_{I2} && \text{: 2Iと空孔の結合}
\end{aligned}
\tag{3.5-1}$$

$$\begin{aligned}
\frac{dC_V}{dt} = & \eta P_V (1 - C_V^{\text{tot}}) && \text{: 欠陥生成} \\
& - \frac{4\pi r_0}{\Omega} (D_V + D_I) C_V C_1 && \text{: 再結合消滅} \\
& - K_{SV} D_V C_V && \text{: シンク消滅} \\
& - \frac{\pi Z_V^{\text{loop}}}{\Omega} D_V C_V (R_{2I} C_{2I} + R_{3I} C_{3I} + \dots + R_{MI} C_{MI} + R_{\text{ge}(M+1)I} C_{\text{ge}(M+1)I}) && \text{: 空孔とループの結合} \\
& - \frac{4\pi}{\Omega} D_V C_V (2r_0 C_V + R_{2V} C_{2V} + R_{3V} C_{3V} + \dots + R_{MV} C_{MV} + R_{\text{ge}(M+1)V} C_{\text{ge}(M+1)V}) && \text{: 空孔とボイドの結合} \\
& + \frac{4\pi}{\Omega} D_V (2R_{2V} C_{2V}^0 C_{2V} + R_{3V} C_{3V}^0 C_{3V} + \dots + R_{MV} C_{MV}^0 C_{MV}) && \text{: ボイドから空孔の解離} \\
& + \frac{4\pi}{\Omega} R_{2V} D_I C_1 C_{2V} && \text{: 2VとSIAの結合}
\end{aligned}
\tag{3.5-2}$$

ここで、下付き文字 jI , jV は j 個の欠陥からなる転位ループとボイドをそれぞれ表す。 C は欠陥濃度、 D は拡散係数、 P は欠陥の生成速度 (dpa/s)、 η は欠陥の生成効率 (0.1 に設定)、 C_V^{tot} は全空格子点の数密度、 r_0 は原子半径、 R は欠陥集合体の半径、 Z_1^{loop} は転位ループの SIA に対する捕獲係数、 Z_V^{loop} は転位ループの空孔に対する捕獲係数、 π は円周率、 Ω は原子体積を表す。 $C_{\text{ge}(M+1)I}$, $C_{\text{ge}(M+1)V}$ はサイズ $M+1$ 以上の転位ループとボイドの濃度をそれぞれ表す。 また、 $R_{\text{ge}(M+1)I}$, $R_{\text{ge}(M+1)V}$ はサイズ $M+1$ 以上の転位ループとボイドの平均半径を表す。 サイズ $M=1000$ までの欠陥集合体は個別に反応速度式を立て、 サイズ $M+1$ 以上の集合体についてはまとめて取り扱った。

ここで、サイズ 2~ M の集合体の反応速度式は欠陥の流入及び流出を考慮して次式で表せる。

$$\begin{aligned} \frac{dC_{nl}}{dt} = & \frac{\pi Z_1^{\text{loop}} R_{(n-1)I}}{\Omega} D_1 C_1 C_{(n-1)I} + \frac{\pi Z_V^{\text{loop}} R_{(n+1)I}}{\Omega} D_V C_V C_{(n+1)I} - \frac{\pi Z_V^{\text{loop}} R_{nl}}{\Omega} D_V C_V C_{nl} \\ & - \frac{\pi Z_1^{\text{loop}} R_{nl}}{\Omega} D_1 C_1 C_{nl} + \frac{\pi Z_1^{\text{loop}} R_{(n+1)I}}{\Omega} D_1 C_{(n+1)I}^0 C_{(n+1)I} - \frac{\pi Z_1^{\text{loop}} R_{nl}}{\Omega} D_1 C_{nl}^0 C_{nl} \end{aligned} \quad (3.5-3)$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{nV}}{dt} = & \frac{4\pi R_{(n-1)V}}{\Omega} D_V C_V C_{(n-1)V} + \frac{4\pi R_{(n+1)V}}{\Omega} D_1 C_1 C_{(n+1)V} - \frac{4\pi R_{nV}}{\Omega} D_1 C_1 C_{nV} \\ & - \frac{4\pi R_{nV}}{\Omega} D_V C_V C_{nV} + \frac{4\pi R_{(n+1)V}}{\Omega} D_V C_{(n+1)V}^0 C_{(n+1)V} - \frac{4\pi R_{nV}}{\Omega} D_V C_{nV}^0 C_{nV} \end{aligned} \quad (3.5-4)$$

また、サイズ $M+1$ 以上の欠陥集合体の濃度は、サイズ $M+1$ の集合体が生成される反応率を考え、次式で記述できる。

$$\frac{dC_{\text{ge}(M+1)I}}{dt} = \frac{\pi Z_1^{\text{loop}} R_{MI}}{\Omega} D_1 C_1 C_{MI} - \frac{\pi Z_V^{\text{loop}} R_{(M+1)I}}{\Omega} D_V C_V C_{(M+1)I} - \frac{\pi Z_1^{\text{loop}} R_{(M+1)I}}{\Omega} D_1 C_{(M+1)I}^0 C_{(M+1)I} \quad (3.5-5)$$

$$\frac{dC_{\text{ge}(M+1)V}}{dt} = \frac{4\pi R_{MV}}{\Omega} D_V C_V C_{MV} - \frac{4\pi R_{(M+1)V}}{\Omega} D_1 C_1 C_{(M+1)V} - \frac{4\pi R_{(M+1)V}}{\Omega} D_V C_{(M+1)V}^0 C_{(M+1)V} \quad (3.5-6)$$

ここで、サイズ $M+1$ の欠陥集合体の濃度は濃度分布の情報に基づきディリクレ条件によって決定した。このとき、平均化したサイズ $M+1$ 以上の集合体に含まれる単欠陥の数密度は次式で記述できる。

$$\frac{dC_{\text{ge}(M+1)I-I}}{dt} = (M+1) \frac{dC_{\text{ge}(M+1)I}}{dt} + \frac{\pi Z_1^{\text{loop}} R_{\text{ge}(M+1)I}}{\Omega} D_1 C_1 C_{\text{ge}(M+1)I} - \frac{\pi Z_1^{\text{loop}} R_{\text{ge}(M+1)I}}{\Omega} D_V C_V C_{\text{ge}(M+1)I} \quad (3.5-7)$$

$$\frac{dC_{\text{ge}(M+1)V-V}}{dt} = (M+1) \frac{dC_{\text{ge}(M+1)V}}{dt} + \frac{4\pi R_{\text{ge}(M+1)V}}{\Omega} D_V C_V C_{\text{ge}(M+1)V} - \frac{4\pi R_{\text{ge}(M+1)V}}{\Omega} D_1 C_1 C_{\text{ge}(M+1)V} \quad (3.5-8)$$

式 (3.5-5) と式 (3.5-7) からサイズ $M+1$ 以上の転位ループの平均サイズ、式 (3.5-6) と式 (3.5-8) からサイズ $M+1$ 以上のボイドの平均サイズを次式で算出できる。

$$n_{\text{ge}(M+1)\text{I}} = \frac{C_{\text{ge}(M+1)\text{I-I}}}{C_{\text{ge}(M+1)\text{I}}} \quad (3.5-9)$$

$$n_{\text{ge}(M+1)\text{V}} = \frac{C_{\text{ge}(M+1)\text{V-V}}}{C_{\text{ge}(M+1)\text{V}}} \quad (3.5-10)$$

さらに、欠陥集合体近傍の単欠陥濃度 C^0 は、集合体近傍で局所平衡を仮定すると、式 (3.3-1), (3.3-2) から評価される結合エネルギーの関数として次式で導出できる。

$$C_{nl}^0 = \exp\left(-\frac{E_b^{1,nl}}{kT}\right) \quad (3.5-11)$$

$$C_{nv}^0 = \exp\left(-\frac{E_b^{V,nV}}{kT}\right) \quad (3.5-12)$$

本研究モデルでは、欠陥集合体の臨界サイズよりも十分大きいサイズ 1000 の集合体まで個別に反応速度式を立てており、熱的な解離が顕著な核生成プロセスについても理論的な取り扱いが可能である。ギア法^[15]を用いて反応速度式を数値積分することによって、欠陥濃度の時間変化を解析した。

3.5.1 欠陥濃度の時間変化

まず、本研究モデルの計算例として、図 3.5-1 に本研究モデルを用いて算出した欠陥濃度の時間変化を示す。照射の初期段階では、はじき出しによるフレンケル対 (SIA, 空孔) の形成が起こり、点欠陥の濃度が上昇する。時間の経過と共に拡散プロセスが顕在化し、SIA と空孔の再結合消滅、シンク消滅、さらに時間が経過すると欠陥集合体の形成が顕著になる。このように、時間によって顕在化する欠陥反応が異なり、拡散過程を考慮すると照射量だけではなく照射時間も材料照射損傷を評価するための重要な要素であることが分かる。

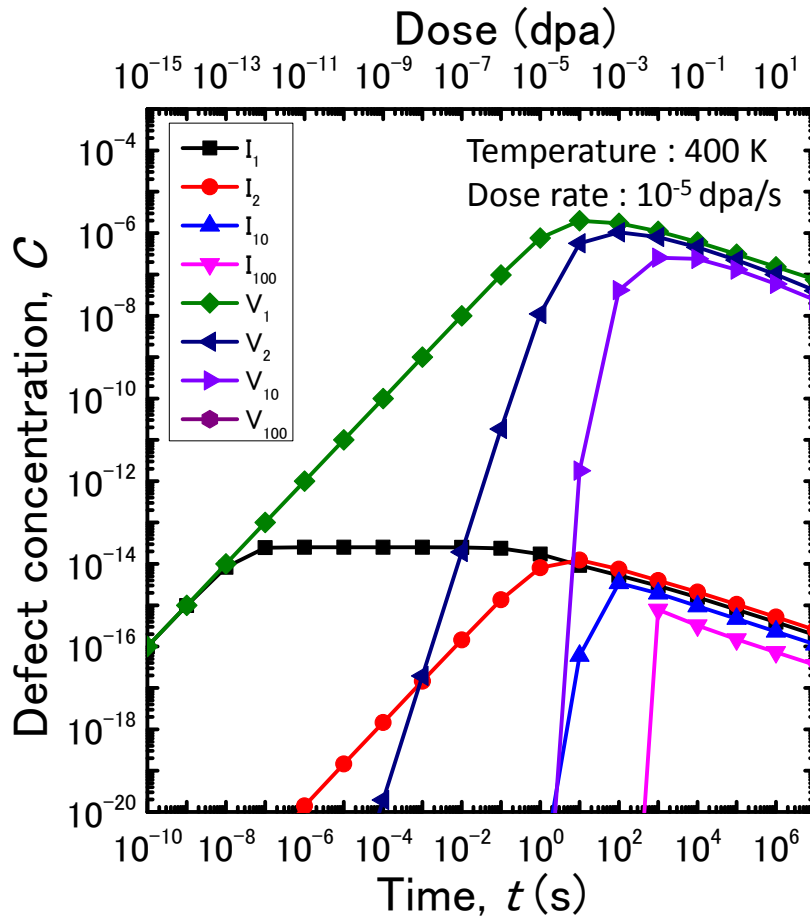


図 3.5-1 欠陥濃度の時間変化

転位ループとボイドの形成にとって重要な指標として空孔過飽和度を次式で定義できる。

$$S_V = \frac{D_V C_V - D_I C_I}{D_V C_V^{eq}} \quad (3.5-13)$$

ここで、 C_V^{eq} は熱平衡空孔濃度を表す。空孔過飽和度が正ならば材料中のある点に対して SIA よりも空孔の方が流入しやすい状態を表す。図 3.5-2 に示すように、空孔よりも SIA の方が材料中を移動しやすいため、照射の初期段階では空孔過飽和度が負であり転位ループが形成されやすい状態である。ある程度時間が経過すると転位線のバイアス効果によって空孔過飽和度が正に転じ、空孔の集合体であるボイドが形成されやすい状態になる。

図 3.5-3 に欠陥濃度分布の時間変化を表す。照射初期の段階では、欠陥が材料中を拡散するための時間が不十分であり、サイズの大きい集合体はほとんど存在しない。時間の経過と共に拡散プロセスが顕在化し、欠陥集合体のサイズが大きくなっていくことが分かる。

