九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

乾式貯蔵条件下における燃料被覆管内の水素の再分布とその機械的性質への影響

橋爪，健一
九州大学大学院総合理工学研究科先端エネルギー理工学専攻

波多野，雄治
富山大学水素同位体機能研究センター

関，ルミ
日本原子力発電（株） | 九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻

杉崎，昌和
九州大学大学院総合理工学研究科先端エネルギー理工学専攻

https://doi.org/10.15017/16566

出版情報：九州大学大学院総合理工学報告．21（3），pp.281-288，1999-12．九州大学大学院総合理工学研究科
バージョン：
権利関係：

九州大学大学院総合理工学研究科報告
第21巻 第3号 281－288頁 平成11年12月

Engineering Sciences Reports, Kyushu University
(KYUSHU DAIGAKU SOGORIKOGAKU KENKYUKA HOKOKU)
Vol. 21, No. 3 pp. 281－288 DEC. 1999

乾式貯蔵条件下における燃料被覆管内の水素の再分布とその機械的性質への影響

橋爪健一*・波多野雄治**
関　ルミ***・杉崎昌和*

(平成11年8月30日　受理)

Redistribution of Hydrogen in Fuel Cladding and Its Influence on Mechanical Properties of Cladding under Dry Storage Conditions

Kenichi HASHIZUME*, Yuji HATANO**,
Rumi SEKI*** and Masayasu SUGISAKI*

Hydrogen redistribution process in Zircaloy cladding of spent fuels was evaluated under the thermal condition of dry storage. Charpy impact test was carried out at temperatures from room temperature to 523 K on two kinds of Zircaloy specimens including 400 wt-ppm of hydrogen: One is the specimen in which hydrogen (hydride) is uniformly distributed and the other in which hydrogen is nonuniformly distributed. These tests show that the impact strength of the specimen with non-uniform hydrogen distribution is larger than that of the specimen with uniform distribution. On the basis of these results, the possibility that the impact strength of the cladding including large amount of hydrogen is degraded during the dry storage was suggested; e.g. in the case of the cladding including 400 ppm hydrogen, the uniform distribution of hydrogen is realized when the cladding is heated up to 773 K.

1. 緒　　言

使用済核燃料は原子炉から取り出されて再処理されるまでの間，放射能と崩壊熱の減衰を目的として一定期間使用済核燃料プール内で水冷，貯蔵される．稼働する原子炉数の増加に伴い使用済核燃料の排出量も増加しているが，国内に商業ベースで稼動する再処理施設が完成していない現状では，使用済燃料をプール貯蔵するには容量的に限界が生じてきている．乾式貯蔵は，プールでの冷却後から再処理までの中間貯蔵を目的として国内外で提案，検討されている貯蔵法であり[1)-9)]，プール貯蔵量の低減化ばかりでなく使用済燃料運搬用キャスクなどを利用するためプール貯蔵に比べ経済的であり，廃棄物の排出量も少ないという特長を有している．

乾式貯蔵では原子炉から取り出され5年間程度プール貯蔵したあとの燃料を再処理されるまでの数年から数十年の期間貯蔵する．この場合の問題は，原子炉からの取出し直後のような高い崩壊熱はないものの，貯蔵条件によっては200～400℃程度の温度まで燃料温度が上昇し，燃料が長期間高温に曝される点にある．このような温度条件下で懸念されるのはクリープをはじめとしたジルカロイ製被覆管の劣化である．そのような劣化現象の一つとして水素の再分布に伴う被覆管材料の機械的性質の変化が挙げられる．

水素のピックアップ現象として知られているように，燃料被覆管には原子炉運転中に冷却水との反応により生成した水素の一部が溶解する．水素溶解量は，運転履歴，炉のタイプ等によって異なるが，高燃焼度化が進められている燃料では約400wt-ppmという水素濃度に達する．ただ，この固溶した水素は被覆管に均一に分布するのではなく，主に被覆管外周部に水素化物として偏在していることが知られており，被覆管外周部は生成した水素化物により脆化しているものの，内周部は健全な状態を保っていると考えられる．しかし，乾式貯蔵では貯蔵期間が長期にわたるため，水素がどのように再分布し，それが被覆管の機械的性質にどのように影響を及ぼすかは明らかではない．

本研究では，まず，被覆管内の水素の分布状態が被覆管の耐衝撃性に及ぼす影響を知るために，使用済燃料被覆管を模擬した不均一な水素濃度分布を持ったジルカロイ試料と均一に分布した試料の2種類の試料を準備し，シャルピー試験を行った．さらに，水素の熱

*先端エネルギー理工学専攻
**材料開発工学専攻
(現在　富山大学水素同位体機能研究センター)
***材料開発工学専攻修士課程
(現在　日本原子力発電㈱)

拡散を考慮した拡散方程式を数値解析することによって，乾式貯蔵中に生じる水素の再分布の様子とその特徴を明らかにし，これらの結果をもとに乾式貯蔵条件下における燃料被覆管の機械的健全性について議論した．

2. ジルカロイのシャルピー試験

2.1. 試 料 調 製

直径12mmのジルカロイ－2丸棒からJIS規格のハーフサイズのシャルピー試験用試料（5×10×55mm³）を切り出した．試料中に含まれる添加元素および不純物量を **Table 1 A** および **1 B** にそれぞれ示す．この試料に気体吸収法により793Kにて水素を100あるいは400wt-ppm固溶させた．次に，試料内の水素濃度を均一化するために石英ガラス管中に真空封入し，773Kで17日間拡散焼鈍を行った．一部の試料について試料の両端および中央部の一部を切断し，その試料片中の水素濃度を定量し，水素濃度分布が均一化したことを確認した．水素濃度の決定は，試料片から1273Kで水素を真空抽出し，抽出した水素を容量法によって定量することによって行った．なお，室温ではジルコニウムの α 相中の水素の固溶限が1ppm以下であるので，試料内で水素は水素化物（ZrH_{2-x}，δ 相）として存在しており，773Kでは α 相中の水素の固溶限が400ppmを越えるので，水素は金属相中に溶解している[10]．

