

審査の結果の要旨

氏名 宇田川 豊

軽水炉運転条件下ではジルコニウム合金被覆管表面に腐食が生じ、金属層中に水素が吸収される。事故・異常過渡等、通常運転条件を上回る応力負荷が生じる様々な条件下では、水素吸収量の増加に伴う燃料破損限界低下が報告されている。被覆管の健全性に及ぼす水素の影響を正確に把握し、これに基づいて合理的な評価を行うことは、原子炉出力増強・高燃焼度化等今後進展する燃料利用高度化に対応していく上で、軽水炉の安全評価における中心的課題となっている。

本論文は、原子論的手法の適用によりジルコニウム結晶構造・欠陥構造に遡って水素原子の影響を明らかにし、水素脆化プロセスの理解を進め、これらを通じて水素脆化に係る燃料安全評価の合理化と説明性向上に資することを目的として、第一原理計算・分子動力学計算に代表される原子論的手法に基づいた研究の成果を取りまとめている。

論文の第1章は序論であり、軽水炉燃料の事故時安全評価に関する背景と課題をまとめ、上記の本研究の目的を述べている。

第2章は、ジルコニウム水素脆化に係る今日までの知見を脆化メカニズムに主点をおいてまとめ、水素吸収から脆化発現までの流れを複数のプロセスの集合として関連づけ、整理している。また、脆化プロセスの整理を通じ、特に水素化物の形成から応力集中の発生に到るプロセス、また応力集中の発生から固溶体の割れに到るプロセスの検証・理解が停滞しているとの認識に立ち、これらの検証を進めるための課題を取りまとめ、水素を吸収したジルコニウムの破壊挙動は微視的には水素化物、水素固溶体と両者の界面の負荷に対する応答に帰着でき、微視的スケールから正確な情報、知見を積み上げ、マクロな挙動や静的な観察から類推された諸仮説の検証材料とすることで、破壊・脆化現象の理解を進めることが可能となるとしている。

第3章は、ジルコニウム結晶の延性・脆性挙動を、内包するき裂の進展の起こり易さとして捉え、面欠陥特性とこれに対する水素の影響の第一原理計算評価を実施した結果をまとめている。この結果、固溶体、水素化物共に、水素濃度の増加に伴い表面エネルギーは線形的に減少することを明らかにし、水素による自由表面形成の助長が水素化物の脆性に寄与することを示している。また固溶体の表面最小エネルギー経路は純ジルコニウム系と変わらず、積層欠陥エネルギーと表面エネルギーがともに水素濃度増加に伴い減少することを明らかにし、水素介在による固溶体中転位易動度上昇を示唆する。一方水素化物の表面エネルギーは純ジルコニウムに比べ極めて大きく、水素化物中転位の格子摩擦が著しく大きくなって、結晶の脆性的ふるまいを助長していることを示した。Riceの*D*パラメータを用いることによって、水素化物内部の割れが水素化物近傍におけるき裂形成をもたらすことを明らかにした。

さらに第3章の後半では、水素化物形成プロセスに及ぼす合金元素の影響の第一原理計算評価に取り組み、稠密六方晶構造ジルコニウム結晶中で固溶水素と合金原子間に結合エネルギーは生じないこと、積層欠陥-水素の結合はスズ介在により底面・柱面共弱まること、表面エネルギーはスズ

により底面で減少、柱面で逆に増加することを明らかにした。これらを総合すれば、ジルカロイにおける底面晶癖水素化物存在比の増大は、柱面上を運動するらせん転位の底面上での分解・拡張がスズ原子近傍で強く促進されることにより、底面晶癖水素化物のソースとなる水素吸着サイトが増加した結果と解釈でき、スズの主な効果は底面上に広がりを持つ水素吸着サイトの安定化であることから、底面上積層欠陥の特性及び底面上積層欠陥と水素の相互作用を反映したジルコニウム水素二元系シミュレーションにより、底面晶癖水素化物の析出核が安定化して以降の界面形成を模擬できる見通しを得た。

第4章では、ジルコニウムの面欠陥特性や水素との相互作用を始めとするジルコニウム水素二元系の物性を再現可能な原子間ポテンシャルの開発に取り組んでいる。最新の Mendeleev らの単元系ポテンシャルをベースとしたポテンシャル及びその柱面 γ 表面再現性を改善した新たな独自のポテンシャルを作成することに成功している。これによって、水素固溶エネルギー、水素化物形成エネルギー、水素化物格子定数等のバルク特性、自由表面や γ 表面等の面欠陥-水素相互作用、空孔-水素相互作用、稠密六方晶構造及び面心立方晶構造中の水素移動エネルギー等多くの物性値の再現に成功した。水素化物については高温条件までのシミュレーションで構造の安定性を確認し、水素化物結晶が混在する系を取り扱えることを示すとともに、鉄水素系の研究と比較して妥当な結合エネルギーが得られることを明らかにした。これらはいずれもジルコニウム系ポテンシャルとして世界で初めての成果であり、固溶体中の欠陥-水素間相互作用や固溶体-水素化物界面が関与すると考えられている諸脆化プロセスの検証手段として、ジルコニウム水素脆化機構解明に貢献するものと考えられる。

これらの成果を踏まえて第5章では結論を述べるとともに、第6章において微視的スケールから水素脆化機構の理解を進めていく上で今後取り組みが必要となる具体的課題を整理している。

以上を要するに、本論文は原子力工学の中核をなす核燃料工学に寄与するところが少なくない。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。