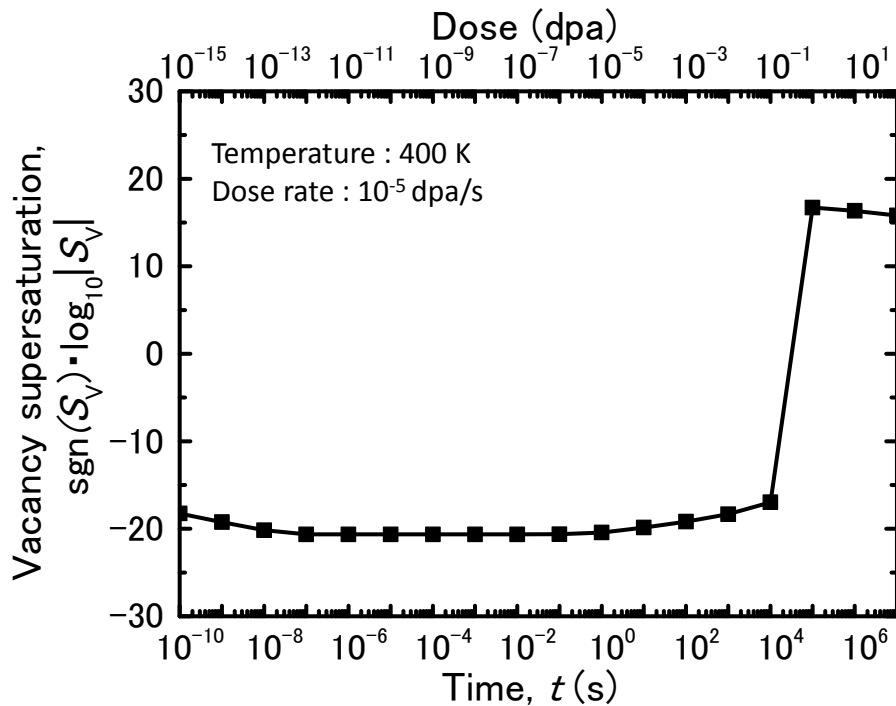


図 3.5-2 空孔過飽和度の時間変化

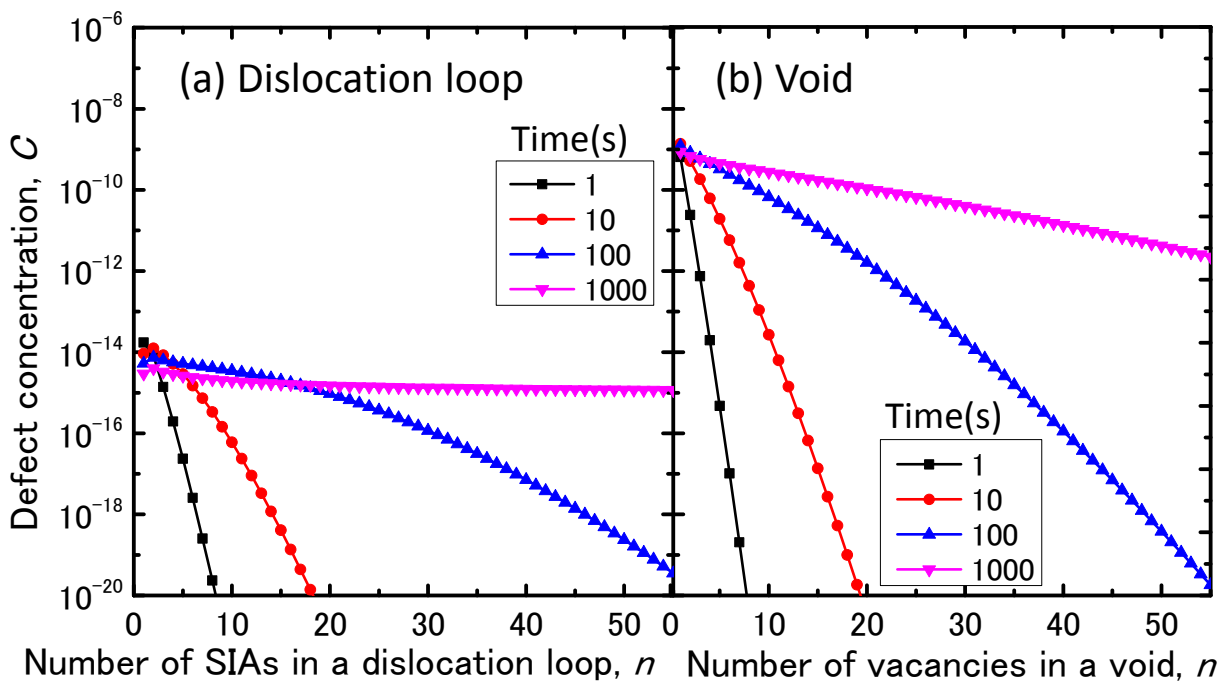


図 3.5-3 欠陥濃度分布の時間変化

図 3.5-4 に温度と損傷速度 (dpa/s) を変化させた時の欠陥濃度の時間変化を示す。照射条件が異なれば欠陥集合体濃度や濃度変化の傾向が大きく異なることが分かる。例えば、(a)と(b)を比べると照射量が同じでも損傷速度が異なるため、損傷速度が高い(a)では照射時間が短く、ボイドの形成がほ

とんど進んでいないことが分かる。また、温度が高ければ欠陥の拡散が短時間で進行するため、温度が高い(c)ではすでにサイズの大きいボイドの形成も見られるが、同一の温度でも損傷速度が低い(d)では欠陥集合体が熱的に不安定になり、十分に時間が経過してもボイドがほとんど形成されていない。このように温度や損傷速度、照射時間等の兼ね合いによって欠陥集合体の形成は大きく異なる。次項からは、転位ループとボイドの形成に着目し、材料照射損傷の照射場依存性について評価した。

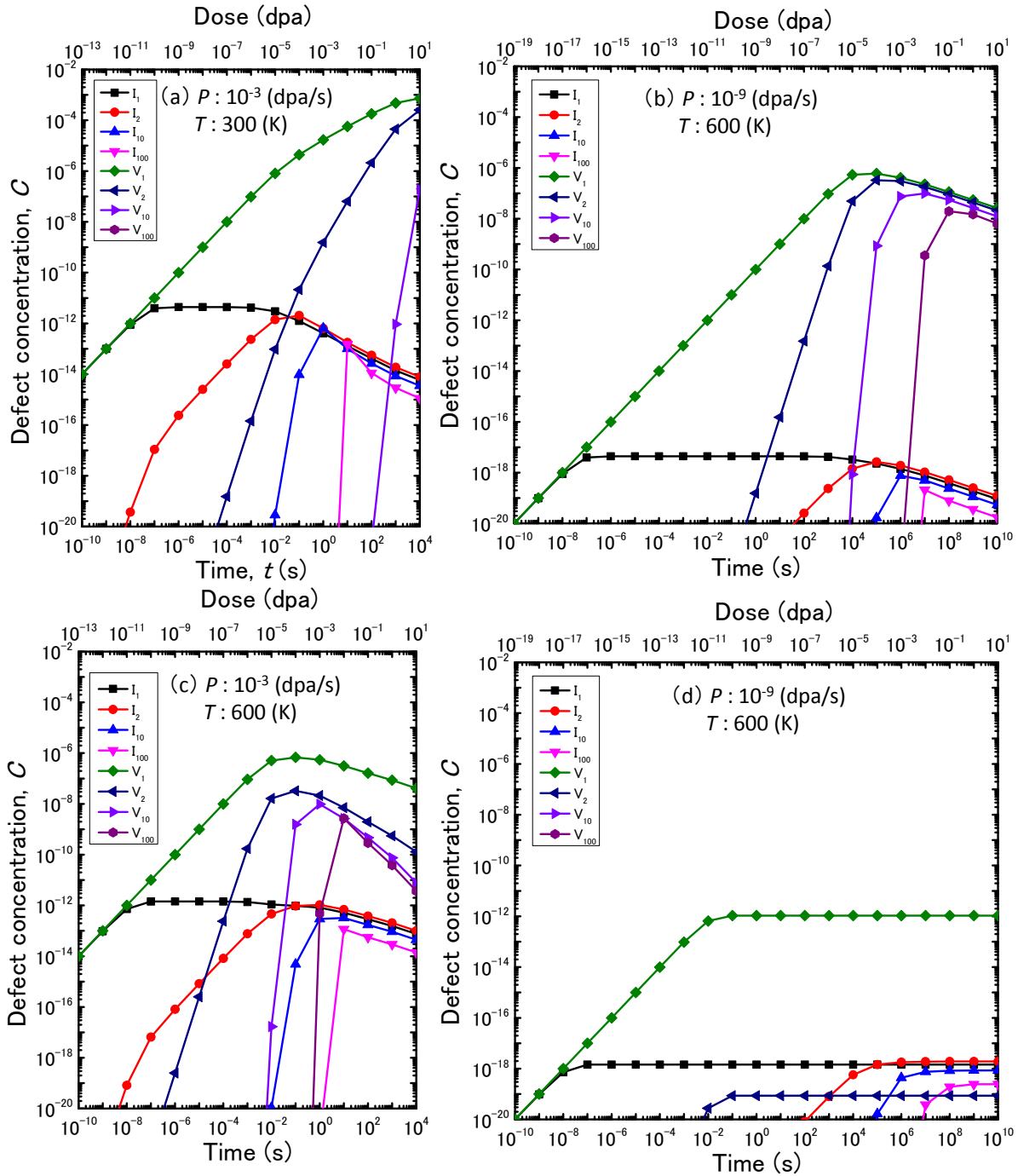


図 3.5-4 欠陥濃度の時間変化

3.5.2 転位ループ形成の照射場依存性

図 3.5-5 に転位ループ数密度の照射量依存性を示す。照射量が同じ場合、損傷速度が高いほど転位ループの数密度が高い。これは損傷速度が高いほど材料中の SIA の単欠陥濃度が高くなるためである。また、高温ほど数密度の損傷速度依存性が大きくなっている。これは、損傷速度が低いほど同一の照射量でも照射時間が長くなるためであると考えられる。ある程度時間が経過すると転位バイアスの効果によって空孔過飽和度が正に転じるため、転位ループに対しても空孔が流入しやすい状態となり数密度の減少につながったと考えられる。

図 3.5-6 に転位ループ平均直径の照射量依存性を示す。ここでは、実験的に観察が可能である直径 1 nm 以上の転位ループの平均サイズを導出した。温度 400K の低温条件では、損傷速度が低いほど転位ループ直径が大きくなる傾向が見られた。これは、損傷速度が低いほど同一の照射量でも照射時間が長くなり SIA の集合化が進行したためであると考えられる。一方、500K、600K の条件では損傷速度によって転位ループの平均直径が複雑に変化している。転位ループ自体は熱的安定性が非常に高く、高温でも熱的解離はほとんど起こらない。このような損傷速度依存性が表れた原因として、照射時間の違いやボイド形成プロセスの照射場依存性の影響が考えられる。次項ではボイド形成の温度依存性と損傷速度依存性について述べる。

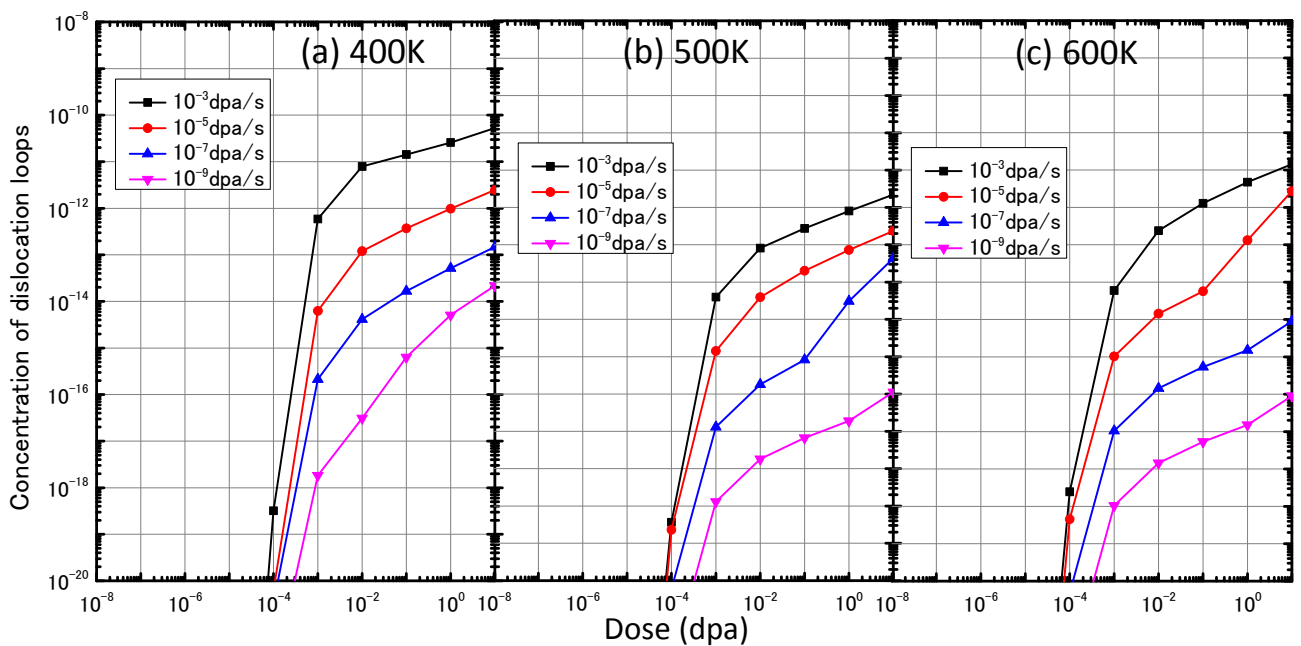


図 3.5-5 転位ループ数密度の照射量依存性

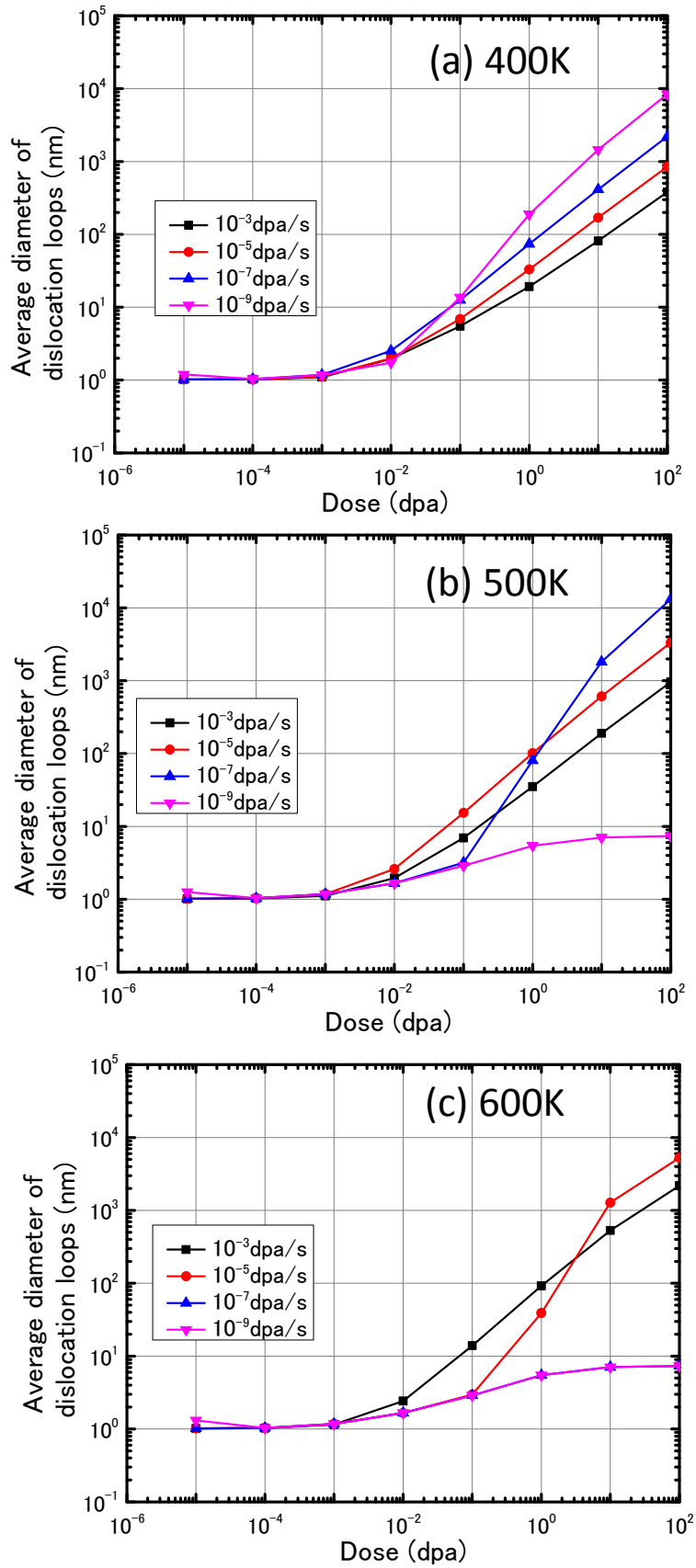


図 3.5-6 転位ループ平均直径の照射量依存性

3.5.3 ボイド形成の照射場依存性

図 3.5-7 にボイドスエリング率の照射量依存性を示す。ボイドスエリングの生成には潜伏照射量が見られる。これは、空孔は SIA に比べて動きにくく、材料中を拡散し、集合化するまでにある程度の時間を要するためである。このようなボイドスエリングの潜伏照射量の存在は実験でも報告されている^[16]。また、損傷速度が高いほど潜伏照射量が大きくなっていることが分かる。これは Sizmann が整理した特性時間^[17]で説明できると考えられる。ボイドが形成されるためには空孔の拡散が顕在化する必要があるが、空孔の拡散が顕在化する時定数は Sizmann の特性時間によると損傷速度に依存しない。損傷速度が高いほど同じ照射時間でも照射量が大きくなるため、結果として潜伏照射量が大きくなる。