不均一な水素濃度分布を持つ試料については，水素の熱拡散現象を利用した方法，すなわち試料を温度勾配下で加熱処理する方法で調製した．温度勾配での水素の拡散流束 J は次式で表される．

$$J = -D\left(\frac{\partial C}{\partial x} + \frac{Q^* C}{RT^2}\frac{\partial T}{\partial x}\right) \qquad (1)$$

ここで，D は水素の拡散係数，C は水素濃度，x は座標，Q^* は水素の輸送熱，R は気体定数，T は絶対温度である．水素は輸送熱の符号にしたがって，正の値ならば低温側へ，負の値ならば高温側へ拡散流が生じる．ジルカロイ中の水素の輸送熱は正の値であり低温側に拡散流を生じる．試料の熱拡散処理は次のような手順で行った．まず，400wt-ppm水素を均一に固溶させた試料を **Fig. 1** に示す試料に温度勾配をかける装置にセットした．試料の過度の酸化を防ぐために 10^{-5} torr程度で真空引きを行いながら，試料を594Kに加熱した．次に，試料上下のヒーターブロックの温度を調整し，80℃/cmの温度勾配をかけた．温度勾配をかける方向は，**Fig. 2** に示すように，試料の10mm方向（以下，Type-A試料と呼ぶ）あるいは5mm方向（以下，Type-B試料）とした．試料温度は試料端部2カ所に点溶接したクロメルーアルメル熱電対によってモニターした．

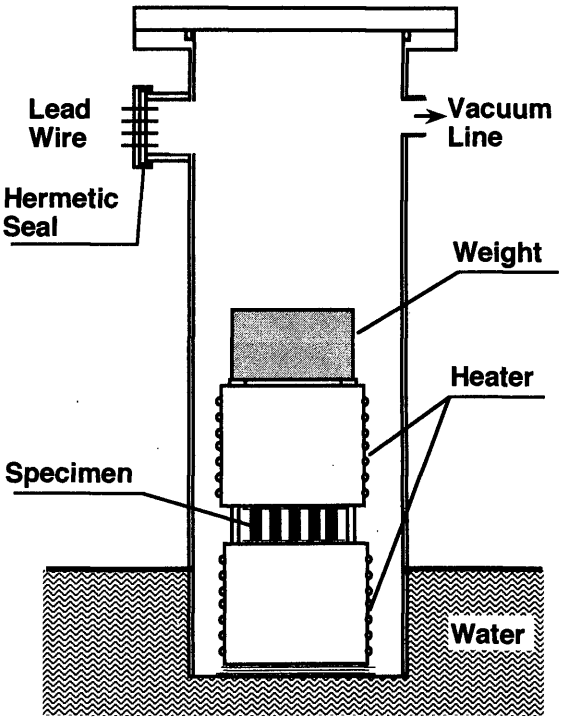

Fig. 1　Schematic diagram of apparatus for thermal-annealing specimens in temperature gradient.

熱拡散処理の時間は(1)式の熱拡散を考慮した拡散方程式

$$\partial C/\partial t = -\partial J/\partial x = \frac{\partial}{\partial x}\left\{D\left(\frac{\partial C}{\partial x} + \frac{Q^* C}{RT^2}\frac{\partial T}{\partial x}\right)\right\} \qquad (2)$$

Table 1 A　Composition of Zircaloy-2 specimen for Charpy impact test

Element	Cr	Fe	Ni	O	Sn	Zr
Composition (wt%)	0.10～0.11	0.16～0.18	0.06～0.07	0.11～0.13	1.40～1.48	balance

Table 1 B　Impurity content of specimen (as-received material)

Element	H	N	C	Al	Si	Hf
Content (ppm)	3～8	26～29	81～97	21～27	40～50	51～52

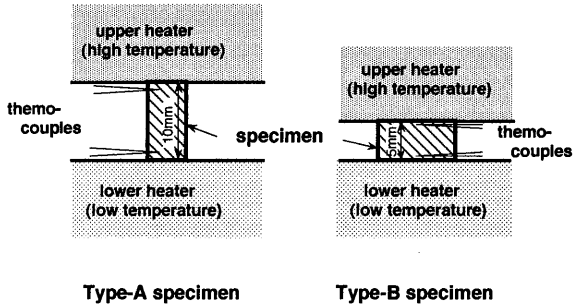

Fig. 2 Schematic description of temperature gradient imposed to specimens.

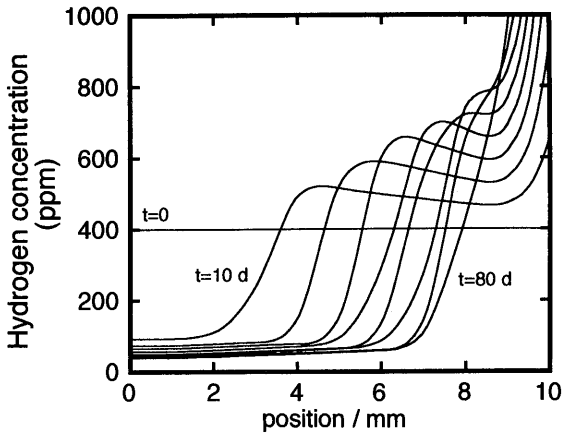

Fig. 3 Change of hydrogen concentration distribution with time due to thermomigration. Average temperature is 594 K and the magnitude of temperature gradient is 80 K/cm.

を数値解析し水素の再分布を調べることによって決定した．数値解析は次の仮定の下で行った．

(1) δ 相中の水素の拡散係数は α 相中に比べ非常に小さいので，δ 相中の水素の拡散は無視し，水素は α 相中のみを拡散するものとする．水素の拡散係数は多くの研究者によって報告されているが，本解析では Hashizume ら[11]によって報告された次の値を使用した．

$$D(\mathrm{cm^2/sec}) = 6.9 \times 10^{-3} \exp\left(-44.5\ (\mathrm{kJ/mole})/RT\right) \tag{3}$$

また，水素の輸送熱も多くの研究者[12)-17)]によって報告され，温度に依存することが知られているが，ここでは +27 kJ/mole という一定の値を用いた．

(2) α 相中の水素濃度が固溶限を越えたときにの δ 相の析出，逆に α 相中の水素濃度が固溶限以下となる場合の δ 相の分解の速度は水素の拡散に比べ十分に早い[18]ものとする．すなわち，相変化の律速過程は α 相中の水素の拡散とする．なお，本解析では，δ 相の組成は温度に関係なく $ZrH_{1.4}$ とし α 相と δ 相の密度の違いは無視した．また，α 相の水素の固溶限は

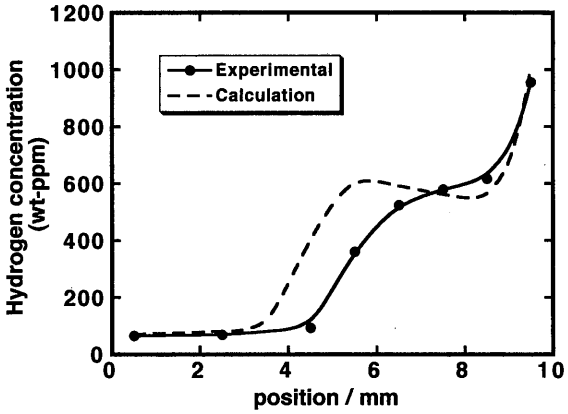

Fig. 4 Comparison between experimental and theoretical hydrogen concentration distributions after heat treatment of thermomigration for 24 days. Average temperature is 594K and the magnitude of temperature gradient is 80 K/cm.

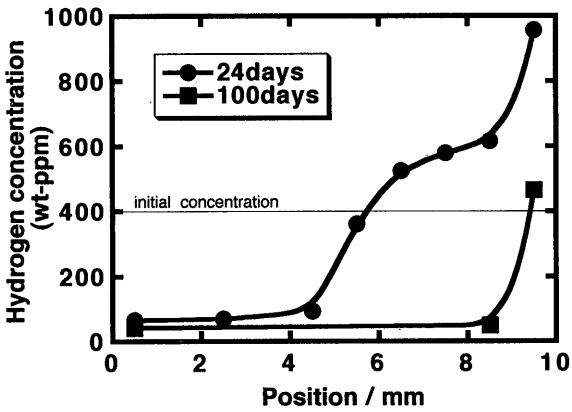

Fig. 5 Experimental hydrogen concentration distribution in Type-A specimen after heat treatment of thermomigration for 24 and 100 days. Average temperature is 594K and the magnitude of temperature gradient is 80 K/cm.

Slattery[19] によって報告された次の値を用いた．

$$C(\mathrm{wt\text{-}ppm}) = 5.2 \times 10^4 \exp\left(-32\ (\mathrm{kJ/mole})/RT\right) \tag{4}$$

以上のような仮定の下に，(2) 式を差分近似して数値解析を行った．**Fig. 3** に初期水素濃度 400ppm について10日ごとの水素濃度の計算結果を示す．この図から，水素の再分布は次のように進行することがわかる

(1) 拡散の初期に熱拡散により高温側の水素濃度が α 相の固溶限以下に急速に低下し，低温側では水素化物の集積が始まる．

(2) さらに拡散時間が経過すると，水素化物がステップ状の濃度分布を形成し，これが徐々に低温側に移動する．

(3) 最終的に水素化物相は低温側に集積する．

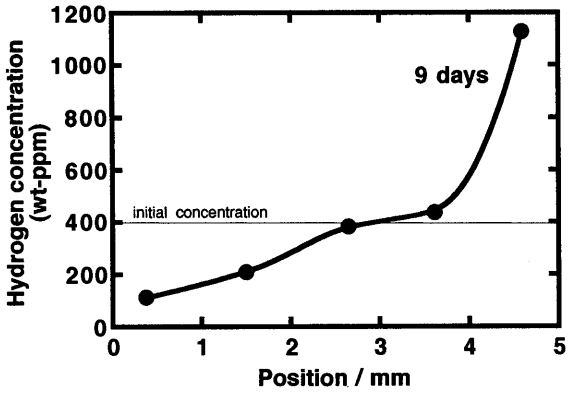

Fig. 6　Experimental hydrogen concentration distribution in Type-B specimen after heat treatment of thermo-migration for 9 days. Average temperature is 594 K and the magnitude of temperature gradient is 80 K/cm.