図 3.5-8 にスエリング量の温度・損傷速度依存性を示す。ボイドスエリングはピーク温度を持つことが分かる。これは、低温では欠陥が動きにくく、また高温ではボイドが熱的に不安定になるため、これらの兼ね合いでピークが表れていると考えられる。また、顕在化しているプロセスの違いも影響していると考えられる。低温では、空孔が動きにくいいため、照射時間が同じでも空孔が過飽和に達していない条件も存在する。一方、高温では拡散プロセスが速く進行するため、より長時間空孔過飽和な状態が維持され、ボイドが形成されやすい状態となる。損傷速度依存性に着目すると、損傷速度が高いほどボイドスエリングのピーク温度が高温側へシフトしている。これは、損傷速度が高いほど空孔過飽和度が高くなり、高温でもボイドが安定に存在できるようになるためである。また、損傷速度が低いほど、同一照射量でも照射時間が長くなるため、欠陥が動きにくい低温でもボイドが形成されている。実験観察されるボイドスエリング^[19]にも同様のピーク温度のシフトが見られ、その傾向は定性的に一致している。

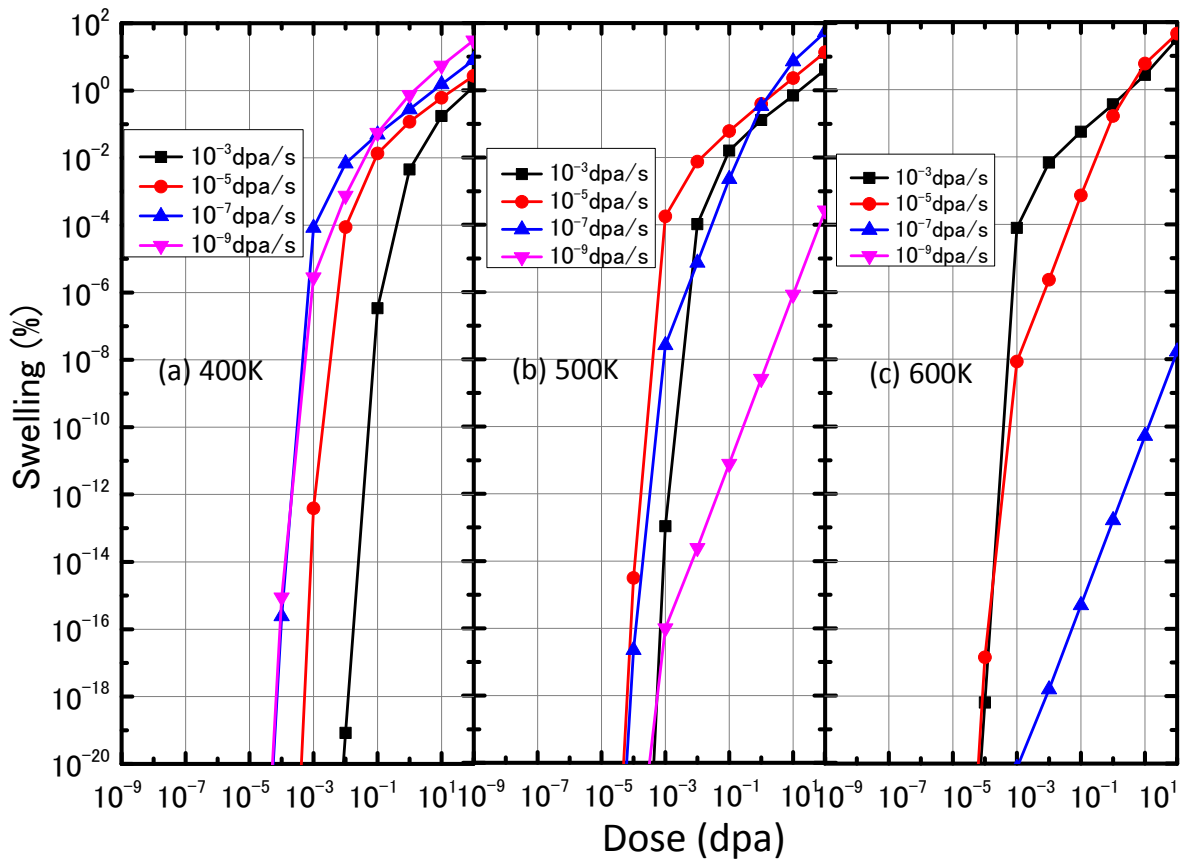


図 3.5-7 スエリングの照射量依存性

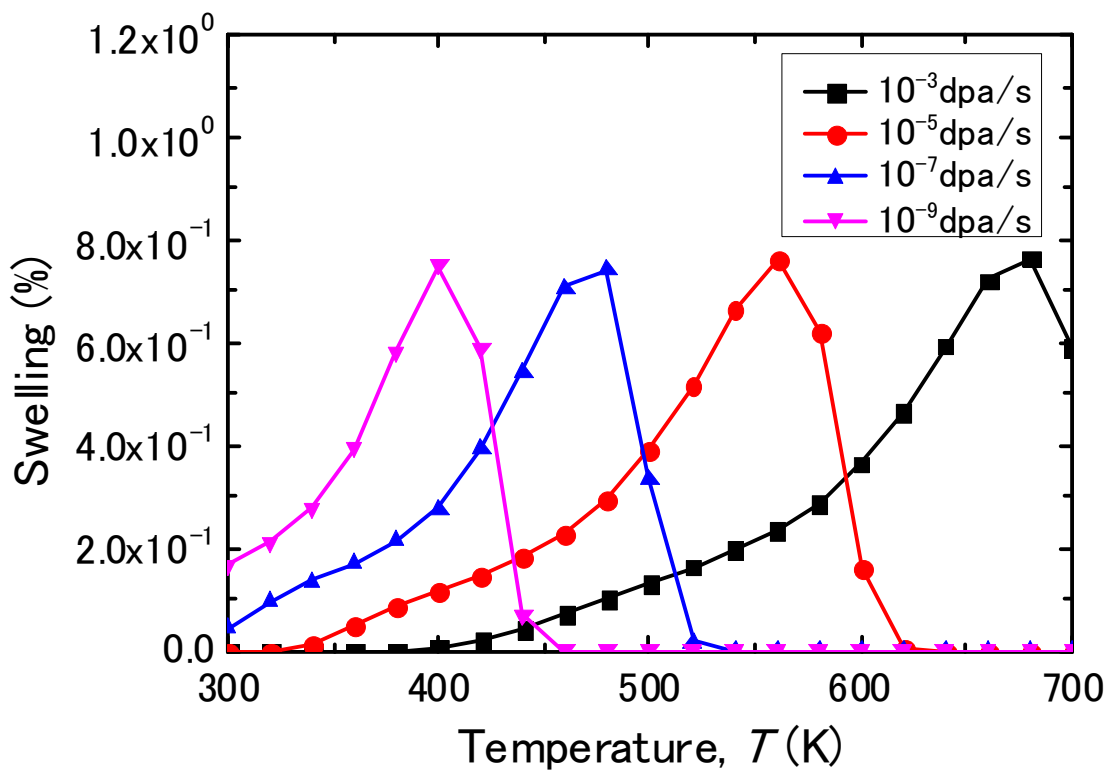


図 3.5-8 スエリング量の温度・損傷速度 (dpa/s) 依存性

3.6 第3章のまとめ

分子動力学法とモンテカルロ法による解析結果を相補的に用いた反応速度論解析を実施することで、照射環境下における欠陥集合体形成プロセスの時間的・空間的マルチスケール性を記述できるモデリングの方法論を示した。本研究モデルを用いた解析によって得られた成果を以下に示す。

- モンテカルロ法を用いてボイド核生成プロセスを解析し、定常核生成モデルとの比較を行った。
- ボイドが熱的に安定である低温では定常核生成モデルと矛盾のない結果が得られた。一方で、高温では矛盾が生じ、分子動力学法の解析結果を取り入れた本研究モデルの優位性が示され。
- 分子動力学法、モンテカルロ法による解析結果をもとに、転位ループとボイドの形成プロセスを理論的に取り扱うことが出来る反応速度論モデルを構築した。
- 照射量 (dpa) が同一でも温度や照射時間が異なれば顕在化する欠陥反応が異なる。
- 転位ループの形成は空孔過飽和度が負である照射初期の段階で特に顕著であり、照射条件によっては長期間の照射によって空孔過飽和度が正に転じるとループの形成は抑制、あるいは平均的に減少することがある。
- 転位ループはエネルギー的に安定であり、熱的解離はほとんど起こらない。しかし、照射時間の違いやボイド形成の影響により転位ループの形成にも損傷速度依存性が見られた。
- ボイドの潜伏照射量は、損傷速度が高いほど大きくなる傾向がある。
- ボイドスエリングは欠陥の動きやすさと熱的安定性の兼ね合いでピーク温度を持つ。
- ピーク温度は損傷速度が高いほど高温側へとシフトする。この傾向は実験的知見と定性的に一致する。

[第 3 章の参考文献]

- [1] R. E. Stoller, G. R. Odette, ASTM STP, 955, 371 (1987).
- [2] T. Hashimoto, ASTM STP 1046, 523 (1989).
- [3] N. M. Ghoniem, D. D. Cho, Phys. Stat. Sol, 54, 171 (1979).
- [4] M. R. Hayns, J. Nucl. Mater., 59, 175 (1976).
- [5] J. Gan, G. S. Was, R. E. Stoller, J. Nucl. Mater, 299, 53 (2001).
- [6] C. Pokor, Y. Brechet, P. Dubuisson, J. P. Massoud, A.Barbu, J. Nucl. Mat., 326, 19 (2004).
- [7] A. D. Brailsford, R. Bullough, J. Nucl. Mat., 44, 121 (1972).
- [8] L. K. Mansur, J. Nucl. Mat., 78, 156 (1978).
- [9] K. Morishita, R. Sugano, B. D. Wirth, J. Nucl.Mat., 323, 243 (2003).
- [10] 山本泰功, 材料照射損傷の照射場依存性に関する理論的検討, 京都大学修士論文 (2011) .
- [11] K.Morishita, B.D.Wirth, T.D. de la Rubia, A.Kimura, in: proceedings of the 4th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM4), The Japan Institute of Metals, 1383 (2001).
- [12] P. T. Heald, Philosophical Magazine, 31, 3, 551 (1975).
- [13] C. C. Battaile, D. J. Srolovitz, J. Appl. Phys., 82, 12, 15 (1997).
- [14] G. R. Odette, T. Yamamoto, D. Klingensmith, Philos. Mag., 85, 4-7, 779 (2005).
- [15] S. D. Cohen, A. C. Hindmarsh, Comput. Phys., 10, 138 (1996).
- [16] T. Morimura, A. Kimura, H. Matsui, J. Nucl. Mater., 239, 122 (1996).
- [17] R. Sizmann, J. Nucl. Mat., 69/70, 386 (1978).