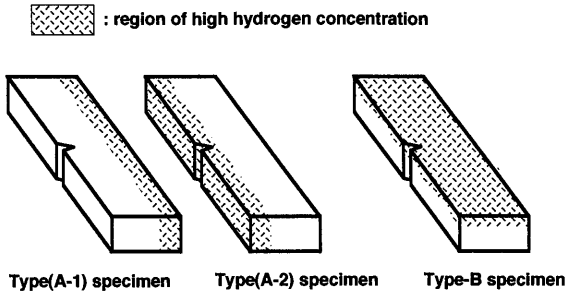

Fig. 7　Relation between V-notch position and hydrogen concentration distribution.

この解析に基づき，熱拡散の処理時間を Type-A 試料については24日及び100日とし，Type-B 試料については9日とした．熱拡散処理後の濃度分布を，各試料を温度勾配方向に約1㎜ごとに切断し，切断片中の水素濃度を前述の方法で定量して求めた．Type-A 試料（24日熱拡散処理）について解析との比較を **Fig. 4** に示す．定量分析の結果は若干のずれはあるものの数値解析の結果得られた特徴をよく表している．**Fig. 5** および **Fig. 6** に Type-A，Type-B 試料内の水素濃度分布の定量分析結果をまとめて示す．

2.2.　シャルピー試験

シャルピー試験はVノッチ（先端部0.25㎜R，ノッチ角度45°，深さ2㎜）加工を施した試料について室温から523Kの温度範囲で行った．Type-A 試料においては，**Fig. 7** に示すようにノッチ位置を低水素濃度側とした試料を Type (A-1) 試料，また，高水素濃度側とした試料を Type (A-2) 試料と呼ぶ．

Fig. 8 に受入材，100ppm，400ppm 均一水素分布試料のシャルピー試験結果を示す．室温では 100ppm でも衝撃エネルギーは約10 J/cm² と小さいが，523Kでは50 J/cm² まで衝撃エネルギーは上昇している．400 ppm では523Kにおいてもほとんど衝撃エネルギーは

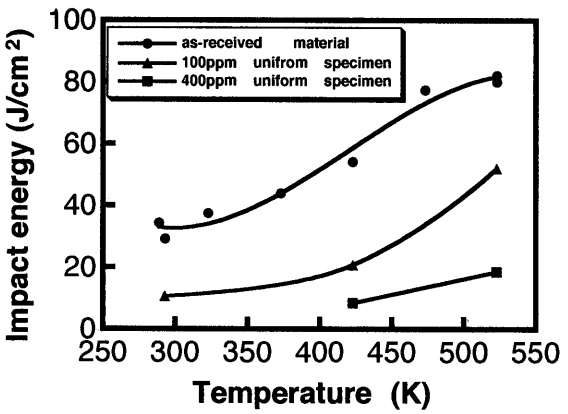

Fig. 8　Experimental data of Charpy impact test for specimens with uniform distribution of hydrogen.

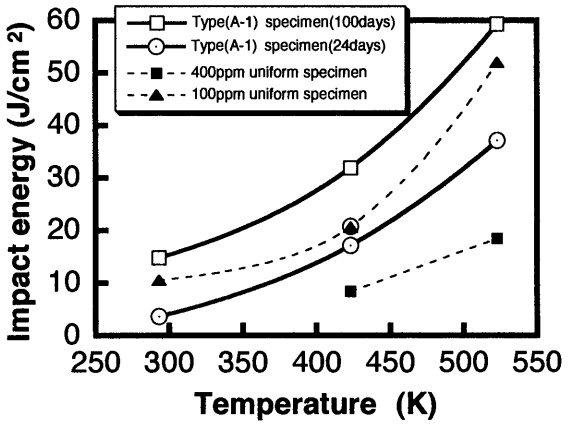

Fig. 9　Experimental data of Charpy impact test for Type (A-1) specimen.

上昇していない．**Fig. 9** は Type (A-1) 試料の結果を100ppm，400ppm 均一水素分布試料の結果とともに示したものである．Type (A-1) の24日間熱拡散処理試料では，水素の低濃度側にVノッチを入れたため，シャルピー試験時に破壊した領域の平均の水素濃度は400ppm を超えているにもかかわらず衝撃エネルギーの上昇が見られ，さらに100日間熱拡散処理試料では100ppm 均一水素分布試料の値を超えている．これらの実験結果は，同じ水素固溶量でも均一に水素が溶解しているよりも水素が偏在し，水素濃度の低い領域が存在する方が衝撃に対する抵抗性が優れていることを示している．**Fig. 10** は Type (A-2) と Type-B 試料の結果を 100ppm，400ppm 均一水素分布試料の結果とともに示したものである．Type (A-2) と Type-B ともに 400ppm 均一水素分布試料よりも衝撃値は上昇しているものの，その値はあまり大きくない．Type (A-2) では水素化物の領域にVノッチ加工しているので破断領域の平均の水素濃度は 400ppm を下回っている．それにも関わらず衝撃値は Type (A-1) とほぼ同程度である．これは，初期クラックの発生位置が耐衝撃性に

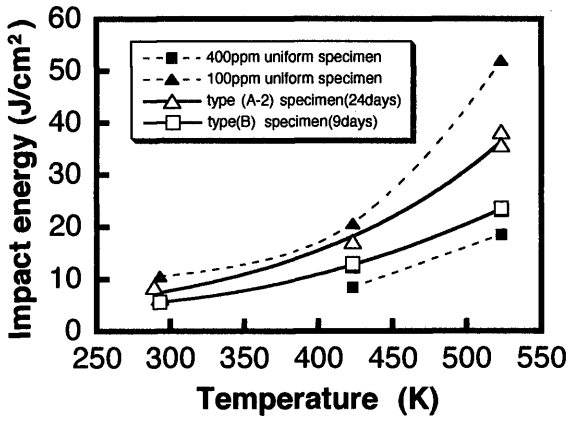

Fig. 10 Experimental data of Charpy impact test for Type (A-2) and Type-B specimens.