第4章 破損燃料管理の有効性の評価

材料損傷に備えた対応の例として、運用中の被覆管材料の破損問題（燃料リーク問題）への対応を最適化するための新たな方法論を提案した。原子炉の安全評価に使われている確率論的リスク評価手法に着目し、ハザード曲線を仮定して、モンテカルロ法による解析結果をもとに事象の発生頻度とその検査頻度の関係を論じた。ここでは、燃料被覆管材料破損とその取替を分析し、新たな安全解析手法管理戦略を提案している。

4.1 燃料リーク問題

燃料被覆管は核分裂反応によって発生する放射能を閉じ込める安全上重要な機能を有している。しかし、非常に低い確率ではあるものの炉内での使用期間中に被覆管が破損し、放射性物質が炉水へと漏えいする燃料リークが発生し、問題となることがある。被覆管の破損形態については、フレッキング摩耗、過大腐食、応力腐食割れ等様々な形態が挙げられ、それらは燃料損傷モードとして系統的に整理されている^[1-3]。燃料リークが発生すると放射性物質が炉水へと漏えいし、冷却系の配管破断事故が発生した際に放射性物質が環境放出されることが懸念される。燃料リークに関する運転上の制限値（LCO）は、保安規定によって炉水中のヨウ素 131（I-131）の濃度としてプラントごとに規定されている。実際には、事業者が保安規定よりも低い管理目標値を設定し、その値に基づいて原子炉停止等の判断が下されている。また、I-131 濃度の測定は、炉水のサンプリング調査によって週数回程度行われており、連続的なデータを得ることは出来ない。そのため、かなり早い段階で原子炉を計画外停止させ、漏えい燃料の取替等が行われている。原子力施設情報公開ライブラリー（NUCIA）^[4]によると、図 1.3-2 に示したように実際に日本国内の原子炉における燃料リークに起因する炉停止の数は最近 10 年ほどで増加している。近年では、燃料リークの発生を非常に高精度に検出することが可能であり、より早い段階でリーク燃料の取替が行われる。そのため、取出し後に破損燃料の検査を行っても図 4.1-1 に示すように破損の原因を特定することが出来ず、偶発的に発生したピンホールや偶発的燃料漏えいと報告される事象が大半を占める。

しかし、このような原子炉の計画外停止の増加は炉内で使用されている材料の健全性の観点からは必ずしも好ましいものではない。原子炉を停止させる際には通常運転時以上の熱応力が材料に負荷されるため、疲労破壊等のリスクを上げる恐れがある。そのため、燃料リーク事象の深刻さに応じて、すぐに燃料取替を行うべきか、あるいは次回の定期検査時に燃料取替を行うべきか適切に判断する必要がある。その際に問題となるのが、燃料リークへの対策を選択するために必要なリーク事象の深刻さが明確ではないことである。前述したように、炉水ヨウ素濃度の測定はサンプリング調査によって行われており、その測定データは不連続で一時的な状態を示しているに過ぎない。燃料リークへの対応を判断するためには、最低限次回の炉水サンプリング調査までに漏えいがどの程度進展するかという予測を含めて判断を行う必要がある。破損燃料からの I-131 の漏えい挙動については多くの研究が行われているが^[5-9]、漏えい進展に関する高精度な予測は困難である。そのため、燃料リークへの対応はより保守的にならざるを得ない状況である。本研究では、燃料リーク問題に対して合理的な対策を立案するための方法論について検討を行った。

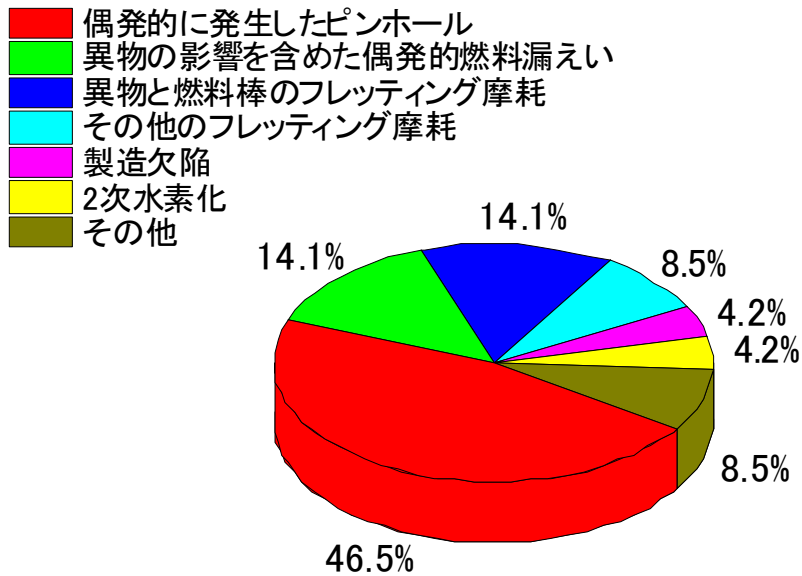


図 4.1-1 日本国内の燃料リーク発生原因 (1981 年～2011 年) ^[10]

4.2 方法

4.2.1 モデル

図 4.2-1 に冷却水の循環過程を簡略的に示す。燃料リーク発生時の 1 次冷却水中の I-131 の濃度変化をモデル化するために、燃料から炉水への漏えい、原子炉冷却水浄化装置による浄化、放射性 I-131 の核壊変による減衰を考慮した。これら 3 つの反応を考慮すると炉水 I-131 濃度は次式で表せる^[10]。

$$\frac{dC}{dt} = \frac{R}{V} - \lambda C - \frac{F_c}{V} C \quad (4.2-1)$$

ここで、 C は 1 次冷却水 (炉水) 中の I-131 の濃度 (Bq/m^3)、 R は燃料から炉水への I-131 の漏えい率 (Bq/s)、 V は 1 次冷却水の体積 (m^3)、 λ は I-131 の壊変定数 (s^{-1})、 F_c は浄化系の流量 (m^3/s) をそれぞれ表す。漏えい率 R が時間によらず一定であると仮定すると、式(4.2-1)を積分することにより、炉水ヨウ素濃度は時間の関数として次式で記述できる。

$$C(t) = \frac{R}{V\lambda + F_c} \left\{ 1 - \exp \left[-t \left(\lambda + \frac{F_c}{V} \right) \right] \right\} \quad (4.2-2)$$

式(4.2-2)から算出した炉水ヨウ素濃度の時間変化を図 4.2-2 に示す。このように時間の経過とともに、炉水ヨウ素濃度は増加し、やがて一定値 $R/(V\lambda + F_c)$ に漸近する。例えば、柏崎刈羽原発 6 号機

の運転上の制限値は 1300 (Bq/g) ^[4]であるが, I-131 の漏えい率 R が 3.76×10^7 (Bq/s) 以下であれば時間が経過しても制限値を越えることはない.

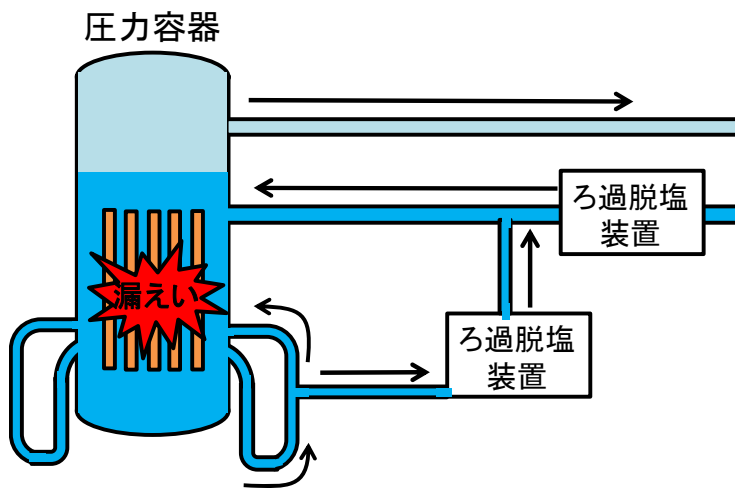


図 4.2-1 冷却水の循環過程

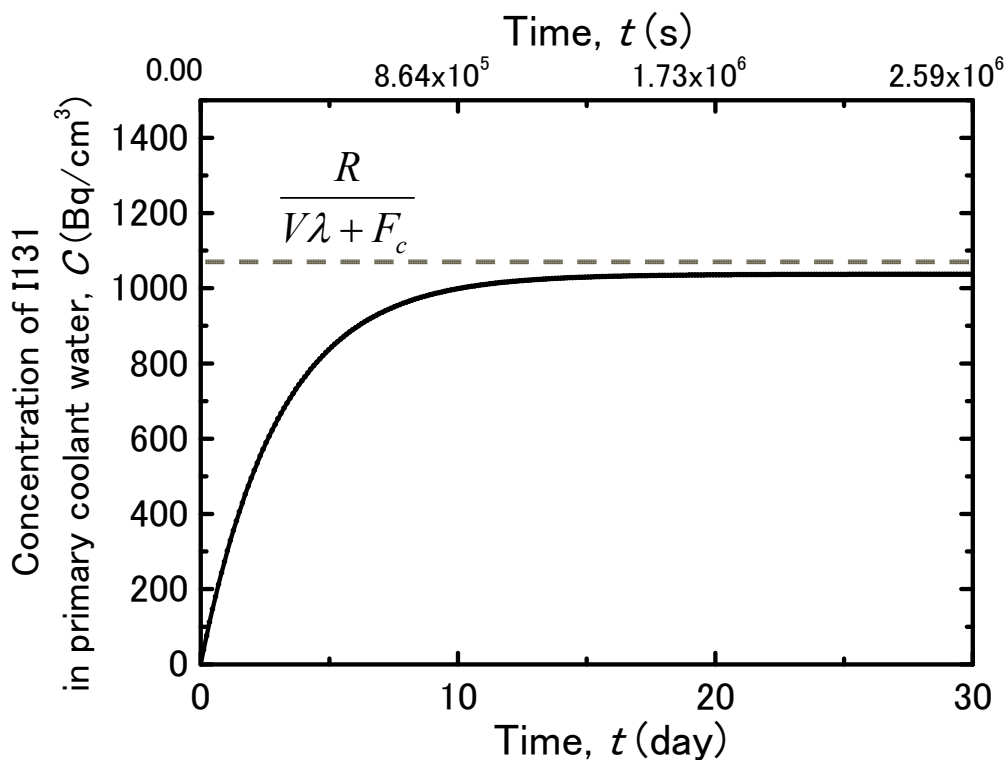


図 4.2-2 漏えい率 R を一定と考えた場合の炉水 I-131 の濃度変化

しかし、実際にはサンプリング調査によって得られた炉水ヨウ素濃度は一時的な情報に過ぎず、I-131は燃料の破損状態や原子炉の運転状態に起因して非常に複雑な放出挙動を示す^[11]。本研究では非常に複雑で、確率論的なゆらぎを内包するI-131の放出挙動を模擬するために、モンテカルロ法を用いて式(4.2-1)を積分した。ここでは、漏えい率 R を漏えいに係る事象の発生頻度 F と事象が発生した際のヨウ素の漏えい量 L の2つの項に分け、 R が F と L の積で表せると仮定して評価を行った。図4.2-3に R が一定となる F と L の組み合わせを示す。このように炉水ヨウ素濃度の測定結果から R の値を推定しても様々な発生頻度と影響度を内包していると考えられる。図4.2-4に漏えい率 R を一定とし、発生頻度が低い事象と高い事象を想定して炉水I-131濃度時間進展のモンテカルロ計算を行った結果を示す。発生頻度が低い事象ほどI-131濃度のゆらぎが大きく、図4.2-2で示した漸近値を大きく越える事象も見られる。このように、発生頻度が低くても事象が起こった際の影響が大きい可能性があるため、このような発生頻度の低い事象も含めた評価が必要である。

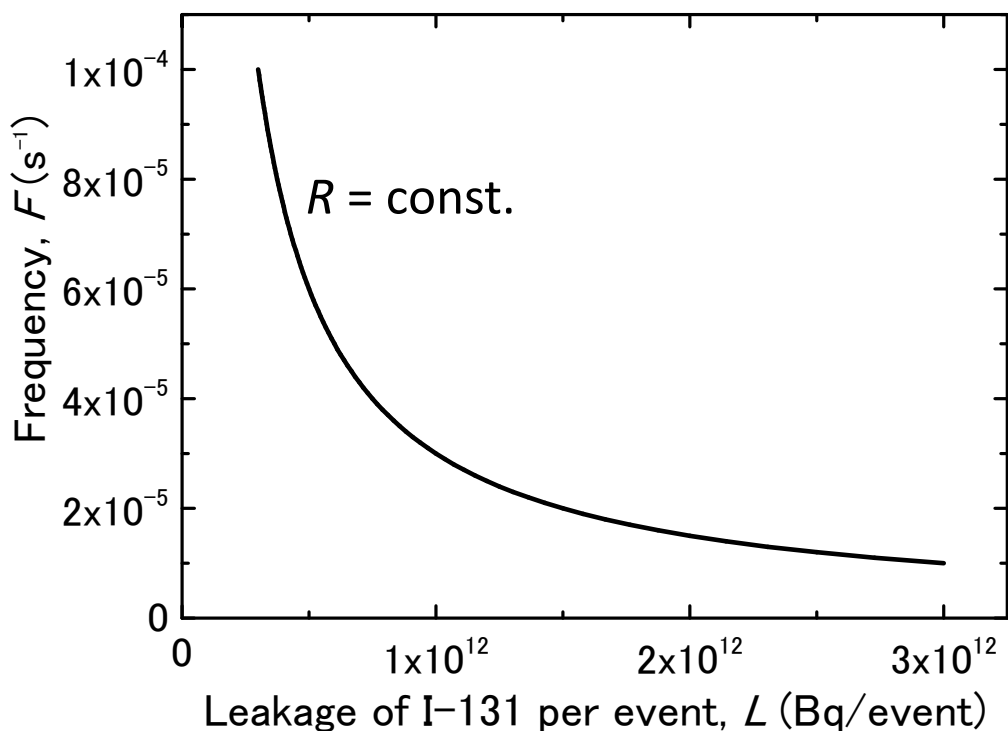


図 4.2-3 燃料リークに関する事象の発生頻度と影響度 (燃料リークに関するハザード曲線)

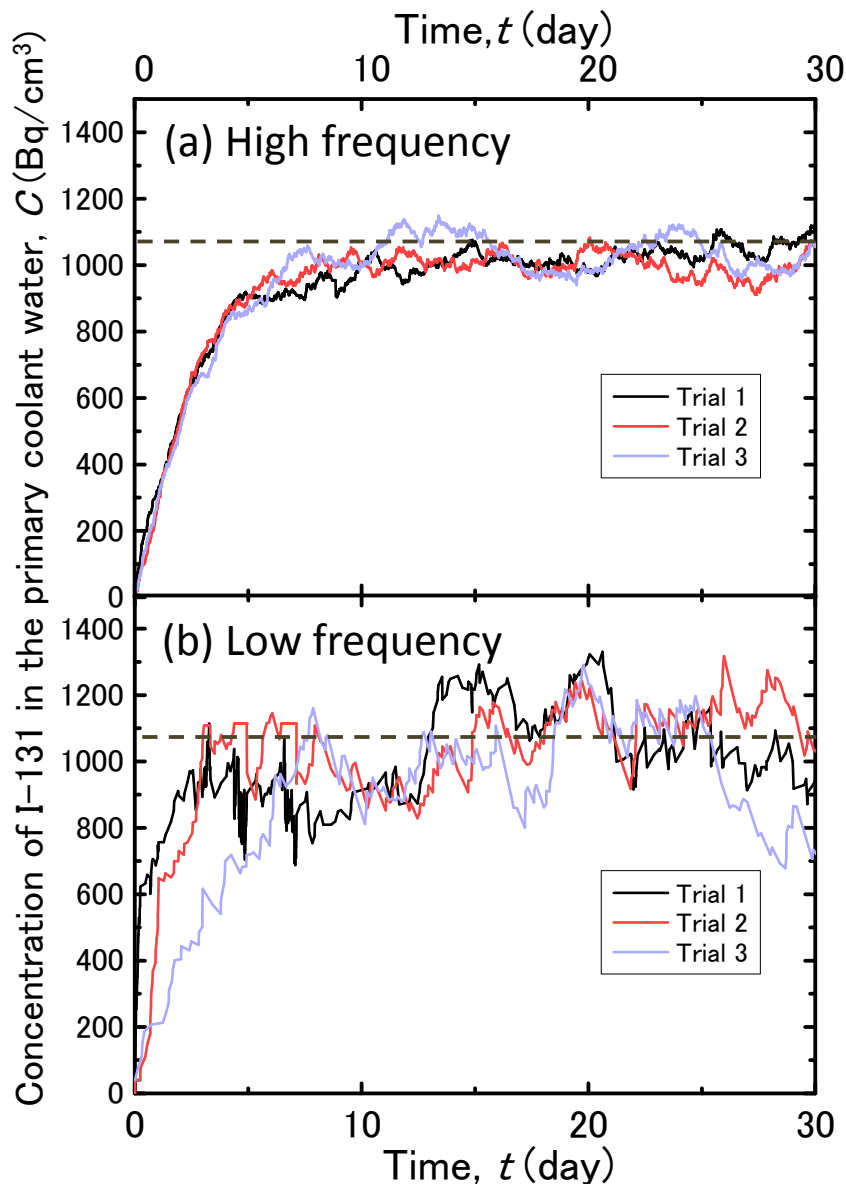


図 4.2-4 発生頻度が(a)高い事象と(b)低い事象における炉水ヨウ素濃度時間変化の比較

実際には、前述の通り炉水ヨウ素濃度のモニタリングはサンプリング調査によって行われているため、図 4.2-4 に示したような連続的な情報を得ることが出来ない。そのため、事業者は不連続で限られたデータを用いてリーク燃料の取替等の判断を行わざるを得ない。図 4.2-5 に炉水サンプリング調査のプロセスと管理目標値の設定を考慮した時の炉水ヨウ素濃度の時間変化を示す。ここでは、週 1 回サンプリング調査を行い、その時に I-131 濃度が管理目標値を越えていた場合には原子炉を停止させ燃料取替を行うと仮定した。このように燃料取替が行われると I-131 濃度は低下する。サンプリング調査に基づく燃料管理では炉水ヨウ素濃度が一次的に管理目標値を越えても見逃す可能性があり、このような曖昧さを内包している。

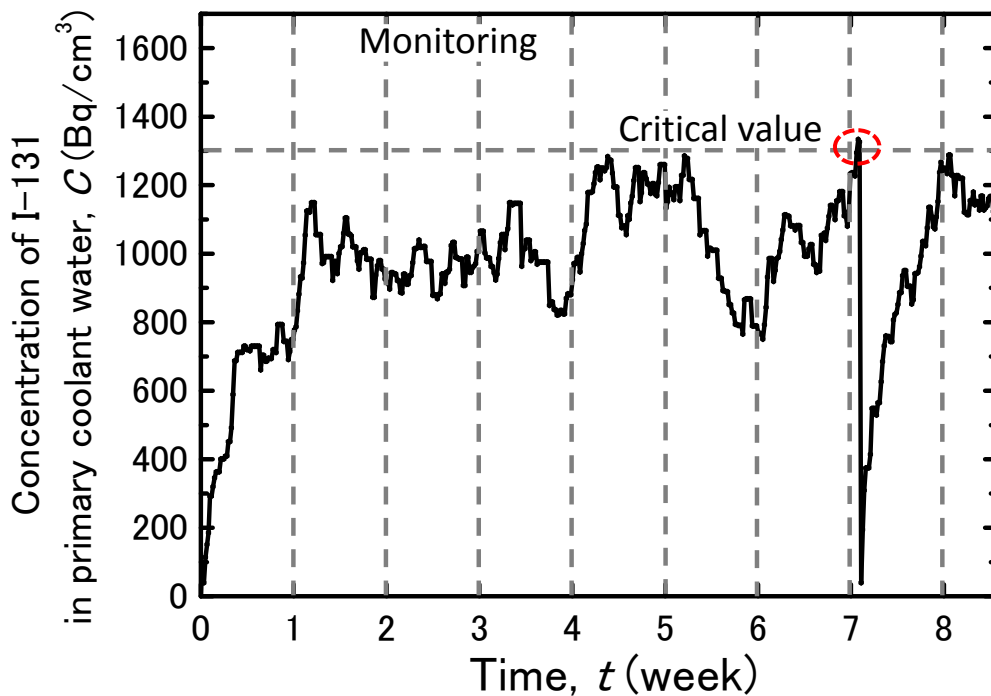


図 4.2-5 サンプルング頻度と管理目標値を考慮した炉水ヨウ素濃度の時間変化

4.2.2 燃料管理最適化のロジック

原子炉システムの脆弱性、機器の重要度等を評価する手法として確率論的リスク評価（PRA）がある。例えば、地震 PRA では、地震に起因する原子炉機器の故障を考慮して炉心損傷頻度を評価するための方法論が確立されている。図 4.2-6 に地震 PRA の概要^[12]を示す。そこでは、発生頻度が極めて低い地震も含めたリスク評価を行っており、地震動の強さごとの地震の発生頻度を表した地震「ハザード曲線」と、地震動の強さに対する機器の機能喪失確率を表した「脆弱性曲線」の情報を用いて様々な事故シナリオに基づいたイベントツリー解析、フォルトツリー解析を行って炉心損傷頻度曲線を算出している。

本研究では、燃料リークに起因する炉停止頻度を算出するために、燃料リークに関する事象の発生頻度と影響度（事象発生時の I-131 の漏えい量）を示すハザード曲線を設定した。また、このハザード曲線の情報を基に、フォルトツリー解析、イベントツリー解析の代わりに前述した炉水ヨウ素濃度変化のモンテカルロ計算を行い、炉停止頻度の算出を行った。ここでは、各条件で 1000 回ずつ計算を行い、原子炉を 1 サイクル（13 ヶ月間）運転した時に炉停止が起こった回数の平均値を炉停止頻度と定義した。

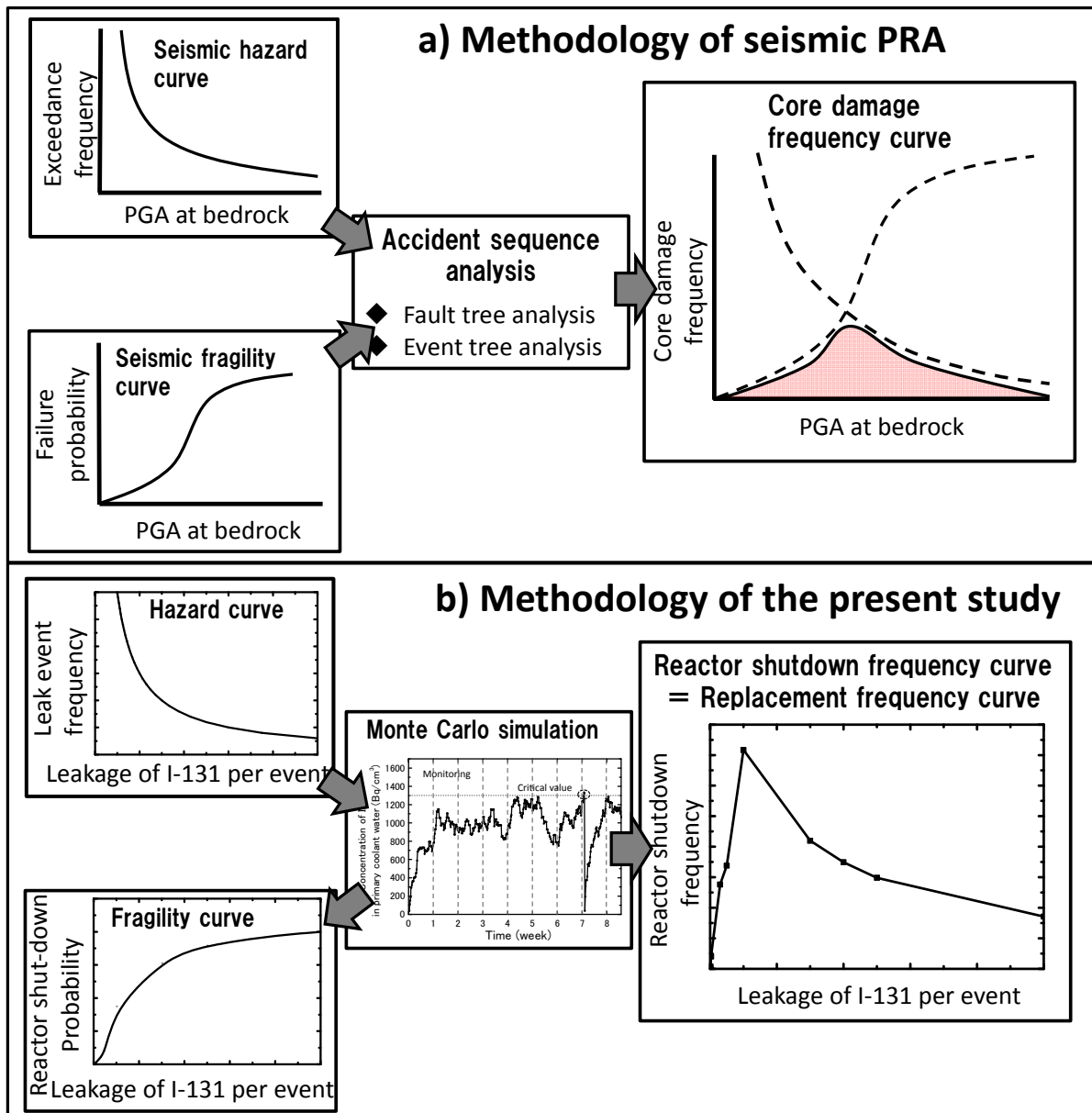


図 4.2-6 地震 PRA のロジック^[12]と本研究のロジック

4.3 結果・考察

図 4.3-1 はハザード曲線であり、燃料リークに関する事象の発生頻度と事象が発生した際の I-131 の漏えい量を表している。地震の場合と同様に、影響度の低い事象ほど起こりやすく、影響度の高い事象は起こりにくい条件となっている。このハザード曲線の情報を計算条件として仮定し、モンテカルロ計算を実施した。図 4.3-2 と図 4.3-3 に計算結果として得られる fragility 曲線と炉停止頻度曲線を示す。図 4.3-2 の fragility 曲線は、燃料リークに係る事象が発生した際に炉停止につながった確率を表しており、影響度の高い事象ほど発生した際には炉停止につながる確率が高いこ

と分かる。また、図 4.3-3 の炉停止頻度曲線は I-131 の漏えい量に対してピークを持った形状が表れている。これは、影響度が低い事象は頻繁に起こっても、図 4.3-2 のフラジリティ曲線に示したように炉停止につながる確率が低いため、また、影響度の高い事象は図 4.3-1 のハザード曲線に示したように発生頻度が低いため影響が顕在化しにくいため、これらの兼ね合いでピークが表れていることが分かる。