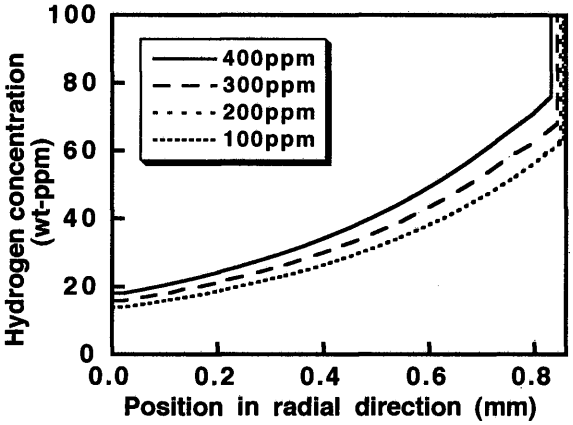

Fig. 11 Hydrogen distribution in radial direction of BWR fuel cladding tube.

影響した例と考えることができる．すなわち，Type (A-2) 試料では，Vノッチ先端が水素化物領域に位置するため，Type (A-1) の α 相の場合と比べ初期クラックが進展しやすく，結果として衝撃値があまり上昇しなかったものと考えられる．また，Type-B で衝撃値があまり改善されなかった大きな原因は，低水素領域の水素濃度が 100ppm を超えていたためと考えられる．

以上の結果から，水素固溶量が多くてもそれが偏在し，特に水素溶解量が 100ppm 以下の領域が存在すれば水素が均一に分布している場合よりも衝撃エネルギーが上昇することが明らかになった．

3. 乾式貯蔵時の水素の再分布

3.1 原子炉運転中の水素ピックアップ

乾式貯蔵時の水素の再分布を調べるためには，まず，初期濃度分布すなわち原子炉から取り出された燃料の被覆管内の水素濃度分布を知る必要がある．運転中の原子炉内では，被覆管の水素ピックアップとその後の水素の溶解，集積は次のような過程を経て進行する．

(1) まず，冷却水とジルカロイ被覆管の反応によって生じた水素の一部は表面の酸化物層を透過し，ジルカロイ内に侵入拡散する．この際，水素の溶解速度は被覆管温度に依存するため，水素溶解量は被覆管の軸方向で異なる．水素の再分布は被覆管の軸方向と径方向の両方を調べる必要があるが，軸方向と径方向では水素の拡散距離がそれぞれ約 4 m と約 1 mm と極端に異なるため，拡散の様子も大きく異なる．水素の再分布に要する時間を拡散の特性時間 τ ($= d^2/\pi^2 D$, d：拡散距離) で表すと，水素の拡散係数が 10^{-7}cm²/sec のオーダーであることから，径方向では水素の拡散時間は 1 日程度となり，原子炉内での運転時間である約 3 年に比べ短くなる．このため，原子炉運転中は定常水素濃度分布（ただし，熱拡散の効果を考慮した分布）に近い状態を維持しながら水素量は増加していくと考えられる．一方，軸方向は拡散時間が約 5×10^5 年となり，原子炉の運転時間に比べ非常に長くなることから，実質的に運転中の軸方向の拡散を考慮する必要はない．

(2) 径方向について，水素ピックアップが進み水素濃度が α 相中の固溶限を越えると水素化物の析出が始まる．被覆管外周部の温度が最も低く溶解限も低いため，被覆管外周部で水素化物の集積が起こる．

最終的に，原子炉の運転終了とともに使用済燃料は取り出されプール内に貯蔵される．なお，プール内の温度では水素の拡散係数も小さく，また，α 相の水素の固溶限も 1 ppm 程度で水素はほとんど水素化物として存在するので，この期間の水素の再分布は無視し得る．以上の原子炉内およびプール冷却時における水素の挙動に関する特徴から，本解析では被覆管径方向については，(2) 式の数値解析の結果から得られる水素濃度分布を乾式貯蔵時の初期水素濃度とした．また，軸方向については使用済燃料の軸方向の水素濃度分布を乾式貯蔵の初期濃度と見なした．

原子炉内での径方向の水素濃度分布の解析は (2) 式の熱拡散方程式を円筒座標系において数値解析する事によって行った．計算は PWR および BWR について行ったが，ここでは，BWR の例を紹介する．計算のための条件は，被覆管厚み0.85mm，内面温度641K，外面温度568Kである．また，水素吸収の条件として，60ヶ月かけて 55GWd/t の高燃焼度まで燃焼し，一様速度で酸化が起こり表面酸化物厚さが 80μm となり，発生水素の 8 %が被覆管に溶解し最終的に 400ppm に達するというデータを例として用いた．解析の際，前述のように水素の輸送熱は +27 kJ/mole とした．また，被覆管の酸化による被覆管の減肉も考慮した計算を行ったが，結果的に水素の分布には大きな影響が見られなかったため，被覆管厚さは変化しないとした．被覆管内での水素濃度分布の計算結果を **Fig. 11** に示す．原子炉内で15ヶ月ごとに相当する 100ppm から 400ppm

まで水素の溶解量ごとにプロットしている．水素分布で特徴的な点は，水素化物層が被覆管外周に集積するため，水素溶解量が増えても水素化物層の厚さが増加するだけで，内側の水素濃度分布は余り変化しない点にある．なお，この温度条件では，内側の水素濃度は15～70ppm となった．

3.2 乾式貯蔵中における水素の再分布

使用済燃料が乾式貯蔵されるとき，被覆管は燃料の崩壊熱によって加熱されるが，径方向には原子炉内のような温度勾配は形成されずほぼ等温状態と見なすことができる．一方，軸方向には，崩壊熱の分布があるために，温度分布が形成される．**Fig. 12** に実験的に得られた各種雰囲気下での軸方向の被覆管温度分布（文献7）から読みとったもの）を示す．

径方向の水素の再分布は，α，δ の2相共存状態での等温焼鈍と見なすことができる．ここでは 400ppm 溶解した試料について573，673および773Kでの等温焼鈍下での結果を **Fig. 13** から**15**に示す．どの温度でも，数10分から数時間の内に水素濃度分布は定常値に達しその後は変化していない．すなわち，被覆管外周の水素化物が分解し，α 相中に水素が流れ込むが，その温度での固溶限に達すると水素の化学ポテンシャルは径方向に一定となるため，そこで水素濃度分布は定常分布に達してしまう．この状況を実験的に調べた結果が **Fig. 16** である．この図は，前出の Type (A-1) 試料を573Kで33日間等温焼鈍した後の水素濃度分布であり，濃度分布に変化はないことが確認できる．以上のように，α 相中の水素が十分に拡散できる温度であっても水素濃度が固溶限を超えていれば水素の再分布は起こらず，水素の低濃度領域は残留することになる．一方，773Kのように固溶限が高くなる場合には短時間の内に径方向に水素濃度は均一化する．

軸方向の水素の再分布の解析では，初期濃度分布が必要であるが，公表されている実験データが無いため，本解析では酸化物の軸方向の生成量の実験データから水素濃度分布を推定した．すなわち，水素の溶解量が酸化物の生成量と比例するものとして，酸化物の軸方向の生成量の実験データ[20]から，BWR および PWR についてそれぞれ水素の最大溶解量が 400ppm となるように算出して初期濃度分布とした．乾式貯蔵時の軸方

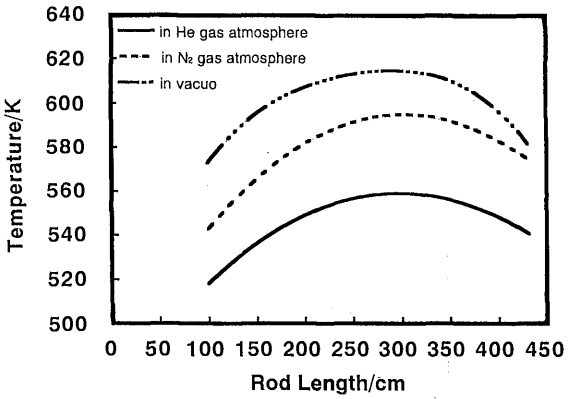

Fig. 12　Example of temperature distribution in cladding tube in several ambient gases during dry storage.

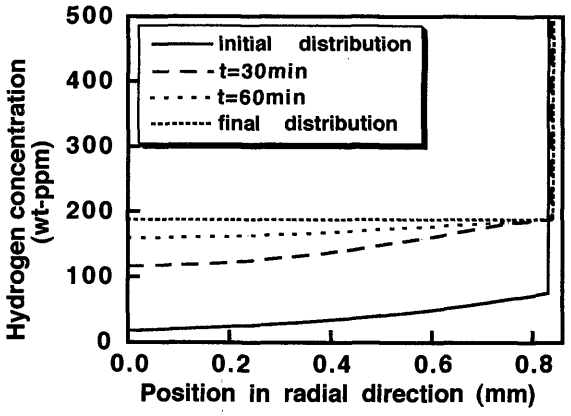

Fig. 14　Example of redistribution of hydrogen in the radial direction of BWR cladding tube at 673 K.

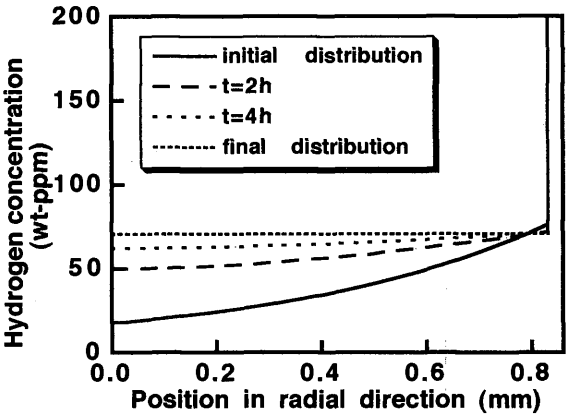

Fig. 13　Example of redistribution of hydrogen in the radial direction of BWR cladding tube at 573 K.

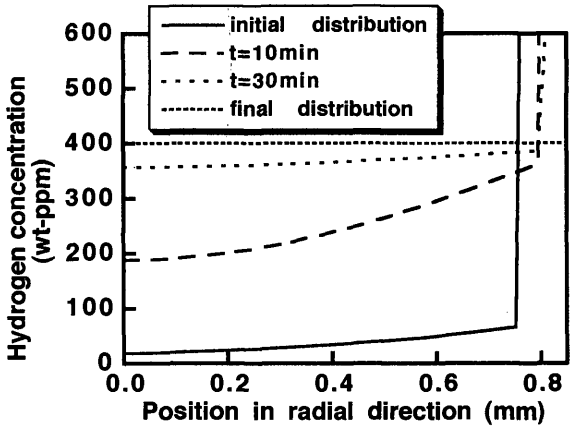

Fig. 15　Example of redistribution of hydrogen in the radial direction of BWR cladding tube at 773 K.