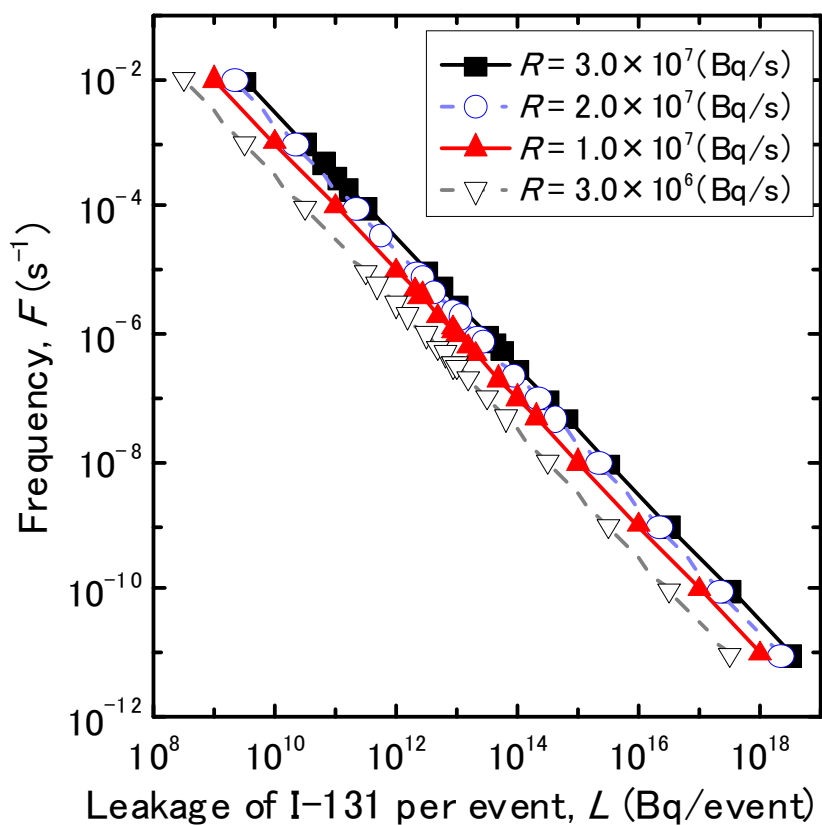


図 4.3-1 燃料リークに係るハザード曲線

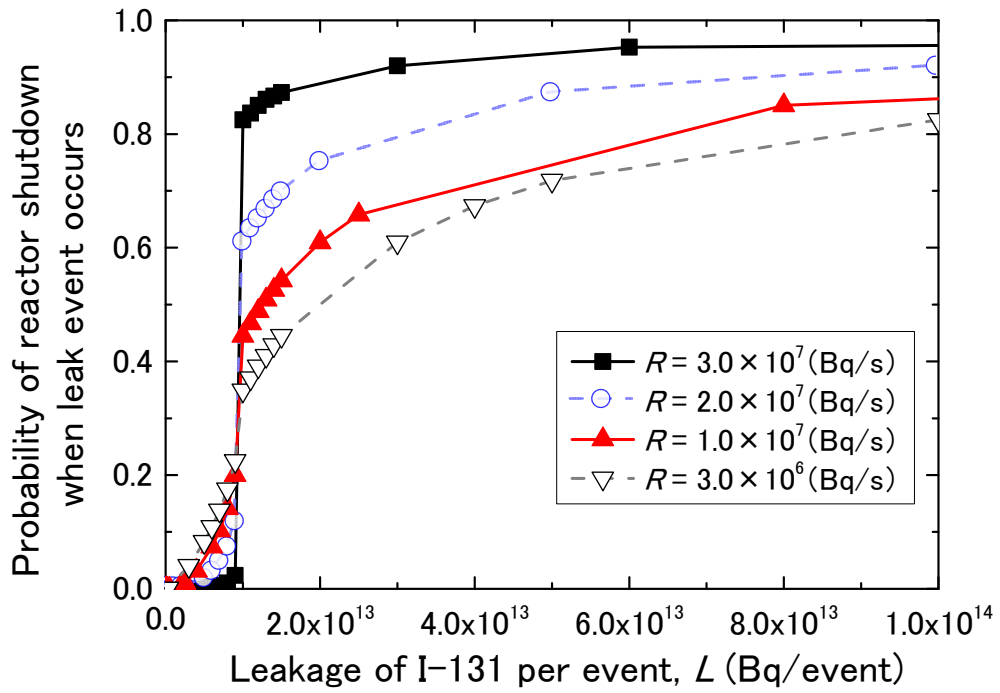


図 4.3-2 フラジリティ曲線

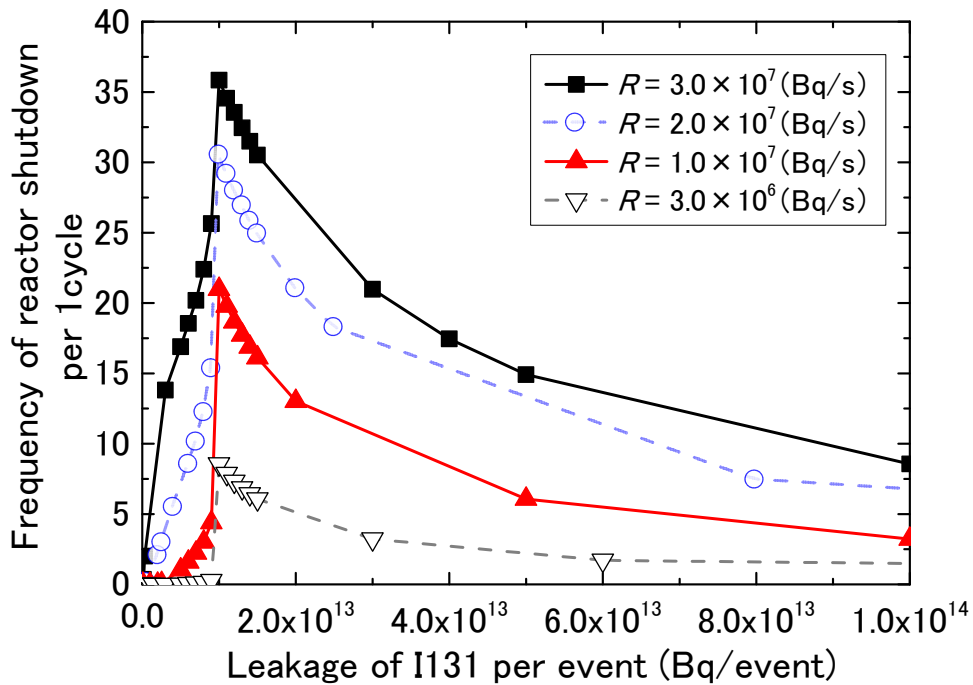


図 4.3-3 燃料リークに起因する炉停止頻度曲線

燃料管理の有効性を検討するために、燃料取替を判断するための管理目標値と炉水サンプリング頻度を変化させて燃料リークに起因する炉停止頻度の評価を行った。図 4.3-4 は管理目標値を変化させた時の炉停止頻度曲線を示す。管理目標値を低く設定するほど、より早い段階で炉停止をすることになるため、炉停止頻度が増加する。特に、影響度が低いリーク事象に対する炉停止頻度が増加しており、ピークが下限側へとシフトしている。一方で、影響度の高いピークの上限側についてはほとんど変化が見られない。つまり、この場合は管理目標値を厳しく設定しても影響度が低い事象に対する保全（破損燃料の取替）が増えるだけである。次に、モニタリング頻度を変化させて炉停止頻度の評価を行った。ここで、炉水ヨウ素濃度の連続モニタリングを行った場合とサンプリング調査によるモニタリングによる燃料管理を行った場合の炉停止頻度の差を炉停止機会見逃し頻度と定義して考察を行った。図 4.3-5 に炉水サンプリング間隔を 1 ヶ月、2 週間、1 週間、1 日と変化させた時の炉停止機会見逃し頻度曲線を示す。モニタリングを頻繁に行うほどヨウ素濃度が管理目標値を越えている状態を見逃すことが少なくなるため、炉停止機会見逃し頻度が低下している。また、モニタリング頻度を変えた影響はピークの上限側にも表れており、影響度の高い事象に対する対策としても有効であることが分かる。

このように、燃料リークに関するハザード曲線を仮定し、破損燃料管理の有効性を評価した。その結果、影響度が高い事象に対して安全側の保全を行うためには、管理目標値を厳しく設定するより、モニタリング頻度を高める方が効果的であるという知見が得られた。

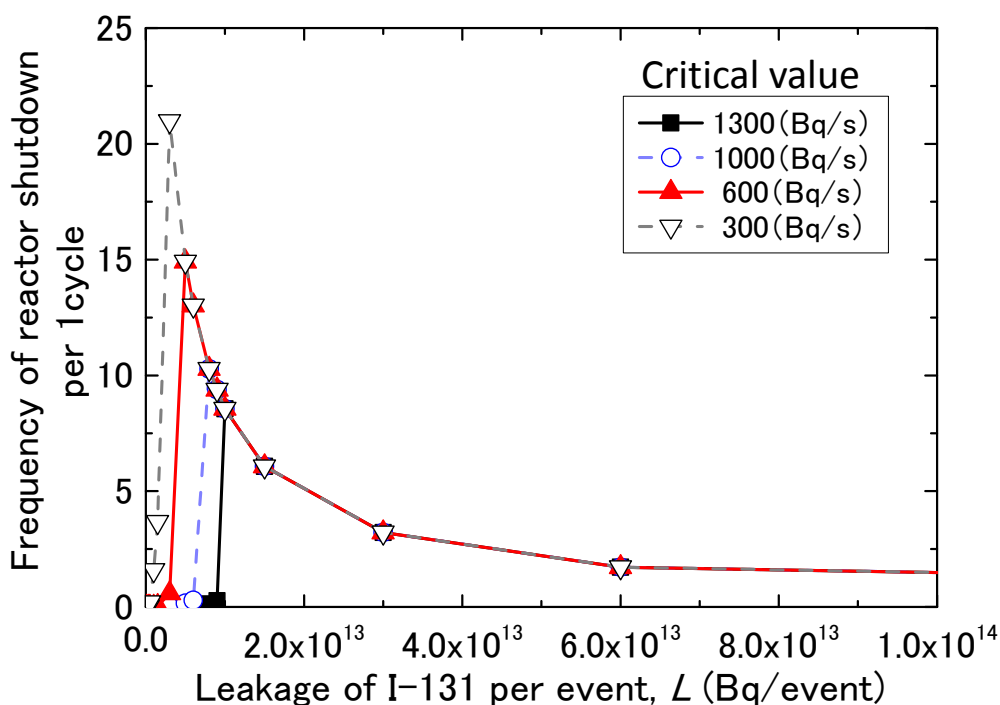


図 4.3-4 炉停止頻度曲線の管理目標値依存性

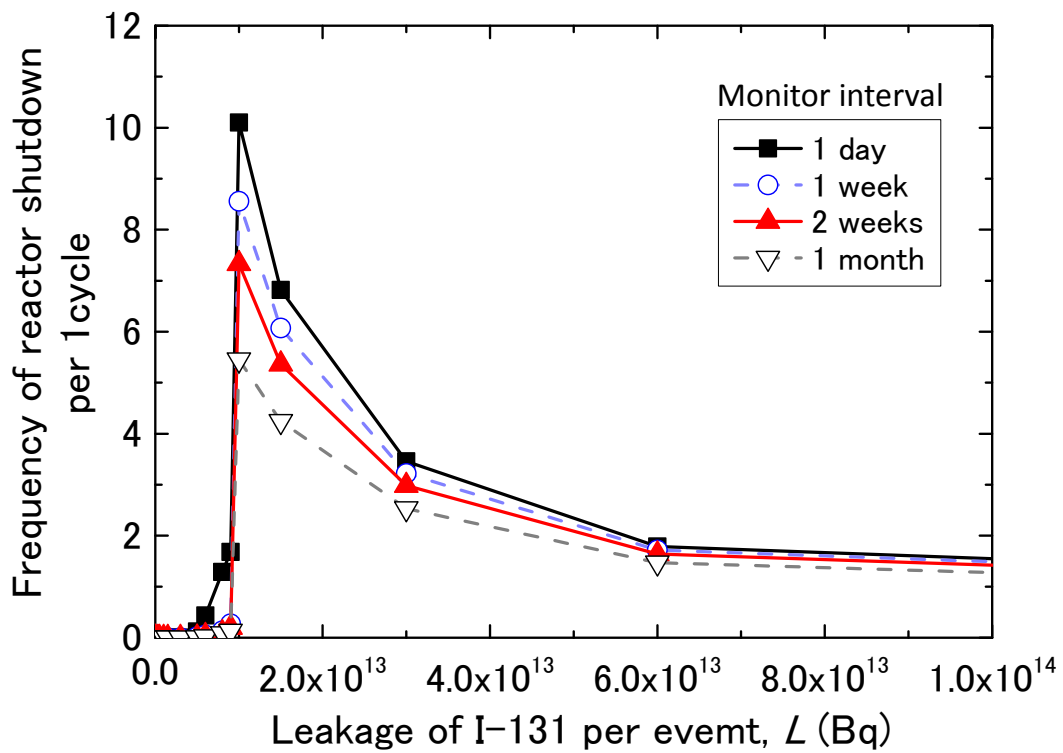


図 4.3-5 炉停止機会逸失頻度曲線のモニタリング頻度依存性

4.4 第4章のまとめ

本章では、確率論的リスク評価手法を援用し、事象の発生頻度と合理的な検査保全頻度の関係を分析するための方法論を構築した。本研究モデルを燃料リーク問題に適用した結果、以下の知見が得られた。

- 本研究モデルでは、ハザード曲線の情報を仮定し、モンテカルロ計算を行うことにより、燃料リークに起因する炉停止頻度を算出することが出来る。
- 炉停止頻度曲線はピークを持つ。これは、発生頻度が高い事象は頻繁に起こるが炉停止につながるほどの問題にはならないこと。また、発生頻度が低い事象は、起こった際の影響度が高いものの、使用期間中に起こらないほど低い発生頻度では影響が顕在化しにくいいためである。
- 炉停止頻度曲線は、管理目標値やモニタリング頻度の設定といった保全戦略に強く依存することが明らかになった。
- 影響度の高いリーク事象に対して安全側の保全を行うためには管理目標値を厳しく設定するよりもモニタリング頻度を高める方が効果的である。

[第 4 章の参考文献]

- [1] Garzarolli F, Jan RV, Stehle H, Atomic Energy Rev., 17, 1, 31 (1979).
- [2] El-Adham K. [Fuel failure mechanisms in operating U.S. plants from 1981 to 1986]. J. Nucl. Safety., 294, 487 (1988).
- [3] Yang RL, Light water reactor fuel performance (Proc. Int. Top. Mtg., Portland, Oregon, 1997). American Nuclear Society, 3 (1997).
- [4] 原子力安全推進協会, 原子力施設情報公開ライブラリー (NUCIA: Nuclear Information Archives), <http://www.nucia.jp>.
- [5] Kim MS, Kim KT, Nuclear Engineering and Design., 255, 123 (2013).
- [6] Iqbal MJ, Mirza NM, Mirza SM, J. Nucl. Mat., 372, 132 (2008).
- [7] Lewis BJ, El-Jaby A, Higgs J, Thompson WT, Iglesias FC, Laidler R, Armstrong J, Stone R, Oduntan, J. Nucl. Mat., 366, 37 (2007).
- [8] Andrews WS, Lewis BJ, Cox DS, J. Nucl. Mat., 270, 74 (1999).
- [9] Chun MH, Tak NI, Lee SK, Ann. Nucl. Energy, 25-10, 753 (1998).
- [10] 石渡名澄, 日本化学会誌, 6, 1021 (1981).
- [11] International Atomic Energy Agency (IAEA), Proceedings of a Technical Meeting held in Bratislava, IAEA-TECDOC-1345 (2002).
- [12] Sugino H, Iwabuchi Y, Nishio M, Tsutsumi H, Sakagami M, Ebisawa K, The 14th World Conference on Earthquake Engineering (2008).

第5章 総括

本章では、原子力材料の劣化予測技術及び管理の最適化のためのモデリング研究を通じて得られた知見をまとめた。さらに、燃料被覆管材料を例に、材料破損と破損後の影響、および、材料破損の詳細なメカニズムに係る因果関係を階層構造として示した。こうした因果関係ダイアグラムをもとに、本研究の位置付けを改めて明示するとともに、材料の視点からも異常の発生防止と影響緩和を併せた合理的な安全対策を整備する重要性について論じた。

5.1 研究成果のまとめ

原子炉の安全性を維持するためには、プラントの設計・製造段階だけでなく、使用期間中のシステムおよび機器の健全性を維持するために継続的な保全を行う必要がある。本論文では、材料学的な視点を取り入れた保全の高度化を行うために必要な原子力材料挙動の予測技術と管理の最適化について検討を行った。

第2章では、燃料被覆管材料の酸化進展予測技術について論じた。被覆管材料として使用されているジルコニウム合金の酸化は、燃料の健全性を評価するための重要な指標である。しかし、酸化反応の律速過程については十分な理解が得られておらず、実験事実に基づいた経験的な予測式が用いられている。本研究では、第一原理量子計算によって ZrO_2 酸化膜中の酸素拡散の活性化エネルギーについて応力依存性を評価した。その結果、移動の活性化エネルギーは圧縮応力の1乗に比例して増加することが確認された。その解析結果をもとに、1次元拡散モデルによって酸化速度の応力依存性について考察を行った結果、実験的に知られている酸化速度が酸素拡散の応力依存性によって説明し得ることが示された。これは、軽水炉燃料被覆管の劣化予測式に理論的根拠を与え、予測精度向上に寄与する知見である。遷移に関する実験的知見と合わせることで、遷移時期を予測することが可能となり、信頼性の高い燃料の使用期間の検討にもつながることが期待できる。

第3章では、材料の照射損傷過程について、反応速度論にもとづく数値解析を行った。材料照射損傷プロセスは、様々な時間スケール、空間スケールの現象を内包するマルチスケールな現象であり、異なる解析手法を相補的に用いた評価が必要である。本研究では、分子動力学法とモンテカルロ法の解析結果を相補的に用いることで、これまで理論的な取り扱いが困難であった欠陥集合体形成過程を、“定常核生成の仮定”を用いずに記述しうるモデリングの方法論を示した。これにより、集合体形成に関するモデルの適用範囲を高温側へと拡張することに成功した。また、本研究で構築した反応速度論モデルを用いた解析結果は、ボイドスエリングのピーク温度の存在や、ピーク温度の損傷速度依存性に関する実験結果と定性的に一致することが確認された。照射劣化予測精度の向上につながるモデリングの方法論を示した。

第4章では、材料損傷に備えた管理に関して、運用中の被覆管材料の破損問題（燃料リーク問題）への対応を最適化するための新たな方法論を示した。原子炉の安全評価に使われている確率論的リスク評価手法に着目し、ハザード曲線を仮定して、モンテカルロ法による解析結果をもとに、事象の発生頻度とその検査頻度の関係を論じた。本研究モデルをもとに、材料破損に起因する事象の発

生頻度から、合理的な検査保全頻度の設定が可能となる。対策の重要度に応じた深層防護の合理的な実装につながることを期待できる。

5.2 材料学と保全学の融合

材料学においてはこれまでに、材料が壊れないために十分な安全余裕を持った設計をするための努力が行われてきた。一方で、材料が壊れないことを重視するあまり、万が一材料が破損した際の検討が十分に行われてこなかった。しかし、深層防護の観点からは、異常の発生防止策だけでなく、異常の発生に備えた影響緩和策についても整備する必要がある。保全学においては、事故やトラブルを経験し、そうして顕在化した失敗が起こらないように対策をとることによって、原子炉システムの信頼性向上に貢献してきた。しかし、こうした対応だけでは、まだ顕在化していない事象や発生頻度が極めて低い事象に対しては対策をとることが出来ない。プロアクティブな保全を行うためには、問題となる事象が発生するメカニズムを掘り下げて対策を検討する必要がある。材料の経年劣化は原子炉システムの健全性を低下させる主要な因子であり、材料学と保全学を融合させることでより高度な保全が実施されることが期待できる。

そのためには、まず材料学と保全学のつながりを明確にする必要がある。本研究では、燃料被覆管材料を例に、材料破損と破損後の影響、および、材料破損の詳細なメカニズムに係る因果関係を表す階層構造（ここでは因果関係ダイアグラムと呼ぶ）を作成した（図 5.2-1）。保安規定では、燃料リークに関する運転上の制限値は、1 事故当たりの公衆被ばく量が 5mSv 以下となるように規定されている。そのため、ダイアグラムの最上位にくるのは、目的である「公衆被ばく」である、次に、公衆被ばくにつながる「1 次冷却系の配管破断」と、燃料破損に起因する「炉内 FP 濃度上昇」が記載される。このうち、燃料リーク問題について掘り下げると、「被覆管の破損」、さらに、「破損メカニズム」として燃料損傷モードに展開できる。しかし、ここまでは、対策の整備につなげるためには不十分であり、破損が起こる原因をさらに掘り下げる必要がある。更なる「メカニズムの展開」を行うと、材料破損につながる原因は、酸化や照射影響等の材料自体の健全性を低下させる「材料因子」と、材料に作用する熱的・機械的な応力といった「外部因子」に分けることが出来る。また「外部因子」が発現するメカニズムをさらに展開すると、照射影響等の材料因子に起因するものも見られる。

このような因果関係ダイアグラムを作成することで、異常発生防止のために対処しておくべき重要なメカニズムを抽出することが出来る。本研究では、第 2 章と第 3 章で、燃料の健全性・原子力材料の健全性の観点から特に重要な被覆管酸化および材料照射損傷の予測技術向上に資する知見を

取得した。原子炉システム、機器の健全性の変化に応じた高度な保全を実施するためには、それらのメカニズムにまで掘り下げて検討を行う必要があり、材料学の視点が不可欠である。

また、深層防護上バランスいい対策を検討するためには、材料の破損原因を掘り下げ、ダイアグラムを下層へと展開する「微視化」だけでなく、材料破損が及ぼすシステムへの影響を整理するためにダイアグラムを上層へ展開する「粗視化」が重要となる。第4章では、確率論的リスク評価手法を援用し、被覆管材料の破損に起因して発生する燃料リークへの対応を最適化するための方法論を示した。本研究モデルを用いることで、材料破損が起こることを想定し、システムへの影響を考慮した合理的な保全管理戦略の検討を行うことが出来る。このように、原子力安全を達成するためには材料学の観点からも異常の発生防止策と影響緩和策を併せて整備し、総合的にリスクを下げるための合理的な保全を行うことが重要である。

さらに、第4章で示した保全管理戦略の最適化のための方法論では、ハザード曲線の情報を仮定し、リスクを評価することが可能である。材料の劣化や損傷に起因するリスクを考える場合には、ハザード曲線は、材料劣化指標の関数として記述できると考えられる。そのため、材料の情報とハザード曲線を有機的に結び付けるための検討や、データの蓄積・整理が進めば、材料の経年劣化を考慮した保全管理戦略の定量評価につながることを期待できる。従来の材料学、保全学といった枠にとらわれず、両分野をつなぐ努力が行われることで、原子炉の安全性、信頼性向上のためのより高度な保全につながることを期待される。

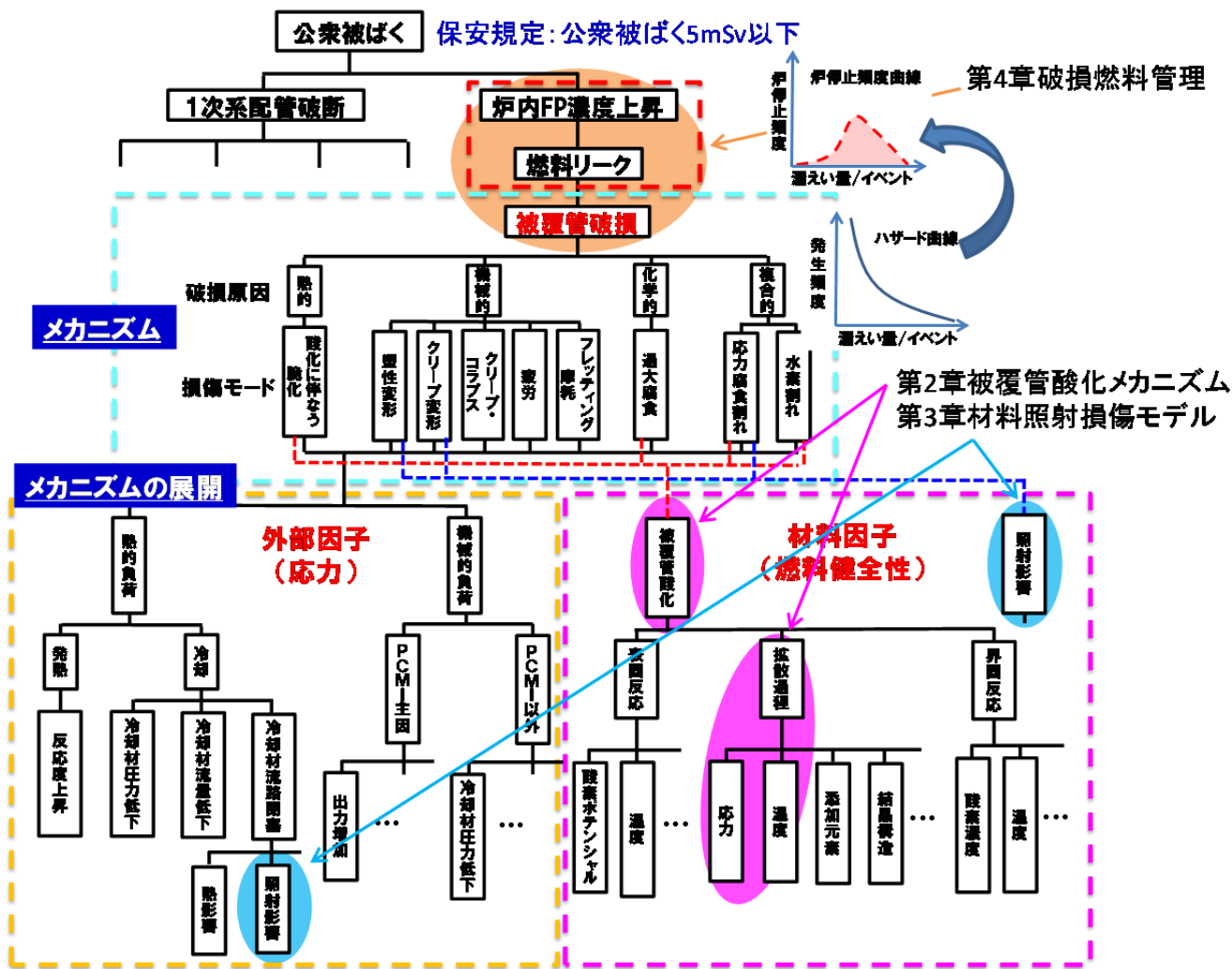


図 5.2-1 燃料管理に関する因果関係ダイアグラム

研究業績目録

学術雑誌等

- 山本泰功, 中筋俊樹, 森下和功, 「最適な原子炉保全のための燃料リークに起因するリスク評価」, 日本保全学会第10回学術講演会要旨集, 410-414, 2013 査読無
- Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, Hiroto Iwakiri, Yasunori Kaneta: “Theoretical Investigation of Oxidation Mechanism of Fuel Cladding in Light-Water Reactor”, E-Journal of Advanced Maintenance, Vol.5-1,01-06, 2013. 査読有
- Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, Hiroto Iwakiri, Yasunori Kaneta: “Theoretical Evaluation of Oxidation Rate of Zr”, MRS Online Proceedings Library, 1535, mmm12-a-0313, 2013. 査読有
- Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, Hiroto Iwakiri, Yasunori Kaneta, “Stress dependence of oxygen diffusion in ZrO₂ film”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B,303, 42-45, 2013. 査読有
- Yasunori Yamamoto, Junichi Yoshimatsu, Kazunori Morishita, “Damage rate dependence of defect cluster nucleation in tungsten during irradiation”, Journal of Nuclear Materials, 2013, S773-S775. 査読有
- 山本泰功, 森下和功, 岩切宏友, 金田保則, 「軽水炉燃料の健全性予測のための被覆管酸化挙動の理論解析」, 日本保全学会第9回学術講演会要旨集, 183-187, 2012 査読無
- Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, “Displacement damage rate dependence of defect cluster formation in α -Fe during irradiation”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 303, 100-103, 2013 査読有
- Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, “Nucleation and Growth of Self-Interstitial Atom Clusters in β -SiC during Irradiation”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 269, 1698-1701, 2011 査読有
- Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, “Formation of self-interstitial atom clusters in cubic silicon carbide during irradiation”, Fifth International Conference on Multiscale Materials Modeling 2010 (MMM2010), 747-750, 2010 査読無

研究発表

[国際会議]

- Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, Hiroto Iwakiri, Yasunori Kaneta, “Theoretical Investigation of Oxidation Mechanism of Fuel Cladding in Light-Water Reactor”, 1st International Conference on Maintenance Science and Technology, Tokyo, Japan, November 11-14, 2012.
- Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, Hiroto Iwakiri, Yasunori Kaneta, “Theoretical Evaluation of Oxidation Rate of Zr”, 6th International Conference on Multiscale Materials Modeling (MMM2012), Biopolis, Singapore, October 15-19, 2012.
- Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, Junichi Yoshimatsu, Yoshiyuki Watanabe, Yuta Izumi, “Formation of Defect-cluster Embryos in Nuclear Materials during Irradiation”, Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications and Monte Carlo 2010 (SNA + MC2010), Tokyo, Japan, October 18, 2010
- Kazunori Morishita, Junichi Yoshimatsu, Yasunori Yamamoto, Yoshiyuki Watanabe, “Multiscale Viewpoint of Radiation Damage Process in Fusion Materials” (INVITED TALK) 10th International Conference on Computer Simulations of Radiation Effects in Solids (COSIRES 2010) Krakow, Poland, July 19-23, 2010
- Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, “Nucleation and Growth of Self-interstitial Atom Clusters in b-SiC during Irradiation”, 10th International Conference on Computer Simulations of Radiation Effects in Solids (COSIRES 2010) Krakow, Poland, July 19-23, 2010.
- Kazunori Morishita, Junichi Yoshimatsu, Yasunori Yamamoto, Yoshiyuki Watanabe, Yuta Izumi, “Damage Rate Dependence of Void Nucleation in W”, Fifth International Conference on Multiscale Materials Modeling 2010 (MMM2010), Freiburg, Germany, October 4-8, 2010.
- Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, “Formation of self-interstitial atom clusters in cubic silicon carbide during irradiation”, Fifth International Conference on Multiscale Materials Modeling 2010 (MMM2010), Freiburg, Germany, October 4-8, 2010.
- Daiji Kato, Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, “Multiple hydrogen trapping and thermal release at vacancies in high-fluence hydrogen plasma-tungsten materials interaction”, The 4th International Symposium of Advanced Energy Science, Kyoto University, Japan, September 30-October 2, 2013.
- Yasunori Kaneta, Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, “Atomistic modeling for oxygen diffusion

behavior in ZrO₂”, The 4th International Symposium of Advanced Energy Science, Kyoto University, Japan, September 30-October 2, 2013.