向の温度分布は **Fig. 12** の窒素中のデータを利用し，温度分布の経時変化は無く，また，被覆管長さを370cmとして式(2)を数値解析して，軸方向の水素の再分布を求めた．その結果をBWRとPWRについて **Fig. 17** および**18**に示す．BWRとPWRで初期水素濃度分布は異なるものの，いずれの場合も拡散距離が非常に大きいことから，100年経過後の計算結果においても上下端部の水素量が若干増加するのみであり，被覆管の機械的性質の変化の上で注目する必要のある水素の最大濃度領域の位置は大きく変化しなかった．

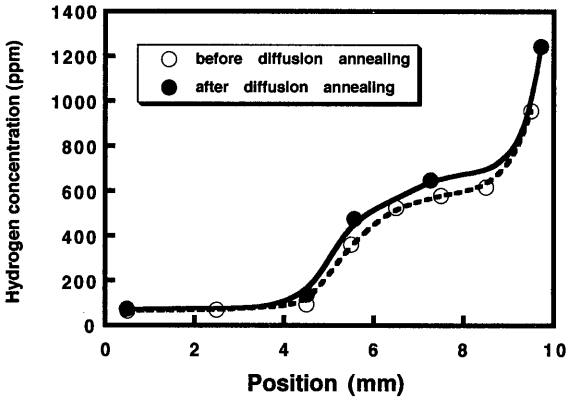

Fig. 16　Hydrogen concentration distribution in Type (A-1) specimen after isothermal annealing at 573 K for 33 days.

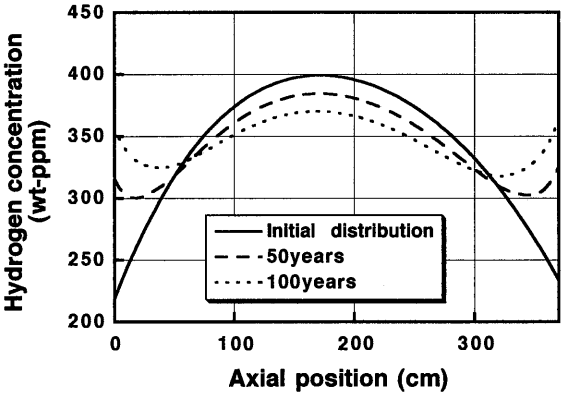

Fig. 17　Example of redistribution of hydrogen in the longitudinal direction of BWR cladding tube during dry storage.

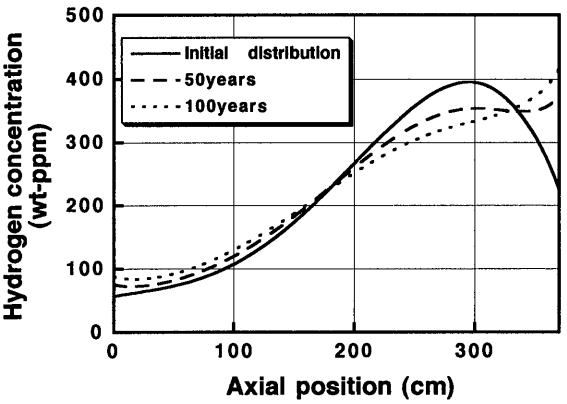

Fig. 18　Example of redistribution of hydrogen in the longitudinal direction of PWR cladding tube during dry storage.

4. 考　　察

4.1 水素分布の機械的性質に対する影響

ジルコニウム合金の水素化による機械的性質の劣化は以前からよく調べられており，シャルピー試験についても，均一に水素が固溶した試料について水素溶解量，温度などをパラメータとした衝撃エネルギー値が報告[21]されている．試料寸法が研究者によりまちまちであり，衝撃エネルギーは試料寸法にも依存するため直接の比較はできないものの，DBTT（延性脆性遷移温度）という点から見れば本研究の結果は過去の報告値にほぼ一致しており妥当なものと考えられる．

燃料被覆管を模擬した不均一に水素が分布した試料の場合，同じ量の水素が固溶しても均一分布の試料ほど衝撃エネルギーは低下せず，特に100ppm以下の水素濃度領域が存在していた方が耐衝撃性に優れていた．この水素の分布状態と機械的性質の関係は，使用済燃料被覆管においても実現され，被覆管の健全性に寄与しているものと考えられる．

4.2 被覆管内の水素の再分布

原子炉運転中の被覆管内の径方向の水素の分布については Asher & Trowse による定常状態とした場合の解析[22]があり，本研究の結果もそれにほぼ一致する．使用済燃料の被覆管内の水素濃度分布を定量的に測定した報告例はないが，被覆管の断面写真などから水素が被覆管外周部に集積していることはよく知られており，原子炉運転中の解析の結果は妥当なものといえる．今回の解析の結果からは，燃料の燃焼度が上がって水素固溶量が増えても，被覆管内部の温度分布に変化がない限り低水素領域の濃度はあまり変化しないことが予測される．しかし，注意しなければならないことは，高燃焼度燃料においては被覆管表面の酸化膜の成長が速まり厚くなることである．これが被覆管からの熱除去を妨げ被覆管温度の上昇につながると，低水素領域の濃度も上昇する．結果として，衝撃に対する抵抗性が従来のものと比べると低下するおそれがある．高燃焼度燃料では運転中の被覆管の健全性を含め，水素脆性という視点からもその健全性に注意を払うが必要がある．

乾式貯蔵中の解析結果からは，径方向については特に高温に曝されない限り水素の再分布は生じず被覆管の衝撃に対する抵抗性は変化しないと予測される．つまり，本研究では拡散と熱拡散の効果にのみ焦点を当てたため，理想的には水素の溶解限を超えない温度で