- Hirotomo Iwakiri, Toshiki Nakasuj, Yasunori Yamamoto, Norihiko Murayoshi, Kazunori Morishita, “Investigation of methodology for deliberative polling based on science education to better reflect public opinion for nuclear power and other energy sources”, The 4th International Symposium of Advanced Energy Science, Kyoto University, Japan, September 30-October 2, 2013.
- Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, Sosuke Kondo, Tomoaki suzudo, “Modeling and simulation of radiation damage in materials for fusion application”, The 4th International Symposium of Advanced Energy Science, Kyoto University, Japan, September 30-October 2, 2013.
- Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, Hirotomo Iwakiri, Yasunori Kaneta, “Stress Dependence of Oxygen Diffusion in ZrO₂ Film”, 2012 Computer Simulation of Radiation Effects in Solids (COSIRES), Santa Fe, USA, June 24-29, 2012.
- Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, Hirotomo Iwakiri, Yasunori Kaneta, “Stress Dependence of Oxidation Rate of Zr”, 4th GCOE International Symposium in Bangkok, Siam City Hotel, Bangkok, Thailand, May 22-23, 2012.
- Muhammad Ery Wijaya, Li-Fang Jiao, Le Hoang Long, Hyoseong Gwon, Satoshi Yasuda, Yasunori Yamamoto, Nam Il Um, Shino Koda, Mukawa Tetsuya, Jae-Yong Lim, “A Comparative Analysis of Electricity Expansion Planning through Centralized and Decentralized Systems: Lessons from China and Indonesia”, 4th GCOE International Symposium in Bangkok, Siam City Hotel, Bangkok, Thailand, May 22-23, 2012.
- Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, Yoshiyuki Watanabe, “Damage rate dependence of defect cluster nucleation in tungsten during irradiation”, 15th International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM15), Charleston, South Carolina, USA, October 16-22, 2011
- Yasunori Yamamoto, Kazunori Morishita, Yuta Izumi, Yoshiyuki Watanabe, “Monte-Carlo simulations of void nucleation in nuclear materials during irradiation”, The 3rd International Symposium: Kyoto University Global COE Program, Ajou University, Suwon, Korea, August 18-19, 2011.
- H. Y. Lee, K. Fukasawa, N. Iwata, H. Sun, Y. Noguchi, Y. Yamamoto, L. H. Loung, R. H. Fanohasina, H. S. Huboyo, Y. Yamamoto, “Supply risk estimation of rare metals for green technologies”, The 3rd International Symposium: Kyoto University Global COE Program, Ajou University, Suwon, Korea, August 18-19, 2011.
- Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, “KMC Simulations of Defect Cluster

Formation in Beta-SiC during Irradiation”, 15th International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM15), Charleston, South Carolina, USA, October 16-22, 2011

- Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, “KMC Analysis of nucleation and growth of SIA-clusters in cubic silicon carbide during irradiation”, Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications and Monte Carlo 2010 (SNA + MC2010), Tokyo, Japan, October 20, 2010

[国内学会・研究会]

- 中筋俊樹, 山本泰功, 森下和功, 「核融合炉設計のための材料劣化予測技術の開発」, 『プラズマ・核融合学会第30回年会』, 03pC04, 東京工業大学, (2013/12/3-6)
- 山本泰功, 森下和功, 「計算機シミュレーションを用いた軽水炉の燃料管理最適化のための研究」, 『第9回日本原子力学会関西支部「若手研究者による研究発表会」』, 福井大学附属国際原子力工学研究所, (2013/11/8)
- 山本泰功, 「Heバブル形成プロセスの照射場依存性」, 『照射下材料マイクロ構造変化のモデル化のための研究会』, 京都大学, (2013/10/21-22)
- 山本泰功, 中筋俊樹, 森下和功, 「燃料破損時の炉停止リスク評価」, 『日本原子力学会2013年秋の大会』, L51, 八戸工業大学, (2013/9/3-5)
- 山本泰功, 中筋俊樹, 森下和功, 「最適な原子炉保全のための燃料リークに起因するリスク評価」, 『日本保全学会第10回学術講演会』, E-3-5, ホテル阪急エキスポパーク (大阪), (2013/7/25-26)
- Yasunori Yamamoto, Gwon Hyoseong, Ryosuke Taniki, Seo Im-Sul, Lea Macaraig, Ayaka Tamura, Hani Negm, Yoshitada Masaoka, Tatsuro Oda, Qi Zhang, “Economic and environmental analysis on shale gas in Japan”, 2012 Annual Meeting of GCOE, January 16, 2013.
- 山本泰功, 「トランス・サイエンスの時代」, 『トランス・サイエンス研究会』, 京都大学宇治キャンパス, (2013/3/6)
- 山本泰功, 森下和功, 「軽水炉燃料被覆管の健全性評価に関する研究」, 『日本原子力学会2013年春の年会』, C05, 近畿大学東大阪キャンパス, (2013/3/26-28)
- 山本泰功, 森下和功, 岩切宏友, 金田保則, 「軽水炉燃料被覆管の酸化挙動の理論的評価」, 『京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」』, 京都大学原子炉実験所, (2012/12/14-15)
- 森下和功, 山本泰功, 渡辺淑之, 「照射下材料中のマイクロ構造発達の反応速度論解析」, 『日本原子力学会2012年秋の大会』, J11, 広島大学東広島キャンパス, (2012/9/19-21)
- 山本泰功, 森下和功, 岩切宏友, 金田保則, 「ジルコニウム酸化膜成長速度の応力依存性(2)」, 『日本原子力学会2012年秋の大会』, F08, 広島大学東広島キャンパス, (2012/9/19-21)
- 山本泰功, 森下和功, 岩切宏友, 金田保則, 「軽水炉燃料の健全性予測のための被覆管酸化挙動の理論解析」, 『日本保全学会第9回学術講演会』, E1-2, 一橋大学一橋講堂, (2012/7/25-27)
- 山本泰功, 岩切宏友, 泉裕太, 森下和功, 渡辺淑之, 金田保則, 加藤太治, 「ジルコニウム酸化膜成長速度の応力依存性」, 『日本原子力学会2012年春の年会』, K12, 福井大学文京キャンパス, (2012/3/19-21)

- 山本泰功, 岩切宏友, 泉裕太, 渡辺淑之, 森下和功, 金田保則, 加藤太治, 「ジルコニウム酸化膜中の欠陥エネルギー論」, 『京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」』, 京都大学原子炉実験所, (2011/12/16)
- 山本泰功, 岩切宏友, 泉裕太, 渡辺淑之, 森下和功, 金田保則, 加藤太治, 「Zr合金の酸化膜成長速度」, 『軽水炉燃料に関する研究会』, 京都大学宇治キャンパス, (2011/11/30-12/1)
- 山本泰功, 岩切宏友, 泉裕太, 渡辺淑之, 森下和功, 金田保則, 加藤太治, 「ジルコニウム中の欠陥エネルギー論」, 『日本原子力学会2011年秋の大会』, F23, 北九州国際会議場, (2011/9/19-22)
- 森下和功, 山本泰功, 泉裕太, 渡辺淑之, 「照射材料中の欠陥集合体の核生成シミュレーション」, 『日本原子力学会2011年秋の大会』, F13, 北九州国際会議場, (2011/9/19-22)
- 渡辺淑之, 徐虬, 義家敏正, 森下和功, 山本泰功, 「核融合炉内材料の点欠陥挙動の数値解析」, 『日本原子力学会2011年秋の大会』, H03, 北九州国際会議場, (2011/9/19-22)
- 森下和功, 山本泰功, 泉裕太, 渡辺淑之, 「照射下材料中のボイド核生成のモンテカルロシミュレーション; (1) 照射場依存性」, 『日本原子力学会2011年春の年会』, B22, 福井大学文京キャンパス, (2011/3/28-30)
- 山本泰功, 森下和功, 泉裕太, 渡辺淑之, 「照射下材料中のボイド核生成のモンテカルロシミュレーション; (2) ボイド発生の潜伏期間を決める因子」, 『日本原子力学会2011年春の年会』, B23, 福井大学文京キャンパス, (2011/3/28-30)
- 山本泰功, 森下和功, 渡辺淑之, 泉裕太 「欠陥集合体核生成に及ぼすHe効果」, 『京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」』, 京都大学原子炉実験所, (2010/12/17-18)
- 泉裕太, 山本泰功, 森下和功, 渡辺淑之, 「ボイド核生成潜伏期間のシンク強度依存性」, 『京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」』, 京都大学原子炉実験所, (2010/12/17-18)
- 渡辺淑之, 森下和功, 山本泰功, 「SiCにおける欠陥集合体の核生成・成長のモデル化」, 『京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」』, 京都大学原子炉実験所, (2010/12/17-18)
- 山本泰功, 森下和功, 吉松潤一, 渡辺淑之, 「照射下材料中の欠陥集合体核生成の損傷速度依存性」, 「日本原子力学会 2010 年秋の大会」, 北海道大学, (2010/9/15-17)
- 森下和功, 山本泰功, 吉松潤一, 泉 裕太, 渡辺淑之, 材料照射損傷プロセスのモデル化におけるパラメータの検討, 「日本原子力学会 2010 年秋の大会」, 北海道大学, (2010/9/15-17)
- 森下和功, 吉松潤一, 山本泰功, 泉 裕太, 渡辺淑之, 原子力材料の照射劣化予測, 日本保全

学会第7回学術講演会，浜岡原子力館オリエンテーションルーム，(2010/7/15)

- 山本泰功，吉松潤一，森下和功，渡辺淑之，「照射下材料中のボイド核生成の損傷速度依存性評価」，『日本金属学会2010年春期大会（第146回）』，558，筑波大学筑波キャンパス，(2010/3/28-3/30)
- 森下和功，吉松潤一，山本泰功，渡辺淑之，「金属材料における欠陥集合体核生成の損傷速度依存性」，『日本原子力学会2010年春の年会』，K24，茨城大学水戸キャンパス，(2010/3/26～3/28)
- 山本泰功，森下和功，吉松潤一，渡辺淑之，「照射場の定量化」『九州大学応用力学研究所共同利用研究会「マルチスケールでのプラズマ・壁相互作用の理解」』，九州大学応用力学研究所，(2010/3/18-19)
- 吉松潤一，森下和功，渡辺淑之，山本泰功，照射下材料中のマイクロ組織変化における照射場依存性『九州大学応用力学研究所共同利用研究会「マルチスケール」のプラズマ・壁相互作用の理解』，九州大学応用力学研究所，(2010/3/18-19)
- 渡辺淑之，森下和功，吉松潤一，山本泰功，「 β -SiCにおけるSIA集合体形成エネルギーのサイズ・組成依存性」，『京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」』，京都大学原子炉実験所，(2009/12/21-22)
- 吉松潤一，森下和功，渡辺淑之，山本泰功，「照射材料における欠陥集合体核生成の照射速度依存性の評価」，『京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」』，京都大学原子炉実験所，(2009/12/21-22)
- 吉松潤一，○森下和功，山本泰功，渡辺淑之，「核融合炉材料の照射下マイクロ構造変化」，『プラズマ・核融合学会第26回年会』，2aE21p，京都市国際交流会館，(2009/12/1-12/4)
- 山本泰功，森下和功，吉松潤一，渡辺淑之，「原子炉・核融合炉材料の照射効果研究のための照射場の定量化」，『物質・材料に対する照射効果のモデル構築研究会』，東京大学，(2009/12/15)
- 森下和功，吉松潤一，山本泰功，渡辺淑之，「核融合材料の照射下マイクロ構造変化の損傷速度依存性のモデル化」，『第10回核破碎中性子源用材料技術の研究会』，茨城県，(2009/12/14-15)
- 吉松潤一，森下和功，山本泰功，渡辺淑之，「照射材料における欠陥集合体核生成の損傷速度依存性の評価」，『物質・材料に対する照射効果のモデル構築研究会』，東京大学，(2009/12/15)
- 森下和功，吉松潤一，山本泰功，渡辺淑之，「照射による材料劣化現象のマルチスケール的なものの見方と原子炉の保全」，『日本保全学会第6回学術講演』，B-3，札幌，(2009/8/3～8/5)
- 山本泰功，森下和功，吉松潤一，渡辺淑之，「照射下材料中の欠陥集合体核生成の損傷速度依存性」，「日本原子力学会2010年秋の大会」，北海道大学，(2010/9/15-17)

- 渡辺淑之，森下和功，山本泰功，核融合炉 SiC 材料中における欠陥集合体の核生成・成長のモデル化，第 8 回核融合エネルギー連合講演会－新たなエネルギー革命を起こす科学技術“核融合”－岐阜県高山市，(2010/6/11) .

[受賞]

- 第9回日本原子力学会関西支部賞奨励賞：山本泰功，森下和功，「計算機シミュレーションを用いた軽水炉の燃料管理最適化のための研究」，『日本原子力学会関西支部「若手研究者による研究発表会」』福井大学附属国際原子力工学研究所，（2013/11/8）
- 優秀賞：山本泰功，中筋俊樹，森下和功，「最適な原子炉保全のための燃料リークに起因するリスク評価」，『日本保全学会第10回学術講演会』，E-3-5，ホテル阪急エキスポパーク（大阪），（2013/7/25-26）
- 奨励賞：山本泰功，森下和功，岩切宏友，金田保則，「軽水炉燃料の健全性予測のための被覆管酸化挙動の理論解析」，『日本保全学会第9回学術講演会』，E1-2，一橋大学一橋講堂，（2012/7/25-27）
- Poster award：Yasunori Yamamoto, Gwon Hyoseong, Ryosuke Taniki, Seo Im-Sul, Lea Macaraig, Ayaka Tamura, Hani Negm, Yoshitada Masaoka, Tatsuro Oda, Qi Zhang, “Economic and environmental analysis on shale gas in Japan”, 2012 Annual Meeting of GCOE, Kyoto University, January 16, 2013.

謝辞

本研究を進めるにあたり、指導教員であるエネルギー理工学研究所森下和功准教授には終始暖かく見守って頂き、修士課程入学時から5年間に渡り熱心なご指導を賜りました。このようなやりがいのある研究に取り組む機会を与えて頂き、大変貴重な経験をすることができました。心から感謝の意を表します。

木村晃彦教授、小西哲之教授には、本論文を執筆する上で貴重な御助言を頂きました。深く感謝致します。笠田竜太准教授には、研究生生活における様々な場面で御協力を賜りました。心より感謝致します。

琉球大学の岩切宏友准教授、核融合科学研究所の加藤太治准教授、秋田工業高等専門学校 of 金田保則教授には本研究の実施にあたり多くの御指導、御協力を頂きました。深く感謝致します。

日本原子力研究開発機構研究員渡辺淑之氏、吉松潤一氏には、直属の先輩として丁寧な御指導を賜り、大変多くのことを学ばせて頂きました。心から御礼申し上げます。共同で研究を実施した泉裕太氏、中筋俊樹氏をはじめ、研究室の皆様には研究生生活に関して多くの援助を頂き、非常に有意義な時間を過ごすことができました。深く感謝致します。皆様のご支援なくして本研究を遂行する事は困難であり、惜しめない支援を頂きましたことに深く感謝し、御礼申し上げます。

最後に、長きに亘る学生生活を経済的及び精神的にくれた両親に、心から感謝の意を表します。

2014年3月

於 京都

山本 泰功