あれば長期的な変化はおこらないと予測された．ただ，実際の乾式貯蔵中には，(1) 被覆管に加わる応力，(2) ジルカロイ内の析出物，(3) BWR 燃料の場合のジルコニウムライナー，などの影響があるため，比較的低温における水素の再分布でもこのような点を考慮する必要があると思われる．一方，再分布が生じるような高い温度例えば773Kに曝された場合，水素は数十分という短時間の内に均一に分布してしまい，室温に戻った段階で水素脆化を起こす．従って，このような温度に曝されることは短時間でも避けなければならない．

最後に，乾式貯蔵に関して燃料被覆管の機械的性質が問われるのは，室温で使用済燃料集合体が剥き出しになる燃料のハンドリング，例えばキャスクからの取り出し，移動などの時点と考えられる．この際の燃料破損は最もさけなければならない事象である．本研究の結果から，水素濃度が 100ppm を超えるとジルカロイの室温での脆化が顕著になることから，乾式貯蔵中の温度条件として水素の固溶限が 100ppm を超えない573K以下であることが必要と考えられる．

5. 結　　言

水素溶解量が同じで，均一な水素濃度分布と不均一な水素濃度分布ジルカロイ試料のシャルピー試験の結果，不均一な水素濃度分布を持つ方がシャルピー衝撃値は高い値を示した．乾式貯蔵時の被覆管内での水素の径方向の再分布の解析結果から，乾式貯蔵時の温度を原子炉内での被覆管温度（約573K）以下に保持すれば，水素の再分布量は少なく，燃料取り出し時の低水素濃度領域が維持される．このため，衝撃に対する機械的性質は劣化しないと考えられる．一方，貯蔵温度が高くなれば，水素の再分布量が増え，773Kでは 400ppm の水素が完全に再分布し，短時間の内に被覆管内の低水素濃度領域が失われるため，衝撃に対する機械的性質も劣化すると考えられる．被覆管軸方向の水素の再分布には非常に長い時間が必要なため，衝撃に対して最も注意しなければならない水素濃度の高い領域は乾式貯蔵中にほとんど変化しない．

謝　辞

シャルピー試験に際し，試験機の使用の許可と使用法のご指導をいただいた九州大学工学研究科高木節雄教授に感謝いたします．本研究は，文部省科学研究費補助金 B (2)（＃06558071）「使用済み燃料の乾式キャスク貯蔵時における燃料棒内の化学的経時変化の評価法の確立」による補助を受けた．

参　考　文　献

1) D. E. Blackburn, D. G. Farwick, S. R. Field, L. A. James and R. A. Moen, "Maximum Allowable Temperature for Storage of Spent Nuclear Reactor Fuel", HEDL-TME-78-37, Hanford Engineering Development Laboratory (May 1978).
2) R. E. Einziger, S. D. Atkin, D. E. Stellrecht and V. Pasupathi, Nucl. Technol., **57**, 65 (1982).
3) A. B. Johnson, Jr. and E. R. Gilbert, "Technical Basis for Storage of Zircaloy-Clad Spent Fuel in Inert Gases", PNL-4835 (1983).
4) M. Peehs and Fleish, J. Nucl. Mater., **13**. 190 (1986).
5) B. A. Chin, M. A. Kahn, J. C. L. Tarn and E. R. Gilber, "Deformation and Fracture Map Methodology for Predicting Cladding Behavior during Dry Storage", PNL-5998 (1986).
6) I. S. Levy, C. E. Beyer, B. A. Chin, E. R. Gilbert, E. P. Simon and A. B. Johnson, Jr., "Recommended Temperature Limits for Dry Storage of Spent Light Water Reactor Zircaloy-Clad Fuel Rods in Inert Gas", PNL-6189 (1987).
7) 有冨正憲，青木成文，三枝利有，川崎了，落合政昭，日本原子力学会誌，**31**，331 (1989).
8) H. Yamakawa, Y. Gomi, S. Ozaki and A. Kosaki, "Establishment of Cask Storage Method for Storing Spent Fuel: Evaluation on Heat Transmission Characteristic of Storage Cask", CRIEPI Rep. U92038 (1992).
9) T. Saegusa, M. Mayuzumi, C. Ito and K. Shirai, J. Nucl. Sci. Technol., **33**, 250 (1996).
10) J. J. Kearns, J. Nucl. Mater., **22**, 292 (1967).
11) K. Hashizume, M. Sugisaki, K. Hatano, T. Ohmori and K. Ōgi, J. Nucl. Sci. Technol., **31**, 1294 (1994).
12) A. Sawatzky, J. Nucl. Mater., **2**, 321 (1960).
13) A. Sawatzky, J. Nucl. Mater., **9**, 364 (1963).
14) A. Sawatzky and B. J. S. Wilkins, J. Nucl. Mater., **22**, 304 (1967).
15) S. Morozumi, M. Kitada, K. Abe and S. Koda, J. Nucl. Mater., **33**, 261 (1969).
16) M. Sugisaki, H. Furuya, H Sekiya and K. Hashizume, Fusion Technol., **14**, 723 (1993).
17) K. Hashizume, M. Hayakawa, M. Koganemaru and M. Sugisaki, Defect Diffusion Forum, **95-98**, 323 (1993).
18) J. J. Kearns, J. Nucl Mater., **27**, 64 (1968).
19) G. F. Slattery, J. Inst. Metals, **95**, 43 (1967).
20) "軽水炉燃料のふるまい", 原子力安全研究協会 (1992).
21) 例えば, C. E. Coleman and D. Hardie, J. Less-Comm. Met., **11**, 168 (1966).
22) R. C. Asher and F. W. Trowse, J. Nucl. Mater., **35**, 115 (1970).